



图案化石墨烯/氮化镓复合超表面对太赫兹波在狄拉克点的动态多维调制

姚海云 闫昕 梁兰菊 杨茂生 杨其利 吕凯凯 姚建铨

Terahertz dynamic multidimensional modulation at Dirac point based on patterned graphene/gallium nitride hybridized with metasurfaces

Yao Hai-Yun Yan Xin Liang Lan-Ju Yang Mao-Sheng Yang Qi-Li Lü Kai-Kai Yao Jian-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 068101 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211845

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211845>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于石墨烯编码超构材料的太赫兹波束多功能动态调控

Dynamic multifunctional control of terahertz beam based on graphene coding metamaterial

物理学报. 2018, 67(11): 118102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180125>

基于石墨烯的宽带全光空间调制器

Graphene-based broadband all-optical spatial modulator

物理学报. 2018, 67(21): 214201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180307>

石墨烯晶体管优化制备工艺在单片集成驱动氮化镓微型发光二极管中的应用

Applications of graphene transistor optimized fabrication process in monolithic integrated driving gallium nitride micro-light-emitting diode

物理学报. 2021, 70(19): 197801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210122>

基于石墨烯的太赫兹漫反射表面快速设计方法

A method of rapidly designing graphene-based terahertz diffusion surface

物理学报. 2021, 70(3): 034102 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201034>

基于太赫兹石墨烯等离激元的多参数相位可调谐结构及其应用

Multi-parameter tunable phase transition based terahertz graphene plasmons and its application

物理学报. 2021, 70(22): 224202 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210445>

具有石墨烯/铟锑氧化物复合透明电极的GaN发光二极管

GaN-based light emitting diode with graphene/indium antimony oxide composite transparent electrode

物理学报. 2019, 68(24): 247303 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190983>

图案化石墨烯/氮化镓复合超表面对太赫兹波在狄拉克点的动态多维调制*

姚海云¹⁾ 闫昕^{1)†} 梁兰菊^{1)4)‡} 杨茂生²⁾
杨其利^{1)††} 吕凯凯¹⁾ 姚建铨³⁾

1) (枣庄学院光电工程学院, 枣庄 277160)

2) (江苏大学, 微纳光电子与太赫兹技术研究院, 镇江 212013)

3) (天津大学精密仪器与光电子工程学院, 天津 300072)

4) (重庆大学, 光电技术及系统教育部重点实验室, 重庆 400044)

(2021年10月4日收到; 2021年11月30日收到修改稿)

提出一种基于图案化石墨烯/氮化镓肖特基二极管与类电磁诱导透明超表面集成的新型太赫兹调制器. 通过施加连续激光或偏置电压改变异质结肖特基势垒, 进而致使石墨烯的费米能级在价带、狄拉克点与导带之间移动, 使得异质结的电导率发生变化. 在太赫兹时域光谱上表现出透射振幅的增减变化, 并观察到在狄拉克点上的调制行为. 因费米能级接近狄拉克点, 对外加光电激励非常敏感, 施加 $4.9\text{--}162.4\text{ mW/cm}^2$ 的光功率或者 $0.5\text{--}7.0\text{ V}$ 的偏压, 调制深度先增加后减小, 相位差线性增加, 其中最大调制深度达 90%, 最大相位差为 189° , 该器件实现了太赫兹波的超灵敏多维动态调制. 总之, 该图案化石墨烯/氮化镓复合超表面调制器在超灵敏光学设备中存在潜在的应用价值.

关键词: 太赫兹超表面, 调制器, 肖特基二极管, 石墨烯

PACS: 81.05.Xj, 73.22.Pr, 87.50.U-, 07.57.Pt

DOI: 10.7498/aps.71.20211845

1 引言

受到 6G 通信技术发展需求的影响, 研究者们对频率在 $0.1\text{--}10\text{ THz}$ 之间的太赫兹波展开了全面系统的研究. 因太赫兹波具有频带宽、测量信噪比高、安全性好等独特性质, 使其在无线通信、生物医学、国土安全检查和雷达等领域呈现出日新月异的发展态势^[1-7]. 但是, 由于太赫兹光子容易被水分子吸收, 在大气中传播损耗大, 而且难以与自

然材料发生共振响应, 致使太赫兹技术的研究和发展相对滞后, 特别是太赫兹调制器. 人造周期性微结构超表面的出现为解决这一难题带来希望. 特别地, 通过设计超表面实现类电磁诱导透明 (electromagnetically induced transparency, EIT) 的电磁响应为解决上述问题提供了思路, 引起了研究者的极大兴趣^[8-10]. 当宽带“亮”模式谐振器与窄带“暗”模式谐振器在空间和频域都接近时, 它们之间的耦合会产生类 EIT 的窄透明窗口. 因透明窗口对于微小的环境变化能表现出明显响应, 使类

* 国家自然科学基金 (批准号: 61701434, 61735010, 61675147)、山东省自然科学基金 (批准号: ZR2020FK008, ZR202102180769)、泰山学者项目专项资金 (批准号: tsqn201909150) 和山东省高校青创科技计划 (批准号: 2019KJN001) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yxllj68@126.com

‡ 通信作者. E-mail: lianglanju123@163.com

†† 通信作者. E-mail: hanbaomami@163.com

EIT 超表面成为研究太赫兹调制器件的理想平台. 已经报道的太赫兹波调制器的基本原理是基于参杂硅、相变材料、铁电薄膜、超导材料等材料与超表面相结合^[11,12], 通过外加温度、光照、电场等激励方式改变人工微结构所对应相位、频率和振幅的响应特性, 从而实现太赫兹波的有源调制. 然而目前所呈现的调制性能依然未达到实际应用所需要的指标. 因此有必要结合现有新材料的发展, 发掘和研究更优良的太赫兹波调制体系, 实现对太赫兹波高灵敏、高效主动的调制.

近年来, 石墨烯因其独特的能带结构以及可调的电导率在太赫兹波调制领域引起了广泛关注^[13,14]. 具体而言, 研究发现石墨烯费米能级的调制可由光泵或偏置电压引起. 特别地, 在微米/亚微米尺度区域具有特殊几何结构的图案化石墨烯在小型化集成光子器件和动态调制器件方面变得越来越重要^[15-17]. 因此, 在超灵敏动态多维调制的调制器的发展中, 基于图案化石墨烯的 THz 超表面具有巨大潜力^[18]. Lee 等^[19]报道了一种有源石墨烯集成超表面器件, 在栅极电压控制下, 传输波的调制幅度和相位分别为 47% 和 32.2°. Li 等^[20]提出通过由光泵和偏置电压激发的石墨烯-硅超表面对太赫兹共振波进行主动调制, 调制深度达到 26%. 事实上, 这些太赫兹调制器性能与系统应用所需的指标相差甚远. 仅靠石墨烯和超表面的结合已不能满足该领域的需求. 将石墨烯与另一种半导体材料有效结合, 将成为太赫兹波调制的一种有前景的新方法. 其中以高性能著称的第三代半导体氮化镓 (GaN), 因具有宽禁带 (3.43 eV)、高电子迁移率 (1245 cm²/(V·s))、高电子饱和速率 (2.5×10⁷ cm/s) 等特点进入人们的视野^[21,22]. 将石墨烯与氮化镓结合形成垂直结构的肖特基二极管, 为丰富太赫兹波调制的维度, 实现超高灵敏度的调制提供了机会.

本文报道了一种基于图案化石墨烯-氮化镓肖特基二极管与类 EIT 超表面 (graphene patterning/GaN with EIT-like metasurfaces, GrPGaN@MS) 集成的新型太赫兹调制器件. 利用 p 型石墨烯的费米能级稍微偏离狄拉克点并处于价带的特征, 在施加微弱功率的激光或者较小的偏置电压情况下, 费米能级可由价带移动到狄拉克点, 然后从狄拉克点移动到导带. 基于这个原理, 太赫兹透射振幅经历了两个不同的阶段——透射振幅的减小

和增加阶段, 并实现了对太赫兹波超灵敏多维动态调制. 该复合超表面可以激发新一代高效、超宽带和低阈值的光敏太赫兹元器件的快速发展.

2 实验部分

2.1 设计与实验

本文提出一种新型太赫兹调制器, 制备示意图与几何参数见图 1. 图 1(a) 为 PGrGAN@MS 调制器制备流程图, 首先旋涂 5 μm 厚的聚酰亚胺 (PI) 膜在 300 μm 厚的石英衬底上 (图 1(a)-(i)), 然后在 PI 层上通过光刻技术加工周期性排列的微结构超表面 (图 1(a)-(ii)), 微结构的金属材料是铝, 其厚度为 0.2 μm. 微结构单元是由外部 U 形和内部不对称螺旋结构组成, 如图 1(e)–图 1(g) 光学显微图片所示. 接下来, 在超表面层上旋涂 2 μm 厚的 PI 薄膜 (图 1(a)-(iii)). 然后将 1.0 cm × 1.0 cm 的单层石墨烯转移到 PI 膜层上 (图 1(a)-(iv)), 其中石墨烯由化学气相沉积法合成. 接下来, 溅射圆形金属锌在石墨烯上, 然后将器件置于稀 HCl 溶液 (约 0.05 mol/L) 中 1 min 以溶解锌. 随后用高纯水冲洗该装置并在空气中干燥. 这一系列实验操作可去除金属锌区域下的石墨烯层, 得到预期的圆孔图案化石墨烯 (图 1(a)-(v)), 其光学显微照片如图 1(g) 和图 1(h) 所示. 此外, 使用 514 nm 激光进行了拉曼光谱分析 (图 1(j)), 可以看出 2D 峰 (约 2698 cm⁻¹) 与 G 峰 (约 1578 cm⁻¹) 强度之比约为 3.66, 2D 峰的半峰宽为 55 cm⁻¹. 这些特征表明石墨烯的质量很高^[23]. 其中石墨烯的电导率约为 1.7 × 10⁶ S/m (方阻约 600 Ω). PPGP@MS 样品的共振特征通过 8f 共焦太赫兹时域光谱 (terahertz-time domain spectroscopy, THz-TDs) 系统垂直入射进行实验表征 (如图 2). 在测量中, 采用光斑直径约 3 mm 的 532 nm 连续光波激光器作为光泵 (F_{op}). 为了在石墨烯上施加偏置电压 (V_b), 在石墨烯上涂一层离子胶, 探针通过两个电极分别连接到离子胶膜和石墨烯 (图 1(c)). 其中, 光泵用于激发肖特基二极管中的载流子, 而偏置电压用于将载流子注入肖特基二极管中. 在这种配置中, 肖特基势垒被改变从而呈现出石墨烯和氮化镓异质结的电导率被调制. 在零光泵和零偏置电压下, 样品被表征作为参考.

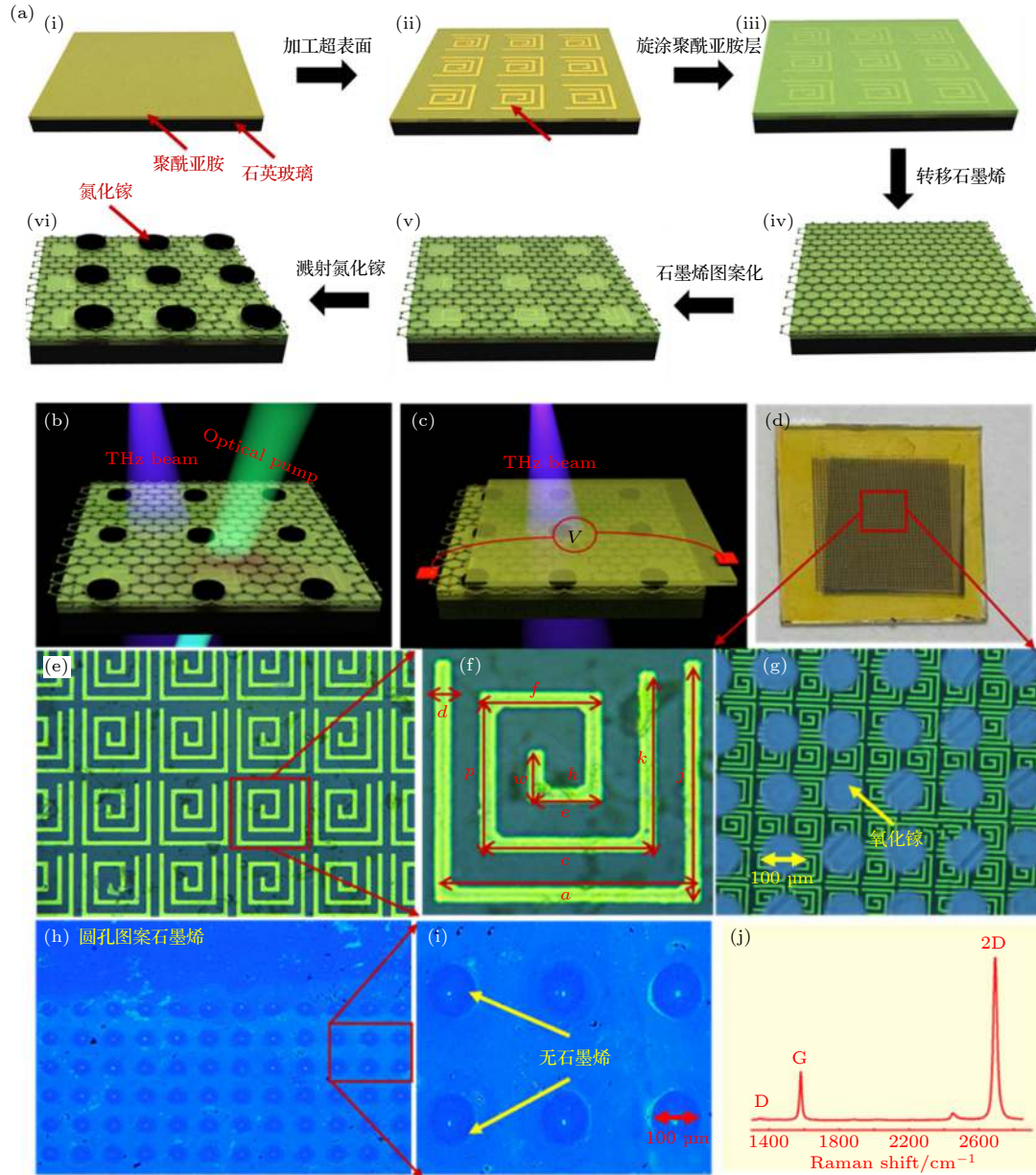


图 1 PGrGAN@MS 的制备和表征 (a) 制备过程: (i) PI 膜旋涂在石英玻璃基底上; (ii) 类 EIT 超表面的制备; (iii) PI 膜旋涂在类 EIT 超表面上; (iv) 石墨烯被转移到 PI 薄膜上; (v) 图案化单层石墨烯; (vi) 溅射圆柱状氮化镓. (b) 在光泵和太赫兹激发下的样品示意图. (c) 在偏置电压和太赫兹激发下的样品示意图. (d) $1.5\text{ cm} \times 1.5\text{ cm}$ PGrGAN@MS 样品. (e) 超表面的光学显微镜照片. (f) 晶胞尺寸, $a = j = 135\ \mu\text{m}$, $d = 13\ \mu\text{m}$, $c = p = 90\ \mu\text{m}$, $k = 103\ \mu\text{m}$, $f = h = 63\ \mu\text{m}$, $e = 39\ \text{mm}$, $w = 31\ \text{mm}$. (g) 样品的光学显微照片. (h), (i) 圆孔石墨烯图案化结构的光学显微照片. (j) 使用 $514\ \text{nm}$ 激光测量的石英衬底上单层石墨烯的拉曼光谱

Fig. 1. Manufacture and characterization of the PGrGAN@MS. (a) Manufacture process: (i) PI film is spin-coated on the quartz glass substrate; (ii) preparation of an EIT-like metasurface sample; (iii) PI film is spin-coated atop metasurface; (iv) graphene was transferred onto the PI film; (v) graphene was patterned into a fishing net structure with round holes; (vi) sputtering cylindrical GaN. (b), (c) Schematic of graphene samples under the optical pump or bias voltages and THz probe illumination. (d) $1.5\text{ cm} \times 1.5\text{ cm}$ PGrGAN@MS sample. (e) Optical microscope images of lattice. (f) Unit cell. The corresponding parameters were: $a = j = 135\ \mu\text{m}$, $d = 13\ \mu\text{m}$, $c = p = 90\ \mu\text{m}$, $k = 103\ \mu\text{m}$, $f = h = 63\ \mu\text{m}$, $e = 39\ \text{mm}$, $w = 31\ \text{mm}$. (g) Optical microscope images of the sample. (h), (i) Optical micrograph of the patterned structure of round-hole graphene. (j) Raman spectrum of monolayer graphene on quartz substrate measured by $514\ \text{nm}$ laser.

2.2 仿真与理论模拟条件

为了进一步研究 PGrGAN@MS 调制器的调制行为, 使用 CST Microwave Studio 基于有限差

分时域方法的频域求解器对器件进行数值模拟. 电边界和磁边界条件分别沿 x 和 y 方向, 入射太赫兹辐射的偏振方向与 z 方向一致. 在仿真模型中,

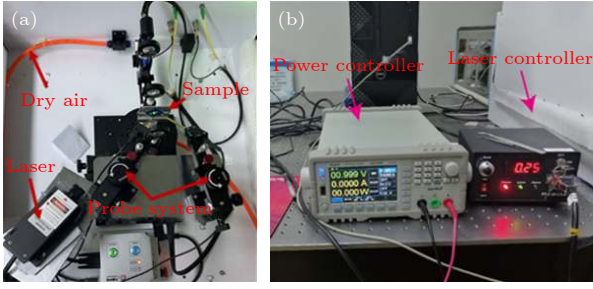


图2 实验光电设备 (a) THz-TDs 系统; (b) 室温下的电源和激光控制器

Fig. 2. Experimental photoelectric equipment: (a) THz-TDs system; (b) power supply and laser controller at room temperature.

超表面微结构由有损耗的铝金属所制, 电导率设置为 $\sigma_{dc} = 3.56 \times 10^7 \text{ S}\cdot\text{m}^{-1}$; PI 作为柔性基板, 介电常数 ϵ 与正切损耗 $\tan\delta$ 分别为 3.4 与 0.05; 氮化镓的介电常数设为 9; 石墨烯的电导率采用经典的 Drude 模型表示^[20]:

$$\sigma(\omega) = \frac{iD}{\pi(\omega + i\Gamma)}, \quad (1)$$

其中 D 是德鲁德权重, Γ 是载流子散射率. 单层石墨烯厚度设置为 1 nm. 透射率可以表示为

$$T(\omega) = \left| \frac{E_s(\omega)}{E_r(\omega)} \right|^2, \quad (2)$$

其中 $E_s(\omega)$ 和 $E_r(\omega)$ 分别是样品和参考的太赫兹脉冲快速傅里叶变换后的太赫兹电场幅度.

另外, 类 EIT 超表面也可以通过耦合谐波振荡器模型进行理论拟合, 该模型描述了其亮与暗模式谐振器之间的近场干扰, 其耦合的微分方程为

$$\begin{aligned} \ddot{x}_1 + \gamma_1 \dot{x}_1 + \omega_0^2 x_1 + \kappa x_2 &= E, \\ \ddot{x}_2 + \gamma_2 \dot{x}_2 + (\omega_0 + \delta)^2 x_2 + \kappa x_1 &= E, \end{aligned} \quad (3)$$

其中, x_1 , x_2 , γ_1 与 γ_2 分别代表谐振幅度和明暗模式的损耗; δ 和 κ 表示暗模式和亮模式振荡器 ($\delta \ll \gamma_1$) 之间的频率失谐因子和耦合系数; E 为入射电场. 通过求解 (3) 式, 在近似 $\omega - \omega_0 \ll \omega_0$ 情况下可得磁化率 χ :

$$\begin{aligned} \chi &= \chi_r + i\chi_i \\ &\propto \frac{(\omega - \omega_0 - \delta) + i\frac{\gamma_2}{2}}{(\omega - \omega_0 + i\frac{\gamma_1}{2}) \left(\omega - \omega_0 - \delta + i\frac{\gamma_2}{2} \right) - \frac{\kappa^2}{4}}. \end{aligned} \quad (4)$$

由于能量损失始终与 χ 的虚部成正比, 因此传输可以写为

$$T \propto 1 - \chi_i = 1 - g\chi_i. \quad (5)$$

众所周知, 磁化率 χ_i 的虚部与能量损失成正比, 因此透射率 $T = 1 - g\chi_i$, 其中 g 表示亮模式与光耦合的耦合强度. (5) 式在理论上可拟合类 EIT 超表面的透射 T .

3 结果与讨论

3.1 仿真结果与分析

为了研究 PGrGAN@MS 调制器的调制机制, 分别模拟、理论拟合和测试了 PGrGAN@MS 调制器的透射谱, 如图 3(d) 所示. 实验与仿真、拟合结果具有较好的一致性, 微小的差异可归因于制造 PI 与金属层的过程中引起的误差, 导致材料特性的改变并增加相应的损耗. 从图 3(d) 透射谱线可以发现, 在 0.63 THz 附近出现透射率大于 60%. 这种弱透明现象意味着 PGrGAN@MS 超表面中可能存在类 EIT 的模式耦合效应. 为了进一步理解类 EIT 共振的物理机理, 分别模拟并显示了内部旋转 (NSZ) 阵列与平行长边 (WPX) 阵列的电场强度, 如图 3(a) 和图 3(b) 所示. 电场主要分布

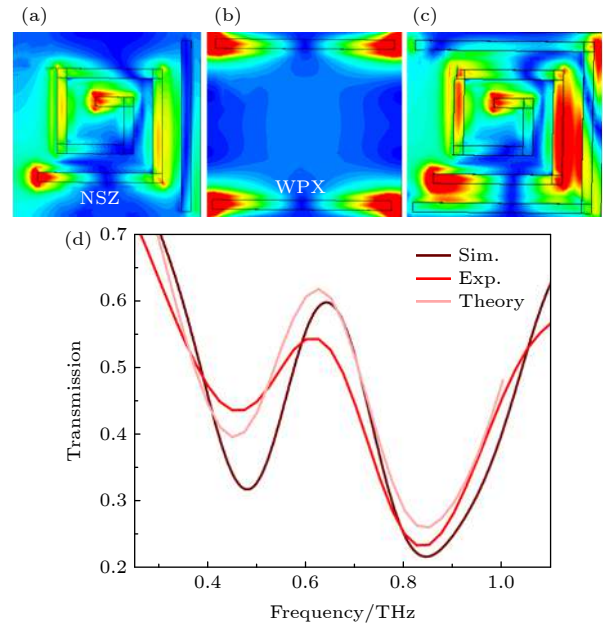


图3 (a), (b) 在 NSZ 和 WPX 的共振频率处电场强度分布; (c) 在 0.63 THz 谐振频率下 EIT 模式的电场强度分布; (d) 实验、模拟和理论拟合的透射光谱

Fig. 3. (a), (b) Electric field intensity distribution at the resonance frequency of NSZ and WPX; (c) electric field intensity distribution of the EIT mode at the resonance frequency of 0.63 THz; (d) experimental, simulated and theory fitted transmission spectra.

在 WPX 的 4 个长边的末端, 并集中在 NSZ 中左边旋转结构的起点和终点附近, 同时右边长边结构没有电场分布. 因此, WPX 为亮模式, NSZ 为暗模式^[24]. 结合 2 个耦合谐振器, 在 0.63 THz 附近出现透明窗口, 0.63 THz 处的场强分布如图 3(c). 结果清楚地表明, 由于相消干涉, WPX 中的电场强度在 0.63 THz 频率上完全被抑制. 相反, 在 NSZ 中, 电场强度主要集中在左边旋转结构的起始点和拐角处以及右边长边处 (图 3(c) 中的黑色虚线圆圈), 表明现在暗模式被激发. 因此, 本文研究的 PGrGAN@MS 调制器, 在 x 偏振入射光下产生类 EIT 的模式, 这来自 WPX (作为亮模式) 与 NSZ (作为暗模式) 的耦合.

3.2 实验结果与分析

为了说明 PGrGAN@MS 样品的调制效果, 本文表征了在不同光通量激发下样品的透射谱, 如

图 4(a) 所示. 可以看出, 随着光通量的增加, 在低频段处 (比如 f_1, f_2, f_3 频率处) 由于光子能量较低, 样品透射谱几乎没有发生变化, 然而在高频段处对应频率 f_4 和 f_5 的透射谱发生了明显的变化, 实现了太赫兹波的动态调制. 因单层石墨烯在光激发作用下电导率发生改变致使透射谱发生变化. 此外, 为了定量表征透射谱振幅的调制深度, 采用以下公式定义:

$$M_d = \frac{|(T_{oi} - T_1)|}{T_1} \times 100\%, \quad (6)$$

其中 T_{oi} 是在不同的入射 F_{op} 激发下的透射振幅, T_1 是 F_{op} 为 4.9 mW/cm^2 时的透射振幅. 由 (6) 式计算了不同 F_{op} 激发下对应 THz 频率的调制深度, 见图 4(c). 当 $F_{op} = 54.6 \text{ mW/cm}^2$ 时, M_d 随着频率的增加整体呈现先增大后减小的趋势, 在频率 f_5 处调制深度接近 8%. 当 $F_{op} = 162.4 \text{ mW/cm}^2$ 时, M_d 随着频率的增加呈现出与 $F_{op} = 54.6 \text{ mW/cm}^2$

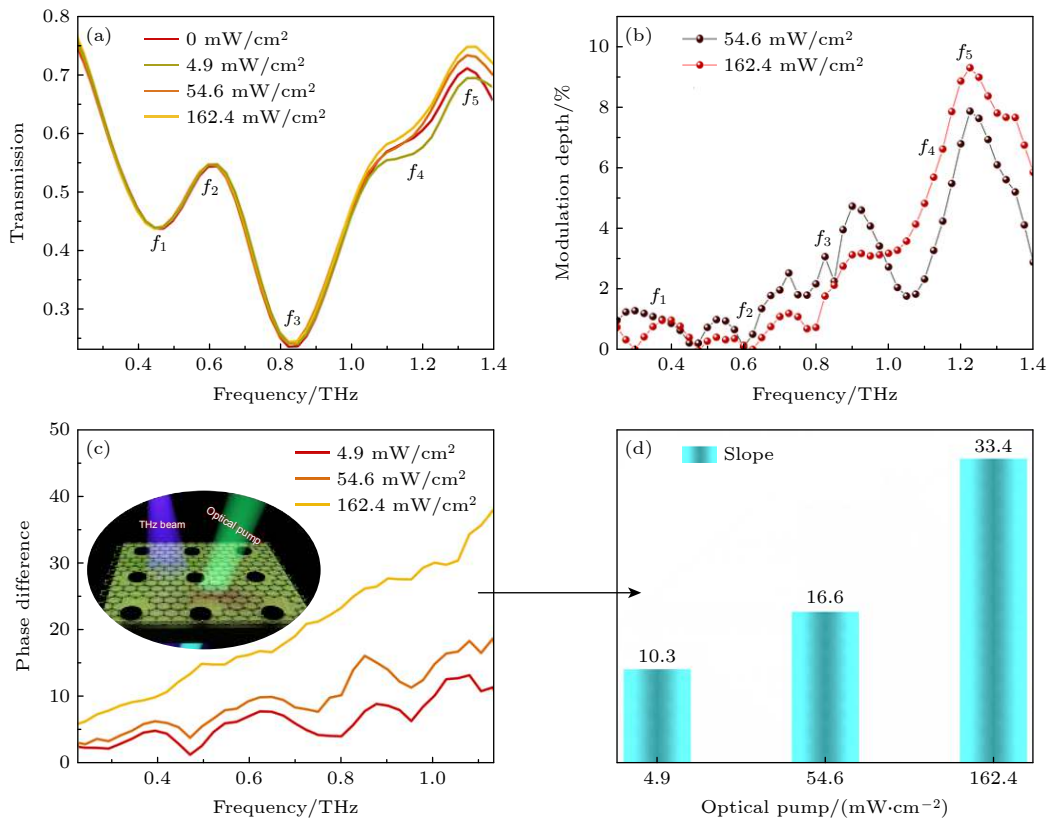


图 4 (a) PGrGAN@MS 样品在不同光通量激发下的太赫兹透射谱线; (b) PGrGAN@MS 样品在不同光通量激发下的调制深度; (c) PGrGAN@MS 样品在光通量激发与没有任何激发条件下的相位差 (内插图是为激发方式); (d) PGrGAN@MS 样品在不同光通量激发下的相位差的斜率

Fig. 4. (a) Measured transmission amplitude spectra of the PGrGAN@MS sample under different optical flux (F_{op}) excitations; (b) modulation depth of the PGrGAN@MS sample under different F_{op} excitations from panel (a); (c) phase difference between the PGrGAN@MS sample with and without F_{op} excitations, inset: excitation approach; (d) fitted phase difference slopes on F_{op} excitations extracted from panel (c).

时相同的变化趋势, 在频率 f_5 处调制深度接近 9%。此外, 本文报道的调制器件成功实现了对太赫兹波相位的调制, 在有光激发和无光激发下计算的相位差如图 4(c) 所示。在同样的 F_{op} 激发下, 相位差随着频率的增加而增加, 呈现线性关系。在同一频率下, 相位差随着 F_{op} 的增加而增大。为了定量表征相位差与光通量之间的调制关系, 拟合图 4(c) 中的相位差曲线的斜率, 结果见图 4(d)。随着 F_{op} 的增加相位差曲线的斜率呈现明显增加的趋势, 当 $F_{op} = 162.4 \text{ mW/cm}^2$ 时, 其斜率值由 $10.3^\circ/\text{THz}$ 增加到 $33.4^\circ/\text{THz}$, 成功实现相位的调制。

虽然施加激光能够实现动态调制, 但是调制深度并不理想。本文通过施加偏置电压对样品进行电调控。同时表征了在不同偏置电压 (V_b) 下样品的透射谱, 如图 5(a) 所示。可以看出, 透射值不仅在高频段处 (f_1, f_5) 发生很大变化, 而且在低频段处 (f_1, f_2, f_3) 也可以看到明显的改变, 尤其是 f_2 透明

窗口, 从实验结果可以得出, 同样样品的电调控比光调控效果好。

上述实验结果的调制机制可通过光或电诱导肖特基异质结的能带结构发生改变做出定性解释(如图 6 所示)。图 6(a) 给出在没有任何激发条件下石墨烯和氮化镓异质结的能带图。由于两种材料的功函数不同引起接触电位, 电子在石墨烯一侧聚集, GaN 中向上的能带弯曲形成肖特基势垒。在光激发下, 能带结构示意图如图 6(b) 所示。由于入射光子能量低于 GaN 的带隙, 此时来自石墨烯的光激发电子可以越过势垒并被 GaN 收集, 同时增加 GaN 的表面态从而稍微降低了势垒高度, 导致器件的电导率发生改变, 表现出异质结对光激发的响应。由于本实验采用的激光波长 (532 nm) 处于可见光范围, 其光子能量小于 GaN 带隙, 所以器件的响应较弱。在电激发下, 能带结构示意图如图 6(c) 所示。当施加偏置电压, 会在异质结内部产生内置

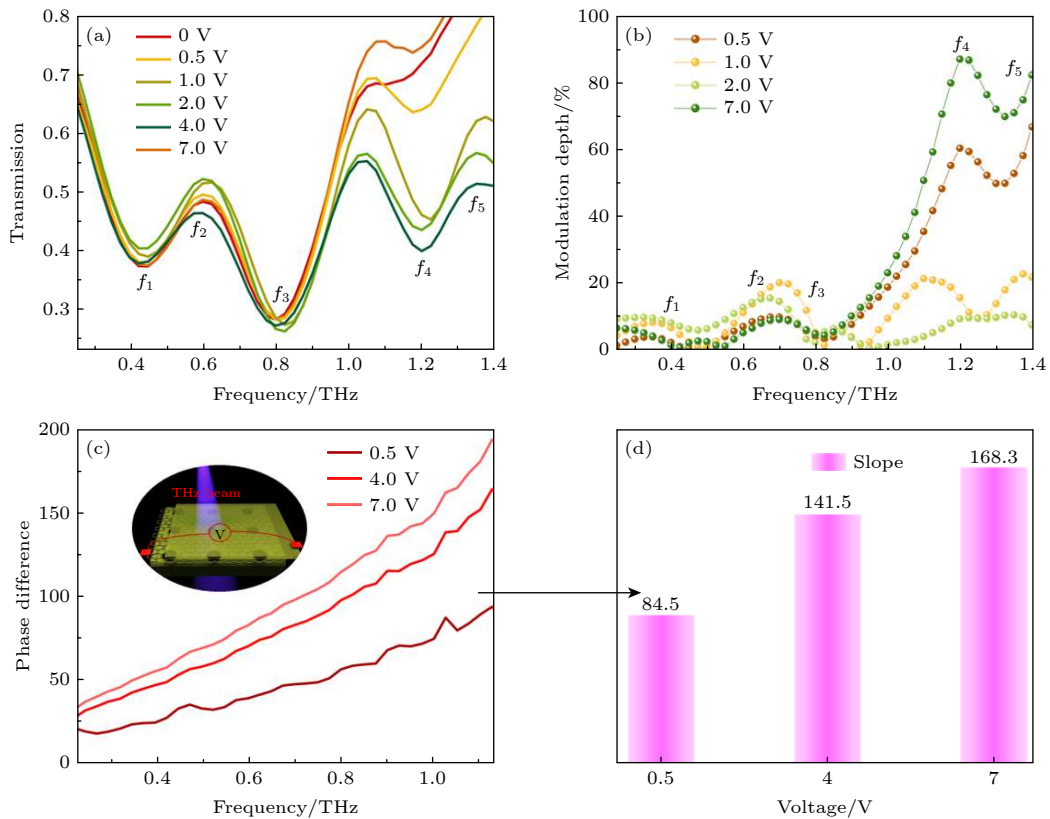


图 5 (a) PGrGAN@MS 样品在不同偏置电压激发下的太赫兹透射谱线; (b) PGrGAN@MS 样品在不同偏置电压激发下的调制深度; (c) PGrGAN@MS 样品在偏置电压激发与没有任何激发条件下的相位差 (内插图即为激发方式); (d) PGrGAN@MS 样品在不同偏置电压激发下的相位差的斜率

Fig. 5. (a) Measured transmission amplitude spectra of the PGrGAN@MS sample under different V_b excitations; (b) modulation depth of the PGrGAN@MS sample under different V_b excitations from panel (a); (c) phase difference between the PGrGAN@MS sample with and without V_b excitations, inset: excitation approach; (d) fitted phase difference slopes on V_b excitations extracted from panel (c).

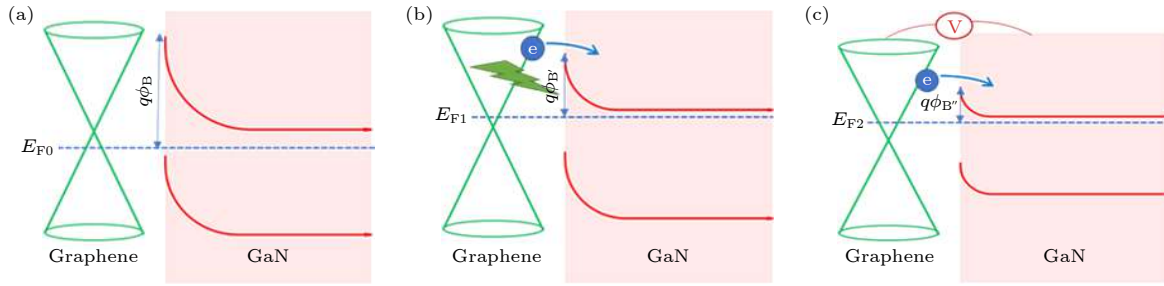


图 6 PGrGAN@MS 样品在 (a) 没有任何激发、(b) 光激发以及 (c) 电激发三种不同情况下的异质结能带结构示意图

Fig. 6. Schematic band structures of the PGrGAN@MS sample (a) without any excitation in darkness, (b) light excitation and (c) electrical excitation.

电场, 致使在石墨烯/GaN 界面处产生大量电子-空穴对并通过内置电场快速分离, 从而大幅度降低了势垒高度, 导致其电导率随着电压的增加而发生较大的变化。

此外, 光或电激发还可以诱导解吸石墨烯上的分子 (如 H_2O), 捕获的电子从衬底释放到石墨烯, 这将导致石墨烯的 n 掺杂和费米能级随着激光功率或偏置电压的增加而移动。图 5(a) 中所示, 随着 V_b 的增加, 透射值先减小, 到最小值然后增加。为了能够清楚地说明变化机制, 选取调制深度最大的频率 f_4 作为分析对象。首先当 V_b 从 0.5 V 增加到 4.0 V, f_4 的透射值减小, 当 $V_b = 4.0$ V 时, 透射值达到最小值 0.41, 然后随着 V_b 的增加, 透射值达到转变点开始增加, 直到 $V_b = 7.0$ V 时, f_4 的透射值达到最大值 0.75。在石墨烯的能带中, 布里渊区边界的高对称点处存在呈线性色散关系的上下锥体结构。这些锥体结构的顶点是狄拉克点^[25]。根据 Fermi-Dirac 分布的描述^[26,27], 费米能量分布函数 $f_e(\varepsilon)$ 和 $f_h(\varepsilon)$ 表示为 $f_{e/h}(\varepsilon) = \left[1 + \exp\left(\frac{\varepsilon - \mu_{e/h}}{T}\right) \right]^{-1}$, 其中 $\varepsilon \geq 0$ 为载流子动能, μ_e/μ_h 为电子/空穴准费米能量, T 是常见的有效温度 (以能量单位表示)。由于电子和空穴子系统的对称性, $\mu_e = \mu_h = \mu$ 。在没有外部激发的情况下, 完美石墨烯的狄拉克点处电子和空穴的密度相等, 并且 $\mu = 0$ 。但是在实际化学气相沉积 (CVD) 法生产石墨烯的过程中, 不可避免会受到杂质、缺陷和无序的影响, 使石墨烯为 p 型掺杂。初始费米能级在狄拉克点附近的价带中。当离子凝胶膜旋涂在石墨烯上表面时, 在离子胶中其内置初始电压驱动电子-空穴对的电子积累, 此时假定内置初始电压和 V_b 是相反的方向, 并且

内置的初始电压可驱动费米能级从初始位置转移到 E_{F0} , 如图 6(a) 所示。在此过程中可通过离子胶内置初始电压实现电导率的增强, 因而使 f_4 的共振减弱甚至消失。当施加偏置电压时破坏了内置电压系统的平衡, 进而导致了内置电压对石墨烯电导率影响的逐渐减弱, 因此太赫兹响应表现出了 f_4 共振的恢复, 与此同时, 费米能级的分布也发生改变。随着 V_b 从 0.5 V 增加到 4.0 V, 费米能级从 E_{F0} 升至狄拉克点附近, 与此同时, 透射值持续下降。直到 $V_b = 4.0$ V 时, 费米能级非常接近狄拉克点, 此时电场耦合非常剧烈以致 f_4 的透射峰值达到最低。接下来随着 V_b 进一步增加到 7 V, 费米能级继续上升越过狄拉克点进入导带直到 E_{F1} , 此时透射振幅越过平衡态达到最大值。为了定量表征透射振幅在电调制下的调制深度, 采用 (1) 式计算了不同 V_b 激发下对应 THz 频率的调制深度, 如图 5(b) 所示。可以看出, 调制深度随着频率的增加整体呈现先增加到最大值然后减小的趋势。当施加电压为 7.0 V 时, 在 f_4 的共振处得到最大的调制深度 (90%)。相对于光激发下的最大调制深度来说, 调制深度提高到 10 倍。

此外, 同样对电调制下的相位差及相位差曲线的斜率进行了计算和拟合, 结果如图 5(c) 和图 5(d) 所示。与光激发的变化趋势一致, 在同样的电激发下, 相位差随着频率的增加而增加。随着电压的增加相位差曲线的斜率呈现增加的趋势, 当电压达到 7 V 时, 其斜率值达到 $168.3^\circ/\text{THz}$, 成功实现相位的调制。

此外, 与前面已报到的关于石墨烯调制太赫兹波的相关工作相比, 本工作实现了超高的振幅调制深度, 同时实现了相位调制 (见表 1)。

表 1 太赫兹调制器件类型、有源材料以及振幅调制深度 (2D, 二维材料; MMs, 超材料)

Table 1. THz modulation device types, active materials and modulation depth (2D, two-dimensional materials; MMs, metamaterials).

类型	有源材料	$M_d/\%$	文献
2D MMs	Graphene+metal	26%	[20]
2D MMs	Graphene	25%	[28]
2D MMs	Graphene+GaN+metal	90%	本文

4 结 论

本文设计、制作了一种基于图案化石墨烯-氮化镓肖特基二极管与类 EIT 超表面集成的新型太赫兹调制器件. 通过两种不同的调制方式 (电调制、光调制) 将微功率密度的激光泵与微弱偏置电压施加于该器件上, 改变了异质结的肖特基势垒, 进而改变异质结的电导率, 实现了对太赫兹波的高灵敏多维动态调制. 其中当光功率为 4.9 mW/cm^2 或偏置电压为 0.5 V 时, 便可实现明显的调制, 获得最大振幅调制深度高达 90%, 相位差可达 189° . 该研究提供了太赫兹波调制的定量可控性, 并揭示了石墨烯费米能级附近狄拉克点的外部诱导变化所起的关键作用, 为超灵敏主动调制的光子设备提供了有力的平台.

参考文献

- [1] Manjappa M, Srivastava Y K, Solanki A, Kumar A, Sum T C, Singh R 2017 *Adv. Mater.* **29** 1605881
- [2] Yao H, Yan X, Yang M, Yang Q, Liu Y, Li A, Wang M, Wei D, Tian Z, Liang L 2021 *Carbon* **184** 400
- [3] Yang M, Li T, Gao J, Yan X, Liang L, Yao H, Li J, Wei D, Wang M, Zhang T, Ye Y, Song X, Zhang H, Ren Y, Ren X, Yao J 2021 *Appl. Surf. Sci.* **562** 150182
- [4] Tan T C, Srivastava Y K, Ako R T, Wang W, Bhaskaran M, Sriram S, Al Naib I, Plum E, Singh R 2021 *Adv. Mater.* **33** 2100836
- [5] Zhang J, Mu N, Liu L, Xie J, Feng H, Yao J, Chen T, Zhu W 2021 *Biosens. Bioelectron.* **185** 113241
- [6] Yan X, Liang L J, Zhang Y T, Ding X, Yao J Q 2015 *Acta*

- Phys. Sin.* **64** 158101 (in Chinese) [闫昕, 梁兰菊, 张雅婷, 丁欣, 姚建铨 2015 *物理学报* **64** 158101]
- [7] Yan X, Liang L J, Zhang Z, Yang M S, Wei D Q, Wang M, Li Y P, Lü Y Y, Zhang X F, Ding X, Yao J Q 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 118102 (in Chinese) [闫昕, 梁兰菊, 张璋, 杨茂生, 韦德泉, 王猛, 李院平, 吕依颖, 张兴坊, 丁欣, 姚建铨 2018 *物理学报* **67** 118102]
- [8] Cheng Y, Zhang K, Liu Y, Li S, Kong W 2020 *AIP Adv.* **10** 045026
- [9] Li C, Li W, Duan S, Wu J, Chen B, Yang S, Su R, Jiang C, Zhang C, Jin B B 2021 *Appl. Phys. Lett.* **119** 052602
- [10] Xiao S, Wang T, Liu T, Yan X, Li Z, Xu C 2018 *Carbon* **126** 271
- [11] Driscoll T, Kim H T, Chae B G, Leen Y W, Jokersts N M, Palit S, Smith D R, Ventra M D, Basov D N 2009 *Science* **325** 1518
- [12] Chen H T, O'Hara J F, Azad A K, Taylor A J, Averitt R D, Shrekenhamer D B, Padilla W J 2008 *Nat. Photonics* **2** 295
- [13] Ghosh S K, Das S, Bhattacharyya S 2021 *Opt. Commun.* **480** 126480
- [14] Choi W, Lahiri I, Seelaboyina R, Kang Y S 2010 *Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.* **35** 52
- [15] Feng J, Li W, Qian X, Qi J, Qi L, Li J 2012 *Nanoscale* **4** 4883
- [16] Yang G, Li L, Lee W B, Ng M C 2018 *Sci. Technol. Adv. Mater.* **19** 613
- [17] Wei T, Bao L, Hauke F, Hirsch A 2020 *ChemPlusChem* **85** 1655
- [18] Shukla S, Kang S Y, Saxena S 2019 *Appl. Phys. Rev.* **6** 021311
- [19] Lee S H, Choi M, Kim T T, Seungwoo L, Liu M, Yin X, Choi H, Lee S, Choi C G, Choi S Y, Zhang X, Min B 2012 *Nat. Mater.* **11** 936
- [20] Li Q, Gupta M, Zhang X, Wang S, Chen T, Singh R, Han J, Zhang W 2020 *Adv. Mater.* **5** 1900840
- [21] Kim S, Seo T H, Kim M J, Song K M, Suh E K, Kim H 2015 *Nano. Res.* **8** 1327
- [22] Bartolomeo A D 2016 *Phys. Rep.* **606** 1
- [23] Xu G, Zhang Y, Duan X, Balandin A A, Wang K L 2013 *Proc. IEEE* **101** 1670
- [24] Liu N, Langguth L, Weiss T, Kastel J, Fleischhauer M, Pfau T, Giessen H 2009 *Nat. Mater.* **8** 758
- [25] Chen H, Zhang H, Zhao Y, Liu S, Cao M, Zhang Y 2018 *Opt. Laser Technol.* **104** 210
- [26] Ryzhii V, Ryzhii M, Otsuji T, Leiman V, Mitin V, Shur M S 2021 *J. Appl. Phys.* **129** 214503
- [27] Ryzhii V, Otsuji T, Ryzhii M, Leiman V G, Maltsev P P, Karasik V E, Mitin V, Shur M S 2021 *Opt. Mater. Express* **11** 468
- [28] Jessop D S, Kindness S J, Xiao L, Braeuninger P W, Lin H, Ren Y, Ren C X, Hofmann S, Zeitler J A, Beere H E, Ritchie D A, Degl'Innocenti R 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 171101

Terahertz dynamic multidimensional modulation at Dirac point based on patterned graphene/gallium nitride hybridized with metasurfaces^{*}

Yao Hai-Yun¹⁾ Yan Xin^{1)†} Liang Lan-Ju^{1)4)‡} Yang Mao-Sheng²⁾
Yang Qi-Li^{1)††} Lü Kai-Kai¹⁾ Yao Jian-Quan³⁾

1) (*School of Opt-Electronic Engineering, Zaozhuang University, Zaozhuang 277160, China*)

2) (*Institute of Micro-nano Optoelectronics and Terahertz Technology, Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China*)

3) (*College of Precision Instrument and Opto-electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China*)

4) (*Key Laboratory for Optoelectronic Technology & System, Ministry of Education, Chongqing University, Chongqing 400044, China*)

(Received 4 October 2021; revised manuscript received 30 November 2021)

Abstract

The development of terahertz (THz) technology is creating a demand for devices that can modulate THz beams. Here, we propose a novel THz modulator based on patterned graphene/gallium nitride Schottky diodes hybridized with metasurfaces. Ultrasensitive dynamic multidimensional THz modulation is achieved by changing the Schottky barrier of the heterojunction, shifting the Fermi level between the Dirac point, changing the conduction band and the valence of graphene via continuous-wave optical illumination or bias voltages. When the Fermi level is close to the Dirac point, the modulation is ultrasensitive to the external stimuli. Applying an optical power of 4.9–162.4 mW/cm² or a bias voltage of 0.5–7.0 V, the modulation depth initially increases, then decreases, and the phase difference linearly increases, therein the maximum modulation depth is 90%, and the maximum phase difference is 189°. In short, the proposed THz modulator has potential application in ultra-sensitive optical devices.

Keywords: terahertz metasurfaces, modulator, Schottky diodes, graphene

PACS: 81.05.Xj, 73.22.Pr, 87.50.U–, 07.57.Pt

DOI: 10.7498/aps.71.20211845

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61701434, 61735010, 61675147), the Natural Science Foundation of Shandong Province, China (Grant Nos. ZR2020FK008, ZR202102180769), the Special Fund for Taishan Scholar Project, China (Grant No. tsqn201909150), and the Innovation and Technology Program for Young Scientists in Colleges and Universities of Shandong Province, China (Grant No. 2019KJN001).

† Corresponding author. E-mail: yxllj68@126.com

‡ Corresponding author. E-mail: lianglanju123@163.com

†† Corresponding author. E-mail: hanbaomami@163.com