

08;09

## Терагерцевый ближнепольный отклик в лентах графена

© П.А. Алексеев<sup>1</sup>, Б.Р. Бородин<sup>1</sup>, И.А. Мустафин<sup>1</sup>, А.В. Зубов<sup>2</sup>, С.П. Лебедев<sup>1</sup>, А.А. Лебедев<sup>1</sup>,  
В.Н. Трухин<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Университет ИТМО, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: proher@gmail.com

Поступило в Редакцию 21 февраля 2020 г.

В окончательной редакции 9 апреля 2020 г.

Принято к публикации 29 апреля 2020 г.

Сообщается о результатах экспериментального исследования рассеяния и ближнепольного взаимодействия терагерцевого электромагнитного поля с лентами графена вблизи металлического зонда атомно-силового микроскопа. Показано усиление ближнепольного терагерцевого рассеяния в лентах по сравнению с имеющим место в случае неструктурированного графена. Обнаружено возникновение резонансных пиков в области 0.2–1.6 THz в спектрах рассеяния терагерцевого излучения на лентах графена в присутствии зонда, что, возможно, обусловлено взаимодействием излучения с плазмонами в лентах.

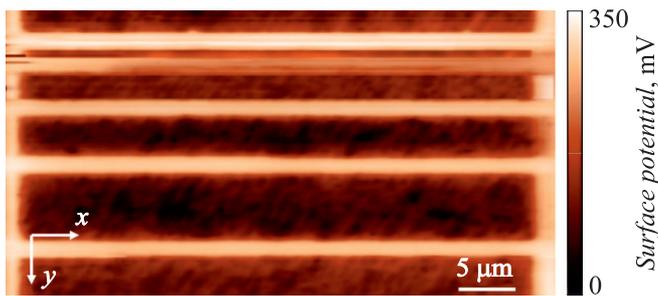
**Ключевые слова:** графен, плазмон, терагерцевое излучение, ближнее поле.

DOI: 10.21883/PJTF.2020.15.49745.18256

На протяжении последних лет пристальное внимание уделяется исследованию взаимодействия терагерцевого (THz) излучения со структурами на основе графена [1,2]. В первую очередь это связано с активным поиском новых материалов для создания дешевых, быстрых и высокочувствительных детекторов THz-излучения, функционирующих при комнатной температуре. Недавние исследования графена продемонстрировали перспективность этого материала в качестве основы для создания элемента оптоэлектронных устройств THz-диапазона [3–5]. Это связано с большой подвижностью носителей заряда в графене, обусловленной фундаментальными физическими законами и симметрией его кристаллической решетки. Графен отличается в этом отношении от „классических“ полупроводниковых материалов ввиду наличия у носителей заряда так называемого псевдоспина. Эта величина, с одной стороны, должна сохраняться, а с другой — меняет знак при отражении носителя заряда назад. Таким образом, процессы рассеяния электронов оказываются подавленными, благодаря чему у графена аномально высокая длина свободного пробега носителей. Кроме того, исследование взаимодействия THz-излучения с электронными подсистемами низкоразмерных систем может существенно развить наше представление о зонной структуре квазиодномерных проводников. Дело в том, что ширина запрещенной зоны графеновых нанолент шириной до 100 nm составляет единицы meV, что соответствует кванту излучения THz-диапазона. В силу одномерности рассматриваемых объектов их отклик на излучение должен носить резонансный характер [6]. Другим важным вопросом, на который еще предстоит получить ответ, является роль коллективных возбуждений электронной подсистемы при взаимодействии углеродных наноструктур с THz-излучением [7]. Как известно, графен обладает сильным плазмонным откликом на

THz-частотах, что обусловлено как высокой плотностью, так и малой коллективной эффективной массой свободных носителей заряда [8]. Поэтому весьма актуальным является исследование взаимодействия электромагнитного излучения в терагерцевом спектральном диапазоне с зондом сканирующего зондового микроскопа (СЗМ) вблизи графеновой ленты. Цель настоящей работы состоит в исследовании терагерцевого ближнепольного отклика от лент однослойного графена.

Для получения пленок монослойного графена использовался метод термического разложения поверхности SiC [9]. В качестве подложки использовались высокоомные пластины 6H-SiC с ориентацией  $(0001) \pm 0.25^\circ$  (Si-грань). Границы монослойных графеновых лент были сформированы методом локального анодного окисления (ЛАО). Метод ЛАО является методом безмасочной зондовой литографии и позволяет создавать изолирующие области оксида графена с разрешением  $\sim 10$  nm [10]. Для протекания процесса окисления необходимо присутствие поверхностной пленки воды (влажность  $> 50\%$ ), а также приложение постоянного электрического напряжения между зондом атомно-силового микроскопа и поверхностью графена. Образующийся в результате электрохимической реакции кислород окисляет графен только в области водного мениска между зондом и поверхностью, что и обеспечивает высокое пространственное разрешение. Области оксида графена были сформированы при относительной влажности 60%, напряжении на зонде  $-20$  V и скорости сканирования  $1 \mu\text{m/s}$  с использованием СЗМ NtegraAura (NT-MDT). На рис. 1 показано распределение поверхностного потенциала, полученное методом Кельвин-зонд микроскопии участка поверхности графена, на котором проводилось окисление. Светлые горизонтальные полосы (с более высоким значением поверхностного потенциала) шири-



**Рис. 1.** Распределение поверхностного потенциала участка поверхности графена, на котором сформированы области оксида графена (светлые полосы).

ной  $\sim 1 \mu\text{m}$  являются областями с оксидом графена. Ранее было показано, что поверхностный потенциал полностью окисленного графена на поверхности  $6H\text{-SiC}$  выше потенциала неокисленного графена [10]. Ширина графеновых лент составляла 0,5, 2,5, 3,6 и  $6 \mu\text{m}$ .

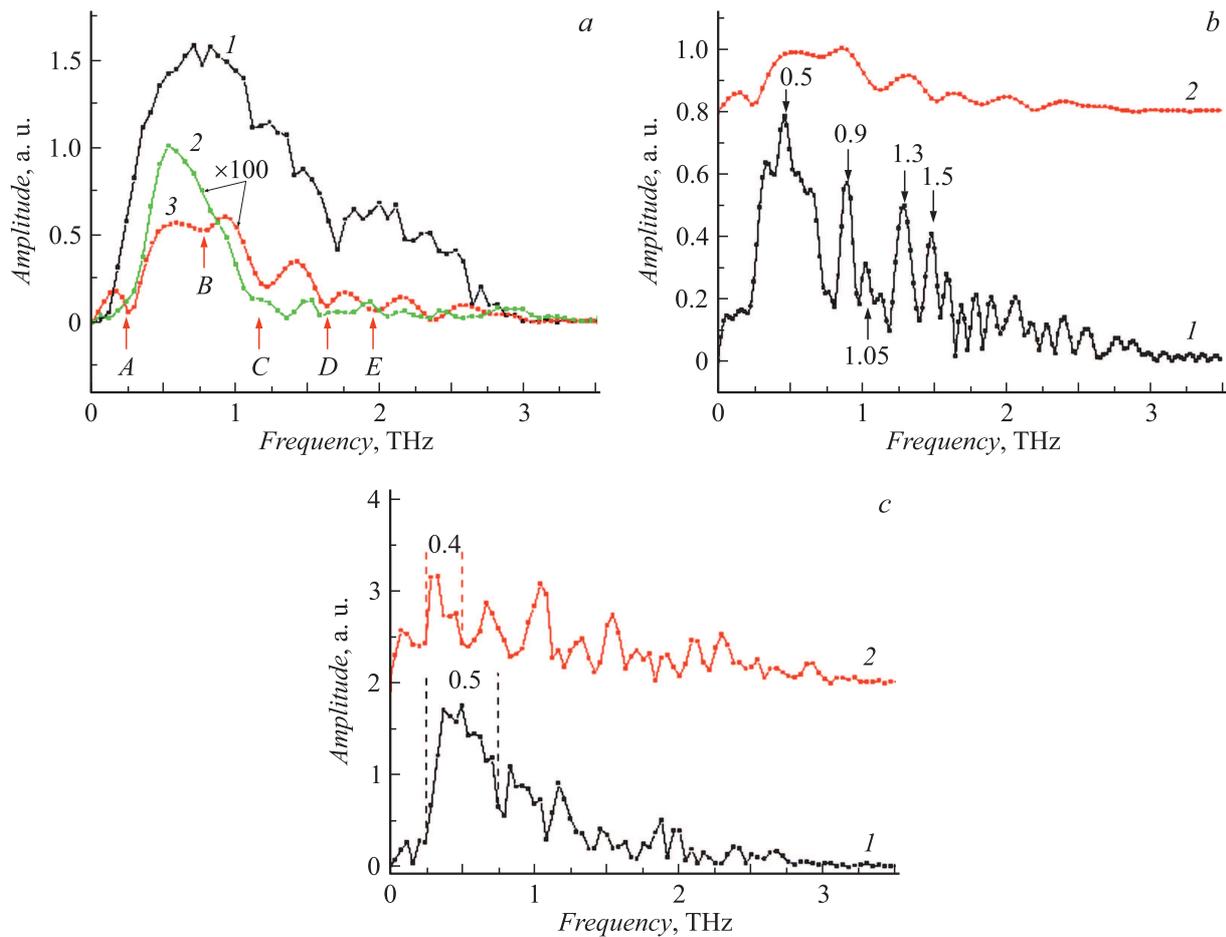
Терагерцевый безапертурный ближнепольный микроскоп, используемый в настоящей работе, представляет собой когерентный THz-спектрометр с временным разрешением с интегрированным в него атомно-силовым микроскопом на базе СЗМ NanoEducator. Детальное изложение особенностей работы установки и принципиальная схема представлены в [11,12]. В терагерцевом когерентном спектрометре после расщепления исходного оптического луча на два световых импульса пучок накачки проходит оптическую линию задержки и попадает на THz-эмиттер, вызывая генерацию THz-излучения с частотой импульсов  $\sim 50 \text{ kHz}$ . THz-излучение с помощью пары параболических зеркал собиралось и фокусировалось на острие зонда. Зонд представляет собой вольфрамовую проволоку длиной  $\sim 6 \text{ mm}$ , заостренную путем электрохимического травления, оканчивающуюся конусом длиной  $150\text{--}1000 \mu\text{m}$ , с радиусом закругления вписанной в конец зонда сферы  $\sim 100\text{--}300 \text{ nm}$  и углом при его вершине  $\sim 20^\circ$ . Рассеянное и отраженное THz-излучение собиралось и направлялось на электрооптический детектор. Регистрация THz-излучения осуществлялась в геометрии зеркального отражения вперед при угле падения  $\sim 70^\circ$ . При этом в детектор попадало как зеркально отраженное от поверхности образца излучение, так и излучение, рассеянное от системы зонд–объект. Для непосредственного выделения терагерцевого дифференциального сигнала, обусловленного компонентами ближнего поля, взаимодействующими с нанообъектом, применялась техника двойного синхронного детектирования. При этом последовательно выделялись как основной THz-сигнал на частоте модуляции THz-излучения ( $\sim 50 \text{ kHz}$ ), падающего на систему зонд–объект, так и сигнал на частоте вертикальных колебаний зонда ( $\sim 10 \text{ kHz}$ ). При изменении величины задержки между зондирующим импульсом и импульсом накачки проводилась запись волновой формы основного

THz-сигнала и сигнала на частоте колебаний зонда. Спектральное разрешение составляло  $0,05 \text{ THz}$ .

Для обнаружения участка поверхности с графеновыми лентами на обратной стороне подложки были сделаны метки, обнаруживаемые в оптическом микроскопе. Таким образом, точность начального позиционирования зонда относительно центра области с графеновыми лентами составила  $\sim 5 \mu\text{m}$ . Следует отметить, что, к сожалению, СЗМ NanoEducator не обладает возможностью измерения распределения поверхностного потенциала для более точного позиционирования зонда относительно краев лент. Дальнейшее перемещение зонда производилось с помощью пьезосканера с точностью  $1 \text{ nm}$ .

Для подтверждения того, что регистрируемое рассеянное THz-излучение обусловлено взаимодействием ближнепольной компоненты THz-поля, генерируемой зондом, с образцом, были исследованы кривые подвода (зависимость амплитуды колебаний зонда и величины терагерцевого дифференциального сигнала от расстояния между зондом и исследуемым объектом). Расстояние, на котором происходил рост дифференциального сигнала, составляло менее  $100 \text{ nm}$ . Это примерно соответствует величине радиуса закругления зонда.

В ходе экспериментов были получены волновые формы THz-импульса (временная зависимость дифференциального сигнала, пропорционального величине терагерцевого ближнего поля возле зонда), образованные в результате взаимодействия ближнепольной THz-компоненты с различными образцами: пленка Au, монослой графена и ленты на основе монослоя графена. На рис. 2, а приведены спектральные распределения рассеянного THz-излучения (ближнепольный отклик, полученный в режиме поддержания постоянной амплитуды колебаний зонда), зарегистрированного для пленки золота, слоя неструктурированного графена, и спектральное распределение исходного THz-излучения, падающего на зонд. Спектры были получены с помощью преобразования Фурье волновых форм с одинаковым временным интервалом. Поскольку эксперименты проводились в воздушной среде, содержащей молекулы воды, в полученных спектрах THz-излучения присутствуют пики поглощения на парах воды. В исходном спектре THz-излучения отмечены линии поглощения *B*, *C* и *D*, которые соответствуют линиям поглощения молекул воды в области  $0,75$ ,  $1,17$  и  $1,67 \text{ THz}$  [13]. В спектре, обусловленном ближнепольным взаимодействием с графеном, присутствуют эти же линии поглощения молекул воды, а также линии поглощения, которые практически отсутствуют в полученном спектре возбуждающего излучения: линии *A* и *E*. Отметим, что линии *B* и *C* проявляются сильнее в спектре ближнепольного сигнала. Данный эффект свидетельствует об усилении поглощения THz-излучения на линиях поглощения молекул  $\text{H}_2\text{O}$ , когда происходит взаимодействие ближнепольной компоненты THz-поля со слоем графена. Подобное явление отмечалось в работе [14], в которой исследовалось



**Рис. 2.** Терагерцевые спектры: *a* — исходного THz-излучения, падающего на зонд (кривая 1), дифференциального сигнала, полученного при нахождении зонда над поверхностью золота (кривая 2) и поверхностью неструктурированного графена (кривая 3); *b* — дифференциального сигнала, полученного при нахождении зонда над поверхностью графеновой ленты шириной  $3.6 \mu\text{m}$  (кривая 1) и поверхностью неструктурированного графена (кривая 2), верхняя кривая приподнята по оси ординат на  $0.8 \text{ a.u.}$ ; *c* — дифференциального сигнала, полученного при нахождении зонда над поверхностью графеновой ленты шириной  $3.6 \mu\text{m}$  (кривая 1) и при смещении на  $4 \mu\text{m}$  (лента шириной  $6 \mu\text{m}$ ) вниз вдоль оси  $y$ , см. рис. 1 (кривая 2), верхняя кривая приподнята по оси ординат на  $2 \text{ a.u.}$

пропускание THz-излучения в графене, на поверхность которого адсорбировались молекулы различных газов.

Последующие исследования ближнеполюсного взаимодействия со структурированным графеном (графеновыми лентами) показали, что, во-первых, сила взаимодействия ближнеполюсной компоненты терагерцевого электромагнитного поля с графеновой лентой имеет по порядку ту же величину, что и в случае взаимодействия с поверхностью металла, а во-вторых, происходит изменение спектра THz-импульса, конвертированного зондом терагерцевого ближнеполюсного микроскопа. Кроме того, максимальная амплитуда волновой формы ближнеполюсного THz-сигнала для графеновой ленты была примерно в 3 раза больше, чем соответствующее значение для неструктурированного графена. В ходе эксперимента было обнаружено, что в спектре THz-излучения, рассеянного на системе зонд–объект, существуют особенности, которые отсутствуют в спектре исходного THz-из-

лучения (рис. 2, *b*). В области  $0.2\text{--}1.6 \text{ THz}$  появились резонансные пики ( $0.5, 0.9, 1.05, 1.3, 1.5 \text{ THz}$ ), которых нет ни в ближнеполюсном отклике от поверхности металла (Au), ни в отклике от неструктурированного графена. Отметим, что положение этих пиков ( $\omega_n$ ) хорошо согласуется с зависимостью, описывающей плазмонные моды в графеновой ленте:  $\omega_n \sim (2n - 1)^{1/2} \omega_1$ , где  $n = 2, 3, \dots$ , а  $\omega_1$  — частота первой плазмонной моды [15]. Кроме того, было обнаружено, что спектр рассеянного от зонда THz-импульса зависит от ширины ленты  $W$  примерно как  $\omega_1 \sim W^{-1/2}$  [15], например  $\omega_1(W(3.6 \mu\text{m}))/\omega_1(W(6 \mu\text{m})) = 0.5/0.4 \sim (6/3.6)^{1/2}$  (рис. 2, *c*). Положения пиков  $0.5$  и  $0.4 \text{ THz}$  отвечают серединам соответствующих первых полос (края полосы помечены штриховыми линиями) на рис. 2, *c*. Пики на рис. 2, *b* и *c* имеют сложную форму. Для характеристики положения пиков целесообразно ввести понятие полосы, середина которой и соответствует положению пика. Край

полосы определялись как края пика при условии, что интенсивность краев не превышает 50% от абсолютной интенсивности пика.

Появление новых пиков, возможно, обусловлено возбуждением плазменных колебаний в графене за счет взаимодействия ближнего поля, создаваемого зондом при облучении ТНz-излучением, с электронной плазмой в графене и проявлением интерференции плазменных волн в резонаторе, которым является сама графеновая лента. Плазменные волны в ТНz-диапазоне, совпадающем с диапазоном на рис. 2, ранее наблюдались при их генерации на границах раздела графенового слоя [16]. Следует отметить, что кривые  $I$  на рис. 2,  $b$  и  $c$  получены на одной и той же ленте, но в разные дни и при различном расположении зонда относительно краев ленты. Различия в спектрах, вероятно, связаны с локальными особенностями графена в области измерения спектров (адсорбированные из атмосферы молекулы на поверхности, рельеф SiC-подложки). Расчет точных значений резонансных частот ( $\omega_{pl}$ ) для ленты шириной  $W$  в нашем случае затруднен вследствие возможного изменения концентрации электронов в ленте после ЛАО, а также отсутствия информации о величине сдвига фазы при отражении волны на границе лента/оксид графена. Данным исследованиям будут посвящены следующие публикации.

Таким образом, в работе сообщается об экспериментальных результатах рассеяния и ближнепольного взаимодействия терагерцового электромагнитного поля с графеновыми лентами вблизи зонда атомно-силового микроскопа. Было показано, что сила взаимодействия ближнепольной компоненты терагерцового электромагнитного поля с графеновыми лентами имеет по порядку ту же величину, что и в случае взаимодействия с поверхностью металла, что, по-видимому, обусловлено сильным плазмонным откликом на ТНz-частотах. Обнаружено возникновение резонансных пиков в области 0.2–1.6 ТНz в спектрах рассеяния ТНz-излучения на лентах графена в присутствии зонда.

### Финансирование работы

Работа выполнена при частичной поддержке программы Президиума РАН № 13 „Основы высоких технологий и использование особенностей наноструктур в науках о природе“, а также РФФИ и НЦНИ в рамках научного проекта № 18-51-16002. П.А.А. и Б.Р.Б. благодарят за поддержку в рамках гранта Президента РФ МК-5852.2018.2.

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] Vicarelli L., Vitiello M., Coquillat D., Lombardo A., Ferrari A.C., Knap W., Polini M., Pellegrini V., Tredicucci A. // *Nature Mater.* 2012. V. 11. P. 865–871.
- [2] Cai X., Sushkov A.B., Suess R.J., Jadidi M.M., Jenkins G.S., Nyakiti L.O., Myers-Ward R.L., Li S., Yan J., Gaskill D.K., Murphy T.E., Drew H.D., Fuhrer M.S. // *Nature Nanotechnol.* 2014. V. 9. P. 814–819.
- [3] Grigorenko A., Polini M., Novoselov K. // *Nature Photon.* 2012. V. 6. P. 749–758.
- [4] Constant T.J., Hornett S.M., Chang D.E., Hendry E. // *Nature Phys.* 2016. V. 12. P. 124–127.
- [5] Yao B., Liu Y., Huang S.-W., Choi C., Xie Z., Flores J.F., Wu Y., Yu M., Kwong D.-L., Huang Y., Rao Y., Duan X., Wong C.W. // *Nature Photon.* 2018. V. 12. P. 22–28.
- [6] Cai X., Sushkov A.B., Jadidi M.M., Nyakiti L.O., Myers-Ward R.L., Gaskill D.K., Murphy T.E., Fuhrer M.S., Drew H.D. // *Nano Lett.* 2015. V. 15. P. 4295–4302.
- [7] Otsuji T., Popov V., Ryzhii V. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2014. V. 47. P. 094006.
- [8] Chen J., Badioli M., Alonso-González P., Thongrattanasiri S., Huth F., Osmond J., Spasenović M., Centeno A., Pesquera A., Godignon P., Elorza A.Z., Camara N., García de Abajo F.J., Hillenbrand R., Koppens F.H.L. // *Nature.* 2012. V. 487. P. 77–81.
- [9] Давыдов В.Ю., Усачёв Д.Ю., Лебедев С.П., Смирнов А.Н., Левицкий В.С., Елисеев И.А., Алексеев П.А., Дунаевский М.С., Вилков О.Ю., Рыбкин А.Г., Лебедев А.А. // *ФТП.* 2017. Т. 51. В. 8. С. 1116–1124.
- [10] Алексеев П.А., Бородин Б.Р., Дунаевский М.С., Смирнов А.Н., Давыдов В.Ю., Лебедев С.П., Лебедев А.А. // *Письма в ЖТФ.* 2018. Т. 44. В. 9. С. 34–40.
- [11] Трухин В.Н., Андрианов А.В., Быков В.А., Голубок А.О., Зиновьев Н.Н., Самойлов Л.Л., Сапожников И.Д., Трухин А.В., Фельштын М.Л. // *Письма в ЖЭТФ.* 2011. Т. 93. В. 3. С. 134–138.
- [12] Трухин В.Н., Голубок А.О., Лютеецкий А.В., Матвеев Б.А., Пихтин Н.А., Самойлов Л.Л., Сапожников И.Д., Тарасов И.С., Фельштын М.Л., Хорьков Д.П. // *Изв. вузов. Радиофизика.* 2011. Т. 54. № 8-9. С. 640–648.
- [13] Yang Y., Shutler A., Grischkowsky D. // *Opt. Express.* 2011. V. 19. P. 8830–8838.
- [14] Docherty C.J., Lin C.-T., Joyce H.J., Nicholas R.J., Herz L.M., Li L.-J., Johnston M.B. // *Nature Commun.* 2012. V. 3. P. 1228.
- [15] Mikhailov S.A., Savostianova N.A. // *Phys. Rev. B.* 2005. V. 71. P. 035320.
- [16] Mitrofanov O., Yu W., Thompson R.J., Jiang Y., Brener I., Pan W., Berger C., De Heer W.A., Jiang Z. // *Appl. Phys. Lett.* 2013. V. 103. P. 111105.