Плазмонное усиление поля металлическими субволновыми решетками на кремнии в ближнем ИК-диапазоне

А. И. Якимов^{+*1)}, А. А. Блошкин^{+×}, А. В. Двуреченский^{+×}

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

* Томский государственный университет, 634050 Томск, Россия

[×]Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 24 июля 2019 г. После переработки 12 августа 2019 г. Принята к публикации 12 августа 2019 г.

Проведены теоретические исследования процессов усиления электрического поля в плазмонных наноструктурах на основе Si в ближнем ИК-диапазоне. Двумерные квадратные решетки круглых отверстий различного диаметра в золотой пленке выступали в качестве метаповерхностей, позволяющих преобразовать внешнее электромагнитное излучение в поверхностные плазмонные моды на границе Au-Si. Установлено, что засветка наноструктур со стороны подложки Si обеспечивает большее усиление поля по сравнению со случаем фронтального освещения, поскольку в первом случае падающая световая волна достигает границы с золотом, не проходя предварительно через субволновые отверстия, для которых коэффициент пропускания чрезвычайно мал. Величина плазмонного усиления поля, как функция диаметра отверстий решетки, демонстрирует максимум, при котором происходит смена блоховских плазмон-поляритонных волн, распространяющихся вдоль границы Au-Si, локализованными поверхностными плазмонными модами. Обнаружены два типа локализованных плазмонов. Коротковолновый плазмон возбуждается вдоль диагоналей решетки и существует при любых углах падения света на структуру θ . Длинноволновый плазмон возникает только при $\theta \neq 0^{\circ}$ и располагается вдоль ортогональных направлений, параллельных сторонам квадратной решетки. Полученные результаты имеют непосредственное отношение к проблеме создания эффективных кремниевых фотодетекторов с квантовыми точками.

DOI: 10.1134/S0370274X19180085

Введение. Поверхностные плазмоны (ПП) возбуждаются падающей световой волной на границе раздела металл-диэлектрик и представляют собой совместные колебания фотонов и электронной плазмы [1, 2]. Напряженность электрического поля ПП вблизи металлической поверхности намного превышает напряженность поля в возбуждающей плазмоны электромагнитной волне и быстро затухает при удалении от границы раздела на масштабах, много меньше чем длина волны [3]. Если функциональную пленку исследуемого вещества разместить на поверхности плазмонной структуры в области гигантской концентрации локального поля, то взаимодействие света с веществом значительно усиливается. Такой прием позволил получить прорывные результаты в области комбинационного рассеяния света монослойными покрытиями, в области биосенсоров и молекулярной спектроскопии [4-6]. Привлекательной является идея использования явления ло-

кализации электрического поля ПП на субволновых масштабах для повышения квантовой эффективности инфракрасных (ИК) фотодетекторов с тонкими поглощающими слоями. К таким детекторам относятся, в частности, полупроводниковые гетероструктуры с квантовыми точками. Как правило, детекторы имеют вертикальную архитектуру, содержат несколько активных слоев квантовых точек и сильно легированные контактные слои [7]. Толщина гетероструктур составляет величину порядка микрона, и это необходимо разместить внутри волновой зоны ПП, не покинув область локализации плазмона. Плазмонные фотодетекторы на основе гетероструктур InAs/GaAs [8–11] и Ge/Si [12, 13] с квантовыми точками InAs и Ge были успешно реализованы для среднего ИК-диапазона (3-5 и 8-12 мкм), в котором глубина проникновения поля ПП в GaAs и Si как раз составляет величину от 1 до 2 мкм. При оптимизации гетероструктур удалось получить усиление фототока до 30 раз на длине волны $\lambda = 5.6$ мкм [12] и до 40 раз на длине волны $\lambda = 7.6$ мкм [10]. Природа фото-

¹⁾e-mail: yakimov@isp.nsc.ru

тока связана с внутризонными дипольными переходами носителей заряда между уровнями размерного квантования.

Фотодетекторы на основе pin-диодов Ge/Si с квантовыми точками Ge способны регистрировать оптическое излучение и в ближнем ИК-диапазоне (1.3–1.55 мкм) [14–17] – в области, актуальной для волоконно-оптических линий связи. Схематичное изображение такого детектора приведено на рис. 1а. Возникновение фототока обусловлено межзонными



Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Схематический разрез pin-диода с квантовыми точками Ge в матрице Si. (b) – Изображения фрагмента профиля зонной диаграммы гетероструктуры Ge/Si с квантовыми точками Ge и возможные межзонные электронные переходы, приводящие к возникновению фототока в ближнем ИК-диапазоне. (c) – Схематическое изображение объекта моделирования, представляющего собой двумерную периодическую решетку субволновых отверстий в золотой пленке на поверхности Si

переходами электронов из дискретных состояний валентной зоны Ge в зону проводимости Si (рис. 1b). Такие переходы являются непрямыми не только в пространстве волновых векторов, но и в реальном геометрическом пространстве, что приводит к чрезвычайно низкой эффективности фотопреобразования. Глубина затухания поля поверхностной плазмонной волны вглубь полупроводника определяется выражением [3]

$$\delta = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{\frac{\varepsilon_m' + \varepsilon_d}{\varepsilon_d^2}},\tag{1}$$

где $\varepsilon'_m(\lambda)$ – реальная часть диэлектрической функции металла, $\varepsilon_d(\lambda)$ – диэлектрическая проницаемость полупроводника. С уменьшением длины вол-

ны уменьшается также и величина $\varepsilon'_m(\lambda)$. В результате поле плазмонного возбуждения прижимается к границе металл-полупроводник, и возникает вопрос о возможности плазмонного усиления фототока в области коротких длин волн. В настоящей работе ставится задача теоретического анализа фактора усиления интенсивности ближнего поля в ближней ИК-области спектра излучения в слоях Si, сопряженных с регулярными решетками субволновых апертур в золотой пленке.

Модель и метод расчета. Моделируемая структура представляет собой квадратную решетку круглых наноотверстий в пленке Au, расположенной на поверхности кристалла Si (рис. 1с). В расчетах пренебрегалось наличием в полупроводниковой матрице квантовых точек Ge, поскольку, во-первых, диэлектрические функции Si и Ge близки друг к другу, и, во-вторых, количество Ge, осаждаемое для получения слоя квантовых точек по механизму Странского-Крастанова (~1 нм), намного меньше типичной толщины спейсеров Si (>10 нм) [7]. Период субволновой решетки был выбран равным a = 300 нм, потому как при таком периоде длина волны фундаментальной плазмонной моды, возбуждаемой на границе Si-Au, составляет ~ 1.25 мкм и находится в спектральной полосе чуствительности фотодетекторов Ge/Si [18]. Толщина пленки золота t = 50 нм. Из формулы (1) для $\lambda \approx 1.3$ мкм, $\sqrt{arepsilon_d}~=~3.5~[19]$ и $arepsilon_m'~\simeq~67~[20]$ получаем оценку глубины затухания поля ПП $\delta = 150$ нм. Фактор плазмонного усиления интенсивности ближнего поля β определялся как

$$\beta = \frac{\int_V |E|^2 dV}{\int_V |E_0|^2 dV},\tag{2}$$

где $|E| = \sqrt{E_x^2 + E_y^2 + E_z^2}$ – норма электрического поля в структуре с золотой субволновой решеткой, $|E_0|$ – поле в образце без плазмонной решетки. Интегрирование идет по объему, в котором в реальных фотодетекторах располагаются слои с квантовыми точками. На рисунке 1а эта область соответствует суммарной толщине слоя с квантовыми точками и спейсера Si, умноженной на число слоев N. В наших расчетах мы приняли, что активная область толщиной 100 нм расположена на расстоянии 30 нм от границы Si-Au.

Моделирование пространственного распределения электрического поля в наноструктурах было реализовано в программном пакете Comsol Multiphysics методом конечных элементов. Поля вычислялись в элементарной ячейке в форме параллелепипеда с размерами по осям x и y, равными периоду субволновой решетки, и с периодическими граничными условиями типа Флоке (Floquet). В направлении z были использованы граничные условия типа *periodic port*, которые позволяли рассчитывать распределение электрического поля с учетом появления дифракционных мод, отличных от основной. Для исключения нефизических отражений световой волны на верхней и нижней границах домена использовались граничные условия типа *perfect matched layer*. Комплексные диэлектрические функции золота для различных длин волн были взяты из работы [20]. Поляризация падающего излучения выбиралась циркулярной либо линейной с вектором поляризации, направленном вдоль оси x.

Результаты и обсуждение. Спектральные характеристики фактора усиления интенсивности ближнего поля приведены на рис. 2а для диаметра отверстий 150 нм и двух вариантов освещения структуры – со стороны подложки Si (тыльная засветка) и со стороны пленки Au (фронтальная засветка). Для обоих случаев на зависимостях $\beta(\lambda)$ в области длин волн ~ 1.25 мкм наблюдается пик усиления поля с максимальной амплитудой 9.5 для тыльного освещения. С увеличением диаметра отверстий от 50 до 150 нм (= a/2) положение пика сдвигается в длинноволновую область спектра, а затем длина волны резонанса уменьшается (рис. 2b). Длинноволновый сдвиг резонанса сопровождается ростом фактора усиления поля, коротковолновый его уменьшением (рис. 2с). Для всех диаметров отверстий засветка со стороны подложки обеспечивает большее усиление поля по сравнению со случаем фронтального освещения. Так, например, для d = 150 нм эта разница составляет 5.5 раз и увеличивается до 35 для d = 50 нм. Длинноволновое смещение спектрального положения ПП в области малых диаметров отверстий (рис. 2b) связано с интерференцией плазмонных волн в результате брэгговского рассеяния отверстиями решетки и является характерной чертой двумерных плазмонных решеток [21].

Для того, чтобы понять природу обнаруженных закономерностей, нами были изучены электрические поля, возникающие при облучении исследуемых структур светом. Пространственные распределения нормы ближнего поля на резонансных длинах волн λ_{sp} приведены на рис. 3 в вертикальном сечении плоскостью (x, z) для нескольких диаметров отверстий. Наблюдается характерная для ПП картина распределения [22] – сильное связывание электрического поля в Si вблизи границы с металлом



Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Спектральные характеристики фактора усиления интенсивности ближнего поля $\beta(\lambda)$ в случае освещения структуры со стороны подложки Si (кривая 1) и со стороны пленки Au (кривая 2) для диаметра отверстий d = 150 нм. Период субволновой решетки a = 300 нм. Кривая 2 растянута по оси ординат в пять раз. (b) – Зависимость положения максимума фактора усиления поля от диаметра отверстий для засветки структуры со стороны подложки Si (кривая 1) и со стороны Аu (кривая 2). (с) – Зависимость максимальной величины фактора усиления поля от диаметра отверстий для засветки структуры со стороны подложки Si (кривая 1) и со стороны Au (кривая 2). На вставке приведено схематичное изображение поверхности субволновой решетки с отверстиями большого диаметров. Желтым цветом показана пленка Au, белые круги – отверстия в ней

на масштабах, много меньших длины волны. Вне резонанса, при других длинах волн усиления поля не обнаружено. Эти обстоятельства позволяют сделать вывод о возбуждении поверхностной плазмонной моды на границе Si-Au. На рисунке 3 видно, что этот процесс наиболее эффективен при тыльной засветке, поскольку в этом случае падающая световая волна достигает границы с золотом, не проходя предварительно через субволновые отверстия, для которых коэффициент пропускания чрезвычай-



Рис. 3. (Цветной онлайн) Пространственное распределение нормы ближнего поля $|E| = \sqrt{E_x^2 + E_y^2 + E_z^2}$ в плоскости (x, z), проходящей через центр отверстия в пленке Au, для случаев фронтальной (верхняя панель) и тыльной (нижняя панель) засветок плазмонной структуры для диаметров отверстий d = 50, 75, 150, 200 и 225 нм. Длина волны возбуждающего излучения зависит от диаметра отверстий и соответствует положению пика спектральных характеристик фактора усиления интенсивности электрического поля на рис. 2b. Цветовая шкала одинакова для всех панелей. Свет циркулярно поляризован и падает по нормали к поверхности структуры. Поперечное сечение перфорированной золотой пленки показано сплошными белыми линиями. Пунктирными черными линиями обозначена область, внутри которой идет интегрирование в выражении (2)

но мал. По этой же причине поле плазмонной волны растет с увеличением диаметра отверстий при d < 150 нм.

Выражение (1) для глубины затухания поля поверхностной волны справедливо, строго говоря, для гладкой металлической пленки [3] и является лишь приближенным, если в пленке есть субволновые отверстия. В последнем случае появляется зависимость величины δ от коэффициента пропускания отверстий, и, следовательно, от их диаметра. Это явление проиллюстрировано на рис. 3. Видно, что в области малых диаметров δ увеличивается с ростом d и ПП мода проникает глубже в область кристалла, внутри которой идет интегрирование в выражении (2). В результате наблюдается увеличение фактора усиления β при d < 150 нм на рис. 2с.

Поверхностные плазмоны могут быть локализованы в пространстве, а могут распространяться вдоль металлической поверхности в виде блоховских плазмон-поляритонных волн [23]. Длинноволновый сдвиг плазмонного резонанса наблюдался ранее при изучении явления экстраординарного прохождения света (extraordinary optical transmission) через периодические субволновые металлические решетки апертур и был объяснен процессами рассеяния и интереференции блоховских волн на отверстиях плазмонной структуры [21]. Для того, чтобы выяснить характер плазмонных возбуждений при различных размерах отверстий, нами были проанализированы дисперсионные характеристики поверхностных плазмонных мод. Подробно процедура такого анализа описана в работе [13] и состоит она в построении зависимостей энергии плазмонов $E = hc/\lambda_{sp}$ от компоненты волнового вектора падающей волны в плоскости решетки $\mathbf{k}_x = |\mathbf{k}_0| \sin \theta$, где $|\mathbf{k}_0| = 2\pi/\lambda$, θ – угол падения света относительно нормали к плоскости образца. Длиной волны плазмонного резонанса λ_{sp} считалось положение пика фактора усиления ближнего поля. В данной работе мы ограничились случаем ТМ-поляризации, когда вектор поляризации падающего излучения **F** лежит в плоскости (x, z) (см. вставку к рис. 5).

На рисунке 4 показаны зависимости энергии плазмонов от волнового вектора k_x для d = 75и 250 нм. В ТМ-поляризации во всех образцах при $k_x \neq 0$ возникают две плазмонные ветви. В случае отверстий малого диаметра (d = 75 нм) наблюдается типичное дисперсионное поведение, отвечающее возбуждению блоховских плазмон-поляритонных волн с волновыми векторами $k_{sp} = 2\pi/a + k_x$ (кривая 1) и $k_{sp} = 2\pi/a - k_x$ (кривая 2), распространяющихся в противоположных направлениях [13, 24–26]. Аналогичные дисперсионные характеристики были получены для всех структур с $d \leq a/2$. При d > a/2дисперсионные кривые выполаживаются и для самых больших отверстий появляются две бездисперсионные моды (рис. 4), причем длинноволновая мода



Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимости энергии плазмонных возбуждений в области фундаментального поверхностного плазмонного резонанса от компоненты волнового вектора фотонов в плоскости решетки. Кривые 1 и 2 получены для d = 75 нм, 3 и 4 для d = 250 нм

существует, только когда $k_x \neq 0$ (кривая 4). Отсутствие зависимости или слабая зависимость энергии ПП от волнового вектора падающего на решетку излучения является характерным признаком локализованного плазмонного возбуждения [27–29]. Обычно локализованные ПП формируются изолированными металлическими наночастицами субволнового разме-



Рис. 5. (Цветной онлайн) (а) – Спектральные характеристики фактора усиления интенсивности ближнего поля $\beta(\lambda)$ для d = 75 нм (кривая 1) и d = 250 нм (кривая 2) при $\theta = 30^{\circ}$. На вставке показана геометрия падения и направление вектора поляризации излучения **F** для TM-поляризации. (b), (c) – Распределение нормы ближнего поля в плоскости (x, y) в Si на расстоянии 10 нм от границы с пленкой Au для d = 75 нм и $\theta = 30^{\circ}$ на резонансных длинах волн $\lambda_{sp} = 1.07$ мкм (b) и 1.29 мкм (c). (d), (e) – Распределение нормы ближнего поля в плоскости (x, y) в Si на расстоянии 10 нм от границы с пленкой Au для d = 250 нм
и $\theta = 30^{\circ}$ на резонансных длинах волн $\lambda_{sp} = 1.19$ мкм (d) и 1.39 мкм (е). Свет падает на структуру с тыльной стороны, волновой вектор $\mathbf{k}_x = |\mathbf{k}_0| \sin \theta$ направлен справа налево. Границы отверстий в золотой пленке нарисованы либо черной (b), (c), либо белой (d), (e) линией

ра. С уменьшением размера таких частиц плазмонный резонанс смещается в сторону меньших длин волн [30]. По-видимому, в нашем случае массив почти изолированных металлических островков формируется областями Au между отверстиями большого диаметра (см. вставку на рис. 2а). С увеличением *d* эффективный размер островков уменьшается и наблюдается коротковолновый сдвиг пика усиления локального электрического поля (рис. 2b). Кроме того, поскольку локализованные плазмонные моды затухают вглубь диэлектрика быстрее, чем блоховские волны [31], то при d > a/2 происходит подавление усиления ближнего поля (рис. 2с).

В заключении выясним, каким же образом устроены плазмонные состояния при различных d. На рисунке 5а показаны спектральные зависимости фактора усиления интенсивности электрического поля для d = 75 и 250 нм при $\theta = 30^{\circ}$. Как уже отмечалось, для ТМ-поляризации при $\theta \neq 0^{\circ}$ возникают две плазмонные моды. Пространственные распределения поля в плоскости решетки на резонансных длинах волн приведены на рис. 5b-е. Конфигурация поля для d = 75 нм имеет вид, типичный для поверхностных плазмон-поляритонных блоховских волн [21]. Наблюдается аксиальная симметрия, характерная для круглой формы отверстий [11] и чуть нарушенная в результате рассеяния в направлении x. Для d = 250 нм ситуация иная. Распределение поля имеет либо гексагональную форму (рис. 5d), либо квадратную (рис. 5е) и отражает уже симметрию металлической решетки. Видно, что коротковолновый плазмон локализован, главным образом, под островками Аи вдоль диагоналей решетки (направления А на вставке к рис. 2а). Он существует при любых углах θ , в том числе и при нормальном падении света. Длинноволновый плазмон возбуждается только при $\theta \neq 0^{\circ}$ и располагается вдоль ортогональных направлений, параллельных сторонам квадратной решетки (направления B на вставке к рис. 2a). Следует отметить, что характер обнаруженных локализованных плазмонных мод в двумерных плазмонных решетках отличается от результатов работы [32], в которой исследовались спектры фотолюминесценции одномерных золотых решеток, сопряженных с нанокристаллами Si на кварце. Авторы [32] пришли к выводу, что локализованные плазмоны возбуждаются на краях полосок Au, а не под островками золотой пленки. Очевидно, что причина отличий заключается в изотропии двумерной системы вследствие ее большей размерности.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект #19-12-00070).

- T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio, and P. A. Wolff, Nature **391**, 667 (1998).
- 2. C. Genet and T. W. Ebbesen, Nature 445, 39 (2007).
- 3. W. L. Barnes, J. Opt. A Pure Appl. Opt. 8, S87 (2006).
- F. J. Garcia-Vidal, L. Martin-Moreno, T. W. Ebbesen, and L. Kuipers, Rev. Mod. Phys. 82, 729 (2010).
- N. C. Lindquist, P. Nagpal, K. M. McPeak, D. J. Norris, and S.-H. Oh, Rep. Prog. Phys. 75, 036501 (2012).

- 6. A. Brolo, Nature Photon. 6, 709 (2012).
- A. V. Dvurechenskii and A. I. Yakimov, Silicon-based nanoheterostructures with quantum dots, in: Advances in Semiconductor Nanostructures, ed. by A. V. Latyshev, A. V. Dvurechenskii, and A. L. Aseev, Amsterdam, Elsevier (2017), p. 59.
- 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).
- G. Gu, N. Mojaverian, J. Vaillancourt, and X. Lu, J. Phys. D: Appl. Phys. 47, 435106 (2014).
- 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).
- S. Tong, J. L. Liu, J. Wan, and K. L. Wang, Appl. Phys. Lett. 80, 1189 (2002).
- А.И. Якимов, А.В. Двуреченский, А.И. Никифоров, С.В. Чайковский, С.А. Тийс, ФТП **37**, 1383 (2003).
- A. Alguno, N. Usami, T. Ujihara, K. Fujiwara, G. Sazaki, K. Nakajima, and Y. Shiraki, Appl. Phys. Lett. 83, 1258 (2003).
- A. Elfving, G. V. Hansson, and W.-X. Ni, Physica E 16, 528 (2003).
- A.K. Sood, J.W. Zeller, R.A. Richwine, Y.R. Puri, H. Efstathiadis, P. Haldar, N.K. Dhar, and D. L. Polla, SiGe Based Visible-NIR Photodetector Technology for Optoelectronic Applications, in Advances in Optical Fiber Technology: Fundamental Optical Phenomena and Applications, ed. by M. Yasin, IntechOpen, London (2015), p. 315.
- C. D. Salzberg and J. J. Villa, J. Opt. Soc. Am. 47, 244 (1957).
- 20. A. D. Rakić, A. B. Djurišić, J. M. Elazar, and M. L. Majewski, Appl. Opt. **37**, 5271 (1998).
- L. Salomon, F. Grillot, A. V. Zayats, and F. de Fornel, Phys. Rev. Lett. 86, 1110 (2001).
- S.-H. Chang and S.K. Gray, Opt. Express 13, 3150 (2005).
- A. Degiron and T. W. Ebbesen, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 7, S90 (2005).
- 24. 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).

- W. A. Murray, S. Astilean, and W. L. Barnes, Phys. Rev. B 69, 165407 (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. Zhang and L. Zhang, Adv. Opt. Photonics 4, 157 (2012).
- 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. 26th Int. Symp. "Nanostructures: Physics and Technology", Minsk, Belarus, June 18–22 (2018), p. 106.
- S.A. Dyakov, D.M. Zhigunov, A. Marinins, O.A. Shalygina, P.P. Vabishchevich, M.R. Shcherbakov, D.E. Presnov, A.A. Fedyanin, P.K. Kashkarov, S. Popov, N.A. Gippius, and S.G. Tikhodeev, Sci. Rep. 8, 4911 (2018).