Локализация поверхностных плазмонных волн в гибридных фотодетекторах с металлическими субволновыми решетками

А. И. Якимов^{+*1}, В. В. Кириенко⁺, А. В. Двуреченский⁺

+ Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия

* Томский государственный университет, 634050 Томск, Россия

Поступила в редакцию 18 июля 2018г. После переработки 2 августа 2018 г.

Исследованы спектральные характеристики фототока дырок в плазмонных фотодетекторах, представляющих собой гетероструктуры Ge/Si с квантовыми точками Ge, сопряженные с регулярными золотыми решетками субволновых отверстий различной формы на поверхности полупроводника. Из зависимостей фототока от угла падения света определены дисперсионные соотношения, характеризующие распространение поверхностных плазмонных волн вдоль границы металл-полупроводник. Обнаружено подавление эффекта плазмонного усиления фототока при переходе от круглой и квадратной форм отверстий решетки к прямоугольной. Установлено, что в гибридных структурах с прямоугольными щелями существует диапазон волновых векторов, в котором энергия поверхностных плазмонов не зависит от волнового вектора падающего излучения. Полученные результаты объяснены возбуждением световой волной локализованных дипольных мод на прямоугольных апертурах с большим соотношением сторон ("aspect ratio").

DOI: 10.1134/S0370274X18180066

В последнее десятилетие плазмоника превратилась в мощную отрасль науки, позволившую получить прорывные результаты в области биосенсорики и молекулярной спектроскопии, создания сверхплотных элементов памяти, повышения эффективности оптоэлектронных приборов, таких как солнечные элементы, источники излучения, полупроводниковые лазеры и фотодетекторы (см., например, обзоры [1–4] и приведенные там ссылки). В основе плазмоники как инструмента научных исследований лежит возможность управления взаимодействием света и материи на субволновых масштабах за счет возбуждения связанных колебаний электромагнитного поля и электронов проводимости - поверхностных плазмонов. Поверхностные плазмоны могут быть локализованы в пространстве, а могут распространяться вдоль металлической поверхности в виде плазмон-поляритонных волн (ППВ) [5]. Поскольку волновой вектор поверхностной плазмонной волны всегда больше волнового вектора световой волны, то непосредственно преобразовать фотоны в плазмоны невозможно [6]. Для этого требуется дополнительный волновой вектор, в качестве которого может использоваться вектор обратной решетки какой-либо периодической структуры.

Наиболее простой плазмонной структурой является регулярная решетка отверстий в металлической пленке на поверхности диэлектрика или полупроводника. Резонансные длины волн ППВ в первом приближении не зависят от формы и размеров отверстий и для квадратной решетки апертур при нормальном падении света определяются следующим выражением [7]:

$$\lambda_{ij} = \frac{a}{\sqrt{i^2 + j^2}} \left(\frac{\varepsilon_m \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d} \right)^{1/2},\tag{1}$$

где a – пространственный период решетки, i и j – целые числа, ε_d и ε_m – диэлектрические проницаемости диэлектрической среды и граничивающего с ней металла, соответственно. Поскольку для благородных металлов в широком диапазоне частот $|\varepsilon_d| \ll |\varepsilon_m|$, то длина волны фундаментальной плазмонной моды $(i^2 + j^2 = 1)$ определяется только периодом решетки и диэлектрической проницаемостью диэлектрика: $\lambda_{sp} \approx a\varepsilon_d^{1/2}$. Так, например, для перфорированной пленки золота с a = 1 мкм на поверхности кремния ($\varepsilon_d = 12$) $\lambda_{sp} \approx 3.46$ мкм Таким образом, правильным образом конструируя решетку, можно возбуждать ППВ в нужном спектральном диапазоне.

В настощее время активно развивается направление, связанное с разработкой фотодетекторов среднего инфракрасного (ИК) диапазона, содержащих в качестве активного элемента слои квантовых то-

¹⁾e-mail: yakimov@isp.nsc.ru

чек (КТ). Несмотря на многие достоинства таких сенсоров [8, 9], они характеризуются низкой квантовой эффективностью вследствие малой толщины фоточувствительного слоя. Существенное повышение эффективности ИК детекторов удалось достичь в гибридных гетероструктурах InAs/GaAs [10-13] и Ge/Si [14, 15] с квантовыми точками InAs и Ge, соответственно, сопряженных с субволновыми металлическими решетками. Двумерные периодические решетки круглых отверстий в золотой пленке выступали в качестве метаповерхностей, позволяющих преобразовать внешнее электромагнитное излучение в поверхностные плазмон-поляритонные волны. Полученные результаты были объяснены поверхностным захватом и связыванием светового излучения благодаря генерации ППВ.

Выражение (1) не учитывает зависящие от формы и размера апертур процессы рассеяния и интереференции ППВ на отверстиях плазмонной структуры. Исследования явления экстраординарного прохождения света ("extraordinary optical transmission") через периодические субволновые металлические решетки с щелями анизотропной формы выявили сильную зависимость величины коэффициента прохождения света и положения максимума пропускания от направления вектора поляризации излучения [5, 16-18], продемонстрировали возникновение локализованных плазмонных мод [19, 20]. Вопрос о влиянии формы отверстий на плазмонное усиление фототока в настоящее время мало изучен. Настоящая работа посвящена исследованиям спектральных характеристик фототока дырок в плазмонных фотодетекторах, представляющих собой гетероструктуры Ge/Si с квантовыми точками Ge, сопряженные с регулярными золотыми решетками субволновых отверстий круглой, квадратной и прямоугольной формы.

Образцы выращивались методом высоковакуумной молекулярно-лучевой эпитаксии. Схематический разрез гетеростуктур представлен на (рис. 1а). Подробно технология и условия роста изложены в работе [15]. Для синтеза массивов нанокластеров Ge использовалось явление самоорганизации полупроводниковых наноструктур в процессе гетероэпитаксиального роста материалов с большим несоответствием параметров решетки (механизм роста Странского-Крастанова). Осаждение слоев Ge номинальной толщиной покрытия 0.7 нм проводилось при температуре 500 °C со скоростью 0.05 Å/с. Квантовые точкии Ge имели форму hutкластеров. Плотность КТ составляла $\sim 10^{11} \,\mathrm{cm}^{-2}$, латеральные размеры ~10 нм, высота на порядок меньше. Контролируемое заполнение КТ дырками



Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схематический разрез многослойной гетероструктуры с квантовыми точками Ge в матрице Si. На поверхность полупроводника нанесен источник поверхностных плазмон-поляритонных волн – двумерная периодическая решетка субволновых отверстий в золотой пленке. Засветка образцов осуществляется со стороны подложки. (b)–(d) – Увеличенные изображения фрагментов изготовленных решеток с отверстиями: круглой (b), квадратной (c) и прямоугольной (d) формы в пленке Au, полученные в электронном микроскопе. Период решеток во всех трех случаях составлял 1 мкм. Диаметр отверстий круглой формы 0.41 мкм, размер квадратных щелей 0.30×0.30 мкм², прямоугольных – 0.34×0.72 мкм²

реализовывалось путем введения б-легированных бором слоев Si на расстоянии 5 нм выше слоев Ge. Плотность атомов бора в каждом δ -легированном слое имела величину 6 · 10¹¹ см⁻². Для создания омических контактов к сильно легированным слоям кремния использовались слои Au/Ti. Плазмонная структура создавалась нанесением на поверхность гетероструктуры пленки Аu толщиной 50 нм и формированием на ней квадратной решетки из круглых (рис. 1b), квадратных (рис. 1c), или прямоугольных (рис. 1d) отверстий с помощью электронной литографии. Период решеток во всех трех случаях составлял 1 мкм. Диаметр отверстий круглой формы составлял 0.41 мкм, размер квадратных щелей 0.30×0.30 мкм², прямоугольных – 0.34×0.72 мкм². Для выявления особенностей фототока, связанных с возбуждением ППВ, были изготовлены также стандартные фоточуствительные гетероструктуры Ge/Si с квантовыми точками Ge. Их отличие от предыдущих образцов заключалось лишь в отсутствии перфорированной золотой пленки на поверхности.

Для исключения влияния пропускания решетки субволновых апертур различной формы и размеров на спектры возбуждаемого фототока засветка образцов осуществлялась со стороны подложки. В такой геометрии эксперимента внешняя электромагнитная волна сначала проходит через слои с квантовыми точками и лишь затем попадает на плазмонную структуру.

На рисунке 2а приведены спектральные характеристики токовой чувствительности к неполяризованному излучению серии образцов в отсутствие приложенного к образцам смещения. Возникновение фототока в среднем окне прозрачности земной атмосферы (3-5 мкм) в КТ Ge/Si обусловлено внутризоннымы переходами дырок между уровнями размерного квантования в квантовых точках Ge и состояниями континуума объемного Si [21]. Причиной фотовольтаического отклика в таких структурах является наличие встроенного электрического поля, индуцированного зарядом в расположенном рядом с КТ δ-легированном слое кремния, и возникающая при этом асимметрия профиля валентной зоны [21]. На рисунке 2b показан фактор усиления фототока, определяемый как отношение спектральных характеристик фототока образцов с плазмонной структурой и контрольного образца [13, 14]. Общий уровень усиления ~2 является следствием двукратного прохождения света через слои с KT: второй раз после отражения от верхней золотой пленки. Для образцов с круглыми и квадратными щелями наблюдаются плазмонные пики одинаковой амплитуды (~ 3) на длине волны ≈ 3.5 мкм, соответствующей плазмонному резонансу низшего порядка λ_{sp} для Si. Для структуры с прямоугольными отверстиями в золотой пленке пик плазмонного усиления фототока смещается в длинноволновую область спектра и его амплитуда сильно падает. Наблюдаемые на рис. 2b особенности вблизи 3.4 мкм являются артефактами, поскольку в отличие от другх пиков они не вопроизводятся от образца к образцу.

Ранее смещение спектрального положения максимумов коэффициента прохождения через прямоугольные апертуры было объяснено образованием локализованных дипольных мод на кромках прямоугольных отверстий [17, 18]. Возникающий наряду с ППВ новый тип поверхностного плазмонного резонанса был назван резонансом формы ("shape resonance") [17, 19]. Необходимым условием возбуждения таких мод является большое соотношение длин сторон щелей ("aspect ratio") [18, 19]. Позднее локализованные плазмоны впрямую наблюдались в упорядоченных щелях эллиптичской формы с



Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Спектры фототока контрольного образца (кривая 1) и гибридных структур с золотыми решетками в фотовольтаическом режиме. Гибридные структуры представляют собой образцы Ge/Si, на поверхность которых нанесены пленки Au с регулярной решеткой отверстий прямоугольной (кривая 2), квадратной (кривая 3) и круглой (кривая 4) формы. (b) – Фактор усиления фототока для плазмонных фотодетекторов с круглыми (кривая 1), квадратными (кривая 2) и прямоугольными (кривая 3) отверстиями. Стрелками показано положение фундаментальной моды ППВ для каждого из образцов

помощью сканирующего ближнеполевого оптического микроскопа рассеивающего типа ("scattering-type scanning near-field optical microscope") [20].

Для того, чтобы прояснить характер плазмонных возбуждений в фотодетекторах с субволновыми решетками, нами были проанализированы дисперсионные характеристики поверхностных плазмонных мод. Подробно техника такого эксперимента описана в работе [15]. Здесь мы лишь кратко остановимся на основных моментах. Возбуждение ППВ происходит при выполнении определенного соотношения между волновыми векторами ППВ **k**_{sp}, падающего светового излучения $|\mathbf{k}_0| = 2\pi/\lambda$ и векторами обратной решетки периодической структуры \mathbf{G}_x и \mathbf{G}_y [22]:

$$\mathbf{k}_{sp} = \mathbf{k}_x \pm i \mathbf{G}_x \pm j \mathbf{G}_y,\tag{2}$$

где $\mathbf{k}_x = |\mathbf{k}_0| \sin \theta$ – компонента волнового вектора фотонов в плоскости решетки, θ – угол падения света относительно нормали к плоскости образца. Таким образом, дисперсионные соотношения для ППВ могут быть получены из измерений спектральных характеристик фактора усиления фототока при различных углах падения света θ . Пусть поверхность образцов совпадает с плоскостью (x, y). Тогда, вращая образцы вокруг оси y, можно восстановить закон дисперсии плазмонов в направлении \mathbf{k}_x (вставка на рис. 3). В данной работе мы ограничились случа-



Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектральные характеристики коэффициента усиления фототока при различных углах падения света на плазмонный детектор с круглыми отверстиями в золотой пленке. Угол θ отсчитывается от нормали к поверхности образца. На вставке показана геометрия измерений

ем, когда вектор поляризации падающего излучения \mathbf{E} перпендикулярен оси вращения y (рис. 3). На рисунке 3 в качестве примера приведены угловые зависимости фактора усиления фототока для образца с отверстиями круглой формы.

На рисунке 4 показаны зависимости энергии плазмонов $E_{sp} = hc/\lambda_{sp}$ от волнового вектора k_x . В случае прямоугольных апертур измерения были сделаны для двух ортогональных направлениий поляризации света, перпендикулярно длинной и короткой сторон прямоугольника. В образцах с круглыми и квадратными отверстиями дисперсионные зависимости $E_{sp}(k_x)$ одинаковы и отвечают возбуждению поверхностной плазмонной блоховской моде (-1, 0),



Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости энергии плазмонных возбуждений в области фундаментального поверхностного плазмонного резонанса от компоненты волнового вектора фотонов в плоскости распространения ППВ. Форма символов соответствуют форме отверстий в золотой пленке. Линией со стрелками показано направление поляризации падающего излучения

для которой $k_{sp} = 2\pi/a - k_x$ [15, 23–25]. Для прямоугольных апертур дисперсия плазмонов отличается от характеристик щелей изотропной формы и зависит от поляризации излучения. В случае, когда световая волна поляризована вдоль короткой стороны апертуры, существует диапазон волновых векторов $k_x < 0.4 \,\mathrm{mkm}^{-1}$, в котором энергия поверхностного плазмона не зависит от волнового вектора, что является характерным признаком локализованного плазмонного возбуждения [18, 19]. Именно при такой поляризации наблюдалось резонансное усиление коэффицента прохождения, связанное с локализованными плазмонными модами [18, 26]. При $k_x > 0.4 \,\mathrm{MKM}^{-1}$ появляется дисперсионное поведение, характерное для плазмонной волны в периодической структуре, и наблюдается значительный рост коэффициента плазмонного усиления фототока (рис. 5). По-видимому, в периодических решетках вытянутых апертур состояния поверхностных плазмонов носят характер смешанных локализованных и распространяющихся мод. Эта проблема заслуживает дальнейшего глубокого теоретического анализа.

В заключении выскажем предположение, каким же образом локализация ППВ приводит к подавлению плазмонного усиления фототока. Существует, по крайней мере, две причины. Во-первых, по данным ближнеполевой микроскопии, осциллирующий диполь, связанный с появлением зарядов на кромках вытянутой апертуры, характеризуется отсутствием вертикальной компоненты электрического поля (*z*-



Рис. 5. (Цветной онлайн) Плазмонное усиление фототока в образце с прямоугольными апертурами для несольких значений волнового вектора фотонов k_x . Излучение поляризовано вдоль короткой стороны щелей

компоненты) [20]. Однако именно для *z*-поляризации электромагнитной волны максимальна сила осциллятора для оптических переходов дырок из состояний, связанных в КТ Ge, в распространенные состояния валентной зоны [27, 28]. Во-вторых, как показывает численное моделирование пространственного распределения компонент электрического поля, выполненное методом конечных элементов в работе [29], локализованные плазмонные моды затухают вглубь Si быстрее, чем ППВ, и слабее проникают в слои с квантовыми точками.

Авторы благодарят В.А. Армбристера за выращивание гетероструктур методом молекулярнолучевой эпитаксии и Д.Е. Уткина за проведение электронной литографии. Исследование выполнено за счет средств Российского научного фонда (грант 14-12-00931 П).

- F. J. Garcia-Vidal, L. Martin-Moreno, T. W. Ebbesen, and L. Kuipers, Rev. Mod. Phys. 82, 729 (2010).
- J. Zhang, L. Zhang, and W. Xu, J. Phys. D: Appl. Phys. 45, 113001 (2012).
- N. C. Lindquist, P. Nagpal, K. M. McPeak, D. J. Norris, and S.-H. Oh, Rep. Prog. Phys. 75, 036501 (2012).
- S. Law, V. Podolskiy, and D. Wasserman, Nanophotonics 2, 103 (2013).
- A. Degiron and T. W. Ebbesen, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 7, S90 (2005).
- 6. C. Genet and T. W. Ebbesen, Nature 445, 39 (2007).
- S. Hayashi and T. Okamoto, J. Phys. D: Appl. Phys. 45, 433001 (2012).
- 8. V. Ryzhii, Semicond. Sci. Technol. 11, 759 (1996).
- 9. J. Phillips, J. Appl. Phys. 91, 4590 (2002).

- S. C. Lee, S. Krishna, and S. R. J. Brueck, Opt. Express 17, 23160 (2009).
- S. C. Lee, S. Krishna, and S. R. J. Brueck, Appl. Phys. Lett. 97, 021112 (2010).
- C.-C. Chang, Y.D. Sharma, Y.-S. Kim, J.A. Bur, R. V. Shenoi, S. Krishna, D. Huang, and S.-Y. Lin, Nano Lett. **10**, 1704 (2010).
- G. Gu, J. Vaillancourt, P. Vasinajindakaw, and X. Lu, Semicond. Sci. Technol. 28, 105005 (2013).
- A. I. Yakimov, V. V. Kirienko, A. A. Bloshkin, V. A. Armbrister, and A. V. Dvurechenskii, J. Appl. Phys. **122**, 133101 (2017).
- A. I. Yakimov, V. V. Kirienko, V. A. Armbrister, A. A. Bloshkin, and A. V. Dvurechenskii, Appl. Phys. Lett. **112**, 171107 (2018).
- 16. H. Cao and A. Nahata, Opt. Express 12, 3664 (2004).
- K. J. K. Koerkamp, S. Enoch, F. B. Segerink, N. F. van Hulst, and L. Kuipers, Phys. Rev. Lett. 92, 183901 (2004).
- K. L. van der Molen, K. J. K. Koerkamp, S. Enoch, F. B. Segerink, N. F. van Hulst, and L. Kuipers, Phys. Rev. B 72, 045421 (2005).
- M. W. Tsai, T. H. Chuang, H. Y. Chang, and S.-C. Lee, Appl. Phys. Lett. 89, 093102 (2006).
- J.-Y. Chu, T.-J. Wang, J.-T. Yeh, M.-W. Lin, Y.-C. Chang, and J.-K. Wang, Appl. Phys. A 89, 387 (2007).
- A.V. Dvurechenskii and A.I. Yakimov, Siliconbased nanoheterostructures with quantum dots, in: Advances in Semiconductor Nanostructures, ed. by A.V. Latyshev, A.V. Dvurechenskii, and A.L. Aseev, Elsevier, Amsterdam (2017), p. 59.
- T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio, and P. A. Wolff, Nature **391**, 667 (1998).
- 23. H.F. Ghaemi, T. Thio, D.E. Grupp, T.W. Ebbesen, and H.J. Lezec, Phys. Rev. B 58, 6779 (1998).
- H. Gao, W. Zhou, and T. W. Odom, Adv. Funct. Mater. 20, 529 (2010).
- T. Ribaudo, D. C. Adams, B. Passmore, E. A. Shaner, and D. Wasserman, Appl. Phys. Lett. 94, 201109 (2009).
- 26. A. Degiron, H. F. Lezec, N. Yamamoto, and T. W. Ebbesen, Opt. Commun. 239, 61 (2004).
- A. I. Yakimov, V. V. Kirienko, V. A. Armbrister, A. A. Bloshkin, A. V. Dvurechenskii, and A. A. Shklyaev, Mater. Res. Express 3, 105032 (2016).
- A.N. Sofronov, L.E. Vorobjev, D.A. Firsov, V.Yu. Panevin, R.M. Balagula, P. Werner, and A.A. Tonkikh, Superlattices Microstruct. 87, 53 (2015).
- A. A. Bloshkin, A. I. Yakimov, and A. V. Dvurechenskii, Near-filed enhancement in midinfrared quantum dot Ge/Si photodetectors integrated with gold metasurfaces, in: Proc. 26-th Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology", Minsk, Belarus, June 18–22 (2018), p. 106.