

ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ В СТРУКТУРАХ С ФОТОННОЙ ЗАПРЕЩЕННОЙ ЗОНОЙ НА ОСНОВЕ ПОРИСТОГО КРЕМНИЯ

Л.А.Головань, А.М.Желтиков¹⁾, П.К.Кашкаров, Н.И.Коротеев,
М.Г.Лисаченко, А.Н.Наумов, Д.А.Сидоров-Бирюков, В.Ю.Тимошенко,
А.Б.Федотов

Московский государственный университет им. М.В.Ломоносова,
физический факультет и Международный лазерный центр,
119899 Москва, Россия

Поступила в редакцию 13 января 1999 г.

Экспериментально обнаружена эффективная генерация второй оптической гармоники в многослойной периодической структуре на основе пористого кремния. Сигнал второй гармоники существенно превосходит сигналы от однородного слоя пористого кремния, а также монокристаллической кремниевой подложки. Ориентационная зависимость сигнала второй гармоники является изотропной. Интенсивность второй гармоники как функции угла отражения достигает максимума в направлении, соответствующем минимуму фазовой расстройки в многослойной периодической структуре.

PACS: 42.65.Ky, 42.70.Qs

В последние десять лет пористый кремний (ПК) является объектом пристального изучения (см., например, обзор [1]). Интерес к данному материалу обусловлен тем, что при определенных режимах получения в нем возможно формирование кластеров нанометрических размеров. Этот факт, а также наличие у ПК развитой поверхности делают его перспективным материалом для различных технологических приложений.

Новые области использования пористого кремния открываются в связи с возможностью создания на основе этого материала одномерных и двумерных микроструктур и субмикроструктур с периодически изменяющимся показателем преломления (см. обзоры [2, 3]). В частности, использование свёрхрешеток из ПК открывает широкие возможности для создания оптических фильтров с управляемыми характеристиками. Идея использования периодических структур, состоящих из слоев ПК с периодически изменяющейся пористостью, в качестве брэгговских отражателей и микрорезонаторов обсуждается в работе [4]. В связи с этим представляется важным понимание возможностей использования периодических структур из ПК для управления не только линейными, но и нелинейно-оптическими процессами. Как показано в работе [5], для этой цели могут быть использованы свойства дисперсии периодических структур. Увеличение эффективности генерации второй гармоники в структурах с фотонными запрещенными зонами, созданными на основе материалов с объемной квадратичной нелинейностью, наблюдалось в целом ряде экспериментальных работ (см., например, [6]). Создание структур с фотонными запрещенными зонами на основе ПК представляется важным в связи с возможностью решения ряда актуальных задач прикладного и фундаментального характера, включая управление

¹⁾ e-mail: zhelt@ilc.phys.msu.su

параметрами коротких световых импульсов [7], создание новых типов брэгговских отражателей и чирпированных зеркал [8], разработкой компактных оптических линий задержки [9].

Как было ранее установлено, генерация второй гармоники (ГВГ) в ПК происходит весьма неэффективно, сигнал второй гармоники в ПК падает по крайней мере на порядок по сравнению с сигналом от подложки из кристаллического кремния [10]. Этот факт объясняется оптической изотропностью ПК на масштабах порядка длины волны. ГВГ в ПК становится заметной лишь после его термовакуумной обработки, которая сопровождается возникновением новых поверхностных состояний и напряжений в приповерхностном слое [11]. Основная идея увеличения эффективности ГВГ в ПК, реализуемая в данной работе, состоит в уменьшении фазовой расстройки для процесса ГВГ путем создания периодической многослойной структуры из ПК. Как показано в настоящей работе, такой подход позволяет существенно повысить эффективность ГВГ в сверхрешетках на основе кремниевых наноструктур по сравнению с сигналами второй гармоники как от однородного слоя ПК, так и от монокристаллического кремния, служащего подложкой для данной структуры.

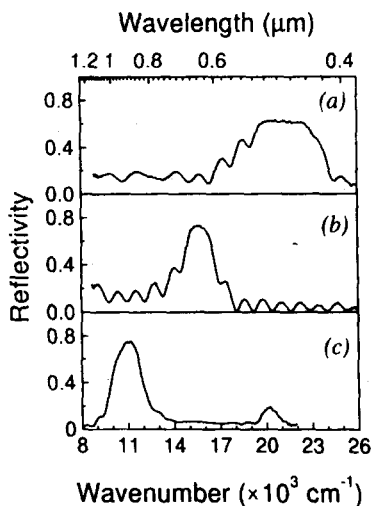


Рис.1. Спектры отражения сверхрешеток А (а), В (b) и С (с) при нормальном падении света

Многослойные структуры на основе ПК были сформированы в процессе электрохимического травления монокристаллических пластин кремния в растворе HF в этаноле (в отношении 1:1). В качестве подложки применялся кремний *p*-типа с ориентацией поверхности (100) с удельным сопротивлением ~ 10 Ом·см. Электрохимическое травление проводилось поочередно подаваемыми импульсами тока, плотности токов составляли 5 и 105 мА/см². Изменяя длительности импульсов, можно было управлять толщиной слоев различной пористости. Были сформированы три многослойные структуры (А, В и С), которые отличались толщинами слоев ПК; каждая из них содержала 12 пар слоев с пористостями приблизительно 70 и 80%. Изготовленные образцы люминесцируют в области 550 – 800 нм, что указывает на формирование нанокластеров в слоях ПК [1]. Полученные сверхрешетки действуют как брэгговские отражатели, спектры отражения для них приведены на рис.1. Изменение угла падения света на образец приводит к смещению максимумов отражения (см. рис.2), что позволяет осуществлять подстройку дисперсии структуры для процесса ГВГ. Удов-

летворительное согласие между экспериментальными данными и результатами расчета матричным методом достигалось при показателях преломления слоев $n_1 \sim 1.4$ и $n_2 \sim 1.2$. Толщины слоев низкой и высокой пористостей составили $d_1 = 87$ нм, $d_2 = 95$ нм для структуры *A*, $d_1 = 111$ нм, $d_2 = 137$ нм для структуры *B*, $d_1 = 178$ нм, $d_2 = 150$ нм для структуры *C*.

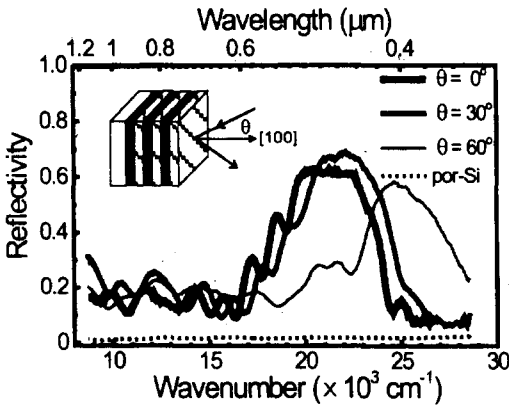


Рис.2. Спектры отражения сверхрешетки *A* при падении света по нормали и под углами 30° и 60° (сплошные линии). Пунктирная линия – спектр отражения однородного слоя пористого кремния пористостью 80% при нормальном падении света. На врезке схематически изображена исследуемая структура

Установка, созданная для исследования ГВГ при отражении от многослойной структуры из ПК, состоит из пикосекундной лазерной системы и автоматизированной системы регистрации. Пикосекундная лазерная система включает в себя задающий Nd:YAG генератор с пассивной синхронизацией мод и управляемой добротностью резонатора, систему выделения одиночных импульсов на основе электрооптического затвора и два каскада усиления [12]. Лазерный импульс на выходе усилительных каскадов имеет длительность около 35 пс и энергию до 3 мДж при гауссовом пространственном распределении интенсивности в сечении пучка усиленного излучения. Частота повторения импульсов генерации составляла 1 Гц. Излучение с длиной волны 1.06 мкм используется в качестве волны накачки в схеме генерации второй гармоники при отражении от периодической структуры из ПК. Излучение накачки имеет линейную поляризацию. Сигнал второй гармоники регистрировался с помощью фотоэлектронного умножителя ФЭУ-106. Накопление и обработка экспериментальных данных осуществлялись с использованием интегратора BOXCAR и персонального компьютера.

Зависимость интенсивности второй гармоники от угла поворота образца вокруг нормали к его поверхности для сверхрешетки *A* приведена на рис.3. Видно, что сигнал второй гармоники практически не зависит от азимутального угла поворота. Излучение второй гармоники было полностью *p*-поляризовано. Эффективность ГВГ при ее накачке *p*-поляризованным излучением выше, чем в случае, когда излучение на основной частоте было *s*-поляризовано. Интенсивность второй гармоники, генерируемой в сверхрешетке на основе ПК, более чем на порядок превосходит не только сигнал от однородного слоя ПК как высокой, так и низкой пористостей, но и сигнал второй гармоники от кристаллического кремния с ориентацией поверхности (100), на котором была сформирована сверхрешетка.

На рис.4 приведены зависимости интенсивности второй гармоники от угла падения для сверхрешеток *A*, *B* и *C*. Сверхрешетка *A* позволяла достигать максимальной

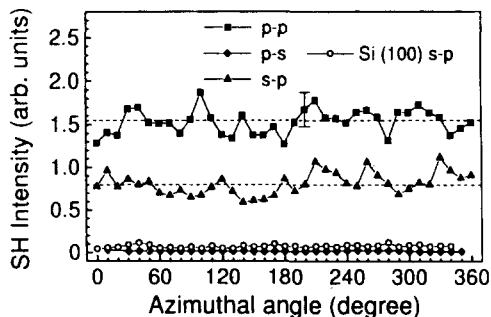


Рис.3. Ориентационные зависимости для сигнала второй гармоники, генерируемого в сверхрешетке *A* при различных поляризациях излучений на основной частоте и частоте второй гармоники: *p* – *p* (■), *p* – *s* (◆), *s* – *p* (▲). Для сравнения приведена ориентационная зависимость сигнала второй гармоники для монокристаллического кремния с ориентацией поверхности (100), который служит подложкой для сверхрешетки (○)

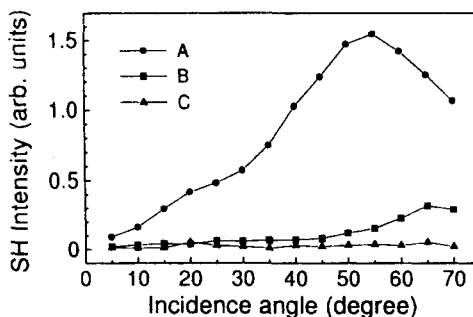


Рис. 4. Зависимость интенсивности второй гармоники от угла падения излучения основной частоты для сверхрешеток *A*, *B* и *C*

интенсивности второй гармоники. Зависимость интенсивности второй гармоники от угла падения является немонотонной: интенсивность второй гармоники весьма низка при угле падения θ , близком к нормальному, и достигает своего максимума при $\theta = 55^\circ$. Сигнал второй гармоники для сверхрешеток *B* и *C* намного слабее, а их максимумы достигаются при больших углах падения.

Объясняя экспериментальные данные, остановимся вначале на отсутствии ориентационной зависимости при одновременной преимущественной *p*-поляризации второй гармоники (рис.3). Этот эффект, а также большая эффективность ГВГ при накачке *p*-поляризованным излучением, по-видимому, объясняются особенностями структуры пористого слоя. Как известно, рост пор происходит вдоль направления (100) [1, 2], то есть вдоль нормали к сверхрешетке. Таким образом, нанокластеры кремния обладают анизотропией (типа эллипсоида [1, 13]), а их линейная восприимчивость в направлении нормали к структуре значительно выше, чем в перпендикулярных направлениях. Рассматривая нанокластер кремния как элементарный диполь, можно ожидать, что наиболее эффективное возбуждение, а также переизлучение будут соответствовать *p*-поляризации волны. Что касается ориентационной зависимости, очевидно, она исчезает ввиду оптической изотропности изучаемых структур в направлениях, перпендикулярных к нормали. Различие интенсивностей второй гармоники для сверхрешеток *A*, *B* и *C* свидетельствует о том, что ГВГ не связана с напряжениями, которые могут возникать в структуре или на границе ее раздела с подложкой.

Наиболее интересным эффектом представляется обнаруженная зависимость эффективности второй гармоники от угла падения излучения накачки на образец (рис.4). Был проведен анализ зависимости расстройки волновых векторов излучений на основной и удвоенной частоте k_1 и k_2 от угла падения излучения с учетом дисперсии многослойной периодической структуры (см., например, [14]) и материальной дисперсии ПК. Опираясь на результаты измерений отражения, мы оценили

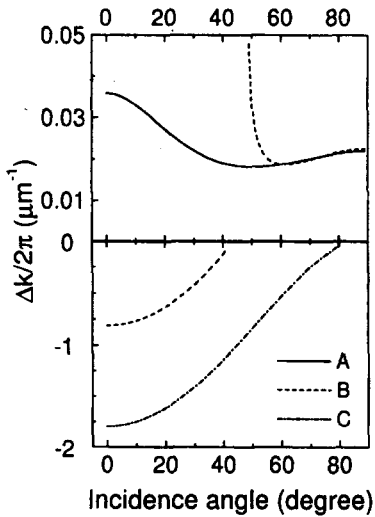


Рис. 5. Зависимость расстройки волновых векторов Δk от угла падения излучения основной частоты, рассчитанная для сверхрешеток А, В и С

разность показателей преломления на длинах волн 1.064 мкм и 0.532 мкм как 0.01 для слоя с большей пористостью и 0.005 для слоя с меньшей пористостью, что согласуется с данными, приведенными в [3]. Зависимость расстройки волновых векторов $\Delta k = k_2 - 2k_1$ от угла падения излучения, рассчитанная для периодических структур с указанными выше параметрами в направлении распространения волны накачки, приведена на рис.5. При определенных углах падающего излучения достигается минимум Δk . Для структуры А данный угол, согласно расчетам, соответствует 50° , что близко к углу, соответствующему экспериментально наблюдаемому максимуму эффективности ГВГ. Некоторое различие в величинах этих углов может быть объяснено ролью френелевских факторов, уменьшающих интенсивность накачки из-за роста коэффициента отражения с увеличением угла падения.

Таким образом, экспериментально установлено, что в многослойной периодической структуре на основе пористого кремния происходит ГВГ, эффективность которой намного превышает эффективность ГВГ как в однородном слое пористого кремния, так и на поверхности монокристаллического кремния. Эффективность ГВГ существенно зависит от толщин слоев. Излучение на частоте второй гармоники является р-поляризованным, а его интенсивность не зависит от угла поворота структуры в плоскости, перпендикулярной нормали. Получена немонотонная зависимость интенсивности второй гармоники от угла падения излучения накачки на образец. Обнаруженные эффекты связываются с достижением в структуре при определенном угле падения минимума фазовой расстройки для процесса ГВГ.

Настоящая работа была частично поддержана государственными научно-техническими программами "Атомные поверхностные структуры" (проект #96-1.33) и "Физика твердотельных наноструктур" (проект #1-066/3), а также Российским фондом фундаментальных исследований (проект #97-02-17351). Авторы благодарны И.Зибер и Г.М.Зайцеву за содействие в выполнении работы.

1. A.G.Gullis, L.T.Canham, and P.D.J.Calcott, J. Appl. Phys. **82**, 909 (1997).
2. L.Pavesi, La Rivista del Nuova Cimento **20**, ser. 4, #10, 1 (1997).

3. W.TheiB, Surf. Sci. Rep. **29**, 91 (1997).
4. G.Mattei, A.Marucci, V.A.Yakovlev, and M.Pagannone, Laser Phys. **8**, 755 (1998).
5. N.Bloembergen and A.J.Sievers, Appl. Phys. Lett. **17**, 483 (1970).
6. J.P.van der Ziel and M.Illegems, Appl. Phys. Lett. **28**, 437 (1976).
7. А.М.Желтиков, Н.И.Коротеев, С.А.Магницкий, А.В. Тарасишин, Квантовая электроника **25**, 885 (1998).
8. A.Stingl, M.Lenzner, Ch.Spielmann et al., Opt. Lett. **20**, 602 (1995).
9. M.Scalora, R.J.Flynn, S.B.Reinhardt, et al., Phys. Rev. **E54**, R1078 (1996).
10. Л.А.Головань, А.В.Зотеев, П.К.Кашкаров, В.Ю.Тимошенко, Письма в ЖТФ **20**, 66 (1994).
11. M.Cavanagh, J.R.Power, J.F.McGilp et al., Thin Solid Films **255**, 146 (1995).
12. А.М.Желтиков, Н.И.Коротеев, and А.В.Федотов, Laser Phys. **4**, 569 (1994).
13. A.L.Efros, M.Rosen, B.Averboukh, et al., Phys. Rev. **B56**, 3875 (1997).
14. A.Yariv and P.Yeh, *Optical Waves in Crystals*, Wiley, New York, 1984.