

## Фотонные кристаллы и брэгговские решетки для излучателей среднего инфракрасного и терагерцового диапазонов спектра

© А.А. Усикова<sup>¶</sup>, Н.Д. Ильинская, Б.А. Матвеев, Т.В. Шубина, П.С. Копьёв

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Получена 22 апреля 2013 г. Принята к печати 30 апреля 2013 г.)

Сообщается о способе создания двумерных периодических структур методом контактной оптической фотолитографии с использованием технологии инвертирования изображения. Рассмотрены оптические свойства полученных фотонных кристаллов и брэгговских решеток для излучателей среднего инфракрасного и терагерцового диапазонов спектра. Показана возможность увеличения интегральной мощности излучения светодиодов среднего инфракрасного диапазона. Определены требования к решеткам для вывода терагерцового излучения, обусловленного поверхностными плазмонами, возбуждаемыми в слоях узкозонных вырожденных полупроводников, обладающих аккумуляционным слоем.

Одним из направлений исследований в области нанопотоники и оптоэлектроники является обеспечение эффективного вывода излучения. Создание двумерной (2D) периодической структуры на границе раздела полупроводник/воздух позволяет преодолеть ограничения по выводу излучения, связанные с полным внутренним отражением, и повысить эффективность излучателя за счет концентрации света в модах, способных покинуть полупроводник. Такие структуры выполняются в виде брэгговских решеток или двумерных фотонных кристаллов (ФК). В светодиодах (СД) и светодиодных линейках среднего инфракрасного (ИК) диапазона спектра с высоким фактором заполнения применение ФК для увеличения вывода излучения представляется особенно актуальным, так как они выполняются на основе полупроводниковых соединений с высоким показателем преломления ( $n \approx 4$ ) и соответственно малым допустимым углом вывода излучения. В подобных структурах основная доля испускаемого дипольного излучения испытывает полное внутреннее отражение [1]. Увеличение интенсивности излучения важно для ряда практических применений, например, это необходимо в миниатюрных спектрометрических модулях, предназначенных для регистрации спектров пропускания. До настоящего времени ФК не использовались в СД среднего ИК диапазона (3–5 мкм), важного для спектроскопии многих газов, имеющих в этой области основные полосы поглощения.

На поверхности слоев узкозонных вырожденных полупроводников (InAs, InSb, InN), имеющих поверхностный слой, аккумулирующий электроны, возможно термическое возбуждение плазмон-поляритонов при пропускании импульсов тока. Периодическая 2D структура в принципе позволяет эффективно преобразовать плазменные волны в электромагнитное излучение с характерными частотами в терагерцовом (ТГц) диапазоне [2]. В настоящее время на слоях InN получено излучение 2–6 ТГц, связанное с взаимодействием поверхностных плазмонов со случайной решеткой, образованной структурными неоднородностями, возникающими в процессе

роста. Для получения излучения на заданной частоте необходимо использовать специально сформированные брэгговские элементы с заданными параметрами.

Нами была разработана и оптимизирована технология изготовления периодических 2D структур на поверхности InAs в СД для среднего ИК диапазона спектра и в слоях InN для ТГц диапазона. Также были исследованы их оптические свойства. Для среднего ИК диапазона характеристические размеры таких периодических элементов составляют  $\sim (1-2)$  мкм с периодом  $\sim 3$  мкм. Размеры для ТГц диапазона при плазмонном механизме излучения имеют тот же порядок величины. Таким образом, их можно создавать при помощи широко используемой контактной оптической фотолитографии. Развитие данного метода с применением технологии инвертирования изображения фоторезиста позволяет воспроизводимо создавать периодические элементы малого размера на большой площади. Процесс инвертирования изображения основан на термической обработке позитивного фоторезиста в среде аммиака, в результате которого образуется компонент, позволяющий за счет своей меньшей растворимости увеличить разрешающую способность стандартной оптической фотолитографии.

Инвертирование рисунка фоторезиста осуществляется в 4 стадии: экспонирование пленки фоторезиста через шаблон, обработка фоторезиста в среде аммиака при повышенной температуре, сплошное экспонирование по полю и проявление. При экспонировании участков пленки фоторезиста через шаблон светочувствительный компонент нафтохинондиазид (НХД) в засвеченных областях превращается в инденкарбоную кислоту, которая растворяется в щелочных растворах. После экспонирования образец подвергается термической обработке в среде аммиака. В этом процессе инденкарбонвая кислота вступает в реакцию с молекулами аммиака и превращается в инден, который является ингибитором растворения в водных щелочных проявителях. Следующим этапом является сплошное экспонирование (по полю, без шаблона) всей пленки фоторезиста, при этом НХД в неэкспонированных до этого областях превращается в инденкарбоную кислоту. Таким образом,

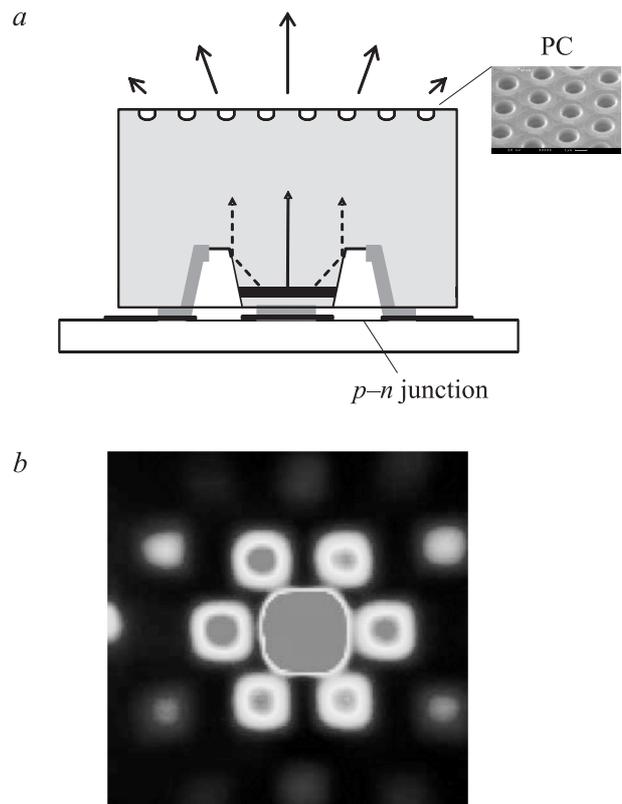
<sup>¶</sup> E-mail: usikova@mail.ioffe.ru

при последующем проявлении в слабом щелочном растворе области, подвергнутые предварительно экспонированию через шаблон, не изменяются, а подвергнутые экспонированию по полю проявляются, и изображение инвертируется, или „переворачивается“. Поскольку коэффициент растворимости НХД составляет  $\sim 0.11 \text{ nm}^{-1}$ , а коэффициент растворимости индена  $\sim 0.01 \text{ nm}^{-1}$ , т.е. значительно меньше, последний имеет более высокую стойкость к процессу проявления, что обеспечивает резкие границы рисунка и его высокую однородность по площади. Это позволяет значительно повысить разрешающую способность процесса фотолитографии и воспроизводимо создавать рисунки  $\sim 1 \text{ мкм}$ .

Данный метод допускает использование фоторезистов разных марок с разной толщиной и чувствительностью, что делает возможным гибко менять параметры маски в зависимости от последующих технологических операций. Следует подчеркнуть, что создание рисунка этим методом возможно в толстых слоях фоторезиста. Достаточная толщина (и соответственно стабильность) является необходимым условием проведения процесса фотолитографии в слоях на глубину, сопоставимую с периодом 2D структуры. Варьирование параметров процесса „переворачивания“ (температура и время обработки в среде аммиака, дозы экспонирования через шаблон и по полю, время и концентрация проявителя) позволяет контролируемо изменять угол наклона боковой стенки маски фоторезиста и получать ровные границы.

Перенос полученного изображения в подложку осуществляется методом ионно-лучевого травления. Специальная предварительная подготовка маски фоторезиста, подбор режимов травления и удаление продуктов пересадки позволяют создавать качественный рельеф заданной конфигурации.

Применительно к СД средней ИК области спектра были рассмотрены два вида периодических структур: гексагонально упакованные глухие отверстия и столбики. Исследовались оптические свойства тестовых структур, сформированных на подложке InAs, и созданных на их основе прототипов СД с оптической накачкой [3]. Наилучшие результаты были достигнуты для периодической структуры, сформированной из гексагонально упакованных отверстий. Наблюдалось двукратное увеличение эффективности тестовых светодиодных структур, достигнутое за счет взаимодействия излучения с ФК (характерный размер элементов  $2 \text{ мкм}$ , период  $3 \text{ мкм}$ ). Влияние ФК на оптические характеристики СД с электрической накачкой исследовались на примере впервые созданных диодных однорядных линеек  $1 \times 4$  на основе гетероструктур InGaAsSb/InAsSbP с индивидуальной адресацией, излучающих на длине волны  $\lambda = 3.6\text{--}3.7 \text{ мкм}$  [1]. Отдельный диод схематически представлен на рис. 1, *a*. Структура такой линейки состоит из широкозонного контактного слоя  $p\text{-InAsSbP}$  (ширина запрещенной зоны при  $300 \text{ K}$   $E_g \approx 420 \text{ мэВ}$ ) и активной области из  $n\text{-InGaAsSb}$  ( $5 \text{ мкм}$ ), выращенных методом жидкофазной эпитаксии на подложке  $n^+\text{-InAs}$



**Рис. 1.** Схематическое изображение СД с ФК (ПК) на выводящей свет поверхности (*a*) и ИК изображение СД в ближнем поле (*b*).

(концентрация  $n \sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) толщиной  $\sim 300 \text{ нм}$ . Размер активной области (мезы) составил  $70 \times 70 \text{ мкм}$ ; коэффициент отражения анодного контакта размером  $40 \times 40 \text{ мкм}$  и  $U$ -образного катодного контакта составил  $R = 0.6$ , монтаж структуры осуществлялся по методу „flip-chip“. Вывод излучения происходил через подложку (при этом излучение частично поглощалось подложкой).

Взаимодействие излучения с ФК подтверждается цифровыми ИК изображениями излучающей поверхности  $n^+\text{-InAs}$  СД в ближнем поле, где наблюдаются дополнительные реплики первичного изображения в виде 1-го, 2-го и слабого 3-го порядков дифракции, воспроизводящих гексагональную „упаковку“ решетки (рис. 1, *b*). Наблюдалось также увеличение эффективной излучающей площади и интегральной мощности излучения благодаря выводу излучения, падающего на границу раздела полупроводник/воздух под углами, большими угла полного внутреннего отражения. Улучшение результатов можно ожидать при оптимизации конструкции СД.

Была исследована также возможность создания периодических структур на поверхности слоев In-содержащих вырожденных полупроводников для вывода ТГц излучения, связанного с поверхностными плазмон-поляритонами. Волновой вектор поверхностных плазмонов всегда больше волнового вектора света. Формируемая брэгговская решетка должна скомпенсировать эту

разницу. Исследования проводились с использованием слоев InN, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Как правило, слои InN обладают рядом структурных несовершенств, таких как наноклонны, канавки и поры между ними, микровключения In. Измерения показали, что интенсивность излучения сильно зависит от степени периодичности таких спонтанно сформированных несовершенств [2]. Интегральная ТГц электролюминесценция из образца, обладающего максимальной степенью периодичности, была на порядок больше, чем из других слоев InN, обладающих лучшими электрофизическими параметрами. Исследования мощностных характеристик показали отсутствие насыщения, характерного для других механизмов излучения. Спектр электролюминесценции (ЭЛ) характеризовался хорошим совпадением пиков излучения с расчетными частотами, соответствующими волновым векторам случайной решетки [4]. В совокупности это подтверждает, что природа ТГц излучения связана с поверхностными плазмонами.

Для выбора геометрических параметров решетки был выполнен расчет дисперсионных кривых с использованием 3-слойной модели, в которой рассматривается металлоподобный слой конечной толщины (аккумуляционный слой), расположенной между воздухом и основным слоем InN, лежащим на сапфировой подложке [2]. Комплексная диэлектрическая функция металлоподобного аккумуляционного слоя с концентрацией носителей  $\sim 10^{19} \text{ см}^{-3}$  описывалась моделью Друде. При моделировании использовались электрофизические параметры InN, определенные из холловских измерений. Толщина аккумуляционного слоя полагалась равной 5–30 нм, что согласуется с оценками этого параметра, полученными другими методами [5]. Расчет показал, что при взаимодействии с решеткой со средним периодом  $\sim 1 \text{ мкм}$  возможно излучение в области чувствительности широко используемых Ge-детекторов. Дисперсионные кривые, соответствующие толщинам аккумуляционного слоя, при этом сильно отклоняются от светового конуса, что и обеспечивает излучение в нужной области (рис. 2). Отметим, что излучение из слоя толщиной  $\sim 1 \text{ мкм}$  (основной слой) было бы более коротковолновым, так как дисперсионные кривые приближаются к световому конусу.

Для формирования решеток была также применена технология инвертирования изображения. Образец полученной периодической структуры приведен на рис. 3. На структуре наблюдалась ЭЛ в диапазоне 2–5 ТГц. Однако интенсивность интегрального излучения была ниже, чем в случае случайной решетки, описанной в [2,4]. Отчасти это связано с тем, что вывод излучения осуществляется преимущественно в узкой полосе частот, соответствующей строго выдерживаемому периоду решетки. Следует отметить, что брэгговские решетки преобразуют в излучение не все возможные плазмонные состояния, а только те, которые имеют волновые вектора, соответствующие брэгговскому условию  $q \approx \pm 2\pi t/a$ . При идеально выполненной брэгговской

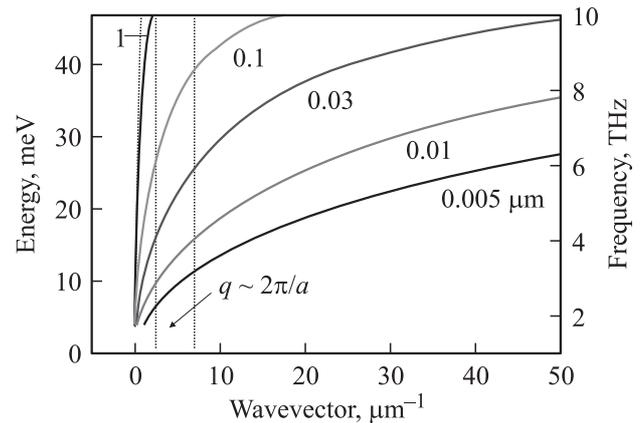


Рис. 2. Дисперсия поверхностных плазмонов в слоях вырожденного полупроводника разной толщины. Вертикальные линии ограничивают область, где вывод ТГц излучения может быть осуществлен с помощью специально сформированных периодических решеток.

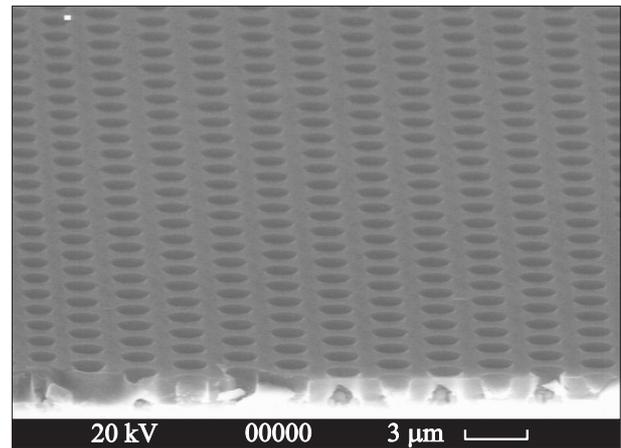


Рис. 3. Периодическая структура в слое InN, созданная с использованием технологии инвертирования изображения фоторезиста и метода ионно-лучевого травления.

решетке интенсивность (амплитуда) пика излучения будет высока, однако его ширина мала (излучение пропадает, как только мы выходим за границы выполнения брэгговского условия). В результате измеряемая интегральная интенсивность узкополосного излучения получается меньше, чем для случайной решетки. Таким образом, использование регулярной решетки приводит к снижению интегральной интенсивности излучения по сравнению со случайной решеткой при условии, что ее набор волновых векторов соответствует спектральному диапазону используемого детектора. По-видимому, узость полосы излучения определяет недавний интерес к решеткам в излучателях и детекторах со сложным, двойным и более, периодом [6,7]. Этот подход является попыткой имитации случайной решетки, перекрывающей более широкую полосу. Тем не менее полученные результаты могут быть использованы для создания реше-

ток (с одним или двумя периодами) на слоях InAs, InSb, имеющих поверхностный слой, аккумулирующий электроны. Крайне низкая плотность дефектов в таких слоях исключает вывод излучения посредством случайной решетки, тогда как высокая подвижность носителей может способствовать поддержанию устойчивых плазмонных возбуждений. Применение специально сформированных периодических структур для этих слоев оправданно.

В результате исследований показано увеличение эффективности СД средней ИК области спектра при использовании ФК на световыводящей поверхности. Показана возможность создания периодической структуры для вывода излучения с характерными частотами в ТГц диапазоне, обусловленного поверхностными плазмонами.

Авторы выражают благодарность Ю.М. Задиранову и М.А. Ремённому за помощь при изготовлении образцов и обсуждение результатов.

## Список литературы

- [1] B.A. Matveev, Yu.M. Zadiranov, A.L. Zakheim, N.D. Il'inskaya, S.A. Karandashev, M.A. Remennyi, N.M. Stus', A.A. Usikova, A.E. Chernyakov. Proc. SPIE, **7609** (1), 76090I-1 (2010).
- [2] T.V. Shubina, A.V. Andrianov, A.O. Zakhar'in, V.N. Jmerik, I.P. Soshnikov, T.A. Komissarova, A.A. Usikova, P.S. Kop'ev, S.V. Ivanov, V.A. Shalygin, A.N. Sofronov, D.A. Firsov, L.E. Vorob'ev, N.A. Gippius, J. Leymarie, X. Wang, A. Yoshikawa. Appl. Phys. Lett., **96**, 183 106 (2010).
- [3] Ю.М. Задиранов, Н.В. Зотова, Н.Д. Ильинская, С.А. Карандашев, Б.А. Матвеев, М.А. Ременный, Н.М. Стусь, А.А. Усикова. Письма ЖТФ, **34** (10), 405 (2008).
- [4] T.V. Shubina, N.A. Gippius, V.A. Shalygin, A.V. Andrianov, S.V. Ivanov. Phys. Rev. B, **83**, 165 312 (2011).
- [5] I. Mahboob, T.D. Veal, C.F. McConville, H. Lu, W.J. Schaff. Phys. Rev. Lett., **92**, 036 804 (2004).
- [6] Y.M. Meziani, H. Handa, W. Knap, T. Otsuji, E. Sano, V.V. Popov, G.M. Tsymbalov, D. Coquillat, F. Terpe. Appl. Phys. Lett., **92**, 201 108 (2008).
- [7] T. Otsuji. PIERS Online, **7** (1), 1 (2011).

Редактор Л.В. Шаронова

## Photonic crystals and Bragg gratings for mid-infrared and terahertz emitters

A.A. Usikova, N.D. Il'inskaya, B.A. Matveev, T.V. Shubina, P.S. Kop'ev

Ioffe Physicotechnical Institute,  
Russian Academy of Sciences,  
194021 St. Petersburg, Russia

**Abstract** The technique of fabrication of two-dimension periodic structures by means of contact optical photolithography with processing image reversal resist is reported. Optical properties of photonic crystals and Bragg gratings for mid-infrared and terahertz emitters are investigated. The possibility of integral radiation power increasing for mid-infrared LED is shown. The mechanism of terahertz emission in narrow-gap degenerate semiconductors with surface accumulation layer is investigated. Parameters of Bragg gratings for terahertz emission caused by surface plasmons in narrow-gap degenerate semiconductors with accumulation layer are estimated.