

Получение терагерцового излучения в кристаллах $\text{InP}:\text{Fe}$ за счет решеточной нелинейности второго порядка

© В.В. Румянцев¹, К.В. Маремьянин¹, А.П. Фокин², А.А. Дубинов¹, А.А. Разова¹, Н.Н. Михайлов³, С.А. Дворецкий³, М.Ю. Глявин², В.И. Гавриленко¹, С.В. Морозов¹

¹ Институт физики микроструктур Российской академии наук, 603950 Нижний Новгород, Россия

² Институт прикладной физики Российской академии наук, 603950 Нижний Новгород, Россия

³ Институт физики полупроводников Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

E-mail: rumyantsev@ipm.sci-nnov.ru

Поступила в Редакцию 12 апреля 2021 г.

В окончательной редакции 19 апреля 2021 г.

Принята к публикации 19 апреля 2021 г.

Экспериментально продемонстрирована генерация второй гармоники излучения гиротрона с рабочей частотой 263 ГГц за счет решеточной нелинейности второго порядка в кристаллах фосфида индия, легированного железом. Показано, что излучение второй гармоники может быть использовано для магнитоспектроскопии полупроводниковых наноструктур. Обсуждается возможность генерации разностной частоты в исследуемых кристаллах при возбуждении двумя источниками среднего ИК диапазона с близкой длиной волны.

Ключевые слова: нелинейные преобразования частоты, терагерцовое излучение, фосфид индия, нелинейность второго порядка.

DOI: 10.21883/FTR.2021.09.51299.32

1. Введение

На протяжении последних десятилетий особое внимание исследователей по всему миру привлекает так называемый „терагерцовый“ (ТГц) диапазон электромагнитного спектра, излучение в котором может быть использовано в разнообразнейших и весьма важных приложениях (см., например, [1–3]). В ТГц-диапазоне лежат вращательные спектры многих органических молекул, включая колебания биологически важных коллективных мод ДНК и белков, а также фоновые резонансы кристаллических решеток, что позволяет развивать новые методы спектроскопии биологических и полупроводниковых структур. Так как ТГц-излучение является неионизирующим, привлекательным представляется его использование в биологии и медицине, в частности в диагностике раковых опухолей и ожогов.

В терагерцовом диапазоне становятся плохо применимы методы генерации излучения, разработанные для оптического и микроволнового диапазонов. Существуют мощные и узкополосные источники терагерцового излучения, такие как лазеры на свободных электронах, однако высокая стоимость их эксплуатации и большие размеры делают затруднительным их применение даже в научных приложениях. Приборы вакуумной электроники, как, например, лампа бегущей волны и лампа обратной волны, с трудом достигают частотного рубежа в 1 ТГц из-за сложностей в изготовлении мелкомасштабной „замедляющей“ системы [4]. В гиросприборах для генерации излучения с частотой 1 ТГц на

основной гармонике требуется магнитное поле ~ 38 Тл или генерация на гармониках гирочастоты. С другой стороны, так как эквивалентная температура излучения частотой 1 ТГц составляет всего 47.6 К, в лазерах тепловая релаксация уровней при комнатной температуре приводит к быстрой релаксации инверсии. Так, квантово-каскадные лазеры (ККЛ), занимающие лидирующие позиции среди компактных полупроводниковых источников в среднем ИК диапазоне, на терагерцовых частотах работают только в условиях криогенного охлаждения [5]. Газовые лазеры работают при комнатной температуре, однако доступны лишь для некоторого набора частот [6].

Довольно широкое распространение получили источники терагерцового излучения, созданные на основе фемтосекундных лазеров. Однако они обладают достаточно широким спектром излучения (~ 1 ТГц) и мощность выходного излучения относительно невысока [7]. На данный момент для генерации терагерцового излучения методом оптического выпрямления, как правило, используются кристаллы ZnTe [8], GaP [9], LiNbO_3 [10]. Все они обладают достаточно большими потерями в терагерцовом диапазоне, ввиду чего эффективность преобразования лишь в рекордных режимах приближается к 10^{-2} – 10^{-3} [10,11], а в типичных случаях составляет на порядок меньше.

Близким к оптическому выпрямлению методом получения терагерцового излучения являются нелинейные преобразования частоты излучения за счет различных типов нелинейности в полупроводниковых структурах.

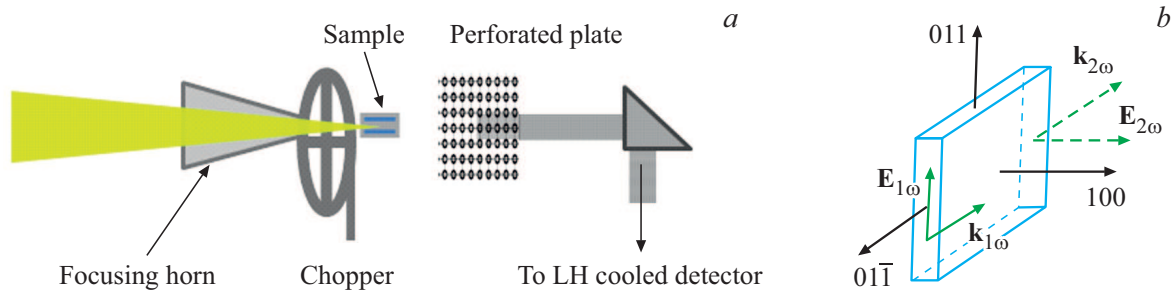


Рис. 1. *a* — схема эксперимента по удвоению частоты суб-ТГц излучения в кристаллах InP:Fe в квазинепрерывном режиме; *b* — ориентация кристалла InP:Fe относительно волновых векторов и векторов электрического поля излучения на основной и удвоенной частоте.

Генерация третьей гармоники в германии и кремнии *n*-типа исследовалась в ряде работ [12–14], где использовалась нелинейность третьего порядка, которая преимущественно является электронной. Как известно, генерация второй гармоники за счет решеточной нелинейности второго порядка возможна только в кристаллах с отсутствием центра инверсии. В то же время нелинейные свойства материалов $A^{III}B^V$ относительно слабо изучены в ТГц-диапазоне, где существенна частотная дисперсия нелинейного коэффициента второго порядка. Решеточная нелинейность экспериментально исследовалась преимущественно в арсениде галлия с использованием газового CH_3F -лазера с частотами в диапазоне 0.6–1.7 ТГц [15], а также лазера на свободных электронах [16]. В настоящий момент уже появились субтерагерцовые гиротроны, работающие с достаточной высокой мощностью как в импульсном, так и в непрерывном режимах [17–19]. Удвоение частоты излучения таких ламп позволит получить узкополосное (несколько МГц) излучение в диапазоне 0.5–1.1 ТГц с возможностью перестройки частоты излучения в пределах 1 ТГц и в перспективе достигнуть частоты в 2–2.5 ТГц. При этом большая мощность излучения накачки позволяет рассчитывать на получение высокой мощности излучения на второй гармонике даже при комнатной температуре. Однако при таком подходе достижимая частота второй гармоники в известной мере ограничена доступным источником на основной частоте.

Кроме умножения частоты, возможны и процессы генерации разностной гармоники, которые применительно к получению терагерцового излучения исследовались во многих работах [20–22]. В отличие от удвоения частоты, в этом случае необходимы два источника с небольшой разницей в длине волны, но частоты этих источников может находиться в достаточно широком диапазоне.

В данной работе рассматривается возможность нелинейных преобразований частоты в кристаллах фосфида индия, легированных железом (InP:Fe) для получения терагерцового излучения. Интерес к данному материалу мотивирован тем, что в последние годы стали доступны кристаллы InP:Fe с малой величиной диэлектрических потерь в ТГц-области. В недавних работах [23,24] бы-

ло показано, что тангенс диэлектрических потерь в InP:Fe составляет $\sim 5 \cdot 10^{-4}$, что сравнимо с лучшими образцами GaAs [24]. В то же время коэффициент нелинейности второго порядка в суб-ТГц области в InP практически в 6 раз выше, чем у арсенида галлия. Далее представлены экспериментальные результаты по генерации второй гармоники излучения гиротрона в InP:Fe в квазинепрерывном режиме, а также расчеты достижимой мощности излучения на разностной частоте при смешивании излучения двух источников среднего ИК диапазона в InP:Fe.

2. Получение второй гармоники в кристаллах InP:Fe

В данной работе была исследована возможность удвоения частоты излучения гиротрона, работающего на основной циклотронной гармонике, с частотой генерации 0.263 ТГц [18]. Схема эксперимента представлена на рис. 1.

Для измерения спектров излучения использовалась техника синхронного детектирования. Излучение гиротрона фокусировалось рупором с размером 8×3 мм на образец. Модуляция излучения осуществлялась облучателем, размещенным между выходом рупора и образцом. После выхода из образца излучение попадало в сверхразмерный волновод диаметром 18 мм через перфорированное зеркало-фильтр. Зеркало содержит массив критических отверстий диаметром 0.4 мм, отсекающих излучение на основной гармонике 263 ГГц и пропускающих излучение на удвоенной частоте 526 ГГц. На конце волновода, сопряженного с транспортным сосудом Дьюара СТГ-40, располагался фотоэлектрический приемник на основе HgCdTe, погруженный в жидкий гелий. Перед приемником располагался сверхпроводящий магнит, позволяющий получить магнитное поле до 3 Тл при охлаждении до 4.2 К. В качестве режекторного фильтра внутри магнита располагалась структура с квантовой ямой HgTe/Cd_{0.65}Hg_{0.35}Te шириной 20 нм, выращенная методом молекулярно-лучевой эпитаксии на подложке из GaAs и легированная индием до концентрации

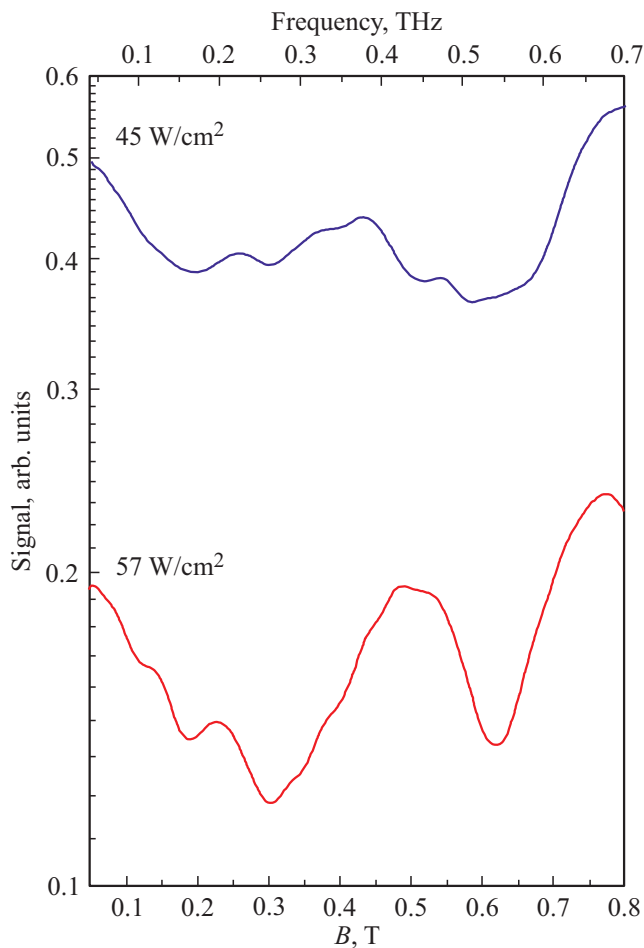


Рис. 2. Спектры магнитопротускания структуры с КЯ на основе HgCdTe, отражающие спектральный состав излучения на выходе из кристалла InP:Fe при различных мощностях падающего излучения на основной частоте.

$\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ в барьерах. Из-за малых эффективных масс электронов в данной структуре, циклотронный резонанс (ЦР) на частотах 0.263 ТГц наблюдается в относительно небольших магнитных полях ~ 0.3 и 0.6 Тл соответственно. При достижении поля, соответствующего ЦР, пропускание структуры резко уменьшается, что приводит к уменьшению сигнала на приемнике и позволяет выполнить экспресс-анализ спектрального состава излучения.

Были исследованы кристаллы с длиной от 0.5 до 2 см. Наилучшие результаты были получены при длине кристалла 2 см. На спектрах ЦР (рис. 2), полученных с использованием излучения из этого образца, видны линии, соответствующие как излучению второй гармоники, так и излучению на основной частоте. Величина подавления излучения на основной частоте перфорированным зеркалом-фильтром составляет 60 дБ. Так как эффективность преобразования в данном эксперименте можно оценить как $(3-5) \cdot 10^{-7}$, мощность излучения, падающего на приемник после фильтра на основной и удвоенной частоте, была сравнимой.

Дальнейшее увеличение падающей на образец мощности излучения не привело к существенному улучшению отношения между интенсивностью излучения на основной и удвоенной частоте, что связывается с разогревом образца при работе в описанном квазинепрерывном режиме работы (скважность модуляции изменялась обтуратором в диапазоне 2–10, однако длительность одного импульса „засветки“ в любом случае была не менее 1 мс). Для получения более высокой эффективности преобразования требуется увеличить интенсивность излучения на основной частоте и при этом избежать разогрева образца за время импульса. Фокусировка излучения и уменьшение времени импульса для излучения гиротрона возможны, однако представляют достаточно сложную техническую задачу [25]. Поэтому интересно рассмотреть возможность генерации ТГц-излучения при накачке структуры импульсами более коротковолнового (оптического) излучения с длительностью ~ 10 нс, что легко достижимо в лазерах с модуляцией добротности.

3. Генерация разностной гармоники

Кроме процесса удвоения частоты, терагерцовое излучение в InP:Fe может быть получено при генерации разностной частоты за счет нелинейного „смешивания“ излучения двух источников среднего ИК диапазона с близкими длинами волн. В качестве таких источников можно рассмотреть CO₂-лазер (с рабочей длиной волны 10.6 мкм) и параметрический генератор света (например, лазерный комплекс Solar OPO с рабочей длиной волны, перестраиваемой в диапазоне от 11 до 17 мкм).

Расчет коэффициента нелинейности второго порядка в зависимости от частоты разностной гармоники при фиксированной частоте ω_1 показывает, что его величина составляет $\sim 3.4 \cdot 10^{-8} \text{ см/В}$ для энергий кванта < 10 мэВ. Это значение близко к величине коэффициента нелинейности второго порядка, соответствующего процессу удвоения частоты, описанному выше. Как и в случае удвоения частоты, оптимальной является конфигурация эксперимента, при которой вектора электрического поля в обеих волнах ориентированы в плоскости (100). Волна на разностной частоте при этом поляризована ортогонально, т.е. вектор электрического поля направлен вдоль оси [100]. Тем не менее в отличие от случая удвоения частоты, излучение на разностной частоте распространяется под значительным углом к направлению распространения излучения среднего ИК диапазона (рис. 3)

Оценку мощности излучения на разностной частоте в системе СИ можно выполнить, воспользовавшись выражением из работы [22]:

$$W(\omega = \omega_2 - \omega_1) = \frac{\omega^2 |\chi^{(2)}|^2 W(\omega_1) W(\omega_2) L_{\text{coh}}^2}{8 \epsilon_0 c^3 n(\omega_1) n(\omega_2) n(\omega) S_{\text{eff}}}$$

Здесь $W(\omega_1)$ и $W(\omega_2)$ — мощности источников накачки, $n(\omega)$ — показатель преломления на соответствующей частоте, ϵ_0 — диэлектрическая постоянная,

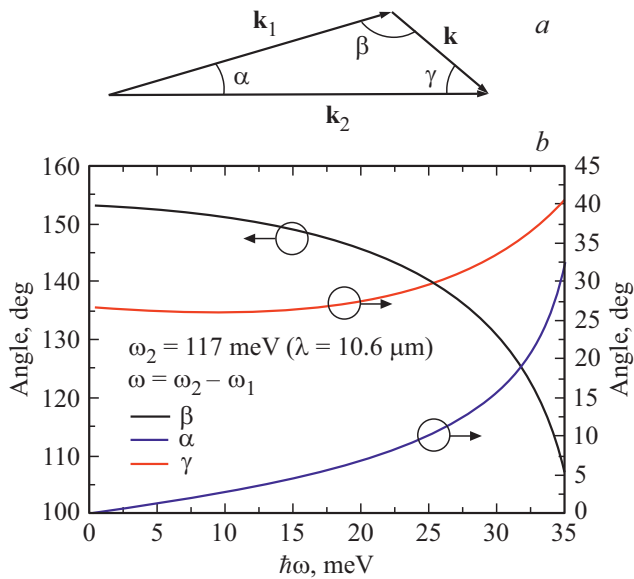


Рис. 3. *a* — схематическое изображение волновых векторов при генерации разностной гармоники; *b* — зависимость углов между направлениями волновых векторов от энергии кванта разностной гармоники.

c — скорость света в вакууме, S_{eff} — эффективная площадь взаимодействия, а L_{coh} — длина когерентности. В качестве первого приближения для S_{eff} можно взять площадь пучка накачки, а величина L_{coh} зависит от энергии кванта разностной гармоники. Для энергии кванта $< 15 \text{ мэВ}$ длина когерентности определяется неколлинеарностью пучков: $L_{\text{coh}} \sim \frac{L}{\sin(\gamma)} \sim \frac{L}{\sin(30^\circ)} = 2L$, где L — характерная ширина пучка накачки. При больших энергиях кванта разностной частоты фоновое поглощение в кристалле становится определяющим фактором [23] и длину когерентности можно оценить как $L_{\text{coh}} \sim \frac{2}{\alpha}$, где α в см^{-1} — коэффициент поглощения на разностной частоте.

При реалистичных мощностях источников среднего ИК диапазона (10^4 Вт для ПГС и 10^5 Вт для CO_2 лазера) расчет дает $\sim 300 \text{ мВт}$ для мощности разностной гармоники на частоте 1 ТГц, что сравнимо с достижимыми мощностями за счет процессов удвоения (ширина пучка L принималась равной 5 мм, а площадь взаимодействия $S_{\text{eff}} = 2.5 \text{ мм}^2$ для случая фокусировки пучков в пластину InP:Fe толщиной $\sim 500 \text{ мкм}$). Тем не менее из рис. 3 видно, что угол выхода излучения на разностной частоте внутри кристалла $\gamma \sim 30^\circ$, что значительно больше угла полного внутреннего отражения ($\phi \sim 16^\circ$). Таким образом, необходимо отдельно решить задачу об эффективном выводе излучения из кристалла (например, обеспечить сопряжение с призмой с близким углом).

4. Заключение

В работе экспериментально получена генерация второй гармоники излучения гиротрона с рабочей частотой

той 263 ГГц за счет решеточной нелинейности второго порядка в кристаллах фосфида индия, легированного железом. С помощью измерений спектров ЦР структуры с квантовой ямой на основе HgCdTe было продемонстрировано, что подобный источник суб-ТГц излучения (на второй гармонике) может быть использован для магнитоспектроскопии полупроводниковых наноструктур. Тем не менее, несмотря на малый тангенс диэлектрических потерь, разогрев оказывает существенное негативное влияние на эффективность преобразования в непрерывном режиме. Для повышения мощности излучения на второй гармонике следует использовать импульсный режим генерации с большой скважностью. Одним из вариантов такого режима является генерация разностной частоты при возбуждении двумя источниками среднего ИК диапазона с близкой длиной волны и наносекундной длительностью импульса. Расчет мощности излучения для случая длин волн источников $\sim 10 \text{ мкм}$, показывает, что в данном процессе достижимы мощности излучения на уровне сотен мВт на частоте вблизи 1 ТГц.

Финансирование работы

Работа поддержана грантом Российского научного фонда № 18-79-10112.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] N. Dudovich, D. Oron, Y. Silberberg. *Nature*, **418** (6897), 512 (2002).
- [2] S.W. Smye, J.M. Chamberlain, A.J. Fitzgerald, E. Berry. *Phys. Med. Biol.*, **46** (9), R101-12 (2001).
- [3] B.E. Cole, J.B. Williams, B.T. King, M.S. Sherwin, C.R. Stanley. *Nature*, **410** (6824), 60 (2001).
- [4] X. Xu, Y. Wei, F. Shen, H. Yin, J. Xu, Y. Gong, W. Wang. *Phys. Plasmas*, **19** (1), 013113 (2012).
- [5] B.S. Williams. *Nature Photonics*, **1** (9), 517 (2007).
- [6] S. Ganichev, W. Prettl. *Intense Terahertz Excitation of Semiconductors* (Oxford University Press, 2005).
- [7] R.A. Lewis. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **47** (37), 374001 (2014).
- [8] S. Vidal, J. Degert, M. Tondusson, E. Freysz, J. Oberlé. *J. Opt. Soc. Amer. B*, **31** (1), 149 (2014).
- [9] T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, K. Saito, T. Kimura. *Appl. Phys. Lett.*, **83** (2), 237 (2003).
- [10] S.B. Bodrov, A.A. Murzanev, Y.A. Sergeev, Y.A. Malkov, A.N. Stepanov. *Appl. Phys. Lett.*, **103** (25), 251103 (2013).
- [11] S.W. Huang, E. Granados, W.R. Huang, K.H. Hong, L.E. Zapata, F.X. Kartner. *Optics Lett.*, **38** (5), 796 (2013).
- [12] M. Urban, C. Nieswand, M.R. Siegrist, F. Keilmann. *J. Appl. Phys.*, **77** (3), 981 (1995).
- [13] F. Keilmann, R. Brazis, H. Barkley, W. Kasperek, M. Thumm, V. Ereckmann. *Europhys. Lett.*, **11** (4), 337 (1990).
- [14] R. Narkowicz, M.R. Siegrist, P. Moreau, J.P. Hogge, R. Raguotis, R. Brazis. *Acta Phys. Polon. A*, **119** (4), 509 (2011).

- [15] A. Mayer, F. Keilmann. *Phys. Rev. B*, **33** (10), 6954 (1986).
- [16] T. Dekorsy, V.A. Yakovlev, W. Seidel, M. Helm, F. Keilmann. *Phys. Rev. Lett.*, **90** (5), 055508 (2003).
- [17] T. Idehara, K. Kosuga, L. Agusu, R. Ikeda, I. Ogawa, T. Saito, Y. Matsuki, K. Ueda, T. Fujiwara. *J. Infrared Millim. Terahertz Waves*, **31** (7), 775 (2010).
- [18] M.Y. Glyavin, A.V. Chirkov, G.G. Denisov, A.P. Fokin, V.V. Kholoptsev, A.N. Kuftin, A.G. Luchinin, G.Y. Golubiatnikov, V.I. Malygin, M.V. Morozkin, V.N. Manuilov, M.D. Proyavin, A.S. Sedov, E.V. Sokolov, E.M. Tai, A.I. Tsvetkov, V.E. Zapevalov. *Rev. Sci. Instrum.*, **86** (5), 054705 (2015).
- [19] S.K. Jawla, R.G. Griffin, I.A. Mastovsky, M.A. Shapiro, R.J. Temkin. *IEEE Trans Electron Dev.*, **67** (1), 328 (2020).
- [20] Q.Y. Lu, S. Slivken, N. Bandyopadhyay, Y. Bai, M. Razeghi. *Appl. Phys. Lett.*, **105** (20), 201102 (2014).
- [21] J. Huang, Z. Huang, J. Tong, C. Ouyang, J. Chu, Y. Andreev, K. Kokh, G. Lanski, A. Shaiduko. *Appl. Phys. Lett.*, **103** (8), 081104 (2013).
- [22] M.A. Belkin, F. Capasso, A. Belyanin, D.L. Sivco, A.Y. Cho, D.C. Oakley, C.J. Vineis, G.W. Turner. *Nature Photonics*, **1** (5), 288 (2007).
- [23] L.N. Alyabyeva, E.S. Zhukova, M.A. Belkin, B.P. Gorshunov. *Sci. Rep.*, **7** (1), 7360 (2017).
- [24] К.В. Маремьянин, В.В. Паршин, Е.А. Серов, В.В. Румянцев, К.Е. Кудрявцев, А.А. Дубинов, А.П. Фокин, С.С. Морозов, В.Я. Алешкин, М.Ю. Глявин, Г.Г. Денисов, С.В. Морозов. *ФТП*, **54** (9), 878 (2020).
- [25] В.В. Румянцев, К.В. Маремьянин, А.П. Фокин, А.А. Дубинов, В.В. Уточкин, М.Ю. Глявин, Н.Н. Михайлов, С.А. Дворецкий, С.В. Морозов, В.И. Гавриленко. *ФТП*, **53** (9), 1244 (2019).
- [26] A.V. Vodopyanov, A.V. Samokhin, N.V. Alexeev, M.A. Sinayskiy, A.I. Tsvetkov, M.Y. Glyavin, A.P. Fokin, V.I. Malygin. *Vacuum*, **145**, 340 (2017).
- [27] В.В. Румянцев, С.В. Морозов, К.Е. Кудрявцев, В.И. Гавриленко, Д.В. Козлов. *ФТП*, **46** (11), 1414 (2012).
- [28] V.V. Romyantsev, A.A. Dubinov, A.P. Fokin, V.V. Utochkin, M.Y. Glyavin, S.V. Morozov. *EPJ Web. Conf.*, **195**, 02010 (2018).

Редактор А.Н. Смирнов

Generation of terahertz radiation in InP:Fe crystals due to second order lattice nonlinearity

V.V. Romyantsev¹, K.V. Maremyanin¹, A.P. Fokin², A.A. Dubinov¹, A.A. Razova¹, N.N. Mikhailov³, S.A. Dvoretzky³, M.Yu. Glyavin², V.I. Gavrilenko¹, S.V. Morozov¹

¹ Institute for Physics of Microstructures, Russian Academy of Sciences, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

² Institute of Applied Physics, Russian Academy of Sciences, 603950 Nizhny Novgorod, Russia

³ Institute for Semiconductor Physics, Siberian Branch of Russian Academy of Sciences, 630090 Novosibirsk, Russia

Abstract In this paper, we experimentally demonstrate the generation of the second harmonic radiation of the gyrotron with an operating frequency of 263 GHz due to the second order lattice nonlinearity in indium phosphide crystals doped with ferrum. It is shown that the second harmonic radiation can be used for magnetospectroscopy of semiconductor nanostructures. We discuss the possibility of generating a difference frequency in these crystals when excited by two sources of the mid-IR range with a close wavelength.

Продолжение публикации материалов Симпозиума см. в No 10.