

Гигантская третья гармоника в фотонных кристаллах и микрорезонаторах на основе пористого кремния

Т. В. Долгова, А. И. Майдыковский, М. Г. Мартемьянов, А. А. Федянин, О. А. Акципетров¹⁾

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

Поступила в редакцию 4 декабря 2001 г.

Экспериментально обнаружено гигантское усиление (не менее 10^3) генерации третьей оптической гармоники в одномерных микрорезонаторах и фотонных кристаллах из пористого кремния, обусловленное резонансным усилением поля накачки в резонаторной моде и выполнением условия фазового синхронизма на краях запрещенной зоны фотонного кристалла и в окрестности моды микрорезонатора.

PACS: 42.65.Ky, 42.70.Qs

В последние годы интенсивно развивается нелинейная оптика фотонных кристаллов (ФК) и микрорезонаторов (МР) на их основе [1]. В таких микроструктурах возможно наблюдение гигантских нелинейно-оптических явлений, обусловленных гигантской эффективной дисперсией на краях запрещенной фотонной зоны и в окрестности резонаторной моды, а также усилением оптических полей внутри ФК и МР в оптимальных частотно-угловых условиях. В частности, многолучевая интерференция в ФК может компенсировать фазовую расстройку для волн накачки и второй гармоники при попадании одной из волн на край запрещенной фотонной зоны в пространстве частот или волновых векторов [2]. Такое эффективное выполнение условий фазового синхронизма приводит к резонансному усилению генерации второй гармоники в ФК, состоящих, например, из диэлектрических полистироловых сфер [3], или чередующихся слоев GaAs-AlGaAs [4], ZnS-SrF₂ [5] или слоев пористого кремния различной пористости [6, 7]. В то же время, ФК и МР позволяют эффективно управлять пространственным распределением электромагнитного поля внутри них. Например, при резонансе внешнего поля с модой МР интерференция волн с противоположными проекциями волнового вектора на направление периодичности ФК зеркал приводит к образованию внутри МР стоячей волны с амплитудой, резонансно возрастающей в окрестности резонаторного слоя. Степень локализации (усиления) поля, являющаяся мерой добротности МР, определяется параметрами окружающих резонаторный слой зеркал – фотонных кристаллов. Увеличение плотности энергии лазерного излучения внутри МР в спектральной (частотной или угловой) окрестности моды

МР приводит к резонансному усилению нелинейно-оптического отклика МР, например, к генерации гигантской второй гармоники в МР пористого кремния [7] или селенида цинка [8], а также усилению комбинационного рассеяния в МР на основе GaAs-AlAs [9] или пористого кремния [10]. Однако усиление генерации второй гармоники ограничено деструктивной интерференцией волн второй гармоники, генерируемых резонаторным слоем полуволновой (для излучения накачки) толщины; при этом основной вклад во вторую гармонику вносят ближние к резонаторному слою ФК. Для нелинейно-оптических эффектов, зависящих от более высокой степени амплитуды накачки, например, для генерации третьей оптической гармоники (ТГ), такое ограничение отсутствует.

В данной работе представлены результаты экспериментального исследования генерации гигантской третьей гармоники в микрорезонаторах на основе ФК из пористого кремния. Резонансное усиление ТГ обнаружено в угловых спектрах интенсивности ТГ в окрестности резонаторной моды и на краях запрещенной фотонной зоны. Показано, что резонанс ТГ в моде обусловлен совместным действием эффекта пространственной локализации излучения накачки в окрестности резонаторного слоя и выполнения условия фазового синхронизма. Роль усиления амплитуды стоячей волны накачки в резонансном возрастании интенсивности ТГ в моде МР напрямую подтверждена методом ближнепольной оптической микроскопии. Резонансы ТГ на краях запрещенной фотонной зоны обусловлены пространственно однородным усилением волны накачки в ФК зеркалах МР и компенсацией фазовой расстройки между волнами накачки и ТГ вследствие многолучевой интерференции в ФК.

¹⁾e-mail: aktsip@shg.ru

Образцы микрорезонаторов изготавливаются по стандартной электрохимической методике [11] травлением пластины сильно легированного кремния p -типа кристаллографической ориентации (100) с удельным сопротивлением 0.01 Ом·см. В качестве электролита используется раствор 15% плавиковой кислоты, 27% воды и 58% этилового спирта. К плоскому медному катоду прижимается пластина кремния с предварительно стравленным с обеих сторон естественным оксидом, а анодом служит платиновая спираль, помещаемая в электролит над поверхностью пластины кремния в электрохимической ячейке. Постоянный электрический ток задается гальваностатом П-5848. Для получения многослойной структуры плотность тока через пластину кремния периодически меняется и, следовательно, изменяется скорость травления и пористость (объемная доля воздуха в пористом кремнии) на переднем фронте травления. В результате задаваемый профиль плотности тока – время переносится на профиль пористость – глубина. Топографическое изображение скола изготовленных образцов, полученное с помощью сканирующего микроскопа с пьезоэлектрическим детектором силы квазитрения, подтверждает периодичность их строения и наличие четких границ между слоями [7]. Исследуемые образцы микрорезонаторов с резонаторной модой при нормальном падении на $\lambda_{MC} \simeq 1300$ нм или $\lambda_{MC} \simeq 620$ нм представляют собой полуволновой резонаторный слой, заключенный между двумя ФК зеркалами из 5 пар четвертьволновых слоев пористого кремния. Каждая пара состоит из слоев, полученных травлением при плотностях тока 25 мА/см^2 и 87 мА/см^2 . Соответствующие пористости $f_{high} \simeq 0.60$ и $f_{low} \simeq 0.70$ определяются по предварительно полученным калибровочным зависимостям пористости от плотности тока. Вычисленные в рамках модели эффективной среды показатели преломления слоев с этими пористостями на длине волны накачки составляют 2.0 и 1.65, соответственно. Пористость резонаторного слоя $f_{res} = f_{low}$. В качестве образцов сравнения изготавливаются однородные пленки пористого кремния толщиной около 1.5 мкм.

Для экспериментального изучения генерации ТГ используется импульсный АИГ:Nd³⁺-лазер, генерирующий импульсы длительностью около 10 нс с длиной волны $\lambda_w = 1064$ нм и энергией в импульсе около 6 мДж. Поляризованное излучение лазера проходит через инфракрасный фильтр ИКС-5, выделяющий накачку, и направляется под углом падения θ на образец, закрепленный на гониометре. Гониометр обес-

печивает согласованный поворот образца и приемной системы в диапазоне углов падения $0^\circ < \theta < 90^\circ$ с минимальным шагом 0.5° . Отраженное от образца излучение проходит через систему ультрафиолетовых фильтров УФС-2 суммарной толщиной 11 мм, выделяющих излучение на длине волны ТГ, и призму Глана, контролирующую состояние поляризации ТГ. Затем сигнал детектируется фотоэлектронным умножителем (ФЭУ) и электронной стробируемой системой регистрации, связанной с компьютером. Для проверки частотного спектра отраженного излучения предусматривается возможность установки после всех элементов оптической схемы монохроматора МУМ-880 с щелями шириной 0.05 мм. Угловой спектр линейного коэффициента отражения измеряется в идентичной юстировке. Для этого частота отраженного от образца излучения накачки удваивается кварцевой пластиной, поскольку в ИК области ФЭУ малочувствителен. Для абсолютной нормировки коэффициента отражения излучение накачки направляется на ФЭУ через все элементы оптической схемы, исключая образец.

Распределения локальных полей внутри МР характеризовались методом сканирующей микроскопии ближнего оптического поля. Исследуемый скол образца помещается на пьезокерамическую трехкоординатную трубку сканирующего микроскопа. Зондирующее безапертурное острие с радиусом кривизны около 50 нм, приготовленное из оптического одномодового волокна, помещается непосредственно над сколом образца. Рельеф поверхности отслеживается системой обратной связи с камертонным резонансным детектором силы квазитрения. Излучение накачки подводится многомодовым оптическим волокном перпендикулярно поверхности образца максимально близко к сколу МР. Собранные зондом излучение направляется на катод ФЭУ через монохроматор.

Эксперименты по генерации ТГ были проведены для геометрии поляризованных в плоскости образца волн накачки и отраженной ТГ (ss -геометрия). Выбор геометрии эксперимента обусловлен наиболее ярким проявлением фотонных свойств для s -поляризованных волн. Соответствующая компонента кубической восприимчивости объема центросимметричного пористого кремния $\chi_{yzy}^{(3)}$ не равна нулю, в отличие от $\chi_{yzy}^{(2)} \equiv 0$, где ось y перпендикулярна плоскости падения. Таким образом, основным источником генерации третьей гармоники в микрорезонаторах является дипольная объемная поляризация $\mathbf{P}^{(3)}(3\omega)$.

На рис.1а показана зависимость интенсивности отраженной от микрорезонатора третьей гармоники $I_{3\omega}$, выраженной в относительных единицах, от угла

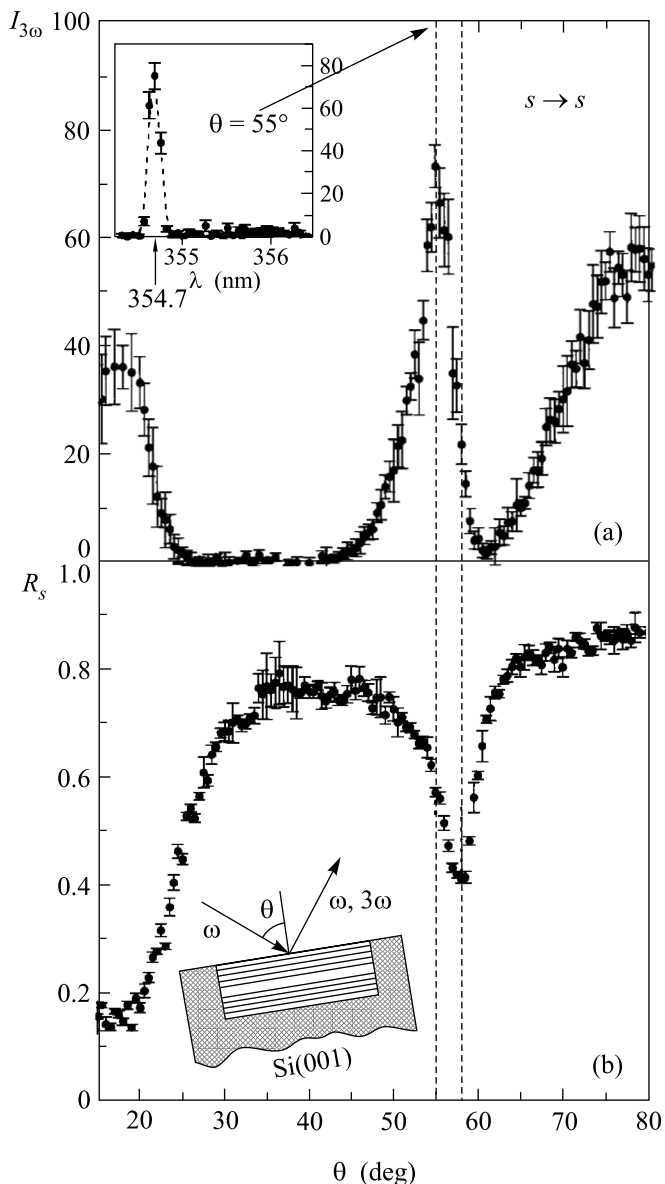


Рис.1. (а) Зависимость интенсивности s -поляризованного излучения ТГ $I_{3\omega}$ от угла падения θ s -поляризованного излучения накачки ($\lambda_\omega = 1064$ нм), измеренная в МР пористого кремния с $\lambda_{MC} \approx 1300$ нм. Штриховые линии указывают угловой сдвиг резонанса ТГ от положения резонаторной моды. Вставка: спектр оптического сигнала в окрестности длины волны ТГ, измеренный в резонансе ТГ ($\theta = 55^\circ$). (б) Угловой спектр коэффициента отражения R_s s -поляризованного излучения накачки от МР

падения на образец излучения накачки. В угловом спектре $I_{3\omega}(\theta)$ наблюдается усиление на краях запрещенной фотонной зоны ($\theta = 17^\circ$ и $\theta = 75^\circ$) и узкий пик в области резонаторной моды ($\theta = 55^\circ$). Усиление интенсивности ТГ в моде МР составляет не менее

10^3 по сравнению с $I_{3\omega}$ в запрещенной зоне. Вставка на рис.1 показывает частотный состав отраженного от МР излучения, прошедшего через набор фильтров системы регистрации, полученный с помощью монохроматора. Наблюдается узкий (с полушириной около 0.1 нм) спектральный максимум на длине волны 354.7 нм, соответствующий третьей гармонике для накачки с длиной волны 1064 нм. Измерения спектра отраженного излучения в широком диапазоне показали надежность выбранной системы фильтров для выделения третьей гармоники: излучение на длинах волн, отличных от ТГ, не зарегистрировано. На рис.1б приведена зависимость линейного коэффициента отражения R_s инфракрасной s -поляризованной накачки от угла падения на образец микрорезонатора. Область запрещенной фотонной зоны в угловых переменных начинается приблизительно от $\theta = 25^\circ$ и соответствует исчезающе малым значениям интенсивности третьей гармоники. Наблюдается провал в угловом спектре отражения при угле падения 58° . Аналогичные измерения угловых спектров $I_{3\omega}(\theta)$ и $R_s(\theta)$ проведены для однородной пластины пористого кремния толщиной 1.5 мкм, сравнимой с полной толщиной образца микрорезонатора (рис.2). В полученных зависимостях также наблюдаются эффекты, связанные с многолучевой интерференцией – широкий максимум в угловом спектре третьей гармоники и осцилляция в коэффициенте отражения.

Особенности углового спектра третьей гармоники, генерируемой микрорезонатором, определяются условиями фазового синхронизма, означающими конструктивную интерференцию волн третьей гармоники от каждого слоя МР, или, другими словами, равенство эффективных показателей преломления на частоте накачки и третьей гармоники [12]. Эти условия выполняются в областях высокой эффективной дисперсии, соответствующих быстрым изменениям в угловом спектре линейного коэффициента отражения, и обуславливают усиление генерации третьей гармоники на краях запрещенной зоны при $\theta = 17^\circ$ и $\theta = 75^\circ$. Слабая выраженность края запрещенной зоны в угловой зависимости R_s при больших углах θ связана, по-видимому, с быстрым возрастанием коэффициентов Френеля в этой области. Максимумы ТГ на краях запрещенной зоны обусловлены интерференцией в структуре ФК и не связаны напрямую с наличием или отсутствием резонаторного слоя.

Гигантское усиление генерации третьей гармоники для микрорезонатора при $\theta = 55^\circ$ обеспечивается комбинацией выполнения условия фазового синхронизма в области резонаторной моды и локализацией поля накачки в резонаторном и ближайших

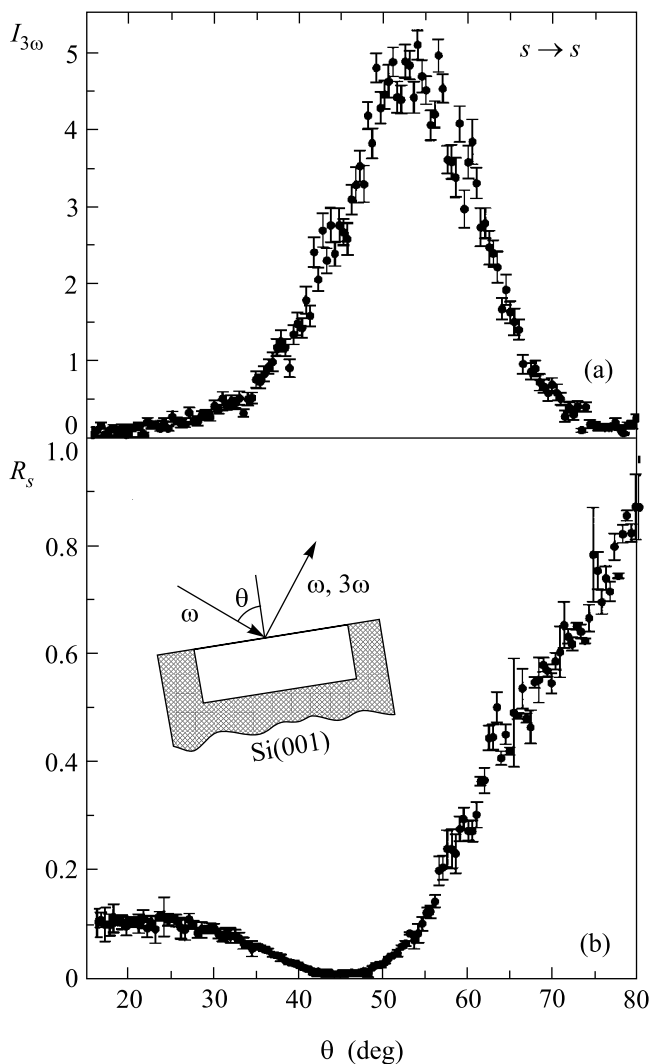


Рис.2. (а) Угловой спектр интенсивности s -поляризованного излучения ТГ $I_{3\omega}$ от угла падения θ s -поляризованного излучения накачки, измеренный для однородной пластины пористого кремния толщиной 1.5 мкм. Единицы интенсивности ТГ одинаковые с рис.1а. (б) Угловой спектр коэффициента отражения R_s s -поляризованного излучения накачки от однородной пластины пористого кремния

слоях. Положение провала в линейном коэффициенте отражения (рис.1б) определяется угловым положением микрорезонаторной моды, при котором наиболее сильна локализация поля в резонаторном слое. Максимум в спектре третьей гармоники сдвинут относительно этого положения на величину, определяемую выполнением условия фазового синхронизма. Оба образца – микрорезонатор на основе фотонного кристалла и однородная пластина – допускают схожее рассмотрение в терминах, введенных для резонатора.

Рис.3. Вверху: пространственное распределение интенсивности оптического поля на сколе МР с $\lambda_{MC} \approx 620$ нм, измеренное ближнепольным оптическим микроскопом, при резонансном возбуждении излучением He-Ne-лазера под нормалью к МР. Внизу: сечение изображения интенсивности вдоль направления периодичности ФК (точки) и модельное пространственное распределение интенсивности стоячей волны в резонаторной моде (сплошные линии). Штриховые линии показывают границы резонаторного слоя

Зеркалами для однородной пластины являются ее границы раздела с воздухом и подложкой. Коэффициенты отражения таких зеркал существенно меньше, чем для многослойных. Действительно, характеризуя микрорезонаторы величиной добротности, определенной через полуширину резонансных пиков в третьей гармонике на их полувысоте, можно увидеть, что для однородной пластины эта величина в угловых переменных равна 10° , а для МР – в 5 раз меньше. Интенсивность третьей гармоники, дости-

гаемая в моде МР, в 15 раз больше, чем в максимуме зависимости $I_{3\omega}(\theta)$ для пластины.

Локализация поля вблизи резонаторного слоя продемонстрирована непосредственно измерением пространственного двумерного распределения интенсивности поля накачки с помощью ближнепольного микроскопа (рис.3). Изображение получено на сколе МР с $\lambda_{MC} \simeq 620$ нм при резонансном возбуждении излучением He-Ne-лазера с $\lambda_{\omega} = 633$ нм под нормалью к поверхности МР. Яркая полоса в окрестности резонаторного слоя соответствует резонансному возрастанию интенсивности света, детектируемого зондом микроскопа. Темные полосы на изображении соответствуют минимумам интенсивности и приходятся на середины ФК зеркал. Контраст между минимумом и максимумом интенсивности, характеризующий степень локализации поля в резонаторе, достигает 10. Яркое пятно в приповерхностной области образца ($z < 200$ нм) является, по-видимому, следствием рассеяния накачки поверхностью образца. Сечение изображения в направлении, перпендикулярном поверхности микрорезонатора, хорошо коррелирует с огибающей модельного пространственного распределения интенсивности стоячей волны накачки, рассчитанного в рамках формализма матриц распространения (рис.3, внизу).

Таким образом, локализация лазерного излучения в окрестности резонаторного слоя микрорезонаторов с фотоннокристаллическими зеркалами (при резонансе с модой МР), а также внутри фотонных кристаллов (при попадании длины волны и волнового вектора излучения на край запрещенной фотонной зоны) приводит к гигантскому усилению их нелинейно-оптического отклика, в частности, к генерации гигантской третьей гармоники. Еще одним фактором

усиления ТГ в микрорезонаторах является согласование фазовых скоростей излучений накачки и третьей гармоники за счет многолучевой интерференции в фотонных кристаллах зеркал.

Авторы благодарят Н. Ота за помощь в приготовлении образцов микрорезонаторов и В. А. Яковлева за плодотворные дискуссии. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 00-15-96555, # 01-02-16746, # 01-02-17524 и # 01-02-04018).

1. K. Sakoda, *Optical Properties of Photonic Crystals*, Springer, 2001, p. 109.
2. N. Bloembergen and J. Sievers, *Appl. Phys. Lett.* **17**, 483 (1970).
3. J. Martorell, R. Vilaseca, and R. Corbalan, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 702 (1997).
4. J. P. van der Ziel and M. Pegems, *Appl. Phys. Lett.* **28**, 437 (1976).
5. A. V. Balakin, V. A. Bushuev, N. I. Koroteev et al., *Opt. Lett.* **24**, 793 (1999).
6. Л. А. Головань, А. М. Желтиков, П. К. Кашкаров и др., *Письма в ЖЭТФ* **69**, 274 (1999).
7. Т. В. Долгова, А. И. Майдыковский, М. Г. Мартемьянов и др., *Письма в ЖЭТФ* **73**, 6 (2001).
8. V. Pellegrini, R. Colombelli, I. Carusotto et al., *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1945 (1999).
9. A. Fainstein, B. Jusserand, and V. Thierry-Mieg, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3764 (1995).
10. L. A. Kuzik, V. A. Yakovlev, and G. Mattei, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1830 (1999).
11. O. Bisi, S. Ossicini, and L. Pavesi, *Surf. Sci. Rep.* **38**, 1 (2000).
12. M. Centini, C. Sibilia, M. Scalora et al., *Phys. Rev.* **E60**, 4891 (1999).