

Гигантская вторая гармоника в микрорезонаторах на основе фотонных кристаллов пористого кремния

Т. В. Долгова, А. И. Майдыковский, М. Г. Мартемьянов, Г. Маровский*, Дж. Маттеи^Δ, Д. Шумахер*,

В. А. Яковлев⁺, А. А. Федянин, О. А. Акципетров¹⁾

Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова
119899 Москва, Россия

* Laser-Laboratorium Göttingen, D-37077 Göttingen, Germany

⁺ Институт спектроскопии РАН
142190 Троицк, Московская обл., Россия

^Δ Istituto di Metodologie Avanzate Inorganiche, CNR
Monterotondo Scalo 00016, Italy

Поступила в редакцию 28 ноября 2000 г.

Экспериментальная спектральная зависимость интенсивности второй гармоники (ВГ), генерируемой от микрорезонаторов на основе фотонных кристаллов пористого кремния, демонстрирует резонансное усиление в окрестности резонаторной моды ($\sim 2 \cdot 10^2$ раз) и на краях запрещенной фотонной зоны, обусловленное совместным проявлением эффектов локализации излучения накачки внутри микрорезонатора, многолучевой интерференцией излучения ВГ в фотонном кристалле и двухфотонного резонанса квадратичной восприимчивости пористого кремния на частоте ВГ.

PACS: 42.65.-k, 42.70.Qs

Фотонные кристаллы (ФК) – микроструктуры с периодической модуляцией оптической восприимчивости (в том числе и высших порядков) с периодом порядка оптической длины волны – обладают уникальными физическими свойствами и привлекают большой практический интерес. Наличие запрещенной фотонной зоны – области оптических частот, для которых электромагнитное поле экспоненциально уменьшается вглубь ФК, обуславливает перспективность ФК для применения в оптических переключателях и оптических транзисторах [1], а также в ФК-лазерах с предельно низким порогом генерации [2]. В ФК обнаружены уникальные оптические эффекты, такие как гигантская оптическая дисперсия [3], оптическая бистабильность [4], локализация света [5]. При исследовании нелинейно-оптических свойств ФК до сих пор основное внимание уделялось возможности эффективного удвоения частоты в ФК благодаря выполнению условий фазового квазисинхронизма. Квазисинхронизм может быть достигнут: 1) в нелинейных ФК с периодической модуляцией квадратичной восприимчивости в одном или двух направлениях при однородной линейной восприимчивости

[6], 2) в ФК с модуляцией линейной восприимчивости [7, 8]. В последнем случае условие квазисинхронизма может быть выполнено при попадании либо частоты излучения накачки, либо частоты второй гармоники (ВГ) на край запрещенной фотонной зоны ФК. Естественно, что такие ФК изготавливались из нецентросимметричных материалов с большой объемной квадратичной восприимчивостью – ниобата лития [6], арсенида галлия [7] и сульфида цинка [8]. Отдельный интерес представляет исследование нелинейно-оптического отклика ФК, изготовленных на основе центросимметричных материалов, в частности, ФК из пористого кремния [9] (ПК). ФК пористого кремния выращиваются по сравнительно простой электрохимической методике, обеспечивающей высокую воспроизводимость их параметров. Такая методика, органично встраиваемая в современную кремниевую технологию, обуславливает большую практическую важность ФК пористого кремния и микроструктур на их основе. Представляется интересным исследовать эффекты нелокальности нелинейно-оптического отклика микрорезонаторов (МР) на основе ФК. Параметры распределенных фотоннокристаллических зеркал (ФК-зеркал) таких микроэталонных Фабри – Перо определяют добротность МР, что позволяет конт-

¹⁾ e-mail: aktsip@shg.phys.msu.ru

ролируемым образом влиять на локализацию электромагнитного поля внутри МР на частоте резонантной моды. Это приводит к эффектам усиления оптического отклика МР, например, люминесценции [10] и комбинационного рассеяния [11]. Мода МР со спектральным положением внутри запрещенной фотонной зоны аналогична примесному уровню внутри электронной запрещенной зоны полупроводников. Изменение параметров МР – толщин слоев в ФК-зеркалах и микрорезонаторного (“примесного”) уровня – позволяет менять спектральное положение резонантной моды относительно запрещенной фотонной зоны, управляя тем самым эффектами усиления нелокального нелинейно-оптического отклика МР.

В данной работе представлены экспериментальные результаты исследования спектра интенсивности ВГ от микрорезонаторов пористого кремния. Обнаружено усиление отклика ВГ в окрестности резонантной моды и на краях запрещенной фотонной зоны. Развито феноменологическое описание генерации ВГ в многослойной структуре с распределенными нелинейными источниками, учитывающее многолучевую интерференцию излучений накачки и ВГ. Показано, что усиление отклика ВГ на частоте моды микрорезонатора и на краях фотонной зоны имеет качественно разную природу: резонанс ВГ в моде обусловлен локализацией (усилением) стоячей волны накачки в окрестности микрорезонаторного слоя; резонанс ВГ на краю фотонной зоны связан с однородным усилением поля накачки в распределенных ФК-зеркалах микрорезонатора.

Исследуемые образцы микрорезонаторов (рис.1а) состояли из двух одномерных ФК, образованных 5 парами четвертьволновых ($\lambda_0 = 945$ нм) слоев ПК, и разделяющего их полуволнового резонаторного слоя ПК. Образцы были приготовлены методом электрохимического травления [12] пластины монокристалла кремния *p*-типа кристаллографической ориентации (001) с удельным сопротивлением 0.01 Ом·см в электролите, состоящем из 50-процентного раствора плавиковой кислоты и этилового спирта в объемной концентрации 1:2. Чередующиеся слои ПК различной пористости (объемной концентрации воздуха) получались в результате периодической модуляции плотности тока, протекающего через пластину кремния под нормалью к ее поверхности. Скорость травления и пористость определялись плотностью тока травления и удельным сопротивлением пластины кремния. Пористости и толщины оптически более плотных слоев ФК составляли около $f_h = 0.77$ и $d_h = 160$ нм, а менее плотных слоев – $f_l = 0.88$ и $d_l = 200$ нм, соответственно. Резонаторный слой был образован

ПК с $f_r = 0.88$ и $d_r = 400$ нм. На рис.1б показано изображение скола МР, полученное на сканирующем силовом микроскопе с пьезоэлектрическим детектором силы квазитрения на основе камертонного кварцевого резонатора 32.8 кГц. Сканирующая игла приготавливалась из одномодового волокна методом травления в защитной оболочке. Светлые области на изображении соответствуют местам с высоким продольным трением, то есть менее пористым. Строгая периодичность слоев ПК и продольная однородность структуры на масштабах порядка 5 мкм подтверждает высокое качество приготовленных образцов. Однако определение соотношения толщин слоев ПК различной пористости затруднено из-за большого радиуса кривизны сканирующей иглы (порядка 50 нм), приводящего к асимметрии в сторону более плотных слоев ПК.

Эксперименты по спектроскопии интенсивности ВГ проводились с использованием параметрического генератора света Spectra-Physics MPO 710, перестраиваемого в диапазоне 730 – 1100 нм, с длительностью импульса 10 нс и энергией в импульсе около 10 мДж, возбуждаемого излучением третьей гармоники АИГ-лазера. Коллинеарный синхронизм нелинейного кристалла параметрического генератора света обеспечивал постоянный угол падения θ излучения накачки при перестройке ее длины волны. Отраженное от образца микрорезонатора излучение ВГ выделялось соответствующими фильтрами и фокусировалось на катод фотоэлектронного умножителя (ФЭУ). Для нормировки спектра ВГ на спектральные зависимости чувствительности ФЭУ и коэффициентов пропускания фильтров часть излучения накачки направлялась на канал сравнения, идентичный основному, с кристаллом *z*-кварца в качестве источника калибрующего излучения ВГ. Для проведения линейной спектроскопии отраженное от образца микрорезонатора излучение накачки детектировалось фотодиодом и нормировалось на интенсивность падающего излучения.

Интенсивность отраженного от МР *p*-поляризованного излучения ВГ не зависела от угла поворота образца МР вокруг своей нормали при *p*- и *s*-поляризованных излучениях накачки (*p-p*- и *s-p*-геометрии) в пределах экспериментальной погрешности измерения, определяемой слабой неоднородностью МР в его плоскости.

На рис.2а представлена спектральная зависимость интенсивности ВГ $I_{2\omega}$ от длины волны излучения накачки λ_ω , измеренная для угла падения $\theta = 45^\circ$ в *s-p*-геометрии. Для сравнения на рис.2д приведен спектр линейного коэффициента отражения R_s

Рис.1. Слева – исследуемая структура МР пористого кремния и схема геометрии эксперимента; светлые слои соответствуют оптически более плотным слоям ПК. Справа – изображение скола МР, полученное в сканирующем микроскопедатчике квазитрения. Справа приведена шкала зазора между торцом МР и иглой при постоянной силе трения

s -поляризованного излучения накачки. В окрестности 780 нм, соответствующей спектральному положению микрорезонаторной моды, $I_{2\omega}$ возрастает в $\sim 2 \cdot 10^2$ раз по сравнению с интенсивностью ВГ в фотонной зоне. Другая резонансная особенность наблюдается в окрестности 910 нм (усиление ~ 50 раз), что совпадает с длинноволновым краем запрещенной фотонной зоны. Усиление интенсивности ВГ в окрестности коротковолнового края фотонной зоны существенно меньше. При изменении θ до 40° (рис.2b) и 30° (рис.2c) положения резонансов интенсивности ВГ сдвигаются в длинноволновую область спектра, коррелируя с угловой зависимостью положения резонаторной моды на спектрах $R_s(\lambda_\omega)$ (рис.2e и рис.2f). Наибольшее усиление ВГ на краю фотонной зоны ($\sim 1 \cdot 10^2$) обнаружено для $\theta = 55^\circ$ (рис.3a).

Расчет спектра излучения ВГ, отраженной от микрорезонатора ПК, проводился в рамках следующего феноменологического описания. На первом этапе, используя формализм матриц распространения, решалась задача о многолучевой интерференции излучения накачки в многослойной структуре с дисперсией $\epsilon_{PS}(\lambda)$ каждого слоя ПК, рассчитанной в приближении эффективной среды [13] на основе дисперсии монокристаллического кремния [14] $\epsilon_{Si}(\lambda)$:

$$(1 - f) \frac{\epsilon_{Si} - \epsilon_{PS}}{\epsilon_{Si} + 2\epsilon_{PS}} = f \frac{\epsilon_{PS} - 1}{1 + 2\epsilon_{PS}}. \quad (1)$$

В результате вычислялись коэффициент отражения излучения накачки $R_{s(p)}$ заданной поляризации и пространственное распределение амплитуды стоячей волны накачки внутри j -го слоя микрорезонатора $\mathbf{E}_\omega^{(j)}(z) = \mathbf{E}_\omega^{+(j)} \exp(ik_{\omega,z}^{(j)}z) + \mathbf{E}_\omega^{-(j)} \exp(-ik_{\omega,z}^{(j)}z)$. На

втором этапе в каждом из слоев структуры вычислялись компоненты квадратичной поляризации и находилось поле связанной волны ВГ. Предполагалось, что внутри j -го слоя квадратичная восприимчивость $\chi^{(2)(j)}$ распределена равномерно, а в случае s -поляризованного излучения накачки лишь компоненты $\chi_{zz}^{(2)(j)} = \chi_{yy}^{(2)(j)}$ участвуют в генерации ВГ (точечная группа симметрии слоя ПК предполагалась равной ∞m). Спектральное поведение эффективных компонент квадратичной восприимчивости j -го слоя структуры моделировалось суперпозицией двух лоренцевых контуров $\chi^{(2)(j)}(2\omega) = (a - b_1/(-\Omega_1 + 2\omega + i\Gamma_1) - b_2/(-\Omega_2 + 2\omega + i\Gamma_2))f_j^{-2}$ с $\hbar\Omega_1 = 3.36$ эВ и $\hbar\Omega_2 = 4.3$ эВ, соответствующих резонансам прямых электронных переходов кремния [14] E'_0/E_1 и E_2 . Затем, используя формализм нелинейных матриц распространения, аналогичный рассмотренному для случая генерации третьей гармоники в работе [15], решались задачи об интерференции связанной и свободных волн ВГ в j -ом слое структуры и о линейном распространении волны ВГ в структуре с учетом многолучевой интерференции. Амплитуда поля ВГ от всего микрорезонатора находилась суммированием полей ВГ от каждого из слоев.

Результаты расчетов для спектров ВГ и линейного отражения представлены на рис.2 и рис.3a сплошными линиями, демонстрируя хорошее качественное согласие с экспериментальными данными. Расчеты проведены для всех углов падения при одинаковых параметрах МР – толщинах $d_l = 204$ нм, $d_h = 165$ нм и $d_r = 408$ нм и пористостях $f_h = 0.774$ и $f_l = f_r = 0.882$. На рис.3b и рис.3c показано пространственное распределение модуля $|\mathbf{E}_\omega^{(j)}(z)|$ ло-

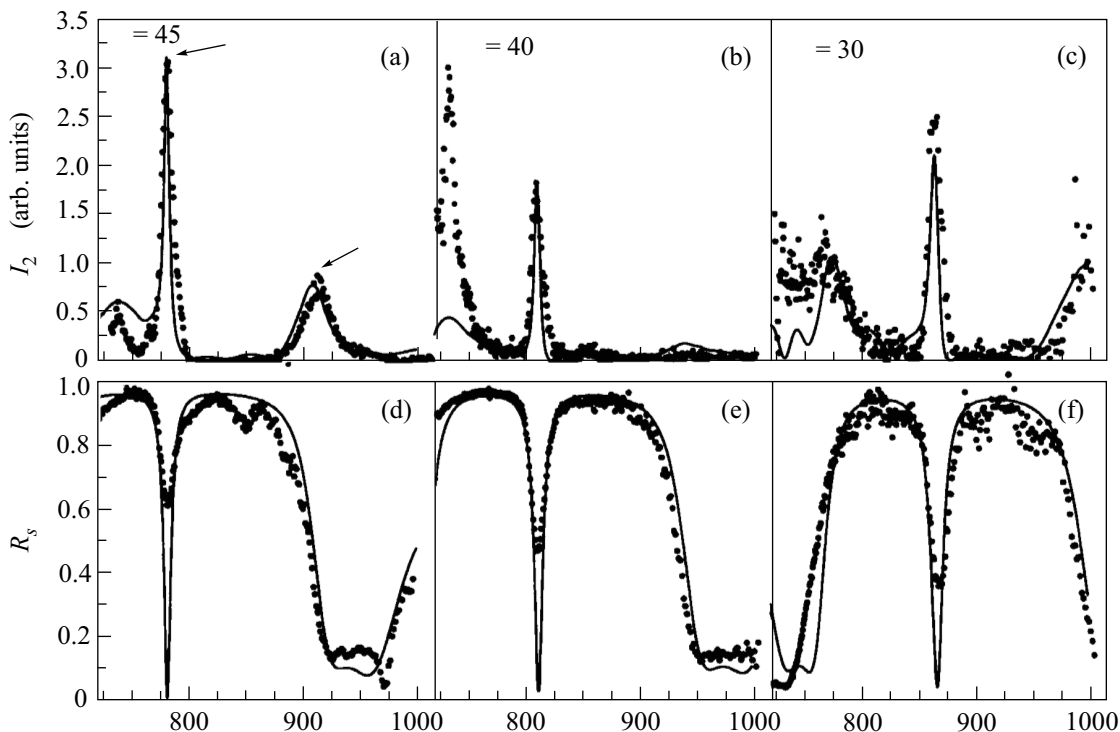


Рис.2. Зависимости интенсивности p -поляризованного излучения ВГ от длины волны s -поляризованного излучения накачки, измеренные в МР пористого кремния при разных углах падения: (а) $\theta = 45^\circ$; (б) $\theta = 40^\circ$; (с) $\theta = 30^\circ$. Значения интенсивности ВГ на панели (б) увеличены в 7 раз, на панели (с) – в 20 раз. Сплошные линии – результаты модельных расчетов. Спектры коэффициента отражения s -поляризованного излучения накачки от МР пористого кремния при разных углах падения: (d) $\theta = 45^\circ$; (e) $\theta = 40^\circ$; (f) $\theta = 30^\circ$

кальной амплитуды стоячей волны накачки в МР, вычисленное для двух характерных длин волн – $\lambda_{\omega,1} = 781$ нм, соответствующей микрорезонаторной моде, и $\lambda_{\omega,2} = 909$ нм, совпадающей с максимумом ВГ на длинноволновом краю запрещенной фотонной зоны. В окрестности $\lambda_{\omega,1}$ поле накачки существенно локализовано в области микрорезонатора, а объемная плотность энергии излучения накачки экспоненциально уменьшается к внешним краям ФК-зеркал. Для случая $\lambda_{\omega,2}$ поле накачки равномерно усиливается во всем МР. Поскольку квадратичная поляризация, наводимая в структуре, $\mathbf{P}_{2\omega}^{(2)(j)}(z) \propto \mathbf{E}_{\omega}^{(j)}(z)\mathbf{E}_{\omega}^{(j)*}(z)$, резонансное усиление сигнала ВГ в окрестности $\lambda_{\omega,1}$ обусловлено эффектами локализации поля накачки в микрорезонаторном слое и в ближайших к нему слоях ФК-зеркал. Отметим, что из-за полуволновой толщины микрорезонаторного слоя, вклад во ВГ от него для $\lambda_{\omega,1}$ существенно меньше, чем от близлежащих слоев ФК-зеркал, и отличен от нуля только из-за дисперсии. Возрастание интенсивности ВГ в окрестности $\lambda_{\omega,2}$ обусловлено эффектом однородного уси-

ления поля накачки. Аналогична природа резонанса ВГ на коротковолновом краю запрещенной зоны; сильная зависимость усиления ВГ в этой области от θ обусловлена сильной дисперсией квадратичной восприимчивости ПК в окрестности 370 нм, близкой к энергетическому положению двухфотонного резонанса прямых электронных переходов кремния E'_0/E_1 . Этим объясняется и наибольшее усиление интенсивности на краю фотонной зоны при $\theta = 55^\circ$ (рис.3а).

Таким образом, встраивание микрорезонаторного слоя в фотонный кристалл пористого кремния приводит к появлению дополнительного резонанса в спектре интенсивности ВГ, аналогичного резонансному возрастанию комбинированной плотности состояний прямых электронных переходов на примесный уровень в запрещенной зоне полупроводника. Нелинейная поляризация в этом случае локализована в окрестности микрорезонаторного слоя. Варьирование параметров микрорезонатора позволяет изменять спектральное положение резонаторной моды и радиус локализации нелинейной поляризации.

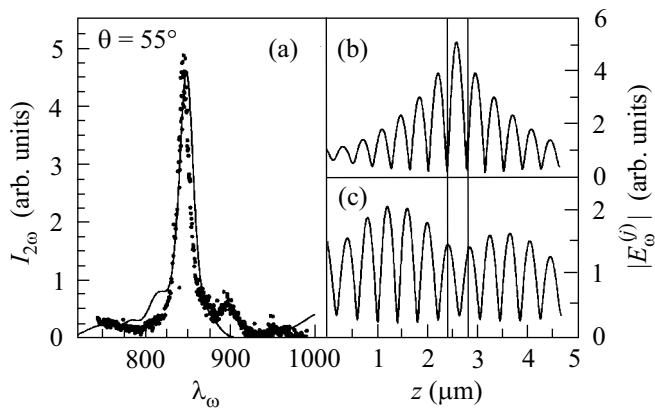


Рис.3. (а) Зависимость интенсивности p -поляризованного излучения ВГ от длины волны s -поляризованного излучения накачки, измеренная в МР пористого кремния при $\theta = 55^\circ$, сплошная линия – результат модельных расчетов. Пространственное распределение модуля амплитуды стоячей волны накачки в МР, вычисленное для $\lambda_{\omega,1} = 781$ нм, соответствующей микрорезонаторной моде при $\theta = 45^\circ$ (b), и для $\lambda_{\omega,2} = 909$ нм, соответствующей краю фотонной зоны (c). Вертикальными линиями указаны границы резонаторного слоя

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 00-02-04026 и # 00-15-96555), Deutsche Forschungsgemeinschaft (гранты # 436 RUS 113/439/0 и MA 610/20-1), гранта NATO # PST.CLG975264 и учебно-научного центра “Фундаментальная оптика и спектроскопия” в рамках федеральной программы “Интеграция”.

1. M. Scalora, J. P. Dowling, C. M. Bowden et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 1368 (1994).
2. E. Yablonovitch, Phys. Rev. Lett. **58**, 2059 (1987).
3. A. Imhof, W. Vos, R. Sprik et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 2942 (1999).
4. C. J. Herbert and M. S. Malcuit, Opt. Lett. **18**, 1783 (1993).
5. S. John, Phys. Rev. Lett. **58**, 2486 (1987).
6. V. Berger, Phys. Rev. Lett. **81**, 4136 (1998); N. G. Broderick, G. W. Ross, H. L. Offerhaus et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 4345 (2000).
7. S. Nakagawa, N. Yamada, N. Mikoshiba et al., Appl. Phys. Lett. **66**, 2159 (1995).
8. A. V. Balakin, V. A. Bushuev, N. I. Koroteev et al., Opt. Lett. **24**, 793 (1999).
9. Л. А. Головань, А. М. Желтиков, П. К. Кашкаров и др., Письма в ЖЭТФ **69**, 274 (1999).
10. V. Pellegrini, A. Tredicucci, C. Mazzoleni et al., Phys. Rev. **B52**, R14328 (1995); M. Cazzanelli and L. Pavesi, Phys. Rev. **B56**, 15264 (1997).
11. L. A. Kuzik, V. A. Yakovlev, and G. Mattei, Appl. Phys. Lett. **75**, 1830 (1999).
12. G. Mattei, A. Marucci, and V. A. Yakovlev, Mat. Sci. Eng. **B51**, 158 (1998).
13. Yu. E. Lozovik and A. V. Klyuchnik, in *The dielectric function of condensed systems*, Eds. L. V. Keldysh, D. A. Kirzhnits, and A. A. Maradudin, Elsevier Science Publishers B.V, 1989, chap.5, p.368.
14. D. E. Aspnes and A. A. Studna, Phys. Rev. **B27**, 985 (1983).
15. D. S. Bethune, J. Opt. Soc. Am. **B6**, 910 (1989).