

Микро- и нанoeлектроника. Физика конденсированного состояния
Micro- and nanoelectronics. Condensed matter physics

УДК 538.913, 538.958, 538.975
<https://doi.org/10.32362/2500-316X-2022-10-3-74-84>



НАУЧНАЯ СТАТЬЯ

Анализ поляризации ТГц-излучения с помощью решетчатого поляризатора и кристалла ZnTe

Ф.А. Зайнуллин[@], Д.И. Хусяинов, М.В. Козинцева, А.М. Буряков

МИРЭА – Российский технологический университет, Москва, 119454 Россия

[@] Автор для переписки, e-mail: madflyzero@gmail.com

Резюме

Цели. Химический состав и молекулярная структура органических соединений обладают высокой чувствительностью к терагерцовому излучению. Поэтому терагерцовая спектроскопия во временной области в настоящее время является перспективным методом исследования в области фармакологии и медицины. Однако из-за того, что многие биомолекулы обладают хиральностью, их анализ проводится путем облучения ТГц-излучением с круговым дихроизмом. В частности, круговой дихроизм ТГц-излучения позволяет исследовать «мягкие» колебательные движения биомолекул с различной закрученностью. Точный контроль параметров этого излучения очень важен при исследовании биологических материалов. Цель работы – описать метод, позволяющий охарактеризовать поляризацию ТГц-излучения на примере использования черного фосфора в качестве источника.

Методы. Анализ параметров поляризации ТГц-излучения, экспериментально полученных методом спектроскопии временного разрешения, а также с использованием терагерцовых поляризаторов, проводился путем математического моделирования взаимодействия ТГц-излучения и кристалла ZnTe в качестве детектора.

Результаты. В работе подробно рассмотрены две схемы терагерцовой спектроскопии с кристаллом ZnTe в качестве детектора. Определение параметров поляризации выполнено с использованием одного или двух решетчатых ТГц-поляризаторов. Выведено выражение для аппроксимации зависимостей размаха амплитуды ТГц-излучения от угла поворота решетчатого ТГц-поляризатора для этих случаев. Рассмотрено влияние величины напряженности электрического поля терагерцового излучения на форму поляризационных зависимостей. Определен угол поворота эллипса поляризации ТГц-излучения, испускаемого поверхностью объемного слоистого кристалла черного фосфора при воздействии на него фемтосекундных лазерных импульсов.

Выводы. Амплитуда напряженности электрического поля ТГц-излучения начинает влиять на форму поляризационных зависимостей, когда ее величина становится сравнимой или превышает 40 кВ/см.

Ключевые слова: терагерцовая спектроскопия временного разрешения, эллиптичность, поляризация, электрооптический кристалл, электрооптическое стробирование

• Поступила: 21.02.2022 • Доработана: 13.04.2022 • Принята к опубликованию: 26.04.2022

Для цитирования: Зайнуллин Ф.А., Хусяинов Д.И., Козинцева М.В., Буряков А.М. Анализ поляризации ТГц-излучения с помощью решетчатого поляризатора и кристалла ZnTe. *Russ. Technol. J.* 2022;10(3):74–84. <https://doi.org/10.32362/2500-316X-2022-10-3-74-84>

Прозрачность финансовой деятельности: Авторы не имеют финансовой заинтересованности в представленных материалах или методах.

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

RESEARCH ARTICLE

Polarization analysis of THz radiation using a wire grid polarizer and ZnTe crystal

Farkhad A. Zainullin[@], Dinar I. Khusyainov, Marina V. Kozintseva,
Arseniy M. Buryakov

MIREA – Russian Technological University, Moscow, 119454 Russia

[@] Corresponding author, e-mail: madflyzero@gmail.com

Abstract

Objectives. Terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS) is currently a promising research method in pharmacology and medicine due to the high sensitivity of terahertz radiation to the chemical composition and molecular structure of organic compounds. However, due to the chirality of many biomolecules, their analysis is performed by THz irradiation with circular dichroism. In particular, circular dichroism of THz radiation allows the study of “soft” vibrational movements of biomolecules with different chiralities. Therefore, when studying such biological materials, accurate control of THz radiation parameters is essential. The paper describes a method for characterizing THz radiation polarization on the example of a black phosphorus source material.

Methods. The analysis of polarization parameters of THz radiation experimentally obtained by THz-TDS and using terahertz polarizers was performed by mathematical modeling of the interaction between THz radiation and a ZnTe crystal as a detector.

Results. Two schemes of terahertz spectroscopy with the ZnTe crystal as the detector were discussed in detail. The polarization parameters were determined using one or two wire-grid THz polarizers. An expression for approximating the dependences of the peak-to-peak amplitude of THz radiation on the rotation angle of the wire-grid THz polarizer for these cases was derived. The impact of the terahertz electric field intensity value on the shape of polarization dependences was considered. The rotation angle of the polarization ellipse of THz radiation emitted by the surface of a bulk-layered black phosphorus crystal illuminated by femtosecond laser pulses was determined.

Conclusions. The amplitude of the THz radiation electric field intensity begins to impact the shape of polarization dependences when its value becomes comparable to or exceeds 40 kV/cm.

Keywords: time-resolved terahertz spectroscopy, ellipticity, polarization, electrooptic crystal, electrooptic sampling

• Submitted: 21.02.2022 • Revised: 13.04.2022 • Accepted: 26.04.2022

For citation: Zainullin F.A., Khusyainov D.I., Kozintseva M.V., Buryakov A.M. Polarization analysis of THz radiation using a wire grid polarizer and ZnTe crystal. *Russ. Technol. J.* 2022;10(3):74–84. <https://doi.org/10.32362/2500-316X-2022-10-3-74-84>

Financial disclosure: The authors have no a financial or property interest in any material or method mentioned.

The authors declare no conflicts of interest.

ВВЕДЕНИЕ

В последние годы технология терагерцовой спектроскопии временного разрешения обеспечила точный и простой подход к анализу характеристик материалов. Благодаря неионизирующему взаимодействию и сильной проникающей способности терагерцового излучения можно получать дополнительную информацию о химическом составе или электрон-фононном взаимодействии в образце [1–3]. В отличие от инфракрасной (ИК) и рамановской спектроскопии, терагерцовая спектроскопия очень

чувствительна к молекулярной структуре и межмолекулярным взаимодействиям в кристаллах, что является особенно ценным для медицины при исследованиях в области фармакологии [4]. Кроме того, по сравнению с классическими методами спектроскопии среднего инфракрасного диапазона и рентгеновской дифракцией, ТГц-излучение возбуждает более длинноволновые колебания, такие как фононы в полупроводниковом кристалле или молекулярные колебания в органическом веществе. Поэтому оно может обеспечить высокую надежность при идентификации соединений, которые трудно различимы

другими методами [5]. Для анализа материалов ТГц-излучением используется методика терагерцовой спектроскопии во временной области (THz-TDS). Данная методика используется при анализе слабых межмолекулярных взаимодействий таких, как колебания решетки [6], водородная связь [7], ван-дер-ваальсово взаимодействие [8] и коллективные моды колебаний, определяемые молекулярной конфигурацией, конформацией и общей вибрацией молекул органических веществ [9]. В частности, импульсы терагерцового диапазона с эллиптической поляризацией волны интересны с точки зрения фундаментальной физики и технологического применения. Например, многие биомолекулы имеют хиральную структуру с вращательными/колебательными модами в терагерцовом диапазоне энергий, взаимодействие которых с эллиптически поляризованными ТГц-пучками зависит от поляризации ТГц-излучения и хиральности биомолекул. Это позволяет, в частности, исследовать «мягкие» моды колебательного движения органических молекул с различной закрученностью [10–12]. Поэтому для описания взаимодействия ТГц-импульса с веществом необходимо знать параметры поляризации ТГц-излучения, в том числе эллиптичность и направление вращения вектора напряженности поля [13–15]. Одной из наиболее распространенных модификаций метода THz-TDS является метод электрооптического стробирования, где в качестве детектора ТГц-излучения используется нелинейный оптический кристалл ZnTe (Россия) в двух вариантах детектирования, основанных на измерении модуляции фазы и модуляции амплитуды [16].

В качестве исследуемого источника ТГц-излучения был выбран кристаллит черного фосфора – BP (2dsemiconductors, США)¹, который является одним из самых перспективных составляющих ТГц-устройств в классе слоистых полупроводников. В первую очередь это связано с тем, что черный фосфор является «золотой серединой» между графеном (отсутствие запрещенной зоны) и полупроводниковыми дихалькогенидами переходных металлов (TMDCs), такими как дисульфид молибдена (MoS₂) с относительно большой запрещенной зоной около 2 эВ [15]. Более того, варьируя число слоев от одного до нескольких, можно получать наноразмерные пленки с перестройкой ширины запрещенной зоны от 1.5 эВ до 0.53 эВ [17]. Этот материал обладает высокой подвижностью носителей (существенно большей, чем в TMDCs), которая также зависит от числа слоев в диапазоне от 299 до 3730 см²/В·с у электронов и у дырок – от 337 до 10000 см²/В·с [18, 19]. Это позволяет эффективно поглощать терагерцовое излучение даже

если энергия фотонов ниже энергии запрещенной зоны. Также существует возможность настройки (изменения) ширины запрещенной зоны приложением статического электрического поля [17]. Такая динамическая настройка запрещенной зоны может не только расширить рабочий диапазон длин волн устройств на основе черного фосфора, но и проложить путь для исследования электрически настраиваемых топологических изоляторов и полуметаллов. При этом кристаллит черного фосфора позволяет получать эллиптически-поляризованное ТГц-излучение при облучении линейно-поляризованным фемтосекундным лазерным излучением [13].

В работе подробно рассмотрены два варианта анализа поляризации терагерцового излучения. В первом варианте в THz-TDS для анализа используются два решетчатых поляризатора (WGP – wire-grid polarizer), во втором – используется один.

МЕТОДЫ

Детектирование ТГц-излучения выполняется методом электрооптического стробирования – это один из вариантов метода терагерцовой спектроскопии временного разрешения. Поляризация лазерного пучка зондирования модулируется ТГц-пучком в электрооптическом кристалле ZnTe. При использовании метода модуляции амплитуды [16] после кристалла ZnTe на пути пучка зондирования перед фотодиодом (ThorLabs, США)² устанавливается оптический поляризатор, скрещенный с направлением поляризации пучка. Под действием ТГц-импульса поляризация пучка меняется, и на диоде регистрируется сигнал, пропорциональный амплитуде ТГц-излучения. Далее метод детектирования будет описан более подробно.

Для описания электрооптических эффектов в нелинейных оптических кристаллах рассмотрим вектор электрической индукции для однородной среды:

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E}, \quad (1)$$

где ε_0 – электрическая постоянная; ε – диэлектрическая проницаемость, независимая от направления скалярная величина; \mathbf{E} – вектор напряженности электрического поля. В кристалле диэлектрическая проницаемость может зависеть от направления электрического поля относительно кристаллографических осей. В этом случае диэлектрическая проницаемость является симметричным тензором $\hat{\varepsilon}$, и поле \mathbf{D} в общем случае непараллельно полю электрической напряженности. Можно выполнить преобразование главных осей в ортогональную систему

¹ <https://www.2dsemiconductors.com>, дата обращения 22.12.2019. [<https://www.2dsemiconductors.com>. Accessed December 22, 2019.]

² <https://www.thorlabs.com>, дата обращения 22.12.2019. [<https://www.thorlabs.com>. Accessed December 22, 2019.]

координат, в которой \mathbf{E} и \mathbf{D} связаны через диагональную матрицу:

$$\begin{pmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_3 \end{pmatrix} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_2 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix}. \quad (2)$$

Если диагональные элементы ε_i не все одинаковы, как это происходит в CaCO_3 [20], то кристалл проявляет двулучепреломление.

Плотность энергии электрического поля равна $\omega_e = \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \mathbf{D}$. Используя матрицу (2), можно показать, что поверхности с постоянной плотностью энергии являются эллипсоидами в поле \mathbf{D} :

$$\varepsilon_0 \omega_e = \mathbf{D} \cdot \hat{\varepsilon}^{-1} \cdot \mathbf{D} = \frac{D_1^2}{\varepsilon_1} + \frac{D_2^2}{\varepsilon_2} + \frac{D_3^2}{\varepsilon_3}. \quad (3)$$

Введем безразмерный вектор \mathbf{u} вдоль направления \mathbf{D} по формуле $\mathbf{u} = \frac{\mathbf{D}}{\sqrt{2\varepsilon_0\omega_e}}$, тогда получим уравнение эллипсоида с показателями преломления:

$$\frac{u_1^2}{n_1^2} + \frac{u_2^2}{n_2^2} + \frac{u_3^2}{n_3^2} = 1, \quad (4)$$

где $n_i = \sqrt{\varepsilon_i}$ для немагнитного материала. Определим тензор непроницаемости как:

$$\hat{\eta} = \hat{\varepsilon}^{-1}. \quad (5)$$

С помощью выражения (5) уравнение (3) преобразуется к уравнению эллипсоида:

$$\mathbf{u} \cdot \hat{\eta} \cdot \mathbf{u} = 1. \quad (6)$$

Теллурид цинка имеет кубическую кристаллическую решетку и является оптически изотропным в отсутствии приложенного электрического поля. Это означает, что тензор проницаемости может быть заменен скалярной величиной ε^{-1} , умноженной на единичную матрицу \mathbf{I} . В присутствии электрического поля тензор непроницаемости становится равным:

$$\hat{\eta}(\mathbf{E}) = \varepsilon^{-1} \cdot \mathbf{I} + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}. \quad (7)$$

Второй член (7) описывается эффектом Поккельса, где \mathbf{r} – тензор электрооптических коэффициентов. Электрооптическим эффектом Керра, который является квадратичным по электрическому полю, здесь можно пренебречь, т.к. в кристалле ZnTe

он является пренебрежимо малым по сравнению с линейным эффектом. Следовательно, после подстановки (7) в уравнение (6) уравнение эллипсоида примет вид:

$$\mathbf{u} \cdot \hat{\eta}(\mathbf{E}) \cdot \mathbf{u} = \sum_{i,j=1,2,3} \left(\varepsilon^{-1} \cdot \delta_{ij} + \sum_{k=1,2,3} r_{ijk} E_k \right) u_i u_j = 1. \quad (8)$$

Тензор $\hat{\eta}$ симметричен, поэтому $r_{ijk} = r_{jik}$. Принято заменять первые два индекса i, j тензора \mathbf{r} одним индексом:

$$r_{11k} \rightarrow r_{1k},$$

$$r_{22k} \rightarrow r_{2k},$$

$$r_{33k} \rightarrow r_{3k},$$

$$r_{23k} = r_{32k} \rightarrow r_{4k},$$

$$r_{13k} = r_{31k} \rightarrow r_{5k},$$

$$r_{12k} = r_{21k} \rightarrow r_{6k}.$$

Теллурид цинка ZnTe кристаллизуется в структуре цинковой обманки (zincblende – две гранецентрированные кубические решетки, которые сдвинуты друг относительно друга на четверть пространственной диагонали) [21]. В отсутствие приложенного электрического поля показатели преломления равны, т.е. $n_1 = n_2 = n_3 = n_0$. Кроме того, \mathbf{r} содержит только один независимый ненулевой элемент: $r_{41} = r_{52} = r_{63}$. Следовательно, уравнение эллипсоида (8) примет следующий вид:

$$\frac{1}{n_0^2} (u_1^2 + u_2^2 + u_3^2) + 2r_{41} (E_1 u_2 u_3 + E_2 u_3 u_1 + E_3 u_1 u_2) = 1. \quad (9)$$

Кристаллы ZnTe, используемые для детектирования ТГц-излучения, имеют кристаллографический срез (1 1 0), как показано на рис. 1. ТГц-импульс и лазерный импульс падают перпендикулярно этой плоскости вдоль направления $[-1 \ -1 \ 0]$, поэтому их электрические векторы лежат в плоскости (1 1 0). Введем двумерную систему координат (X, Y) в этой плоскости таким образом, чтобы направление X совпало с направлением $[-1 \ 1 \ 0]$, а Y – с направлением $[0 \ 0 \ 1]$.

Для получения показателей преломления в плоскости XY при приложении электрического поля необходимо выполнить преобразование главных осей.

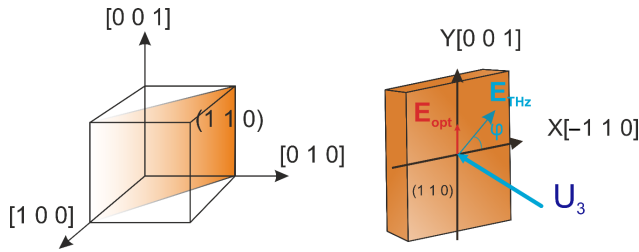


Рис. 1. Плоскость (1 1 0) (слева) и система координат (X, Y) в этой плоскости (справа).

Фемтосекундный лазерный импульс зондирования и ТГц-импульс накачки направлены вдоль вектора \mathbf{U}_3 , который является нормалью к плоскости (1 1 0)

Пусть электрический вектор \mathbf{E}_{THz} ТГц-импульса составляет угол φ с осью X (ось $[-1 \ 1 \ 0]$ кристалла ZnTe). Его компоненты в базисной системе кубической кристаллической решетки имеют вид:

$$\mathbf{E}_{\text{THz}} = E_{\text{THz}} \begin{pmatrix} -\cos \varphi / \sqrt{2} \\ \cos \varphi / \sqrt{2} \\ \sin \varphi \end{pmatrix}. \quad (10)$$

Уравнение (9) в этом случае запишется так:

$$\mathbf{u} \cdot \hat{\boldsymbol{\eta}}(\mathbf{E}_{\text{THz}}) \cdot \mathbf{u} = 1,$$

где $\hat{\boldsymbol{\eta}}(\mathbf{E}_{\text{THz}})$ – тензор непроницаемости, зависящий от поля \mathbf{E}_{THz} :

$$\hat{\boldsymbol{\eta}}(\mathbf{E}_{\text{THz}}) = \frac{1}{n_0^2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} + r_{41} E_{\text{THz}} \begin{pmatrix} 0 & \sin \varphi & \cos \varphi / \sqrt{2} \\ \sin \varphi & 0 & -\cos \varphi / \sqrt{2} \\ \cos \varphi / \sqrt{2} & -\cos \varphi / \sqrt{2} & 0 \end{pmatrix}. \quad (11)$$

Далее из выражения (11) находим собственные значения тензора $\hat{\boldsymbol{\eta}}(\mathbf{E}_{\text{THz}})$:

$$\lambda_{1,2} = \frac{1}{n_0^2} - \frac{r_{41} E_{\text{THz}}}{2} \left(\sin \varphi \pm \sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi} \right),$$

$$\lambda_3 = \frac{1}{n_0^2} + r_{41} E_{\text{THz}} \sin \varphi. \quad (12)$$

При этом нормированные собственные векторы будут равны:

$$\mathbf{U}_1 = \frac{1}{2} \sqrt{1 + \frac{\sin \varphi}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi}}} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 2\sqrt{2} \cos \varphi / (\sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi} + \sin \varphi) \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{U}_2 = \frac{1}{2} \sqrt{1 - \frac{\sin \varphi}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi}}} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 2\sqrt{2} \cos \varphi / (\sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi} - \sin \varphi) \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{U}_3 = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (13)$$

Направления главных осей совпадают с направлениями собственных векторов. Показатели преломления определяются выражением:

$$n_i = \frac{1}{\sqrt{\lambda_i}}.$$

Учитывая, что $r_{41} E_{\text{THz}} \ll \frac{1}{n_0^2}$, получаем выражения для показателей преломления, соответствующих главным осям:

$$n_1 = n_0 + \frac{n_0^3 r_{41} E_{\text{THz}}}{4} \left(\sin \varphi + \sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi} \right),$$

$$n_2 = n_0 + \frac{n_0^3 r_{41} E_{\text{THz}}}{4} \left(\sin \varphi - \sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi} \right), \quad (14)$$

$$n_3 = n_0 - \frac{n_0^3 r_{41} E_{\text{THz}}}{2} \sin \varphi.$$

Из уравнения (13) очевидно (рис. 1, направление \mathbf{U}_3), что третья главная ось перпендикулярна плоскости кристалла (1 1 0). Это направление совпадает с направлением распространения ТГц-импульса накачки и импульса пучка зондирования. Вектор \mathbf{U}_1 лежит в плоскости (1 1 0) и составляет с осью X $[-1 \ 1 \ 0]$ угол ψ , который может быть вычислен с помощью скалярного произведения вектора \mathbf{U}_1 и единичного вектора вдоль оси X. Используя соотношение $\cos(2\psi) = 2 \cos^2 \psi - 1$, получаем выражение, связывающее угол ψ и угол φ поляризации ТГц-излучения:

$$\cos(2\psi) = \frac{\sin \varphi}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi}}. \quad (15)$$

Для $\varphi = \pi/2$ главная ось \mathbf{U}_1 направлена в направлении X, а ось \mathbf{U}_2 – в направлении Y. Следовательно, в случае приложения к кристаллу ZnTe электрического поля (ТГц-излучения) будет возникать эллипсоид показателя преломления, в сечении XY которого получится эллипс (рис. 2). Направления главных осей эллипса соответствуют направлениям векторов \mathbf{U}_1 и \mathbf{U}_2 . Показатели преломления равны n_1 и n_2 и соответствуют первым

двум главным осям. Большой показатель (n_s) соответствует более медленной скорости света, меньший (n_f) – более быстрой. Обозначать показатели преломления принято через $n_s = n_1$ и $n_f = n_2$.

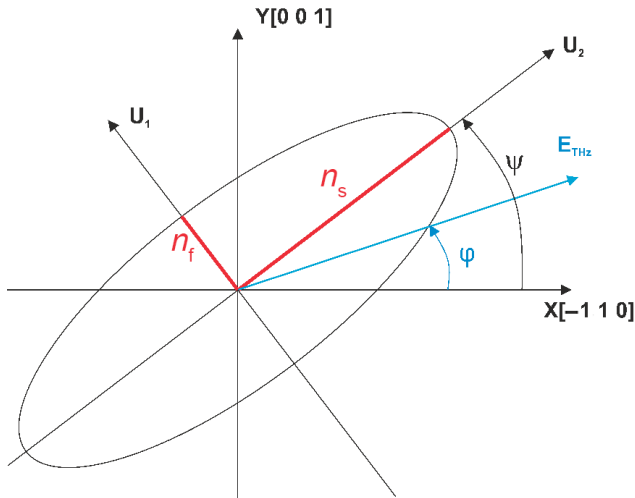


Рис. 2. Эллипсоид показателя преломления, спроецированный на плоскость (1 1 0) кристалла теллурида цинка

Вектор напряженности электрического поля E_{THz} составляет угол φ с осью $X = [-1 \ 1 \ 0]$ кристалла ZnTe, в то время как угол между длинной полуосью эллипса и осью X равен $\psi(\varphi)$. ТГц-импульс, как и лазерный пучок, падают вдоль нормали к плоскости (1 1 0), заданной единичным вектором

$$U_3 = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}.$$

Лазерный луч падает на кристалл ZnTe вдоль направления $[-1 \ -1 \ 0]$ (собственный вектор U_3). Поэтому его электрический вектор E_{opt} лежит в плоскости (1 1 0). В кристалле толщиной d две компоненты E_{opt} вдоль главных осей U_1 и U_2 получают относительный фазовый сдвиг:

$$\Gamma(\varphi) = \frac{\omega d}{2c} n_0^3 r_{41} E_{THz} \sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi}, \quad (16)$$

где ω – угловая частота лазерного излучения; φ – угол между E_{THz} и осью X ; d – толщина кристалла ZnTe; c – скорость света.

Для описания регистрируемого фотодиодом сигнала используется матрица Джонса, описывающая прохождение линейно поляризованного лазерного пучка через кристалл с двулучепреломлением и оптическим поляризатором [22]. S-поляризованное лазерное излучение описывается вектором:

$$E_{opt} = E_{opt} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (17)$$

где E_{opt} – напряженность электрического поля лазерного пучка зондирования. Поворот плоскости поляризации на угол ψ описывается матрицей:

$$R(\psi) = \begin{pmatrix} \cos \psi & \sin \psi \\ -\sin \psi & \cos \psi \end{pmatrix}, \quad (18)$$

где $\psi = \frac{1}{2} \arccos \left[\frac{\sin \varphi}{\sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi}} \right]$ – угол поворота эллипса поляризации пучка в ZnTe под действием ТГц-импульса.

Матрица двулучепреломления для кристалла ZnTe имеет вид:

$$Z(\varphi) = \begin{pmatrix} \exp(-i\Gamma(\varphi)/2) & 0 \\ 0 & \exp(i\Gamma(\varphi)/2) \end{pmatrix}. \quad (19)$$

Влияние ZnTe на пучок зондирования можно описать в следующем виде:

$$E_{opt} R(-\psi) Z(\varphi) R(\psi) \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}.$$

Напряженность электрического поля пучка зондирования после прохождения ZnTe и оптического поляризатора описывается формулой:

$$E = (1 \ 0) E_{opt} R(-\psi) Z(\varphi) R(\psi) \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}.$$

Сигнал, снимаемый фотодиодом, равен следующему выражению:

$$S_x(\varphi) = K \cdot E_{opt}^2 \sin^2(2\psi(\varphi)) \sin^2\left(\frac{\Gamma(\varphi)}{2}\right), \quad (20)$$

где K – коэффициент оптоэлектронного преобразования фотодиода.

Выразив в (20) $\sin^2(2\psi(\varphi)) = 1 - \cos^2(2\psi(\varphi))$ и подставив выражения (15) и (16), получим итоговое выражение для аппроксимации:

$$S_x(\varphi) = K \cdot E_{opt}^2 \left(1 - \frac{\sin^2 \varphi}{1 + 3 \cos^2 \varphi} \right) \times \sin^2 \left(\frac{(\omega d / 2c) n_0^3 r_{41} E_{THz} \sqrt{1 + 3 \cos^2 \varphi}}{2} \right). \quad (21)$$

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Для определения поляризации ТГц-излучения в работе применена традиционная экспериментальная схема THz-TDS, представленная на рис. 3. В качестве источника лазерного излучения использовался фемтосекундный титан-сапфировый лазер с регенеративным усилителем, генерирующий оптические импульсы с частотой повторения 3 кГц, длительностью 35 фс, с центральной длиной волны 800 нм (Авеста-Проект, Россия)³. Выходной оптический пучок был разделен на пучок накачки и пучок зондирования. Пучок накачки фокусировался на поверхности кристаллита ВР под углом 45°. Плотность оптического излучения на поверхности образца составляла около 1 мДж/см². Генерируемое ТГц-излучение коллимировалось параболическим зеркалом. Затем терагерцовое излучение проходило через два решетчатых поляризатора WGP (Specac Ltd, Великобритания)⁴ и параболическим зеркалом фокусировалось на нелинейный оптический кристаллический детектор ZnTe. Пробный пучок проходил через линию задержки и фокусировался на кристалл ZnTe, совмещенный с терагерцовым пучком. Прошедший оптический зондирующий пучок регистрировался фотодиодом. Для регистрации терагерцового излучения использовался электрооптический метод, основанный на модуляции амплитуды [16]. Все исследования проводились при комнатной температуре.

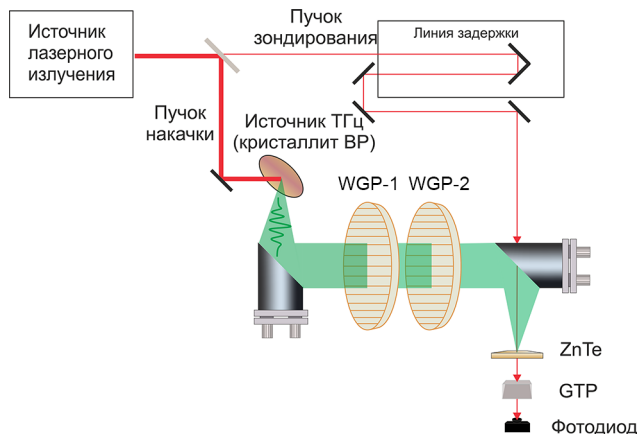


Рис. 3. Схема экспериментальной установки THz-TDS. GTP – поляризатор Глана – Тейлора

На рис. 4 подробно показана часть экспериментальной установки, отвечающая за определение угла поляризации ТГц-излучения. Угол между осью пропускания анализатора WGP-2, которая совпадает

с вектором E_{THz} , и осью X зафиксирован и равен φ_3 . Поляризатор WGP-1 вращается. Угол между его осью пропускания, совпадающей с вектором E'_{THz} , и осью X равен φ_2 .

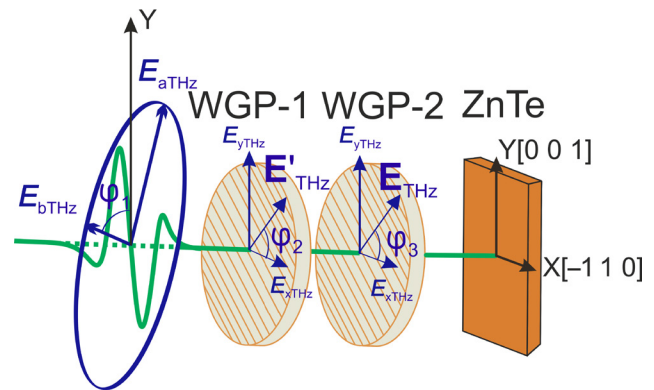


Рис. 4. Геометрия экспериментальной установки в случае использования двух поляризаторов

Эллипс поляризации ТГц-излучения лежит в плоскости, параллельной плоскости XY . $E_{a\text{THz}}$ и $E_{b\text{THz}}$ – полуоси этого эллипса; φ_1 – угол между малой полуосью и осью Y ; φ_2 и φ_3 – углы между осью X и осями поляризаторов WGP-1 и WGP-2 соответственно.

В этом случае в формуле (16) амплитуда ТГц-излучения согласно закону Малюса принимает следующий вид:

$$E_{\text{THz}} = E'_{\text{THz}} \cos(\varphi_2 + \varphi_3), \quad (22)$$

где $E'_{\text{THz}} = E_{a\text{THz}} \sqrt{\cos^2(\varphi_1 + \varphi_2) + \varepsilon^2 \sin^2(\varphi_1 + \varphi_2)}$ – ТГц-импульс, прошедший через первый поляризатор WGP-1; $\varepsilon = \frac{E_{b\text{THz}}}{E_{a\text{THz}}}$ – эллиптичность анализируемого импульса. Нормируя зависимость (21) на мощность оптического пучка, одновременно учитывая выражение (22) и зафиксировав значения углов φ_1 и φ_3 , получаем зависимость для регистрируемого фотодиодом нормированного сигнала $f(\varphi_2)$:

$$f(\varphi_2) = \frac{S_x(E_{\text{THz}}(\varphi_1, \varphi_2), \varphi_3)}{E_{\text{opt}}^2} = \sin^2(2\psi(\varphi_3)) \sin^2\left(\frac{\Gamma(E_{\text{THz}}(\varphi_1, \varphi_2), \varphi_3)}{2}\right). \quad (23)$$

На рис. 5 изображены графики зависимости $f(\varphi_2)$, полученные из выражения (23) при различных значениях углах поляризации ТГц-излучения φ_1 . Остальные параметры ТГц-излучения и положения поляризатора WGP-2 были равны: $E_{a\text{THz}} = 3.5 \cdot 10^6$ В/м; $\varepsilon = 0.1$;

³ <http://avesta.ru/>, дата обращения 22.12.2019. [<http://avesta.ru/>. Accessed December 22, 2019 (in Russ.).]

⁴ <https://www.specac.com>, дата обращения 22.12.2019. [<https://www.specac.com>. Accessed December 22, 2019.]

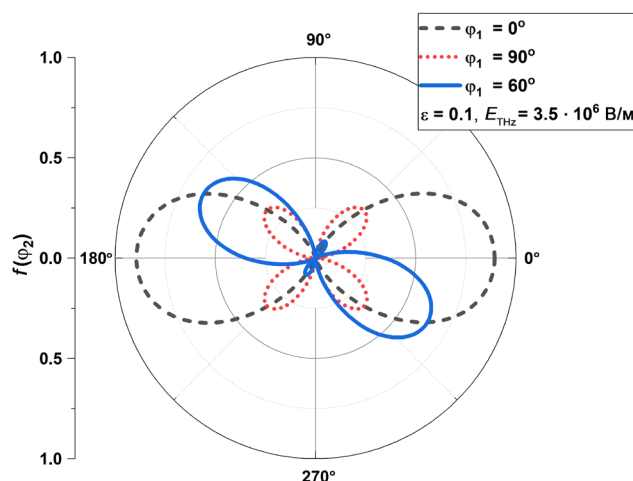


Рис. 5. Графики зависимости регистрируемого сигнала, нормированного на мощность оптического излучения пучка зондирования

$\varphi_1 = 0^\circ$. В результате расчета при $\varphi_1 = 0^\circ$ получаем график в форме «гантели», при $\varphi_1 = 90^\circ$ – в форме «четырёхлистного клевера», при других углах, например при $\varphi_1 = 60^\circ$, получаем зависимость, по форме являющейся переходной между ними. Поскольку для каждого значения угла зависимость $f(\varphi_2)$ является единственной, можно легко аппроксимировать экспериментальную зависимость выражением (23), получая при этом реальные параметры ТГц-излучения (угол поляризации, эллиптичность).

Условие малости аргумента синуса $\frac{\Gamma(\varphi)}{2}$ выполняется при $\frac{\omega d}{4c} n_0^3 r_{41} E_{aTHz} \leq 0.35$ или при $E_{aTHz} \leq 2 \cdot 10^6$ В/м. Так как в этом случае $\sin^2\left(\frac{\Gamma(\varphi)}{2}\right) \approx \left(\frac{\Gamma(\varphi)}{2}\right)^2$, поляризационные зависимости при прохождении поляризованной электромагнитной волны через два поляризатора соответствуют закону Малюса. Несмотря на это ограничение, форма зависимостей (рис. 4) не будет изменяться вплоть до значений $E_{aTHz} \approx 4 \cdot 10^6$ В/м. В случае детектирования ТГц-волны при $E_{aTHz} > 4 \cdot 10^6$ В/м будут наблюдаться искажения зависимостей, показанных на рис. 5. Это происходит потому, что разность фаз между обыкновенным и необыкновенным лучом оптического пучка становится сравнимой или превышает $\pi/2$.

На рис. 6 изображены графики зависимости $f(\varphi_2)$ (23) для $E_{aTHz} = 6 \cdot 10^6$ В/м при различных углах поляризации ТГц-излучения φ_1 и для значений $\varepsilon = 0.1$, $\varphi_3 = 0$. При увеличении амплитуды ТГц-излучения начинают сильно изменяться формы зависимостей. Так, при $E_{aTHz} = 6 \cdot 10^6$ В/м зависимость $f(\varphi_2)$ при $\varphi_1 = 0^\circ$ имеет форму «бабочки»; при $\varphi_1 = 90^\circ$ так же, как и в вышеописанном случае, имеет вид «четырёхлистного клевера», однако максимальные значения функции уже сравнимы с таковыми для зависимости при $\varphi_1 = 0^\circ$; при других

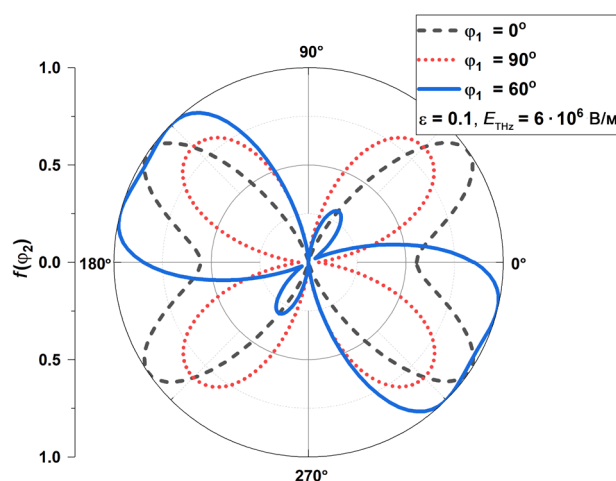


Рис. 6. Графики зависимости регистрируемого сигнала терагерцового импульса, прошедшего через два WG-поляризатора и нормированного на мощность оптического излучения пучка зондирования

значениях φ_1 получаем промежуточную форму между «бабочкой» и «клевером».

Рассмотрим экспериментальную установку анализа ТГц-излучения с одним ТГц-поляризатором. Поскольку кристалл ZnTe чувствителен к поляризации ТГц-импульса, то он одновременно может быть использован в качестве анализатора поляризации (рис. 7).

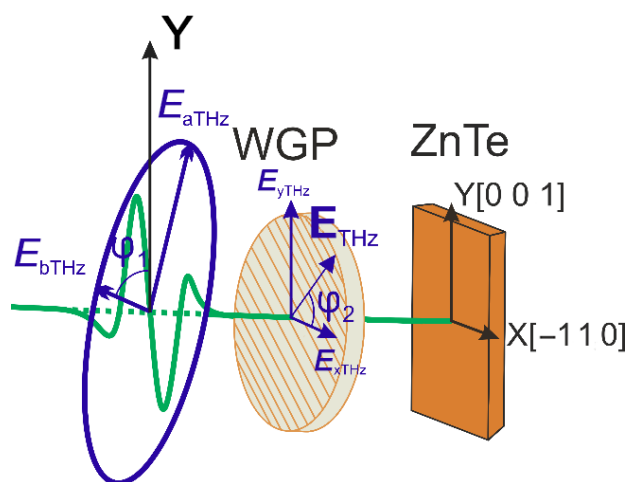


Рис. 7. Геометрия экспериментальной установки в случае использования одного поляризатора

Эллипс поляризации ТГц-излучения лежит в плоскости, параллельной плоскости XY. E_{aTHz} и E_{bTHz} – полуоси эллипса; φ_1 – угол между малой полуосью и осью Y; φ_2 – угол между осью X и осью поляризатора.

В данном случае амплитуда ТГц-импульса, прошедшего через поляризатор WGP, в формуле (16) принимает вид:

$$E_{\text{THz}} = E_{a\text{THz}} \sqrt{\cos^2(\varphi_1 + \varphi_2) + \varepsilon^2 \sin^2(\varphi_1 + \varphi_2)}. \quad (24)$$

Нормируя зависимость (21) на мощность оптического пучка, учитывая выражение (24) и зафиксировав величину угла φ_1 , получаем зависимости $g(\varphi_2)$ при разных углах поляризации исследуемого ТГц-излучения, аналогичные по форме ранее полученным зависимостям (23) (рис. 8):

$$g(\varphi_2) = \frac{S_x(E_{\text{THz}}(\varphi_1), \varphi_2)}{E_{\text{opt}}^2} = \sin^2(2\psi(\varphi_2)) \sin^2\left(\frac{\Gamma(E_{\text{THz}}(\varphi_1), \varphi_2)}{2}\right). \quad (25)$$

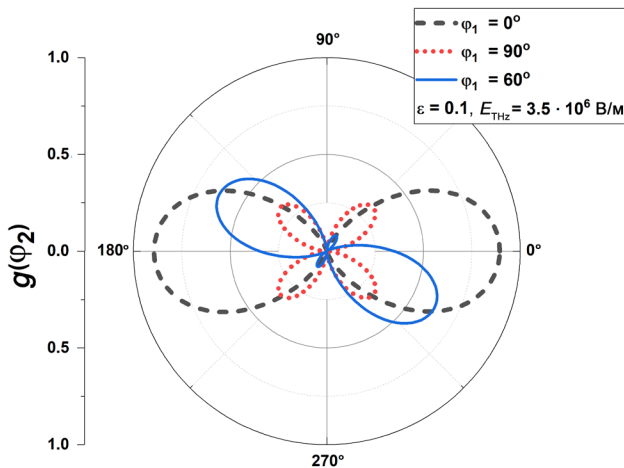


Рис. 8. Графики зависимости регистрируемого сигнала терагерцового импульса, прошедшего через WG-поляризатор и нормированного на мощность оптического излучения пучка зондирования

На рис. 8 изображены графики зависимостей $g(\varphi_2)$ (25) при $E_{a\text{THz}} = 3.5 \cdot 10^6$ В/м, различных углах поляризации ТГц-излучения φ_1 и $\varepsilon = 0.1$. Графики полученных зависимостей совпадают по форме с графиками зависимостей (23) на рис. 5, что свидетельствует о том, что существует возможность анализировать поляризацию ТГц-излучения, используя один WGP. Как и в вышеописанном случае, изменение характера зависимостей (25) наблюдается, если величина напряженности электрического поля $E_{a\text{THz}}$ превышает $4 \cdot 10^6$ В/м.

В качестве исследуемого источника ТГц-излучения был взят кристаллит черного фосфора, эллиптичность излучения которого равна $\varepsilon = 0.77$ при фиксированном угле 90° между вектором напряженности поля возбуждающего лазерного пучка накачки и направлением «зигзаг» образца [13]. Для анализа поляризации была выбрана схема с двумя

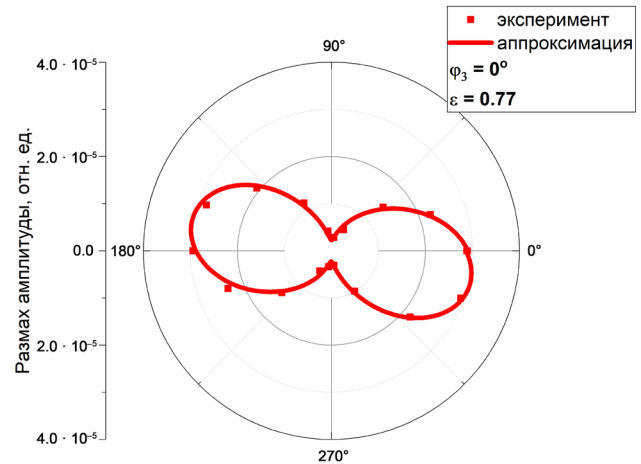


Рис. 9. График зависимости размаха амплитуды ТГц-излучения от угла поворота решетчатого поляризатора WGP-1

решетчатыми поляризаторами (рис. 4). Угол φ_3 для WGP-2 зафиксирован и равен 0° . Полученные значения размаха регистрируемой амплитуды ТГц-излучения при различных углах поворота оси решетчатого поляризатора WGP-1 φ_2 и аппроксимация экспериментальных данных выражением (23) изображены на рис. 9. С помощью аппроксимации было установлено, что угол между большой полуосью эллипса поляризации ТГц-излучения и осью X равен 40° .

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотрена и модифицирована модель, описывающая зависимость размаха амплитуды ТГц-излучения от угла поворота решетчатого поляризатора. Результаты моделирования показывают, что зависимости размаха амплитуды ТГц-излучения от угла поворота поляризатора имеют схожую форму при использовании в экспериментальной установке как двух решетчатых поляризаторов, так и одного из них. Показана возможность использования одного поляризатора при анализе за счет чувствительности кристалла ZnTe к поляризации ТГц-излучения. Зависимости начинают отличаться только при возрастании напряженности поля ТГц-волны свыше 40 кВ/см, так как разность фаз между обычным и необыкновенным лучом оптического пучка зондирования после прохождения кристалла ZnTe под действием ТГц-импульса становится сравнимой или превышает $\pi/2$. На примере анализа поляризации ТГц-излучения, испускаемого поверхностью кристаллита черного фосфора под действием фемтосекундного пучка накачки, была показана применимость аппроксимации и определен угол $\varphi_1 = 40^\circ$ между большой полуосью эллипса поляризации ТГц-излучения и осью X .

БЛАГОДАРНОСТИ

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 21-79-10353 «Управляемые спинтронные гибридные ТГц излучатели и детекторы». Экспериментальные исследования выполнены с использованием оборудования ЦКП РТУ МИРЭА.

Вклад авторов

Ф.А. Зайнуллин – моделирование и обработка экспериментальных данных.

Д.И. Хусьяинов – экспериментальная часть.

М.В. Козинцева – теоретическая часть.

А.М. Буряков – теоретическая часть.

Authors' contributions

F.A. Zainullin – mathematical modeling and experimental data processing.

D.I. Khusyainov – experiment.

M.V. Kozintseva – theory.

A.M. Buryakov – theory.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

1. Cui H., Zhang X.B., Yang P., Su J.F., Wei X.Y., Guo Y.H. Spectral characteristic of single layer graphene via terahertz time domain spectroscopy. *Optik (Stuttg)*. 2015;126(14): 1362–1365. <https://doi.org/10.1016/j.ijleo.2015.03.032>
2. Maamar N., Lazoul M., Latreche F.Y., Trache D., Coutaz J.L. Terahertz time-domain spectroscopy characterization of nitrocellulose in transmission and reflection configurations. *Optik (Stuttg)*. 2020;224:165711. <https://doi.org/10.1016/j.ijleo.2020.165711>
3. Tu S., Wang Z., Liang G., Zhang W., Tang Y., She Y., Yi C., Bi X. A novel approach to discriminate transgenic soybean seeds based on terahertz spectroscopy. *Optik (Stuttg)*. 2021;242:167089. <https://doi.org/10.1016/j.ijleo.2021.167089>
4. Tan N.Y., Zeitler J.A. Probing phase transitions in simvastatin with terahertz time-domain spectroscopy. *Mol. Pharm.* 2015;12(3):810–815. <https://doi.org/10.1021/mp500649q>
5. Ho L., Pepper M., Taday P. Signatures and fingerprints. *Nat. Photonics*. 2008;2(9):541–543. <https://doi.org/10.1038/nphoton.2008.174>
6. Wang W.N., Wang G., Zhang Y. Low-frequency vibrational modes of glutamine. *Chinese Phys. B*. 2011;20(12):123301. <https://doi.org/10.1088/1674-1056/20/12/123301>
7. Du S.Q., Li H., Xie L., Chen L., Peng Y., Zhu Y.M., Li H., Dong P., Wang J.T. Vibrational frequencies of anti-diabetic drug studied by terahertz time-domain spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.* 2012;100(14):143702. <https://doi.org/10.1063/1.3700808>
8. Andersen J., Heimdal J., Mahler D.W., Nelander B., Wugt Larsen R. Communication: THz absorption spectrum of the CO₂–H₂O complex: Observation and assignment of intermolecular van der Waals vibrations. *J. Chem. Phys.* 2014;140(9):091103. <https://doi.org/10.1063/1.4867901>
9. Walther M., Plochocka P., Fischer B., Helm H., Uhd Jepsen P. Collective vibrational modes in biological molecules investigated by terahertz time-domain spectroscopy. *Biopolymers*. 2002;67(4–5):310–313. <https://doi.org/10.1002/bip.10106>
10. Tonouchi M. Cutting-edge terahertz technology. *Nat. Photonics*. 2007;1:97–105. <https://doi.org/10.1038/nphoton.2007.3>
11. Dadap J.I., Shan J., Heinz T.F. Circularly polarized light in the single-cycle limit: the nature of highly polychromatic radiation of defined polarization. *Opt. Express*. 2009;17(9):7431–7439. <https://doi.org/10.1364/OE.17.007431>
12. Yang X., Zhao X., Yang K., Liu Y., Liu Y., Fu W., et al. Biomedical applications of terahertz spectroscopy and imaging. *Trends Biotechnol.* 2016;34(10):810–824. <https://doi.org/10.1016/j.tibtech.2016.04.008>
13. Buryakov A., Zainullin F., Khusyanov D., Abdulaev D., Nozdryn V., Mishina E. Generation of elliptically polarized terahertz radiation from black phosphorus crystallites. *Opt. Eng.* 2021;60(08):082013. <https://doi.org/10.1117/1.OE.60.8.082013>
14. Khusyainov D., Ovcharenko S., Gaponov M., Buryakov A., Klimov A., Tiercelin N., Pernod P., Nozdryn V., Mishina E., Sigov A., Preobrazhensky V. Polarization control of THz emission using spin-reorientation transition in spintronic heterostructure. *Sci. Rep.* 2021;11(1):697. <https://doi.org/10.1038/s41598-020-80781-5>
15. Huang Y., Yartsev A., Guan S., Zhu L., Zhao Q., Yao Z., He C., Zhang L., Bai J., Luo J., Xu X. Hidden spin polarization in the centrosymmetric MoS₂ crystal revealed via elliptically polarized terahertz emission. *Phys. Rev. B*. 2020;102(8):085205. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.102.085205>
16. Ковалев С.П., Китаева Г.Х. Два альтернативных подхода при электрооптическом детектировании импульсов терагерцового излучения. *Письма в ЖЭТФ*. 2011;94(2):95–100. [Kovalev S.P., Kitaeva G.K. Two alternative approaches to electro-optical detection of terahertz pulses. *JETP Lett.* 2011;94(2):91–96. <https://doi.org/10.1134/S0021364011140074>]
17. Deng B., Tran V., Xie Y., Jiang H., Li C., Guo Q., Wang X., Tian H., Koester S. J., Wang H., Cha J. J., Xia Q., Yang L., Xia F. Efficient electrical control of thin-film black phosphorus bandgap. *Nat. Commun.* 2017;8:14474. <https://doi.org/10.1038/ncomms14474>
18. Long G., Maryenko D., Shen J., Xu S., Hou J., Wu Z., Wong W.K., Han T., Lin J., Cai Y., Lortz R., Wang N. Achieving ultrahigh carrier mobility in two-dimensional hole gas of black phosphorus. *Nano Lett.* 2016;16(12):7768–7773. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.6b03951>
19. Chen X., Wu Y., Wu Z., Han Y., Xu S., Wang L., Ye W., Han T., He Y., Cai Y., Wang N. High-quality sandwiched black phosphorus heterostructure and its quantum oscillations. *Nat. Commun.* 2015;6:7315. <https://doi.org/10.1038/ncomms8315>
20. Hossain F.M., Murch G.E., Belova I.V., Turner B.D. Electronic, optical and bonding properties of CaCO₃ calcite. *Solid State Commun.* 2009;149(29–30):1201–1203. <https://doi.org/10.1016/j.ssc.2009.04.026>
21. Soykan C., Kart S.Ö. Structural, mechanical and electronic properties of ZnTe polymorphs under pressure. *J. Alloys Compd.* 2012;529:148–157. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.02.170>
22. Yariv A., Yeh P. *Photonics: optical electronics in modern communications*. Oxford University Press; 2007. 836 p.

Об авторах

Зайнуллин Фархад Алмазович, стажер-исследователь специализированной учебно-научной лаборатории «Сверхбыстрая динамика ферроиков» Института перспективных технологий и индустриального программирования ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: madflyzero@gmail.com. Scopus Author ID 57226613215, <https://orcid.org/0000-0002-1195-5166>

Хусяинов Динар Ильгамович, аспирант, младший научный сотрудник учебно-научной лаборатории фемтосекундной оптики для нанотехнологий Института перспективных технологий и индустриального программирования ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: husyainov@mirea.ru. Scopus Author ID 57194467463, ResearcherID O-7241-2017, <https://orcid.org/0000-0003-1332-4146>

Козинцева Марина Валентиновна, к.ф.-м.н., доцент кафедры физики Института перспективных технологий и индустриального программирования ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: kozintseva@mirea.ru. Scopus Author ID 6506049090, ResearcherID C-3826-2017, <https://orcid.org/0000-0002-6277-4074>

Буряков Арсений Михайлович, к.ф.-м.н., старший научный сотрудник учебно-научной лаборатории фемтосекундной оптики для нанотехнологий Института перспективных технологий и индустриального программирования ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: buryakov@mirea.ru. Scopus Author ID 55454206600, ResearcherID E-8283-2017, <https://orcid.org/0000-0002-3347-9076>

About the authors

Farkhad A. Zainullin, Intern Researcher, Laboratory “Ultrafast Dynamics in Ferroics,” Institute for Advanced Technologies and Industrial Programming, MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: madflyzero@gmail.com. Scopus Author ID 57226613215, <https://orcid.org/0000-0002-1195-5166>

Dinar I. Khusyainov, Postgraduate Student, Junior Researcher, Laboratory “Femtosecond Optics for Nanotechnologies,” Institute for Advanced Technologies and Industrial Programming, MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: husyainov@mirea.ru. Scopus Author ID 57194467463, ResearcherID O-7241-2017, <https://orcid.org/0000-0003-1332-4146>

Marina V. Kozintseva, Cand. Sci. (Phys.-Math.), Assistant Professor, Department of Physics, Institute for Advanced Technologies and Industrial Programming, MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: kozintseva@mirea.ru. Scopus Author ID 6506049090, ResearcherID C-3826-2017, <https://orcid.org/0000-0002-6277-4074>

Arseniy M. Buryakov, Cand. Sci. (Phys.-Math.), Senior Researcher, Laboratory “Femtosecond Optics for Nanotechnologies,” Institute for Advanced Technologies and Industrial Programming, MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: buryakov@mirea.ru. Scopus Author ID 55454206600, ResearcherID E-8283-2017, <https://orcid.org/0000-0002-3347-9076>