

Отражение света от брэгговской решетки металлических нановключений AsSb в матрице AlGaAs

© В.И. Ушанов, В.В. Чалдышев[†], В.В. Преображенский*, М.А. Пулято*, Б.Р. Семягин*

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

* Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук,
630090 Новосибирск, Россия

(Получена 15 января 2013 г. Принята к печати 21 января 2013 г.)

Исследовались оптические свойства металлополупроводниковых метаматериалов на основе матрицы AlGaAs. Особенностью этих материалов явилось наличие массивов нановключений As и AsSb, модифицирующих диэлектрические свойства материала. Эти нановключения располагались в среде хаотически или образовывали брэгговскую структуру с максимумом отражения на длине волны вблизи 750 нм, соответствующей области прозрачности матрицы. Изучены спектры отражения *s*- и *p*-поляризованного света при разных углах падения. Показано, что массивы нановключений As слабо влияют на оптические свойства среды в изученном диапазоне длин волн 700–900 нм, хаотические массивы нановключений AsSb вызывают сильное рассеяние света, а пространственная периодичность в расположении нановключений AsSb вызывает брэгговский резонанс в отражении света.

Развитие фотоники связано с разработкой новых метаматериалов — композиционных материалов, свойства которых обусловлены коллективными эффектами и взаимодействием света с составляющими их элементами, имеющими размеры значительно меньше длины волны света. В частности, формирование в диэлектрической (полупроводниковой) матрице массива металлических нановключений позволяет существенно модифицировать диэлектрическую проницаемость среды ε , поскольку металлы и полупроводники обладают различными как по величине, так и по знаку значениями диэлектрической проницаемости. Если размеры металлических включений и расстояния между ними много меньше длины волны света, а их объемная доля f мала, то такой материал можно рассматривать в рамках приближения эффективной среды с эффективной диэлектрической проницаемостью ε_{eff} , определяемой соотношением Максвелла–Гарнетта

$$\left(\frac{\varepsilon_{\text{eff}} - \varepsilon_s}{\varepsilon_{\text{eff}} + 2\varepsilon_s} \right) = f \left(\frac{\varepsilon_m - \varepsilon_s}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_s} \right), \quad (1)$$

где ε_s , ε_m — диэлектрические проницаемости полупроводниковой матрицы и металлических включений соответственно [1–3]. Согласно соотношению (1), в оптических свойствах металлополупроводникового метаматериала должен проявляться резонанс Фрелиха, соответствующий условию $\text{Re}(\varepsilon_m + 2\varepsilon_s) = 0$.

В случае, когда расстояние между частицами близко или больше половины длины волны света, приближение эффективной среды становится неприменимым для расчета оптических свойств [3]. При наличии периодичности в расположении наночастиц хотя бы в одном направлении в оптических спектрах должен появляться брэгговский резонанс, возникающий из-за дифракции электромагнитных волн. Главный брэгговский максимум

должен наблюдаться в спектрах отражения света на длине волны (в вакууме)

$$\lambda_{\text{Br}} = 2d\sqrt{\varepsilon_{\text{eff}} - \sin^2\theta}, \quad (2)$$

где d — период структуры, θ — угол падения света. В области брэгговского резонанса взаимодействие света с метаматериалом оказывается усиленным.

В работе [4] были сделаны расчеты оптических свойств GaAs, содержащего хаотические массивы нановключений металлов Ag, Au, Cu, Ni, Fe, Cr, Er и As. Расчеты показали, что наиболее сильный эффект должен наблюдаться для нановключений Ag, поскольку серебро характеризуется наименьшей по сравнению с другими металлами величиной мнимой части диэлектрической проницаемости. Экспериментальные исследования оптических свойств массива нановключений Ag в GaAs и AlGaAs были проведены в работе [5]. Массив наночастиц был получен путем имплантации ионов серебра с последующим отжигом, обеспечивающим самоорганизацию наночастиц в объеме матриц GaAs или AlGaAs. Исследования [5] не выявили существенных особенностей, которые можно было бы связать с резонансом Фрелиха для массива частиц Ag в матрицах GaAs и AlGaAs.

В работе [6] были исследованы оптические отражение и пропускание структур GaAs, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии при низкой температуре и периодически δ -легированных сурьмой или фосфором. Периодичность легирования соответствовала брэгговскому условию для света с длиной волны в вакууме ~ 1.5 мкм. Структуры были подвергнуты отжигу, который приводил к формированию хаотической трехмерной системы металлических нановключений As в объеме эпитаксиального слоя GaAs, а также к формированию двумерных слоев металлических нановключений AsSb на δ -слоях Sb. δ -слои P не влияли существенно на формирование системы нановключений As.

[†] E-mail: chald.gvg@mail.ioffe.ru

В спектрах оптического отражения и пропускания [6] не было обнаружено особенностей, которые можно было бы связать с неупорядоченной трехмерной системой нановключений As. Периодическая система металлических нановключений AsSb проявила себя в виде резонансного пика в спектрах оптического отражения и поглощения. Величина резонансного отражения и поглощения увеличивалась с увеличением размера нановключений AsSb. Резонансная длина волны зависела от угла падения света в соответствии с законом Брэгга. Абсолютная величина брэгговского отражения от периодической системы нановключений AsSb была небольшой [6].

Вероятной причиной небольшой амплитуды резонансного оптического отражения, наблюдавшегося в работе [6], является существенная разница частот брэгговского и фрелиховского резонансов. Энергия резонанса Брэгга определяется периодом пространственного расположения наночастиц AsSb согласно соотношению (2). Для образцов, исследованных в работе [6], она составляла $E_{Br} = 0.85$ эВ. Энергия резонанса Фрелиха для наночастиц металла AsSb в матрице GaAs неизвестна. Исследования оптического поглощения, проведенные в работе [6], позволяют предположить, что резонанс Фрелиха имеет энергию, несколько большую энергии края фундаментального поглощения матрицы GaAs.

В данной работе исследовалось отражение света от брэгговской решетки металлических нановключений AsSb. Периодичность структуры обеспечивала положение основного пика брэгговского резонанса в диапазоне длин волн 740–780 нм для различных углов падения света. В качестве матрицы использовался твердый раствор AlGaAs с содержанием арсенида алюминия 34%, что обеспечивало окно прозрачности для света с длиной волны 700 нм и более.

Исследованные образцы были выращены методом молекулярно-лучевой эпитаксии в установке „Катунь“ на подложках полуизолирующего арсенида галлия с ориентацией (001). Контрольный образец (BP2443) представлял собой слой $Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ толщиной 1 мкм, выращенный при оптимальной температуре и потоках элементов, обеспечивающих высокое кристаллическое совершенство и низкую концентрацию точечных дефектов структуры. Образец BP2441 отличался от контрольного только низкой температурой эпитаксии, составлявшей 200°C, что обеспечивало захват в растущий слой избыточного мышьяка в концентрации $\sim 1\%$ [7]. Образец BP2442 был также выращен при низкой температуре и представлял собой слой твердого раствора AlGaAsSb толщиной 1 мкм с малым ($\sim 1\%$) содержанием сурьмы. Наконец, образец BP2444, также выращенный при низкой температуре, представлял собой слой AlGaAs, в котором в процессе выращивания формировалась периодическая система из 12 δ -слоев GaSb, толщиной около 1 монослоя каждый, расположенных на расстояниях 100 нм друг от друга. Общая толщина слоя AlGaAs в образце BP2444 составляла 1.3 мкм.

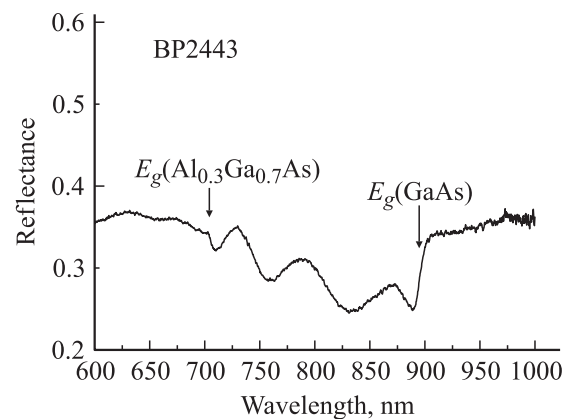


Рис. 1. Спектр оптического отражения от контрольного образца, не содержащего металлических нановключений. Нормальное падение света, температура измерений — комнатная.

Образцы BP2441, BP2442 и BP2444, выращенные при низкой температуре, были разделены на четыре части. Три из них были подвергнуты отжигу при температурах 400, 500 и 600°C, что обеспечивало формирование в объеме эпитаксиальных слоев AlGaAs массива нановключений As и AsSb [7,8]. При этом пространственные распределения нановключений As в образце BP2441 и нановключений AsSb в образце BP2442 были хаотическими [7–9], в то время как наличие δ -слоев GaSb в образце BP2444 приводило к формированию на них двумерных слоев нановключений AsSb [8,10,11].

Спектры оптического отражения измерялись при различных углах падения света от 0 до 80°. Измерения проводились для *s*- и *p*-поляризации при комнатной температуре в диапазоне длин волн 600–1000 нм. Источником света служила лампа Osram HLX 100W6.6 с коллиматором. Для транспорта света от источника к образцу использовались оптоволоконные кабели. Регистрация спектров осуществлялась спектрометром Ocean Optics HR4000CG. Запись спектров производилась на программном обеспечении Ocean Optics SpectraSuite.

На рис. 1 представлен спектр оптического отражения от контрольного образца BP2443, не содержащего металлических нановключений, при нормальном падении света. Стрелками на рисунке отмечены особенности, связанные с краями фундаментальных полос поглощения в подложке GaAs и барьерном слое AlGaAs (ширины запрещенных зон E_g). В промежуточной области длин волн проявляются осцилляции Фабри–Перо, вызванные отражением света от границ барьерного слоя AlGaAs с воздухом и подложкой GaAs.

На рис. 2 представлены спектры оптического отражения, записанные при нормальном падении света для образца BP2441, содержащего хаотический массив металлических нановключений As. Четыре кривых на рис. 2 относятся к различным частям образца. Часть образца, не подвергнутая термообработке (*as-grown*), не содержит нановключений. При этом избыточный мышьяк

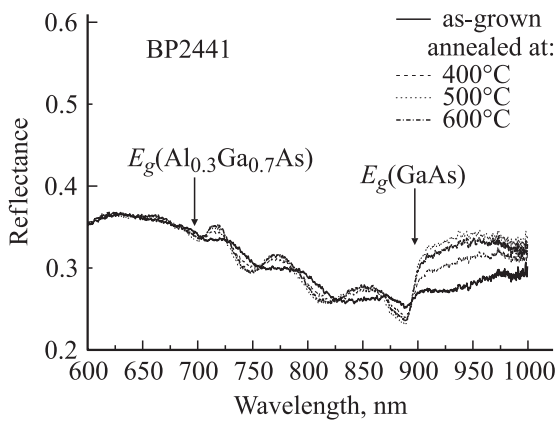


Рис. 2. Спектры оптического отражения от образца, содержащего хаотический массив металлических нановключений As. Нормальное падение света, температура измерений — комнатная.

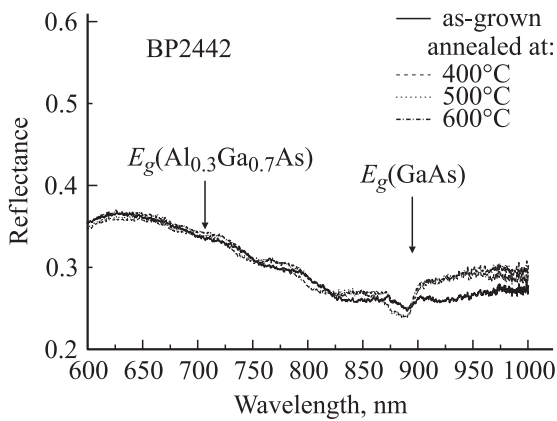


Рис. 3. Спектры оптического отражения от образца, содержащего хаотический массив металлических нановключений AsSb. Нормальное падение света, температура измерений — комнатная.

находится в матрице AlGaAs в атомарном состоянии и вызывает поглощение света [12]. В результате этого поглощения картина осцилляций Фабри–Перо несколько затухает и смещается по сравнению с кривой на рис. 1. Отжиг обеспечивает формирование нановключений As в матрице AlGaAs. При этом поглощение на точечных дефектах As_{Ga} исчезает. Взамен появляется поглощение и рассеяние света нановключениями As. Как видно из рис. 2, спектр отражения несколько видоизменяется, а осцилляции Фабри–Перо становятся более сильными. Интересно отметить, что изменение температуры отжига, вызывающее изменение размеров нановключений As, практически не влияет на оптический спектр. Это наблюдение согласуется с предсказаниями теории Ми для рассеяния на частицах, размер которых много меньше длины волны света [2,3].

На рис. 3 представлены спектры оптического отражения, записанные при нормальном падении света, от образца BP2442, содержащего хаотический массив

металлических нановключений AsSb. Различные кривые на рисунке соответствуют неотожженной части образца и частям, подвергнутым отжигу при различных температурах. Отличием кривых для отожженных частей этого образца на рис. 3 от соответствующих кривых на рис. 2 является существенно меньшая амплитуда осцилляций Фабри–Перо. Этот факт указывает на большее поглощение и рассеяние света нановключениями As по сравнению с нановключениями As. Вероятной причиной этого является более низкая энергия резонанса Фрёлера для нановключений AsSb.

На рис. 4 представлены спектры оптического отражения, записанные при нормальном падении света, от образца BP2444, содержащего периодическую систему металлических нановключений AsSb. Сравнение кривых на рис. 4 и 3 показывает, что пространственная периодичность в расположении нановключений приводит к появлению резонансного пика, сопровождаемого спутными осцилляциями. Амплитуда пика увеличивается с увеличением температуры отжига, т.е. с увеличением размера нановключений. Следует отметить, что при одинаковой температуре и продолжительности отжига нановключения AsSb имеют значительно больший размер по сравнению с нановключениями As. Резонансная длина волны основного пика на рис. 4 соответствует ожидаемой согласно формуле Брэгга–Вульфа (2).

На рис. 5 и 6 представлены угловые зависимости спектров оптического отражения для *s*- и *p*-поляризаций света от образца BP2444, содержащего периодическую систему металлических нановключений AsSb. Как видно из рисунков, при отклонении от нормального падения резонансная длина волны уменьшается для обеих поляризаций в соответствии с законом Брэгга–Вульфа (2). При этом нерезонансное отражение в случае *s*-поляризации увеличивается, а в случае *p*-поляризации уменьшается согласно формулам Френеля [3].

На рис. 7 и 8 построены экспериментальные зависимости резонансной длины волны от угла падения

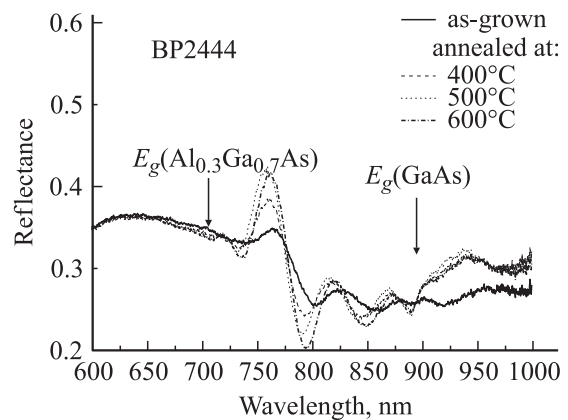


Рис. 4. Спектры оптического отражения от образца, содержащего периодическую систему металлических нановключений AsSb. Нормальное падение света, температура измерений — комнатная.

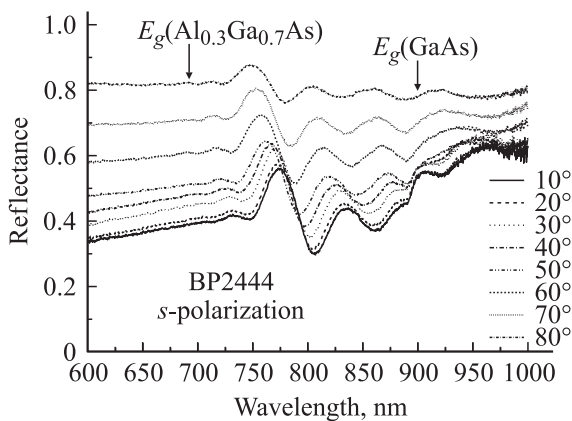


Рис. 5. Спектры оптического отражения от образца, содержащего периодическую систему металлических нановключений AsSb, для света с *s*-поляризацией.

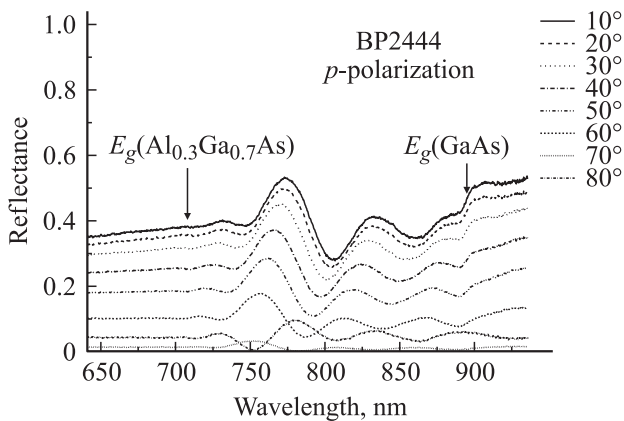


Рис. 6. Спектры оптического отражения от образца, содержащего периодическую систему металлических нановключений AsSb, для света с *p*-поляризацией.

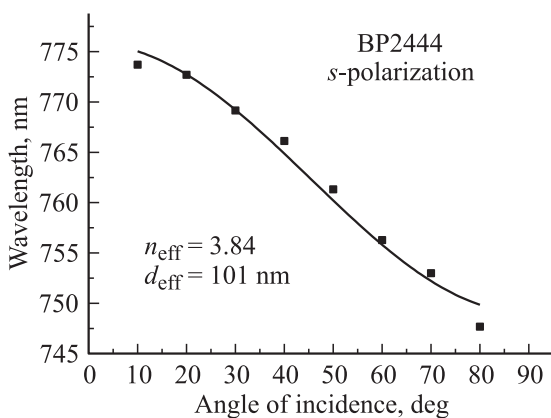


Рис. 7. Зависимость положения брэгговского пика от угла падения света с *s*-поляризацией. Точки — эксперимент; линия — расчет по формуле (2), эффективные показатель преломления (n_{eff}) и период (d_{eff}) указаны.

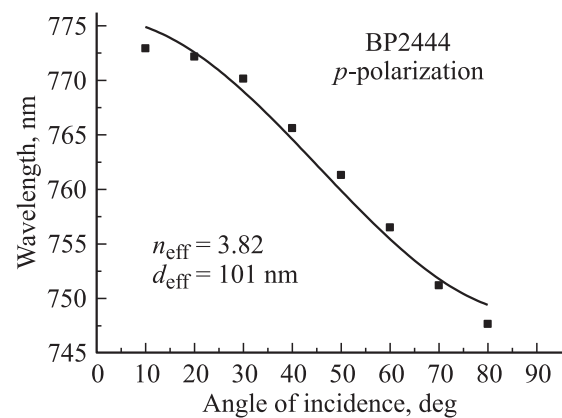


Рис. 8. Зависимость положения брэгговского пика от угла падения света с *p*-поляризацией. Точки — эксперимент; линия — расчет по формуле (2), эффективные показатель преломления (n_{eff}) и период (d_{eff}) указаны.

света с *s*- и *p*-поляризацией. Сплошные кривые на рис. 7 и 8 показывают результаты расчета по формуле Брэгга–Вульфа (2), в которой эффективный коэффициент преломления среды и период структуры использовались как подгоночные параметры. Полученный период структуры с точностью до 1% совпал с ожидаемым в соответствии с технологическими параметрами и режимами формирования структуры. Эффективный показатель преломления среды оказался равным (3.81 ± 0.01). Эта величина значительно превышает значение показателя преломления матрицы AlGaAs, равное 3.6 в исследованной области длин волн. Следует отметить, что доля объема, занимаемая нановключениями AsSb, существенно меньше 1%. Однако диэлектрические свойства нановключений AsSb существенно отличаются от свойств матрицы, что и определяет весьма значительную амплитуду резонанса как в абсолютных единицах, так и в сравнении с ранее наблюдавшимся эффектом для брэгговских решеток нановключений As в матрице GaAs.

Таким образом, нами изучены оптические свойства неупорядоченных систем нановключений As и AsSb, а также брэгговской решетки нановключений AsSb в кристаллической матрице AlGaAs. Показано слабое влияние системы случайно расположенных нановключений As на оптические свойства пленок AlGaAs, поскольку фрелиховский резонанс для нановключений As далек от окна прозрачности для матрицы AlGaAs. Для нановключений AsSb плазмонный резонанс, по-видимому, находится в области меньших энергий. В результате среда AlGaAs, содержащая массив случайно расположенных нановключений AsSb, становится поглощающей и рассеивающей в окне фундаментального поглощения. Пространственная упорядоченность системы нановключений AsSb создает брэгговский резонанс в отражении. Его амплитуда составляет 30% при том, что объемная доля металлических нановключений была значительно ниже 1%, а брэгговская последовательность состояла из 12 периодов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и Российской академии наук.

Список литературы

- [1] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Теоретическая физика: Электродинамика сплошных сред* (М., Наука, 1982).
- [2] Г. ван де Хюлст. *Рассеяние света малыми частицами* (М., Изд-во иностр. лит., 1961) [H.C. van de Hulst. *Light Scattering by Small Particles* (Dover, N.Y., 1981)].
- [3] М. Борн, Б. Вольф. *Основы оптики* (М., Наука, 1973).
- [4] D.D. Nolte. *J. Appl. Phys.*, **76**, 3740 (1994).
- [5] D. Crouse, D.D. Nolte, J.C.P. Chang, M.R. Melloch. *J. Appl. Phys.*, **81**, 7981 (1997).
- [6] П.В. Лукин, В.В. Чалдышев, В.В. Преображенский, М.А. Пуцято, Б.Р. Семягин. *ФТП*, **46**, 1314 (2012).
- [7] Н.А. Берт, А.И. Вейнгер, М.Д. Вилисова, С.И. Голощапов, И.В. Ивонин, С.В. Козырев, А.Е. Куницын, Л.Г. Лаврентьева, Д.И. Лубышев, В.В. Преображенский, Б.Р. Семягин, В.В. Третьяков, В.В. Чалдышев, М.П. Якубеня. *ФТТ*, **35**, 2609 (1993).
- [8] V.V. Chaldyshev. *Mater. Sci. Eng. B*, **88**, 195 (2002).
- [9] D.A. Vasyukov, M.V. Baidakova, V.V. Chaldyshev, A.A. Suvorova, V.V. Preobrazhenskii, M.A. Putyato, B.R. Semyagin. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **34**, A15 (2001).
- [10] N.A. Bert, V.V. Chaldyshev, Y.G. Musikhin, A.A. Suvorova, V.V. Preobrazhenskii, M.A. Putyato, B.R. Semyagin, P. Werner. *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 1442 (1999).
- [11] V.V. Chaldyshev, N.A. Bert, A.E. Romanov, A.A. Suvorova, A.L. Kolesnikova, V.V. Preobrazhenskii, M.A. Putyato, B.R. Semyagin, P. Werner, N. Zakharov, A. Claverie. *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 377 (2002).
- [12] Л.Г. Лаврентьева, М.Д. Вилисова, В.В. Преображенский, В.В. Чалдышев. *Изв. вузов. Физика*, **45**, 735 (2002).

Редактор Л.В. Шаронова

Reflection of light from a Bragg lattice of metallic AsSb nanoinclusions in AlGaAs matrix

V.I. Ushanov, V.V. Chaldyshev, V.V. Preobrazhenskii*, M.A. Putyato*, B.R. Semyagin*

Ioffe Physicotechnical Institute,
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

* Institute of Semiconductor Physics,
Siberian Branch of Russian Academy of Sciences,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract Optical properties of metal–semiconductor metamaterials based on the AlGaAs matrix have been studied. The peculiarity of these materials was the presence of arrays of As or AsSb nanoinclusions, which modify the dielectric properties of the material. These nanoinclusions were either randomly dispersed in the medium or formed a Bragg structure with maximum reflection at the wavelength near 750 nm within the transparent range of the matrix. The reflection spectra were investigated for *s*- and *p*-polarized light at different incident angles. We have shown that the arrays of As nanoinclusions slightly affect the optical properties of the medium in the investigated wavelength range of 700–900 nm, the chaotic arrays of AsSb nanoinclusions caused a strong scattering of light and the spatial periodicity in the location of the AsSb nanoinclusions results in a Bragg resonance in the light reflection.