

09

Генерация терагерцевого излучения с поверхности монослойного WSe₂

© А.В. Горбатова, Д.И. Хусяинов, А.М. Буряков

МИРЭА — Российский технологический университет, Москва, Россия

E-mail: gorbatova.anastasiya@mail.ru

Поступило в Редакцию 12 сентября 2019 г.

В окончательной редакции 12 сентября 2019 г.

Принято к публикации 20 сентября 2019 г.

Впервые исследованы параметры генерации терагерцевого излучения в двумерной пленке WSe₂, выращенной методом химического осаждения из газовой фазы. Определен основной механизм генерации терагерцевого излучения в рассматриваемой структуре. Исследована зависимость амплитуды терагерцевого сигнала от азимутального угла двумерной пленки WSe₂. Проведен расчет распределения электрического поля лазерной накачки в структуре WSe₂/SiO₂/Si в зависимости от толщины диоксида кремния. Теоретически обоснован выбор оптимальной геометрии структуры для эффективной генерации терагерцевого излучения монослойной пленкой WSe₂.

Ключевые слова: двумерные полупроводники, дихалькогениды переходных металлов, диселенид вольфрама (WSe₂), терагерцевая эмиссия, оптическое выпрямление.

DOI: 10.21883/PJTF.2019.24.48803.18032

Возможность генерации терагерцевого (THz) излучения в графене впервые была показана в работах [1,2]. Однако отсутствие запрещенной зоны в графене существенно ограничивает его дальнейшее применение в качестве фотопроводящего материала терагерцевых антенн. Данная проблема была решена с появлением новых двумерных слоистых материалов — дихалькогенидов переходных металлов (ДПМ). Монослои ДПМ характеризуются прямой запрещенной зоной с энергией в видимой области спектра, благодаря чему могут найти применение в устройствах фотоники и оптоэлектроники [3–5]. В ряде работ была продемонстрирована возможность генерации THz-излучения с поверхности объемных слоистых ДПМ, таких как MoS₂ и WS₂ [6,7]. Исследование двумерных пленок ДПМ, созданных методом химического осаждения из газовой фазы (ХОГФ), является перспективным, поскольку планарная технология — основной метод создания электронных устройств [8]. Монослойный WSe₂ — один из наиболее перспективных ДПМ, он характеризуется относительно большой подвижностью носителей зарядов (202 cm²/(V·s) для электронов и 250 cm²/(V·s) для дырок) и малым временем жизни носителей заряда (1 ps), а также узкой запрещенной зоной (1.62 eV) по сравнению с другими монослоями ДПМ [9–11], что является важным фактором при создании THz-устройств. В настоящей работе методом THz-спектроскопии временного разрешения исследовались и анализировались параметры (ширина спектра, амплитуда, анизотропия амплитуды, эффективность поглощения) THz-импульсов, генерируемых с поверхности двумерной пленки WSe₂.

Двумерная пленка WSe₂ была выращена методом ХОГФ на подложке SiO₂/Si с толщиной диоксида кремния (SiO₂) 285 nm. Данный образец имеет стандартную

толщину SiO₂, дающую оптимальный контраст оптического изображения между пленкой и подложкой. Двумерная пленка WSe₂ была предварительно исследована методом атомно-силовой микроскопии (АСМ). Изображение топографии исследуемой структуры и сечение представлены на рис. 1. В соответствии с полученными результатами толщина пленки составляет ~ 1 nm.

Исследование параметров генерации THz-излучения с поверхности двумерной пленки WSe₂ проводилось методом THz-спектроскопии временного разрешения в геометрии на отражение. В качестве источника фемтосекундного лазерного излучения использовался лазер Mai-Tai Spectra-Physics с длительностью импульсов 100 fs и частотой следования импульсов 82 MHz. Оптический луч накачки падал на поверхность образца под углом 45°. Лазерный луч не фокусировался на поверхности пленки для увеличения площади взаимодействия, поскольку монослой WSe₂ является достаточно прозрачным для электромагнитного излучения. Плотность энергии луча накачки составляла ~ 0.5 μJ/cm². В качестве детектора THz-излучения использовался нелинейно-оптический кристалл ZnTe.

В ходе исследования пленки WSe₂ методом терагерцевой спектроскопии временного разрешения были получены временные формы THz-импульсов. Частотный спектр THz-излучения был получен методом фурье-преобразования волновой формы THz-сигнала, он представлен на рис. 2, а. Далее проводилась оценка эффективности генерации THz-излучения в монослойном WSe₂ и эталонном образце In_{0.53}Ga_{0.47}As. Твердый раствор In_{0.53}Ga_{0.47}As — довольно хорошо изученный и часто используемый материал для создания коммерческих фотопроводящих антенн. Амплитуда THz-сигнала в WSe₂ нормирована на объем полного поглощения

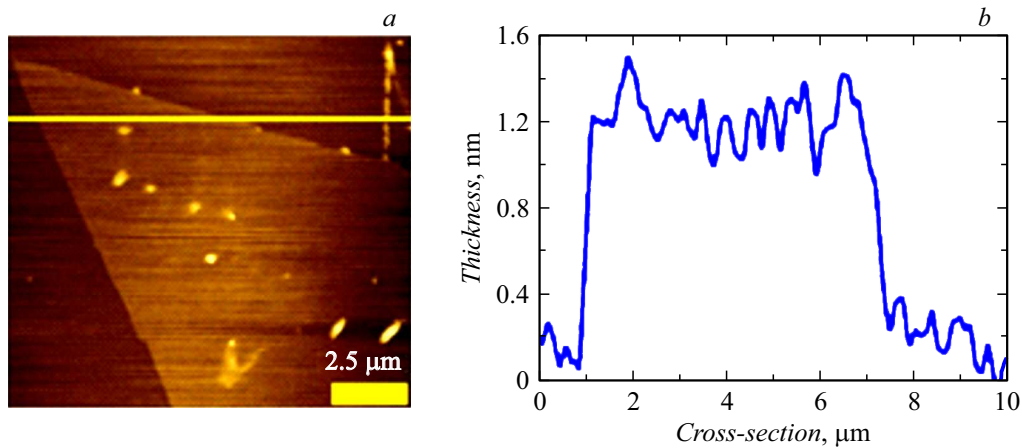


Рис. 1. Топография двумерной пленки WSe₂ (a) и ее сечение (b), полученные методом АСМ.

оптического излучения в In_{0.53}Ga_{0.47}As в соответствии с законом Бугера–Ламберта–Бера (рис. 2, a). С учетом нормировки было получено, что эффективность генерации THz-излучения в монослойном полупроводнике WSe₂ в 2 раза выше, чем в In_{0.53}Ga_{0.47}As. Двумерная пленка WSe₂ генерирует THz-излучение с частотой до 3.2 THz. Пик амплитуды THz-сигнала соответствует частоте 0.6 THz.

Ширина запрещенной зоны монослойного WSe₂ соответствует 1.62 eV [9]. При этом энергия лазерного излучения накачки составляла 1.55 eV. Следовательно, энергии фотона оптического излучения недостаточно для перехода электронов в исследуемой полупроводниковой структуре из валентной зоны в зону проводимости. Очевидно, что вклад в THz-генерацию поверхностного поля и фотоэффекта Дембера можно исключить ввиду отсутствия поглощения оптического излучения. Можно заключить, что в двумерной пленке WSe₂ генерация THz-излучения связана с нелинейно-оптическим эффектом второго порядка — оптическим выпрямлением. Эффект оптического выпрямления ярко выражен в материалах с высокими значениями нелинейной восприимчивости второго порядка $\chi^{(2)}$. При этом амплитуда THz-излучения будет зависеть от азимутального угла кристаллической структуры. Результаты исследования зависимости амплитуды генерируемого THz-сигнала от азимутального угла WSe₂ представлены на рис. 2, b.

В общем случае для кристаллитов WSe₂ возможны три точечные группы симметрии. Для центросимметричного 2H-политипа группа точечной симметрии — D_{6h}^4 ($P6_3/mmc$). При этом симметрия WSe₂ различается в зависимости от четности или нечетности количества слоев. Для нечетного числа слоев, в том числе и для монослоя, точечная группа симметрии имеет вид D_{3h}^1 ($P6m2$). Для четного числа слоев точечная группа симметрии имеет вид D_{3d}^1 ($P3m1$). Поскольку точечная группа D_{3h}^1 является нецентросимметричной, нелинейно-оптический сигнал в монослойном WSe₂ в основном будет обеспечен электродипольным вкла-

дом [12]. В соответствии с этим утверждением соотношение между электрическим полем световой волны $E(\omega)$ и индуцируемой нелинейной поляризацией на разностной частоте $P^{(2)}(0)$ можно записать следующим образом:

$$P_i^{(2)}(0) = \sum_{j,k} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(0, \omega, -\omega) E_j(\omega) E_k^*(\omega). \quad (1)$$

Далее для расчета нелинейной поляризации определены независимые ненулевые компоненты тензора нелинейной восприимчивости второго порядка в соответствии с симметрией двумерной пленки WSe₂. Для данного случая симметрии возможен лишь один независимый ненулевой компонент тензора: $\chi^{(2)} = \chi_{yyy} = -\chi_{yxx} = -\chi_{xyx} = -\chi_{yxx}$. Анализ полученной азимутальной зависимости для монослойного WSe₂ проводился в соответствии с соотношением (1). Кристаллографический срез монослоя был определен как (001). Результат расчета зависимости THz-поля от азимутального угла кристаллической структуры для нецентросимметричного монослоя WSe₂ в геометрии p -анализатора можно записать в виде

$$E^{(\text{THz})} \propto \chi_{yyy} \cos(3\varphi), \quad (2)$$

где φ — азимутальный угол. Аппроксимация экспериментальных результатов с помощью формулы (2) приведена на рис. 2, b (*Fitting D_{3h}^1*). Очевидно несоответствие между экспериментально полученной зависимостью и моделью, описываемой формулой (2). Как было показано в работах [13,14], отдельные кристаллиты WSe₂ в процессе роста ориентируются под разными углами относительно друг друга. Поскольку THz-излучение генерируется с поверхности пленки площадью $\sim 0.8 \text{ mm}^2$, можно утверждать, что в генерации участвуют кристаллиты, ориентированные в разных направлениях (от 0 до 2π). Поэтому итоговое значение генерируемого THz-поля будет определяться в соответствии

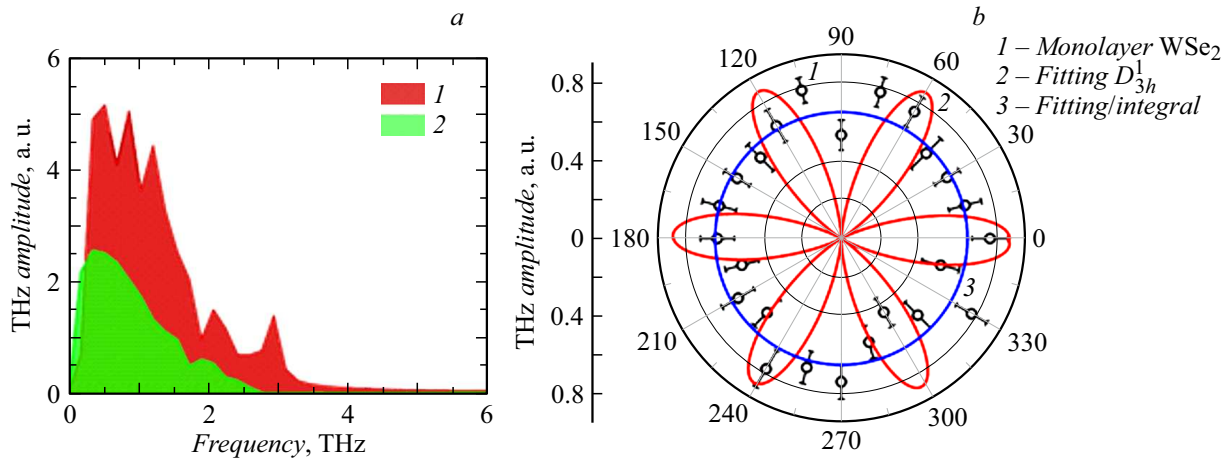


Рис. 2. *a* — частотные спектры THz-импульсов, генерируемых монослойным WSe₂ (1) и In_{0.53}Ga_{0.47}As (2). *b* — азимутальная угловая зависимость амплитуды THz-излучения в монослое WSe₂.

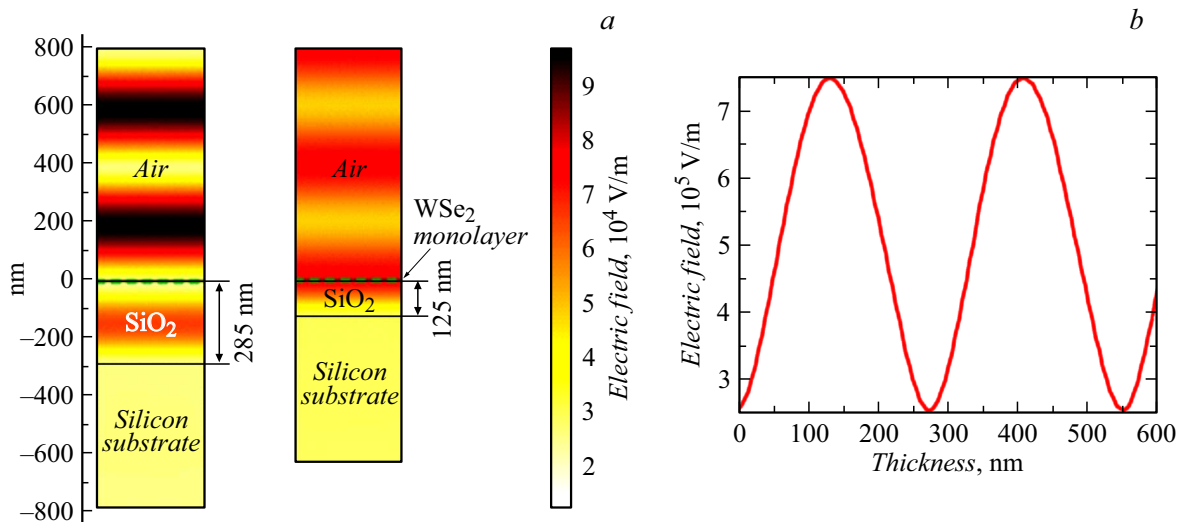


Рис. 3. *a* — распределение электрического поля лазерной накачки в системе воздух/WSe₂/SiO₂/Si на длине волны 800 nm для толщин диоксида кремния 285 nm (слева) и 125 nm (справа). *b* — зависимость напряженности электрического поля в монослое WSe₂ от толщины SiO₂.

с выражением

$$E_{total}^{(THz)} \propto \int_0^{2\pi} \chi_{yy} \cos(3\varphi) d\varphi. \quad (3)$$

В результате значение THz-поля будет определяться лишь значением независимого ненулевого компонента тензора χ_{yy} (рис. 2, *b*, *Fitting/integral*). Таким образом, можно утверждать, что единственно возможным механизмом генерации THz-излучения является оптическое выпрямление.

Далее было рассчитано распределение электрического поля лазерной накачки в двумерной пленке WSe₂. Структура WSe₂/SiO₂/Si может работать как резонатор Фабри–Перо при определенных интерференционных условиях, что может служить дополнительным

инструментом увеличения эффективности генерируемого THz-поля. Толщина диоксида кремния оказывает сильное влияние на распределение электромагнитного результирующего поля лазерной накачки в двумерной пленке WSe₂. С помощью программной среды COMSOL Multiphysics было промоделировано распределение электромагнитной волны ($\lambda = 800$ nm) в структуре WSe₂/SiO₂/Si. В рамках поставленной задачи была создана двумерная модель исследуемой системы. Коэффициенты преломления (n) и поглощения (k) для WSe₂, SiO₂ и Si были взяты из литературных источников [15–17]. Полученные распределения электрического поля оптической накачки в системе воздух/WSe₂/SiO₂/Si для толщин диоксида кремния 285 и 125 nm приведены на рис. 3, *a*. На рис. 3, *b* представлена зависимость напряженности электрического поля волны в моно-

слоем WSe_2 от толщины SiO_2 . Максимальное значение напряженности электрического поля в структуре $\text{WSe}_2/\text{SiO}_2/\text{Si}$ наблюдается для толщин диоксида кремния 125 и 400 nm. Из этого можно сделать вывод, что максимальное поглощение падающего лазерного излучения будет достигаться при указанных толщинах SiO_2 , при этом эффективность THz-генерации теоретически может быть увеличена в 3 раза.

В заключение отметим, что мы наблюдали THz-эмиссию с поверхности двумерной пленки WSe_2 и показали, что монослой генерирует THz-сигнал с частотой до 3.2 THz. Симметричный анализ азимутальной зависимости THz-амплитуды показал, что основным вкладом в генерацию THz-излучения является механизм оптического выпрямления. Теоретически обосновано, что эффективность THz-генерации в монослойном WSe_2 может быть увеличена в 3 раза при использовании оптимальной толщины диоксида кремния 125 nm.

Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 19-72-10165). Работы по созданию экспериментальной установки и отработке методики выполнены при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ (государственное задание № 3.7331.2017/9.10 (А.М. Буряков)).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *Bahk Y.-M., Ramakrishnan G., Choi J., Song H., Choi G., Kim Y.H., Ahn K.J., Kim D.-S., Planken P.C.M.* // ACS Nano. 2014. V. 8. N 9. P. 9089–9096.
- [2] *Maysonnave J., Huppert S., Wang F., Maero S., Berger C., de Heer W., Norris T.B., De Vaultier L.A., Dhillon S., Tignon J., Ferreira R., Mangeney J.* // Nano Lett. 2014. V. 14, N 10. P. 5797–5802.
- [3] *Tian H., Chin M.L., Najmaei S., Guo Q., Xia F., Wang H., Dubey M.* // Nano Res. 2016. V. 9. N 6. P. 1543–1560.
- [4] *Брехов К.А., Гришунин К.А., Ильин Н.А., Шестакова А.П., Лавров С.Д., Мишина Е.Д.* // Письма в ЖТФ. 2017. Т. 43. В. 24. С. 46–52.
- [5] *Авдижиян А.Ю., Лавров С.Д., Кудрявцев А.В., Шестакова А.П., Васина М.В.* // Письма в ЖТФ. 2019. Т. 45. В. 12. С. 42–44.
- [6] *Huang Y., Zhu L., Zhao Q., Guo Y., Ren Z., Bai J., Xu X.* // ACS Appl. Mater. Interfaces. 2017. V. 9. N 5. P. 4956–4965.
- [7] *Zhang L., Huang Y., Zhao Q., Zhu L., Yao Z., Zhou Y., Du W., Xu X.* // Phys. Rev. B. 2017. V. 96. N 15. P. 155202.
- [8] *Лавров С.Д., Шестакова А.П., Авдижиян А.Ю., Мишина Е.Д.* // Письма в ЖТФ. 2018. Т. 44. В. 22. С. 19–24.
- [9] *Kumar A., Ahluwalia P.K.* // Eur. Phys. J. B. 2012. V. 85. N 6. P. 186.
- [10] *Fang H., Chuang S., Chang T.C., Takei K., Takahashi T., Javey A.* // Nano Lett. 2012. V. 12. N 7. P. 3788–3792.
- [11] *Docherty C.J., Parkinson P., Joyce H.J., Chiu M.-H., Chen C.-H., Lee M.-Y., Li L.-J., Herz L.M., Johnston M.B.* // ACS Nano. 2014. V. 8. N 11. P. 11147–11153.
- [12] *Буряков А.М.* // Рос. технологический журнал. 2017. Т. 5. № 2. С. 22–31.
- [13] *Stehle Y., Meyer H.M., Unocic R.R., Kidder M., Polizo G., Datskos P.G., Jackson R., Smirnov S.N., Vlasiouk I.V.* // Chem. Mater. 2015. V. 27. N 23. P. 8041–8047.
- [14] *Ghasemi F., Frisenda R., Dumcenco D., Kis A., Perez de Lara D., Castellanos-Gomez A.* // Electronics. 2017. V. 6. N 2. P. 28.
- [15] *Liu H.-L., Shen C.-C., Su S.-H., Hsu C.-L., Li M.-Y., Li L.-J.* // Appl. Phys. Lett. 2014. V. 105. N 20. P. 201905.
- [16] *Tan C.Z.* // J. Non. Cryst. Solids. 1998. V. 223. N 1-2. P. 158–163.
- [17] *Malitson I.H.* // J. Opt. Soc. Am. 1965. V. 55. N 10. P. 1205–1209.