

石墨烯在太赫兹器件中的应用

朱礼鹏 黄媛媛 姚泽瀚 徐新龙

(西北大学光子学与光子技术研究所 710069)

1. 引言

太赫兹(terahertz, THz)波是电磁波谱中位于0.1 THz~10 THz (1 THz=10¹² Hz)频段的电磁波,对应波长为30~3000 μm,因此也被称为亚毫米波。由于缺乏有效的辐射源和探测器,很长时间内对该频段电磁波性质知之甚少,被称为“THz空隙(THz gap)”。随着技术的发展,研究人员发现该频段具有很多独特的性质,比如,低光子能量不会造成样品电离,对非极性样品具有很强的透过率等。因为研究起步较晚,所以应用中缺乏有效的太赫兹功能器件。另外,

随着光电子器件越来越小型化、集成化,基于纳米材料的太赫兹器件研制也是未来发展的必然趋势。

最近十年间,石墨烯作为二维纳米材料界的“明星”,以其优异的力、热、光、电性质赢得了举世瞩目的关注,每年有上万篇关于石墨烯的文章发表。与传统半导体材料的抛物线型能带结构不同,石墨烯具有零带隙、线性能带色散关系(如图1(a)),这使得其具有很宽的光谱响应范围,横跨电磁波谱的可见、红外到太赫兹频段(图1(b))^①。其费米能级可通过栅压、化学掺杂等方法调节;室温下具有高达10⁵ cm²V⁻¹s⁻¹载流子迁移率以及超快响应速度。这些优

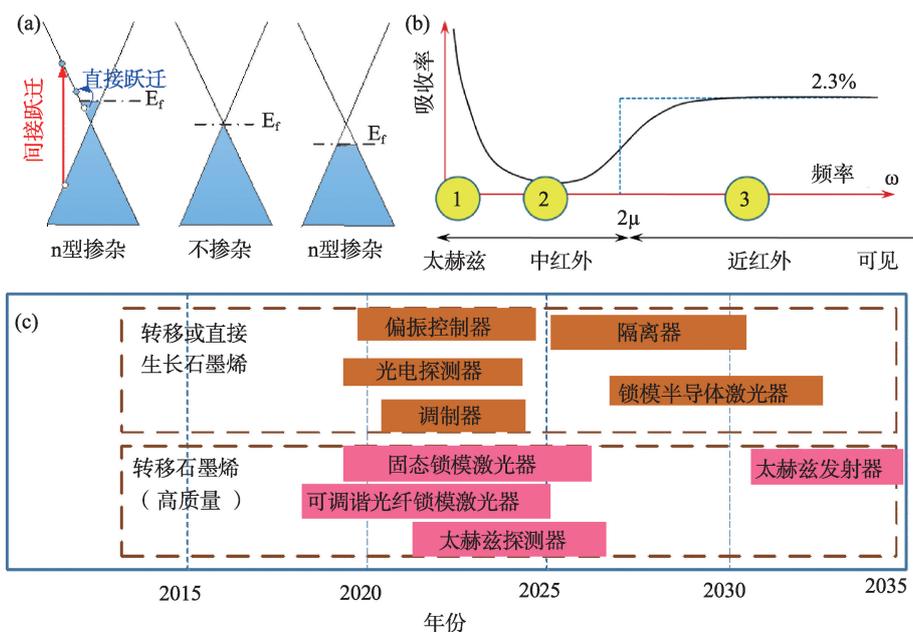


图1 (a)电子掺杂(n型掺杂)、本征以及空穴掺杂(p型掺杂)石墨烯费米能级的位置以及带间、带内跃迁示意图。(b)石墨烯的宽带光学吸收响应。(c)石墨烯光电器件应用^②

异的光电性质使得其在太赫兹波段具有潜在的应用前景,比如Novoselov在石墨烯规划中指出其可作为太赫兹发射器和探测器(图1(c))。本文以石墨烯作为太赫兹的发射、调控、探测器件为主线,对目前国内外石墨烯基THz功能器件的研究进展进行归纳总结。

2. 石墨烯THz波发射器件

由于石墨烯的等离子体频率处于太赫兹频段,在石墨烯应用的长期规划中,其被认为具有作为太赫兹发射器的潜力。目前,已经有一些研究石墨烯的THz发射性能的工作报道,其中基于飞秒激光激发石墨烯以其设备简单、辐射太赫兹频谱宽等优势而受到较多研究。

早期,石墨烯太赫兹产生的研究是将石墨烯作为激光增益介质,使得粒子数反转,进而受激辐射THz波。但是,由于石墨烯中电子空穴的迁移率相近,因此这种方法产生的效率很低。近年来,研究者直接用飞秒脉冲激光照射石墨烯,产生皮秒或亚皮秒量级的瞬变光电流,瞬变光电流向外辐射THz波。2014年,Obraztsov研究了SiO₂基底上多层石墨烯在800 nm飞秒光激发下产生THz信号,实验结果还显示随着石墨烯层数的增多,其辐射的THz强度明显下降。机理分析指出由于石墨烯中强的电声耦合,快的动量弛豫,该光电流产生过程被认为由光牵引效应主导。光牵引效应是一种二阶非线性效应,其描述的是光子动量直接转移给电子的过程。同年,Maysonnave等实验探测了光激发SiC基底上的多层石墨烯产生太赫兹的频谱范围可到4

THz,从微观角度出发,基于微扰方程解出光激载流子的密度演化,进而模拟了光激发太赫兹的产生过程,其理论预测用15 fs的激发光,石墨烯辐射的太赫兹谱宽可以达到60 THz。

然而,由于石墨烯是单原子层厚度的纳米材料,光与物质相互作用很弱,进而使得辐射的THz信号较弱,这限制了石墨烯THz发射器的应用。因此,如何增强光与石墨烯相互作用,增强THz辐射成为亟待解决的问题。Bahk等^③将石墨烯转移到不连续的金膜上,发现由于表面等离子增强光整流效应使得石墨烯辐射的THz强度增强了2个数量级(图2(b))。本课题组^④在不需要外界辅助的情况下,采用具有表面微结构的直立生长石墨烯,通过内部多次反射增强光与石墨烯相互作用。实验结果显示,相同条件下,直立石墨烯的THz辐射强度相比单层石墨烯提高了10倍(图2(d))。这些方法使得石墨烯辐射THz强度有增强,将石墨烯THz发射器向前推进了一步,但是与传统材料相比,如碲化锌、砷化镓等,其辐射还是相对较弱,因此石墨烯THz发射器的应用还需要进一步探索。

3. 石墨烯THz波调控器件

同微波电子、光学领域一样,THz技术的发展需要多种调控性器件,其作用是调控THz波某一方面的性质,如振幅、相位、偏振度等。石墨烯的光学电导可以表示成带间跃迁和带内跃迁电导之和,THz波段,带间跃迁因光子能量不足而被禁止,石墨烯的电导率由带内跃迁的Drude型电导决定。因

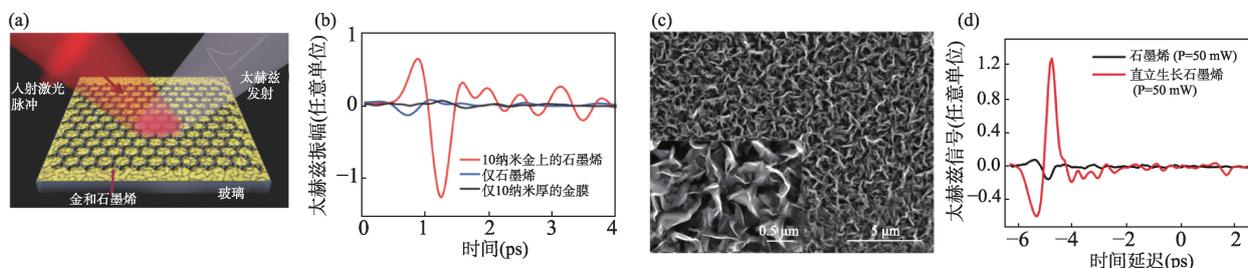


图2 (a-b)金表面等离子体(c-d)直立石墨烯结构增强石墨烯THz辐射

为石墨烯的Drude电导与费米能级的绝对值成正比,而费米能级取决于载流子(电子、空穴)的浓度。所以,通过调节石墨烯中的费米能级与载流子浓度就可以控制其太赫兹电导,进而实现对太赫兹波的调控。目前调控石墨烯电导最有效的方法主要有栅压、光场调控两种。

作为THz调制器,常常要求其具有优异的调制性能,如调制深度、调制频率及调制带宽。由于单层石墨烯的调制有限,实验中常把石墨烯与半导体结合形成异质结来增加调制深度。2012年, Sensale-Rodriguez 等人在 $\text{SiO}_2/\text{p-Si}$ 基底上制作了栅压调控石墨烯太赫兹透射调制器^⑤(图3(a-b)),室温下提供宽波段的调制,深度高达15%,频率大于600 GHz。之后他们将基底底部的金属电极窗口换为全金属的反射层,设计了石墨烯的THz反射调制器,其调制深度达到了64%,损耗小于2 dB。Weis 等人设计了一种基于石墨烯/硅的THz全光调制器,通过780 nm的激光对石墨烯进行光掺杂,通过改变带间吸收以改变载流子浓度,从而调控THz波。结果证明,在0.2到2 THz的频段,石墨烯/硅调制器40 mW的光功率下调制深度可达99%,其性能远优于硅调制器。Wen 等人提出了一种石墨烯/锗结构全光调制器,在1.55 μm 的激光作用下,调制深度可以达到94%,调制速率200 kHz。Li 等人^⑥提出一种结合了电光和光调制的石墨烯太赫兹波调制器(图3(c-d)),对石墨烯/硅结构加偏压的同时引入了一束泵浦光,得到了83%的透射调制深度。

除了石墨烯和半导体结合外,还有其他方法将

增强石墨烯调制深度,比如,石墨烯和超材料结合、堆叠石墨烯以及利用石墨烯等离子共振等。本课题组在这些方面也做了很多创新工作:Li等将CVD生长的石墨烯以及氮掺杂石墨烯转移到金属超材料表面,发现增强了石墨烯对太赫兹的吸收性能。另外,zhou等通过多次随机堆叠石墨烯,观察到堆叠层数对样品二次反射峰的振幅和相位的调制,并首次提出了石墨烯太赫兹减反射膜,通过阻抗匹配解释了实验现象(图3(d-f))。

4. 石墨烯THz波探测器件

目前,商用的THz探测器基于热传感原理,其缺点是响应速率较慢(如Golay cell和热电元件),或需要极低温度的冷却条件(如超导元件),或响应频段局限于低THz频段(如肖特基二极管)。因此,发展具有快速响应能力、室温探测能力的新型太赫兹波探测器是十分重要的。

石墨烯以其THz波段敏感响应以及室温下较高的载流子迁移率引起了研究者的广泛关注,被用来作为THz探测器。为了增强石墨烯弱的响应,实验中常用石墨烯异质结来作为THz探测器,比如,基于石墨烯与半导体组成的场效应晶体管型、石墨烯纳米带阵列以及利用石墨烯等离子体效应的异质结探测器。

Vicarelli 等人首次设计并制成了石墨烯顶栅天线耦合场效应晶体管型THz探测器(图4(a)),实现了0.3 THz的室温探测^⑦,证明该探测器可以被用于宽波段、大面积成像探测,如图4(b)。Muraviev 等研究了一种背栅调控的石墨烯场效应管在1.63到

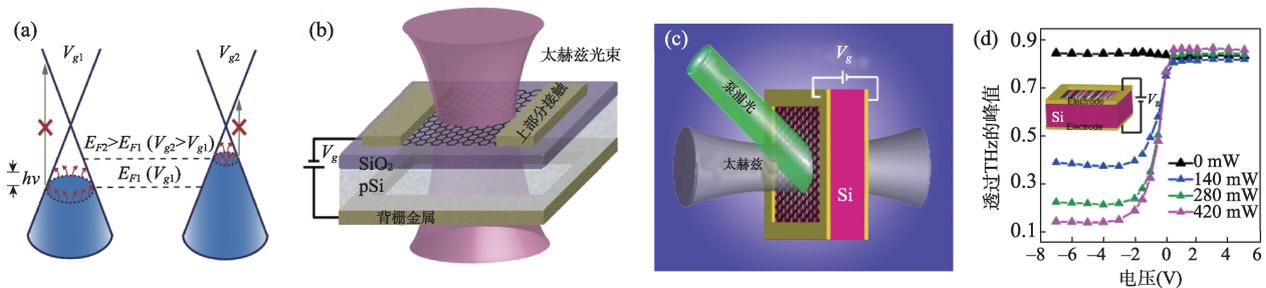


图3 (a-b)石墨烯THz透射调制器。(g-h)石墨烯THz电调和光调结合型调制器^⑥

3.11 THz波段的响应,证明其探测机理是由于非线性的等离子体效应以及石墨烯片在吸收THz波后的辐射热效应。Spirito等报道了一种基于等离子体激发的双层石墨烯场效应管结构的宽波段THz波探测器,在光电压和光电流模式下,器件在0.29–0.38 THz范围测得的响应率大约为1.2 V/W (1.3 mA/W),噪声等效功率2000 pW/Hz^{1/2},这些参数已经可以与商用的THz探测器相比较。Cai等^⑧报道了一种大面积SiC上亚波长石墨烯条带配合金属条带设计的太赫兹探测器(图4(c)),利用其可调等离子体响应增加了探测效率。通过调整石墨烯条带与金属条带的夹角,可以在入射波电场垂直于金属条带时得到等离子体共振响应,在电极间测得光热电压的变化。最近,Değil’ Innocenti等^⑨报道了一种室温下快速石墨烯等离子体天线阵列探测器(图4(d)),其探测机理是热辐射效应,2~2.7 THz频段连

续THz量子级联激光器测试显示最大的响应达到约2 mAW⁻¹。

5. 结束语

石墨烯在太赫兹波段的产生、调控、探测等多个领域已经展示出优异的应用性能和巨大的发展潜力。尽管其在THz科学技术领域已经取得了相当的进展,但是距离实际应用还有一段距离。首先,制备大面积、高质量、层数可控石墨烯是限制商业应用的一个因素。其次,基于石墨烯的THz功能器件性能还需要进一步提升。产生器件方面,需要增强石墨烯THz发射能力;调控器件方面,需要研制宽带、深度、高速调制器件;探测器件方面,表现在如何提高石墨烯的THz响应以及信噪比等。因此,在石墨烯THz器件应用上,我们期待有更多实验上的突破来解决目前所遇到的问题。

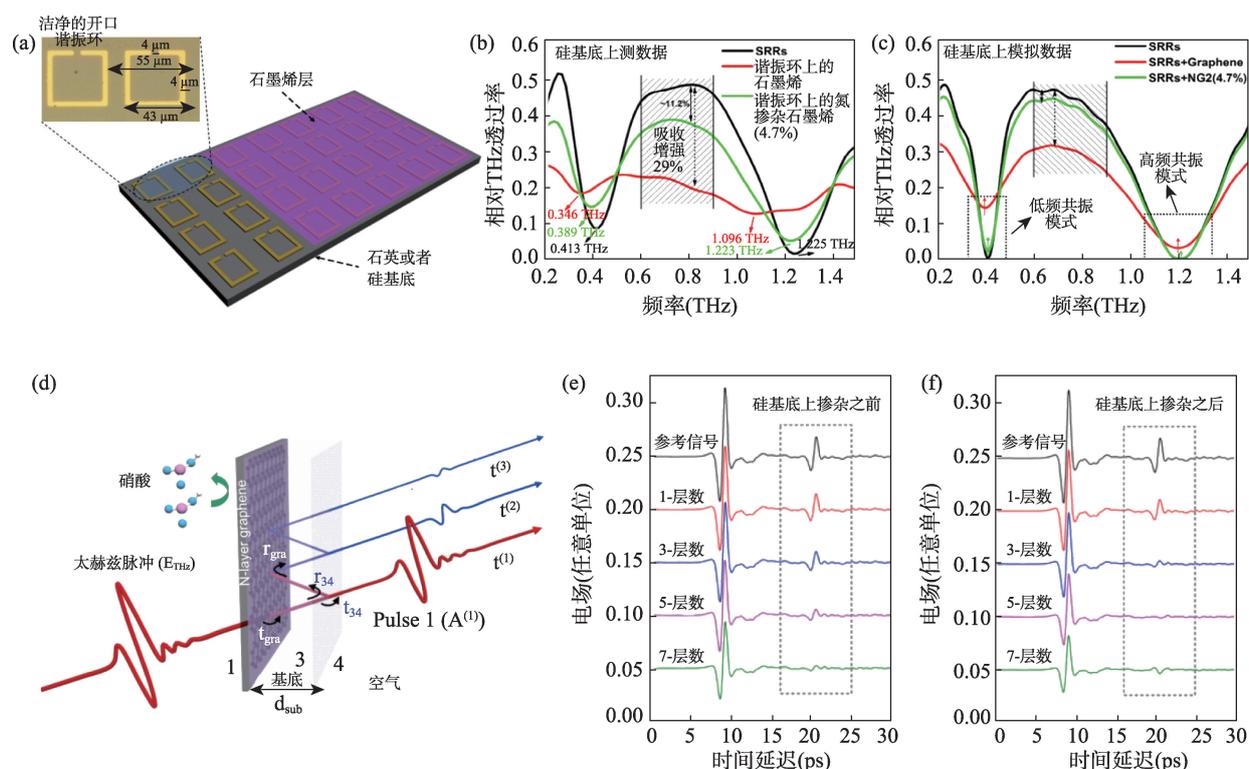


图4 (a-c)石墨烯和超材料结合增强太赫兹调制。(d-f)堆叠石墨烯太赫兹减反射膜

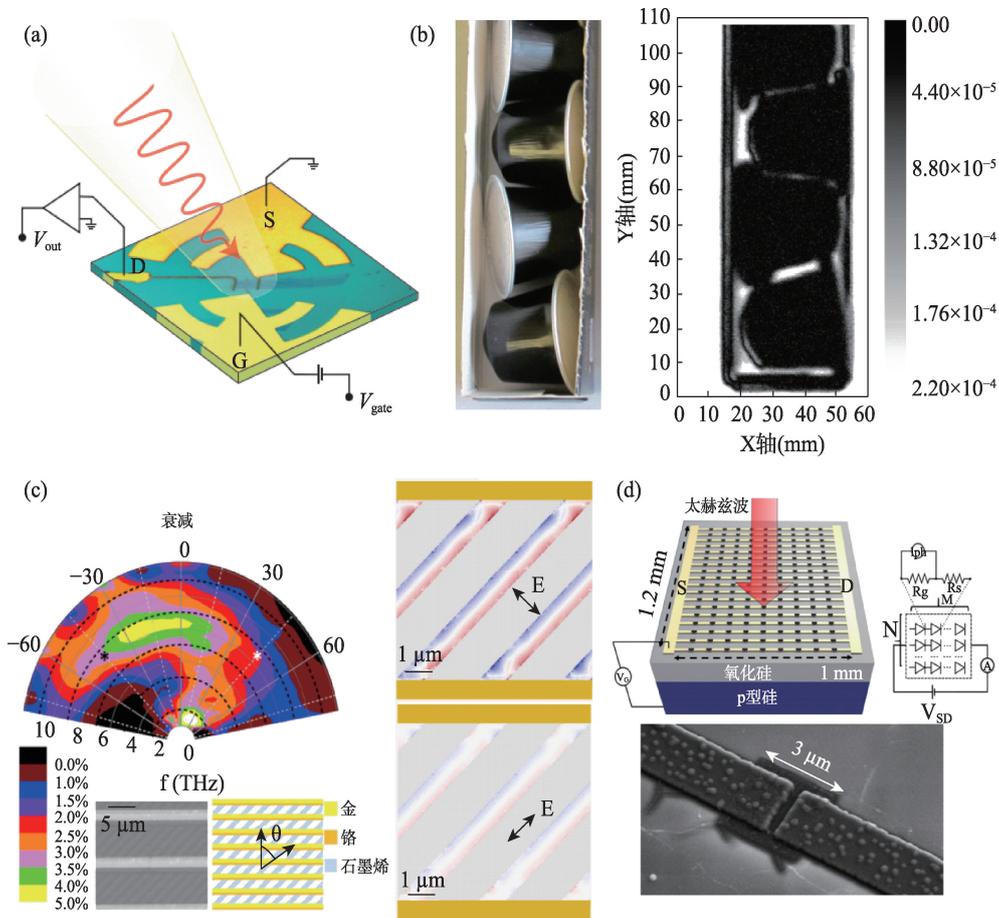


图5 典型石墨烯基太赫兹探测器。(a-b) 天线耦合场石墨烯 THz 探测器以及成像探测。
(c) 条带石墨烯等离子体增强 THz 探测器。(d) 石墨烯天线阵列性 THz 探测器

① T. Low, P. Avouris, Graphene Plasmonics for Terahertz to Mid-Infrared Applications, ACS Nano, 8 (2014) 1086-1101.

② K.S. Novoselov, V.I. Falko, L. Colombo, P.R. Gellert, M.G. Schwab, K. Kim, A roadmap for graphene, Nature, 490 (2012) 192-200.

③ Y.-M. Bahk, G. Ramakrishnan, J. Choi, H. Song, G. Choi, Y.H. Kim, K.J. Ahn, D.-S. Kim, P.C. Planken, Plasmon Enhanced Terahertz Emission from Single Layer Graphene, ACS nano, 8 (2014) 9089-9096.

④ L. Zhu, Y. Huang, Z. Yao, B. Quan, L. Zhang, J. Li, C. Gu, X. Xu, Z. Ren, Enhanced polarization-sensitive terahertz emission from vertically grown graphene by a dynamical photon drag effect, Nanoscale, 9 (2017) 10301-10311.

⑤ B. Sensale-Rodriguez, R. Yan, M.M. Kelly, T. Fang, K. Tahy, W. S. Hwang, D. Jena, L. Liu, H.G. Xing, Broadband graphene terahertz modulators enabled by intraband transitions, Nat Commun, 3 (2012) 780.

⑥ Q. Li, Z. Tian, X. Zhang, R. Singh, L. Du, J. Gu, J. Han, W. Zhang, Active graphene-silicon hybrid diode for terahertz waves, Nature communications, 6 (2015) 7082.

⑦ L. Vicarelli, M.S. Vitiello, D. Coquillat, A. Lombardo, A.C. Ferrari, W. Knap, M. Polini, V. Pellegrini, A. Tredicucci, Graphene field-effect transistors as room-temperature terahertz detectors, Nat Mater, 11 (2012) 865.

⑧ X. Cai, A.B. Sushkov, M.M. Jadidi, L.O. Nyakiti, R.L. Myers-Ward, D.K. Gaskill, T.E. Murphy, M.S. Fuhrer, H.D. Drew, Plasmon-Enhanced Terahertz Photodetection in Graphene, Nano Lett, 15 (2015) 4295-4302.

⑨ D.I. Riccardo, X. Long, J.K. Stephen, S.K. Varun, W. Binbin, B.-W. Philipp, N. Kenichi, I.A. Adrianus, H. Stephan, E.B. Harvey, A. R. David, Bolometric detection of terahertz quantum cascade laser radiation with graphene-plasmonic antenna arrays, Journal of Physics D: Applied Physics, 50 (2017) 174001.