

Университет ИТМО

Мой прекрасный диплом
«СВЕРХБЫСТРАЯ ДИНАМИКА НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В
ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ НИТЕВИДНЫХ
НАНОКРИСТАЛЛАХ.»

Студент: Елисеев А.

Группа: V3400

Научрук: Валерий Николаевич

Санкт-Петербург

2017

АННОТАЦИЯ1

СОДЕРЖАНИЕ

	Стр.
АННОТАЦИЯ	2
ГЛАВА 1 Введение	5
1.1 Актуальность темы работы.	5
1.2 Транспорт, релаксация и рекомбинация носителей в ННК.	6
1.2.1 Время жизни и подвижность носителей заряда в полупроводниковых ННК.	6
1.2.2 Вклад безызлучательных ионизованных центров в электрическую проводимость в ННК.	10
1.3 Генерация ТГц излучения.	11
1.3.1 Генерация импульсного ТГц излучения, как процесс оптического выпрямления	11
1.3.2 Движение свободных носителей заряда в полупроводнике, индуцированное фемтосекундным лазерным импульсом, как источник ТГц излучения	12
1.3.3 Генерация ТГц излучения в ННК	15
ГЛАВА 2 Основная часть	18
2.1 Описание метода и схема установки	18
2.2 Исследование ННК на основе <i>GaAs</i>	20
2.2.1 Описание образцов и метода их получения	20
2.2.2 Зависимость эффективности генерации ТГц излучения от времени при возбуждении плазмы в образцах.	22
2.2.3 Спад эффективности - экранировка встроенного поля.	24
2.2.4 Восстановление эффективности.	31
2.3 Исследование неупорядоченных массивов ННК на основе <i>GaAs</i>	32
2.3.1 Описание образцов и метода их получения	32
2.3.2 Зависимость эффективности генерации ТГц излучения от времени при возбуждении плазмы в образцах.	34
2.3.3 Спад эффективности - экранировка встроенного поля.	34
2.3.4 Восстановление эффективности.	34
2.4 Сравнение и анализ динамики носителей в разных образцах..	34
ГЛАВА 3 Заключение	35
3.1 Положения дипломной работы	35

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ	36
СПИСОК ТЕРМИНОВ	37
СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ.....	38
ПРИЛОЖЕНИЯ	39

ГЛАВА 1

Введение

1.1 Актуальность темы работы.

Полупроводниковые наноструктуры в виде свободно стоящих полупроводниковых нитевидных нанокристаллов (ННК), а так же отдельные ННК, являются одними из наиболее перспективных объектов для применения в нанoeлектронике, нанoфотонике, а так же во многих других областях науки и техники. Так ННК используются для создания сверхчувствительных фотодиодов [1], транзисторов сверхвысокой плотности [2], эмиттеров излучения видимого диапазона волн [3] и ТГц диапазона [4].

Огромная перспективность таких нанообъектов и структур на их основе обусловлена рядом уникальных электрических и оптических свойств. При создании метаповерхностей на основе свободно стоящих ННК, характерные размеры которых порядка 100 нм в диаметре и 1 мкм по высоте, получаютcя структуры с огромным по сравнению с объемными материалами соотношением площади поверхности к объему. В работе [4] было показано, что генерация ТГц излучения от упорядоченного массива ННК на основе *GaAs* может быть практически в два раза эффективнее, чем от *InAs* - объемного полупроводникового материала, который обладает наибольшей эффективностью генерации ТГц излучения. Такая высокая эффективность обусловлена именно тем, что соотношение площади поверхности к объему у таких структур значительно выше, чем у объемных материалов.

При создании структур описанных в предыдущем параграфе, первостепенную важность занимает изучение вопроса влияния поверхности материала и его размеров на динамику носителей заряда. Например, при значительном увеличении отношения площади поверхности к объему увеличивается вклад поверхностной рекомбинации носителей в материале. Таким образом время жизни электронов и дырок в наноструктурах на основе свободно стоящих полупроводниковых ННК может существенно отличаться от времени жизни в соответствующем объемном полупроводнике. Исследование этих отличий является основной задачей, которую необходимо решить перед тем, как использовать по-

добные материалы в качестве основы для базовых элементов наноэлектроники и нанофотоники.

Кроме того необходимо учитывать, что в полупроводниковых ННК при диаметрах порядка десятка нанометров и меньше процессы переноса в статических внешних полях описываются только продольной составляющей квазиимпульса, как это имеет место в чисто одномерном ($1D$) случае. Динамика носителей заряда в таких структурах существенно отличается от динамики в объемных материалах. Например, в таких низкоразмерных системах как тонкие ННК, экранирование внешнего электромагнитного поля носит качественно иной характер, чем в объемных полупроводниках. Заряды, которые экранируют внешнее электромагнитное поле во всем пространстве, сами ограничены в своем движении одной линией. В связи с этим, эффективность экранирования в одномерных и квазиодномерных ННК значительно ниже, чем в случае трехмерных систем. Кроме того, как показано в [5], в одномерных структурах процессы релаксации заряда происходят по диффузионному закону, а дрейф носителей вносит лишь небольшую поправку в эффективный коэффициент диффузии. В то же время в трехмерном случае релаксация заряда в основном определяется дрейфовыми процессами.

1.2 Транспорт, релаксация и рекомбинация носителей в ННК.

В связи с высокой значимостью изучения временных характеристик носителей заряда и их транспорта в полупроводниковых ННК для различных областей науки и техники, на текущий момент представлено немало работ посвященных этой тематике.

1.2.1 Время жизни и подвижность носителей заряда в полупроводниковых ННК.

На сегодняшний день многие научные группы изучают электрооптические свойства ННК на основе различных материалов. Так, значительный вклад в изучение влияния структуры полупроводниковых ННК, выращенных методом газофазной эпитаксии, на время жизни фототока и подвижность носителей в

них сделали авторы [6]. В своей работе они пользуясь методом Optical-pump terahertz-probe spectroscopy измеряли ТГц проводимость и показали что ННК на основе $GaAs$ покрытие шубой $AlGaAs$ (материалом с более широкой запрещенной зоной) уменьшает плотность поверхностных ловушек до 82% тем самым увеличивая проводимость. Кроме того, им удалось установить, что двухтемпературный режим роста ННК на основе $GaAs$ почти удваивает подвижность носителей в ННК и втрое увеличивает время жизни свободных носителей.

В их работе исследованы образцы четырех типов, СЭМ фотография и схематичное изображение которых приведены на Рис. 1.1

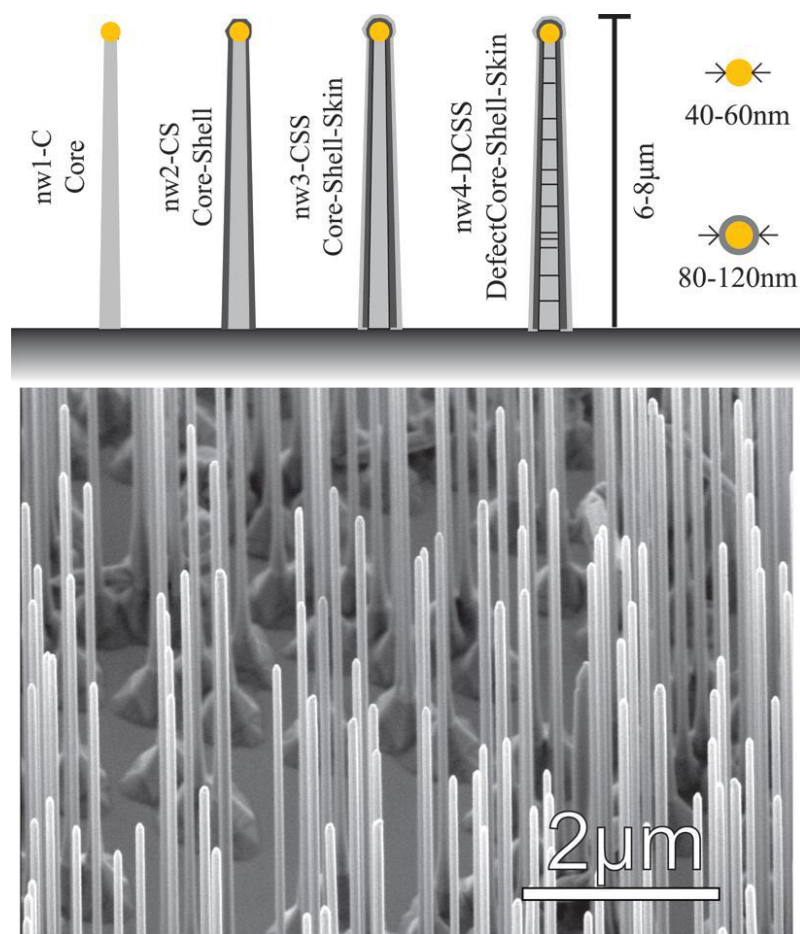


Рисунок 1.1 — СЭМ фотография образцов и их схематичное изображение. Рисунок взят из статьи [6]

Первые три типа были выращены при двухтемпературном режиме: nw1-C - обычные ННК на основе $GaAs$, nw2-CS - ННК на основе $GaAs$ с шубой $AlGaAs$ толщиной ~ 30 нм, а на образце nw3-CSS поверх шубы $AlGaAs$ был еще нанесен тонкий слой $GaAs$ примерно 5 нм. Четвертый образец nw4-DCSS по структуре такой же как nw3-CSS, но выращен при однотемпературном режиме и поэтому

подвержен двойниковому дефекту плотности.

Эксперимент показал, что покрытие шубой *AlGaAs* ядра ННК на основе *GaAs* увеличивает время жизни фотопроводимости примерно в четыре раза, кроме того, было установлено, что двухтемпературный режим роста ННК увеличивает время жизни фотопроводимости на значительную величину. Для того чтобы оценить это время авторы использовали простую одноэкспоненциальную модель $\Delta E(\tau)/E = A \exp(-\tau/\tau_c)$. Но такая модель не дала им возможность оценить вклад бездефектного роста и в то же время воздействие верхнего слоя (*AlGaAs*). Чтобы установить влияние типа роста ННК и его структуры была предложена следующая модель:

$$\begin{cases} \frac{dN}{dt} = -\frac{N}{\tau_{intrinsic}} - \frac{N}{\tau_{NW}} - \gamma NT \\ \frac{dT}{dt} = -\gamma NT \\ \text{Начальные условия: } N(0) = N_i, T(0) = T_i \end{cases} \quad (1.1)$$

Где N - концентрация неравновесных носителей заряда, а T плотность свободных уровней ловушек. Первый член в уравнении для изменения плотности в единицу времени - это член отвечающий за объемную рекомбинацию проходящую за время $\tau_{intrinsic} = 3$ нс. Второй член в этом уравнении учитывает вклад ненасыщенной рекомбинации, которая возникает только в ННК. Третий член описывает захват заряда и рекомбинацию на поверхностных ловушках с коэффициентом связи γ , так же третий член - это скорость, с которой убывает концентрация поверхностных незанятых состояний ловушек. Подобранные параметры для уравнения (1.1) согласующиеся с экспериментальными измерениями позволили определить вклад типа роста и поверхностного слоя с большей шириной запрещенной зоны, эти параметры приведены в таблице 1.1. В этой таблице $\tau_{NW[1T]}$ это время про которое говорилось выше, но применительно к ННК выращенным однотемпературным методом, а $\tau_{NW[2T]}$ для двухтемпературного. $T_{i[CS]}$ и $T_{i[C]}$ это изначальная концентрация ловушек для ННК покрытых шубой и образцов типа pw1-C. По определенным параметрам (таблица 1.1) авторы [6] сделали вывод о том, что покрытие шубой *AlGaAs* ядра ННК на основе *GaAs* уменьшает концентрацию свободных уровней поверхностных ловушек, а так же о том, что время жизни фотопроводимости увеличивается при уменьшении двойниковых дефектов в ядре ННК.

Таблица 1.1 — Таблица параметров из работы [6]

Параметр	Значение
γ	$1.62 * 10^{-7} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$
$\tau_{NW[1T]}$	10.2 пс
$\tau_{NW[2T]}$	28.2 пс
$T_{i[CS]}/T_{i[C]}$	0.182

Кроме времени жизни фотопроводимости в этой работе так же была оценена подвижность свободных носителей заряда во всех четырех типах ННК. Для этого экспериментально были измерены спектры фотопроводимости в ТГц области для каждого из четырех типов образцов. После чего экспериментальные данные были аппроксимированы уравнением для фотоиндуцированной проводимости, учитывающем вклад отклика свободных друдевских носителей и поверхностных плазмонов $\Delta\sigma = (\sigma_{Drude} + \sigma_{Plasmon})$.

$$\begin{cases} \sigma_{Drude} = \frac{iN_d e^2 \omega}{m(\omega^2 + i\omega\Gamma)} \\ \sigma_{Plasmon} = \frac{iN_p e^2 \omega}{m(\omega^2 - \omega_0^2 + i\omega\Gamma)} \end{cases} \quad (1.2)$$

Здесь N_d и N_p представляют концентрацию свободных носителей в друдевской моде и в плазмонной соответственно, а ω_0 это плазмонная частота и Γ - это обратное время релаксации электрона по импульсу. Определив с помощью аппроксимации экспериментальных данных моделью (1.2) коэффициента γ , можно оценить подвижность $\mu = \frac{e}{m\Gamma}$. Для каждого типа образцов подвижность приведена в таблице 1.2. Из этих данных следует, что двухтемпературный рост

Таблица 1.2 — Таблица оценки подвижности на основе данных работы [6]

тип ННК	Подвижность $\text{см}^2/(\text{Вс})$
nw1-C	1850
nw2-CS	1650
nw3-CSS	2250
nw4-DCSS	1200

вдвое увеличивает проводимость для ННК на основе *GaAs* покрытых шубой

AlGaAs и тонким слоем *GaAs*. Кроме того, видно, что вообще говоря подвижность электронов различна в ННК покрытых шубой и обычных ННК. Первое объясняется тем, что при двутемпературном росте ННК значительно менее подвержены двойниковым дефектам. Второе, по предположению авторов [6] вызвано адсорбцией кислорода из ядра ННК *GaAs* в шубу *AlGaAs*, при этом процессе адсорбция кислорода приводит к увеличению подвижности зарядов.

Таким образом, авторы продемонстрировали один из способов изучения сверхбыстрой динамики носителей заряда в ННК на основе полупроводниковых материалов и получили интересные научно-практические результаты о способах изготовления ННК. Но в их работе нет никакой оценки того, как на подвижность носителей заряда в ННК могут влиять безызлучательные ионизованные центры.

1.2.2 Вклад безызлучательных ионизованных центров в электрическую проводимость в ННК.

В работе [7] экспериментально продемонстрировано то, что в ННК на основе *GaAs*, выращенных методом газофазной эпитаксии, в транспорт носителей существенный вклад вносит механизм транспорта за счет ловушек. Авторы определили, что в отличие от тонких пленок на основе *GaAs*, в ННК на основе того же материала на транспорт оказывает существенно большее влияние дефекты в объеме. По их предположению это происходит в связи с тем, что поверхностные состояния в ННК на основе *GaAs* полностью обедняют объем нанопровода, что позволяет ловушкам даже при небольшой плотности влиять на транспорт носителей.

Чтобы получить больше информации о том, как именно влияют безызлучательные ионизованные центры на транспорт носителей в ННК и какой вклад носит процесс захвата носителей заряда на уровни этих центров, метода использованного в [7] недостаточно. Для этих целей лучше подходит метод *optical-pump terahertz generation-probe time-domain spectroscopy*, который будет описан в основной части.

1.3 Генерация ТГц излучения

Метод, optical-pump terahertz generation-probe time-domain spectroscopy, который применяется в данной работе основан на генерации и детектировании ТГц излучения возбуждаемого фемтосекундным оптическим импульсом от образца, в котором помимо прочего возбуждается неравновесная электронная плазма. Поэтому в этой работе необходимо описать способы генерации импульсов ТГц излучения под действием фемтосекундных оптических импульсов.

1.3.1 Генерация импульсного ТГц излучения, как процесс оптического выпрямления

В средах с оптической нелинейностью второго порядка $\chi^{(2)}$ возможен процесс оптического выпрямления, когда под действием монохроматического оптического излучения, в среде возникает поляризация на нулевой частоте.

$$P_i^{(2)}(0) = \chi_{i,j,k}^{(2)}(\omega - \omega)E_j(\omega)E_k(\omega)^* \quad (1.3)$$

При распространении лазерного импульса, распространяющегося в среде с квадратичной нелинейностью будут возникать компоненты электрического поля, наведенного поляризацией вида (1.3)

$$\Delta E_i(\vec{r}, t) - \frac{\varepsilon}{c^2} \frac{\partial^2 E_i(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P_i^{(2)}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (1.4)$$

где ε - диэлектрическая проницаемость среды, $P(2)$ - нелинейная поляризация, наведенная лазерным импульсом. Преобразование Фурье от (1.4) дает

$$\Delta \tilde{E}_i(\vec{r}, \Omega) - \frac{\varepsilon(\Omega)\Omega^2}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{E}_i(\vec{r}, \Omega)}{\partial t^2} = -\frac{4\pi\Omega^2}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{P}_i^{(2)}(\vec{r}, \Omega)}{\partial t^2} \quad (1.5)$$

где Ω - разностная частота (частота генерируемой волны), $\tilde{E}_i(\vec{r}, \Omega)$ - комплексная амплитуда компоненты электрического поля на разностной частоте, а $\tilde{P}_i^{(2)}(\vec{r}, \Omega)$ комплексная амплитуда нелинейной поляризации вида (1.3)

Из уравнения (1.5) видно, что излучение будет возникать на тех частотах, на которых соответствующая им комплексная амплитуда $\Omega^2 \tilde{P}_i^{(2)}(\vec{r}, \Omega)$, отлична от



Рисунок 1.2 — Амплитуда $\Omega^2 \tilde{P}_i^{(2)}(\vec{r}, \Omega)$ для фемтосекундного лазерного импульса длительностью 120фс.

нуля. Для фемтосекундного, гаусовского по времени лазерного импульса длительностью 2τ можно получить, что $\Omega^2 \tilde{P}_i^{(2)}(\vec{r}, \Omega) \sim \Omega^2 \text{Exp}\left(-\frac{\Omega^2}{(2/\tau)^2}\right)$ График этой функции представлен на Рис. 1.2

К примеру, для фемтосекундного лазерного импульса, длительностью 120 фс, максимум этой функции приходится на частоту ~ 20 ТГц, а на частоте 1 ТГц значение функции составляет приблизительно 0.5% от максимума.

Таким образом, в нелинейно-оптических кристаллах с оптической нелинейностью второго порядка возможна генерация ТГц импульсов под действием фемтосекундного лазерного излучения.

1.3.2 Движение свободных носителей заряда в полупроводнике, индуцированное фемтосекундным лазерным импульсом, как источник ТГц излучения

Если энергия фотонов лазерного импульса больше ширины запрещенной зоны E_g полупроводника, то при падении лазерного излучения на поверхность полупроводникового кристалла, происходит возбуждение электронов, сопровождающееся переходом электронов из валентной зоны в зону проводимости, в результате в поверхностном слое кристалла увеличивается концентрация свободных носителей, за счет возникающих под действием света электронно-дырочных

пар. Однако помимо процесса генерации свободных носителей, происходит излучательная и безызлучательная рекомбинация электронно-дырочных пар, а также постоянная диффузия свободных носителей. Таким образом, при постоянной интенсивности падающего лазерного излучения устанавливается постоянная во времени концентрация свободных носителей вблизи облучаемой поверхности кристалла.

Если длительность лазерного импульса много меньше времени релаксации населенности зоны проводимости, обусловленной рекомбинацией электронно-дырочных пар, то при падении импульсов на поверхность полупроводника, от импульса к импульсу происходят резкие всплески концентрации свободных носителей с дальнейшей релаксацией населенности зоны проводимости.

В отсутствии внешнего электрического поля, возможны несколько механизмов генерации ТГц излучения, вызванной движением носителей заряда в полупроводнике.

В некоторых полупроводниках около поверхности возникает направленное перпендикулярно поверхности электрическое поле. Поверхностное поле является результатом изменения границ зон электронных уровней вблизи поверхности. На Рис. 1.3 изображена зонная структура кристалла *GaAs* электронных энергетических уровней вблизи поверхности полупроводника. При фотовозбуждении поверхностного слоя полупроводника, собственное электрическое поле, направленное перпендикулярно к поверхности, приводит в движение индуцированные светом свободные носители заряда. Таким образом, после начала импульса в поверхностном слое возникают сильнозатухающие колебания плазмы, которые и излучают электромагнитные волны в ТГц диапазоне. При использовании лазерных импульсов с длительностью порядка 100 фс, максимум спектральной плотности излучения соответствует примерно 1 ТГц.

Амплитуда излученного терагерцового поля $E_{\text{ТГц}}(t)$ в направлении падающего оптического излучения E_T и в направлении отраженного оптического луча E_R в приближении модели диполя Герца в плосковолновом приближении

$$E_R = \eta J \frac{\sin(\theta_1)}{\cos(\theta_1) + \frac{n_2}{n_1} \cos(\theta_2)}; \quad E_T = -\frac{n_1}{n_2} E_R \tan(\theta_2) \quad (1.6)$$

где η - импеданс образца, θ_1 и θ_2 углы отраженного и преломленного излучения, n_1 и n_2 показатели преломления воздуха и образца соответственно, а J -



Рисунок 1.3 — Зонная структура полупроводника *GaAs* *n* типа вблизи поверхности. Ψ_s - поверхностный потенциал

фототок через обедненный слой, зависящий от угла падения оптического излучения, $T(\theta_2)$ - коэффициент пропускания границы раздела сред полупроводник-воздух. Выражение для фототока имеет следующий вид:

$$J = \frac{\mu e}{h\nu} I_{ex} (1 - R(\theta_{ex})) \cos(\theta_{ex}) \int_0^x E_{in}(\xi) \exp(-\alpha\xi) d\xi \quad (1.7)$$

где μ - подвижность носителей, e - заряд электрона, $h\nu$ - энергия оптического кванта, I_{ex} - интенсивность оптического излучения, θ_{ex} - угол падения оптического излучения, $R(\theta_{ex})$ - коэффициент отражения оптического излучения от поверхности образца, E_{in} - напряженность поверхностного электрического поля, α - коэффициент линейного поглощения оптического излучения.

Второй, важный механизм генерации ТГц излучения от полупроводниковых материалов в результате движения свободных носителей заряда, индуцированного фемтосекундным лазерным импульсом - это генерация ТГц излучения в результате амбиполярной диффузии. Колебания плазмы под действием коротких световых импульсов в отсутствие поверхностного поля возникают в результате разной скорости диффузии электронов и дырок в полупроводнике.

В большинстве полупроводников электроны имеют больший коэффициент диффузии, чем дырки. Поэтому после фотовозбуждения электроны диффундируют дальше вглубь полупроводника, создав тем самым диполь перпендикуляр-

ный поверхности полупроводника. Возникает электрическое поле (поле Дембера), вызывающее последующие сильнозатухающие колебания плазмы. При таком механизме генерации изменение типа легирования не влияет на знак генерируемого терагерцового поля $E_{\text{ТГц}}(t)$

1.3.3 Генерация ТГц излучения в ННК

В работе [4] исследованы механизмы генерации ТГц импульсов от массивов ННК при их фотовозбуждении фемтосекундными лазерными импульсами и установлено, что генерируемое ТГц излучение является результатом движения носителей в ННК, в частности установлено, что генерация ТГц излучения в ННК на основе *GaAs* n типа и имеющих *Au* слой на вершине, обусловлена сонаправленными дрейфовым и диффузионным токами, а генерация ТГц излучения в таких же ННК но р типа, связана с разнонаправленными дрейфовым и диффузионным токами. Исследуемые образцы представляли собой массивы ННК, которые были выращены на подложке *GaAs* ориентации (111) методом молекулярно пучковой эпитаксии с наночастицами золота в качестве катализатора.

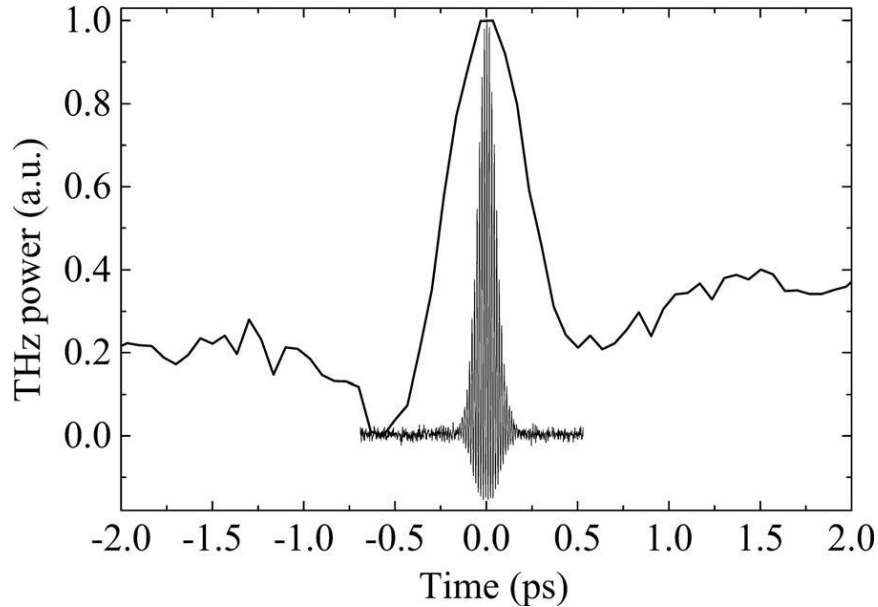


Рисунок 1.4 — Сравнение автокорреляционной функции ТГц импульса от ННК и фемтосекундного импульса, который использовался для фотовозбуждения образцов. График из статьи [4].

Для того, чтобы установить какие процессы в образцах отвечают за генерацию ТГц излучения, авторы измерили автокорреляционную функцию ТГц импульса. Оказалось, что при фотовозбуждении образцов фемтосекундными импульсами длительностью 90 фс при длине волны 800 нм, ширина автокорреляционного пика равна примерно 600 фс. На Рис. 1.4 приведено сравнение фемтосекундного импульса и зарегистрированной автокорреляционной функции ТГц импульса. Из этого сравнения понятно, что генерация ТГц импульса от образцов ННК исследованных в работе происходит не за счет оптического выпрямления фемтосекундного импульса накачки. Так как при этом этом механизме генерации длительность ТГц импульса сопоставима с длительностью возбуждающего оптического импульса.



Рисунок 1.5 — Угловая зависимость коэффициента отражения для s и p поляризации от ННК и от объемного *GaAs* на вставке. График из статьи [4].

Таким образом установлено, что источником генерации ТГц импульсов от ННК, исследуемых в данной работе, является движение свободных носителей заряда в полупроводнике, индуцированное фемтосекундным оптическим импульсом. Чтобы выяснить, что источник ТГц импульсов - это движение носителей именно в ННК, а не в подложке, которая тоже на основе *GaAs*, авторы работы измерили угловую зависимость коэффициента отражения ТГц излучения для s и p поляризации. На графике Рис. 1.5 видно, что угловая зависимость

коэффициента отражения от образцов не является Фринелевской, то есть отражение происходит не так, как от объемного *GaAs*. Это свидетельствует о том, что регистрируемое в экспериментах ТГц излучение результат дрейфового и диффузионного движения носителей именно в ННК, а не в *GaAs* подложке.

Так как именно движение свободных носителей и именно от ННК является источником ТГц излучения, при фозбуждении образцов, то зарегистрировав и проанализировав его можно понять, что происходит с носителями, как происходит их транспорт и их рекомбинация, а так же, каково время релаксации электрона по импульсу, а значит и подвижность электронов. Эта идея лежит в основе метода optical-pump terahertz generation-probe time-domain spectroscopy, но кроме оптического импульса используемого для генерации ТГц излучения используется еще один оптический импульс для генерации неравновесной плазмы носителей в ННК. Подробно этот метод описан в основной части.

ГЛАВА 2

Основная часть

2.1 Описание метода и схема установки

Метод optical-pump terahertz generation-probe time-domain spectroscopy предполагает создание электронно-дырочной плазмы носителей в образце и детектирование изменения эффективности генерации ТГц импульса с момента генерации плазмы. Как было показано во введении, генерация ТГц излучения от ННК на основе *GaAs* при фотовозбуждении их фемтосекундными импульсами происходит в следствии движения носителей заряда в ННК. А электронно-дырочная плазма влияет на эффективность генерации, причем это влияние может быть как положительным, так и отрицательным, это определяется многими факторами, такими как наличие глубоких уровней, величиной поверхностного потенциала и другими.



Рисунок 2.1 — Схема экспериментальной установки для реализации метода optical-pump terahertz generation-probe time-domain spectroscopy.

Для того, чтобы реализовать экспериментальный метод была собрана установка, схема которой показана на Рис. 2.1. Источником является фемтосекундный титан сапфировый лазер (ФСЛ) с центральной длиной волны светового импульса 795 нм, частотой следования 80 МГц и длительностью импульса 15

фс. Делитель (Д1) предназначен для того, чтобы разделить стробирующий импульс от импульса, который проходит первую линию задержки и делится (Д2) на два импульса, (I_1 и I_2). Первый I_1 моделируется (М) на частоте примерно 1 кГц, причем модулятор синхронизирован с синхронным усилителем, с помощью которого регистрируется сигнал с балансного фотоприемника (БФП). Вторым импульс I_2 проходит через вторую линию задержки и через отверстие в параболоиде (П1) попадает на исследуемый образец. Таким образом оба импульса I_1 и I_2 попадают на образец, и как было описано ранее индуцируют движение носителей заряда в ННК, которое является источником ТГц излучения. Но из-за того, что только I_1 промодулирован на той частоте, на которой работает синхронный усилитель, сигнал регистрируемый балансным фотоприемником пропорционален амплитуде ТГц импульса генерируемого в результате фотовозбуждения ННК от I_1 . При этом необходимо помнить, что когда промодулированный импульс попадает на образец, он модулирует среду с той частотой следования, с которой промодулирован сам. Это приводит к тому, что хотя импульс I_2 и не промодулирован на частоте синхронного усилителя, генерируемое им ТГц излучение синхронизируется за счет модуляции среды импульсом I_1 и поэтому синхронный усилитель его регистрирует. Вообще I_2 необходим только для генерации электронно-дырочной плазмы и его регистрация не желательна, для этой цели угол отражения I_2 совпадает с углом падения I_1 , поэтому на параболоид П1 попадает ТГц излучение в основном то, которое является результатом возбуждения импульсом I_1 .

ТГц излучение от образца параболоидом П2 фокусируется на нелинейный кристалл $ZnTe$, через этот кристалл так же проходит излучение стробирующего импульса и за счет эффекта Керра и того, что стробирующий импульс поляризован (ну конечно он поляризован, это же лазерный импульс) его амплитуда меняется. После этого строб импульс проходит через пластинку $\lambda/4$ и разделяется призмой Волластона на два поляризованных перпендикулярно друг другу пучка и регистрируется балансным фотоприемником.

С помощью программы написанной на LabVIEW, можно двигать обе подвижки, задавая шаг Δx , начальную позицию, количество усреднений и количество измерений. Первая подвижка изменяет оптический путь для I_1 и I_2 , таким образом перемещая друг относительно друга импульсы генерации ТГц и

стробирующий импульс, позволяя записывать волновую форму ТГц импульса. Вторая подвижка изменяет оптический путь только для I_2 и тем самым меняет момент генерации плазмы, относительно возбуждения образца импульсом I_1 . В эксперименте использовались два метода, первый заключался в том, чтобы зафиксировать с помощью первой подвижки максимум ТГц импульса и после за счет второй подвижки менять момент генерации плазмы, таким образом измерялось, как эффективность генерации ТГц импульса меняется в результате генерации электронно-дырочной плазмы в ННК. Вторым использованным методом заключался в том, чтобы с помощью второй подвижки зафиксировать момент генерации плазмы, а потом с помощью первой измерить волновую форму ТГц импульса. Вторым подходом использовался для того, чтобы снять спектры ТГц импульса и определить, вносит ли плазма изменения в механизм генерации ТГц излучения.

С помощью нейтральных фильтров НФ1 и НФ2 можно менять мощность I_1 и I_2 . В экспериментах интенсивность первого I_1 оптического импульса не превышала значений, при которых обеспечивался линейный отклик, т.е. в этой области уровня возбуждения имела линейная зависимость максимальной амплитуды электрического поля ТГц импульса от средней мощности возбуждения. Таким образом, фактически изучалось влияние электронно-дырочной плазмы, генерируемой вторым оптическим импульсом I_2 на эффективность генерации ТГц излучения.

2.2 Исследование ННК на основе *GaAs*

Исследование динамики эффективности генерации ТГц излучения от таких образцов интересно не только с фундаментальной точки зрения, но и с практической, так как упорядоченные массивы ННК на основе *GaAs* являются эффективными эмиттерами ТГц излучения для сканирующей спектроскопии.

2.2.1 Описание образцов и метода их получения

ННК выращивались на подложках *GaAs* р-типа с кристаллографической ориентацией (111) методом газофазной эпитаксии из металл-органических со-

единений. Рост осуществлялся без предварительного нанесения слоя катализатора, но с помощью предварительной обработки подложек. Для этого, сначала на поверхность подложки осуществлялось осаждение слоя SiO_x толщиной 40 нм методом плазмо-химического осаждения из газовой фазы на установке Oxford Instruments Plasmalab 80plus. Далее с помощью электронно-лучевой литографии сверхвысокого разрешения осуществлялось вскрытие окон в окисном слое диаметром 50 и 100 нм со скважностью 300, 600, 900, 1200, 1500, 1800 и 2100 нм. Вскрытые отверстия располагались в вершинах равностороннего треугольника. 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 секунд. Температура роста была равна $480^\circ C$. На Рис. 2.2 представлены изображения периодических массивов ННК на основе $GaAs$, сделанных с помощью сканирующего электронного микроскопа. 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. 2.2, высота и диаметр нанокристаллов зависят от диаметра отверстия и их плотности. В итоге фактический диаметр ННК составил 80 и 160 нм. Размеры массива нанопроводов с заданной плотностью составляли 200×200 мкм.



Рисунок 2.2 — СЭМ изображения массивов ННК под углом 20° . Верхний ряд (а-с) – диаметр ННК составляет 160 нм, нижний ряд (d-f) – 80 нм. Расстояние между ННК: массивы а, d – 300 нм; b, e – 600 нм; c, f – 900 нм.

2.2.2 Зависимость эффективности генерации ТГц излучения от времени при возбуждении плазмы в образцах.

Для упорядоченных массивов ННК на основе *GaAs*, описание которых приведено выше, методом optical-pump terahertz generation-probe time-domain spectroscopy, описанном в параграфе 2.1, была измерена зависимость эффективности генерации ТГц импульса от времени генерации электронно дырочной плазмы. Была использована различная мощность накачки - что соответствует различной концентрации плазмы. На графиках Рис. 2.3, Рис. 2.4 и Рис. 2.5 отображены измеренные данные после нормировки, такой что эффективность генерации ТГц импульсов до возникновения плазмы в ННК принята за единицу.



Рисунок 2.3 — Изменение эффективности генерации ТГц излучения от времени возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 600$ нм, $d = 100$ нм. В легенде к графику указана концентрация плазмы.

По графикам видно, что независимо от параметров массива: диаметра ННК и расстояния между ними, имеются два характерных участка, которые необходимо рассматривать отдельно. Первый - это резкий спад эффективности генерации ТГц, сразу после возникновения плазмы в ННК. Второй - это постепенное, неравномерное восстановление, которое к тому же зависит от концентрации возбуждаемой в образце плазмы. Последнее особенно хорошо видно на графиках Рис. 2.4, еще при концентрации возбуждаемой плазмы $C_{\text{П}} = 2 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$ происходит постепенное восстановление, а уже при $C_{\text{П}} = 4 \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$, в начальный

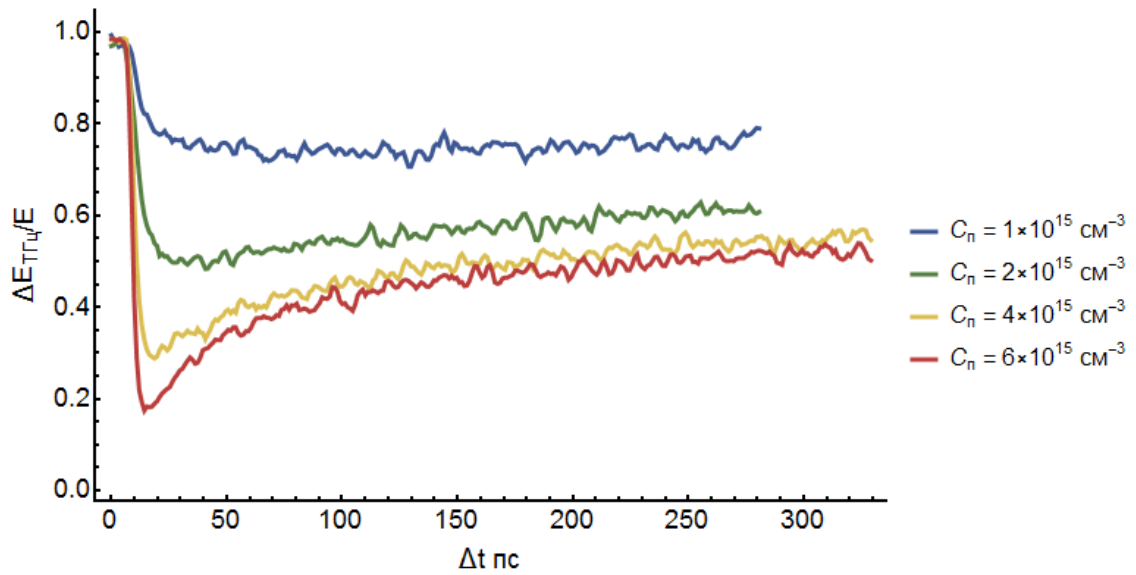


Рисунок 2.4 — Изменение эффективности генерации ТГц излучения от времени возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 65$ нм. В легенде к графику указана концентрация плазмы.

момент происходит быстрое восстановление эффективности генерации ТГц, а после такое же, как и при концентрации плазмы в два раза меньшей.

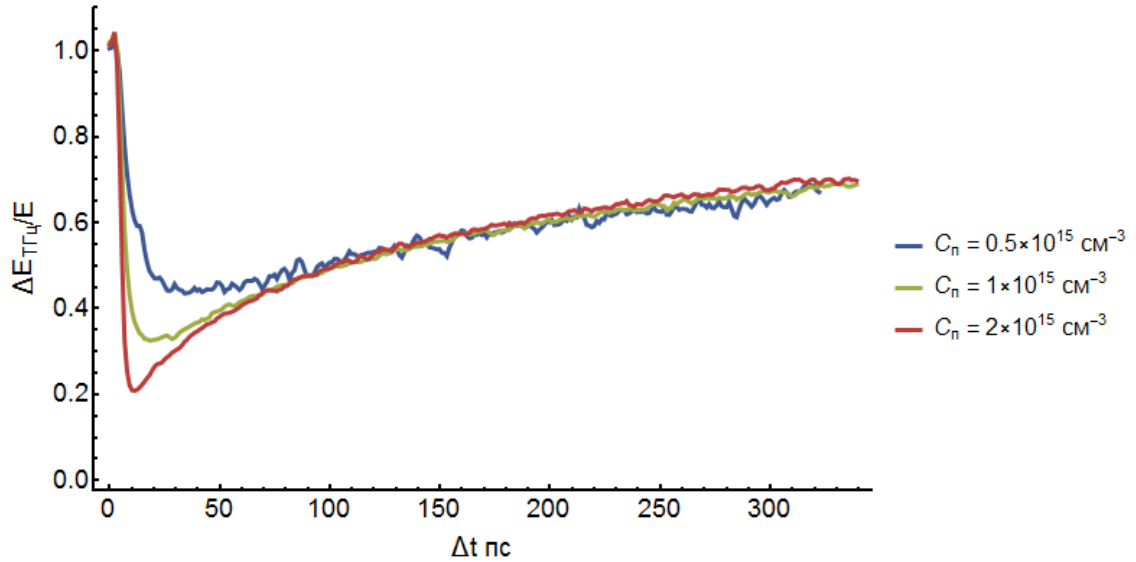


Рисунок 2.5 — Изменение эффективности генерации ТГц излучения от времени возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 100$ нм. В легенде к графику указана концентрация плазмы.

Кроме того, как будет описано дальше, на коротких временах есть еще один характерный участок, который связан с регистрацией ТГц импульсов, возбуждаемых при генерации электронно-дырочной плазмы. Это происходит в связи

с модуляцией среды о которой уже говорилось в главе 2.1.

Таким образом, рассматривая зависимость эффективности генерации ТГц импульсов от времени генерации плазмы в ННК, необходимо выделять два временных промежутка, когда происходит резкий спад и когда происходит восстановление, характер которого зависит от концентрации плазмы. В следующих частях пойдет речь о каждом из этих участков по отдельности.

2.2.3 Спад эффективности - экранировка встроенного поля

Быстрый спад происходит на коротких временах порядка нескольких пикосекунд, тем не менее, с помощью экспериментального метода описанного в 2.1, его можно зарегистрировать. Процесс уменьшения эффективности генерации регистрируется с разрешением примерно 50 фс, это не предельное временное разрешение, но уже достаточное, для регистрации этого процесса. Графики зависимости эффективности генерации ТГц излучения от ННК представлены на Рис. 2.6, Рис. 2.7 и Рис. 2.8, данные нормированы так, что эффективность генерации ТГц импульсов до возникновения плазмы в ННК принята за единицу.

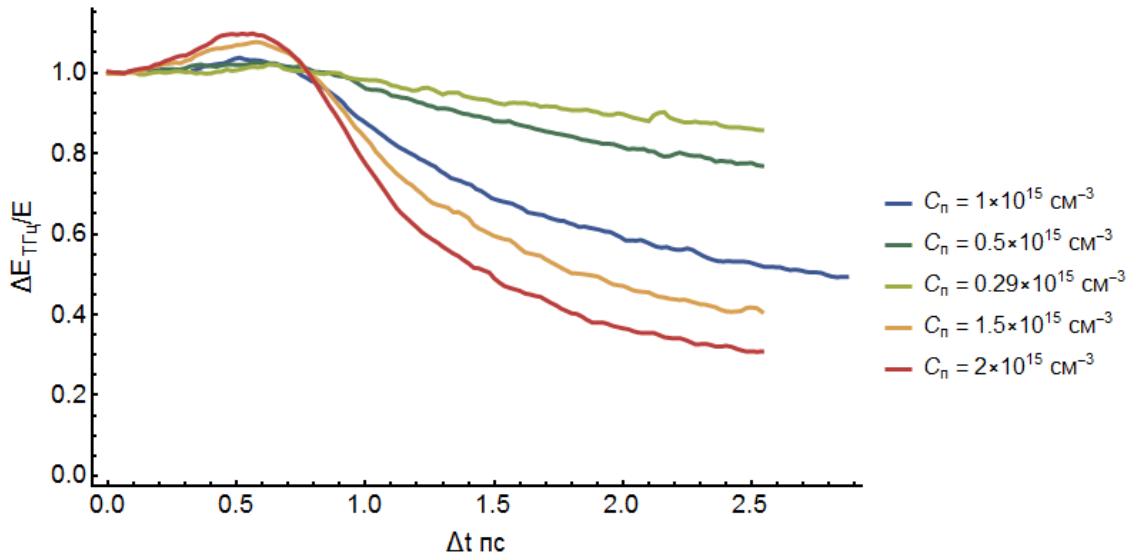


Рисунок 2.6 — Спад эффективности генерации ТГц излучения после возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 600$ нм, $d = 100$ нм.

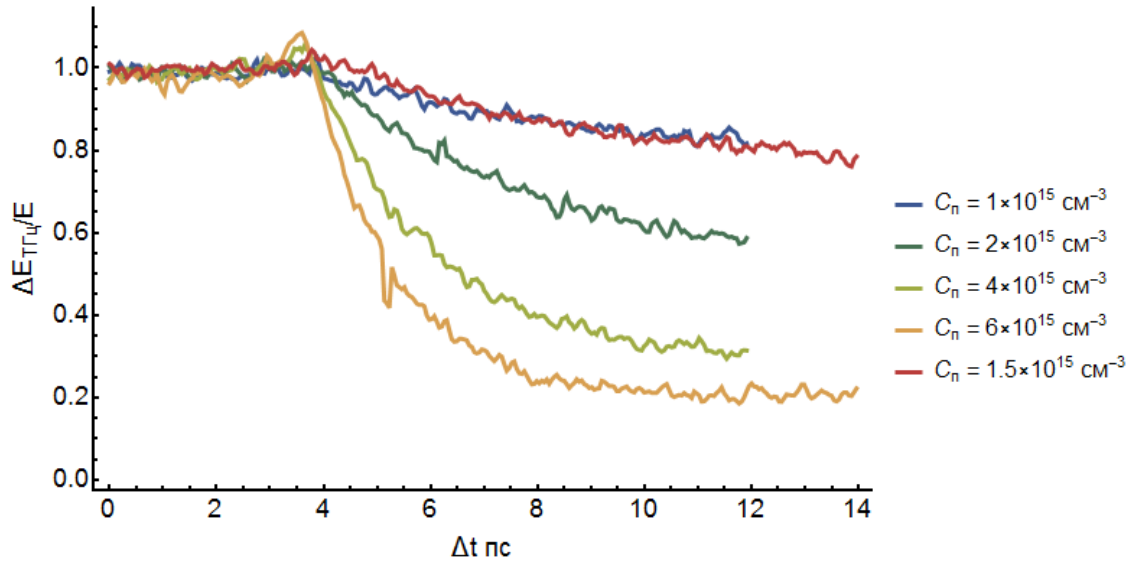


Рисунок 2.7 — Спад эффективности генерации ТГц излучения после возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 65$ нм.

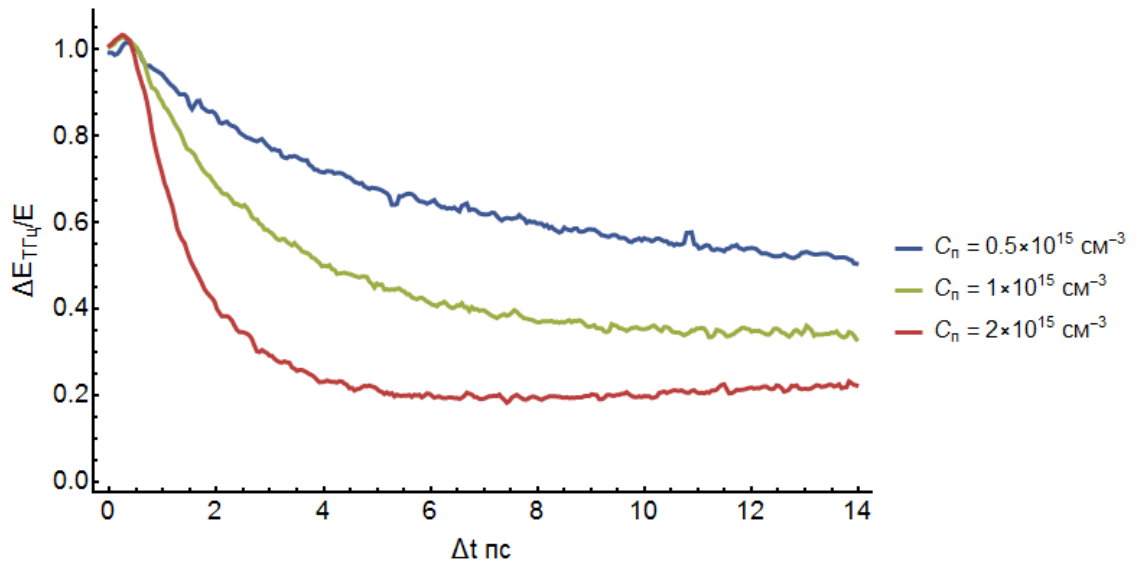


Рисунок 2.8 — Спад эффективности генерации ТГц излучения после возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 100$ нм.

Амплитуда ТГц электромагнитной волны генерируемой от ННК, при возбуждении оптическими фемтосекундными импульсами, линейно зависит от напряженности встроенного электрического поля ННК, в случае равномерной или квазиравномерной напряженности встроенного электрического поля. В этом можно убедиться, используя соответствующее приближение и выражение 1.7,

после чего, подставив полученный результат в 1.6, для E_R получится 2.1

$$E_R = \eta \frac{\mu e}{h\nu} \Phi(\theta_{ex}) E_{in} \left(\frac{1 - e^{-ax}}{a} \right) \frac{\sin(\theta_1)}{\cos(\theta_1) + \frac{n_2}{n_1} \cos(\theta_2)} \quad (2.1)$$

Где $\Phi(\theta_{ex}) = I_{ex}(1 - R(\theta_{ex}))\cos(\theta_{ex})$, а E_{in} - напряженность встроенного поверхностного поля в ННК. Поэтому, при регистрации изменения ТГц излучения от ННК, при возбуждении их фемтосекундными оптическими импульсами, регистрируется и изменение встроенного поля. Это изменение можно вычислить используя представление о наличии емкости поверхностного обедненного слоя.

При перезарядке емкости, изменение напряженности локального электрического поля выражается следующим образом

$$\frac{\Delta E}{E} = \exp \left(- \left(\frac{e^2 N \tau_S}{m^* \epsilon \epsilon_0 \eta} \right) t \right) \quad (2.2)$$

Где e - заряд электрона, m^* - эффективная масса электрона, N - концентрация неравновесных носителей заряда, ϵ - диэлектрическая проницаемость $GaAs$, η - поправка к ёмкости с учетом краевых эффектов, τ_S время релаксации электрона по импульсу.

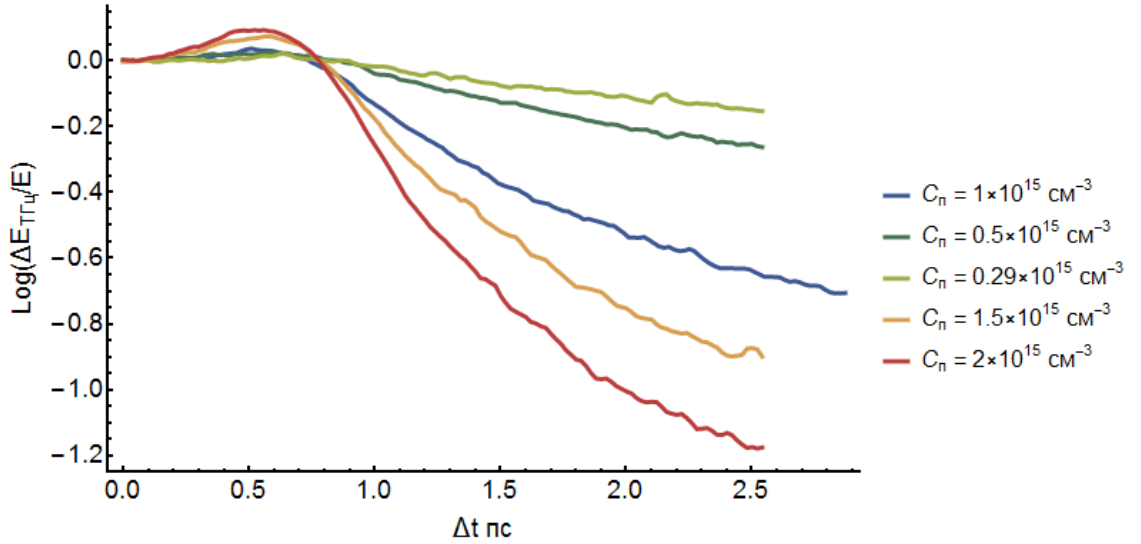


Рисунок 2.9 — Спад эффективности генерации ТГц излучения в логарифмическом масштабе в массиве ННК с параметрами $a = 600$ нм, $d = 100$ нм в логарифмическом масштабе.

Таким образом, по углу наклона графика зависимости эффективности генерации ТГц излучения от времени, с момента генерации плазмы, в логарифмическом масштабе ($\text{Log} \left(\frac{\Delta E}{E} \right)$ от t), можно оценить время релаксации электрона

по импульсу (τ_S) и обратную от этого величину - подвижность электронов в НК μ_S . На Рис. 2.9, Рис. 2.10 и Рис. 2.8 изображены графики зависимости $\text{Log}(\frac{\Delta E}{E})$ от t , для массивов НК с разными расстояниями между отдельными НК и разным их диаметром.

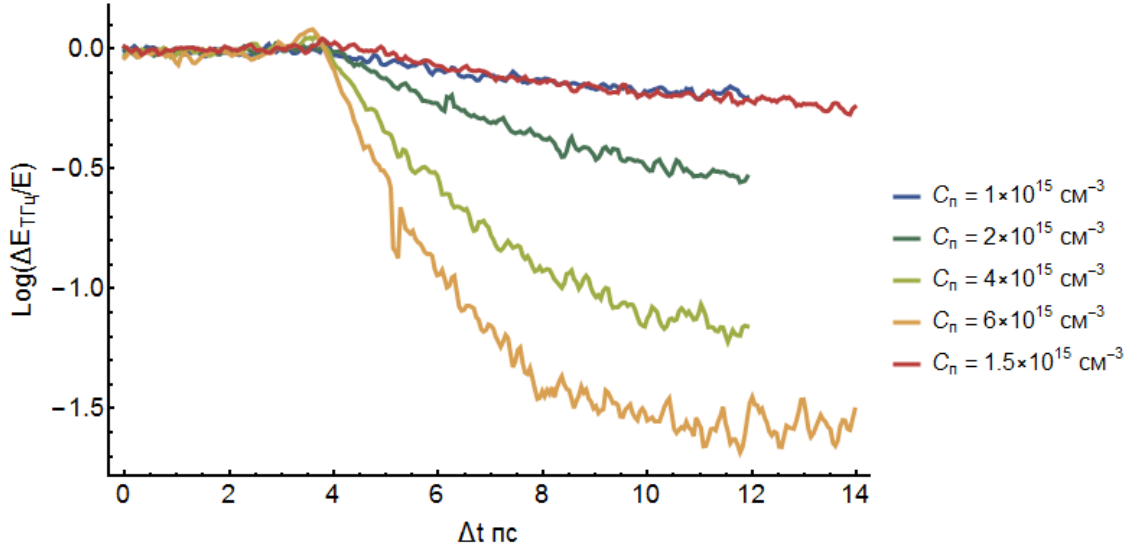


Рисунок 2.10 — Спад эффективности генерации ТГц излучения в логарифмическом масштабе в массиве НК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 65$ нм в логарифмическом масштабе.

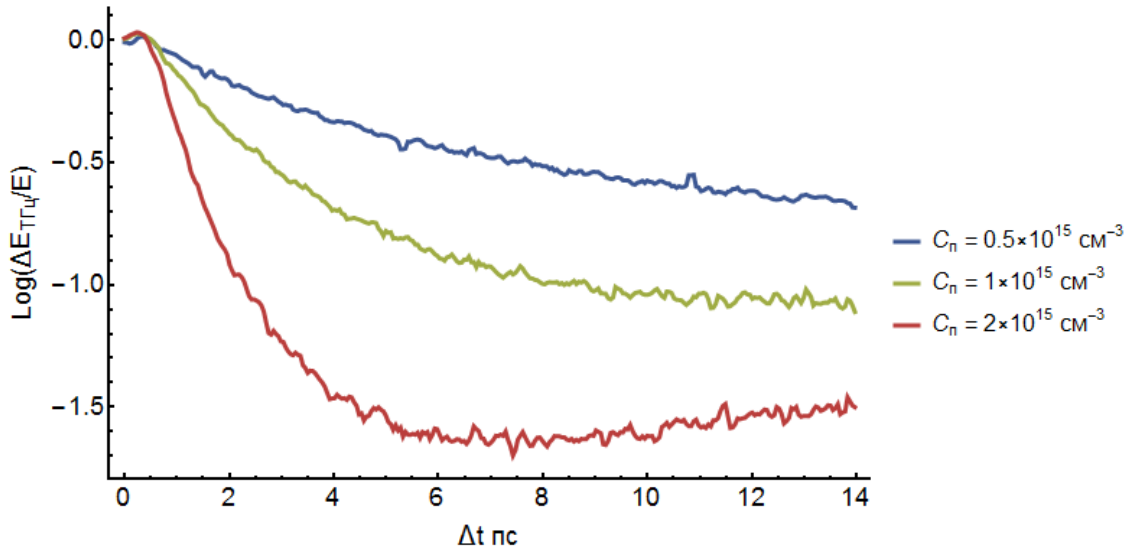


Рисунок 2.11 — Спад эффективности генерации ТГц излучения в логарифмическом масштабе в массиве НК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 100$ нм в логарифмическом масштабе.

Для определения коэффициента наклона, по выделенным линейным участ-

кам на рисунках 2.9, 2.10 и 2.11 и их линейной аппроксимации методом наименьших квадратов, можно построить зависимость тангенса угла наклона графиков, от концентрации неравновесной электронно-дырочной плазмы, для каждого из массивов ННК, рассмотренных выше. Эта зависимость линейна, так как для коэффициента наклона α можно записать $\alpha = \frac{e^2 N \tau_S}{m^* \epsilon \epsilon_0 \eta}$. Результаты аппроксимации приведены на Рис. 2.12 Рис. 2.13 и Рис. 2.14.

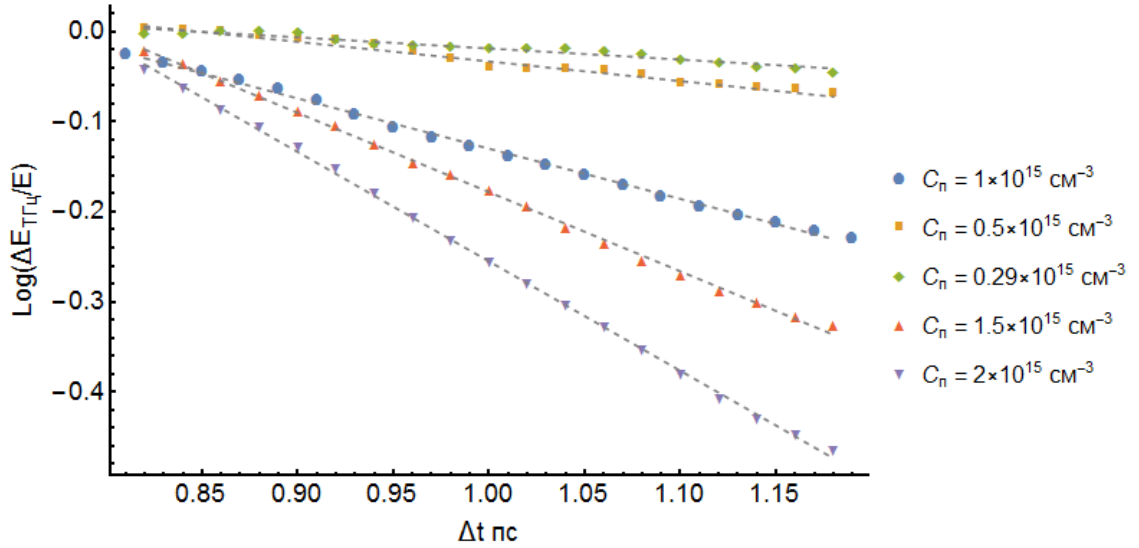


Рисунок 2.12 — Аппроксимация линейного участка эффективности генерации ТГц излучения после возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 600$ нм, $d = 100$ нм в логарифмическом масштабе.

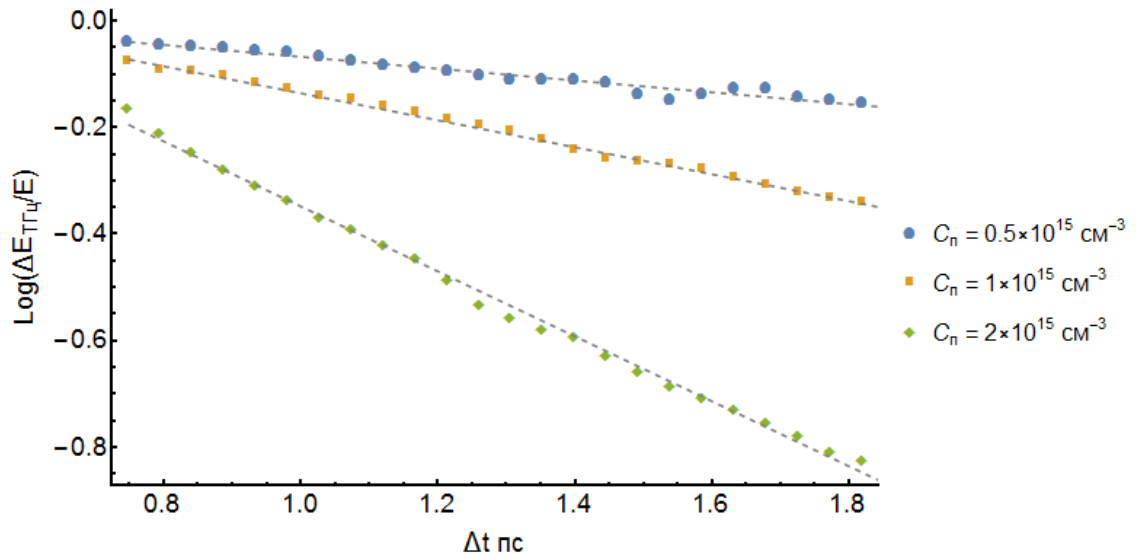


Рисунок 2.14 — Аппроксимация линейного участка эффективности генерации ТГц излучения после возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 100$ нм в логарифмическом масштабе.

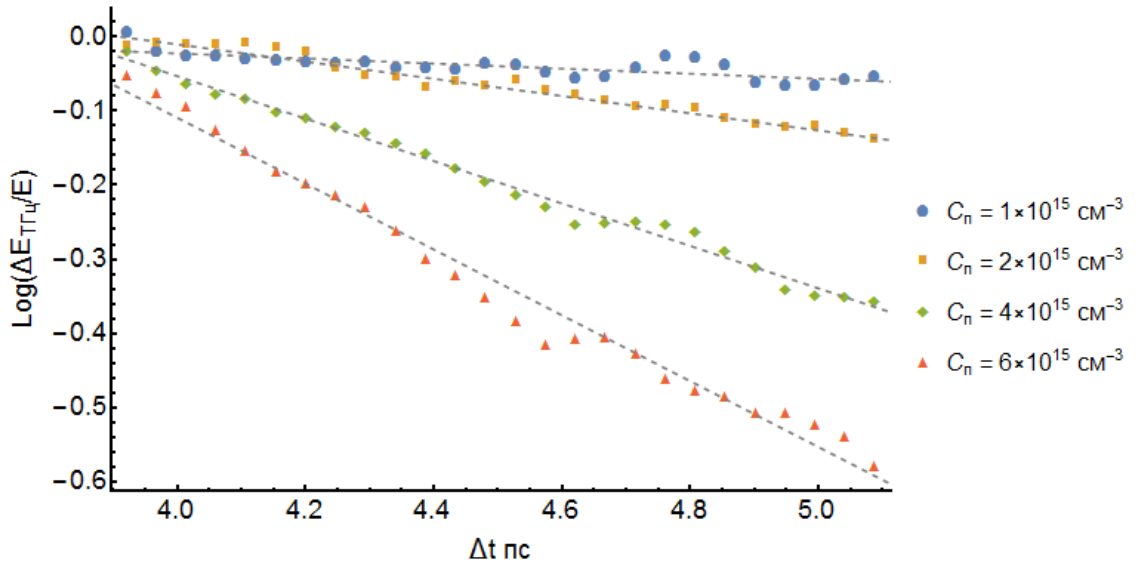


Рисунок 2.13 — Аппроксимация линейного участка эффективности генерации ТГц излучения после возникновения плазмы в массиве ННК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 65$ нм в логарифмическом масштабе.

По графикам Рис. 2.12 Рис. 2.13 и Рис. 2.14 определяется коэффициент наклона, α . На Рис. 2.15 представлены зависимости α от концентрации плазмы, для исследованных ННК с параметрами $a = 600$ нм, $d = 100$ нм, $a = 1200$ нм, $d = 65$ нм и $a = 1200$ нм, $d = 100$ нм. Используя эти данные можно оценить время релаксации электрона по импульсу для каждого набора параметров.

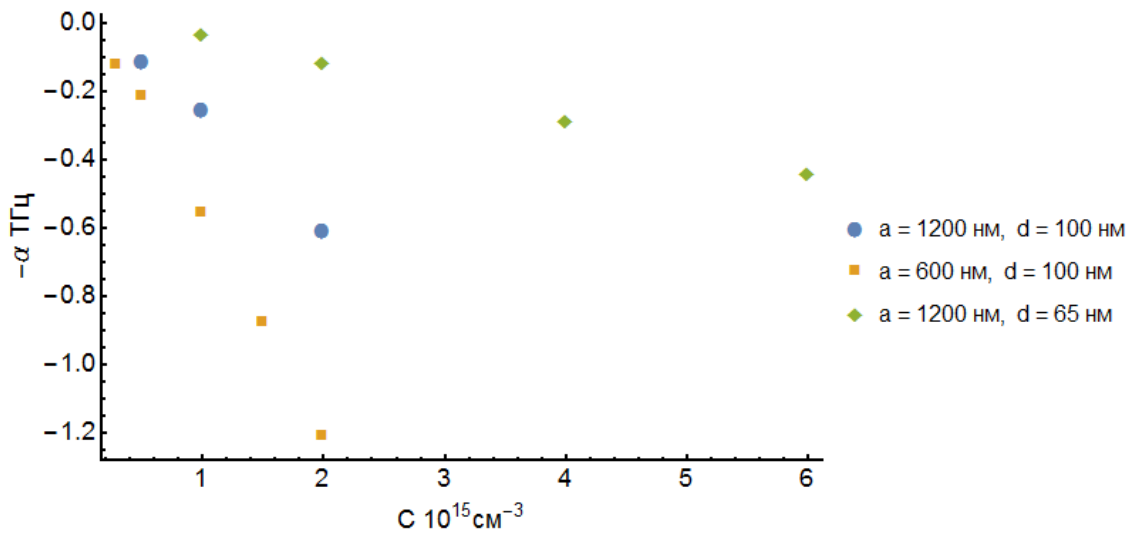


Рисунок 2.15 — Зависимость коэффициента наклона линейного участка эффективности генерации ТГц излучения после возникновения плазмы в массиве ННК при различных параметрах a и d

Таблица 2.1 — Оценка времени релаксации электрона по импульсу

параметры	a = 1200 нм	a = 600 нм	a = 1200 нм
массива ННК	d = 100 нм	d = 100 нм	d = 65 нм
τ_S фс	72	144	15

Используя полученное ранее выражение 2.2, для τ_S получим следующее выражение:

$$\tau_S = \frac{\alpha m^* \epsilon \epsilon_0 \eta}{e^2 N} \quad (2.3)$$

Оценка времени релаксации электрона по импульсу при помощи 2.3 для упорядоченных массивов ННК с разными параметрами представлена в таблице 2.1. В каждой точке графика Рис. 2.15 можно определить соответствующее τ_S . В таблице 2.1 указаны результаты усреднений по точкам для соответствующих образцов.

По таблице видно, что время релаксации электрона по импульсу для упорядоченных массивов ННК одинакового диаметра, но находящихся на разном расстоянии различно, τ_S больше, для тех массивов у которых больше плотность. Это связано с тем, что при такой плотности ННК, массив становится похож на объемный *GaAs*, с эффективным показателем поглощения. В связи с чем, неравновесные носители заряда генерируются в ННК не равномерно, это приводит к их последующей диффузии. Таким образом в более плотных ННК неравновесные носители движутся не только за счет поверхностного поля, но и за счет их диффузии. Появление дополнительного механизма транспорта носителей заряда приводит к увеличению времени релаксации неравновесных электронов.

Кроме того, для ННК с меньшим диаметром, время релаксации электрона по импульсу меньше. При одинаковом расстоянии между ННК и диаметре отличающемся примерно в два раза, τ_S отличается почти в пять раз. Это может быть вызвано рядом причин: отражение от поверхности, площадь которой существенно больше по отношению к объему, в сравнении с ННК, с большим диаметром, увеличением рассеяния на поверхностных уровнях.

2.2.4 Восстановление эффективности

Как уже отмечалось выше, восстановление амплитуды ТГц импульса, генерируемого при фотовозбуждении ННК фемтосекундными оптическими импульсами, после генерации неравновесной электронно дырочной плазмы в ННК может иметь как одноэкспоненциальный, так и двухэкспоненциальный характер. Причем это зависит от концентрации неравновесной электронно-дырочной плазмы.

Для того, чтобы оценить вклад быстрого и медленного восстановления данные Рис. 2.3, Рис. 2.4 и Рис. 2.5, на участках восстановления были аппроксимированы методом градиентного спуска, уменьшающим сумму квадратов отклонения модели от измеренных данных. Модель была выбрана следующая 2.4.

$$fit(t) = (1 - A_0) \left(1 - \alpha e^{-\left(\frac{t-t_0}{\tau_{slow}}\right)} - (1 - \alpha) e^{-\left(\frac{t-t_0}{\tau_{fast}}\right)} \right) + A_0 \quad (2.4)$$

где α , τ_{slow} и τ_{fast} коэффициенты аппроксимации, t_0 - момент времени, выбранный для начала аппроксимации, A_0 - минимальное отношение амплитуды генерируемого ТГц импульса к амплитуде в отсутствии неравновесной плазмы носителей, момент времени для которого это выполняется и взят за начало для аппроксимации. По величине коэффициента α определяется вклад быстрого и медленного восстановления, τ_{slow} и τ_{fast} - времена медленного и быстрого восстановления амплитуды ТГц импульса.

Графически, результат аппроксимации представлен на графиках Рис. 2.16 Рис. 2.17 и Рис. 2.18 для параметров массива ННК (a/d) 600/100, 1200/65 и 1200/100 соответственно. По графикам видно, что модель отлично аппроксимирует экспериментальные данные.

Таблица 2.2 — Параметры аппроксимационной модели для массива ННК с параметрами $a = 600$ нм и $d = 100$ нм

C_{II} см ⁻³	0.5	1	1.5	2
α	1	0.8	0.7	0.7
τ_{fast} пс	-	99	90	60
τ_{slow} пс	711	823	769	600

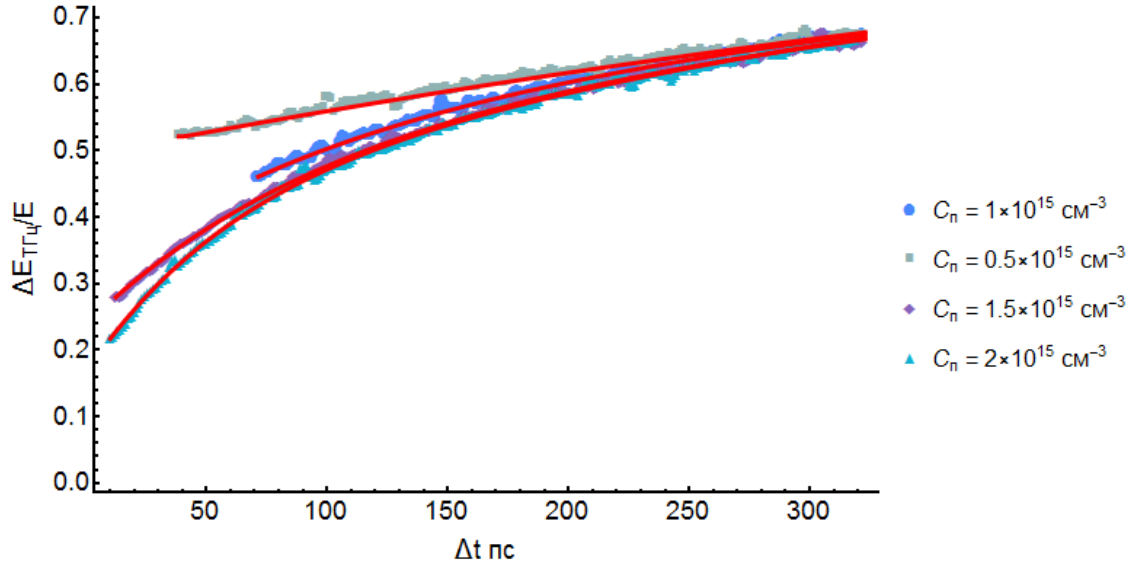


Рисунок 2.16 — Результат аппроксимации участка восстановления амплитуды ТГц импульса с помощью выражения 2.4 для ННК с параметрами $a = 600$ нм, $d = 100$ нм.

Таблица 2.3 — Параметры аппроксимационной модели для массива ННК с параметрами $a = 1200$ нм и $d = 100$ нм

C_{Π} см ⁻³	0.5	1	2
α	0.92	0.76	0.68
τ_{fast} пс	34	64	51
τ_{slow} пс	590	612	526

Параметры модели 2.4 (a , τ_{slow} , τ_{fast}) подобранные в результате аппроксимации представлены в таблицах 2.2, 2.3 и 2.4. Первое, что можно отметить, это то что вклад быстрой динамики увеличивается с увеличением концентрации неравновесной электронно-дырочной плазмы. Это выполняется для всех массивов ННК, независимо от диаметра ННК и расстояния между ними. Второе, это то, что медленное время восстановления в более тонких ННК в два раза больше, чем в ННК с большим диаметром. А характерное время быстрого восстановления наоборот, больше для образцов с большим диаметром. Кроме того, для более плотных образцов, время быстрого восстановления больше.

Зависимость вклада быстрого восстановления от концентрации неравновесной электронно-дырочной плазмы объясняется природой этого восстановления.

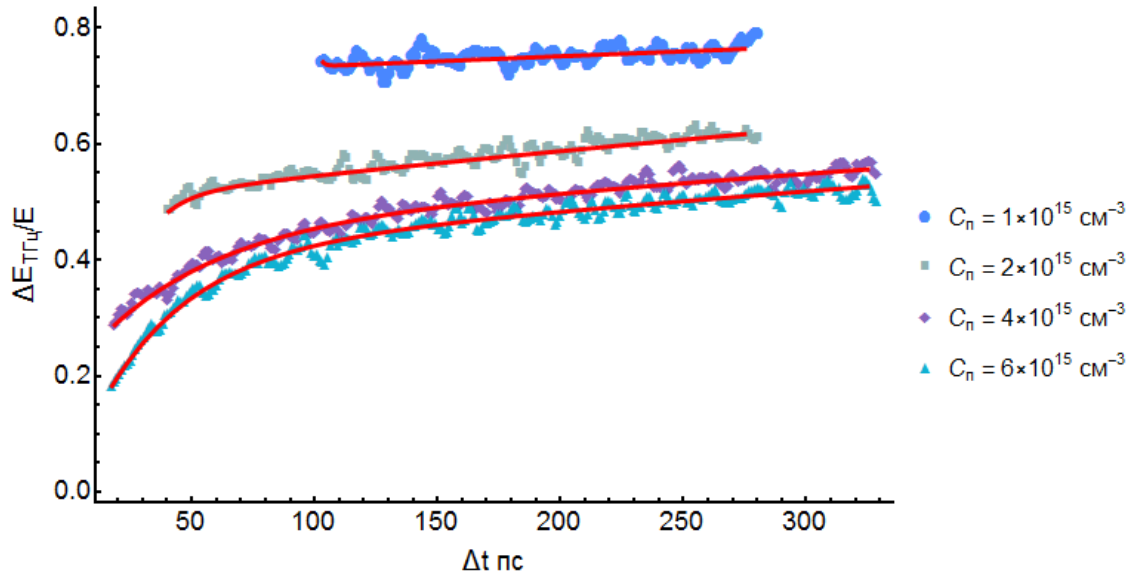


Рисунок 2.17 — Результат аппроксимации участка восстановления амплитуды ТГц импульса с помощью выражения 2.4 для ННК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 65$ нм.

Таблица 2.4 — Параметры аппроксимационной модели для массива ННК с параметрами $a = 1200$ нм и $d = 65$ нм

C_{Π} см ⁻³	1	2	4	6
α	1	0.93	0.77	0.71
τ_{fast} пс	-	11	47	35
τ_{slow} пс	1456	1014	1477	1458

Быстрое восстановление, по видимому, происходит в результате перезарядки поверхностной емкости

2.3 Исследование неупорядоченных массивов ННК на основе *GaAs*

2.3.1 Описание образцов и метода их получения

Метод газовой фазной эпитаксии, ссылка на статью и короткое описание
Ориентация *GaAs*, получившиеся образцы, фото СЭМ

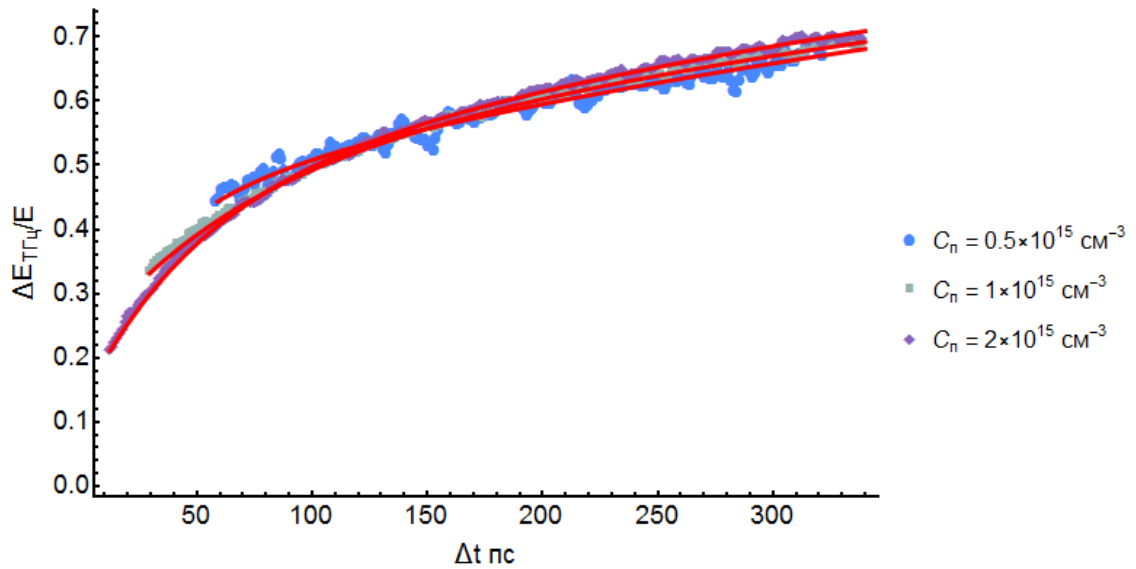


Рисунок 2.18 — Результат аппроксимации участка восстановления амплитуды ТГц импульса с помощью выражения 2.4 для ННК с параметрами $a = 1200$ нм, $d = 100$ нм.

2.3.2 Зависимость эффективности генерации ТГц излучения от времени при возбуждении плазмы в образцах.

Типичный вид динамики

Динамика, для упорядоченных образцов, при разной мощности накачки

Характерные участки (короткая и длинная динамика)

2.3.3 Спад эффективности - экранировка встроенного поля

2.3.4 Восстановление эффективности

2.4 Сравнение и анализ динамики носителей в разных образцах

Объяснение разницы в динамике

ГЛАВА 3

Заключение

3.1 Положения дипломной работы

Все что удалось узнать, но в виде выражений и емких утверждений.

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ¹

СПИСОК ТЕРМІНОВІ

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ1

1. Agarwal R., Lieber C. M. Semiconductor nanowires: optics and optoelectronics //Applied Physics A. – 2006. – Т. 85. – №. 3. – С. 209.
2. Tomioka K., Yoshimura M., Fukui T. A III-V nanowire channel on silicon for high-performance vertical transistors //Nature. – 2012. – Т. 488. – №. 7410. – С. 189-192.
3. Duan X. et al. Single-nanowire electrically driven lasers //Nature. – 2003. – Т. 421. – №. 6920. – С. 241-245.
4. Trukhin V. N. et al. Generation of terahertz radiation in ordered arrays of GaAs nanowires //Applied Physics Letters. – 2015. – Т. 106. – №. 25. – С. 252104.
5. Аверкиев Н.С., Шик А.Я. Контактные явления в квантовых нитях и пористом кремнии//Физика и техника полупроводников. - 1996. - №.2 - С. 199
6. Parkinson P. et al. Carrier lifetime and mobility enhancement in nearly defectfree coreshell nanowires measured using time-resolved terahertz spectroscopy //Nano letters. – 2009. – Т. 9. – №. 9. – С. 3349-3353.
7. Katzenmeyer A. M. et al. Poole-Frenkel effect and phonon-assisted tunneling in GaAs nanowires //Nano letters. – 2010. – Т. 10. – №. 12. – С. 4935-4938.

ПРИЛОЖЕНИЯ1