

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Федеральный исследовательский центр  
«Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук»

На правах рукописи

*ms*

**Булгакова Владислава Витальевна**

**ГЕНЕРАЦИЯ ПИКОСЕКУНДНЫХ ИМПУЛЬСОВ ТОКА И  
ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В НОВЫХ ФОТОПРОВОДЯЩИХ  
СРЕДАХ**

1.3.19. Лазерная физика

Диссертация на соискание ученой степени кандидата  
физико-математических наук

Научный руководитель:  
член-корреспондент РАН, доктор физ.-мат. наук  
Гарнов Сергей Владимирович

Москва – 2023

## ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение .....	4
1. Обзор литературы .....	12
1.1. Оптическое выпрямление .....	12
1.2. Встроенное поле в полупроводниках и эффект Дембера .....	15
1.3. Генерация терагерцового излучения в плазме оптического пробоя и в жидкостях .....	18
1.4. Фотопроводящая антенна .....	21
2. Исследование генерации электромагнитного излучения в широкоапертурных фотопроводящих антеннах .....	32
2.1. Экспериментальное исследование генерации электромагнитных импульсов терагерцового диапазона при фотовозбуждении носителей заряда в кристалле дифосфида цинка-германия фемтосекундными лазерными импульсами .....	33
2.1.1. Кристалл дифосфида цинка-германия .....	33
2.1.2. Экспериментальная установка по генерации и детектированию терагерцовых импульсов .....	34
2.1.3. Измерение характеристик излучения от широкоапертурных антенн на основе ZGP .....	36
2.1.4. Генерация ТГц излучения при облучении фотопроводящей антенны на основе ZGP первой и второй гармоникой титан – сапфирового лазера .....	39
2.1.5. ZGP с остаточными компонентами синтеза .....	40
2.2. Экспериментальное исследование генерации электромагнитных импульсов терагерцового диапазона при фотовозбуждении носителей заряда в органо-неорганических галогенидных перовскитах фемтосекундными лазерными импульсами .....	41
2.2.1. Синтез гибридных перовскитов .....	42
2.2.2. Характеризация перовскитов .....	44

2.2.3. Измерение характеристик излучения от широкоапертурных антенн на основе перовскитов .....	45
2.3. Численное и экспериментальное исследование генерации электромагнитных импульсов терагерцового диапазона при фотовозбуждении носителей заряда в легированных азотом алмазах фемтосекундными лазерными импульсами .....	49
2.3.1. Исследование оптических свойств алмазов .....	51
2.3.2. Экспериментальная установка по исследованию спектральных характеристик ТГц импульсов в алмазных фотопроводящих антеннах .....	56
2.3.3. Экспериментальная установка по исследованию эффективности генерации ТГц импульсов в алмазных фотопроводящих антеннах .....	58
2.3.4. Моделирование процесса генерации терагерцового излучения в объемных фотопроводящих антеннах .....	61
2.3.5. Экспериментальные результаты .....	67
3. Генерация прямоугольных наносекундных электромагнитных импульсов с пикосекундным фронтом нарастания .....	75
3.1. Экспериментальные результаты .....	76
Заключение .....	88
Список используемых сокращений .....	90
Список литературы .....	91

## ВВЕДЕНИЕ

### Актуальность темы

Терагерцовое (ТГц) излучение, к которому относятся частоты от 0,1 до 10 ТГц (что соответствует диапазону длин волн от 3 мм до 30 мкм) представляет интерес для фундаментальных и прикладных исследований, поскольку в этом диапазоне лежат вращательные и колебательные моды биологических молекул [1], колебания решетки в твердом теле, внутризонные переходы в полупроводниках и энергетические щели в сверхпроводниках [2]. Помимо этого терагерцовое излучение способно проникать через мелкодисперсные безводные среды; также оно является неионизирующим, вследствие чего данное излучение считается безопасным для биологических существ [1]. Благодаря вышеперечисленному ТГц излучение имеет обширную область практических применений, таких, как: обнаружение взрывчатых или наркотических веществ, проверка фармацевтической продукции [3]; биологическое зондирование, а также диагностика заболеваний [4]; изучение атмосферы Земли и астрофизических объектов [5], [6]; проводная и беспроводная связь нового поколения (6G) [7].

На данный момент существуют различные источники ТГц излучения: вакуумно-электронные, твердотельные электронные, источники с оптической накачкой [8]. К вакуумно-электронным источникам относят: генераторы обратной волны [9], клистроны [10], гиротроны [11], лазеры на свободных электронах [12], синхротроны [13], лампы бегущей волны [14]. К твердотельным электронным источникам относятся: диод Ганна [15] и высокочастотные транзисторы [16], источники терагерцового и суб-терагерцового излучения в сверхпроводниках [17], [18]. Можно также выделить фотонно-кристаллические лазеры с электрической накачкой [19] и квантово-каскадный лазер [20]. К источникам ТГц излучения с оптической накачкой относятся источники на основе оптического выпрямления, оптического смешения, эффекта Дембера и генерации излучения в плазме оптического пробоя и в жидкостях.

Сравнивая существующие источники ТГц излучения, можно заключить, что есть необходимость в создании компактного неохлаждаемого источника высокой мощности излучения с широким спектром [21-25]. На место такого источника может претендовать фотопроводящая антенна.

Принцип генерации терагерцового излучения с использованием фотопроводящих антенн основан на ускорении носителей заряда в поле, приложенном к полупроводнику, при облучении его сверхкороткими лазерными импульсами. В качестве источников лазерного излучения обычно используются фемтосекундные лазеры с длительностью импульсов, не превышающей 1 пс [26].

Генерация импульсов терагерцового излучения в фотопроводящих средах является одним из основных способов получения широкополосного терагерцового излучения. Использование высоких напряженностей прикладываемых полей (десятки кВ/см) позволяет получать терагерцовые импульсы микроджоульного уровня энергии с использованием относительно компактных фемтосекундных лазерных систем. В настоящее время основной средой для создания генераторов терагерцового излучения на основе фотопроводящих антенн является арсенид галлия (GaAs). Однако, также активно исследуются другие полупроводниковые среды, использование которых позволит создавать носители заряда лазерным излучением на основной или второй гармонике существующих фемтосекундных систем, а также прикладывать большее внешнее электрическое поле смещения, тем самым увеличивая мощность терагерцового излучения.

### **Степень разработанности**

Первые исследования фотоэлектрического отклика полупроводников на лазерный импульс были проведены в середине 1970-х [27, 28] и начале 1980-х годов [29-31]. Однако в настоящее время продолжают вестись работы по усовершенствованию фотопроводящих источников ТГц излучения путем поиска альтернативных материалов для подложек антенн и путем изменения геометрии электродов.

## **Цели и задачи диссертационной работы**

Целью представленной работы является поиск новых материалов для подложек фотопроводящих антенн и экспериментальное исследование процессов генерации импульсного электромагнитного излучения в терагерцовом диапазоне и сверхширокополосного СВЧ – излучения за счет формирования токовых импульсов под действием импульсов лазерного излучения и внешнего электрического поля.

Для достижения поставленной цели решались следующие задачи:

1. Генерация электромагнитного излучения терагерцового диапазона в широкоапертурных фотопроводящих антеннах при формировании носителей заряда в полупроводниках за счет приповерхностного и объемного поглощения лазерного излучения
2. Разработка и создание генератора сверхширокополосных электромагнитных импульсов

## **Научная новизна работы**

1. Осуществлена и исследована генерация терагерцовых импульсов широкоапертурными фотопроводящими антеннами на основе  $\text{ZnGeP}_2$  (ZGP) с остаточными компонентами синтеза ( $\text{ZnP}_2$ ,  $\text{Zn}_3\text{P}_2$ , GeP, Ge) при их возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами на длинах волн 400 нм и 800 нм.

2. Осуществлена и исследована генерация импульсов терагерцового излучения с использованием фотопроводящих антенн на основе гибридных перовскитов ( $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  (MAPbI<sub>3</sub>) и  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$  (MAPbBr<sub>3</sub>)) при их возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами на длинах волн 400 нм и 800 нм.

3. Получена генерация терагерцового излучения с помощью фотопроводящих антенн на основе легированных азотом HPHT и CVD алмазов при их возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами на длине волны 400 нм.

4. Разработана и создана полеобразующая система на основе рупорной антенны с фотопроводящим ключом, переключаемым фемтосекундными лазерными импульсами. Продемонстрирована генерация электромагнитных импульсов в полеобразующей системе с использованием различных полупроводниковых фотопроводящих ключей: арсенида галлия, кремния и НРНТ алмаза.

### **Теоретическая и практическая значимость работы**

Проведенные исследования по генерации терагерцового излучения в фотопроводящих антеннах представляют большой интерес для создания новых источников широкополосного терагерцового излучения с возможностью потенциального применения в спектроскопии, биомедицине, системах безопасности и задачах неразрушающего контроля веществ.

Разработанный и созданный источник сверхширокополосных электромагнитных импульсов также может найти свое применение для решении широкого класса фундаментальных и прикладных задач, таких как визуализация объектов, защищенная радиосвязь, геолокация, зондирование поверхности Земли, атмосферы и ионосферы, функциональное воздействие на электронику и сверхширокополосная радиолокация.

### **Методология и методы исследований**

1. Использование метода спектроскопии с временным разрешением (time-domain spectroscopy (TDS)) для измерения временной зависимости напряженности электрического поля терагерцовых импульсов.

2. Измерение зависимости энергии терагерцового импульса от энергии оптического излучения с помощью регистрации мощности терагерцового излучения ячейкой Голя.

3. Метод оптической накачки – терагерцового зондирования для изучения динамики фотоиндуцированных носителей заряда в полупроводниковых материалах.

### **Положения, выносимые на защиту**

1. В широкоапертурных фотопроводящих антеннах на основе  $\text{ZnGeP}_2$  (ZGP) при воздействии на них фемтосекундного лазерного излучения происходит генерация импульсов терагерцового излучения, для которых величина плотности энергии насыщения составляет:  $F_{\text{нас}} = 0,27 \text{ мДж / см}^2$ .

2. В широкоапертурных фотопроводящих антеннах на основе гибридных перовскитов  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  ( $\text{MAPbI}_3$ ) и  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$  ( $\text{MAPbBr}_3$ ) при воздействии на них фемтосекундного лазерного излучения происходит генерация импульсов терагерцового излучения, для которых величина плотности энергии насыщения составляет:  $F_{\text{нас}} = 0,194 \text{ мДж / см}^2$  для  $\text{MAPbBr}_3$  и  $F_{\text{нас}} = 0,293 \text{ мДж / см}^2$  для  $\text{MAPbI}_3$ .

3. В фотопроводящих антеннах на основе алмазов величина плотности энергии насыщения зависит от уровня легирования материалов (концентрации примесей) и в случае азотных примесных центров варьируется в широких пределах: от  $F_{\text{нас}} = 12 \text{ мДж/см}^2$ , до  $F_{\text{нас}} = 0,04 \text{ мДж/см}^2$  при возбуждении фемтосекундными импульсами второй гармоники титан-сапфирового лазера ( $\lambda = 400 \text{ нм}$ ).

4. С помощью полеобразующей системы в форме рупора, используя фемтосекундное лазерное излучение в качестве коммутатора для фотопроводящего ключа, можно генерировать электромагнитные импульсы наносекундной длительности с формой близкой к прямоугольной и с фронтом нарастания короче 30 пс.

### **Личный вклад соискателя**

Личный вклад соискателя в диссертационную работу заключается в активном участии в постановке задач, определении способов их решения, проведении экспериментов, анализе, обработке и интерпретации полученных данных, написании текстов статей. Все результаты, представленные в работе,



получены соискателем лично, либо в соавторстве при его непосредственном участии.

### **Степень достоверности**

Достоверность полученных данных обеспечивается высоким уровнем использованного экспериментального оборудования; применением современных теоретических представлений и методов обработки при анализе данных; сравнением полученных результатов с имеющимися литературными данными; воспроизводимостью результатов; публикацией материалов исследования в высокорейтинговых научных журналах и докладами на всероссийских и международных конференциях.

### **Апробация результатов**

Основные результаты диссертационной работы были представлены и обсуждены на Всероссийских и международных конференциях: “Невская фотоника-2023”, Санкт-Петербург, 9-13 октября 2023; VII International Conference on Ultrafast Optical Science, Москва, 2-4 октября 2023; Advanced Laser Technologies (ALT’23), Самара, 18-21 сентября 2023; XIII Всероссийская школа для студентов, аспирантов, молодых ученых и специалистов по лазерной физике и лазерным технологиям, Саров, Россия, 27-29 сентября 2022 года; International Conference at the Institute for Physical Research Laser Physics 2022, Ashtarak, Armenia, September 14-16, 2022; IEEE 2021 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC) , Munich, Germany, 21-25 June 2021. Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации, проект 075-15-2020-790

### **Публикации по теме диссертации**

Результаты диссертационной работы опубликованы в 7 печатных работах в рецензируемых научных журналах из списка ВАК и в 6 тезисах конференций.

1. Optical Pump–Terahertz Probe Diagnostics of the Carrier Dynamics in Diamonds / **V. Bulgakova**, P. Chizhov, A. Ushakov, P. Ratnikov, Y. Goncharov, A.

Martyanov, V. Kononenko, S. Savin, I. Golovnin, V. Konov, S. Garnov // *Materials*. – 2024. – Т. 17, № 1. – С. 119. – DOI: 10.3390/ma17010119

2. Generation of Rectangular Nanosecond Electromagnetic Pulses with a Picosecond Rise Front / S.V. Garnov, **V.V. Bulgakova**, T.V. Dolmatov, A.A. Ushakov, V.V. Bukin // *Doklady Physics*. – 2023. – Т. 68. – С. 366-369. – DOI: 10.1134/S1028335823110083

3. Generation of Terahertz Radiation in Boron-Doped Diamond / V.V. Kononenko, E.V. Zavedeev, M.A. Dezhkina, **V.V. Bulgakova**, M.S. Komlenok, T.V. Kononenko, V.V. Bukin, V.I. Konov, S.V. Garnov, A.A. Khomich // *Bulletin of the Lebedev Physics Institute*. – 2023. – Т. 50, № 5. – С. S606-S612. – DOI: 10.3103/S1068335623170062

4. Efficiency of photoconductive terahertz generation in nitrogen-doped diamonds / V.V. Kononenko, M.S. Komlenok, P.A. Chizhov, V.V. Bukin, **V.V. Bulgakova**, A.A. Khomich, A.P. Bolshakov, V.I. Konov, S.V. Garnov // *Photonics*. – 2022. – Т. 9, № 1. – С. 18. – DOI: 10.3390/photonics9010018

5. Photoconductive terahertz generation in nitrogen-doped single-crystal diamond / P.A. Chizhov, M.S. Komlenok, V.V. Kononenko, V.V. Bukin, A.A. Ushakov, **V.V. Bulgakova**, A.A. Khomich, A.P. Bolshakov, V.I. Konov, S.V. Garnov // *Optics Letters*. – 2022. – Т. 47, № 1. – С. 86-89. – DOI: 10.1364/OL.446750

6. Hybrid perovskite terahertz photoconductive antenna / P. A. Obraztsov, **V.V. Bulgakova**, P.A. Chizhov, A.A. Ushakov, D.S. Gets, S.V. Makarov, V.V. Bukin // *Nanomaterials*. – 2021. – Т. 11, № 2. – С. 313. – DOI: 10.3390/nano11020313

7. Terahertz generation by means of ZnGeP<sub>2</sub> large aperture photoconductive antenna / **V. Bulgakova**, A. A. Ushakov, P. A. Chizhov, N. A. Yudin, M. Zinovev, S. N. Podzyvalov, T. Dolmatov, V. V. Bukin, S. V. Garnov // *Optical Engineering*. – 2021. – Т. 60, № 8. – С. 082015-082015. – DOI: 10.1117/1.OE.60.8.082015

#### **Перечень патентов РФ:**

1. Букин В.В., Булгакова В.В., Гарнов С.В., Долматов Т.В., Овчаренко Б.Д., Ушаков А. А. «Устройство для генерации широкополосных

сигналов», полезная модель, регистрационный номер в ЕГИСУ НИОКТР 221563, дата регистрации 13.11.2023 г.

2. Букин В.В., Булгакова В.В., Гарнов С.В., Гончаров Ю.Г., Долматов Т.В., Зайцев К.И., Ушаков А.А., Чижов П.А. «Установка для исследования фотопроводящих материалов», полезная модель, регистрационный номер в ЕГИСУ НИОКТР 221535, дата регистрации 10.11.2023 г.

## 1. ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ

### 1.1. ОПТИЧЕСКОЕ ВЫПРЯМЛЕНИЕ

Оптическое выпрямление, являющееся нелинейным оптическим эффектом второго порядка, обычно используется для генерации ТГц-излучения с помощью фемтосекундных лазерных импульсов в электрооптических (ЭО) кристаллах. Поскольку фемтосекундный импульс содержит множество частотных компонент, каждая пара частотных составляющих вносит свой вклад в генерацию разностной частоты, и итоговый результат представляет собой сумму всех этих вкладов.

Математически поляризация  $P$  может быть разложена в степенной ряд по электрическому полю  $E$ :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = & \chi^{(1)}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \chi^{(2)}(\mathbf{r}, t) : \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \\ & + \chi^{(3)}(\mathbf{r}, t) : \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \dots, \end{aligned} \quad (1.1)$$

где  $\chi^{(n)}(\mathbf{r}, t)$  — тензор нелинейной восприимчивости  $n$ -го порядка.

Эффективность оптико – терагерцового преобразования излучения, временной формы импульса и частотное распределение в значительной мере определяются множеством факторов, таких как материал, ориентация кристалла, толщина, поглощение и дисперсия, дифракция, фазовый синхронизм и насыщение и т.д. Однако наиболее важным фактором является условие фазового синхронизма, которое играет ключевую роль в нелинейных процессах генерации ТГц-излучения при оптическом выпрямлении.

При генерации ТГц-поле будет непрерывно увеличиваться по всей глубине нелинейного кристалла, если будет выполнено условие согласования фаз, когда групповая скорость оптического пучка  $V_{G,O}$  равняется фазовой скорости  $V_{Ph,THz}$  ТГц-пучка (в пределах длины нелинейности). Таким образом, при прохождении оптического импульса через нелинейную среду возникает импульс нелинейной

поляризации, повторяющий форму огибающей оптического импульса, а излучаемое электрическое поле пропорционально второй производной от поляризации по времени (в дальней зоне).

Наиболее распространенными электрооптическими кристаллами для задач оптического выпрямления являются: теллурид цинка (ZnTe), ниобат лития ( $\text{LiNbO}_3$ ), танталат лития ( $\text{LiTaO}_3$ ) или 4-N,N-диметиламино-4'-N'-метилстильбазолия тозилат (DAST). Одним из наиболее привлекательных материалов для оптико-терагерцового преобразования является ниобат лития, в связи с высоким коэффициентом нелинейности (в  $\sim 2.5$  раза больше, чем у ZnTe), а ширина запрещенной зоны обеспечивает отсутствие в кристалле двухфотонного поглощения излучения титан-сапфирового лазера (в то время как в кристалле ZnTe наблюдается сильное двухфотонное поглощение при высоких оптических интенсивностях и довольно высокое поглощение на терагерцовых частотах). Однако, поскольку показатель преломления кристалла  $\text{LiNbO}_3$  для терагерцовых частот более чем в два раза превышает оптический показатель преломления, это приводит к отсутствию синхронизма. В 2008 году, в работе Й. Хеблинга [32] был предложен метод достижения синхронизма. Идея заключается в организации наклонного фронта интенсивности лазерного импульса. Для наклона фронта интенсивности лазерных импульсов используется дифракционная решетка.

К настоящему моменту рекордные величины энергий импульсов ТГц излучения получены при взаимодействии импульсного лазерного излучения фемтосекундной длительности из хром-форстеритовой системы ( $\text{Cr:Mg}_2\text{SiO}_4$ ) либо из параметрических усилителей света с органическими кристаллами DAST (4-N, N-диметиламино-4'-N' тозилат метилстильбазола), DSMTS (4-N, N-диметиламино-4'-N'-метил 2,4,6-триметилбензолсульфонат стильбазола), OH1 ((2-(3-(4-гидроксистирил)-5,5-диметилциклогекс-2-малонитрила) енилиден)), HMQ-TMS (2-(4-гидрокси-3-метоксистирил)-1-метилхинолиния 2,4,6-триметилбензолсульфонат)[33-38]. При применении подобных кристаллов преобразование из оптического в терагерцовое излучение происходит с эффективностью до единиц процентов, что позволяет получать поля

напряженностью до 42 МВ/см[34] – 83 МВ/см[39], однако для этой цели необходимо использовать длинноволновые источники лазерного излучения либо параметрические преобразователи света.

Для работы в области длин волн 800 нм наибольший интерес представляет генерация в нелинейном органическом кристалле ВНА (кристаллический N-бензил-2-метил-4-нитроанилин) [40, 41]. С одной стороны данный кристалл имеет нелинейный оптический коэффициент  $d_{\text{eff}} = 234$  пм/В, что сопоставимо с ранее упомянутыми кристаллами (например для кристалла DSTMS  $d_{\text{eff}} = 214$  пм/В, а для ОН1  $d_{\text{eff}} = 240$  пм/В)[42]. Кроме того, согласно полученным результатам эффективность оптико-терагерцового преобразования в подобных кристаллах составляет доли процентов, что сопоставимо по величине с ранее упомянутыми кристаллами [41].

Недостатком данного кристалла является низкая температура плавления ВНА (103°C), что приводит к относительно низкому порогу лазерно-индуцированного повреждения 4 мДж/см<sup>2</sup> при накачке сверхбыстрыми импульсами света длиной волны 800 нм длительностью ~100 фс и частотой повторения 500 Гц. Порог повреждения падает до 2 мДж/см<sup>2</sup> при накачке с частотой повторения 1 кГц, что позволяет предположить, что ВНА нагревается до относительно низкой температуры плавления и плавится. В других статьях сообщается о несколько более высоких значениях порога пробоя при использовании лазерных систем с более низкой частотой повторения и, следовательно, о более низких средних мощностях [42]. Низкий порог повреждения не позволяет многим лазерным системам на титан-сапфире, особенно тем, которые работают с частотой повторения 1 кГц или выше, использовать полную мощность для накачки кристаллов ВНА для генерации ТГц импульсов. В качестве решения подобной проблемы предлагалось изготовление в виде сэндвич-структуры, состоящей из тонкого органического кристалла и пластинки сапфира, осуществляющей теплоотвод от кристалла и повышающей порог пробоя [41]. Подобная методика позволяет увеличить в 2,4 раза напряженность генерируемого электрического поля ТГц импульсов.

В целом источники на основе нелинейных кристаллов являются достаточно перспективными для задач по генерации ТГц импульсов, однако наиболее существенным недостатком является крайне высокая стоимость нелинейных кристаллов и, в особенности для органических кристаллов, технологические ограничения, приводящие к невозможности роста широкоапертурных кристаллов.

## 1.2. ВСТРОЕННОЕ ПОЛЕ В ПОЛУПРОВОДНИКАХ И ЭФФЕКТ ДЕМБЕРА

В некоторых полупроводниках разность уровня Ферми поверхностного состояния и объемного приводит к изгибу энергетических зон вблизи поверхности [43]. Такие поверхностные состояния могут быть использованы для генерации ТГц излучения. Подобный эффект можно наблюдать в арсениде галлия (GaAs n – типа), где уровень Ферми поверхностного состояния близок к центру запрещенной зоны, а в объеме он расположен вблизи зоны проводимости. В результате, в электронном полупроводнике, поверхностное поле направлено к поверхности. Свободные электроны под действием поверхностного поля дрейфуют в объем полупроводника, что приводит к образованию обедненного слоя. В равновесном состоянии дрейф носителей заряда компенсируется их диффузией. Однако, в случае фотовозбуждения полупроводника, созданные носители заряда ускоряются встроенным полем. Таким образом, напряженность электрического поля генерируемого электромагнитного излучения можно описать с помощью выражения для дипольного излучения

$$E_{\text{THz}} = \frac{\partial N(t)}{\partial t} e \mu E_S \sin \theta, \quad (1.2)$$

где  $E_S$  — встроенное поверхностное поле,  $\theta$  — угол между направлением излучения и направлением дипольных колебаний, которые происходят

перпендикулярно поверхности полупроводника,  $\mu$  - подвижность носителей заряда,  $N$  —плотность носителей заряда,  $e$  – заряд электрона.

Согласно выражению (1.2), генерируемое излучение пропорционально поверхностному полю. Следовательно, увеличение поверхностного поля приведет к увеличению интенсивности генерируемого излучения. Для получения высокого встроенного поля, увеличивают разницу в уровнях Ферми, либо уменьшают толщину обедненного слоя. Например, уменьшения толщины обедненного слоя можно добиться, выращивая на поверхности n-GaAs тонкий слой низкотемпературного GaAs (LT-GaAs). Дополнительные легирующие примеси могут использоваться для еще большего понижения уровня Ферми. Однако генерируемое излучение имеет неоднородное угловое распределение, имеющее максимум вдоль поверхности полупроводниковой пластины, что является неблагоприятным фактором в связи с тем, что полупроводники обычно имеют большой показатель преломления на ТГц частотах. На примере арсенида галлия, чей показатель преломления равен 3,6 на ТГц частотах, большая часть генерируемого излучения не излучается в свободное пространство вследствие полного внутреннего отражения без дополнительного способа вывода излучения (линзы или призмы с согласованным показателем преломления).

Возникновение электрического поля в однородном полупроводнике под действием света называется эффектом Дембера, или кристалл-фотоэффектом [44]. Таким образом, даже в отсутствии встроенного поля или при наличии малого встроенного поля, фотоинициализация полупроводниковых материалов сверхкороткими лазерными импульсами также может привести к генерации ТГц импульсов.

Рассмотрим однородный полупроводник, на который падает свет. Интенсивность света уменьшается по мере его проникновения вглубь полупроводника в соответствии с законом Бугера-Ламберта-Бера. При этом скорость генерации носителей заряда будет иметь экспоненциальный спад [44]. Неравномерная генерация частиц приводит к тому, что они диффундируют вглубь полупроводника. В связи с тем, что коэффициенты диффузии электронов и дырок



различны, будет происходить пространственное разделение подвижных носителей заряда – электроны, имеющие, как правило, большую подвижность, будут уходить вглубь полупроводника в большей мере, чем дырки. Освещенная поверхность заряжается положительно, неосвещенная – отрицательно, при этом возникает электрическое поле, направленное вдоль луча света, что приводит к генерации ТГц излучения. Напряженность поля при этом пропорциональна разности коэффициентов диффузии электронов и дырок, поскольку поле Дембера компенсирует разность диффузионных токов электронов и дырок. Если коэффициенты диффузии равны, то токи численно равны и противоположно направлены, и поле Дембера равно нулю.

Эффект Дембера проявляется наиболее сильно в полупроводниках с узкой запрещенной зоной, таких как арсенид индия (InAs). В основном это связано с высокой подвижностью электронов. При одной и той же энергии фотона накачки в узкозонных полупроводниках фотоиндуцированные электроны имеют большую остаточную энергию, чем в широкозонных. Кроме того, из-за сильного поглощения лазерного излучения узкозонными полупроводниками распределение концентрации фотоиндуцированных носителей в них более неоднородно и диффузионный ток больше, чем в широкозонных. Как и при генерации излучения за счет встроенного поля, колебания концентрации носителей при эффекте Дембера происходят в перпендикулярном к поверхности направлении, и поэтому эффективность излучения в свободное пространство невысока. Для более эффективного вывода излучения применяют согласующие элементы, например, призмы или линзы. Также используют специальные методы, позволяющие «развернуть» диаграмму направленности излучения элементарного диполя в направлении, касательном к поверхности – этого можно добиться, например, наложением сильного магнитного поля, искривляющего траектории носителей и таким образом эффективно разворачивающаюшим излучающий диполь.

### 1.3. ГЕНЕРАЦИЯ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ПЛАЗМЕ ОПТИЧЕСКОГО ПРОБОЯ И В ЖИДКОСТЯХ

Интерес к нестационарной лазерно-индуцированной плазме вызван не только ее способностью генерировать терагерцовое излучение [45, 46], но и создавать другие виды вторичного излучения: широкополосного оптического, обусловленного генерацией суперконтинуума [46-48], ультрафиолетового [49;50] и рентгеновского [45,50] из-за генерации гармоник высоких порядков.

Первые экспериментальные демонстрации генерации терагерцового излучения при облучении газовых сред лазерным излучением были проведены в 1993 году [45]. В эксперименте, для создания плазмы использовались фемтосекундные лазерные импульсы на основной гармонике (далее «одночастотные»), фокусирующиеся в газы при различных давлениях. Характерные длительности терагерцовых импульсов при этом были около 2 пс. Основным механизмом генерации терагерцового излучения в этой схеме было радиальное ускорение электронов под воздействием пондермоторной силы, возникающей из-за радиального градиента интенсивности в оптическом пучке. Это приводило к возникновению конической эмиссии под определенным углом к оси плазменного канала вдоль распространения пучка [51]. Однако главной проблемой такого метода генерации излучения является необходимость использования лазерных систем с высокой пиковой мощностью излучения. В настоящее время доступны коммерческие системы с уровнем энергии порядка единиц миллиджоулей, работающие с килогерцовой частотой. Используя такие лазерные системы, можно достичь необходимых уровней интенсивности излучения для ионизации [52-54], однако для ускорения электронов необходимо использовать дополнительные методы. Одним из подходов ускорения носителей заряда является применение внешнего постоянного электрического поля в плазменной области. Это позволяет осуществлять ускорение электронов, что повышает эффективность генерации терагерцового излучения. При этом направление тока совпадает с направлением внешнего электрического поля,

поэтому при его применении в направлении, перпендикулярном распространению лазерного импульса, происходит увеличение амплитуды импульса терагерцового излучения вдоль плазменного канала. Этот метод широко применялся в начале 2000-х годов [55, 56] и позволил значительно повысить эффективность оптико-терагерцового преобразования. Амплитуда выходного сигнала терагерцового излучения при использовании этой методики в основном зависит от величины приложенного внешнего электрического поля, что неизбежно приводило к ограничениям, связанным с пробоем газовых сред (например, в атмосферном воздухе порог пробоя составляет около 30 кВ/см).

Помимо упомянутых выше методов генерации терагерцовых импульсов существует иной подход, при котором происходит образование асимметричного тока, под воздействием лазерных импульсов, содержащих несколько периодов поля. С развитием лазерных систем появилась возможность проведения экспериментов по генерации тока в газовых средах лазерными импульсами длительностью менее 10 фс [57].

Метод генерации терагерцового излучения при воздействии лазерного излучения на основной и второй гармониках (далее двухчастотное) на газовые среды на данный момент позволяет получать наибольшие амплитуды ТГц полей среди всех лазерно-плазменных методов, помимо этого обеспечивая возможность удаленной диагностики. Метод фокусировки двухчастотного лазерного излучения (как правило, на основной и второй гармонике титан-сапфировой лазерной системы) в газовых средах [58], [59-63] позволяет достигать типичных величин ТГц полей порядка десятков кВ/см [64] и обеспечивает наибольшую ширину генерируемого спектра по сравнению с другими источниками [65]: от 100 ТГц до 200 ТГц [66 - 69].

С точки зрения возможных приложений, лазерно-плазменные источники терагерцовых импульсов вызывают интерес по нескольким причинам. Во-первых, газовые среды восстанавливаются. Во-вторых, из-за отсутствия фоновых линий поглощения такие источники позволяют генерировать широкополосное излучение от 0,1 до 200 ТГц [69].

В-третьих, для задач удаленной диагностики объектов возможно создание источника ТГц излучения путем фокусировки лазерного излучения непосредственно перед исследуемым объектом, чтобы избежать поглощения терагерцового излучения в водяных парах при его распространении в воздухе. Однако все перечисленные аргументы в пользу таких источников сопряжены с определенными ограничениями, которые следует учитывать. Например, спектр излучения для таких источников определяется, в первую очередь, длительностью импульсов лазерного излучения. Работы, демонстрирующие спектры ТГц импульсов от 0,1 до 200 ТГц, используют импульсы накачки длительностью около 10 фс, которые образуются благодаря предварительному уширению спектра в волокнах с дополнительным оптическим компрессором, что заметно усложняет конструкцию генератора. Кроме того, для задач визуализации обычно используются спектральные границы в диапазоне 0,1 – 10 ТГц, что в целом делает излишним использование широкополосного ТГц излучения. Формирование источника ТГц излучения непосредственно перед объектом исследования также приводит к наличию высокоинтенсивной оптической накачки и суперконтинуума, которые могут повредить или изменить свойства исследуемого объекта. Кроме того, повышение энергии накачки ведет к насыщению источников, что также накладывает определенные ограничения. Протяженность источника ТГц излучения (плазменного канала) приводит к неоднородному распределению генерируемого излучения по пространству и частоте, что существенно усложняет интерпретацию результатов. Кроме того, в лазерно-плазменных источниках из-за флуктуаций среды существует фактор фазовой нестабильности источника, что уменьшает его потенциальную применимость в различных задачах.

В последние годы возник интерес к изучению возможности генерации терагерцового излучения при облучении жидкостей лазерным излучением. Вода является сильным поглотителем ТГц частот, что приводило к проблемам ее использования в качестве среды для генерации терагерцового излучения. Однако в работе [70] впервые экспериментально продемонстрирована генерация ТГц излучения при облучении тонкого слоя воды фемтосекундным лазерным

излучением. Почти в то же время была также показана возможность генерации терагерцового излучения при облучении фемтосекундным лазерным излучением других жидкостей, таких как этанол, метанол, дихлорэтан, деионизированная вода, дисульфид углерода и наиболее эффективно – ацетон [71]. В работе [71] изучалась зависимость мощности ТГц излучения от энергии лазерного излучения и определялась поляризация генерируемого излучения с последующим измерением его спектра. Высокий интерес к данной работе связан с высокой эффективностью преобразования оптического излучения в терагерцовое, которая достигает единиц процента, а также шириной спектрального диапазона (от 0,1 до 100 ТГц). При использовании энергии лазерного излучения до 28 мДж удалось получить импульсы терагерцового излучения мощностью до 76 мкДж. Пояснением такой высокой эффективности преобразования является чрезвычайно эффективное уширение спектра в жидкостях, при котором значительная часть энергии передается на частоты вокруг второй гармоники основного излучения, что приводит к образованию асимметричного плазменного тока и, следовательно, к генерации терагерцового излучения. Тем не менее, в той же работе отмечается изменение состояния поляризации выходящего терагерцового излучения в результате фазовой самомодуляции излучения накачки [72] в процессе филаментации [47] в жидких средах, что, скорее всего, может быть добавлено к недостаткам использования такого метода генерации. Кроме того, в среде также присутствуют флуктуации плотности и высокие коэффициенты поглощения ТГц излучения, что может приводить к неэффективности использования данных источников.

#### **1.4. ФОТОПРОВОДЯЩАЯ АНТЕННА**

Фоторезистивным эффектом или внутренним фотоэлектрическим эффектом называется изменение электрического сопротивления полупроводника под действием излучения [44].

В случае поглощения света полупроводником, может происходить фотоинициализация локализованных состояний типа примесных атомов, при которой возрастает концентрация носителей заряда только одного типа. В этом случае, неравновесные носители заряда являются основными или неосновными. Так, если неравновесные носители заряда являются неосновными, а их концентрация превосходит темновую концентрацию основных носителей заряда, то изменится тип проводимости, и при фотоинициализации все кинетические явления могут протекать иначе (например, может изменяться знак коэффициента Холла).

Помимо этого, поглощение света колебаниями решетки может привести к возрастанию концентрации носителей лишь в результате вторичного эффекта, когда поглощение света увеличивает концентрацию фононов, отдающих свою энергию на возбуждение носителей заряда. Поглощение света свободными носителями заряда нарушает их равновесное распределение по состояниям, вследствие чего их подвижность может меняться, что в свою очередь также приводит к изменению проводимости. Также, фотоинициализация может привести к экситонному поглощению – созданию связанной пары электрон - дырка, являющейся электрически нейтральным образованием, не увеличивающим непосредственно концентрации носителей заряда.

При освещении полупроводника также может наблюдаться увеличение сопротивления, что происходит в связи с нарушением равновесия между тепловой генерацией и рекомбинацией вблизи поверхности полупроводника, вызванное светом. Это приводит к возрастанию скорости рекомбинации в объеме, куда диффундируют неосновные носители заряда, что приводит к уменьшению концентрации основных носителей заряда и, следовательно, к росту сопротивления.

Полная проводимость полупроводника представляет собой сумму темновой и световой проводимости. В свою очередь величина световой проводимости  $\sigma_{\text{св}}$  зависит от длины волны ( $\lambda$ ) и интенсивности падающего света ( $I$ ), посредством

зависимости скорости генерации  $G$  и времени жизни фотоиндуцированных носителей заряда  $\tau$  (которая также связана со скоростью генерации) от  $\lambda$  и  $I$ .

Одно из наиболее часто используемых устройств для генерации и детектирования ТГц – поля, основанным на эффекте фоторезистивности, является фотопроводящая антенна. Принципиально фотопроводящая антенна состоит из двух металлических электродов, нанесенных на полуизолирующую полупроводниковую подложку на некотором расстоянии друг от друга. На электроды подается электрическое напряжение смещения для генерации импульсов ТГц излучения. Полуизолирующая подложка должна обладать высоким удельным сопротивлением, для обеспечения малых токов утечки, что позволит запасать электрическую энергию в области зазора. Сверхкороткие лазерные импульсы играют роль коммутатора, замыкающего электрический контур, и тем самым способствуя генерации ТГц излучения в результате ускоренного движения носителей. Генерируемое излучение имеет поляризацию, направленную коллинеарно полю смещения. Поляризация генерируемого излучения может быть повернута на  $180^\circ$  путем изменения полярности поля смещения. Как правило, энергия фотонов возбуждающего оптического импульса должна превышать ширину запрещенной зоны подложки. Однако, при создании фотопроводящих антенн стоит учитывать, что спектральная зависимость фоторезистивного эффекта, соответствующего собственному поглощению, отличается от спектров собственного поглощения [44]. Положение границы собственного фоторезистивного эффекта соответствует границе собственного поглощения, однако с ростом энергии фотонов спектральная кривая внутреннего фотоэффекта проходит через максимум, а затем уменьшается, ни смотря на то, что поглощение света в этой области может быть велико. Данное поведение связано со скоростью генерации, которая резко уменьшается по мере прохождения излучения вглубь вещества при сильном его поглощении [44].

Поскольку электроны обычно имеют намного более высокую подвижность, чем дырки, в большинстве случаев вкладом дырок можно пренебречь. В общем

случае плотность тока, обусловленная световой проводимостью, может быть описана следующим образом:

$$J(t) = N(t)e\mu E_{см}, \quad (1.3)$$

где  $N$  — плотность фотоиндуцированных носителей заряда,  $e$  — заряд электрона,  $\mu$  — подвижность электрона,  $E_{см}$  — электрическое поле смещения. Плотность фотоиндуцированных носителей заряда  $N$  — функция времени, вид которой определяется формой лазерного импульса и временем жизни носителей заряда. Так как фототок изменяется во времени, происходит генерация электромагнитного импульса, чье электрическое поле приближенно описывается выражением:

$$E_{ТГц} = \frac{A}{4\pi\epsilon_0 c^2 z} \frac{\partial J(t)}{\partial t} = \frac{Ae}{4\pi\epsilon_0 c^2 z} \frac{\partial N(t)}{\partial t} \mu E_{см}, \quad (1.4)$$

где  $A$  — область в зазоре, засвечиваемая лазерным излучением,  $\epsilon_0$  — диэлектрическая постоянная вакуума,  $c$  — скорость света в вакууме. При выводе выражения (1.4) предполагалось, что точка измерения поля ( $z$ ) расположена на нормали к фотопроводящей антенне и расстояние много больше, чем размеры антенны. При генерации импульсов ТГц излучения происходит перекачка энергии, запасенной в межэлектродном зазоре, в энергию ТГц импульсов. Таким образом, энергия импульса ТГц-излучения не ограничена энергией импульса возбуждающего лазера, и эффективность преобразования оптических квантов в ТГц-кванты может быть больше единицы. Однако энергия импульса ТГц-излучения непосредственно связана с энергией импульса возбуждающего лазера, поскольку, чем больше фотоиндуцированных носителей заряда возбуждается, тем больше запасенной энергии преобразуется в ТГц-излучение [43].

В условиях слабого возбуждения поле импульсного ТГц излучения пропорционально энергии импульса возбуждающего лазера. Фактически,



линейные связи между полем смещения и ТГц-полем, а также между энергией возбуждающего импульса и ТГц-полем, применимы только в случае слабого возбуждения и небольшого поля смещения. В случае фотоинициализации полупроводниковой подложки фотопроводящей антенны, в большинстве случаев, происходит уменьшение сопротивления подложки, и ее можно рассматривать, как проводящую среду.

В результате в области фотовозбуждения происходит экранировка поля смещения, и выражение (1.3) для фототока преобразуется [73]:

$$J(t) = \frac{\sigma(t)E_{\text{см}}}{\frac{\sigma(t)Z_0}{1+n} + 1}, \quad (1.5)$$

где  $\sigma$  — поверхностная проводимость подложки,  $Z_0 = 377 \Omega$  — импеданс вакуума,  $n$  — показатель преломления подложки на длине волны излучения накачки. В приближении линейной рекомбинации избыточная (фотоиндуцированная) концентрация носителей заряда пропорциональна интенсивности света и  $\sigma \sim I_0$  (т.е. фототок пропорционален интенсивности света), где  $I_0$  — интенсивность лазерного излучения. Таким образом, с учетом выражения (1.4) и (1.5), получаем зависимость напряженности электрического поля, генерируемого ТГц излучения:

$$E_{\text{ТГц}} \propto \frac{d\sigma(t)}{dt} \left[ 1 + \frac{\sigma(t)\eta_0}{1+n} \right]^{-2} \propto \frac{I_0}{(1+kI_0)^2}. \quad (1.6)$$

Здесь  $k = \kappa(t)\eta_0/(1+n)$ , где  $\kappa(t) = \sigma(t)/I_0$ .

Выражение (1.6) ясно показывает, что, когда лазерное возбуждение достаточно сильное, импеданс подложки становится сопоставимым с импедансом вакуума и ТГц-поле начинает испытывать насыщение с ростом мощности возбуждающего лазера. Таким образом, для характеристики фотопроводящих

антенн вводится параметр оптической плотности энергии, при которой происходит выход на насыщение генерируемого ТГц излучения ( $F_{\text{нас}}$ ) [74]:

$$F_{\text{нас}} = hv(1+n)/e\mu Z_0(1-R), \quad (1.7)$$

где  $hv$  – энергия оптического фотона,  $e$  – заряд электрона,  $n$  – показатель преломления ТГц излучения,  $\mu$  – подвижность носителей заряда,  $R$  – коэффициент отражения оптического излучения от поверхности полупроводника.

$$\eta = (\tau E_{\text{см}}^2 / 2FZ_0) \cdot \left( \frac{F}{F + F_{\text{нас}}} \right)^2 \quad (1.8)$$

Коэффициент пропорциональности между оптической плотностью энергии и терагерцовой называется эффективностью преобразования оптической энергии в ТГц ( $\eta$ ) [75], где  $\tau$  – длительность ТГц импульса,  $E_{\text{см}}$  – электрическое поле смещения,  $F$  – оптическая плотность энергии, и  $Z_0$  – импеданс свободного пространства.

Соответственно, эффективность преобразования оптического излучения в ТГц, которая описывается следующей формулой (1.8) будет ограничена сверху величиной  $F_{\text{нас}}$  и в пределе перейдет в:

$$\eta = \tau E_{\text{см}}^2 / 8F_{\text{нас}}Z_0 \quad (1.9)$$

Из уравнения (1.9) мы видим, что выбор полупроводникового кристалла имеет решающее значение, поскольку максимальная эффективность преобразования оптического сигнала в ТГц обратно пропорциональна оптической плотности энергии, при которой происходит выход на насыщение, который, в свою очередь, обратно пропорционален подвижности фотоиндуцированных носителей заряда. Как следствие, максимальная ТГц эффективность линейно пропорциональна подвижности фотоиндуцированных носителей заряда. Поскольку максимальная плотность энергии лазера, которую можно использовать

для фотоинициализации широкоапертурных фотопроводящих антенн (когда размер межэлектродной области больше длины волны генерируемого излучения), определяется  $F_{\text{нас}}$ , для более эффективной генерации ТГц излучения потребуется использовать антенну с большей площадью межэлектродной области.

Приведенные выше уравнения показывают, что для эффективной генерации ТГц излучения решающее значение будет иметь выбор подходящего полупроводника в качестве подложки, и возможность прикладывать высокое напряжение смещения  $E_{\text{см}}$  между электродами. Рост поля смещения также имеет свои ограничения, поскольку высокое электрическое поле может привести к диэлектрическому пробоя в подложке. При генерации ТГц излучения пробой фотопроводящей антенны может быть двух типов: пробой, вызванный электрическим полем, и термический пробой. Пробой, вызванный полем, происходит, когда поле смещения выше, чем поле пробоя полупроводникового материала, на примере арсенида галлия эта величина равна  $4 \times 10^5$  В/см. Данный тип пробоя обычно возникает мгновенно из-за стимулированной полем лавины. Тепловой пробой осуществляется за счет нагрева подложки фототоком, текущим внутри нее, как и за счет поглощения фотонов возбуждающего лазера. Нагрев подложки уменьшает ее сопротивление, что приводит к увеличению электрического тока. Тепловой пробой обычно происходит медленно и может продолжаться несколько секунд или даже минут. Большинство случаев пробоя фотопроводящих антенн при генерации ТГц излучения являются тепловыми, за исключением антенн с очень маленьким зазором или высоким напряжением смещения. Тепловой пробой фотопроводящих антенн требует поиска баланса между интенсивностью возбуждающего лазера и максимальным напряжением смещения. Применение специальной обработки или нанесение покрытия на поверхности подложки может увеличить ее диэлектрическую стойкость и, следовательно, увеличить эффективность генерации ТГц излучения.

Далее, на примере работ других групп по данной тематике будут рассмотрены результаты по генерации ТГц излучения широкоапертурными фотопроводящими антеннами.

Исторически наиболее широко используемым полупроводником для подложки фотопроводящих антенн был арсенид галлия (GaAs), в связи с его подходящими электрическими и оптическими свойствами для данной задачи. Кристаллы GaAs имеют высокую подвижность носителей и ширину запрещенной зоны 1,44 эВ, что позволяет создавать в нем носители заряда с помощью Ti:сапфировых лазеров. Однако его относительно низкое поле пробоя (около 10 кВ/см), при использовании в качестве подложки фотопроводящей антенны ограничивает максимальное поле смещения, которое может быть приложено, тем самым ограничивая максимальную мощность излучаемого ТГц импульса. Следует отметить, что хотя высокие ( $>100$  кВ/см) поля смещения используются с фотопроводящими антеннами на основе низкотемпературного арсенида галлия (LT-GaAs) [76], такие высокие поля возможны только при небольших ( $\sim 10$  мкм) размерах межэлектродного зазора. Для фотопроводящих антенн с зазорами в несколько миллиметров носители будут ускоряться до достаточно высоких энергий, чтобы вызвать повреждение полупроводниковой подложки. Еще одним ограничением GaAs является его термодеградация [77].

Недавние исследования были сосредоточены на преодолении ограничений, связанных со свойствами материала, и увеличении излучаемой мощности ТГц-импульсов фотопроводящими антеннами. Одно из решений включает использование широкозонного полупроводника с подходящими тепловыми и электрическими свойствами. Например, были проведены исследования со следующими твердотельными средами: алмаз [78], ZnO [79] и GaN [80]. Однако эти кристаллы имеют ширину запрещенной зоны более 3,1 эВ, что, в свою очередь, требует по крайней мере третьей гармоники титан-сапфирового лазера для создания фотоиндуцированных носителей заряда, что снижает их привлекательность для практического применения. Селенид цинка (ZnSe) — еще один широкозонный полупроводниковый кристалл, который интенсивно изучается. Ширина его запрещенной зоны 2,7 эВ, что позволяет создавать в нем носители заряда второй гармоникой (400 нм) титан-сапфирового лазера [81] и посредством двухфотонного поглощения лазерного импульса на длине волны

800 нм [81, 82]. Одним из недостатков ZnSe для использования в качестве подложки широкоапертурной фотопроводящей антенны является то, что он имеет термические свойства, аналогичные GaAs, что со временем может привести к быстрому ухудшению характеристик антенны. Также были проведены эксперименты с использованием полупроводниковых кристаллов карбида кремния (6H- и 4H-SiC) [83], при этом было отмечено их превосходное термическое качество по сравнению с кристаллами ZnSe. В работе [83] было продемонстрировано, что для создания фотовозбужденных носителей заряда в кристаллах 4H-SiC необходимо использовать вторую гармонику титан-сапфирового лазера, в то время, как для кристаллов 6H-SiC достаточно основной гармоники. Эти исследования показали, что фотопроводящие антенны на основе 6H-SiC более эффективны (в 2,3 раза), по сравнению с антеннами на основе ZnSe.

Для генерации ТГц импульсов с большими пиковыми значениями напряженности электрических полей фотопроводящие антенны с копланарной полосковой геометрией электродов (с двумя электродами) требуют больших поверхностей для фотоинициализации, а также источников высокого напряжения, работающих в диапазоне десятков киловольт. Чтобы избежать таких трудностей, используют геометрию встречно-штыревых электродов, что является альтернативным способом снизить прикладываемое напряжение смещения (и, следовательно, потребность в источнике высокого напряжения), сохраняя при этом большую апертуру для освещения [84]. В фотопроводящих антеннах со встречно-штыревыми электродами соседние элементы излучают ТГц импульсы с противоположной полярностью, и, таким образом, в дальней зоне будет наблюдаться картина деструктивной интерференции. Во избежание данной картины используются методы подавления генерации ТГц излучения в противофазе путем наложения масок или обеспечением неоднородности засветки межэлектродной области.

Встречно-штыревые электроды имеют множество преимуществ по сравнению с простой геометрией, состоящей из двух электродов. Использование встречно-штыревой геометрии позволяет прикладывать большие поля

смещения [85] и уменьшить термоэффекты в полупроводнике за счет наложения маски [85, 86]. С другой стороны, эти структуры имеют некоторые ограничения. Например, если размер зазора слишком мал (менее 100 мкм для GaAs), фотопроводящая антенна работает в режиме экранирования объемного заряда, насыщающего излучаемое поле [87, 88]. Применение теневой маски также ограничивает максимальную эффективность антенн, поскольку затеняется не менее половины общей площади. Как следствие, если сравнивать характеристики обычной широкоапертурной антенны (с двумя электродами) антенной со встречно-штыревой геометрией (с одинаковой площадью засветки, одинаковым полем смещения и облучаемые одинаковой плотностью оптической энергии), антенна с двумя электродами будет излучать ТГц импульсы с большим пиковым значением напряженности электрического поля [85].

Были предложены некоторые решения для повышения производительности фотопроводящих антенн с встречно-штыревой геометрией электродов (использовали фазовую маску вместо теневой) [86]. Подобный подход заключается в замене теневой области стеклянными пластинами, расположенными поверх каждой четной области на антенне. Подобный подход позволяет возбуждать соседние области антенны с задержкой по времени, что приводит к конструктивной интерференции, тем самым увеличивается мощность генерируемого ТГц излучения.

Другим потенциальным решением повышения эффективности ТГц преобразования является использование плазмонных структур. Наноразмерные плазмонные структуры уменьшают средний путь пробега фотоиндуцированных носителей [89]. Использование этого метода увеличивает излучаемую ТГц мощность в 50 раз по сравнению с обычными фотопроводящими антеннами [90]. Однако к недостаткам таких антенн можно отнести сложность их изготовления.

Основным преимуществом фотопроводящих антенн (ФПА) для генерации ТГц излучения является их относительно высокая средняя мощность, фазовая стабильность, а также возможность управления параметрами генерируемого излучения посредством оптического возбуждения и электрического поля

смещения. Помимо этого, широкоапертурные фотопроводящие антенны могут работать в режиме насыщения, когда мощность генерируемых ТГц импульсов меньше зависит от изменения интенсивности излучения накачки. Следовательно, нестабильность излучения лазера оказывает меньшее влияние на генерируемый ТГц сигнал, получаемый от фотопроводищей антенны по сравнению с методами ТГц генерации, в которых используются нелинейные оптические эффекты. Кроме того, использование широкоапертурных антенн потенциально позволяет использовать их для пространственной модуляции генерируемого ТГц излучения путем обеспечения неоднородности засветки межэлектродной области. Помимо прочего, использование широкоапертурных фотопроводящих антенн позволяет генерировать ТГц излучение даже при относительно низкой частоте повторения лазерного излучения (10 Гц). Также стоит отметить, что применение широкоапертурных фотопроводящих антенн является недорогим решением с коммерческой точки зрения, что делает их привлекательными для решения практических задач.

## 2. ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ШИРОКОАПЕРТУРНЫХ ФОТОПРОВОДЯЩИХ АНТЕННАХ

Фотопроводящие антенны (ФПА) являются одними из наиболее часто используемых источников импульсного излучения терагерцового (ТГц) диапазона. Принцип работы ФПА основан на использовании тока фотовозбужденных носителей, создаваемых излучением фемтосекундного лазера накачки в материале подложки, в присутствии сильного внешнего электрического поля [91, 92]. Несмотря на то, что импульсы с наибольшей пиковой интенсивностью ТГц поля создаются с помощью источников излучения основанных на оптическом выпрямлении в нелинейных кристаллах [93] или плазме [94], широкоапертурные ФПА также могут обеспечивать генерацию достаточно мощных ТГц импульсов [95, 74]. Основными особенностями излучения, генерируемого широкоапертурными фотопроводящими антеннами, являются квазиполупериодичность импульса и преобладание низкочастотных компонент в спектре импульса. Использование таких источников высокоинтенсивных ТГц полей представляет интерес для множества современных применений [74, 96], таких, как ионизация ридберговских атомов и высокочастотная генерация, которые недавно были продемонстрированы с использованием накачки широкоапертурными ФПА [97, 98].

Амплитуду напряженности генерируемого ТГц поля можно увеличить за счет увеличения напряжения смещения, прикладываемого к фотопроводящей подложке. Поэтому материалы с высокой диэлектрической прочностью представляют интерес для создания ФПА. На данный момент поиск и исследование перспективных фотопроводящих материалов, обладающих высокой диэлектрической плотностью и высоким коэффициентом оптического поглощения в области длин волн генерации наиболее широко распространенных лазерных систем, является основным направлением для создания мощных широкоапертурных фотопроводящих антенн на их основе [99, 78, 83].



## **2.1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ИМПУЛЬСОВ ТЕРАГЕРЦОВОГО ДИАПАЗОНА ПРИ ФОТОВОЗБУЖДЕНИИ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В КРИСТАЛЛЕ ДИФОСФИДА ЦИНКА-ГЕРМАНИЯ ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ**

Одним из перспективных материалов для создания ФПА является кристалл дифосфида цинка-германия ( $\text{ZnGeP}_2$  (ZGP)). Данный материал часто используется как нелинейная оптическая среда в среднем ИК и ТГц диапазоне. Однако, он не был исследован для задач генерации ТГц излучения за счет эффекта фотопроводимости. Ширина его запрещенной зоны равна 2,2 эВ, что (к примеру, по сравнению с ZnSe) позволяет возбуждать данный полупроводник не только первой и второй гармоникой Ti:Sa лазера, но и второй гармоникой Yb:KGW и Yb-волоконного лазера, что позволит уменьшить габариты импульсного ТГц излучателя.

### **2.1.1. КРИСТАЛЛ ДИФОСФИДА ЦИНКА-ГЕРМАНИЯ**

Кристалл  $\text{ZnGeP}_2$  является нелинейным положительным ( $n_e > n_o$ ) одноосным кристаллом с кристаллической решёткой типа Халькопирит. Монокристаллы  $\text{ZnGeP}_2$  имеют сравнительно высокое значение нелинейной восприимчивости  $d = 70 \cdot 10^{-12} - 85,4 \cdot 10^{-12}$  м/В [100]. Данный кристалл является высокоомным полупроводником с дырочной проводимостью. Концентрация свободных дырок в  $\text{ZnGeP}_2 \sim 2,5 \cdot 10^{19}$  см<sup>-3</sup> [101]. Максвелловское время релаксации носителей заряда  $\tau_m = 230$  мс и величина диффузионной длины фотоносителей  $LD = 1$  мкм [102].

В качестве подложки фотопроводящей антенны использовался кристалл ZGP диаметром 30 мм и толщиной 5 мм. Кристалл был выращен вертикально методом Бриджмена из соединения, синтезированного ранее двухтемпературным

методом на затравочном кристалле с ориентацией  $\langle 100 \rangle$  [103]. Образец для экспериментальных измерений вырезался вдоль оси кристалла в виде плоскопараллельной пластины, ориентированной параллельно плоскости (001). Все поверхности образца оптически отполированы. Измеренное значение поверхностного поля пробоя составило 70 кВ/см, а величина объемного сопротивления:  $470 \cdot 10^6$  Ом·см. Величина объемного сопротивления сильно зависит от условий изготовления кристалла. Для сравнения, величина объемного сопротивления пленки ZnSe, выращенной при комнатной температуре методом Ван-дер-Пау, составляет  $10^5$  Ом·см.

### **2.1.2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА ПО ГЕНЕРАЦИИ И ДЕТЕКТИРОВАНИЮ ТЕРАГЕРЦОВЫХ ИМПУЛЬСОВ**

На рисунке 1 продемонстрирована схема экспериментальной установки по генерации и детектированию терагерцовых импульсов. Излучение Ti:Sa лазера (Coherent Legend Elite; энергия импульса 3,2 мДж, частота повторения 1 кГц, длительность импульса 130 фс, центральная длина волны 800 нм, диаметр пучка по уровню  $1/e^2$  10 мм), проходя через светоделитель, разделялось на две части. Прошедшая через светоделитель часть излучения использовалась далее для генерации ТГц излучения в антенне. Антенна в свою очередь состояла из полупроводниковой подложки, с нанесенными на нее электрическими контактами из алюминиевого токопроводящего скотча. Продольный размер электродов составлял 12 мм, а ширина зазора между ними: 4 мм. Импульс напряжения смещения с амплитудой 2 кВ (что соответствует полю смещения 5 кВ/см) и длительностью  $\sim 10$  нс подавался на электроды, при помощи генератора высоковольтных импульсов. Частота повторения высоковольтных импульсов устанавливалась 500 Гц для минимизации шумов от лазерного излучения на 1 кГц при детектировании ТГц импульсов [104].

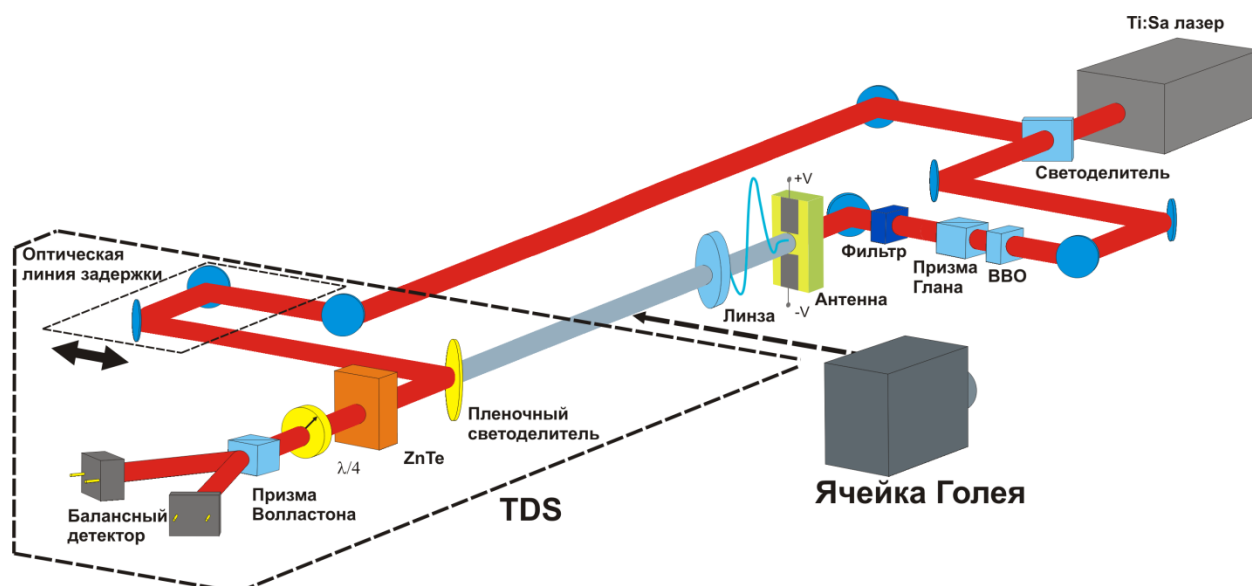


Рисунок 1 – Экспериментальная установка по генерации и детектированию терагерцовых импульсов с использованием фотопроводящей антенны.

Поскольку антенна облучалась не только первой, но и второй гармоникой лазерного излучения, был использован кристалл бета - бората бария (BBO) (I-тип синхронизма, толщина кристалла составляла 200 мкм) для генерации второй гармоники. Энергия лазерного импульса после преобразования частоты составляла 0,3 мДж. Далее, для изменения энергии оптического импульса, использовалась призма Глана и оптический фильтр для поглощения излучения основной гармоники.

В экспериментах по измерению временной зависимости напряженности электрического поля терагерцового импульса (спектроскопия временного разрешения (time-domain spectroscopy (TDS))), ТГц пучок от фотопроводящей антенны фокусировался тефлоновой линзой ( $f = 100$  мм) на кристалл теллурида цинка (ZnTe) (толщина кристалла составляла 0,5 мм, срез  $\langle 110 \rangle$ ). Отраженный от первого светоделителя оптический пучок направляется в линию задержки для электрооптического стробирования ZnTe. Регистрация временной зависимости напряженности ТГц импульса производилась балансным детектором, подключенным к синхронному детектору (опорная частота которого была 500 Гц).

Для измерения зависимости энергии импульса ТГц излучения от оптической энергии вместо TDS системы в качестве детектора излучения использовалась ячейка Голя (Tydex GC-1P), подключенная к синхронному детектору (опорная частота которого была 10 Гц). При этом лазерное и терагерцовое излучение было промодулировано с частотой 10 Гц.

### 2.1.3. ИЗМЕРЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК ИЗЛУЧЕНИЯ ОТ ШИРОКОАПЕРТУРНЫХ АНТЕНН НА ОСНОВЕ ZGP

Измеренная временная зависимость электрического поля терагерцового импульса, полученного при помощи фотопроводящей антенны на основе ZGP, представлена на рисунке 2 (а). На полученной зависимости видно положительную часть импульса, и в два раза меньшую отрицательную часть. Импульсы схожей формы были получены с использованием фотопроводящих антенны на основе ZnSe в подобной геометрии [83]. На рисунке 2 (б) представлен спектр ТГц импульса, полученный путем Фурье преобразования временной зависимости напряженности поля. Видно, что полученный спектр содержит частотные компоненты вплоть до 3 ТГц с максимумом на 0,5 ТГц.

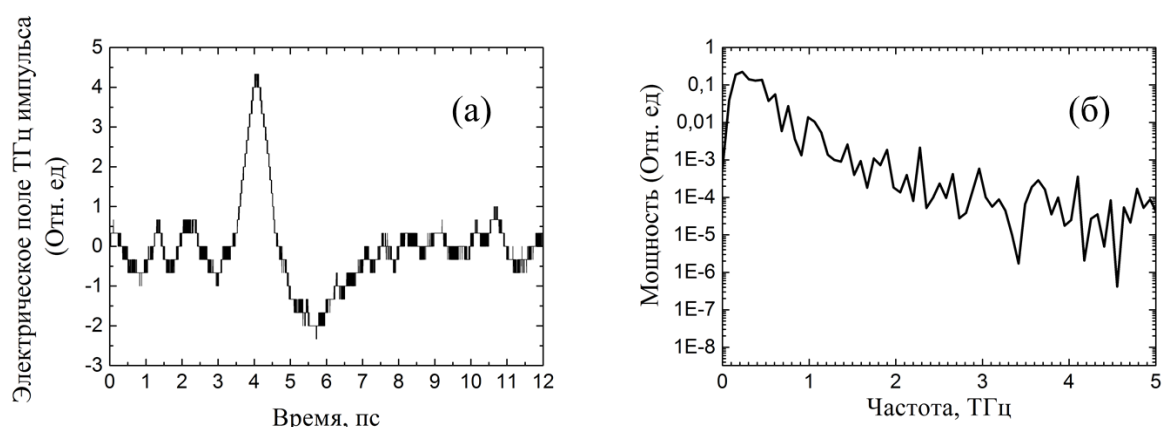


Рисунок 2 – (а) Временная зависимость напряженности электрического поля ТГц импульса; (б) спектр ТГц импульса.

Зависимость энергии терагерцового импульса от энергии оптического импульса представлена на рисунке 3. Из рисунка 3 видно, что происходит рост энергии ТГц излучения с увеличением оптической энергии с дальнейшим выходом на насыщение. Для определения оптической плотности энергии насыщения ZGP подложки, в предположении неоднородной засветки области между электродами оптическим пучком с Гауссовым распределением профиля интенсивности, была построена аналитическая зависимость, которой аппроксимировались экспериментальные данные. Пусть оптическая плотность энергии описывается следующей формулой:  $F(r) = (2W_{\text{опт}} / \pi r_0^2) \cdot \exp(-2r^2 / r_0^2)$ , где  $W_{\text{опт}}$  – оптическая энергия  $r_0$  – радиус Гауссова пучка по уровню  $1/e^2$ . Распределение терагерцовой плотности энергии описывается следующим выражением:  $F_{\text{ТГц}}(r) = F(r) \cdot \eta(r)$ . Коэффициент пропорциональности между оптической плотностью энергии и терагерцовой называется эффективностью преобразования оптической энергии в ТГц ( $\eta$ ), и выражается следующей формулой [75]:

$$\eta = (\tau E_{\text{см}}^2 / 2FZ_0) \cdot \left( \frac{F}{F + F_{\text{нас}}} \right)^2, \quad (2.1)$$

где  $\tau$  – длительность ТГц импульса,  $E_{\text{см}}$  – электрическое поле смещения,  $F$  – оптическая плотность энергии, и  $Z_0$  – импеданс свободного пространства. Оптическая плотность энергии насыщения выражается следующей формулой [105]:

$$F_{\text{нас}} = h\nu (1 + n) / e\mu Z_0 (1 - R), \quad (2.2)$$

Уравнение (2.2) определяет какой оптической энергией надо облучить фотопроводящую антенну, чтобы извлечь четверть от максимальной ТГц энергии. В формуле для оптической плотности энергии насыщения:  $h\nu$  – энергия оптического фотона,  $e$  – заряд электрона,  $n$  – показатель преломления ТГц излучения,  $\mu$  – подвижность носителей заряда,  $R$  – коэффициент отражения

оптического излучения от поверхности полупроводника. Таким образом, полная энергия ТГц излучения будет описываться следующей формулой:

$$W_{\text{ТГц}} = \beta \int_S F_{\text{ТГц}}(r) dS, \quad (2.3)$$

где интегрирование ведется по области между электродами ( $4 \times 12$  мм (см. раздел 2.1.2)). Размерный коэффициент  $\beta$  определяет поглощение энергии ТГц импульса в подложке антенны, отражение и другие факторы, влияющие на уменьшение энергии излученного импульса. Длительность ТГц импульса в расчетной зависимости принималась равной  $\tau = 1$  пс (поскольку это некоторая характерная величина длительности ТГц импульса), а диаметр оптического пучка принимался равным 10 мм по уровню  $1/e^2$ .

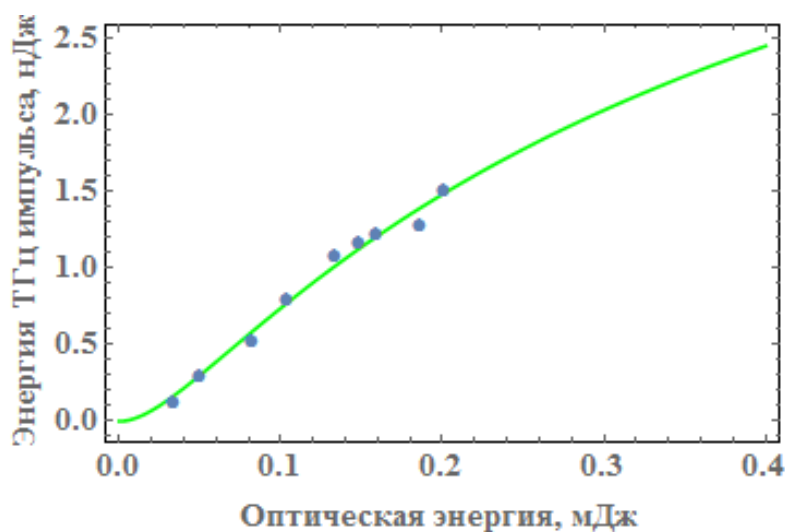


Рисунок 3 – Зависимость энергии ТГц импульса от оптической, излученной фотопроводящей антенной на основе ZGP (экспериментальные значения (точки), аппроксимация (сплошная линия)).

На рисунке 3 показаны экспериментальные данные и аппроксимационная кривая, полученная с использованием уравнения (2.3), где  $\beta$  и  $F_{\text{нас}}$  являлись параметрами. Таким образом, была определена величина оптической плотности энергии насыщения  $F_{\text{нас}}$ , которая составила:  $F_{\text{нас}} = 0,27$  мДж / см<sup>2</sup>; и коэффициент

$\beta$ , который составил:  $\beta = 0,4$ . В качестве сравнения приведем значения оптической плотности энергии насыщения для фотопроводящих антенн на основе других полупроводников:  $F_{\text{нас}} = 0,0105$  мДж / см<sup>2</sup> для GaAs [83],  $F_{\text{нас}} = 0,150$  мДж / см<sup>2</sup> для ZnSe [83], и  $F_{\text{нас}} = 0,24$  мДж / см<sup>2</sup> для 6H-SiC [83]. Если предполагать, что ослабление ТГц энергии происходит только за счет поглощения ТГц импульса в полупроводнике, можно рассчитать линейный коэффициент поглощения данного полупроводникового материала. Принимая во внимание толщину кристалла ZGP ( $L = 0,5$  см), используя закон Бугера-Ламберта-Бера ( $\alpha = -\ln(\beta) / L$ ), коэффициент поглощения равен  $\alpha = 1,8$  см<sup>-1</sup>. Сравнивая полученный коэффициент поглощения со значением, полученным в статье [106] ( $\alpha = 1$  см<sup>-1</sup> на 1 ТГц), можно предположить, что все потери связаны с поглощением ТГц излучения в полупроводнике. Используя уравнение (2.2), можно рассчитать подвижность носителей заряда. Показатель преломления оптического излучения ZGP  $n \sim 3,5$  [107], соответственно коэффициент отражения  $R \sim 0,3$ . Показатель преломления ZGP на 1 ТГц равен  $n = 3,4$  [106]. Таким образом подвижность носителей будет равна  $\mu \approx 230$  см<sup>2</sup>/В·с для величины оптической плотности энергии насыщения равной  $F_{\text{нас}} = 0,27$  мДж / см<sup>2</sup>. Полученная величина подвижности носителей, с учетом погрешности вычисления, находится в хорошем соответствии со значением, полученным в статье [108].

#### **2.1.4. ГЕНЕРАЦИЯ ТГц ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ФОТОПРОВОДЯЩЕЙ АНТЕННЫ НА ОСНОВЕ ZGP ПЕРВОЙ И ВТОРОЙ ГАРМОНИКОЙ ТИТАН – САПФИРОВОГО ЛАЗЕРА**

Были проведены эксперименты по возбуждению фотопроводящей антенны на основе ZGP выше (400 нм) и ниже (800 нм) ширины запрещенной зоны полупроводниковой подложки. На рисунке 4 представлены экспериментальные данные зависимости энергии ТГц импульса от оптической энергии. Было измерено количество энергии, прошедшей через полупроводник без поглощения на длине волны 800 нм, эта величина составила  $\sim 1\%$  от падающего излучения.

Таким образом, можно судить о том, что на 800 нм происходит объемное поглощение полупроводниковой подложкой, тогда как на 400 нм происходит в основном только поверхностное поглощение оптического излучения. Из рисунка 4, что при одних и тех же оптических энергиях на 400 нм и 800 нм, излученная энергия ТГц импульса больше в случае возбуждения 400 нм.

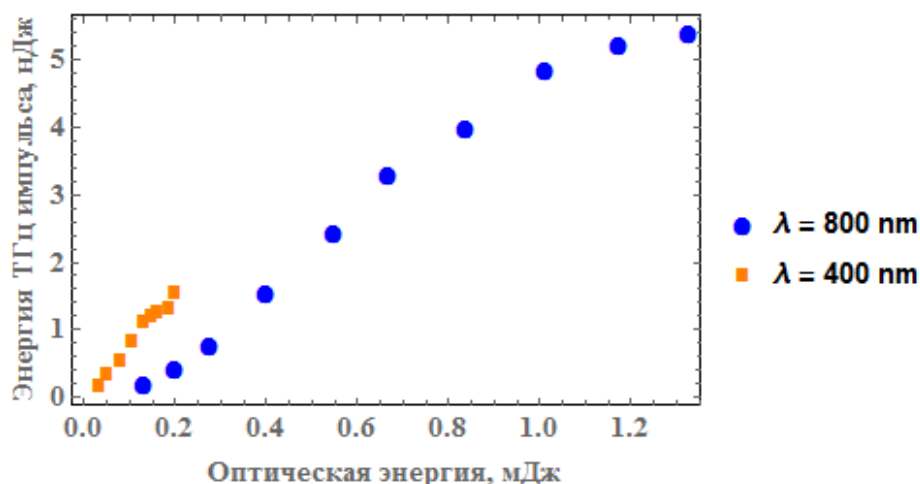


Рисунок 4 – Зависимость энергии ТГц импульса, излученной фотопроводящей антенной на основе ZGP, от оптической энергии для двух длин волн падающего излучения.

### 2.1.5. ZGP С ОСТАТОЧНЫМИ КОМПОНЕНТАМИ СИНТЕЗА

Поскольку в результате синтеза материала могут оставаться остаточные компоненты синтеза, были проведены исследования по генерации ТГц излучения антеннами на основе ZGP с остаточными компонентами синтеза. На рисунке 5 приведены экспериментальные данные зависимости энергии ТГц импульса от оптической энергии и аппроксимационные зависимости для набора полупроводниковых подложек фотопроводящей антенны. В серии данных экспериментов антенны возбуждалась оптическим излучением с длиной волны 400 нм. Для всех подложек было получено значение подвижности носителей (методом, описанным выше). Из рисунка 5 видно, что для подложек антенн с



остаточными компонентами синтеза подвижность носителей будет равна  $\mu \approx 230 \pm 100 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$  для величины оптической плотности энергии насыщения равной  $F_{\text{нас}} = 0,27 \pm 0,13 \text{ мДж} / \text{см}^2$ .

Также было проведено сравнение фотопроводящей антенны на основе ZGP и на основе ZnSe (толщиной 0,5 см) (Рисунок 5). Антенна на основе ZnSe исследовалась при тех же параметрах оптического излучения, ширины зазора и напряжении смещения, что и антенна на основе ZGP. Было установлено, что энергии ТГц импульсов от антенн сопоставимы.

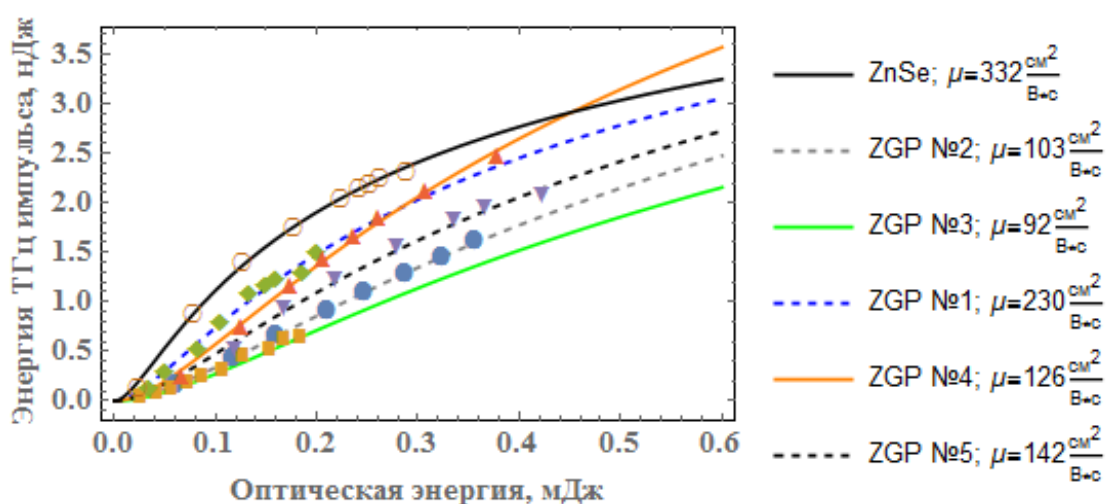


Рисунок 5 – Зависимости энергии ТГц импульса от оптической, для фотопроводящих антенн на основе ZGP с остаточными компонентами синтеза; и антенны на основе ZnSe.

## 2.2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ИМПУЛЬСОВ ТЕРАГЕРЦОВОГО ДИАПАЗОНА ПРИ ФОТОВОЗБУЖДЕНИИ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В ОРГАНО-НЕОРГАНИЧЕСКИХ ГАЛОГЕНИДНЫХ ПЕРОВСКИТАХ ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

Гибридные органо-неорганические перовскиты - это новый тип полупроводников, на основе которых могут быть созданы дешевые и высокопроизводительные солнечные элементы. Эффективность преобразования

энергии перовскитных солнечных элементов резко выросла с 3,8% до > 25% [109–112] менее чем за десять лет и теперь конкурирует с хорошо изученными традиционными солнечными элементами на основе селенида меди-индия-галлия (CIGS), теллурида кадмия (CdTe) и кремния (Si). Как экспериментальные измерения, так и теоретические расчеты показывают, что  $\text{MAPbI}_3$  и родственные материалы, такие как  $\text{MAPbI}_{3-x}\text{Br}_x$  ( $\text{MAPbIBr}_3$ ), имеют ширину запрещенной зоны в диапазоне 1,1–2,1 эВ, что соответствует области видимого света [113]. Величина оптического поглощения данных материалов сопоставима с другими классическими полупроводниками, такими как GaAs, InP и CdTe. Эти гибридные материалы также демонстрируют относительно высокую подвижность электронов и дырок и быструю генерацию электронно-дырочных пар. Кроме того, диффузионная длина носителей составляет более 1 мкм, что свидетельствует о низкой концентрации глубоких дефектов [114].

Недавние эксперименты по генерации сверхбыстрых фототоков в галогенидных перовскитах, возбуждаемых фемтосекундным лазером, продемонстрировали потенциальную применимость гибридных материалов для ТГц оптоэлектроники [114–120]. Однако свойства гибридных перовскитов, хорошо изученные в оптическом диапазоне [121], все же остаются почти полностью неизученными для применения в ТГц диапазоне.

### 2.2.1. СИНТЕЗ ГИБРИДНЫХ ПЕРОВСКИТОВ

Синтез из растворов, содержащих прекурсоры перовскита, проводили по хорошо разработанным методикам [122]. Раствор метиламмоний бромид свинца ( $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ ) был приготовлен из:  $\text{PbBr}_2$  (293,6 мг) и  $\text{MABr}$  (89,57 мг), растворенных в 1 мл смеси безводного диметилформамид (DMF) и диметилсульфоксид (DMSO) (в пропорции 7:3). Раствор метиламмоний йодида свинца ( $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ ) был приготовлен из: йодид свинца (II) ( $\text{PbI}_2$ ) (461,01 мг) и  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$  MAI (158,97 мг), растворенных в 1 мл смеси безводного DMF и DMSO

(в пропорции 9:1). Все растворы были приготовлены в перчаточной камере, заполненной азотом, при концентрации 0,1 промилле  $O_2$  и  $H_2O$ .

Растворы  $CH_3NH_3PbBr_3$  и  $CH_3NH_3PbI_3$  наносились на стеклянные подложки размером  $1,5 \times 1,5$  см, которые обрабатывались ультразвуком в ацетоне и 2-пропаноле в течение 5 минут, а затем промывались деионизированной водой, сушились сухим воздухом и, наконец, очищались  $O_3$  в течение 10 минут.

Нанесение покрытия методом центрифугирования: сначала центрифуга достигала скорости 500 оборотов в 5 сек и сохраняла свою скорость в течение 20 сек; затем центрифуга ускорялась до 3000 оборотов в 3 сек и поддерживалась в таком режиме 17 сек. На 3-й секунде второго цикла (6-я секунда для  $MAPbBr_3$ ) на подложку капает 0,5 мл безводного диэтилового эфира. Пленки отжигались на горячей плите при  $50^\circ C$  в течение 1 мин, а затем при  $100^\circ C$  в течение 10 мин.

Морфология полученных пленок поликристаллического перовскита была охарактеризована с использованием методов рентгеновской дифракции (XRD) и сканирующей электронной микроскопии (SEM). На рисунке 6 показаны типичные спектры XRD и SEM-изображения синтезированных пленок  $MAPbI_3$  и  $MAPbBr_3$ .

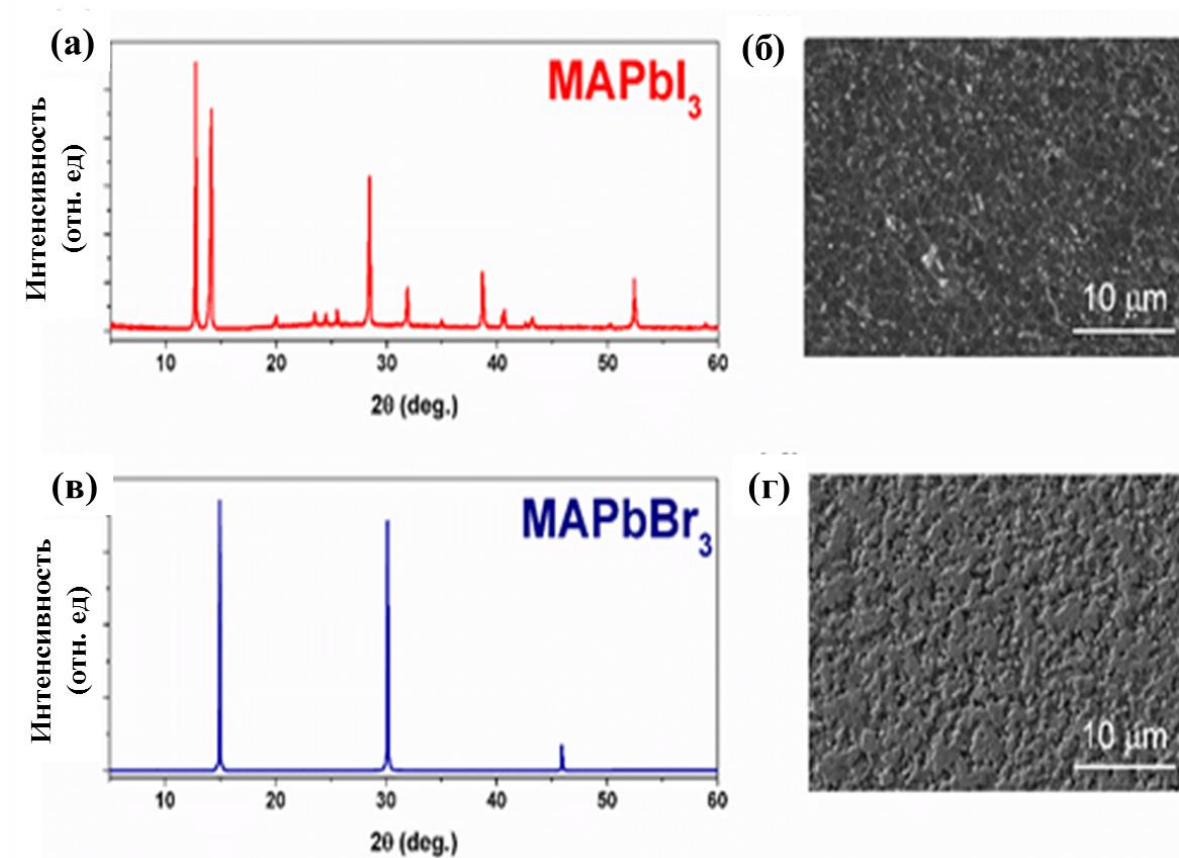


Рисунок 6 – Типичные спектры XRD и SEM - изображения изготовленных поликристаллических пленок  $\text{MAPbI}_3$  (а, б) и  $\text{MAPbBr}_3$  (в, г).

### 2.2.2. ХАРАКТЕРИЗАЦИЯ ПЕРОВСКИТОВ

Линейное оптическое поглощение перовскитов измерялось с помощью спектрометра PerkinElmer Lambda 950. Для исследования фотолюминесцентных свойств, использовалась интегрирующая сфера, в центре которой находился образец под углом 45 градусов относительно падающего лазерного луча. В качестве источника мы использовали полупроводниковый лазерный диод (DMO450-180) с длиной волны 405 нм и размером пятна примерно 0,2 см по уровню  $1/e$ .

Поликристаллические тонкие пленки толщиной  $\sim 600$  нм охарактеризованы при помощи спектроскопии оптического поглощения и фотолюминесценции (ФЛ). На рисунке 7 (а) представлены спектры поглощения в видимой области

пленок  $\text{MAPbI}_3$  и  $\text{MAPbBr}_3$ . Спектры фотолюминесценции, полученные от  $\text{MAPbI}_3$  и  $\text{MAPbBr}_3$ , возбуждаемых непрерывным диодным лазером с длиной волны 400 нм, и зависимости пиковой интенсивности фотолюминесценции от плотности энергии накачки показаны на рисунке 7 (б).

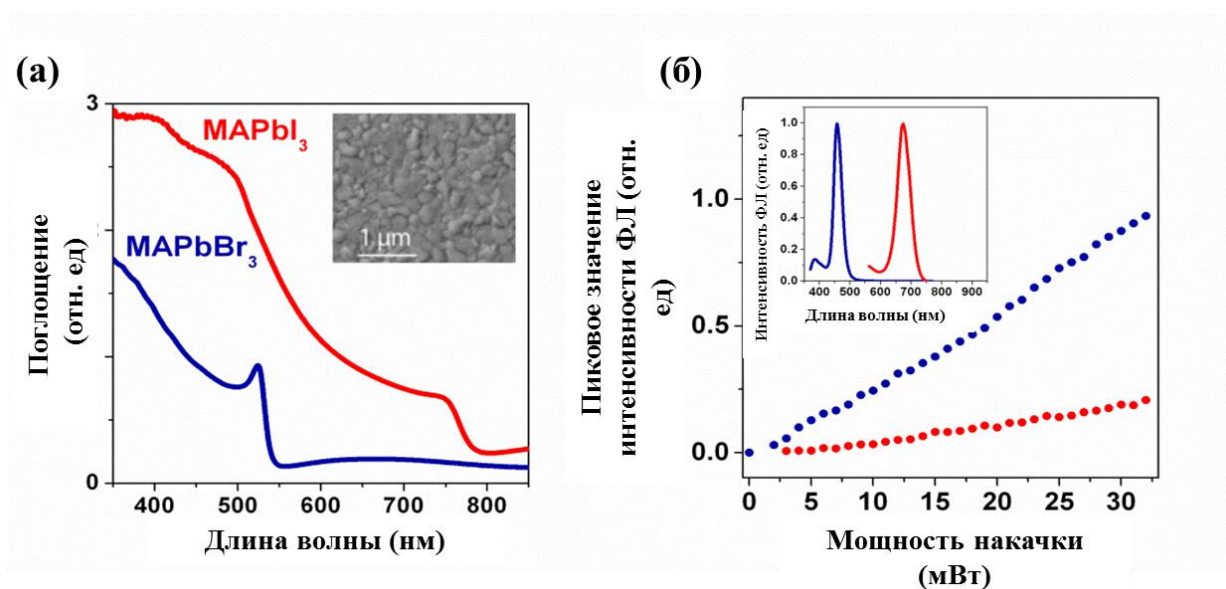


Рисунок 7 – Стационарные оптические свойства синтезированных поликристаллических пленок  $\text{MAPbI}_3$  и  $\text{MAPbBr}_3$ , помещенных на стеклянные подложки. а) спектры оптического поглощения; На вставке показано типичное изображение пленки  $\text{MAPbI}_3$  с помощью SEM; (б) спектры фотолюминесценции, полученные при возбуждении лазерным диодом 400 нм; (б) Зависимость интенсивности пиков фотолюминесценции от мощности накачки. Синий и красный цвета соответствуют образцам  $\text{MAPbBr}_3$  и  $\text{MAPbI}_3$  соответственно. На вставке показаны соответствующие нормированные спектры ФЛ.

### 2.2.3. ИЗМЕРЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК ИЗЛУЧЕНИЯ ОТ ШИРОКОАПЕРТУРНЫХ АНТЕНН НА ОСНОВЕ ПЕРОВСКИТОВ

Были проведены эксперименты по измерению временной зависимости напряженности электрического поля ТГц импульсов, генерируемых фотопроводящими антеннами на основе метиламоний бромида свинца ( $\text{MAPbBr}_3$ )

и метиламоний йодида свинца ( $\text{MAPbI}_3$ ), при их фотоинициализации первой (800 нм) и второй (400 нм) гармоникой титан-сапфирового лазера. На рисунке 8 представлены измеренные зависимости.

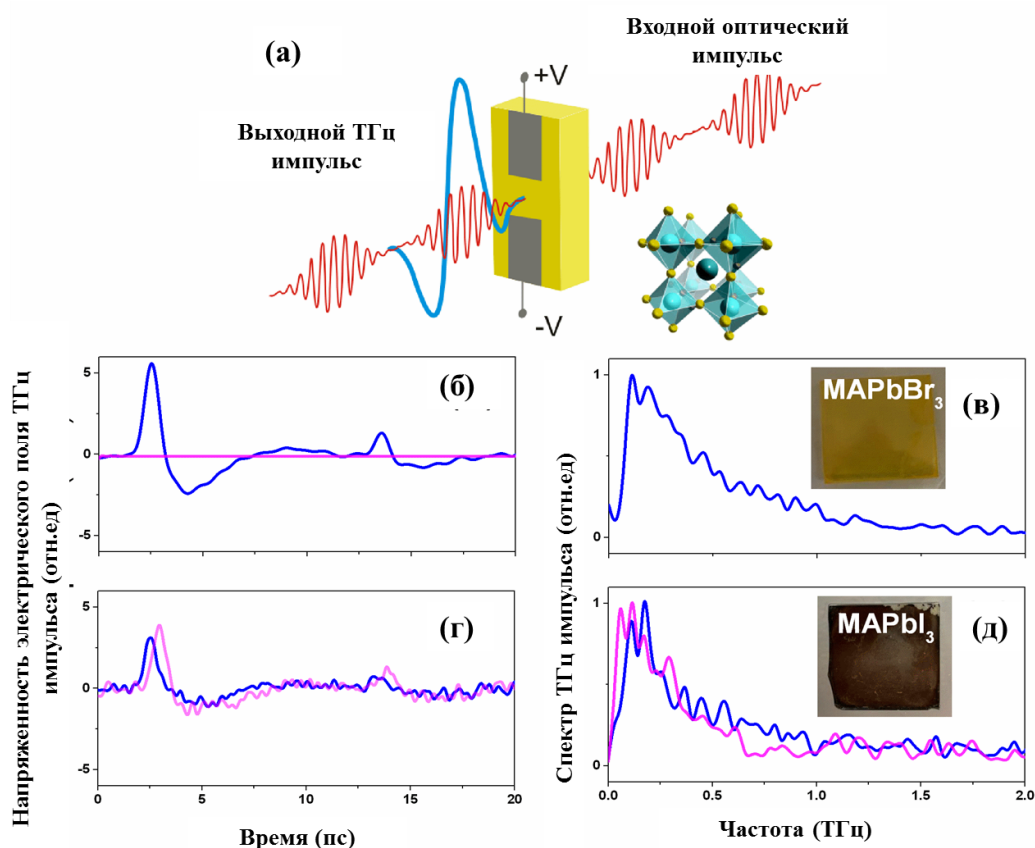


Рисунок 8 – (а) Схема ТГц излучения от фотопроводящей антенны на основе перовскитов. Временные формы сигналов напряженности электрического поля терагерцевого импульса от  $\text{MAPbI}_3$  (б) и  $\text{MAPbBr}_3$  (г) и соответствующие им спектры (в, д), полученные при возбуждении на длинах волн 400 нм (синий цвет) и 800 нм (пурпурный).

Для двух материалов подложек, независимо от длины волны возбуждения, были получены квази-униполярные ТГц импульсы длительностью  $\sim 1$  пс. Полученные временные зависимости ТГц импульса типичны для широкоапертурных фотопроводящих антенн.

Были проведены измерения зависимости энергии ТГц импульса от оптической энергии. На рисунке 9 (а) представлены экспериментальные зависимости для антенн на основе  $\text{MAPbBr}_3$  и  $\text{MAPbI}_3$ , полученные при длине

волны оптической накачки 400 нм. Сплошными линиями на рисунке 9 (а) представлены аппроксимационные кривые (метод расчета описан в разделе 2.1.3). Таким образом, были получены значения оптической плотности энергии насыщения для  $\text{MAPbBr}_3$  и  $\text{MAPbI}_3$  полупроводниковых подложек фотопроводящей антенны, которые составили:  $F_{\text{нас}} = 0,194 \text{ мДж/см}^2$  для  $\text{MAPbBr}_3$  и  $F_{\text{нас}} = 0,293 \text{ мДж/см}^2$  для  $\text{MAPbI}_3$ . Поскольку оптическое излучение падает на антенну со стороны стеклянной подложки, оптический показатель преломления стекла на длине волны 400 нм равен  $n = 1,5$  и при этом толщина слоя перовскитов (0,6 мкм) меньше характерной длины волны терагерцового излучения, то излученный ТГц импульс будет распространяться по большей части в воздухе. Таким образом, показатель преломления для терагерцового излучения в среде был принят за  $n = 1$ . Соответственно, расчетное значение подвижности носителей заряда составило:  $\mu \approx 58 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$  для  $\text{MAPbI}_3$  и  $\mu \approx 88 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$  для  $\text{MAPbBr}_3$ . Полученные значения подвижностей носителей заряда согласуются с данными, полученными при помощи других методов [123].

На рисунке 9 (б) представлены зависимости энергии ТГц импульса от приложенного поля смещения. Было установлено, что в обоих случаях мощность ТГц излучения квадратично зависит от приложенного поля смещения ( $E_{\text{см}}$ ).

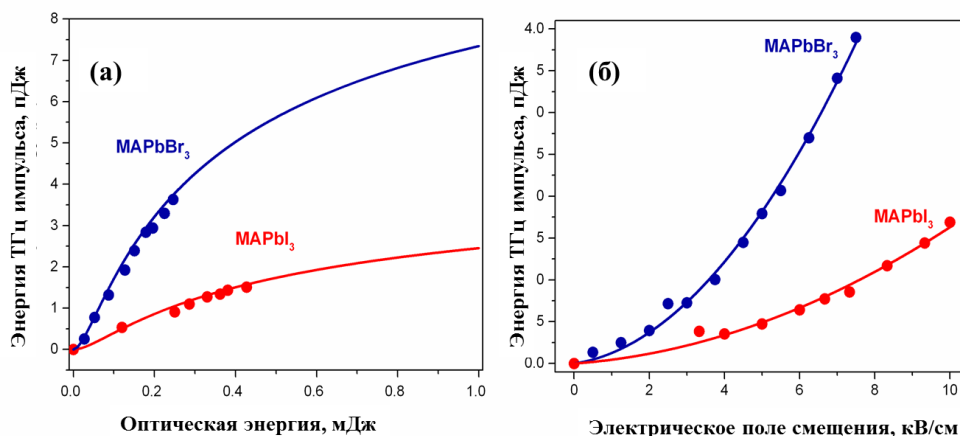


Рисунок 9 – Энергия терагерцового импульса как функция энергии оптического возбуждения (а) и приложенного напряжения смещения (б), полученная от фотопроводящей антенны на основе перовскитов, оптически возбуждаемого выше запрещенной зоны (400 нм). Данные, полученные для антенны на основе MAPbI<sub>3</sub> и MAPbBr<sub>3</sub>, показаны красным и синим цветом соответственно.

Мы предполагаем, что коэффициент поглощения для MAPbI<sub>3</sub> составляет 0,94 при 400 нм и 0,22 при 800 нм (Рисунок 7 (а)). На рисунке 10 показано сравнение энергии ТГц импульса в зависимости от оптической энергии и приложенного напряжения смещения, полученных от фотопроводящей антенны на основе MAPbI<sub>3</sub> при возбуждении выше и ниже запрещенной зоны. Согласно экспериментальным данным оптического поглощения на длине волны 800 нм, фотогенерация носителей заряда может происходить путем многофотонного поглощения. Однако при возбуждении антенны на основе MAPbBr<sub>3</sub> длиной волны 800 нм, оказалось невозможным реализовать генерацию ТГц импульсов (Рисунок 8 (б)).



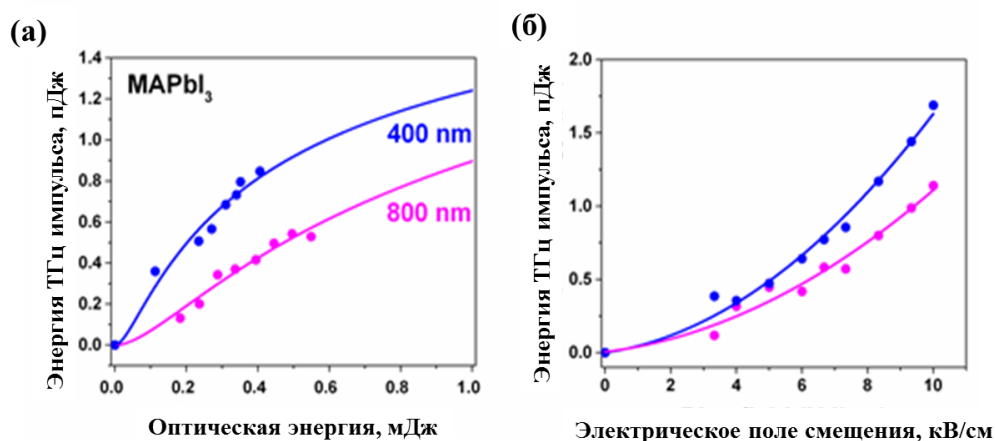


Рисунок 10 – Энергия терагерцового импульса фотопроводящей антенны на основе MAPbI<sub>3</sub> как функции энергии оптического возбуждения (а) и приложенного поля смещения (б) для накачки выше (400 нм - синий) и ниже (800 нм - пурпурный) запрещенной зоны.

### 2.3. ЧИСЛЕННОЕ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ИМПУЛЬСОВ ТЕРАГЕРЦОВОГО ДИАПАЗОНА ПРИ ФОТОВОЗБУЖДЕНИИ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В ЛЕГИРОВАННЫХ АЗОТОМ АЛМАЗАХ ФЕМТОСЕКУНДНЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

Также перспективным материалом для создания ФПА является синтетический алмаз. Алмаз прозрачен в ТГц диапазоне [124] и имеет самую высокую диэлектрическую прочность среди других полупроводниковых материалов, традиционно используемых для создания подложек фотопроводящих антенн. Электрическое поле пробоя алмаза может достигать 10 МВ / см [125].

Фотопроводящая антенна с встречно-штыревыми электродами из пластинки поликристаллического алмаза, полученного химическим осаждением из газовой фазы (CVD), была исследована Йонедой и др. [78] при возбуждении излучением с длиной волны 248 нм. Сообщалось, что плотность энергии ТГц импульсов, излучаемых такой антенной, достигает 0,1 мкДж / см<sup>2</sup> при приложенном электрическом поле смещения 10<sup>5</sup> В / см. Существуют дополнительные

преимущества использования алмаза в качестве подложки фотопроводящей антенны, которые важны для применения ТГц излучения, особенно для ТГц оптики [126]. Во-первых, монокристаллический алмаз имеет рекордную (среди кристаллических материалов) подвижность при комнатной температуре:  $\mu \approx 4500 \text{ см}^2 \cdot \text{В}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$  [127]. Во-вторых, современные методы синтеза позволяют получать монокристаллы большой площади, а также поликристаллические пластины. Отметим также, что алмаз является метастабильным углеродным аллотропом и может локально трансформироваться посредством лазерного нагрева в проводящую графитоподобную фазу [128], что позволяет герметизировать электроды в объеме алмаза, чтобы избежать повреждения поверхности.

Несмотря на большой потенциал алмаза для ТГц применений, с момента появления новаторской работы [78] исследований ФПА на основе этого материал не проводилось. Это объясняется тем, что спектр поглощения алмаза, ограничен шириной его запрещенной зоны (5,46 эВ), что требует жесткого ультрафиолетового излучения для эффективного однофотонного возбуждения электронной подсистемы алмаза. Высокомощные фемтосекундные эксимерные лазеры, использованные в работе [78] являются сложными системами и не подходят для применения в настольных установках по генерации ТГц излучения. Между тем, высокие гармоники титан-сапфирового лазера недостаточно мощны для накачки широкоапертурных фотопроводящих антенн на основе алмаза.

Для осуществления оптической накачки ФПА на основе алмаза с помощью второй гармоники фемтосекундных лазерных систем на основе титан-сапфира, нами было предложено введение дефектов в кристаллическую решетку алмаза за счет примесного легирования. Легирование приводит к изменению спектра оптического поглощения за счет образования новых дефектных энергетических уровней. При поглощении света с энергией кванта, меньшей чем ширина запрещенной зоны, с таких уровней может происходить переход носителей заряда в зону проводимости. Такая подложка должна сохранять сверхвысокую диэлектрическую прочность и обеспечивать достаточно высокие токи в алмазе при возбуждении видимым излучением. Отличным кандидатом для

использования в качестве легирующей примеси стал азот, который является примесью в природных алмазах. Значительная часть азота существует в алмазах в виде нейтрального замещающего азота, создающего дополнительный электронный уровень [129,130]. Концентрация нейтрального замещающего азота может варьироваться от 1 ppb до десятков ppm, что приводит к высокому поглощению в оптическом диапазоне. Между тем, сильно легированные полупроводники, в целом, считаются плохими материалами для излучающих фотопроводящих антенн [131].

В ходе работы была впервые продемонстрирована генерация терагерцового излучения в фотопроводящем излучателе на основе синтетических монокристаллических алмазов, легированных азотом. Определена эффективность генерации терагерцового излучения в ФПА на основе искусственных алмазов (моно- и поликристаллических), с различным уровнем легирования (0,1–100 ppm).

### **2.3.1. ИССЛЕДОВАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ СВОЙСТВ АЛМАЗОВ**

На рисунке 11 представлены типичные спектры удельного оптического поглощения в УФ-видимом и ИК-диапазонах для трех исследуемых типов алмазов (изготовление CVD и HPHT алмазов и измерения по удельному оптическому поглощению было выполнено в группе академика Конова В. И). Синие кривые на рисунке 11 (а) показывают спектральное разложение в различных каналах оптических потерь, включая поглощение азотом и рэлеевское рассеяние. Красная кривая представляет собой сумму этих отдельных каналов оптических потерь. (Межзонные переходы были исключены из спектрального анализа.)

Поглощение аппроксимировали суммой двух гауссовых огибающих с пиками на 4,6 эВ (270 нм) и 3,6 эВ (345 нм) с шириной пика 0,4 эВ и 0,6 эВ соответственно. Полоса поглощения в видимой части спектра соответствует переходу от дефектного уровня замещенного азота к зоне проводимости, а УФ-полоса соответствует переходу от валентной зоны к незанятому дефектному

уровню [130]. Спектральный пик на 4,6 эВ является наиболее интенсивным и считается более предпочтительным для определения уровня содержания азота в алмазах [132]. В целом интенсивность пика на 3,6 эВ изменялась соответственно пику на 4,6 эВ, в то время как амплитуда каждого пика изменялась более чем на три порядка. Экспериментально полученное соотношение интенсивности этих пиков составляло  $2,1 \pm 1,0$ .

Уровень азота в исследуемых алмазах рассчитывали как  $N_S = I_{\text{abs}}(4,6 \text{ эВ}) \cdot k(4,6 \text{ эВ})$ , где  $k(4,6 \text{ эВ}) \approx 1 \text{ ppm/cm}^{-1}$  — калибровочный коэффициент, полученный в [132] с помощью спектроскопии электронного спинового резонанса (ЭСР). В представленном наборе алмазов расчетное содержание замещающего азота колебалось от  $10^{-1}$  до  $10^2 \text{ ppm}$ . Образцы HPHT полностью заполнили этот диапазон ( $N_{\text{HPHT}} \approx 10^{-1} - 10^2 \text{ ppm}$ ), в то время как образцы CVD имели довольно умеренные концентрации азота до  $N_{\text{CVD}} < 10 \text{ ppm}$  из-за технологических трудностей введения азота в алмаз во время данного процесса. Данные ИК спектроскопии (Рисунок 11 (б)) позволяют оценить уровень содержания азота  $N_S$  только для монокристаллических алмазов (как HPHT, так и CVD). Полосы  $1130 \text{ см}^{-1}$  и  $1344 \text{ см}^{-1}$ , которые обычно относят к  $N_S$ -центру, не обнаруживаются для относительно тонких поликристаллических образцов CVD алмазов, что типично для такого рода образцов [130]. Содержание азота, оцененное по данным спектроскопии УФ-видимого диапазона и ИК-диапазона, было одного порядка величины. Здесь и далее используются значения  $N_S$ , которое рассчитывалось по пику поглощения для энергии фотона 4,6 эВ. На рисунке 11 (а) представлены спектры удельного поглощения для алмазных подложек с сопоставимыми концентрациями азота, синтезированных разными методами. Видно, что величина удельного поглощения в УФ- и видимом диапазоне принципиально зависит от типа подложки.

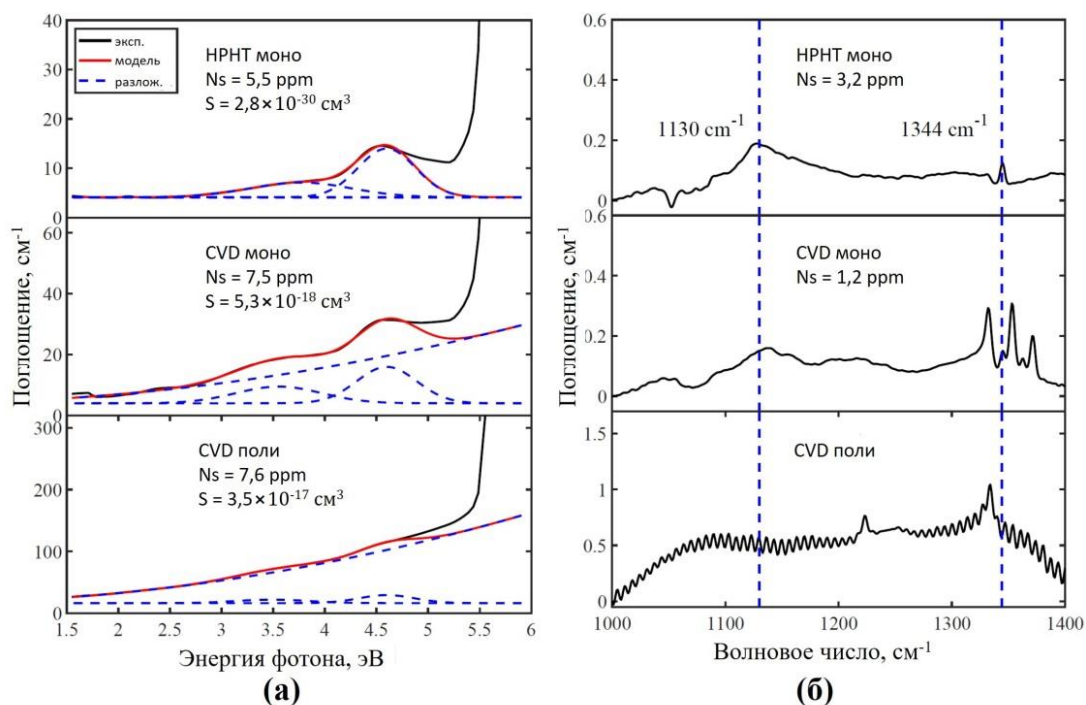


Рисунок 11 – Удельное оптическое поглощение алмазных подложек, синтезированных разными методами, в УФ-видимом (а) и ИК (б) диапазонах. В УФ-видимом спектре сплошные красные и синие штриховые линии указывают на разложение спектра и соответствующие отдельные каналы оптических потерь, включая поглощение азота с пиками на 3,6 эВ и 4,6 эВ и рэлеевское рассеяние. В ИК-спектрах синими вертикальными линиями отмечены полосы, характеризующие замещающий азот.

Максимальное удельное поглощение наблюдалось для подложки из поликристаллического CVD-алмаза. Причиной этого является рэлеевское рассеяние, возникающее из-за субволновых флуктуаций диэлектрической проницаемости среды, наиболее интенсивных для поликристаллического алмаза. Рассеивающая составляющая поглощения рассчитывалась следующим образом:

$$A_s = Sd\lambda^4 \quad (2.4)$$

где  $d$  — толщина образца,  $\lambda$  — длина волны,  $S$  — коэффициент рассеяния, который зависит от числа рассеивающих центров в среде  $N_{\text{рас}}$ , диаметра  $D$  таких центров и показателя преломления подложки  $n$ :

$$S = N_{\text{рас}} \frac{2\pi^5}{3} D^6 \left[ \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right]^2 \quad (2.5)$$

Как видно из разложений модельной кривой на рисунке 11 (а), для HPHT-алмаза преобладают потери на поглощение, а рассеяние близко к нулю. Для монокристаллического CVD-алмаза рассеяние и поглощение уже одного порядка величины. Этот результат совсем не удивителен, поскольку известно, что использование CVD метода способствует образованию линейных дефектов в решетке. Кроме того, как уже упоминалось, рассеивание является основной причиной высокой оптической плотности поликристаллических пластин.

Вывод о существенной зависимости поглощения от типа синтезированных подложек подтверждается измерением оптических свойств алмазов с помощью второй гармоники титан-сапфирового лазера. На рисунке 12 показана зависимость оптической плотности алмаза на единицу толщины от концентрации азота. Изображенные данные явно разделены на три группы. Каждая из них точно соответствует типу алмазов и линейно зависит от концентрации азота. Первая группа включает алмазы HPHT и описывает «чистые» потери на поглощение, характеризующиеся минимальной оптической плотностью в расчете на ppm азота. Вторая группа включала CVD-монокристаллические алмазы и имела оптическую плотность на образец в 4 раза выше, чем в случае HPHT-алмазов. Поглощение алмазов третьей группы (поликристаллические алмазы) оказалось примерно в 20 раз выше.

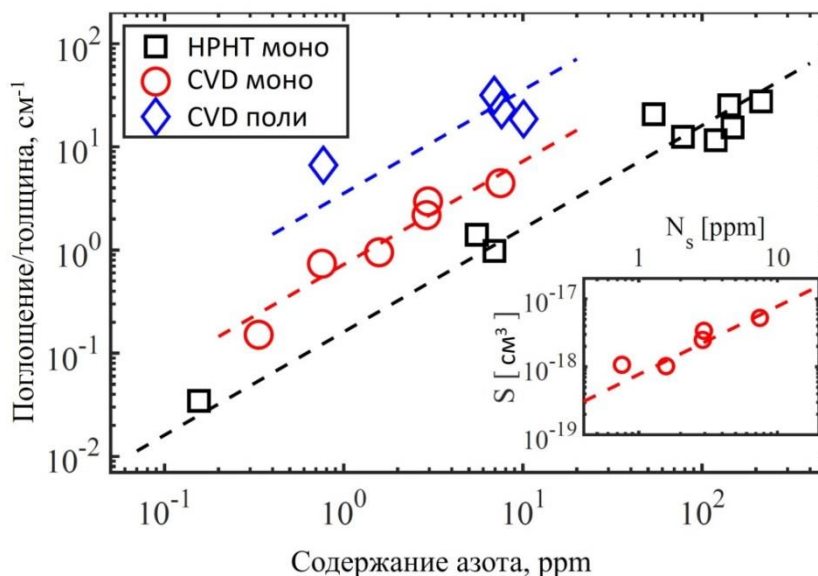


Рисунок 12 – Зависимость поглощения алмазной подложки (оптической плотности на единицу толщины) от концентрации азота. Измерения проводились на длине волны накачки 400 нм. Штриховые линии — линейная аппроксимация.

На вставке показан коэффициент оптического рассеяния  $S$  для монокристаллических CVD-алмазов (подробности см. в тексте).

Следует отметить некоторое расхождение между данными спектроскопии монокристаллических CVD-алмазов и соответствующими лазерными измерениями. Результаты лазерных экспериментов (Рисунок 12) показывают, что изменение параметра поглощения/толщины в монокристаллах CVD можно полностью объяснить эффектом поглощения. Другими словами, величина рассеяния не зависит от уровня азота, а коэффициент рассеяния  $S$  является примерно постоянной величиной на этом наборе образцов. С другой стороны, коэффициенты рассеяния  $S$ , рассчитанные из спектральных данных по уравнению (2.4) и представленные на вставке к рисунку 12, демонстрируют, что оптическое рассеяние линейно увеличивается с ростом  $N_s$ . Поэтому полученные данные не позволяют окончательно определить, является ли примесь азота фактором, усиливающим рассеяние в алмазах. Однако интересно оценить возможную величину оптических флуктуаций в CVD-алмазах. Используя коэффициент  $S \approx 10^{-17}$

$10^{18} \text{ см}^{-3}$  и число центров рассеяния  $N_{\text{рас}} \approx 10^{17} \text{ см}^{-3}$  ( $\sim N_S$ ), уравнение (2.5) дает  $D \sim 10$  нм, что соответствует типичному размеру дислокации.

### 2.3.2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА ПО ИССЛЕДОВАНИЮ СПЕКТРАЛЬНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ТГЦ ИМПУЛЬСОВ В АЛМАЗНЫХ ФОТОПРОВОДЯЩИХ АНТЕННАХ

Схема экспериментальной установки представлена на рисунке 13. В качестве источника возбуждения использовалась фемтосекундная титан-сапфировая лазерная система (Coherent Elite Pro, со следующими параметрами: центральная длина волны 800 нм, энергия импульса 3 мДж, длительность импульса 150 фс, частота следования импульсов 1 кГц).

Генерация второй гармоники осуществлялась в кристалле ВВО ( $\beta$ -борат бария, I-тип,  $10 \times 10 \times 0,2 \text{ мм}^3$ ). Для выделения излучения второй гармоники использовалась призма Глана–Тейлора. Наклон ВВО контролировался для изменения энергии импульса накачки.

В экспериментах использовались две синтетические алмазные подложки с разным содержанием примеси азота. Первая была коммерческим высокотемпературным (НРНТ) монокристаллом типа Ib размером  $3 \times 3 \times 1 \text{ мм}^3$ , который отличался относительно высоким уровнем примеси азота, что придавало образцу желтый цвет. Вторая представляла собой бесцветный монокристаллический алмаз размером  $4 \times 2 \times 1,4 \text{ мм}^3$ , выращенный методом химического газо-фазного осаждения (CVD). Условия CVD-процесса были следующими: плазменная частота 2,45 ГГц; давление 150 торр; мощность микроволн 4,2 кВт; (2%) газовая смесь  $\text{CH}_4/\text{H}_2$ . Концентрация замещающего азота, рассчитанная по полосе поглощения 270 нм, составила  $N_{\text{CVD}} \approx 1,5 \text{ ppm}$  и  $N_{\text{НРНТ}} \approx 33 \text{ ppm}$  для CVD- и НРНТ-алмазов соответственно.



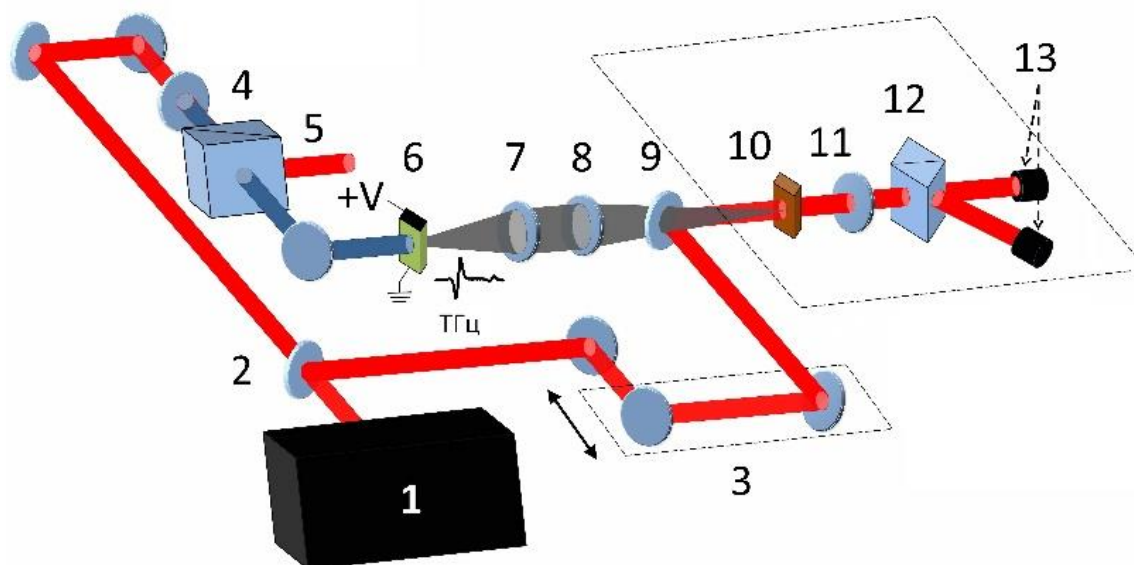


Рисунок 13 – Экспериментальная установка: 1 — фемтосекундный лазер; 2 — светоделитель (5% / 95% (R / T)); 3 — линия задержки; 4 — кристалл ВВО (ГВГ); 5 — поляризатор Глана–Тейлора; 6 — фотопроводящая антенна; 7 — линза из политетрафторэтилена (PTFE) ( $f = 6$  см); 8 — линза из политетрафторэтилена (PTFE) ( $f = 10$  см); 9 — пленочный светоделитель; 10 — кристалл ZnTe; 11 — четвертьволновая пластинка; 12 — призма Волластона; 13 — сбалансированные фотодиоды.

Собранные антенны состояли из алмазных подложек с приклеенными к их боковым краям электродами из алюминиевой фольги. Зазор между электродами определялся геометрическими размерами образцов и составлял 1 мм для НРНТ-алмаза и 2 мм для CVD-алмаза. В качестве эталонного материала использовался монокристаллический образец ZnSe диаметром 15 мм и толщиной 5 мм. В этом случае электроды приклеивались на освещаемую грань. Площадь засветки ZnSe-антенны составляла  $10 \times 1,5$  мм<sup>2</sup>. Антенны облучались центральной частью несфокусированного луча накачки, где максимальная пространственная плотность энергии лазерного излучения составляла примерно 500 мкДж/см<sup>2</sup>. Импульсное напряжение смещения (до 3 кВ) с длительностью импульса около 10 нс синхронизировалось с оптической накачкой.

ТГц-излучение собиралось телескопом, состоящим из двух линз из политетрафторэтилена (PTFE) (диаметр 50 мм, фокусное расстояние 6 см; и диаметр 50 мм, фокусное расстояние 10 см). Зависимости напряженности поля терагерцового импульса от времени регистрировались стандартным электрооптическим методом с использованием кристалла ZnTe ( $3 \times 3 \times 1$  мм<sup>3</sup>, вырез осей  $\langle 110 \rangle$ ).

### **2.3.3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА ПО ИССЛЕДОВАНИЮ ЭФФЕКТИВНОСТИ ГЕНЕРАЦИИ ТГЦ ИМПУЛЬСОВ В АЛМАЗНЫХ ФОТОПРОВОДЯЩИХ АНТЕННАХ**

Для возбуждения алмазных фотопроводящих антенн использовалась фемтосекундная титан-сапфировая лазерная система Coherent Elite Pro (центральная длина волны 800 нм, энергия импульса 3 мДж, длительность импульса 150 фс, диаметр луча 12 мм по уровню  $1/e^2$ , частота повторения 1 кГц). Выходной лазерный пучок уменьшался в диаметре в два раза с помощью телескопа. Излучение второй гармоники с максимальной энергией в импульсе 1 мДж создавалось в кристалле ВВО ( $\beta$ -борат бария, I-тип,  $10 \times 10 \times 0,2$  мм<sup>3</sup>). Излучение второй гармоники фильтровалось «холодным» зеркалом, отражающим излучение с длиной волны 400 нм. Энергия импульса второй гармоники регулировалась наклоном кристалла второй гармоники. Схема эксперимента подробно изображена на рисунке 14.

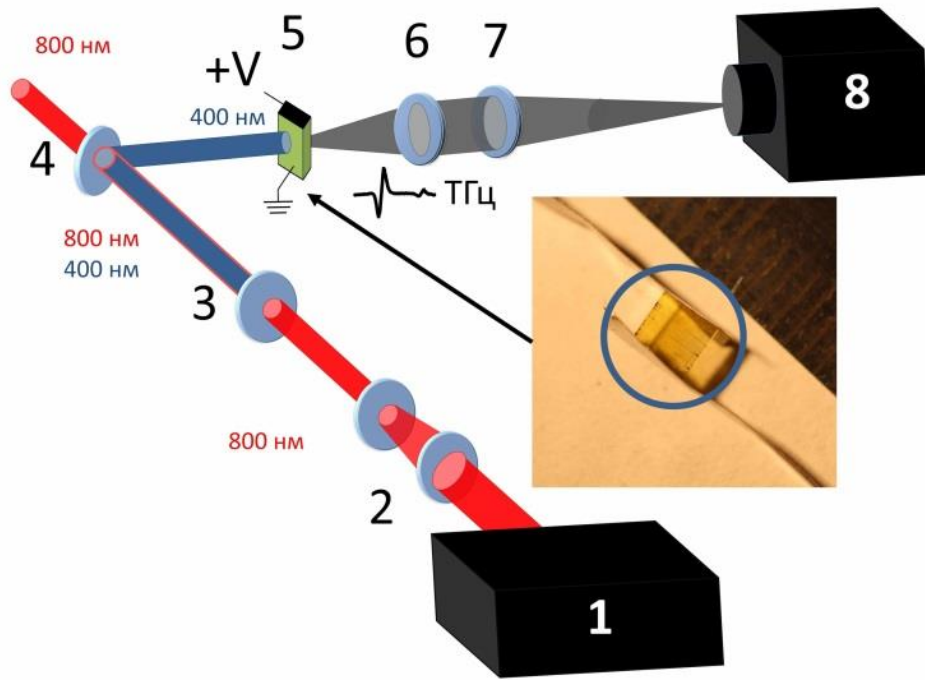


Рисунок 14 – Экспериментальная установка: 1 — фс-лазер; 2—телескоп; 3 — кристалл ВВО (ГВГ); 4 — селектор 2-й гармоники (на 400 нм); 5 — ФПА на основе алмаза; 6 линза из политетрафторэтилена ( $f = 6$  см); 7 — линза из политетрафторэтилена ( $f = 10$  см); 8— детектор Голея.

Для накачки ФПА излучением третьей гармоники титан-сапфирового лазера была реализована экспериментальная установка, схема которой изображена на рисунке 15. После сужающего пучок телескопа и кристалла-генератора второй гармоники устанавливалась фазовая пластинка ( $\lambda/2$  на длине волны  $800$  нм +  $\lambda$  на длине волны  $400$  нм) для совмещения поляризации излучения на основной и второй гармонике. Для получения излучения на третьей гармонике путем генерации суммарной частоты использовался кристалл ВВО ( $\beta$ -борат бария, I-тип,  $10 \times 10 \times 0,2$  мм<sup>3</sup>). Для фильтрации излучения на длине волны  $267$  нм применялись два зеркала, отражающие излучение третьей гармоники и пропускающие излучение на основной и второй гармониках. Энергия импульса третьей гармоники регулировалась поворотом кристалла-генератора суммарной частоты.

В качестве материала подложки фотопроводящей антенны были исследованы 19 алмазов разного типа с разным уровнем примеси азота. Использовались поликристаллические и монокристаллические CVD- и

монокристаллические НРНТ-алмазы. Типичный размер образца варьировался от 3 мм до 7 мм, а толщина варьировалась от 250 мкм до 1570 мкм. Лицевые и боковые поверхности механически полировались до оптического качества. Каждая из собранных алмазных антенн представляла собой образец, к краям которого были приклеены электроды из алюминиевой фольги. Зазор между электродами определялся геометрией подложки и составлял от 0,5 до 2 мм.

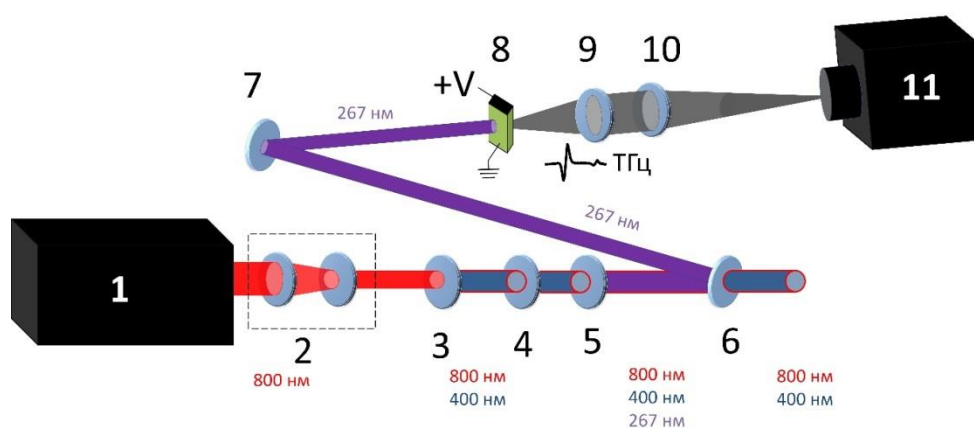


Рисунок 15 – Экспериментальная установка: 1 — фс-лазер; 2—телескоп; 3 — кристалл ВВО (ГВГ); 4 — фазовая пластинка ( $\lambda/2$  на длине волны 800 нм +  $\lambda$  на длине волны 400 нм); 5 — кристалл ВВО (ГТГ); 6,7 — зеркала 3-й гармоники (на 267 нм); 8 — ФПА на основе алмаза; 9 — линза из политетрафторэтилена ( $f = 6$  см); 10 — линза из политетрафторэтилена ( $f = 10$  см); 11— детектор Голея.

Антенны облучались центральной частью несфокусированного луча накачки с максимальной пространственной плотностью энергии  $\sim 7200$  мкДж/см<sup>2</sup> на длине волны 400 нм и  $\sim 1500$  мкДж/см<sup>2</sup> на длине волны 267 нм. Импульсное напряжение смещения (до 3 кВ) с длительностью импульса 10 нс синхронизировалось с лазерным излучением. Следует отметить, что при подаче статического высокого напряжения на антенны из алмаза терагерцовое излучение не генерировалось из-за экранировки. ТГц-излучение антенн собиралось телескопом, состоящим из двух линз из политетрафторэтилена (ПТФЭ) (диаметром 50 мм, фокусным расстоянием 6 см и диаметром 50 мм, фокусным расстоянием 10 см). Мощность терагерцового излучения измерялась ячейкой

Голея (Tydex GC-1P, апертура детектора 6 мм, чувствительность  $10^5$  В/Вт) при модуляции выходного сигнала лазера 15 Гц.

#### 2.3.4. МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССА ГЕНЕРАЦИИ ТЕРАГЕРЦОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ОБЪЕМНЫХ ФОТОПРОВОДЯЩИХ АНТЕННАХ

В качестве подложек фотопроводящих антенн часто используются полупроводниковые материалы, в которых поглощение падающего излучения происходит в тонком приповерхностном слое. Генерация терагерцового излучения в таких антеннах была исследована многими научными группами [133]. Модель генерации излучения такими антеннами основана на описании ускоренно движущихся носителей заряда в полупроводниковой среде под действием электрического поля, приложенного к ней. В соответствии с этой моделью излучаемая пространственная плотность терагерцовой энергии может быть записана как:

$$F_{\text{ТГц}} = \frac{\tau E_{\text{см}}^2}{2Z_0} \left( \frac{F_{\text{опт}}}{F_{\text{опт}} + F_{\text{нас}}^{\text{идеал}}} \right)^2 \quad (2.6)$$

где  $E_{\text{см}}$  — приложенное поле смещения,  $\tau$  — длительность терагерцового импульса,  $Z_0$  — импеданс свободного пространства,  $F_{\text{опт}}$  — плотность оптической энергии, а  $F_{\text{нас}}^{\text{идеал}}$  — оптическая плотность энергии насыщения, которая является ключевым параметром, характеризующим антенны (см. раздел 2.1.3)). В [134]  $F_{\text{нас}}^{\text{идеал}}$  выражается как:

$$F_{\text{нас}}^{\text{идеал}} = \frac{h\nu(1 + n_{\text{ТГц}})}{e\mu Z_0(1 - R)} \quad (2.7)$$

где  $n_{\text{ТГц}}$  — показатель преломления среды в ТГц диапазоне,  $h\nu$  — энергия оптического фотона,  $e$  — заряд электрона,  $\mu$  — подвижность носителей,  $R$  — отражение излучения накачки подложкой. Мы используем верхний индекс «идеальный», чтобы подчеркнуть, что выражение для плотности оптической энергии насыщения справедливо для непрозрачных полупроводников и явно указывает на полное поглощение излучения накачки.

Однако исследуемые в данном эксперименте образцы алмазов обладали широким диапазоном величины удельного поглощения ( $0,1 - 40 \text{ см}^{-1}$ ). В связи с этим, поглощение излучения может происходить в значительной части объема (или во всем объеме). Поскольку, в случае различного поглощения алмазами оптического излучения, не все падающее излучение вызывает генерацию носителей заряда, следовательно, плотность тока и излучаемая плотность терагерцовой энергии будут зависеть от коэффициента поглощения. Таким образом, задачей данного моделирования являлся анализ влияния поглощения на эффективность генерации терагерцового излучения.

Модель генерации ТГц излучения, описанная формулой (2.6) основана на предположении передачи энергии одного фотона оптического излучения одному электрону полупроводниковой среды. Однако, с учетом поглощения зависимость излученной терагерцовой энергии от плотности энергии оптического излучения  $W_{\text{ТГц}}^{\text{идеал}}(F_{\text{опт}})$  будет выглядеть следующим образом:

$$W_{\text{ТГц}}^{\text{реал}}(F_{\text{опт}}) = W_{\text{ТГц}}^{\text{идеал}}(F_{\text{опт}} \cdot A), \quad (2.8)$$

где  $W_{\text{ТГц}}^{\text{идеал}}(F_{\text{опт}})$  - зависимость излученной терагерцовой энергии от плотности энергии оптического излучения в случае полного поглощения оптического излучения в тонком слое полупроводника,  $A = 1 - e^{-\alpha l}$  - коэффициент поглощения,  $\alpha$  - удельное поглощение,  $l$  - толщина образца. Коэффициент поглощения по определению равен  $A = F_{\text{опт}}^{\text{погл.}} / F_{\text{опт}}^{\text{пад}}$ , где  $F_{\text{опт}}^{\text{погл.}}$  - поглощенная плотность оптической энергии,  $F_{\text{опт}}^{\text{пад}}$  - падающая на полупроводник плотность оптической энергии. Следовательно, величина плотности энергии оптического излучения, при котором происходит выход на насыщение, так же коррелирует с величиной оптического поглощения. Таким образом, переходя к плотности оптической энергии насыщения:

$$F_{\text{нас}}^{\text{пад}} = F_{\text{нас}}^{\text{поглощ.идеал}} / A \quad (2.9)$$

В формуле (2.9) поглощенная плотность оптической энергии насыщения  $F_{\text{нас}}^{\text{поглощ.идеал}}$  принимается за поглощенную плотность оптической энергии насыщения в случае поглощения всего излучения в тонком слое полупроводника  $F_{\text{нас}}^{\text{идеал}}$  (уравнения (2.6),(2.7));  $F_{\text{нас}}^{\text{пад}}$  - падающая на полупроводник плотность оптической энергии насыщения.

Для проверки данных предположений, было выполнено численное моделирование процесса генерации в объемной фотопроводящей антенне в программной среде COMSOL Multiphysics. В модели используется двухмерная геометрия: алмаз – прямоугольник (1x3 мм) с электродами (зазор 2 мм), в круге (диаметр 20 мм), заполненном воздухом (Рисунок 16).

Для расчета фотопроводимости используется два модуля: электростатика и электродинамика. В электростатике рассчитывается поле потенциала при приложении напряжения +/- 1 В к электродам, внешняя окружность – земля. Диэлектрическая проницаемость алмаза составляла 5,7.

Решение электростатической задачи используется в качестве начальных условий в электродинамической. Для упрощения расчета проводимость электродов задается как идеальный проводник с бесконечной проводимостью.

Проводимость в объеме алмаза изменяется в зависимости от времени и пространства в соответствии с распространением и поглощением фс-импульса (импульс распространяется вдоль оси x). Проводимость задана как

$$\sigma = n_e * \mu * e * f(x, t) * g(y), \quad (2.10)$$

$n_e$  – концентрация электронов,  $f(x, t)$  – функция распространения (ступенька с фронтом 200 фс),  $g(y)$  – распределение по оси y (тень от электродов).

Концентрация электронов по оси распространения импульса:

$$n_e(x) = \xi * \frac{J(x)}{h\nu}, \quad (2.11)$$

$\xi = 1$  – эффективность преобразования (фотон-носитель заряда),  $J(x)$  – объемная плотность поглощенной энергии.

Объемная плотность поглощенной энергии:

$$J(x) = \frac{d(F_{\text{опт}} - F_{\text{опт}}e^{-\alpha x})}{dx} = F_{\text{опт}}\alpha e^{-\alpha x}, \quad (2.12)$$

где  $F_{\text{опт}}$  – оптический флюенс,  $\alpha$  – коэффициент поглощения в алмазе.

Величина  $F_{\text{нас}}^{\text{идеал}}$ , рассчитанная по формуле (2.7) при использовании заложенных материальных параметров, составила  $10 \text{ мкДж/см}^2$ .

Используя данную модель, были рассчитаны зависимости пиковой мощности, проходящей через половину границы счетной области в направлении распространения излучения (граница выделена синим на Рисунке 16), от коэффициента поглощения при разных значениях падающей оптической пространственной плотности энергии (Рисунок 17).

Из рисунка 17 видно, что при небольшом оптической плотности энергии ( $F_0 = 1 \frac{\text{мкДж}}{\text{см}^2} \ll F_{\text{нас}}^{\text{пад}}$ ) выход ТГц излучения, согласно с (2.6) и (2.9)  $F_{\text{ТГц}} \sim A^2 \approx \alpha^2 l^2$ , квадратично растет с ростом поглощения в алмазе. На рисунке 17 (а) приведены данные математического моделирования аппроксимированные квадратичной зависимостью. При большом значении плотности оптической энергии ( $F_0 = 500 \frac{\text{мкДж}}{\text{см}^2} \gg F_{\text{нас}}^{\text{пад}}$ ) происходит насыщение зависимости излученной ТГц мощности ( $\alpha > 1 \text{ см}^{-1}$ ) (Рисунок 17 (б)). Для  $\alpha = 0,3 \text{ см}^{-1}$ , что соответствует  $1,5 \text{ мВт} - 1/4$  излученной пиковой ТГц мощности, исходя из формулы (2.9) и предположения, что  $A \approx \alpha \cdot l$  ( $A \ll 1$ ),  $F_{\text{нас}}^{\text{пад}} \approx 333 \text{ мкДж/см}^2$ , что хорошо согласуется с заданным значением пространственной плотности энергии ( $F_0 = 500 \frac{\text{мкДж}}{\text{см}^2}$ ).



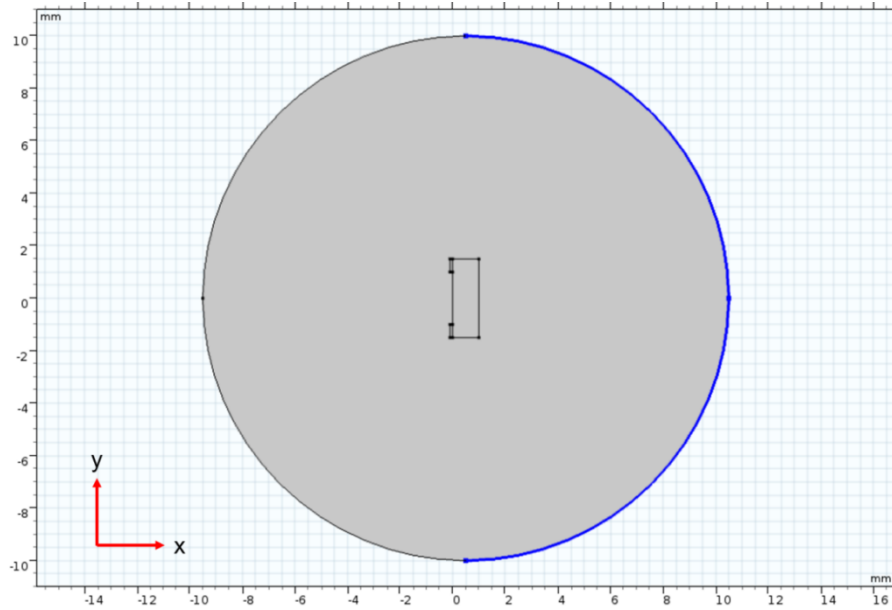


Рисунок 16 – Схема расчетной модели. Синим выделена граница счетной области по направлению оси x.

Также были получены зависимости пиковой мощности генерируемого ТГц излучения, проходящей через границу счетной области (Рисунок 16 (синяя кривая)), от величины, падающей плотности энергии при коэффициентах поглощения 0.1, 1, 10  $\text{см}^{-1}$  (Рисунок 18).

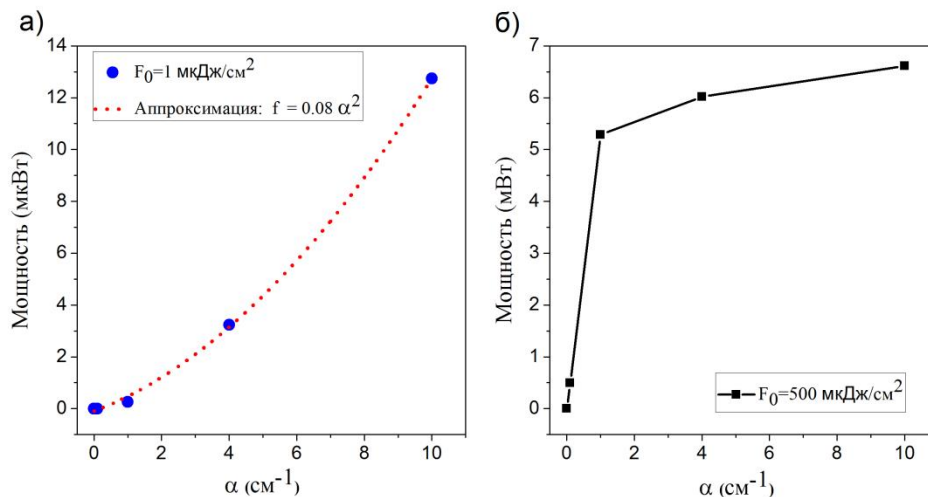


Рисунок 17 – Зависимости пиковой мощности ТГц излучения от коэффициента

поглощения алмаза при а)  $F_0 = 1 \frac{\text{мкДж}}{\text{см}^2}$ ; б)  $F_0 = 500 \frac{\text{мкДж}}{\text{см}^2}$ .

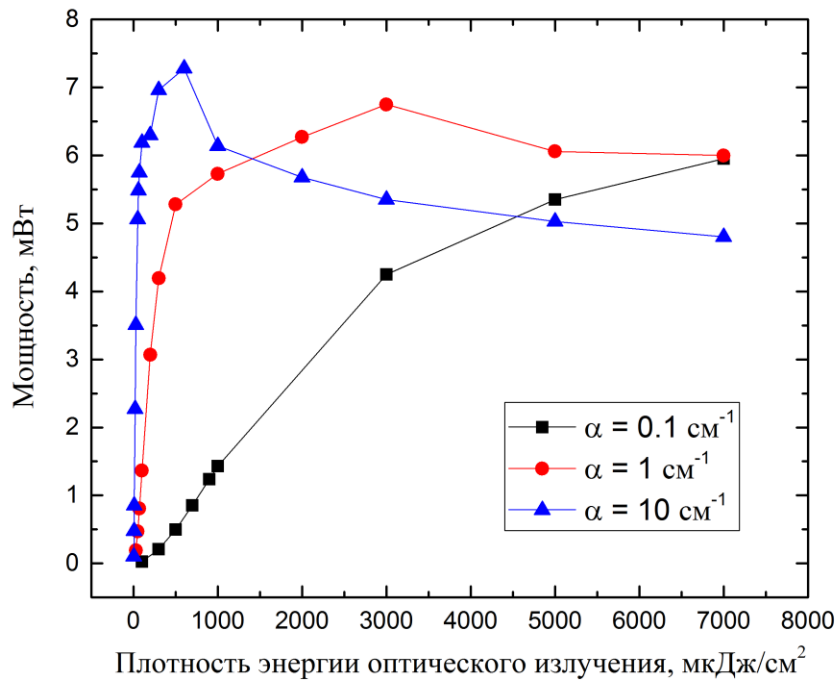


Рисунок 18 – Зависимости пиковой мощности ТГц излучения от оптической плотности энергии в алмазе при  $\alpha = 0.1, 1, 10 \text{ см}^{-1}$ .

Результаты моделирования хорошо согласуются с качественными оценками на основе выражений (2.6)-(2.9). Отметим, что по результатам моделирования, поведение зависимости излученной мощности от энергии оптической накачки для антенн на основе прозрачных полупроводников в целом соответствует зависимости для генерации в непрозрачных полупроводниках. Так излучаемая мощность выходит на насыщение при достижении некоторого значения плотности энергии оптической накачки. Уровень этой насыщенной излучаемой мощности не зависит от поглощения в подложке.

Так, для верификации полученных результатов моделирования, при рассчитанном по формуле (2.7) значении плотности энергии насыщения, равном  $F_{\text{нас}}^{\text{идеал}} = 10 \text{ мкДж/см}^2$ , используя формулу (2.9) величины плотности энергии насыщения с учетом поглощения равны:  $F_{\text{нас}}^{\text{пад}} = 1000 \text{ мкДж/см}^2$  для  $\alpha = 0,1 \text{ см}^{-1}$ ,  $F_{\text{нас}}^{\text{пад}} = 100 \text{ мкДж/см}^2$  для  $\alpha = 1 \text{ см}^{-1}$ ,  $F_{\text{нас}}^{\text{пад}} = 10 \text{ мкДж/см}^2$  для  $\alpha = 10 \text{ см}^{-1}$ . Из аппроксимации результатов моделирования зависимостью (2.6) в приближении

равномерной засветки алмаза, были получены следующие значения плотности энергии насыщения:  $F_{\text{нас}}^{\text{пад}} = 1445$  мкДж/см<sup>2</sup> для  $\alpha = 0,1$  см<sup>-1</sup>,  $F_{\text{нас}}^{\text{пад}} = 96,7$  мкДж/см<sup>2</sup> для  $\alpha = 1$  см<sup>-1</sup>,  $F_{\text{нас}}^{\text{пад}} = 9,1$  мкДж/см<sup>2</sup> для  $\alpha = 10$  см<sup>-1</sup>. Расчетные значения находятся в хорошем соответствии с данными моделирования.

Таким образом, моделирование продемонстрировало обоснованность использования выражения (2.6) для описания процесса генерации ТГц в объемных фотопроводящих антеннах с поправкой на зависимость оптической пространственной плотности энергии насыщения антенны от величины поглощения в конкретном материале.

### 2.3.5. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Временные формы сгенерированных импульсов ТГц излучения, зарегистрированные с помощью методики электрооптического детектирования, приведены на рисунке 19 (а). Соответствующие им спектры, полученные с помощью преобразования Фурье, представлены на рисунке 19 (б). Видно типичное поведение антенн с большим межэлектродным расстоянием — спектры имеют низкочастотный максимум (0,2–0,3 ТГц), а формы сигналов имеют явную асимметрию полярности излучаемого поля [134]. Формы сигналов и спектральные данные показывают, что антенна на НРНТ алмазе излучала самые короткие импульсы. Аппроксимация Лоренцевой формой спектров ТГц излучения от фотопроводящих антенн по полувысоте равнялась 0,35 ТГц для спектров излучения полученного от НРНТ-алмаза и около 0,2 ТГц для спектров, полученных от CVD-алмаза и ZnSe. Возможными объяснениями более широкого зарегистрированного спектра для антенны на основе НРНТ-алмаза являются минимальное рассогласование фаз в алмазе с высокой поглощающей способностью, а также геометрические проблемы системы сбора излучения из-за разных размеров антенн.

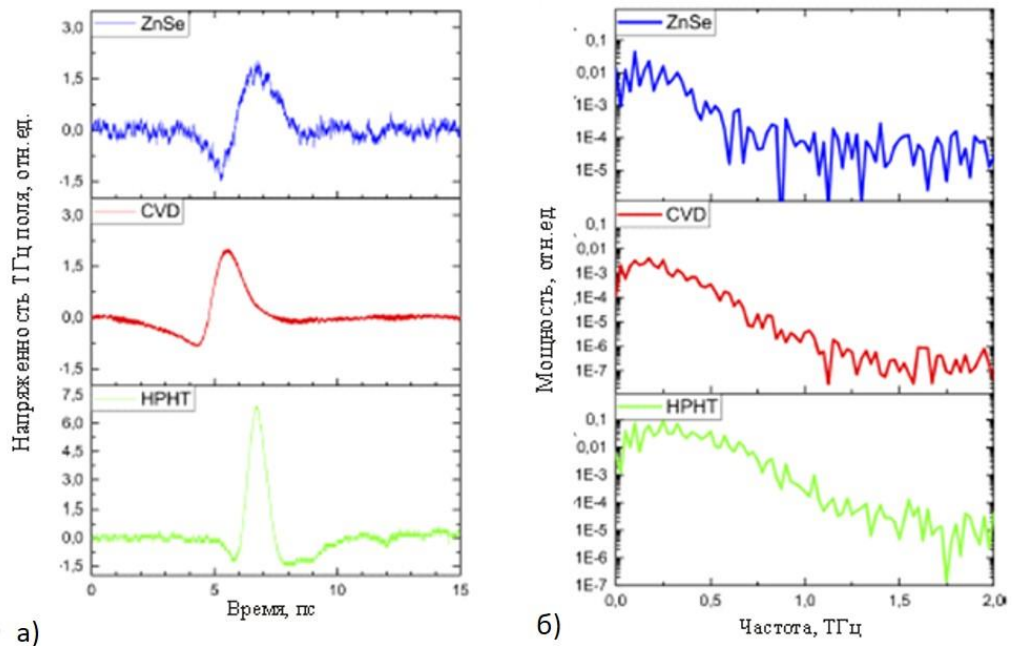


Рисунок 19 – (а) Формы импульсов терагерцового диапазона, создаваемых тремя исследуемыми широкоапертурными фотопроводящими антеннами. (б) Соответствующие спектры ТГц импульсов.

Зависимость энергий ТГц-импульсов от плотности энергии оптической накачки представлена на рисунке 20. Аппроксимирование экспериментальных данных проводилось с использованием модели ТГц-генерации, которая предсказывала насыщение ТГц-поля за счет его взаимодействия с полем смещения в соответствии с выражением (2.6).

Как видно на рисунке 20, зависимость генерируемой ТГц энергии от плотности энергии оптической накачки удовлетворительно аппроксимируется уравнением (2.6): при малых значениях  $F_{\text{опт}}$  излучаемая энергия растет пропорционально квадрату  $F_{\text{опт}}$ , а затем достигает насыщения. Максимальное полученное значение энергии в ТГц импульсе достигало  $\sim 200$  пДж при приложенном поле смещения 25 кВ/см. При площади облучения  $2,7 \times 1,5$  мм<sup>2</sup> это относительно слабое поле обеспечивало эффективность преобразования оптического излучения в ТГц на уровне  $\eta \approx 0,002$  %. ТГц выход в алмазной фотопроводящей антенне растет пропорционально квадрату приложенного электрического поля [135] и, следовательно, при увеличении напряжения

смещения до 1 МВ/см (электрическое поле пробоя алмаза 10 МВ/см [125]) ожидается увеличение эффективности преобразования до 3% и более.

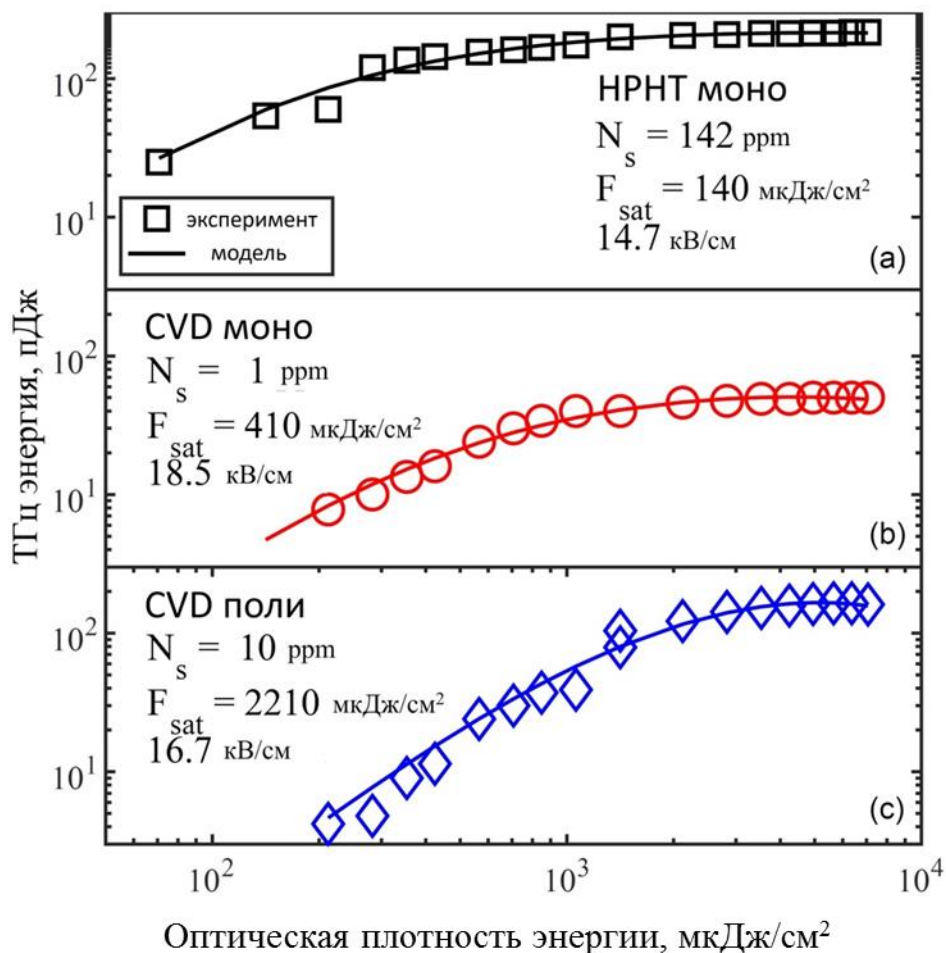


Рисунок 20 – Экспериментальная зависимость терагерцовой энергии (точки), излучаемой различными алмазными фотопроводящими антеннами, от плотности энергии оптического лазерного излучения: (а) алмаз HPHT (высокий уровень азота), (б) монокристаллический алмаз CVD (низкий уровень азота) и (с) поликристаллический CVD-алмаз алмаз (умеренный уровень азота). Сплошные линии обозначают аппроксимационные кривые, которые были рассчитаны в соответствии с уравнением (2.6).

Зависимость порога насыщения от плотности энергии лазерного излучения от концентрации азота в алмазах, рассчитанная для длины волны 400 нм,

представлена на рисунке 21. Величина  $F_{\text{нас}}$  явно коррелирует с содержанием азота ( $N_s$ ), постепенно уменьшаясь по мере увеличения уровня легирования. Из полученной зависимости следует, что порог насыщения от плотности энергии зависит от концентрации азота в материале подложки:

$$F_{\text{нас}} = \frac{F_{\text{нас}}^{\text{идеал}}}{1 - \exp(-\alpha d)} \quad (2.13)$$

где  $\alpha$  — поглощение легированного азотом алмаза,  $d$  — толщина образца. Поскольку толщина образца варьировалась в широком диапазоне (от 250 мкм до 1570 мкм), на рисунке 21 представлены две предельные кривые, рассчитанные с использованием предельных толщин по уравнению (2.13). Значение поглощения было взято из эксперимента. Минимальное экспериментальное значение плотности энергии насыщения  $0,04 \text{ мДж/см}^2$  (рассчитанное значение подвижности при этом составило:  $\mu = 860 \text{ см}^2 / \text{В} \cdot \text{с}$  (показатель преломления алмаза на терагерцовых частотах  $n = 2,38$ )), продемонстрированное НРНТ-алмазом 200 ppm, было принято за «идеальное» значение  $F_{\text{нас}}$ . Насколько нам известно, это самое низкое значение пространственной плотности энергии насыщения, полученное на длине волны 400 нм по сравнению с фотопроводящими антеннами на основе других материалов.

В целом экспериментальные данные, представленные на рисунке 21 подтверждают теоретическую модель. Наилучшие ( $F_{\text{нас}} \approx 0,04 \text{ мДж/см}^2$ ) и наихудшие ( $F_{\text{нас}} \approx 12 \text{ мДж/см}^2$  ( $\mu = 3 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$ )) характеристики продемонстрировали алмазы НРНТ с максимальной и минимальной концентрацией азота соответственно. Несмотря на значительный разброс данных, большая часть экспериментальных точек лежит внутри предсказанного диапазона. Только три конкретные группы исключены из этого диапазона.

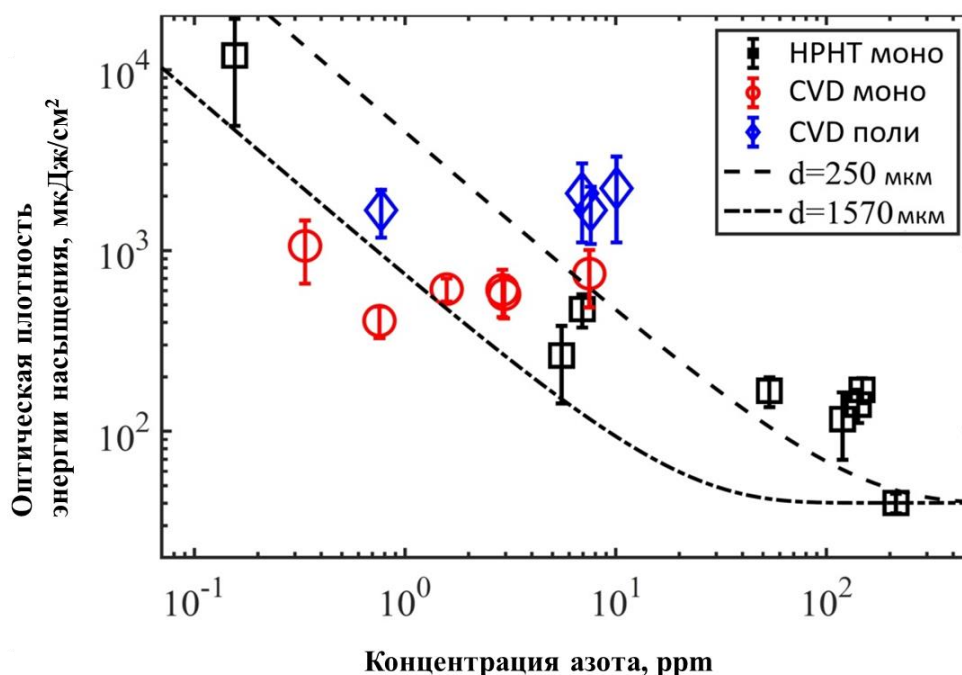


Рисунок 21 – Зависимость плотности энергии насыщения лазерного излучения от концентрации азота для исследованных алмазных фотопроводящих антенн на длине волны 400 нм. Линиями показаны теоретические кривые для антенн с толщиной подложек 250 мкм и 1570 мкм (подробности см. в тексте).

К первой группе относятся высоколегированные HPHT-алмазы, характеризующиеся пространственной плотностью оптической энергии насыщения на 70–100 % выше теоретической оценки. Возможным физическим механизмом ослабления излучения здесь является уменьшение подвижности носителей в кристаллах с высоким содержанием примесей азота. Ко второй группе относятся поликристаллические CVD-алмазы с  $N_S \approx 10$  ppm, пространственной плотностью энергии насыщения которых примерно вдвое превышает теоретический предел. Это может быть вызвано, как и в первом случае, уменьшением подвижности электронов. Вторым важным фактором, явно ухудшившим эффективность оптико-терагерцового преобразования, является сильное оптическое рассеяние в этих образцах. В поликристаллических подложках обратное и широкоугольное рассеяние приводит к заметному непоглощающему затуханию излучения накачки, что, в свою очередь, приводит к

уменьшению числа фотоиндуцированных носителей заряда и генерирующихся за счет фотопроводимости ТГц волн. Напротив, эффективность преобразования, продемонстрированная третьей группой — двумя монокристаллическими CVD-алмазами — была примерно в два раза выше теоретических предсказаний. Для определения механизма этих всплесков эффективности требуются дополнительные исследования. Возможно, данные всплески связаны с возбуждением иных центров окраски в алмазах, помимо исследуемых в данной работе азотно-замещенных.

Рассчитанное с помощью представленной выше модели значение порога насыщения от плотности энергии оптической накачки на длине волны 267 нм представлено на рисунке 22 в зависимости от концентрации азота в алмазах. Разброс между наилучшим ( $F_{\text{нас}} \approx 30 \text{ мкДж/см}^2$  ( $\mu = 1637 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$ )) и наихудшим ( $F_{\text{нас}} \approx 400 \text{ мкДж/см}^2$  ( $\mu = 123 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$ )) значением величины плотности энергии насыщения для различных образцов на данной длине волны гораздо меньше, чем в случае 400 нм. Стоит отметить, что в работе Йонеды и др. [78] величина плотности энергии насыщения для близкой длины волны 248 нм в случае поликристаллической CVD-подложки оценивалась в  $15 \text{ мкДж/см}^2$ . Хотя явной корреляции между содержанием азота и порогом насыщения в этих экспериментах не наблюдалось, алмазы достаточно хорошо различаются по типу: наилучшие результаты показывают HPHT-подложки, несколько хуже проявляют себя монокристаллические CVD-подложки, а наихудшие результаты у поликристаллических CVD-алмазов. Данное обстоятельство свидетельствует в пользу более интенсивного рассеяния в случае использования CVD-подложек. К причинам слабой зависимости величины плотности энергии насыщения от содержания азота, как и ранее можно отнести наличие других примесных центров окраски, вероятность возбуждения которых растет с увеличением величины кванта возбуждающего оптического излучения.



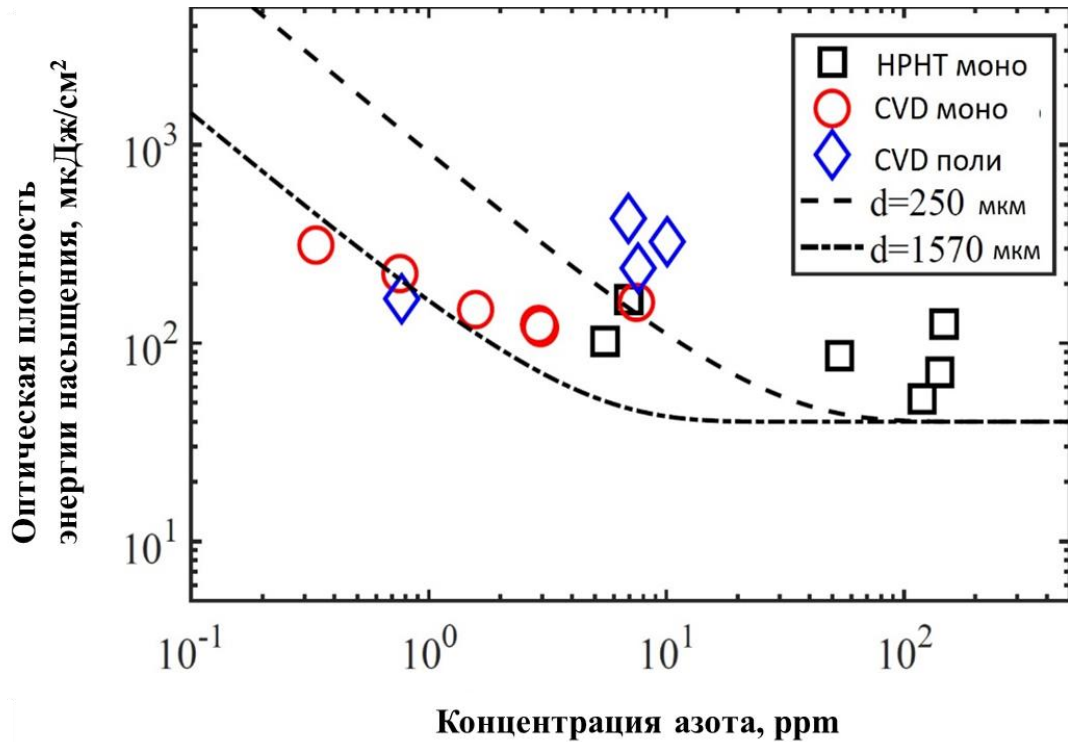


Рисунок 22 – Зависимость плотности энергии насыщения лазерного излучения от концентрации азота для исследованных алмазных фотопроводящих антенн на длине волны 267 нм. Линиями показаны теоретические кривые для антенн с толщиной подложек 250 мкм и 1570 мкм (подробности см. в тексте).

Текущее максимальное значение пиковой энергии генерируемых с помощью исследуемых алмазных ФПА ТГц импульсов составляет около  $\sim 7$  нДж/см<sup>2</sup> при приложенном поле 25 кВ/см. В то же время зарегистрированный уровень пространственной плотности энергии терагерцового излучения для широкоапертурной фотопроводящей алмазной антенны в работе [78] был  $\sim 100$  нДж/см<sup>2</sup> при приложенном поле 100 кВ/см. В предположении о квадратичной зависимости излучаемой энергии от величины приложенного поля смещения, наш результат хорошо соответствует ранее полученному. Стоит отметить, что в антенне на основе GaAs максимальная пространственная плотность терагерцовой энергии составляет  $\sim 70$  нДж/см<sup>2</sup> при приложенном поле 10 кВ/см, сравнимом с используемым в нашей работе [130]. Однако, приложение более высоких напряжений в случае GaAs антенн приведет к пробое и выходу из строя антенны.

Эти данные и оценки подтверждают возможность использования легированного алмаза в качестве материала для эффективных широкоапертурных фотопроводящих антенн, при условии приложения высоких полей смещения.

### **3. ГЕНЕРАЦИЯ ПРЯМОУГОЛЬНЫХ НАНОСЕКУНДНЫХ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ИМПУЛЬСОВ С ПИКОСЕКУНДНЫМ ФРОНТОМ НАРАСТАНИЯ**

Создание устройств для генерации сверхширокополосных электромагнитных импульсов (СШП ЭМИ) нано- и пикосекундного диапазона является актуальной задачей [136–145]. Эти импульсы находят применение в различных областях, таких как визуализация объектов, защищенная радиосвязь, зондирование поверхности Земли и ионосферы [145], силовое воздействие на электронику и сверхширокополосная радиолокация [146]. Одновременно, эти импульсы могут быть использованы для измерения переходных характеристик детекторов, что важно для метрологии. Возникает вопрос о возможности создания квазипрямоугольных электромагнитных импульсов, которые позволят напрямую измерить переходные процессы в детекторах и определить их аппаратную функцию. Обычно для построения генератора СШП ЭМИ используется техническое решение в виде трех отдельных узлов: генератора импульсного напряжения (ГИН), антенны и соединяющего их нерезонансного коаксиально-волноводного перехода (КВП). Для подобных излучателей длительность и диапазон частот в спектре ЭМИ определяются параметрами всех трех компонентов — импульсом напряжения с ГИН, конструкцией антенны и АЧХ КВП. Существующие наиболее быстродействующие ГИН позволяют сформировать импульсы длительностью от 10 до 100 пикосекунд (как, например, в государственном первичном эталоне ГЭТ 178-2016), что ограничивает возможность получения более коротких длительностей сверхширокополосных электромагнитных импульсов в излучателях подобного типа.

В настоящей работе предлагается новая конструкция антенного излучателя СШП ЭМИ, в котором ГИН и КВП вместе заменяются на полупроводниковый коммутатор, оптически переключаемый короткими лазерными импульсами пикосекундной длительности. Подобная замена позволяет генерировать ЭМИ с существенно более короткими временами нарастания, которые определяются в

первую очередь свойствами материала полупроводника и длительностью лазерных импульсов.

Коммутатор представляет собой полупроводниковый кристалл, располагающийся между двух электродов, на которые подается электрическое напряжение. Кристалл должен обладать высоким удельным сопротивлением, для обеспечения малых токов утечки, что позволит запастись электрической энергией в области межэлектродного зазора, имеющего емкость. Сверхкороткие лазерные импульсы повышают проводимость кристалла и переключают электроды между собой. Фронты тока являются причиной генерации СШП ЭМИ.

Таким образом, использование фотопроводящих материалов позволяет создавать фототоки, длительность фронта нарастания которых повторяет длительность поглощенного лазерного импульса, что при доступности лазерных источников с длительностью импульса менее 1 пс позволяет создавать электромагнитные импульсы с существенно более широким спектром, чем традиционные излучатели СШП ЭМИ.

### **3.1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ**

На рисунке 23 изображена модель генератора импульсов электромагнитного поля наносекундной длительности с пикосекундными фронтами нарастания (полеобразующая система). В предложенной геометрии излучателя полупроводник находится в вершине полеобразующей системы между металлическими пластинами, на которые подается импульсное напряжение от внешнего источника. Под воздействием лазерного излучения в полупроводниковом материале формируется фототок с фронтом нарастания, определяемым длительностью лазерного импульса.

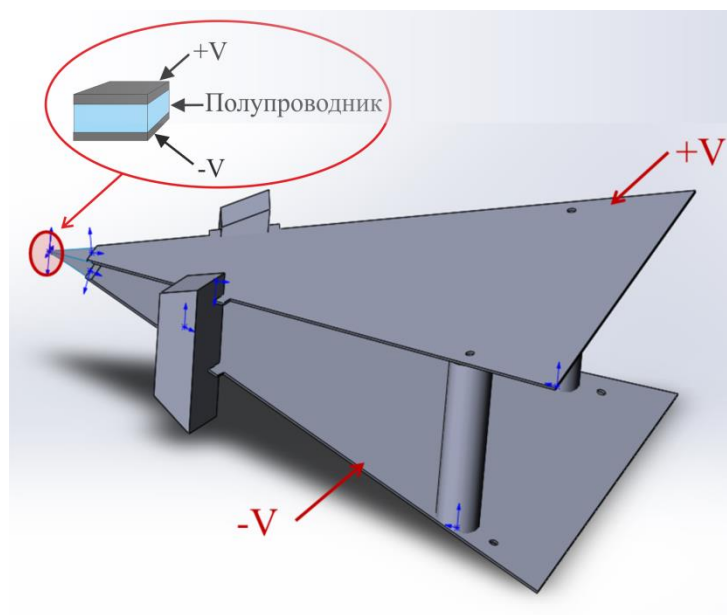


Рисунок 23 – Модель полеобразующей системы в форме рупора.

После появления фототока происходит разрядка напряжения, поданного на металлические пластины, и возникает бегущая электромагнитная волна. Длительность основной части генерируемого импульса соответствует времени, в течение которого электромагнитная волна распространяется по линии, образованной металлическими пластинами. На рисунке 24 представлена схема экспериментальной установки по генерации сверхширокополосных (СШП) ЭМИ.

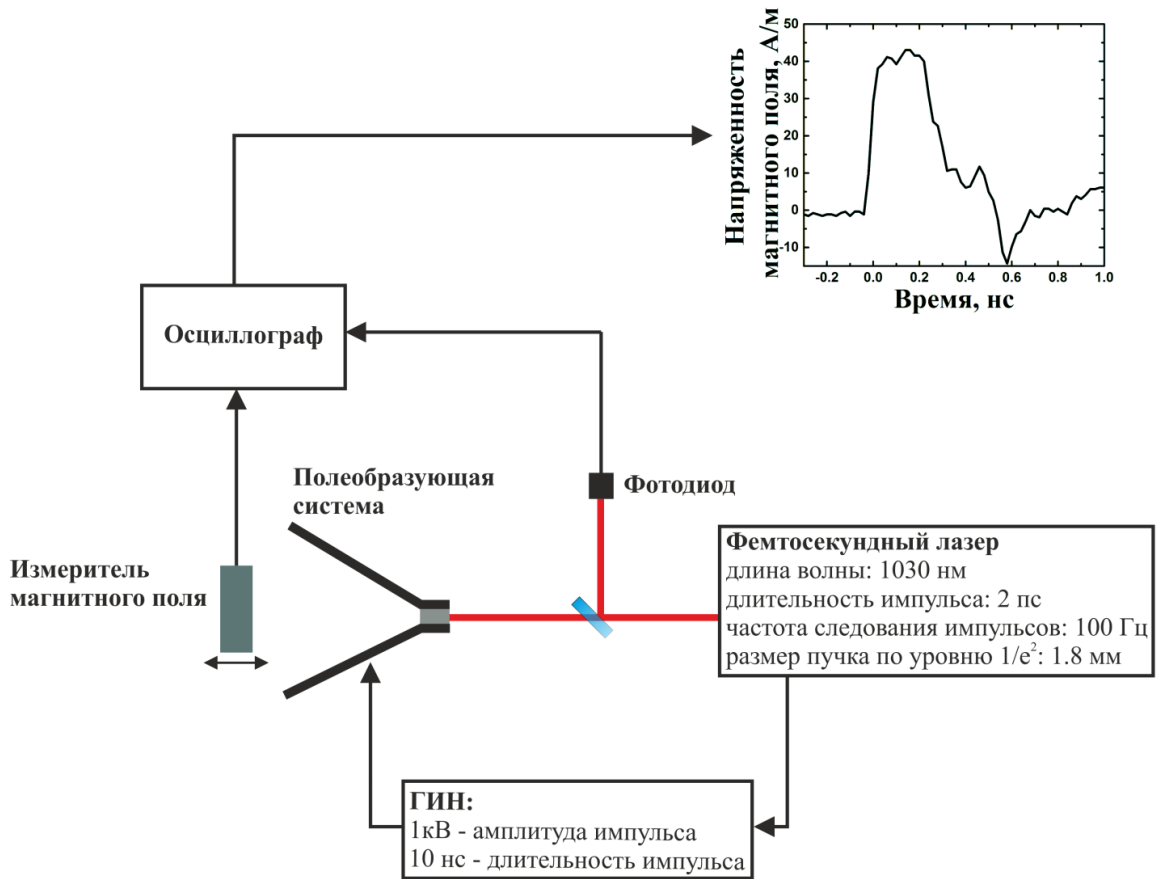


Рисунок 24 – Схема экспериментальной установки по генерации и детектированию СШП ЭМИ наносекундной длительности с пикосекундными фронтами нарастания.

При проведении экспериментов по генерации СШП ЭМИ в качестве источника возбуждения фотопроводящего полупроводникового ключа был использован фемтосекундный волоконный лазер (ANTAUS-20W-40u/1M) с центральной длиной волны  $\lambda = 1030$  нм, длительностью импульсов 2 пс и частотой следования импульсов 100 Гц. В качестве фотопроводящих ключей использовались: высокоомный арсенид галлия с удельным сопротивлением  $\rho = 10^7$  Ом\*см; кремний с удельным сопротивлением  $\rho = 10^4$  Ом\*см; алмаз, выращенный методом НРНТ (термобарический метод, основанный на кристаллизации алмаза из расплава углерода при высокой температуре и при высоком давлении) с концентрацией азотистой примеси 100 ppm. При использовании в качестве фотопроводящего ключа алмаза его фотовозбуждение

осуществлялось второй гармоникой лазерного излучения с длиной волны  $\lambda = 515$  нм. Для регистрации временной формы импульсов магнитного поля использовался измерительный преобразователь магнитного поля ТПМП112 производства ФГУП ВНИИА с чувствительностью 53 мВ/(А/м) и временем нарастания переходной характеристики 35 пс. Амплитуда приложенного к пластинам антенны импульсного напряжения смещения составляла 1 кВ, при длительности импульса  $\sim 10$  нс.

Для измерения времен фотоиндуцированных носителей заряда был собран стенд по оптической накачке – терагерцовому зондированию. Схематичное изображение стенда представлено на рисунке 25. В экспериментах по оптической накачке - терагерцовому зондированию выходной луч титан-сапфировой лазерной системы (центральная длина волны 800 нм, энергия импульса 2-3 мДж, длительность импульса 40 фс, диаметр пятна излучения 12 мм по уровню  $1/e^2$ , частота следования импульсов 1 кГц) разделяется на три пучка с помощью двух светоделителей (светоделитель, делящий излучение в пропорции 70/30 (пропускание/отражение) и клиновидный светоделитель делящий излучение в пропорции 96/4 (пропускание/отражение). Основная часть излучения (67%) после пропускания через светоделители и используется для генерации терагерцового излучения. Второй пучок (30%), отражаемый с помощью светоделителя используется для возбуждения носителей заряда в исследуемых фотопроводящих материалах. Третий пучок (3%), отражаемый от светоделителя используется для детектирования терагерцового излучения.

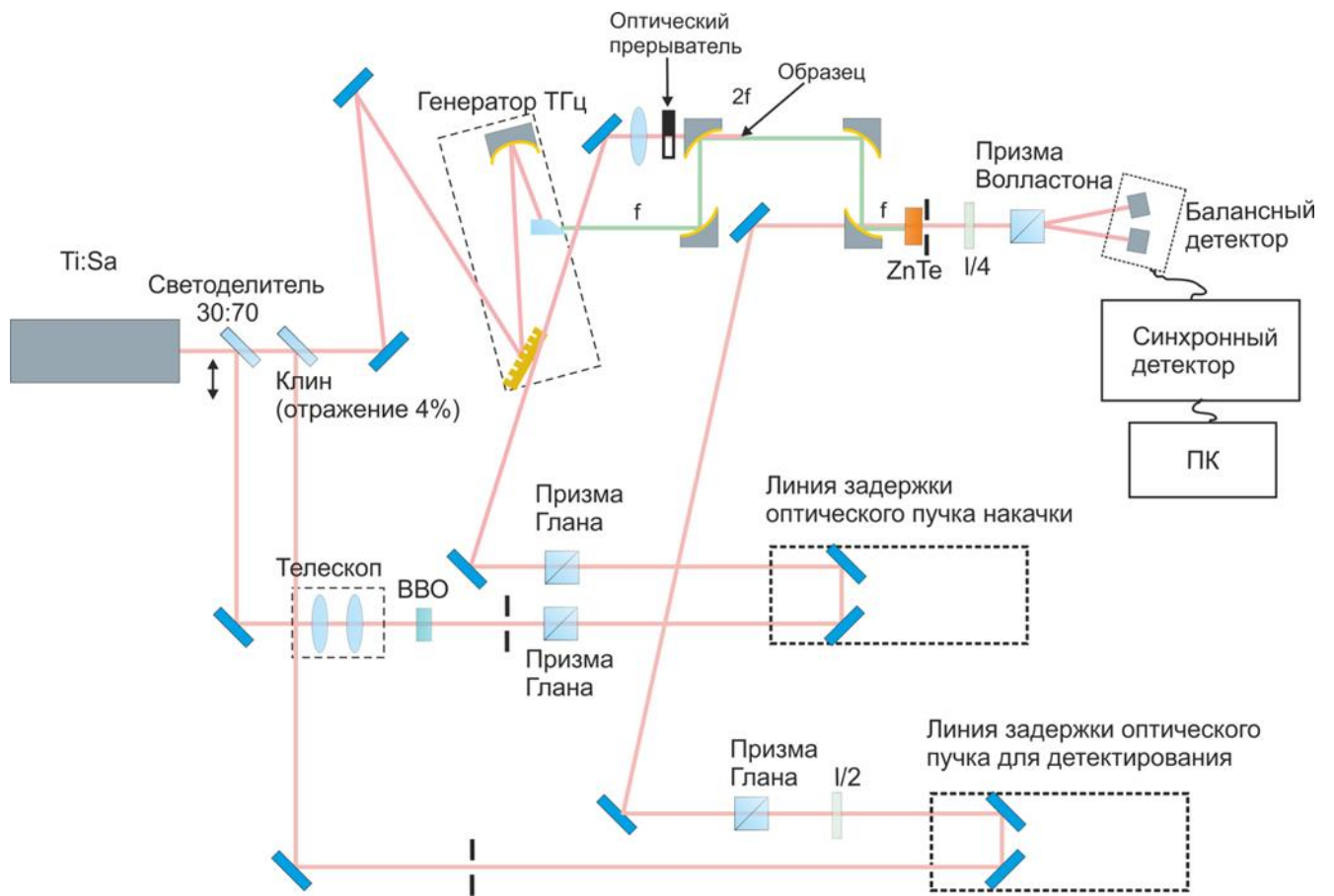


Рисунок 25 – Стенд оптической накачки – терагерцового зондирования для исследования сверхбыстрой динамики носителей заряда в фотопроводящих материалах.

Основная часть лазерного луча направляется зеркалами и в генератор терагерцовых импульсов. Принцип работы генератора терагерцовых импульсов основан на оптическом выпрямлении фемтосекундных лазерных импульсов с наклонным фронтом интенсивности в нелинейном кристалле  $\text{LiNbO}_3$ . Напряженность электрического поля излучаемых генератором терагерцовых импульсов составляет до 30 кВ/см. Выходной ТГц луч (используемый в качестве зондирующего луча), коллимируется параболическим зеркалом и фокусируется параболических зеркал на центральную часть исследуемых полупроводниковых образцов с размером пятна  $\sim 3$  мм. Прошедшее через исследуемый образец излучение коллимируется параболическим зеркалом и фокусируется в кристалл теллурида цинка. В кристалле теллурида цинка в момент прихода импульса терагерцового излучения возникает эффект наведенного двулучепреломления.



Детектирование терагерцового излучения производится путем электрооптического стробирования. Для его реализации используется часть излучения (далее будем называть «детектирующий пучок»), отраженное светоделителем. Данный пучок направляется зеркалом на механизированную подвижку с установленным уголковым отражателем и далее зеркалами и, проходя через отверстие в параболическом зеркале, на кристалл теллурида цинка. Состояние поляризации детектирующего пучка изменяется при его прохождении через кристалл теллурида цинка с наведенным двулучепреломлением, при этом возникающая фазовая задержка между обыкновенной и необыкновенной волнами линейно зависит от величины терагерцового поля, действующего на кристалл в момент прохождения детектирующего лазерного импульса. Для регистрации напряженности электрического поля терагерцового импульса по степени деполяризации детектирующего излучения реализуется схема с балансным детектором, состоящим из четвертьволновой фазовой пластинки, ориентированной быстрой осью под  $45^\circ$  к направлению поляризации лазерного излучения, призмы Волластона, разделяющей две ортогонально поляризованные компоненты детектирующего излучения, и двух фотодиодов, разница сигналов которых пропорциональна величине электрического поля. Запись сигнала с балансного детектора происходит на синхронном детекторе, с регистрацией на частоте следования лазерных импульсов. Полуволновая пластинка и призма Глана используются для регулировки мощности детектирующего пучка. Диафрагма ограничивает диаметр детектирующего пучка, для прохождения через отверстие в параболическом зеркале. Диафрагма обеспечивает прохождение детектирующего пучка и защиту от паразитной засветки балансного детектора. Часть лазерного излучения, отраженное светоделителем используется для оптического возбуждения носителей заряда (далее будем называть «излучение накачки»). Излучение направляется зеркалом на моторизованную подвижку с уголковым отражателем, а затем зеркалами и на поверхность исследуемого образца, проходя через отверстие в параболическом зеркале. Путем перемещения уголкового отражателя регулируется длина оптического пути излучения накачки и, таким

образом, временная задержка между моментами прихода на поверхность образца импульсов излучения накачки и терагерцового луча. Поскольку фотопроводящие носители могут возбуждаться излучением не только основной, но и второй гармоники титан-сапфирового лазера, в пучок накачки внедрен кристалл бета - бората бария (ВВО) (I-тип синхронизма, толщина кристалла составляет 200 мкм) для преобразования части излучения во вторую гармонику. Для более эффективного преобразования во вторую гармонику исходный пучок уменьшался в диаметре телескопом в соотношении 1/2. Излучение накачки (диаметром 6 мм по уровню  $1/e^2$ ) расширяется линзой до диаметра 13 мм по уровню  $1/e^2$  (в месте перетяжки терагерцового излучения). Плотность энергии оптического излучения накачки может варьироваться системой из двух линейных поляризаторов (призм Глана), за счет изменения угла поворота призмы Глана, установленной на оптическом пути перед второй призмой Глана, зафиксированной в одном положении. С помощью написанного программного обеспечения, установленного на ПК, осуществляется управление механизированными подвижками и производится запись сигнала с синхронного детектора, позволяя автоматически измерять временные зависимости напряженности электрического поля терагерцового импульса, прошедшего через образец с фиксированной задержкой прихода терагерцового импульса относительно импульса оптического возбуждения фотоносителей. Таким образом, данный стенд позволяет оценивать времена жизни фотовозбужденных носителей заряда, возбужденных излучением основной и второй гармоники излучения титан-сапфирового лазера; измерять спектры пропускания терагерцового излучения возбужденного образца; измерять временные кинетики фотовозбужденных носителей заряда.

Методом оптической накачки – терагерцового зондирования были измерены времена жизни фотоиндуцированных носителей заряда для образцов, используемых в качестве фотопроводящих ключей в полеобразующей системе. На рисунке 26 приведены измеренные зависимости нормированной величины амплитуды напряженности электрического поля терагерцового излучения от времени прихода оптического возбуждения. Из полученных зависимостей, путем

экспоненциальной аппроксимации были получены величины времен релаксации фотоиндуцированных носителей заряда. Так, для арсенида галлия время жизни носителей заряда составило  $\tau = 620 \pm 100$  пс, (при фотовозбуждении лазерным излучением с длиной волны 800 нм); для НРНТ алмаза  $\tau = 10 \pm 1$  пс (при фотовозбуждении лазерным излучением с длиной волны 400 нм). Время жизни носителей заряда в кремнии составляет более 10 нс.

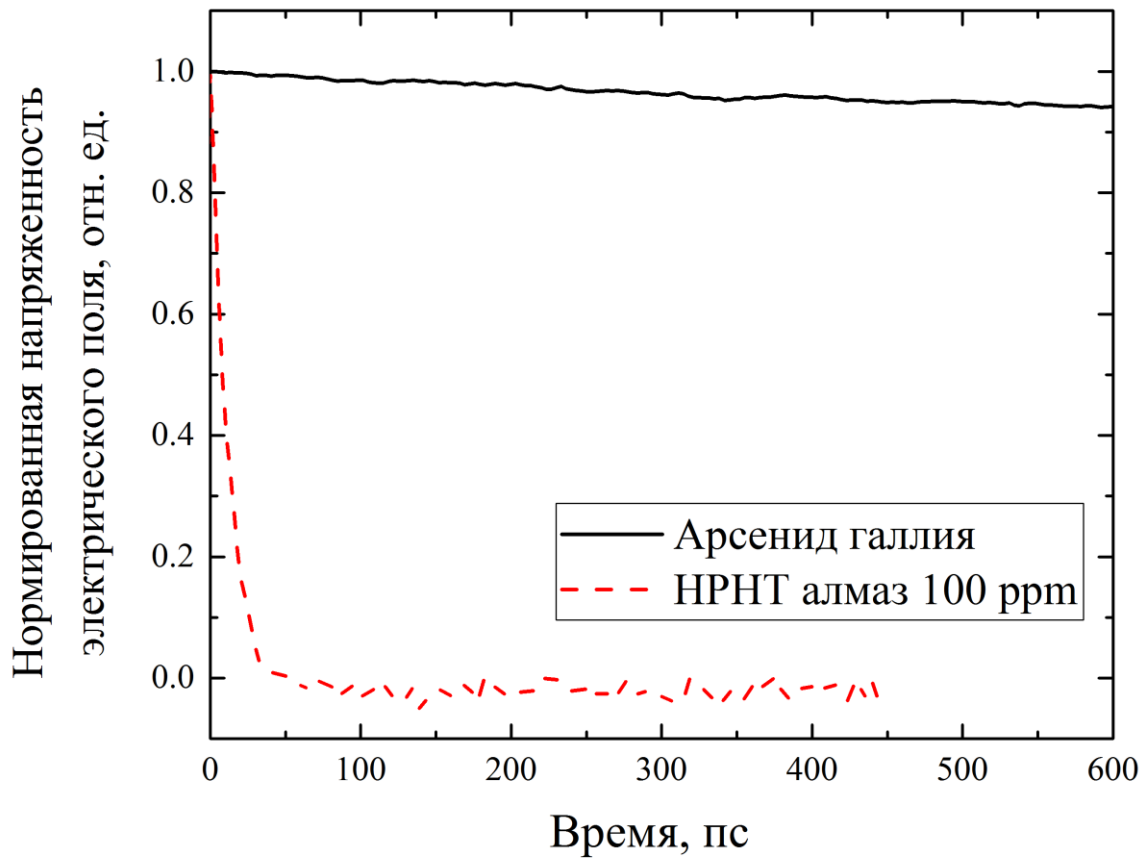


Рисунок 26 – Нормированная величина амплитуды напряжённости электрического поля терагерцового излучения, проходящего через полупроводник (арсенид галлия и НРНТ алмаз) в зависимости от времени прихода оптического излучения: 800 нм и 3 мВт, в случае арсенида галлия; и 400 нм и 3,5 мВт, в случае НРНТ алмаза.

Осциллограммы напряженности магнитного поля (нормированные на единицу) при генерации электромагнитного излучения с использованием

различных фотопроводящих ключей представлены на рисунке 27 (в проведенной серии экспериментов длина полеобразующей системы составляла 500 мм). В экспериментах преобразователь магнитного поля располагался на одинаковом расстоянии от фотопроводящего материала. Результаты проведенных экспериментов демонстрируют, что длительность СШП ЭМИ зависит от типа используемого фотопроводящего материала и явно зависит от времени жизни фотоиндуцированных носителей заряда [147] (рисунок 27). При этом измеренные времена нарастания ЭМИ (34 пс) для всех исследованных полупроводниковых материалов совпадают с собственным временем нарастания (35 пс) использованного измерителя магнитного поля. Таким образом, можно сделать вывод, что в действительности фронт генерируемого в экспериментах широкополосного импульса существенно меньше 30 пс и зависит главным образом от длительности возбуждающих фотопроводник лазерных импульсов.

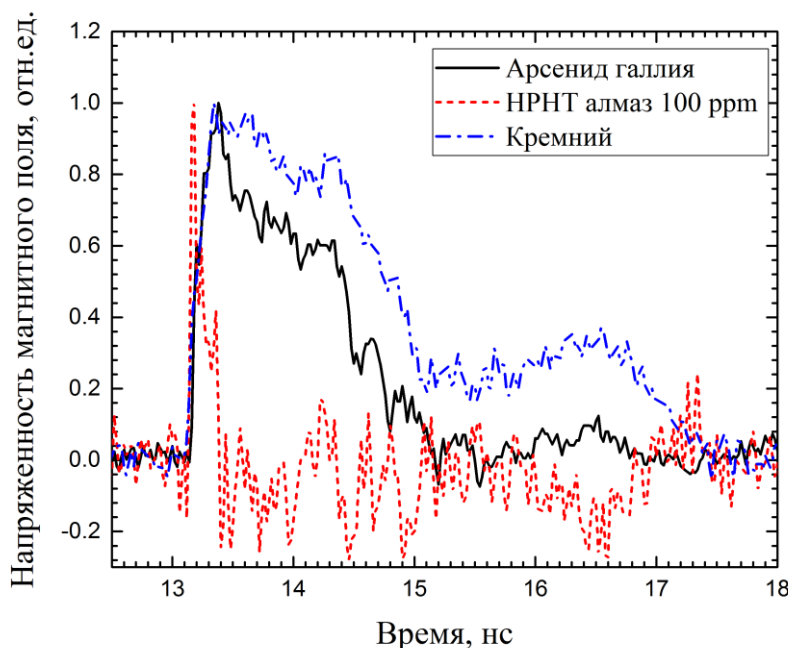


Рисунок 27 – Осциллограммы напряженности магнитного поля внутри полеобразующей системы (на расстоянии 250 мм от полупроводникового ключа) при использовании различных фотопроводящих ключей: арсенид галлия (сплошная черная линия), НРНТ алмаз с концентрацией азотистой примеси 100 ppm (красная пунктирная линия), кремний (синяя штрихпунктирная линия).

В ходе исследования также были проведены эксперименты по измерению зависимости между напряженностью магнитного поля и оптической плотностью энергии переключения фотопроводящего коммутатора на основе арсенида галлия (см. Рисунок 28) (напряженность электрического поля смещения равнялась 16 кВ/см). Полученные экспериментальные данные были аппроксимированы с помощью зависимости (3.1) [81], учитывающей насыщение генерируемого поля:

$$H \approx \beta \left( \frac{F}{F + F_{\text{нас}}} \right) \quad (3.1)$$

, где  $H$  – напряженность магнитного поля;  $\beta$  – константа, характеризующая амплитуду излучаемого поля, зависящая от приложенного поля смещения;  $F$  –

плотность энергии оптического излучения падающего, фотоинициализирующая полупроводниковый ключ.

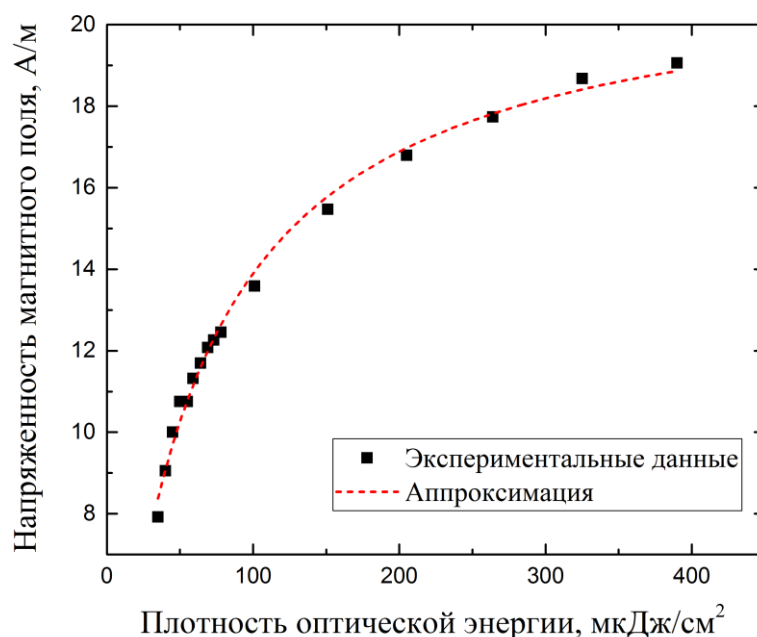


Рисунок 28 – Зависимость амплитуды напряженности магнитного поля СШП ЭМИ полеобразующей системы на основе арсенида галлия от плотности оптической энергии, коммутирующей фотопроводящий ключ

Значение плотности оптической энергии насыщения, полученное в ходе аппроксимации экспериментальной зависимости составило  $55 \text{ мкДж/см}^2$  (Рисунок 28), что согласуется со значением, полученным в работе [148] ( $40 \text{ мкДж/см}^2$  на длине волны излучения накачки  $770 \text{ нм}$  и напряженности электрического поля смещения  $11 \text{ кВ/см}$ ). Константа, характеризующая амплитуду излучаемого поля  $\beta$  при этом составила  $22 \text{ А/м}$ .

Было проведено исследование изменения формы генерируемого электромагнитного импульса по мере его распространения вдоль линии формирования поля и при его выходе в свободное пространство. Для этого датчик магнитного поля перемещался вдоль направления распространения излучения, при этом длина полеобразующей системы в проведенной серии экспериментов составляла  $300 \text{ мм}$ . На рисунке 29 представлена трехмерная зависимость

временного распределения напряженности магнитного поля от расположения измерителя магнитного поля относительно фотопроводящего ключа (арсенид галлия). Из рисунка 29 можно сделать вывод, что на расстоянии около 275 мм от фотопроводящего ключа происходит изменение временной формы напряженности магнитного поля, и на расстоянии 475 мм излучение переходит в дальнюю зону, поскольку форма импульса перестает изменяться, уменьшаясь только по амплитуде.

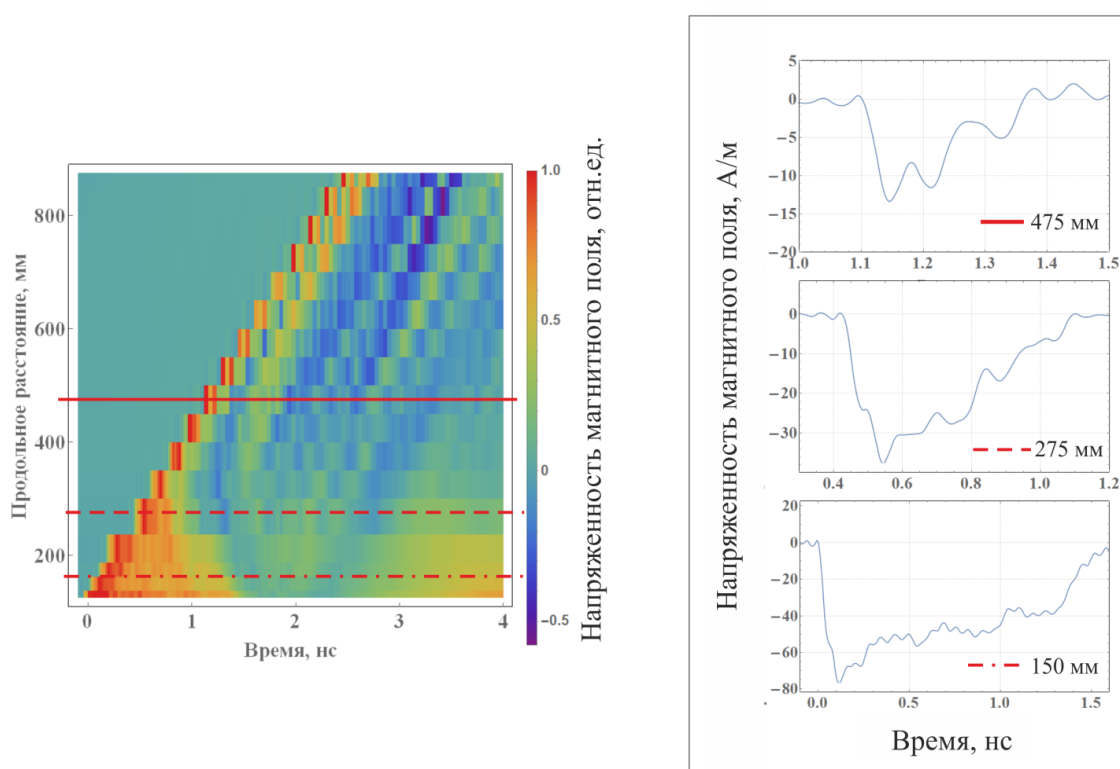


Рисунок 29 – Нормированная трехмерная зависимость временного распределения напряженности магнитного поля от положения измерителя магнитного поля. За начало отсчета принято расположение фотопроводящего ключа (арсенида галлия). На вставке приведены временные зависимости напряженности магнитного поля, измеренные на расстоянии: 150 мм, 275 мм и 475 м.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе работы была исследована генерация импульсов терагерцового излучения в фотопроводящих антеннах на основе ZGP, при их облучении фемтосекундными лазерными импульсами на длинах волны 800 и 400 нм. Была получена временная зависимость напряженности ТГц импульса, зависимость энергии терагерцового импульса от оптической энергии и рассчитана подвижность фотоиндуцированных носителей заряда для кристаллов ZGP с остаточными компонентами синтеза. Было установлено, что величина оптической плотности энергии насыщения ТГц-импульса для антенн на основе ZGP ( $F_{\text{нас}} = 0,27 \text{ мДж/см}^2$ ) была сопоставима с величиной  $F_{\text{нас}}$  для антенны на основе ZnSe ( $F_{\text{нас}} = 0,13 \text{ мДж/см}^2$ ). Однако, величина объемного сопротивления ZGP выше, чем у ZnSe, что позволяет прикладывать большее напряжение смещения. Таким образом, преимущество использования широкоапертурных антенн на основе ZGP заключается в том, что антенна на основе ZGP может возбуждаться фемтосекундным лазером на основе Yb и может применяться большее (по сравнению с ZnSe) поле смещения, что позволит создать мощные и компактные источники терагерцового излучения.

Продемонстрирована применимость пленок поликристаллических гибридных органо-неорганических перовскитов в качестве подложек широкоапертурных фотопроводящих антенн. Результаты, полученные в данной работе, делают гибридные перовскиты конкурентоспособными материалами для фотопроводящих антенн в сравнении с обычными полупроводниками. Были получены значения оптической плотности энергии насыщения для  $\text{MAPbBr}_3$  и  $\text{MAPbI}_3$  полупроводниковых подложек фотопроводящей антенны, которые составили:  $F_{\text{нас}} = 0,194 \text{ мДж/см}^2$  для  $\text{MAPbBr}_3$  и  $F_{\text{нас}} = 0,293 \text{ мДж/см}^2$  для  $\text{MAPbI}_3$ . Были рассчитаны значения подвижности фотоиндуцированных носителей заряда:  $\mu \approx 58 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$  для  $\text{MAPbI}_3$  и  $\mu \approx 88 \text{ см}^2/\text{В}\cdot\text{с}$  для  $\text{MAPbBr}_3$ . Разработанный метод определения подвижности носителей заряда может быть в дальнейшем применен для изучения различных 3D и 2D материалов.



Также была продемонстрирована генерация ТГц импульсов с помощью фотопроводящих антенн на основе алмазов, легированных азотом, при создании носителей заряда второй гармоникой титан-сапфирового лазера. Было продемонстрировано, что уровень легирования определяет оптическое поглощение накачки второй гармоникой в алмазных HPHT- и CVD-подложках. Выявлена корреляция между уровнем легирования и величиной оптической плотности энергии насыщения в алмазных фотопроводящих антеннах. В зависимости от уровня азота оптическая плотность энергии насыщения алмазных фотопроводящих антенн варьировалась от очень высокого ( $\sim 12$  мДж/см<sup>2</sup>) до рекордно низкого ( $\sim 0,04$  мДж/см<sup>2</sup>). Проведенные эксперименты и оценки подтверждают эффективность использования легированного алмаза в качестве материала подложек широкоапертурных фотопроводящих антенн, при условии приложения высоких полей смещения.

Была разработана и создана полеобразующая система на основе рупорной антенны с фотопроводящим ключом для генерации электромагнитных импульсов наносекундной длительности с пикосекундными фронтами нарастания. Продемонстрирована генерация электромагнитных импульсов в указанной полеобразующей системе с использованием различных полупроводниковых фотопроводящих ключей: арсенида галлия, кремния и HPHT-алмаза. Исследовано изменение формы генерируемых СШП ЭМИ по мере их распространения внутри полеобразующей системы и в свободном пространстве. Установлено, что длительность генерируемых электромагнитных импульсов определяется длиной полеобразующей системы и временем жизни фотоиндуцированных носителей заряда в полупроводнике, а их фронт оказывается существенно меньше 30 пс, и зависит главным образом от длительности возбуждающих фотопроводник пикосекундных лазерных импульсов. Созданная полеобразующая система в дальнейшем может быть использована для исследования процессов, происходящих при прохождении сверхширокополосных электромагнитных импульсов сквозь атмосферу.

**СПИСОК ИСПОЛЬЗУЕМЫХ СОКРАЩЕНИЙ**

ТГц, THz – терагерцовый

Ti:Sa – титан-сапфировый ( $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ )

BBO – кристалл бета-бората бария ( $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ )

ZnTe – кристалл теллурида цинка

ZGP – дифосфид цинка-германия ( $\text{ZnGeP}_2$ )

НРНТ – метод высокой температуры - высокого давления (НТНР - High Temperature - High Pressures)

CVD – химическое осаждение из газовой фазы (Chemical vapor deposition)

ZnSe – селенид цинка

GaAs – арсенид галлия

ФПА – фотопроводящие антенны

TDS – спектроскопия с временным разрешением (time-domain spectroscopy)

ЭМИ – электромагнитный импульс

СШП – сверхширокополосный импульс

**СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Кулипанов, Г. Н. Генерация и использование терагерцового излучения: история и перспективы / Г. Н. Кулипанов // Вестник Новосибирского государственного университета. Серия: Физика. – 2010. – Т. 5, № 4. – С. 24-27.
2. Lee, Y. S. Principles of terahertz science and technology / Y. S. Lee. – Springer Science & Business Media, 2009. – 170 т.
3. Terahertz spectroscopy of explosives and drugs / A. G. Davies, A. D. Burnett, W. Fan [et al.] // Materials today. – 2008. – Т. 11, № 3. – С. 18-26.
4. Terahertz imaging using quantum cascade lasers—a review of systems and applications / P. Dean, A. Valavanis, J. Keeley [et al.] // Journal of Physics D: Applied Physics. – 2014. – Т. 47, № 37. – С. 374008.
5. Tittel, F. K. Mid-infrared laser applications in spectroscopy / F. K. Tittel, D. Richter, A. Fried. – Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2003. – 458-529 с.
6. THz QCL-based cryogen-free spectrometer for in situ trace gas sensing / L. Consolino, S. Bartalini, H. E. Beere [et al.] // Sensors. – 2013. – Т. 13, № 3. – С. 3331-3340.
7. Add drop multiplexers for terahertz communications using two-wire waveguide-based plasmonic circuits / Cao Y., K. Nallappan, G. Xu, M. Skorobogatiy // Nature Communications. – 2022. – Т. 13, № 1. – С. 4090.
8. Lewis, R. A. A review of terahertz sources / R. A. Lewis // Journal of Physics D: Applied Physics. – 2014. – Т. 47, № 37. – С. 374001.
9. Mineo, M. Corrugated rectangular waveguide tunable backward wave oscillator for terahertz applications / M. Mineo, C. Paoloni // IEEE Transactions on Electron Devices. – 2010. – Т. 57, № 6. – С. 1481-1484.
10. Permanent magnet sources for extended interaction klystrons / H. A. Leupold, L. Kosa, G. McLane [et al.] // Journal of applied physics. – 1991. – Т. 70, № 10. – С. 6624-6626.

11. Bratman, V. L. Large-orbit gyrotron operation in the terahertz frequency range / V. L. Bratman, Y. K. Kalynov, V. N. Manuilov // Physical review letters. – 2009. – T. 102, № 24. – C. 245101.
12. Knyazev, B. A. Novosibirsk terahertz free electron laser: instrumentation development and experimental achievements / B. A. Knyazev, G. N. Kulipanov, N. A. Vinokurov // Measurement Science and Technology. – 2010. – T. 21, № 5. – C. 054017.
13. Observation of broadband self-amplified spontaneous coherent terahertz synchrotron radiation in a storage ring / J. M. Byrd, W. P. Leemans, A. Loftsdottir [et al.] // Physical review letters. – 2002. – T. 89, № 22. – C. 224801.
14. Folded waveguide traveling-wave tube sources for terahertz radiation / S. Bhattacharjee, J.H. Booske, C.L. Kory [et al.] // IEEE transactions on plasma science. – 2004. – T. 32, № 3. – C. 1002-1014.
15. Improved negative differential mobility model of GaN and AlGaN for a terahertz Gunn diode / L.A. Yang, Y. Hao, Q. Yao, J. Zhang // IEEE Transactions on Electron Devices. – 2011. – T. 58, № 4. – C. 1076-1083.
16. Terahertz emission by plasma waves in 60 nm gate high electron mobility transistors / W. Knap, J. Lusakowski, T. Parenty [et al.] // Applied Physics Letters. – 2004. – T. 84, № 13. – C. 2331-2333.
17. A 540-640-GHz high-efficiency four-anode frequency tripler / A. Maestrini, J.S. Ward, J.J. Gill [et al.] // IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques. – 2005. – T. 53, № 9. – C. 2835-2843.
18. Emission of coherent THz radiation from superconductors / L. Ozyuzer, A. E. Koshelev, C. Kurter [et al.] // Science. – 2007. – T. 318, № 5854. – C. 1291-1293.
19. Electrically pumped photonic-crystal terahertz lasers controlled by boundary conditions / Y. Chassagneux, R. Colombelli, W. Maineult [et al.] // Nature. – 2009. – T. 457, № 7226. – C. 174-178.
20. Williams, B. S. Terahertz quantum-cascade lasers / B. S. Williams // Nature photonics. – 2007. – T. 1, № 9. – C. 517-525.

21. Stimulated emission from donor transitions in silicon / S. G. Pavlov, R. Kh. Zhukavin, E. E. Orlova [et al.] //Physical review letters. – 2000. – T. 84, № 22. – C. 5220.
22. Matsuura, S. Generation of coherent terahertz radiation by photomixing in dipole photoconductive antennas / S. Matsuura, M. Tani, K. Sakai //Applied Physics Letters. – 1997. – T. 70, № 5. – C. 559-561.
23. Hu, B. B. Terahertz radiation induced by subband-gap femtosecond optical excitation of GaAs / B. B. Hu, X. C. Zhang, D. H. Auston //Physical review letters. – 1991. – T. 67, № 19. – C. 2709.
24. Few-cycle THz emission from cold plasma oscillations / R. Kersting, K. Unterrainer, G. Strasser [et al.] // Physical Review Letters. – 1997. – T. 79, № 16. – C. 3038.
25. Bründermann, E. High duty cycle and continuous terahertz emission from germanium / E. Bründermann, D. R. Chamberlin, E. E. Haller //Applied Physics Letters. – 2000. – T. 76, № 21. – C. 2991-2993.
26. Burford, N. M. Review of terahertz photoconductive antenna technology/ N. M. Burford, M. O. El-Shenawee //Optical Engineering. – 2017. – T. 56, № 1. – C. 010901-010901.
27. Jayaraman, S. Observation of Two-Photon Conductivity in GaAs with Nanosecond and Picosecond Light Pulses / S. Jayaraman, C. H. Lee //Applied Physics Letters. – 1972. – T. 20, № 10. – C. 392-395.
28. Lee, C. H. Measurement of ultrashort optical pulses by two-photon photoconductivity techniques / C. H. Lee, S. Jayaraman //Opto-electronics. – 1974. – T. 6. – C. 115-120.
29. Auston, D. H. Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon / D. H. Auston //Applied Physics Letters. – 1975. – T. 26, № 3. – C. 101-103.
30. Picosecond microwave pulses generated with a subpicosecond laser-driven semiconductor switch / G. Mourou, C. V. Stancampiano, A. Antonetti, A. Orszag //Applied Physics Letters. – 1981. – T. 39, № 4. – C. 295-296.

31. Fattinger, C. Point source terahertz optics / C. Fattinger, D. Grischkowsky // *Applied Physics Letters*. – 1988. – T. 53, № 16. – C. 1480-1482.
32. Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities / J. Hebling, K. L. Yeh, M. C. Hoffmann [et al.] // *JOSA B*. – 2008. – T. 25, № 7. – C. B6-B19.
33. High efficiency THz generation in DSTMS, DAST and OH1 pumped by Cr:forsterite laser / C. Vicario, M. Jazbinsek, A. V. Ovchinnikov [et al.] // *Opt. Express*. – 2015. – T. 23, № 4. C. 4573.
34. Generation of 09-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> laser / C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov [et al.] // *Opt. Lett.* – 2014. – T. 39, № 23. – C. 6632–6635.
35. Damage in a Thin Metal Film by High-Power Terahertz Radiation / M. B. Agranat, O. V. Chefonov, A. V. Ovchinnikov [et al.] // *Phys. Rev. Lett. American Physical Society*, – 2018. – T. 120, № 8. – C. 085704.
36. Decay of femtosecond laser-induced plasma filaments in air, nitrogen, and argon for atmospheric and subatmospheric pressures / N. L. Aleksandrov, S. B. Bodrov, M. V. Tsarev [et al.] // *Phys. Rev. E*. – 2016. – T. 94, № 1. – C. 013204.
37. Observation of crossover from intraband to interband nonlinear terahertz optics / X. Chai, X. Ropagnol, A. Ovchinnikov [et al.] // *Opt. Lett.* – 2018. – T. 43, № 21. –C. 5463–5466.
38. Organic Crystals for THz Photonics / M. Jazbinsek, U. Puc, A. Abina, A. Zidansek // *Appl. Sci.* – 2019. – T. 9, № 5. –C. 882.
39. Shalaby, M. Demonstration of a low-frequency three-dimensional terahertz bullet with extreme brightness / M. Shalaby, C.P. Hauri // *Nat. Commun. Nature Publishing Group*, – 2015. – T. 6, № 1. – C. 5976.
40. Comprehensive characterization of terahertz generation with the organic crystal BNA / I. C. Tangen, G. A. Valdivia-Berroeta, L. K. Heki [et al.] // *J. Opt. Soc. Am. B*. – 2021. – T. 38, № 9. – C. 2780.

41. Enabling high-power, broadband THz generation with 800-nm pump wavelength/ Z. B. Zaccardi, I. C. Tangen, G. A. Valdivia-Berroeta [et al.] // *Opt. Express*. – 2021. – Т. 29, № 23. – С. 38084.
42. Intense THz source based on BNA organic crystal pumped at Ti:sapphire wavelength/ M. Shalaby, C. Vicario, K. Thirupugalmani [et al.] // *Opt. Lett.* – 2016. – Т. 41, № 8. – С. 1777.
43. Чжан, С. Ч. Терагерцовая фотоника / С. Ч. Чжан, Д. Шю.– Москва-Ижевск: ИКИ, 2016.
44. Киреев, П. С. Физика полупроводников: учебное пособие для вузов/ П. С. Киреев. – Москва : Изд-во «Высшая школа», 1975.
45. Subpicosecond, Electromagnetic Pulses from Intence Laser-Plasma Interaction / H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon [et al.] // *Phys. Rev. Lett.* – 1993. – Т. 71, № 17. – С. 2725–2728.
46. Chekalin, S. V. From self-focusing light beams to femtosecond laser pulse filamentation / S. V. Chekalin, V.P. Kandidov // *Uspekhi Fiz. Nauk.* – 2013. – Т. 183, № 2. – С. 133–152.
47. Kandidov, V.P. Filamentation of high-power femtosecond laser radiation / V.P. Kandidov, S.A. Shlenov, O.G. Kosareva // *Quantum Electron.* – 2009. – Т. 39, № 3. – С. 205–228.
48. Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air / E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon [et al.] // *Opt. Lett.* – 1996. – Т. 21, № 1. – С. 62–65.
49. Corkum, P.B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization / P.B. Corkum // *Phys. Rev. Lett.* – 1993. – Т. 71, № 13. – С. 1994–1997.
50. Generation of highly coherent submicrojoule soft x rays by high-order harmonics / E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka [et al.] // *Phys. Rev. A.* – 2002. – Т. 66, № 2. – С. 021802.
51. Short-pulse terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas / H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, R. W. Falcone // *Phys. Rev. E.* – 1994. – Т. 49, № 1. – С. 671–677.

52. Keldysh, L. V. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave / L. V. Keldysh // *Sov. Phys. JETP*. – 1965. – . T. 20, № 5. – C. 1307–1314.
53. Perelomov, A. M. Ionization of atoms in an alternating electric field: II / A. M. Perelomov, V. S. Popov, M. V. Terent'ev // *Sov. Phys. JETP*. – 1967. – . T. 24, № 1. – C. 207–217.
54. Ammosov, M. V. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field / M. V. Ammosov, N. V. Delone, V. P. Krainov // *Sov. Phys. JETP*. – 1986. – . T. 64, № 12. – C. 1191–1194
55. Löffler, T. Generation of terahertz pulses by photoionization of electrically biased air / T. Löffler, F. Jacob, H.G. Roskos // *Appl. Phys. Lett.* – 2000. – . T. 77, № 3. – C. 453–455.
56. Löffler, T. Gas-pressure dependence of terahertz-pulse generation in a laser-generated nitrogen plasma / T. Löffler, H.G. Roskos // *J. Appl. Phys.* – 2002. – . T. 91, № 5. – C. 2611–2614.
57. Determination of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses with terahertz-emission spectroscopy / M. Kreß, T. Löffler, M. D. Thomson [et al.] // *Nat. Phys.* – 2006. – . T. 2. – C. 327–331.
58. Broadband THz emission from gas plasmas induced by femtosecond optical pulses: From fundamentals to applications / H.G. Roskos, M.D. Thomson, M. Kreß, T. Löffler // *Laser Photonics Rev.* – 2007. – . T. 1, № 4. – C. 349–368.
59. Cook, D. J. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air / D. J. Cook, R. M. Hochstrasser // *Opt. Lett.* – 2000. – . T. 25, № 16. – C. 1210–1212.
60. On the role of photoionization in generation of terahertz radiation in the plasma of optical breakdown / A. V. Borodin, M. N. Esaulkov, I. I. Kuritsyn [et al.] // *J. Opt. Soc. Am. B*. – 2012. – . T. 29, № 8. – C. 1911–1919.
61. Oh, T. I. Two-dimensional plasma current and optimized terahertz generation in two-color photoionization / T. I. Oh, Y. S. You, K. Y. Kim // *Opt. Express*. – 2012. – . T. 20, № 18. – C. 19778–19786.



62. Intense terahertz generation in two-color laser filamentation: energy scaling with terawatt laser systems / T. I. Oh, Y. S. You, N. Jhajj [et al.] // *New J. Phys.* – 2013. – . T. 15, № 7. – C. 075002.
63. Optimal polarization of a two-colored pump for terahertz generation with a phase-unstable scheme / R. V. Volkov, P. A. Chizhov, A. A. Ushakov [et al.] // *Laser Phys.* IOP Publishing, – 2015. – . T. 25, № 6. – C. 065403.
64. Zhang, X.-C. Introduction to THz Wave Photonics / X.-C. Zhang, J. Xu. – Springer. New York: Springer, 2010. –1–246 c.
65. Zhang, X.C. Extreme terahertz science / X.C. Zhang, A. Shkurinov, Y. Zhang // *Nat. Photonics.* – 2017. – . T. 11, № 1. – C. 16–18.
66. Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser–gas interactions / K. Y. Kim, A. J. Taylor, J. H. Glowia, G. Rodriguez // *Nat. Photonics.* – 2008. – . T. 2, № 10. – C. 605–609.
67. Rodriguez, G. Scaling behavior of ultrafast two-color terahertz generation in plasma gas targets: energy and pressure dependence / G. Rodriguez, G.L. Dakovski // *Opt. Express.* – 2010. – . T. 18, № 14. – C. 15130.
68. Thomson, M. D. Terahertz white-light pulses from an air plasma photo-induced by incommensurate two-color optical fields / M. D. Thomson, V. Blank, H. G. Roskos // *Opt. Express.* – 2010. – . T. 18, № 22. – C. 23173–23182.
69. Matsubara, E. Ultrabroadband coherent electric field from far infrared to 200 THz using air plasma induced by 10 fs pulses / E. Matsubara, M. Nagai, M. Ashida // *Appl. Phys. Lett.* – 2012. – . T. 101, № 1. – C. 011105.
70. Observation of broadband terahertz wave generation from liquid water / Q. Jin, Y. E. K. Williams, J. Dai, X.-C. Zhang // *Appl. Phys. Lett.* – 2017. – . T. 111, № 7. – C. 071103.
71. Highly efficient broadband terahertz generation from ultrashort laser filamentation in liquids / I. Dey, K. Jana, V. Y. Fedorov [et al.] // *Nat. Commun.* – 2017. – . T. 8, № 1. – C. 1–7.

72. Polarization rotation due to femtosecond filamentation in an atomic gas / O. Kosareva, N. Panov, V. Makarov [et al.] // *Opt. Lett.* – 2010. – T. 35, № 17. – С. 2904–2906.
73. Saturation properties of large-aperture photoconducting antennas / J.T. Darrow, X.-C. Zhang, D.H. Auston, J.D. Morse // *IEEE Journal of Quantum Electronics.* – 1992. – T. 28, № 6. – С. 1607-1616.
74. Intense terahertz radiation and their applications / H. A. Hafez, X. Chai, A. Ibrahim [et al.] // *Journal of Optics.* – 2016. – T. 18, № 9. – С. 093004.
75. Reid, M. Quantitative comparison of terahertz emission from (100) InAs surfaces and a GaAs large-aperture photoconductive switch at high fluences / M. Reid, R. Fedosejevs // *Applied optics.* – 2005. – T. 44, № 1. – С. 149-153.
76. Emission characteristics of photoconductive antennas based on low-temperature-grown GaAs and semi-insulating GaAs / M. Tani, S. Matsuura, K. Sakai, S. I. Nakashima // *Applied optics.* – 1997. – T. 36, № 30. – С. 7853-7859.
77. Failure mechanism of THz GaAs photoconductive antenna / S. B. Qadri, D. H. Wu, B. D. Graber [et al.] // *Applied Physics Letters.* – 2012. – T. 101, № 1.
78. High-power terahertz radiation emitter with a diamond photoconductive switch array / H. Yoneda, K. Tokuyama, K.-I. Ueda [et al.] // *Applied Optics.* – 2001. – T. 40, № 36. – С. 6733-6736.
79. Generation of terahertz radiation using zinc oxide as photoconductive material excited by ultraviolet pulses / S. Ono, H. Murakami, A. Quema [et al.] // *Applied Physics Letters.* – 2005. – T. 87, № 26.
80. High power subterahertz electromagnetic wave radiation from GaN photoconductive switch / O. Imafuji, B. P. Singh, Y. Hirose [et al.] // *Applied Physics Letters.* – 2007. – T. 91, № 7.
81. Toward high-power terahertz emitters using large aperture ZnSe photoconductive antennas / X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid // *IEEE Photonics Journal.* – 2011. – T. 3, № 2. – С. 174-186.

82. Holzman, J. F. Two-photon photoconductive terahertz generation in ZnSe / J. F. Holzman, A. Y. Elezzabi //Applied physics letters. – 2003. – T. 83, № 14. – C. 2967-2969.
83. Improvement in thermal barriers to intense terahertz generation from photoconductive antennas / X. Ropagnol, M. Bouvier, M. Reid, T. Ozaki //Journal of Applied Physics. – 2014. – T. 116, № 4. – C. 043107.
84. High-intensity terahertz radiation from a microstructured large-area photoconductor / A. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy, M. Helm //Applied Physics Letters. – 2005. – T. 86, № 12.
85. Intense terahertz pulses from large-aperture antenna with interdigitated electrodes / T. Hattori, K. Egawa, S.-I. Ookuma, T. Itatani //Japanese journal of applied physics. – 2006. – T. 45, № 4L. – C. L422.
86. THz pulse shaping and improved optical-to-THz conversion efficiency using a binary phase mask / X. Ropagnol, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid //Optics letters. – 2011. – T. 36, № 14. – C. 2662-2664.
87. Kim, D. S. Coulomb and radiation screening in photoconductive terahertz sources / D. S. Kim, D. S. Citrin //Applied Physics Letters. – 2006. – T. 88, № 16.
88. Rodriguez, G. Screening of the bias field in terahertz generation from photoconductors / G. Rodriguez, A. J. Taylor //Optics letters. – 1996. – T. 21, № 14. – C. 1046-1048.
89. Significant performance enhancement in photoconductive terahertz optoelectronics by incorporating plasmonic contact electrodes / C.W. Berry, N. Wang, M.R. Hashemi, M. Unlu, M. Jarrahi //Nature communications. – 2013. – T. 4, № 1. – C. 1622.
90. High-power terahertz generation using large-area plasmonic photoconductive emitters / N. T. Yardimci, S.-H. Yang, C. W. Berry, M. Jarrahi //IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology. – 2015. – T. 5, № 2. – C. 223-229.
91. Fattinger, C. Terahertz beams / C. Fattinger, D. Grischkowsky //Applied Physics Letters. – 1989. – T. 54, № 6. – C. 490-492.

92. Burford, N. M. Review of terahertz photoconductive antenna technology / N. M. Burford, M. O. El-Shenawee //Optical Engineering. – 2017. – T. 56, № 1. – C. 010901-010901.
93. High efficiency THz generation in DSTMS, DAST and OH1 pumped by Cr: forsterite laser / C. Vicario, M. Jazbinsek, A. V. Ovchinnikov, O. V. Chefonov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, C. P. Hauri //Optics express. – 2015. – T. 23, № 4. – C. 4573-4580.
94. Generation of strong terahertz fields exceeding 8 MV/cm at 1 kHz and real-time beam profiling / T. I. Oh, Y. J. Yoo, Y. S. You, K. Y. Kim //Applied Physics Letters. – 2014. – T. 105, № 4. – C. 041103.
95. Intense terahertz generation from photoconductive antennas / E. Isgandarov, X. Ropagnol, M. Singh, T. Ozaki //Frontiers of Optoelectronics. – 2021. – T. 14. – C. 64-93.
96. Observation of crossover from intraband to interband nonlinear terahertz optics / X. Chai, X. Ropagnol, A. Ovchinnikov [et al.] //Optics Letters. – 2018. – T. 43, № 21. – C. 5463-5466.
97. Jones, R. R. Ionization of Rydberg atoms by subpicosecond half-cycle electromagnetic pulses / R. R. Jones, D. You, P. H. Bucksbaum //Physical review letters. – 1993. – T. 70, № 9. – C. 1236.
98. Subcycle terahertz nonlinear optics / X. Chai, X. Ropagnol, S. M. Raeiszadeh [et al.] //Physical Review Letters. – 2018. – T. 121, № 14. – C. 143901.
99. Terahertz generation by means of ZnGeP<sub>2</sub> large aperture photoconductive antenna / V. Bulgakova, A. A. Ushakov, P. A. Chizhov [et al.] //Optical Engineering. – 2021. – T. 60, № 8. – C. 082015-082015.
100. Nikogosyan, D. N. Nonlinear optical crystals: a complete survey / D. N. Nikogosyan. – Springer Science & Business Media, 2006. – 1-425 c.
101. Electron paramagnetic resonance and photoluminescence studies of point defects in zinc germanium phosphide (ZnGeP<sub>2</sub>) / S. D. Setzler, L. E. Halliburton, N. C. Giles [et al.] //MRS Online Proceedings Library (OPL). – 1996. – T. 450. –C. 327.

102. Karavaev, P. M. Photorefractive effect in ZnGeP<sub>2</sub> single crystal / P. M. Karavaev, V. M. Abusev, G. A. Medvedkin // *Technical physics letters*. – 2006. – T. 32, № 6. – С. 498-500.
103. Verozubova, G. A. Two-temperature synthesis of ZnGeP<sub>2</sub> / G. A. Verozubova, A. I. Gribenyukov, Y. P. Mironov // *Inorganic Materials*. – 2007. – T. 43. – С. 1040-1045.
104. Yano, R. Improvement of signal-to-noise ratio of terahertz electromagnetic waves by bias field modulation of photoconductive antenna / R. Yano, T. Hattori, H. Shinjima // *Japanese journal of applied physics*. – 2006. – T. 45, № 11R. – С. 8714.
105. Benicewicz, P. K. Scaling of terahertz radiation from large-aperture biased InP photoconductors / P. K. Benicewicz, A. J. Taylor // *Optics letters*. – 1993. – T. 18, № 16. – С. 1332-1334.
106. Linear optical properties of ZnGeP<sub>2</sub> in the terahertz range / K. Zhong, C. Liu, M. Wang [et al.] // *Optical Materials Express*. – 2017. – T. 7, № 10. – С. 3571-3579.
107. Boyd, G. D. Linear and nonlinear optical properties of ZnGeP<sub>2</sub> and CdSe / G. D. Boyd, E. Buehler, F. G. Storz // *Applied Physics Letters*. – 1971. – T. 18, № 7. – С. 301-304.
108. Carrier transport and electron–lattice interactions of nonlinear optical crystals CdGeP<sub>2</sub>, ZnGeP<sub>2</sub>, and CdSiP<sub>2</sub> / R. Sooriyagoda, H. P. Piyathilaka, K. T. Zawilski [et al.] // *JOSA B*. – 2021. – T. 38, № 3. – С. 769-775.
109. Highly efficient thermally co-evaporated perovskite solar cells and mini-modules / J. Li, H. Wang, X. Y. Chin [et al.] // *Joule*. – 2020. – T. 4, № 5. – С. 1035-1053.
110. Role of interface in stability of perovskite solar cells / C. Manspecker, S. Venkatesan, A. Zakhidov, K. S. Martirosyan // *Current opinion in chemical engineering*. – 2017. – T. 15. – С. 1-7.
111. Ultrafast terahertz snapshots of excitonic Rydberg states and electronic coherence in an organometal halide perovskite / L. Luo, L. Men, Z. Liu [et al.] // *Nature Communications*. – 2017. – T. 8, № 1. – С. 15565.

112. Photovoltaic solar cell technologies: analysing the state of the art / P. K. Nayak, S. Mahesh, H. J. Snaith, D. Cahen // *Nature Reviews Materials*. – 2019. – T. 4, № 4. – C. 269-285.
113. Halide-perovskite resonant nanophotonics / S. Makarov, A. Furasova, E. Tiguntseva [et al.]// *Advanced optical materials*. – 2019. – T. 7, № 1. – C. 1800784.
114. Ultrafast zero-bias photocurrent and terahertz emission in hybrid perovskites / P. A. Obraztsov, D. Lyashenko, P. A. Chizhov [et al.] // *Communications Physics*. – 2018. – T. 1, № 1. – C. 14.
115. Terahertz emission from hybrid perovskites driven by ultrafast charge separation and strong electron–phonon coupling / B. Guzelturk, R. A. Belisle, M. D. Smith, K. Bruening, R. Prasanna, Y. Yuan, V. Gopalan, C. J. Tassone, H. I. Karunadasa, M. D. McGehee, A. M. Lindenberg // *Advanced Materials*. – 2018. – T. 30, № 11. – C. 1704737.
116. Pulsed terahertz emission from solution-processed lead iodide perovskite films / C. S. Ponseca Jr., A. Arlauskas, H. Yu [et al.] // *ACS Photonics*. – 2019. – T. 6, № 5. – C. 1175-1181.
117. High-Order Shift Current Induced Terahertz Emission from Inorganic Cesium Bromine Lead Perovskite Engendered by Two-Photon Absorption / Y. He, R. Su, Y. Huang [et al.]// *Advanced Functional Materials*. – 2019. – T. 29, № 40. – C. 1904694.
118. Enhanced terahertz emission from imprinted halide perovskite nanostructures / V. I. Korolev , A. P. Pushkarev, P. A. Obraztsov [et al.] // *Nanophotonics*. – 2019. – T. 9, № 1. – C. 187-194.
119. Circular photogalvanic spectroscopy of Rashba splitting in 2D hybrid organic–inorganic perovskite multiple quantum wells / X. Liu, A. Chanana, U. Huynh [et al.] // *Nature communications*. – 2020. – T. 11, № 1. – C. 323.
120. Lead halide perovskite vortex microlasers / W. Sun, Y. Liu, G. Qu [et al.] // *Nature communications*. – 2020. – T. 11, № 1. – C. 4862.

121. Nonlinear optical properties of halide perovskites and their applications / Y. Zhou, Y. Huang, X. Xu [et al.] // *Applied Physics Reviews*. – 2020. – T. 7, № 4. – C. 041313.
122. Low-temperature solution-processed perovskite solar cells with high efficiency and flexibility / J. You, Z. Hong, Y. Yang [et al.] // *ACS nano*. – 2014. – T. 8, № 2. – C. 1674-1680.
123. Herz, L. M. Charge-carrier mobilities in metal halide perovskites: fundamental mechanisms and limits / L. M. Herz // *ACS Energy Letters*. – 2017. – T. 2, № 7. – C. 1539-1548.
124. Kubarev, V. V. Optical properties of CVD-diamond in terahertz and infrared ranges / V. V. Kubarev // *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. – 2009. – T. 603, № 1-2. – C. 22-24.
125. Photoconductive properties of chemical vapor deposited diamond switch under high electric field strength / H. Yoneda, K.I. Ueda, Y. Aikawa [et al.] // *Applied physics letters*. – 1995. – T. 66, № 4. – C. 460-462.
126. Diamond diffractive lens with a continuous profile for powerful terahertz radiation / M. Komlenok, T. Kononenko, D. Sovyk [et al.] // *Optics Letters*. – 2021. – T. 46, № 2. – C. 340-343.
127. High carrier mobility in single-crystal plasma-deposited diamond / J. Isberg, J. Hammersberg, E. Johansson [et al.] // *Science*. – 2002. – T. 297, № 5587. – C. 1670-1672.
128. Three-dimensional laser writing in diamond bulk / T.V. Kononenko, V.I. Konov, S.M. Pimenov [et al.] // *Diamond and related materials*. – 2011. – T. 20, № 2. – C. 264-268.
129. Walker, J. Optical absorption and luminescence in diamond / J. Walker // *Reports on progress in physics*. – 1979. – T. 42, № 10. – C. 1605.
130. Iakoubovskii, K. Optical transitions at the substitutional nitrogen centre in diamond / K. Iakoubovskii, G. J. Adriaenssens // *Journal of Physics: Condensed Matter*. – 2000. – T. 12, № 6. – C. L77.

131. Hargreaves, S. Single-cycle azimuthal angle dependence of terahertz radiation from (100) n-type InP / S. Hargreaves, R. A. Lewis // *Applied Physics Letters*. – 2008. – T. 93, № 24. – C. 242101.
132. Nitrogen and hydrogen in thick diamond films grown by microwave plasma enhanced chemical vapor deposition at variable H<sub>2</sub> flow rates / S. V. Nistor, M. Stefan, V. Ralchenko [et al.] // *Journal of Applied Physics*. – 2000. – T. 87, № 12. – C. 8741-8746.
133. Intense THz pulses with large ponderomotive potential generated from large aperture photoconductive antennas / X. Ropagnol, M. Khorasaninejad, M. Raeiszadeh [et al.] // *Optics express*. – 2016. – T. 24, № 11. – C. 11299-11311.
134. Benicewicz, P. K. Scaling of terahertz radiation from large-aperture biased photoconductors / P. K. Benicewicz, J. P. Roberts, A. J. Taylor // *JOSA B*. – 1994. – T. 11, № 12. – C. 2533-2546.
135. Photoconductive terahertz generation in nitrogen-doped single-crystal diamond / P. A. Chizhov, M. S. Komlenok, V. V. Kononenko [et al.] // *Optics Letters*. – 2022. – T. 47, № 1. – C. 86-89.
136. Formation of nano- and subnanosecond width high-PRF powerful voltage pulses by using a hybrid modulator schemes / M.I. Yalandin, S.K. Luybutin, S.N. Rukin [et al.] // *Proc. of 13th Intern. Symp. on High Current Electronics*. – 2004. – C. 153
137. High-Power ultrawideband radiation source with multielement array antenna / V.I. Koshelev, V.P. Gubanov, A.M. Efremov [et al.] // *Proc. of 13th Intern. Symp. on High Current Electronics*. – 2004. – C. 258.
138. Efanov, V.M. Gigawatt all solid state nano- and picosecond pulse generators for radar applications / V.M. Efanov // *Proc. on 14th IEEE Int. Pulsed Power Conf. Dallas*. – 2003. – C. 100.
139. Survey of worldwide high-power wideband capabilities / W.D. Prather, C.E. Baum, R.J. Torres [et al.] // *IEEE Trans. on Electromagnetic Compatibility*. – 2004. – T. 46, № 3. – C. 335-344.
140. Generation of high-power sub-nanosecond pulses / G.A. Mesyats, S.N. Rukin, V.G. Shpak, M.I. Yalandin . – New York: Plenum, 1999.



141. Multiunit UWB Radiator of Electro-Magnetic Waves with Controlled Directional Pattern / V.M. Efanov, V.M. Fedorov, I.V. Grekhov [et al.] // Proc. of 13th Intern. Symp. on High Current Electronics. –2004. – С. 262.

142. Сахаров, К.Ю. Излучатели сверхкоротких электромагнитных импульсов и методы измерений их параметров / К.Ю. Сахаров. – М: Московский гос. ин-т электроники и мат., 2006. –159 с.

143. Antenna Array with TEM-Horn for Radiation of High-Power Ultra Short Electromagnetic Pulses / V. M. Fedorov, M. V. Efanov, V. Y. Ostashov [et al.] // Electronics . – 2021. – Т. 10, № 9. – С. 1011.

144. Излучательно-измерительный комплекс для исследования прохождения сверхширокополосных сигналов в атмосфере и ионосфере земли / М. В. Ефанов, Е. Ф. Лебедев, А. В. Ульянов [и др.] // Теплофиз. выс. темп. – 2021. – Т.59, № 6. – С. 877–884.

145. Прямой эксперимент по прохождению сверхширокополосных импульсов субнаносекундной длительности в атмосфере Земли / С.В. Гарнов, В.Д. Селемир, В.В. Букин [и др.] // Доклады Академии наук. – 2023. – Т. 509, № 1. – С. 9 – 14.

146. Кондратьев, А.А. Угловое и спектральное распределение сверхширокополосного излучения фотоэмиссионного источника / А.А. Кондратьев // Журнал технической физики. – 2018. – Т. 88, № 3. – С. 434-437.

147. Пат. US20160197215A1BAE, US14/588,467. Generation of Flexible High Power Pulsed Waveforms / Alexander Kozyrev, John McGeehan, Yannick Morel; заявитель и патентообладатель Systems Information and Electronic Systems Integration Inc; опубл. 02.01.2015

148. Generation of high-power sub-single-cycle 500-fs electromagnetic pulses / D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum, D. R. Dykaar //Optics letters. – 1993. – Т. 18, № 4. – С. 290-292.