

УДК 535 : 33

ОБ ЭФФЕКТИВНОСТИ ГЕНЕРАЦИИ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В КРИСТАЛЛАХ GaAs, InAs и InSb***В. Д. Анцыгин, Н. А. Николаев**

*Учреждение Российской академии наук
Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Коптюга, 1
E-mail: nazar@iae.nsk.su*

Экспериментально исследована импульсная генерация терагерцового излучения в полупроводниках GaAs, InAs и InSb под действием фемтосекундного лазерного излучения на длине волны 775 нм. Показано, что помещение InAs в магнитное поле 0,8 Тл приводит к увеличению эффективности генерации в 2,7 раза. Продемонстрировано увеличение эффективности генерации за счёт механизма оптического выпрямления при использовании образцов InAs ориентации $\langle 111 \rangle$.

Ключевые слова: генерация терагерцового излучения, фотоэффект Дембера.

Введение. В настоящее время активно осваивается терагерцовый диапазон частот электромагнитного излучения (10^{11} – 10^{13} Гц) особенно в целях решения материаловедческих и специальных прикладных задач [1]. Необходимым условием широкого применения в этих областях методов спектроскопии является разработка портативных спектрометров с высокой эффективностью генерации и регистрации терагерцового излучения. Такие устройства могут быть созданы на основе оптических методов. Импульсы фемтосекундного волоконного лазера вызывают в активной среде фототок и/или нестационарную поляризацию, релаксация которых за времена 10^{-13} – 10^{-12} с приводит к генерации электромагнитных волн терагерцового диапазона. Регистрация терагерцового излучения осуществляется поляризационно-оптическим методом, в нём эллиптичность лазерного излучения, возникающая при взаимодействии лазерного и терагерцового полей в нелинейно-оптической среде, преобразуется в поворот плоскости поляризации с последующим разложением на две ортогонально поляризованные компоненты, разность интенсивностей которых прямо пропорциональна напряжённости терагерцового поля [2].

В качестве генераторов терагерцового излучения в таких спектрометрах могут применяться электрооптические кристаллы, объёмные полупроводники и полупроводниковые структуры, в частности фотопроводящие антенны. Спектрометры с фотопроводящей антенной обладают широким динамическим диапазоном (до ~ 70 дБ), однако их недостатком является низкое отношение сигнал/шум (~ 40 дБ), связанное с высоким темновым током устройства. Этого недостатка лишены генераторы, построенные с использованием нелинейно-оптических кристаллов и объёмных полупроводников, но для достижения сравнимого динамического диапазона им требуется большая мощность лазерного излучения. В работе [2] проведено сравнение и показано, что при мощности лазерного излучения ~ 100 мВт, длительности импульсов ~ 100 фс и длине волны 775 нм эффективность генерации терагерцового излучения в InAs (методом фотовозбуждения) выше, чем в ZnTe (способом оптического выпрямления (ОВ)).

*Работа выполнена при поддержке Президиума РАН (программа № 21 «Основы фундаментальных исследований нанотехнологий и наноматериалов»).

Основные свойства исследуемых полупроводниковых материалов

Материал	Ширина запрещённой зоны E_g , эВ (при 293 К)	Отношение подвижностей электронов и дырок $b = \mu_n/\mu_p$, см ² /В · с	Показатель поглощения k (на 775 нм)	Коэффициент* поглощения α , см ⁻¹ (на 775 нм)	Глубина* поглощения $1/\alpha$, мкм
InSb	0,17	$70 = 77000/1100$	0,749	$12,14 \cdot 10^4$	0,082
InAs	0,35	$66,7 = 30000/450$	0,463	$7,51 \cdot 10^4$	0,133
GaAs	1,42	$20,8 = 9340/450$	0,091	$1,48 \cdot 10^4$	0,678

Примечание. * — значения рассчитаны по показателям поглощения k .

Целью данной работы является экспериментальное исследование эффективности генерации терагерцового излучения в полупроводниках GaAs, InAs и InSb методом фотовозбуждения.

Методика эксперимента. В качестве объектов исследования взяты образцы полупроводниковых кристаллов GaAs, InAs и InSb с шириной запрещённой зоны меньше, чем энергия кванта лазерного излучения ($h\nu = 1,6$ эВ), вырезанные в форме параллелепипедов $5 \times 5 \times 0,2$ мм. Большие грани, нормаль к которым совпадает с кристаллическим направлением $\langle 111 \rangle$, полировались с высоким оптическим качеством. В таблице представлены основные параметры рассматриваемых полупроводников из [3, 4]. Исследование эффективности генерации терагерцового излучения в этих материалах выполнено на спектрометре, подробное описание которого дано в [2]. Для возбуждения и регистрации терагерцового излучения использовались импульсы второй гармоники ($\lambda = 775$ нм) волоконного лазера длительностью ~ 100 фс, частотой следования ~ 76 МГц при средней мощности излучения на образце ~ 50 мВт. Генерация терагерцового излучения осуществлялась при возбуждении образца лазерными импульсами, падающими под углом 45° к нормали (рис. 1). Поляризация лазерного излучения перпендикулярна плоскости падения.

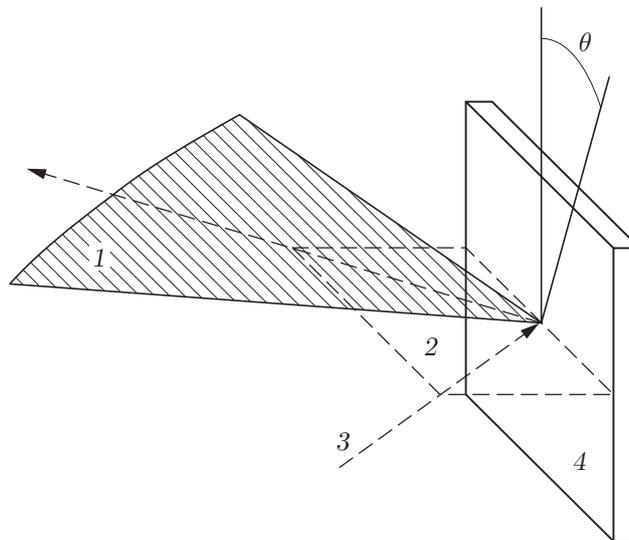


Рис. 1. Схема генератора терагерцового излучения: 1 — терагерцовое излучение, 2 — плоскость падения лазерного импульса накачки, 3 — лазерное излучение, 4 — кристалл полупроводника, θ — азимутальный угол, лежащий в плоскости поверхности кристалла полупроводника

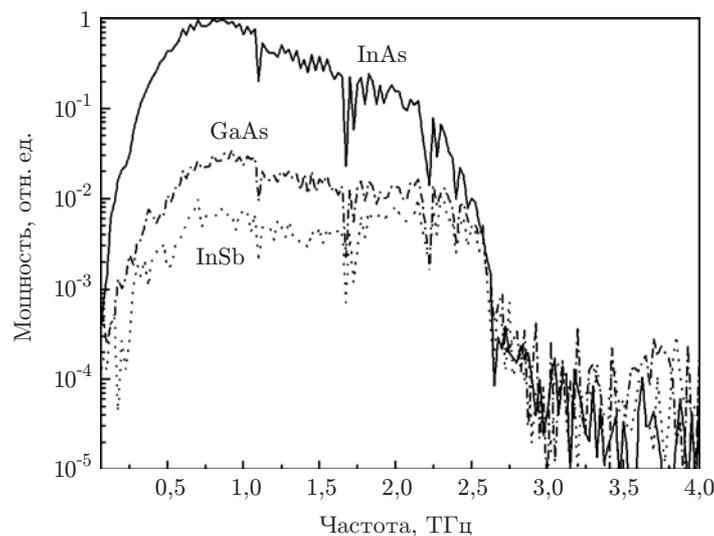


Рис. 2. Спектры терагерцового излучения, генерируемые разными полупроводниками

Импульсное терагерцовое излучение собиралось и направлялось системой внеосевых параболических зеркал на кристалл регистрации ZnTe одновременно с пробным лазерным импульсом, что достигалось согласованием длин оптических путей. Далее изменение поляризации пробного лазерного излучения под действием терагерцового поля преобразовывалось системой регистрации спектрометра в электрический сигнал таким образом, что его величина была прямо пропорциональна электрической напряжённости терагерцового поля E_n [5]. Спектрометр, регистрируя изменение напряжённости терагерцового поля в зависимости от времени задержки между возбуждающим и пробным лазерными импульсами, прописывал стробоскопическим методом временную форму терагерцового импульса. С помощью быстрого преобразования Фурье полученной временной последовательности отсчётов определялся спектр терагерцового сигнала. Для сравнения эффективности генерации в разных образцах использовалось значение интегральной мощности терагерцового импульса, которая вычислялась как сумма квадратов модулей значений E_n во временной области:

$$P_T = \sum_n |E_n|^2. \quad (1)$$

Экспериментальные результаты. На рис. 2 представлены спектры терагерцового излучения, полученные на исследуемых образцах при плотности энергии лазерного излучения $W \approx 1$ мкДж/см². Расчёты по формуле (1) показали, что генерация терагерцового излучения в InAs значительно эффективнее по мощности, чем в GaAs и InSb, в отношении 100 : 4,3 : 1,5. Далее исследовался полупроводник InAs как наиболее эффективный в данных условиях материал для генерации терагерцового излучения.

Для определения влияния плотности лазерного излучения на эффективность генерации и трансформацию спектра терагерцового излучения проведены измерения для плотностей энергии ~ 1 мкДж/см² и ~ 30 мкДж/см², полученных при изменении диаметра лазерного пучка (рис. 3). На рисунке видно, что при увеличении плотности энергии накачки наблюдается рост высокочастотной составляющей терагерцового спектра $> 1,5$ ТГц. Повышение интегральной мощности терагерцового излучения составило $\sim 1,3$ раза.

В работе [6] показано, что эффективность генерации терагерцового излучения в полупроводнике зависит от угла поворота θ кристалла вокруг кристаллографического направления $\langle 111 \rangle$. На рис. 4 приведены экспериментальные результаты, полученные на образцах

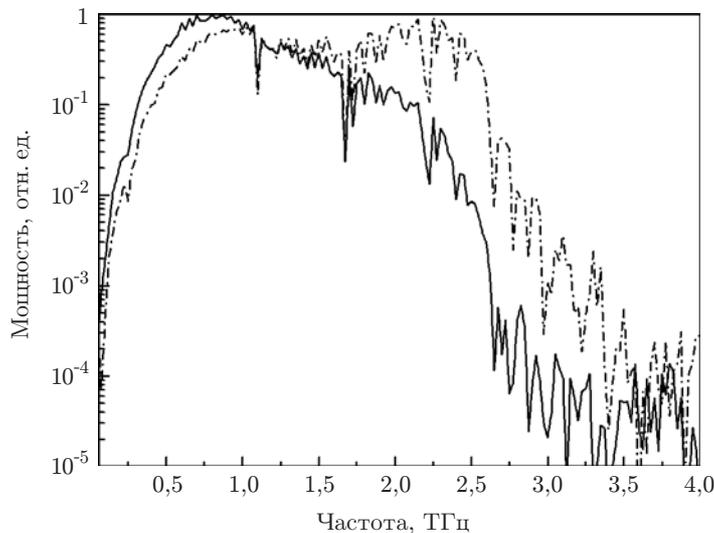


Рис. 3. Спектры терагерцового излучения, генерируемые InAs при разных плотностях энергии лазерного излучения: $W \approx 1$ мкДж/см² (сплошная кривая), $W \approx 30$ мкДж/см² (штрихпунктирная кривая)

InAs данной ориентации с электронной (n) и дырочной (p) проводимостями при плотности энергии $W \approx 30$ мкДж/см². Из данных, представленных на рисунке, следует, что наблюдается сильная зависимость эффективности генерации от угла поворота θ вокруг нормали к поверхности. Отметим, что при плотности энергии лазерного излучения $W \approx 1$ мкДж/см² прослеживается такая же зависимость, но очень слабо выраженная.

Известно, что помещение полупроводника в магнитное поле повышает эффективность генерации терагерцового излучения [7]. На рис. 5 показаны результаты исследования влияния магнитного поля $\sim 0,8$ Тл на генерацию терагерцового излучения в InAs при плотности энергии накачки ~ 30 мкДж/см². Образец повернут на угол θ , при котором наблюдалась максимальная эффективность генерации. Вектор индукции магнитного поля \mathbf{B} лежал в

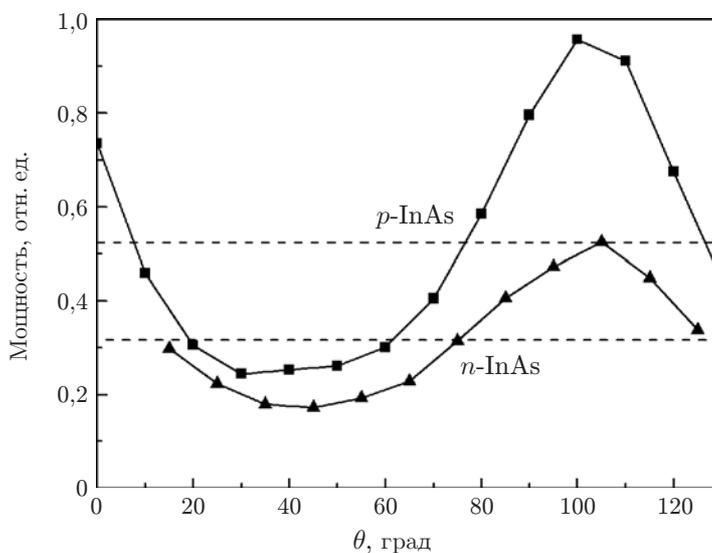


Рис. 4. Зависимости мощности генерируемого терагерцового излучения от азимутального угла θ для разного типа проводимости

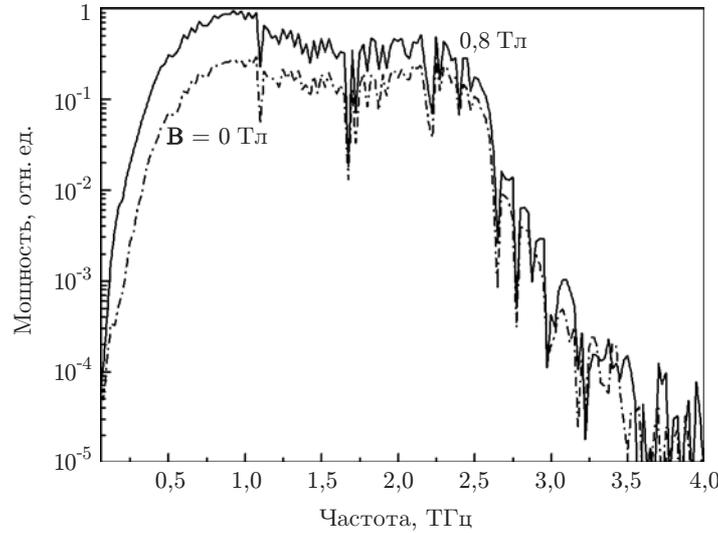


Рис. 5. Влияние магнитного поля на спектр терагерцового излучения при генерации в InAs

плоскости поверхности кристалла перпендикулярно плоскости падения лазерного излучения. Увеличение эффективности генерации терагерцового излучения в этих условиях составило 2,7 раза.

Обсуждение экспериментальных результатов. Механизм генерации терагерцового излучения при возбуждении полупроводника фемтосекундными лазерными импульсами можно описать двумя процессами: импульсным фототоком и ОВ лазерного излучения. В общем случае напряжённость терагерцового поля описывается выражением [8]

$$E_T(t) = -\frac{S}{c^2 R} \int_0^{\infty} \left(\frac{\partial j(z, t)}{\partial t} + \frac{\partial^2 P(z, t)}{\partial t^2} \right) dz, \quad (2)$$

где c — скорость света в вакууме; t — время; R — расстояние от точки наблюдения до точки падения лазерного излучения площадью S на поверхность полупроводника; j — плотность фототока; P — поляризация; ось z направлена в объём полупроводника.

Изменение фототока $\partial j(z, t)/\partial t$ обусловлено дрейфом носителей в приповерхностном электрическом поле E_S и диффузией зарядов вглубь полупроводника из-за большого градиента концентрации фотовозбуждённых носителей (так называемый фотоэффект Дембера). Эффект ОВ может быть обусловлен созданием нестационарной поляризации в объёме полупроводникового материала за счёт нелинейной оптической восприимчивости второго $\chi^{(2)}$ и третьего $\chi^{(3)}$ порядков, проявляющейся в присутствии приповерхностного электрического поля: $\chi^{(2)'} = \chi^{(3)} E_S$ [9].

Отметим, что теоретическое рассмотрение импульсной генерации и релаксации тока в полупроводнике представляет собой сложную задачу, которая включает решение системы из уравнения непрерывности для носителей заряда и уравнения Пуассона. Причём временные эволюции тока и напряжения находятся самосогласованным образом. Эта система уравнений решается разными численными методами [10, 11] и требует знания многих параметров полупроводника (концентраций основных и неосновных носителей заряда, их эффективных масс и подвижностей, времён жизни, констант рассеяния и других). Поэтому при анализе мы ограничимся качественным рассмотрением экспериментальных результатов с привлечением необходимых оценок других авторов. В случае полупроводника с малой шириной запрещённой зоны E_g напряжённость приповерхностного поля обеднённого слоя

E_S обычно мала, а большая подвижность электронов и их значительная кинетическая энергия $E_k \approx (h\nu - E_g)$, а также большой коэффициент поглощения лазерного излучения α приводят к тому, что преобладающим механизмом терагерцовой генерации является фотоэффект Дембера. В первом приближении рассмотрим стационарный эффект Дембера. Тогда электрическое напряжение V_D можно представить в виде [12]

$$V_D \approx \frac{2E_k}{e} \left(\frac{b-1}{b+1} \right) \ln \left[1 + \frac{(b+1)\Delta n}{bn_0 + p_0} \right], \quad (3)$$

где e — заряд электрона; $b = \mu_n/\mu_p$ — отношение подвижностей электронов и дырок; n_0 , p_0 — равновесные концентрации электронов и дырок соответственно; Δn — концентрация фотоносителей. Для исследуемых полупроводников $b > 20$, поэтому выражение (3) можно упростить до вида

$$V_D \approx \frac{2E_k}{e} \ln(\Delta n/n_0). \quad (4)$$

Из выражения (4) видно, что величина поля Дембера прямо пропорциональна кинетической энергии фотоэлектронов и логарифму плотности лазерного излучения ($\Delta n \propto W$). При фиксированной плотности лазерного излучения согласно (4) наибольшей эффективностью терагерцовой генерации должен обладать InSb ($E_k \approx 1,43$ эВ), меньшей — InAs ($E_k \approx 1,25$ эВ) и малой — GaAs ($E_k \approx 0,18$ эВ). В наших измерениях образцы InSb продемонстрировали значительно меньшую эффективность генерации терагерцового излучения по сравнению с InAs (см. рис. 2), что согласуется с данными других авторов [8, 13]. Это связано с особенностями структуры зоны проводимости. Исследуемые в работе материалы имеют схожую структуру зоны проводимости, которая содержит две долины L и X тяжёлых электронов. Экспериментальные исследования показывают, что максимум эффективности генерации терагерцового излучения для InSb и InAs наблюдается при энергии кванта лазерного излучения $\sim 0,8$ эВ и $\sim 1,6$ эВ соответственно [8]. В этой же работе определены расстояния между Γ - и L -долинами ($\Delta\varepsilon_{\Gamma L}$) с учётом их непараболичности, которые составляют $\sim 0,53$ эВ для InSb и $\sim 1,08$ эВ для InAs. При $E_k > \Delta\varepsilon_{\Gamma L}$ фотовозбуждённые носители рассеиваются в долины L и X , где имеют меньшую подвижность, поэтому их вклад в импульсный ток, создающий терагерцовое излучение, значительно сокращается. В GaAs $E_k < \Delta\varepsilon_{\Gamma L}$, следовательно междолинного рассеяния не происходит.

Согласно формуле (4) увеличение плотности энергии лазерной накачки в 30 раз должно приводить к росту интенсивности терагерцового излучения в 3,4 раза. Однако экспериментально наблюдается возрастание мощности терагерцового излучения в $\sim 1,3$ раза. Возможными механизмами наблюдаемого различия могут быть насыщение фотоэффекта Дембера, связанное с предельным числом рождаемых электрон-дырочных пар, а также поглощение терагерцового излучения свободными носителями заряда. Для объяснения расхождения требуются дополнительные исследования зависимости эффективности генерации терагерцового излучения от плотностей энергий лазерной накачки в широком диапазоне.

Анализ зависимостей эффективности генерации терагерцового излучения от угла поворота образцов InAs вокруг кристаллографического направления $\langle 111 \rangle$ показывает, что в создании терагерцового излучения участвуют два механизма: фотоэффект Дембера (вклад которого обозначен на рис. 4 пунктирной линией) и эффект оптического выпрямления. Вывод о наличии эффекта ОВ основывается на том, что только для ориентации кристалла $\langle 111 \rangle$ мощность генерируемого терагерцового излучения пропорциональна $\sin(3\theta)$ [6]. Отметим, что при плотности энергии накачки ~ 1 мкДж/см² зависимость эффективности генерации терагерцового излучения от угла θ практически отсутствует, что указывает на доминирование в процессе фотоэффекта Дембера. Однако при увеличении плотности

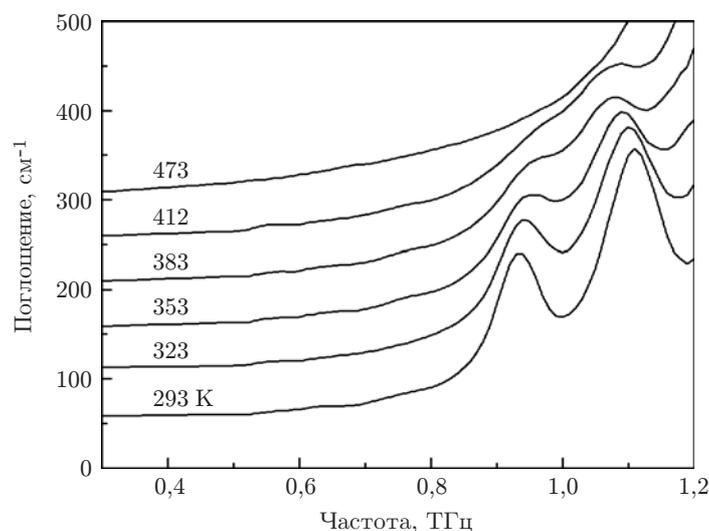


Рис. 6. Трансформация терагерцового фоновонного поглощения в кристаллах $\text{Pb}_3\text{Ge}_5\text{O}_{11}$ в зависимости от температуры. Кривые смещены относительно друг друга на 50 см^{-1}

энергии лазерного излучения относительный вклад эффекта ОВ растёт по сравнению с фотоэффектом Дембера и при энергии накачки $\sim 30 \text{ мкДж/см}^2$ составляет $\sim 60 \%$ в случае $p\text{-InAs}$ и $\sim 50 \%$ в случае $n\text{-InAs}$.

Усиление эффективности генерации терагерцового излучения путём помещения полупроводника в магнитное поле (см. рис. 5) объясняется следующим образом. Вектор электрического поля фотоэффекта Дембера направлен практически перпендикулярно поверхности полупроводника. Движение зарядов, формирующих пикосекундный токовый импульс, происходит параллельно этому вектору, следовательно, максимум излучения терагерцовой волны перпендикулярен направлению поля, т. е. под малым углом к границе раздела полупроводник — воздух. Показатель преломления полупроводникового материала n_T на терагерцовых частотах $\geq 3,5$, так как лишь небольшая часть терагерцового излучения выходит из образца через границу раздела сред. Сила Лоренца, выражающая действие магнитного поля на движение зарядов, поворачивает результирующий вектор диффузионной составляющей электрического поля. Таким образом, в присутствии магнитного поля через границу раздела сред проходит больше терагерцового излучения, чем при его отсутствии. Оптическое выпрямление обусловлено нелинейным взаимодействием лазерного излучения с материалом и не связано со свободными носителями заряда, поэтому его вклад в эффективность генерации терагерцового излучения не зависит от магнитного поля, что и наблюдается в экспериментах.

Использование в спектрометре для генерации терагерцового излучения наиболее эффективного полупроводника InAs в магнитном поле позволило провести исследование трансформации фоновонного поглощения в кристаллах германата свинца (при изменении температуры) со спектральным разрешением $\sim 10 \text{ ГГц}$ и уровнем поглощения $\sim 400 \text{ см}^{-1}$. На рис. 6 представлены результаты этих измерений, из которых видно, как сдвигаются по частоте и уширяются фоновонные моды с ростом температуры кристалла.

Заключение. В данной работе проведено сравнение эффективностей генерации терагерцового излучения в полупроводниках GaAs , InAs и InSb при их облучении лазерными импульсами на длине волны $\lambda \approx 775 \text{ нм}$ длительностью $\sim 100 \text{ фс}$. Установлено, что при этих параметрах лазерного излучения наиболее эффективным генератором является InAs , для которого оценён вклад различных механизмов в генерацию терагерцового излучения. Показано, что при плотности энергии лазерного излучения до $\sim 1 \text{ мкДж/см}^2$ преобладает

фотоэффект Дембера, а при ~ 30 мкДж/см² вклад оптического выпрямления составляет более 50 % от фотоэффекта Дембера. Показано также, что ОВ увеличивает высокочастотную составляющую терагерцового излучения. Установлено, что при помещении полупроводника InAs в магнитное поле $\sim 0,8$ Тл эффективность генерации терагерцового излучения возрастает в $\sim 2,7$ раза.

Авторы выражают благодарность А. Г. Клименко, А. П. Ковчавцеву и А. И. Торопову (Институт физики полупроводников СО РАН) за предоставленные образцы кристаллов GaAs, InAs и InSb, А. А. Мамрашеву за помощь в проведении экспериментальных исследований и О. И. Потатуркину за полезные обсуждения и интерес к работе (Институт автоматизации и электротехники СО РАН, Новосибирский государственный университет).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Zhang X.-C., Xu J.** Introduction to THz wave photonics. N. Y.: Springer-Science, 2011. 249 p.
2. **Анцыгин В. Д., Мамрашев А. А., Николаев Н. А., Потатуркин О. И.** Малогабаритный терагерцовый спектрометр с использованием второй гармоники фемтосекундного волоконного лазера // Автометрия. 2010. **46**, № 3. С. 110–117.
3. **Madelung O.** Semiconductors: Data handbook. Berlin: Springer-Verlag, 2004. 685 p.
4. **Palik E. D.** Handbook of optical constants of solids. N. Y.: Academic Press, 1998. 785 p.
5. **Мамрашев А. А., Потатуркин О. И.** Исследование характеристик системы поляризационно-оптической регистрации импульсного терагерцового спектрометра // Автометрия. 2011. **47**, № 4. С. 16–22.
6. **Gu P., Tani M., Kono S. et al.** Study of terahertz radiation from InAs and InSb // Journ. Appl. Phys. 2002. **91**, N 9. P. 5533–5537.
7. **Johnston M. B., Whittaker D. M., Corchina A. et al.** Simulation on terahertz radiation at semiconductor surfaces // Phys. Rev. 2002. **B65**. 165301.
8. **Krotkus A.** Semiconductors for terahertz photonics applications // Journ. Phys. D: Appl. Phys. 2010. **43**. 273001.
9. **Sipe J. E., Shkrebtii A. I.** Second-order optical response in semiconductors // Phys. Rev. 2000. **B61**. 5337.
10. **Малевич В. Л.** Монте-Карло моделирование эффекта Дембера в *n*-InAs при фемтосекундном лазерном возбуждении // ФТП. 2006. **40**, № 2. С. 160–165.
11. **Liu K., Xu J., Yuan T., Zhang X.-C.** Terahertz radiation from InAs induced by carrier diffusion and drift // Phys. Rev. 2006. **B73**. 155330.
12. **Monch W.** Semiconductors surfaces and interface: Surface science. Berlin: Springer, 1993. P. 68.
13. **Suzuki M., Tonouchi M.** Excitation wavelength dependence of terahertz emission from semiconductor surface // Appl. Phys. Lett. 2006. **89**. 091111.

Поступила в редакцию 20 апреля 2011 г.
