

УДК 621.315.592

XX Международный симпозиум „Нанофизика и наноэлектроника“,
Нижний Новгород, 14–18 марта 2016 г.

Резонансный характер генерации терагерцового излучения в полупроводниковых нитевидных нанокристаллах

© В.Н. Трухин⁺, А.Д. Буравлев[▲], И.А. Мустафин⁺, Г.Э. Цырлин[▲], Д.И. Курицын[▼],
В.В. Румянцев[▼], С.В. Морозов^{▲‡}, J.P. Kakko[■], T. Huhtio[■], H. Lipsanen[■]

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

^{*} Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет
информационных технологий, механики и оптики (Университет ИТМО),
197101 Санкт-Петербург, Россия

[▲] Санкт-Петербургский академический университет —
научно-образовательный центр нанотехнологий Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

[▼] Институт физики микроструктур Российской академии наук,
607680 Нижний Новгород, Россия

[■] Department of Micro- and Nanosciences, Micronova, Aalto University, P.O. Box 13500,
FI-000a76 Aalto, Finland

[‡] Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,
603950 Нижний Новгород, Россия

E-mail: valera.truchin@mail.ioffe.ru

(Получена 27 апреля 2016 г. Принята к печати 10 мая 2016 г.)

Представлены экспериментальные результаты исследования генерации терагерцового излучения периодическими массивами полупроводниковых нитевидных нанокристаллов на основе GaAs при возбуждении сверхкороткими оптическими импульсами. Было обнаружено, что генерация ТГц излучения имеет резонансный характер вследствие резонансного возбуждения цилиндрических мод в нанокристалле и при оптимальных геометрических параметрах массива полупроводниковых нитевидных нанокристаллов эффективность ТГц генерации превышает аналогичную величину для объемного полупроводника *p*-InAs, который на данный момент является одним из наиболее эффективных когерентных терагерцовых эмиттеров.

1. Введение

Полупроводниковые наноструктуры в виде свободно стоящих полупроводниковых нанопроводов являются одним из наиболее перспективных одномерных объектов для применения в наноэлектронике, нанофотонике и нанобиоэлектронике. Кроме того, использование квазиодномерных наноструктур, таких как нитевидные нанокристаллы (ННК), в качестве терагерцовых излучателей является перспективным направлением совершенствования существующих эмиттеров терагерцового излучения ввиду уникальности их электрических и оптических свойств. В нашей предыдущей работе на основе поляризационных исследований было показано, что при оптимальных геометрических параметрах массива полупроводниковых нитевидных нанокристаллов должен наблюдаться эффект резонансного возбуждения цилиндрических мод, который в свою очередь влияет на эффективность генерации терагерцового (ТГц) излучения [1]. Отметим, что резонансное поглощение света наблюдалось в работе [2] при исследовании фото-

вольтаических свойств структур на основе ННК GaAs. В настоящей работе приводятся результаты экспериментальных исследований спектров возбуждения генерации терагерцового излучения в упорядоченных массивах полупроводниковых нитевидных нанокристаллов на основе GaAs при возбуждении сверхкороткими оптическими импульсами.

2. Образцы и методика эксперимента

Нитевидные нанокристаллы выращивались на подложках GaAs *n*-типа с кристаллографической ориентацией (111) В методом газофазной эпитаксии из металлургических соединений (ГФЭМО). Рост осуществлялся без предварительного нанесения слоя катализатора, но с помощью предварительной обработки подложек. Для этого первоначально на поверхность подложки осуществлялось осаждение слоя SiO_x толщиной 40 нм методом плазмохимического осаждения из газовой фазы на установке Oxford Instruments Plasmalab 80plus. Далее с помощью электронно-лучевой литографии сверхвы-

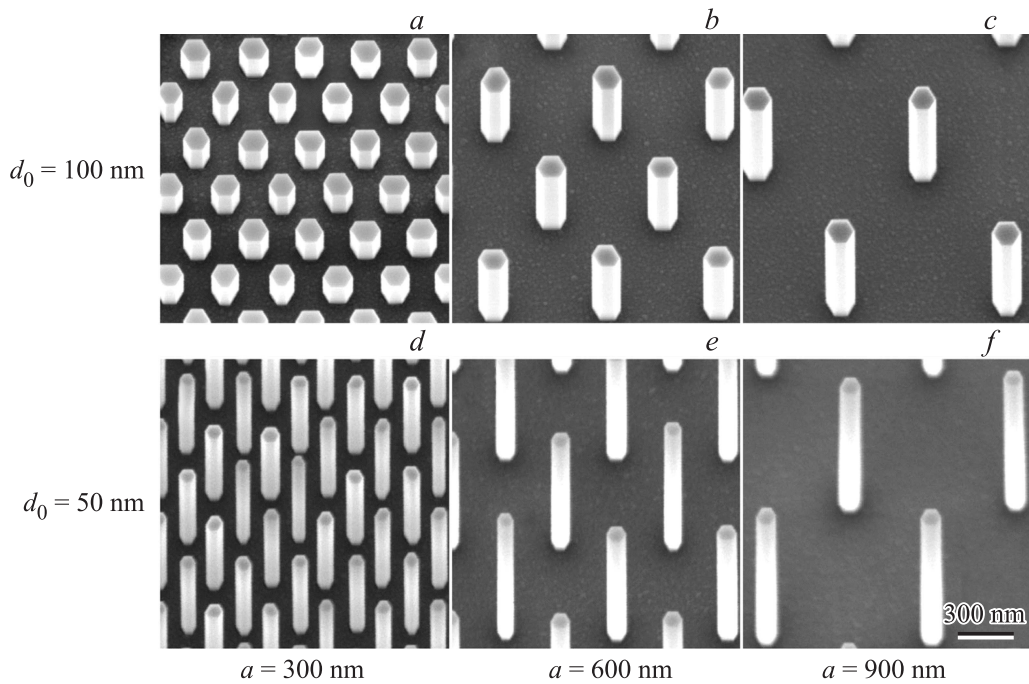


Рис. 1. СЭМ изображения массивов ННК под углом 20°. Верхний ряд (a–c) — диаметр ННК составляет 160 нм, нижний ряд (d–f) — 80 нм. Расстояние между ННК: массивы a, d — 300; b, e — 600; c, f — 900 нм. d_0 — начальный диаметр окна в окисном слое кремния.

сокого разрешения осуществлялось вскрытие окон в окисном слое диаметром 50, 55, 60, 65 и 100 нм с шагом 300, 600, 900, 1200, 1500, 1800 и 2100 нм (для соответствующих массивов). Вскрытые отверстия располагались в вершинах равностороннего треугольника. Непосредственный ГФЭМО рост ННК осуществлялся в атмосферном реакторе горизонтального типа на установке компании Thomas Swan. Соотношение потоков V/III было равно 200. Время роста варьировалось от 60 до 300 с. Температура роста была равна 480°C. На рис. 1 представлены СЭМ-изображения периодических массивов ННК на основе GaAs. Видно, что ННК расположены в местах, где были вскрыты отверстия в SiO_x. ННК имеют вертикальные боковые стенки и обладают гексагональной морфологией. Как можно видеть на рис. 1, высота и диаметр нанокристаллов зависят от диаметра отверстия и их плотности. В итоге средний диаметр нанопроводов для массивов с $d_0 = 50$ нм, $a = 1500$ нм и $d_0 = 100$ нм, $a = 1500$ нм составил 80 и 160 нм. Размеры массива нанопроводов с заданной плотностью составляли 400 × 400 мкм.

Основные эксперименты выполнялись с помощью техники время-разрешенной спектроскопии — регистрировались амплитуда электрического поля ТГц волны и фазовая информация ТГц импульса. Экспериментальная схема приведена на рис. 2. В качестве источника оптического излучения использовался фемтосекундный Ti:Sa-лазер, генерирующий световые импульсы длительностью 15 фс с частотой повторения 80 МГц (центральная длина волны светового импульса состав-

ляла 795 нм). Фемтосекундный импульс расщеплялся на два световых импульса. Первый импульс (импульс „накачки“) использовался для возбуждения полупроводниковой наноструктуры, ориентированной под углом 45° к направлению возбуждающего импульса. Фокусировка лазерного излучения осуществлялась параболоидом. Второй — „пробный“ импульс использовался для реги-

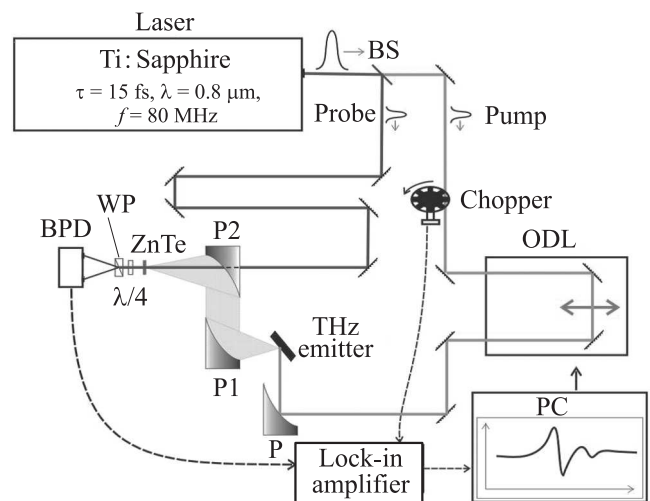


Рис. 2. Схема экспериментальной установки время-разрешенной спектроскопии. Регистрация ТГц импульса осуществлялась с помощью техники электрооптического сэмплирования, в качестве кристалла использовался кристалл ZnTe.

страции ТГц излучения и направлялся на нелинейный кристалл ZnTe. На этот же кристалл фокусировалось ТГц излучение с помощью двух параболаидов П1 и П2. Изменение поляризации пробного пучка света, вызванное ТГц импульсом в нелинейном кристалле, регистрировалось балансным фотоприемником. Сигнал фотоприемника, пропорциональный амплитуде ТГц поля с фазой, определяемой временной задержкой между пробным импульсом и импульсом накачки, подавался на синхронный усилитель с частотой синхронизации, равной частоте модуляции импульса накачки. Модуляция накачки осуществлялась с помощью механического модулятора на частоте около 1 кГц. Выход синхронного усилителя, а также управление оптической линией задержки были связаны с ПК. Программа, разработанная в среде LabVIEW, позволяла управлять оптической линией задержки, регистрировать и обрабатывать сигнал с синхронного усилителя. Путем регулирования времени задержки между ТГц импульсом и оптическим зондирующим импульсом регистрировалась волновая форма ТГц импульса. Для проведения экспериментальных исследований спектров возбуждения генерации терагерцового излучения использовались фемтосекундный лазер, перестраивающийся в спектральном диапазоне от 710 до 910 нм (длительность импульса составляла порядка 80 фс), и кремниевый болометр фирмы „Infrared Laboratories“, позволяющий регистрировать среднюю мощность терагерцового излучения.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 3 представлены волновые формы ТГц импульса, полученные при возбуждении массивов ННК с различной плотностью и диаметром ~ 160 нм. На вставке указаны расстояния между нанопроводами, a , и их высота, h . Указанные массивы размещены на одной подложке, тем не менее высоты нанопроводов

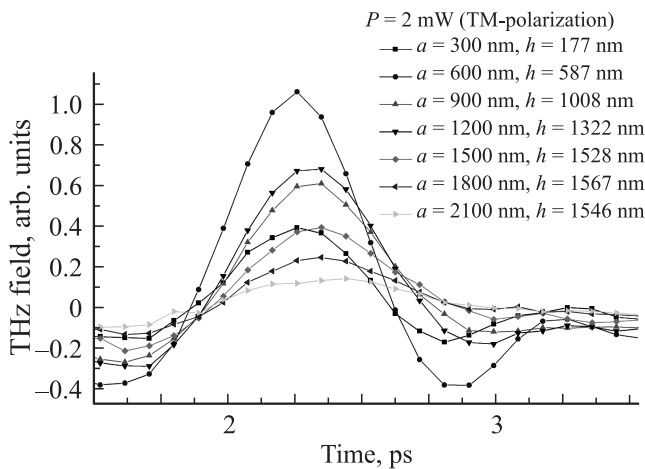


Рис. 3. Волновые формы ТГц импульса, полученные при возбуждении массивов ННК с различной плотностью и диаметром ~ 160 нм. Длина волны оптического возбуждения 795 нм.

для разных массивов оказались разные. Из рис. 3 видно, что максимальная амплитуда электрического поля ТГц импульса достигается при генерации электромагнитного излучения массивом ННК при $a = 600$ нм и $h = 587$ нм. Эффективность генерации уменьшается как при увеличении расстояния между нанопроводами, так и при уменьшении. При исследовании процесса ТГц генерации от массивов ННК с различными параметрами было обнаружено, что эффективность генерации в ННК, в которых расстояние между нанокристаллами больше длины волны возбуждаемого света, практически не зависит, а при $a < \lambda$ появляется пропорциональная зависимость. В интервале значений $a > \lambda$ терагерцовое поле является суммой полей, генерируемых в каждом нанокристалле, поэтому неизменность эффективности терагерцовой генерации в зависимости от высоты нанокристалла, по-видимому, обусловлена постоянством параметров внутренних электрических полей в нанокристалле в данном диапазоне высот ННК. Для массива ННК с большой плотностью экспериментальные результаты (зависимость от высоты) можно объяснить возникновением неоднородного возбуждения нанокристалла по высоте и, естественно, проявлением механизма терагерцовой генерации, обусловленного амбиполярной диффузией носителей заряда. В настоящих экспериментальных результатах, в отличие от данных, полученных для ННК, выращенных на подложке p -GaAs, не наблюдается эффекта инверсии знака напряженности электрического поля при генерации ТГц излучения от массива нанокристаллов. Отметим, что знак ТГц поля при возбуждении поверхности подложки объемного n -GaAs имел такую же полярность, но амплитуда поля была значительно меньше. Следует отметить, что, поскольку ННК имеют проводимость n -типа, а подложки были так же n -типа, между нанопроводом и подложкой образуется n - n^+ -переход и существует контактное поле. Таким образом, генерация ТГц излучения в наших образцах может быть связана не только с возникновением анизотропии в распределении носителей заряда по импульсу, а также с движением носителей заряда в контактном поле и амбиполярной диффузией. Следует подчеркнуть, что вклад амбиполярной диффузии, по-видимому, будет незначителен, если длина волны возбуждающего света будет больше расстояния между нанопроводами. Направление движения носителей заряда в поле n - n^+ -перехода совпадает с направлением движения носителей, связанного с возникновением анизотропии в распределении носителей заряда по импульсу. Поэтому терагерцовые поля, создаваемые этими токами, будут иметь одинаковое направление электрического поля и эффекта инверсии не будет.

Как отмечалось в работе [1], при определенных параметрах ННК и возбуждающего света эффективность ТГц генерации становится больше при поляризации возбуждающего оптического излучения, направление которой перпендикулярно оси нанопровода (ТЕ-поляризация). Такая же картина наблюдается и при ТГц генерации

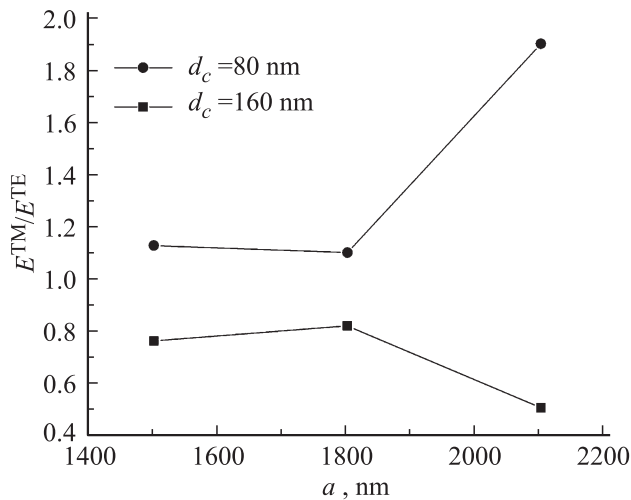


Рис. 4. Зависимость соотношения между максимальными амплитудами ТГц импульса для ТМ- и ТЕ-поляризации возбуждающего света от расстояния между нанопроводами. Длина волны оптического возбуждения 795 нм, d_c — средний диаметр в массивах.

в ННК, синтезированных на подложке *n*-GaAs. На рис. 4 представлены зависимости соотношения между максимальными амплитудами ТГц импульса для ТМ- и ТЕ-поляризаций возбуждающего света с длиной волны 795 нм от расстояния между нанопроводами. Угол падения возбуждающего света составлял 45°. Экспериментальные результаты приведены для упорядоченных массивов ННК с $a > \lambda$. На рис. 4 видно, что максимальная амплитуда ТГц поля, генерируемого от массива ННК с диаметром $d \sim 160$ нм, для ТЕ-поляризации больше, чем для ТМ-поляризации. Тем не менее для массива ННК с диаметром $d \sim 80$ нм соответствующее соотношение амплитуд ТГц полей прямо противоположно. В работе [1], на основе теории Лоренца–Ми, было показано, что такая поляризационная зависимость обусловлена резонансным поглощением света в нанокристалле. Соответственно наличие такой же поляризационной зависимости для ННК, синтезированных на подложке *n*-GaAs, свидетельствует о вкладе эффекта Ми и в этих образцах. Для подтверждения этого явления были проведены вычисления спектра поглощения для одиночного ННК и экспериментально исследован спектр возбуждения ТГц эмиссии. Используя данные для комплексного показателя преломления GaAs (без учета дисперсии), было вычислено сечение поглощения света при наклонном падении на цилиндр (см. [1]). На рис. 5 представлена расчетная зависимость сечения поглощения света от величины λ при угле падения 45° для ТМ- и ТЕ-поляризации. Из рис. 5 видно, что поглощение света для ТМ- и ТЕ-поляризации при диаметре нанокристалла 160 нм имеет резонансный характер и пик резонанса для ТМ-поляризации находится в области 850 нм. Величина ТГц поля, генерируемого в процессе движения неравновесных носителей заряда в поверхностном

или контактном электрическом поле, пропорциональна концентрации фотовозбужденных носителей заряда [3]. Соответственно значение ТГц поля будет коррелировать с величиной поглощения света. С помощью кремниевого болометра была экспериментально определена спектральная зависимость эффективности терагерцовой генерации от энергии кванта возбуждения. Для упорядоченных массивов ННК с диаметром 160 нм вид зависимости имеет резонансный характер (рис. 6). На этом рисунке также представлены спектры возбуждения ТГц генерации в упорядоченном массиве ННК с диаметром 150 нм и расстоянием между нанокристаллами $a = 600$ нм и в объемном полупроводнике GaAs (зависимость для объемного GaAs приведена из работы [4]). Из рис. 6 видно, что для массива ННК с $a = 1500$ нм резонанс находится в области 850 нм (это соответствует положению резонанса поглощения для одиночного нанокристалла). Для массива ННК с $a = 600$ нм

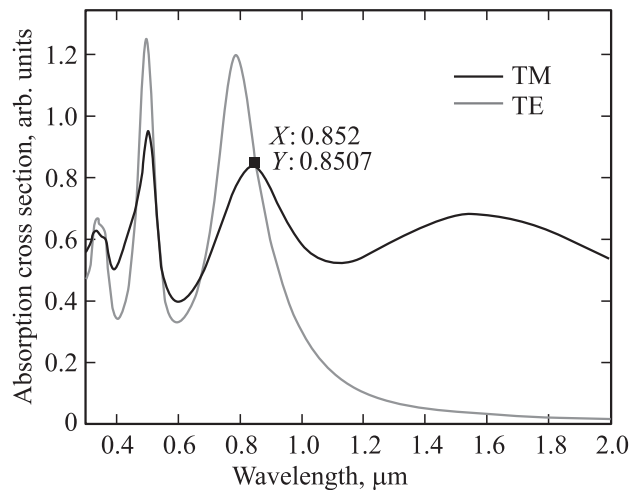


Рис. 5. Спектры поглощения для ТМ- и ТЕ-поляризации ($d = 160$ нм).

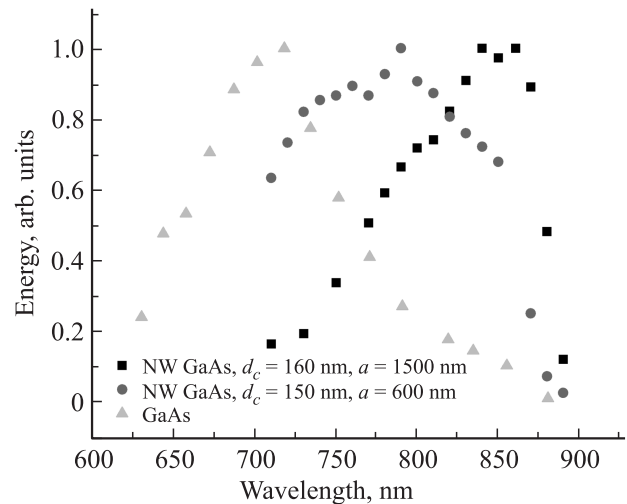


Рис. 6. Спектры возбуждения ТГц генерации.

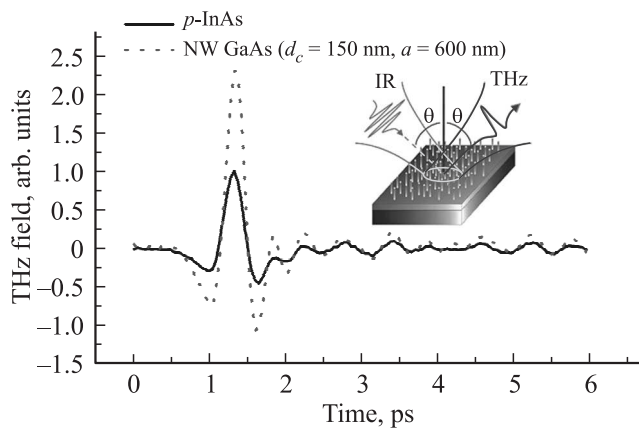


Рис. 7. Волновые формы ТГц импульсов. Длина волны оптического возбуждения 795 нм.

резонанс сдвигается в область коротких длин волн, где находится максимум эффективности генерации в объемном полупроводнике GaAs. Этот экспериментальный результат вполне логичен, так как периодический массив ННК с $a = 600$ нм представляет собой фотонный кристалл, где отдельные моды нанокристалла переходят в более богатую зонную структуру. Таким образом экспериментальное исследование спектра возбуждения ТГц генерации подтверждает, что ТГц генерация в полупроводниковых ННК имеет резонансный характер и природа этих резонансов обусловлена поглощением Ми. Также были проведены эксперименты по регистрации волновых форм терагерцовых импульсов для образцов объемного полупроводника p -InAs ($p \sim 3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$). На рис. 7 представлены волновые формы терагерцовых импульсов, генерируемых в ННК и p -InAs. Сопоставляя результаты, отметим, что амплитуда ТГц импульса, излучаемого от массива ННК, больше в 2 раза, чем амплитуда ТГц импульса для p -InAs. Соответственно эффективность терагерцовой генерации для массива полупроводниковых нитевидных нанокристаллов, синтезированных на подложке n -GaAs, превышает аналогичную величину для объемного полупроводника p -InAs.

4. Заключение

Таким образом, в данной работе проведены исследования генерации ТГц излучения массивами ННК GaAs, имеющих разные геометрические параметры, при возбуждении сверхкороткими оптическими импульсами. Установлено, что эффективность ТГц генерации определяется усилением электромагнитного поля за счет резонансного возбуждения вытекающих волновых мод (резонансы Ми) в нанокристалле и при оптимальных геометрических параметрах массива полупроводниковых нитевидных нанокристаллов превышает аналогичную величину для объемного полупроводника p -InAs, являю-

щегося наиболее эффективным когерентным терагерцовым эмиттером [5].

Работа выполнена при финансовой поддержке Программы фундаментальных исследований Президиума РАН (Фундаментальные и прикладные проблемы фотоники и физика новых оптических материалов) и проекта РФФИ № 14-02-00957.

Список литературы

- [1] V.N. Trukhin, A.D. Bouravleuv, I.A. Mustafin, J.P. Kakko, T. Huhtio, G.R. Cirlin, H. Lipsanen. *Appl. Phys. Lett.*, **106**, 252 104 (2015).
- [2] S. Hu, C.-Y. Chi, K.T. Fountaine, M. Yao, H.A. Atwater, P.D. Darkus, N.S. Lewis, C. Zhou. *Energy Environ. Sci.*, **6**, 1879 (2013).
- [3] V.N. Trukhin, A.V. Andrianov, A.V. Zinov'ev. *Phys. Rev. B*, **78**, 155 325 (2008).
- [4] A. Arlauskas, A. Krotkus. *Semicond. Sci. Technol.*, **27**, 115 015 (2012).
- [5] R. Adomavicius, A. Urbanowicz, G. Molis, A. Krotkus, E. Satkovskis. *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 2463 (2004).

Редактор Г.А. Оганесян

Observation of the resonant generation of terahertz radiation in semiconductor nanowires

V.N. Trukhin^{+,*}, A.D. Bouravleuv[▲], I.A. Mustafin^{+,*}, G.R. Cirlin[▲], D.I. Kuritsyn[▼], V.V. Romyantsev[▼], S.V. Morosov[‡], J.P. Kakko[■], T. Huhtio[■], H. Lipsanen[■]

⁺ Ioffe Institute,
194021 St. Petersburg, Russia

^{*} St. Petersburg National Research University
of Information Technologies, Mechanics and Optics
197101 St. Petersburg, Russia

[▲] St. Petersburg Academic University —
Nanotechnology Research and Education Centre
Russian Academy of Sciences,
194021 St. Petersburg, Russia

[▼] Institute for Physics of Microstructures,
Russian Academy of Sciences,
607680 Nizhny Novgorod, Russia

[■] Department of Micro- and Nanosciences, Micronova,
Aalto University P.O. Box 13500, FI-000a76 Aalto,
Finland

[‡] Lobachevsky State University of Nizhny Novgorod,
603950 Nizhny Novgorod, Russia

Abstract The paper presents the results of experimental studies of terahertz radiation generation in periodic arrays of GaAs nanowires via excitation by ultrashort optical pulses. It was found that the generation of THz radiation exhibits a resonant behavior due to the leaky modes resonant excitation in the nanowires, and with optimal geometric parameters of nanowires array the generation efficiency was found to be higher than for the bulk p -InAs, which is the most effective coherent terahertz emitter.