

СИНХРОННАЯ ГЕНЕРАЦИЯ ТРЕТЬЕЙ ГАРМОНИКИ В АНИЗОТРОПНО НАНОСТРУКТУРИРОВАННОМ КРЕМНИИ

*С. В. Заботнов**, *С. О. Коноров*, *Л. А. Головань*, *А. Б. Федотов*,

А. М. Желтиков, *В. Ю. Тимошенко*, *П. К. Кашкаров*

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119992, Москва, Россия*

*Х. Чжан***

*Пекинский университет
100871, Пекин, Китай*

Поступила в редакцию 17 декабря 2003 г.

С помощью перестраиваемой по длине волны лазерной системы на основе параметрического генератора света реализован режим синхронной генерации третьей гармоники из объема пленок пористого кремния с сильным двулучепреломлением формы. Наличие синхронной генерации, форма ориентационных зависимостей и изменение интенсивности сигнала третьей гармоники для образцов различных толщин в условиях поглощения были подтверждены соответствующими расчетами и линейно-оптическими измерениями.

PACS: 42.65.Ky, 78.67.Bf

1. ВВЕДЕНИЕ

Наноструктурированный кремний в настоящее время является интересным объектом для исследований в области физики низкоразмерных систем. Возможность создания на его основе компактных устройств для применения в оптике, оптоэлектронике и биомедицинских приложениях обусловлена, в частности, такими его свойствами, как интенсивная люминесценция в видимой области спектра [1], эффекты фотоиндуцированного просветления [2] и поглощения [3], высокая спектральная чувствительность к адсорбции активных молекул различных газов [4].

Для приготовления наноструктурированного кремния, как правило, используется метод электрохимического травления пластин монокристаллического Si. В результате получается качественно

новая среда — пористый кремний (ПК), в котором размеры кремниевых остатков (нанокристаллов) и пор составляют единицы или десятки нанометров в зависимости от удельного сопротивления подложки и условий травления. Вариация плотностей токов и времен травления позволяет изменять пористость и толщины получаемых слоев в широких пределах [5].

Вследствие малых размеров нанокристаллов и пор оптические свойства ПК можно описать эффективной диэлектрической проницаемостью [5], которая при удалении значительной части вещества будет существенно отличаться от диэлектрической проницаемости кристаллического кремния.

Недавно также было установлено, что ПК обладает сильно выраженной оптической анизотропией (двулучепреломлением) [6–9], которой не наблюдается в кристаллическом кремнии, относящемся к кубической сингонии. Причиной двулучепреломления ПК является анизотропия скорости роста пор в различных кристаллографических направлениях в процессе электрохимического травления [8]. Это приводит к анизотропии формы составляющих ПК крем-

*E-mail: s_zabotnov@mail.ru

**H. Zhang, Peking University, Department of Physics, 100871, Beijing, China.

Таблица 1. Удельные сопротивления монокристаллических пластин Si и плотности токов травления для изготовления различных типов пленок пористого кремния, использовавшихся в данной работе. Величины двулучепреломления $\Delta n = n_o - n_e$ в исследовавшихся образцах при $\lambda = 2$ мкм

| Обозначение пленки | Удельное сопротивление подложки, мОм·см | Плотность тока травления, мА/см ² | Δn ($\lambda = 2$ мкм) |
|--------------------|---|--|---------------------------------|
| <i>A</i> | 1.5 | 50 | 0.16 |
| <i>B</i> | 3 | 100 | 0.14 |
| <i>C</i> | 3 | 50 | 0.09 |

ниевых остатков, а следовательно, к двулучепреломлению формы. Так, слои ПК, выращенные из монокристаллических пластин кремния с ориентацией поверхности (110), обладают свойствами отрицательного одноосного кристалла с оптической осью вдоль кристаллографического направления [001], лежащей в плоскости образца [9]. Измерения двулучепреломления в пленках ПК методом инфракрасной фурье-спектроскопии показали, что разность показателей преломления для обыкновенной и необыкновенной волн в области прозрачности значительно превышает изменение показателя преломления, обусловленное нормальной дисперсией вещества [9], что открывает широкие перспективы для использования ПК в нелинейной оптике для достижения условий фазового синхронизма в трех- и четырехволновых взаимодействиях. Здесь следует отметить, что для монокристаллического кремния видимый и ближний инфракрасный диапазоны являются областями нормальной дисперсии без двулучепреломления, где невозможна реализация таких процессов.

Ранее для увеличения нелинейно-оптического отклика ПК использовался и как материал, на основе которого путем изменения плотностей токов травления создавались многослойные фотоннокристаллические структуры и микрорезонаторы [10, 11], и как структура с сильным двулучепреломлением для фазового согласования процесса генерации второй гармоники [12]. Также совсем недавно было показано, что сигнал третьей гармоники от мезопористого кремния с характерными размерами нанокристаллов порядка 10 нм может значительно превосходить нелинейно-оптический отклик, как от кристаллического кремния, так и от пористого с меньшим размером нанокристаллов [13].

Целью настоящей работы явилось исследование возможности достижения условий фазового согласования для процесса генерации третьей гармоники (ГТГ) в оптически анизотропных пленках ПК.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Пленки ПК изготавливались методом электрохимического травления монокристаллических пластин кремния с удельным сопротивлением 1.5 и 3 мОм·см и ориентацией поверхности (110) в растворе HF (48%) с этанолом в соотношении 1:1. Величина плотности тока травления для пластин с сопротивлением 1.5 мОм·см составляла 50 мА/см², а для пластин с сопротивлением 3 мОм·см — 50 и 100 мА/см². Данные режимы травления были выбраны в соответствии с результатами предыдущих исследований оптических свойств двулучепреломляющего ПК [9] как наиболее подходящие для получения пленок с необходимыми нам величинами показателей преломления. Время травления изменялось от 2.5 до 20 мин, при этом толщины слоев составляли от 10 до 80 мкм. Отделение пленки от подложки осуществлялось путем резкого увеличения плотности тока до 700 мА/см² в течение нескольких секунд. Толщины отделенных слоев контролировались с помощью оптического микроскопа.

Пленки, полученные из монокристаллических пластин кремния с удельным сопротивлением 1.5 мОм·см при плотности тока травления 50 мА/см² далее будем называть образцами *A*, а пленки из подложки с удельным сопротивлением 3 мОм·см, изготовленные при плотностях тока травления 100 и 50 мА/см² — соответственно образцами *B* и *C* (табл. 1).

Измерение спектров пропускания тонких пленок ПК в видимом и ближнем инфракрасном (ИК) диапазоне от 0.47 до 1.6 мкм осуществлялось с помощью лампы накаливания, монохроматора МДР-12, кремниевого (для длин волн 0.47–1.0 мкм) и германиевого (для 1.0–1.6 мкм) фотодиодов и автоматизированной системы регистрации. Для измерения ИК-спектров в области от 1.6 до 8 мкм использовался спектрометр Perkin Elmer Spectrum RXI FT-IR.

По наблюдаемым в спектрах пропускания пикам интерференции в тонкой пленке рассчитывались дисперсионные зависимости показателей преломления обыкновенной и необыкновенной волн. Величина двулучепреломления в пленках, изготовленных при идентичных условиях травления, оставалась неизменной от образца к образцу с точностью до 5 %.

Для ГТГ использовалась лазерная система фирмы Solar Laser Systems, состоящая из задающего Nd:YAG-генератора, преобразователя излучения с длиной волны 1.06 мкм в третью гармонику и параметрического генератора света (ПГС), позволяющего плавно перестраивать длину холостой волны, использовавшейся в наших экспериментах в качестве волны накачки, в спектральном диапазоне от 1 до 2.1 мкм. Следует отметить, что увеличению длины волны накачки в данном спектральном диапазоне соответствует существенное уменьшение поглощения ПК на частоте третьей гармоники.

Генерация импульсов длительностью около 3 нс осуществлялась с частотой 20 Гц. Максимальная суммарная энергия холостой и сигнальной волн составляла 30 мДж. Генерация третьей гармоники осуществлялась в объеме пленок ПК при нормальном падении на их поверхность. Излучение третьей гармоники из исследуемых образцов анализировалось с помощью призмы Глана и монохроматора МДР-6, регистрация осуществлялась ФЭУ фирмы Hamamatsu. Пленки ПК закреплялись в держателе, который можно было вращать вокруг оси, совпадающей с направлением распространения излучения накачки. Это позволило изменять угол между направлением поляризации волны накачки и оптической осью образца, лежащей в его плоскости и соответствующей кристаллографическому направлению [001].

3. АНАЛИЗ ВОЗМОЖНОСТИ СИНХРОННОЙ ГЕНЕРАЦИИ ТРЕТЬЕЙ ГАРМОНИКИ В ПЛЕНКАХ ОПТИЧЕСКИ АНИЗОТРОПНОГО ПОРИСТОГО КРЕМНИЯ

Возможность достижения режима фазового согласования в процессе генерации гармоник в оптически анизотропных материалах определяется как видом тензора нелинейной восприимчивости, так и величиной двулучепреломления. Первый фактор определяет возможность реализации того или иного вида взаимодействия между обыкновенной и необыкновенной волнами, второй — величину фазовой расстройки при данном типе взаимодействия. По этому принципу проанализируем возможность выполнения условий фазового согласования для процесса ГТГ в исследуемых образцах ПК.

Кристаллический кремний относится к точечной группе симметрии $m\bar{3}m$ и является центросимметричной средой, поэтому компоненты тензора нелинейной восприимчивости $\chi_{ijkl}^{(3)}$, у которых есть нечетное число одинаковых индексов, тождественно равны нулю. Поскольку в кремниевых нанокристаллах, составляющих ПК, сохраняется расположение атомов, характерное для кристаллического Si [1], можно рассматривать ПК также как центросимметричную среду, откуда следует запрет на четырехфотонные процессы (в том числе и ГТГ), когда в нем участвует нечетное число фотонов одинаковой поляризации. Более того, согласно качественному анализу внутренней структуры двулучепреломляющего ПК, сделанному в работе [14], будем считать, что ПК обладает свойствами среды точечной группы симметрии $4/m\bar{3}m$. Тогда тензор нелинейной восприимчивости для процесса ГТГ в ПК имеет вид [15]:

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega; \omega, \omega, \omega) = \begin{pmatrix} \chi_{1111} & \chi_{1122} & \chi_{1133} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \chi_{1122} & \chi_{1111} & \chi_{1133} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \chi_{3311} & \chi_{3311} & \chi_{3333} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{1133} & 0 & 0 & \chi_{1133} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{3311} & 0 & 0 & \chi_{3311} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{1122} & 0 & 0 & \chi_{1122} \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{3311} & 0 & 0 & \chi_{3311} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{1133} & 0 & 0 & \chi_{1133} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{1122} & 0 & 0 & \chi_{1122} \end{pmatrix}. \quad (1)$$

Данный тензор содержит всего пять независимых ненулевых компонент, что заметно упрощает анализ нелинейно-оптического отклика из объема анизотропной среды.

Укороченное волновое уравнение для проекций амплитуды напряженности электрического поля \mathbf{E} третьей гармоники имеет вид [16]

$$\frac{\partial E^i(3\omega)}{\partial y} = i \frac{6\pi\omega}{\text{cn}(3\omega)} \chi_{ijkl}^{(3)} E^j(\omega) E^k(\omega) E^l(\omega) \times \exp\left(i\left(k_1^j + k_1^k + k_1^l - k_3^i\right)y\right), \quad (2)$$

где нижние индексы при волновых векторах k обозначают их принадлежность к волне накачки в случае 1 и к волне на частоте третьей гармоники в случае 3, ω — частота накачки, y — направление распространения волны третьей гармоники. Ось y при нормальном падении на пленки ПК совпадала с кристаллографическим направлением [110]. В качестве осей x и z декартовой системы координат мы выбрали кристаллографические направления $[1\bar{1}0]$ и $[001]$, соответственно. Согласно результатам предыдущих исследований [9], это — направления поляризации соответственно обыкновенной и необыкновенной волн. В данной системе координат с учетом (1) нами было получено решение (2) для проекций поля третьей гармоники из объема рассматриваемой среды:

$$E^x(3\omega) = \frac{3\pi\omega}{\text{cn}(3\omega)} \sin\psi \times \left[\frac{(\chi_{1111} + 3\chi_{1122}) \sin^2\psi (\exp(i(3k_1^o - k_3^o)d) - 1)}{3k_1^o - k_3^o} + \frac{6\chi_{1133} \cos^2\psi (\exp(i(2k_1^e + k_1^o - k_3^e)d) - 1)}{2k_1^e + k_1^o - k_3^e} \right] \times |\mathbf{E}(\omega)|^3, \quad (3)$$

$$E^y(3\omega) = 0, \quad (4)$$

$$E^z(3\omega) = \frac{6\pi\omega}{\text{cn}(3\omega)} \cos\psi \times \left[\frac{\chi_{3333} \cos^2\psi (\exp(i(3k_1^e - k_3^e)d) - 1)}{3k_1^e - k_3^e} + \frac{3\chi_{3311} \sin^2\psi (\exp(i(2k_1^o + k_1^e - k_3^o)d) - 1)}{2k_1^o + k_1^e - k_3^o} \right] \times |\mathbf{E}(\omega)|^3, \quad (5)$$

где ψ — угол между направлением поляризации накачки и оптической осью образца $[001]$, d — толщина пленки ПК. Согласно полученному решению укороченного уравнения, проекция поля третьей гармоники E^y вдоль направления распространения равна

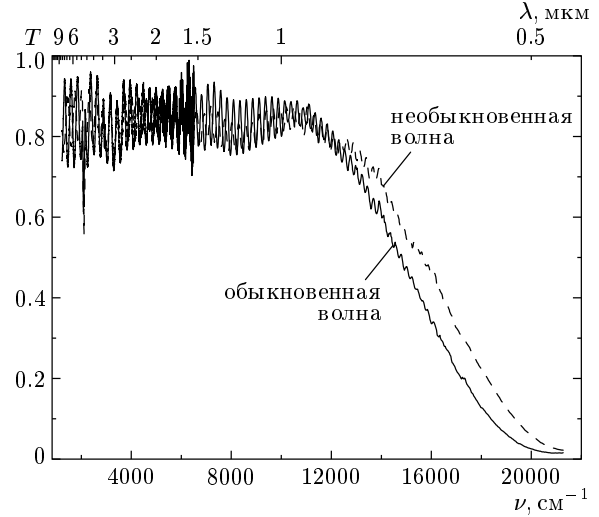


Рис. 1. Спектры пропускания обыкновенной и необыкновенной волн для пленки пористого кремния типа B толщиной 12 мкм

нулю, в то время как обыкновенная и необыкновенная составляющие E^x и E^z волны третьей гармоники имеют сложную зависимость как от угла ψ , так и от фазовых расстройек в знаменателях членов, отвечающих за тот или иной тип взаимодействия между обыкновенной и необыкновенной составляющими волны накачки в процессе ГТГ. Поэтому для дальнейшего, хотя бы качественного, анализа решения укороченного волнового уравнения необходимо знание дисперсионных зависимостей показателей преломления обыкновенной и необыкновенной волн.

Предварительный расчет дисперсии показателей преломления обыкновенной и необыкновенной волн в исследуемых образцах согласно измерениям и обработке ИК-спектров пропускания по методике, описанной в работе [9], показал, что все образцы обладают нормальной дисперсией и отрицательным двулучепреломлением. Следовательно, с учетом запрета на процесс ГТГ, когда в нем участвует нечетное число фотонов одинаковой поляризации, следующего из centrosymmetrichности ПК, единственным возможным для синхронной генерации остается ooe -взаимодействие. При этом величина двулучепреломления в образцах A и B при $\lambda = 2$ мкм составила соответственно $\Delta n = n_o - n_e = 0.16$ и $\Delta n = 0.14$ (табл. 1) и представляется достаточной для достижения условий фазового согласования для процесса ГТГ при данном типе взаимодействия в диапазоне длин волн накачки от 1 до 2.1 мкм. В то же время для образцов C величина оптической анизотропии

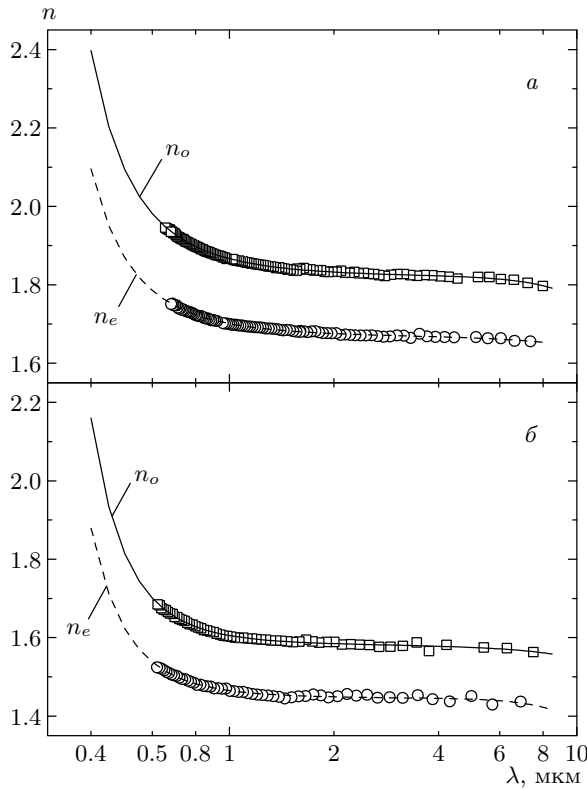


Рис. 2. Дисперсионные зависимости показателей преломления для обыкновенной и необыкновенной волн в пленках пористого кремния типов *A* (а) и *B* (б)

составила при $\lambda = 2$ мкм $\Delta n = 0.09$ (табл. 1) и оказалась заведомо недостаточной для достижения фазового синхронизма в указанном спектральном диапазоне. Более точный расчет абсолютных величин фазовых расстройек для образцов *A* и *B* был проведен нами на основании анализа спектров пропускания обыкновенной и необыкновенной волн (соответственно, кристаллографические направления $[1\bar{1}0]$ и $[001]$). Данные спектры были измерены в диапазоне от 0.47 мкм до 8 мкм. На рис. 1 представлены характерные спектры пропускания обыкновенной и необыкновенной волн для пленки ПК типа *B* толщиной 12 мкм.

По интерференционным максимумам в спектрах пропускания были рассчитаны дисперсионные зависимости показателей преломления обыкновенной и необыкновенной волн по формуле

$$2dn(\lambda) = N\lambda, \quad (6)$$

где d — толщина пленки, λ — длина волны, $n(\lambda)$ и N — показатель преломления и номер интерфе-

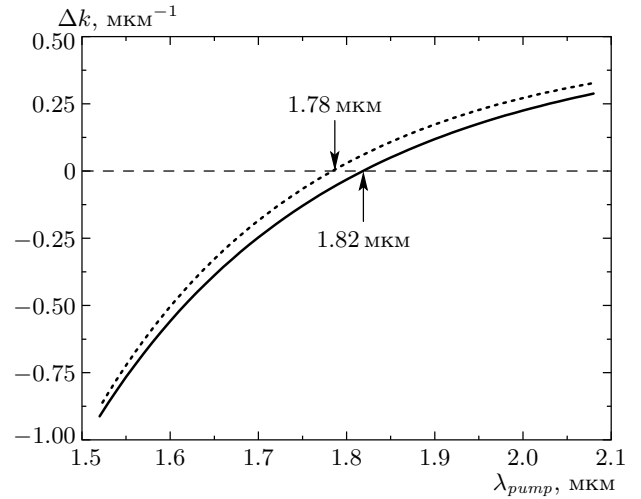


Рис. 3. Зависимости фазовой расстройки Δk от длины волны накачки для процесса генерации третьей гармоники в *ooe*-*e*-геометрии из объема пленок пористого кремния типов *A* (сплошная линия, 1.5 мОм·см, $j = 50$ мА/см²) и *B* (пунктирная линия, 3 мОм·см, $j = 100$ мА/см²)

ренционного пика (N — натуральное число). Полученные дисперсионные зависимости для пленок ПК с сильным двулучепреломлением показаны на рис. 2а, б. Представленные на рис. 2а, б значения показателей преломления при различных длинах волн были экстраполированы кривой, рассчитанной по формуле, используемой для кристаллического кремния [17]:

$$n(\lambda) = a + b\lambda + c\lambda^2 + d\lambda^3 + e\lambda^4, \quad (7)$$

где a, b, c, d, e — варьируемые при экстраполяции параметры, $l = 1/(\lambda^2 - 0.028)$, λ — длина волны в мкм. Значения экстраполяционных параметров для обыкновенной и необыкновенной волн в обоих образцах приведены в табл. 2. Согласно сделанной экстраполяции, можно рассчитать положение области фазового синхронизма, где фазовая расстройка Δk удовлетворяет условию

$$\Delta k = 2k_1^o + k_1^e - k_3^e = 0. \quad (8)$$

Здесь k_1^o, k_1^e, k_3^e — волновые числа обыкновенной и необыкновенной волн на частоте накачки и необыкновенной волны на частоте третьей гармоники соответственно. На рис. 3 представлены соответствующие расчеты фазовой расстройки от длины волны накачки для пленок ПК типов *A* и *B*, для которых фазовый синхронизм достигается соответственно при $\lambda_{pump} = 1.82$ и 1.78 мкм (рис. 3).

Таблица 2. Значения экстраполяционных параметров a , b , c , d , e для дисперсионных зависимостей $n(\lambda) = a + bl + cl^2 + d\lambda^2 + e\lambda^4$ обыкновенной и необыкновенной волн в пленках пористого кремния с сильным двулучепреломлением. Значения параметров приведены для $l = 1/(\lambda^2 - 0.028)$ и λ в мкм

| Тип пленки | Поляризация волны | Параметр экстраполяции | | | | |
|------------|-------------------|------------------------|--------|--------|----------|-----------------------|
| | | a | b | c | d | e |
| A | o | 1.82 | 0.0371 | 0.0051 | -0.0001 | $-4.86 \cdot 10^{-6}$ |
| | e | 1.66 | 0.0268 | 0.0039 | -0.00025 | $-1.66 \cdot 10^{-7}$ |
| B | o | 1.58 | 0.0154 | 0.0081 | -0.00026 | $-8.90 \cdot 10^{-7}$ |
| | e | 1.44 | 0.0133 | 0.0058 | 0.00004 | $-6.26 \cdot 10^{-6}$ |

Таким образом, показана возможность достижения фазового синхронизма для процесса ГТГ в ooe - e -геометрии для образцов ПК, изготовленных из монокристаллических пластин Si с удельным сопротивлением 1.5 и 3 мОм·см и ориентацией поверхности (110) при выборе соответствующих токов травления, обеспечивающих получение пористых пленок с достаточной степенью двулучепреломления. При этом при синхронной генерации основной вклад в интенсивность сигнала третьей гармоники будет давать второе слагаемое в скобках (5), пропорциональное $\cos\psi \sin^2\psi$ и отличающееся по характеру зависимости от угла ψ от остальных слагаемых, дающих вклад в нелинейно-оптический отклик из объема рассматриваемой среды. Следовательно, существует возможность определять область синхронной генерации не только по увеличению интенсивности, но также и путем анализа ориентационных зависимостей.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ПО ГЕНЕРАЦИИ ТРЕТЬЕЙ ГАРМОНИКИ В ПЛЕНКАХ ПОРИСТОГО КРЕМНИЯ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Согласно сделанному выше анализу возможности синхронной генерации третьей гармоники в пленках ПК, мы в первую очередь исследовали процесс ГТГ в ooe - e -геометрии. Для этого оптическая ось в исследуемых образцах, соответствующая кристаллографическому направлению [001], устанавливалась под углом $\psi = 55^\circ$ по отношению к направлению поляризации луча накачки при его нормальном падении на плоскость пленки, призма Глана при этом пропускала составляющую, сонаправленную с оптической осью и соответствующую e -волне (вставка к рис. 4а). Такие условия являются оптимальны-

ми для ГТГ в ooe - e -геометрии, поскольку максимум сигнала при синхронной ГТГ будет определяться согласно (5) экстремумом функции $\cos\psi \sin^2\psi$, который достигается при $\psi = 55^\circ$. На рис. 4а-в показаны зависимости интенсивности третьей гармоники из объема исследовавшихся в данной работе пленок ПК от длины волны накачки. Все представленные зависимости были скорректированы на экспериментально измеренный спектр функции отклика оптической системы после ПГС и интенсивности излучения накачки (холостой волны на выходе ПГС) в третьей степени от длины волны. В зависимости от интенсивности регистрируемого сигнала ширины спектральных диапазонов, для которых отражены экспериментально измеренные точки на рис. 4а-в, выбирались для каждого графика согласно критерию сравнимости уровня сигнала с уровнем шумов, т.е. граничные точки на каждой зависимости соответствуют длине волны, где отношение сигнал/шум приблизительно равно единице. Переход к безразмерным единицам на всех графиках осуществлялся нормировкой на интенсивность при 1.2 мкм в ooe - e -геометрии.

На рис. 4в показана зависимость интенсивности сигнала при ГТГ в ooe - e -геометрии из образца С. Особенностью данного графика является относительно равномерный рост интенсивности третьей гармоники с длиной волны без сильно выраженных экстремумов, что можно объяснить отсутствием фазового согласования из-за малой величины двулучепреломления в образце. Рост интенсивности третьей гармоники с длиной волны, присущий и другим зависимостям (рис. 4а, б), связан, по всей видимости, с уменьшением поглощения для третьей гармоники с уменьшением частоты (см., например, рис. 1). Наличие незначительных по амплитуде экстремумов на всех представленных на рис. 4а-в графиках мо-

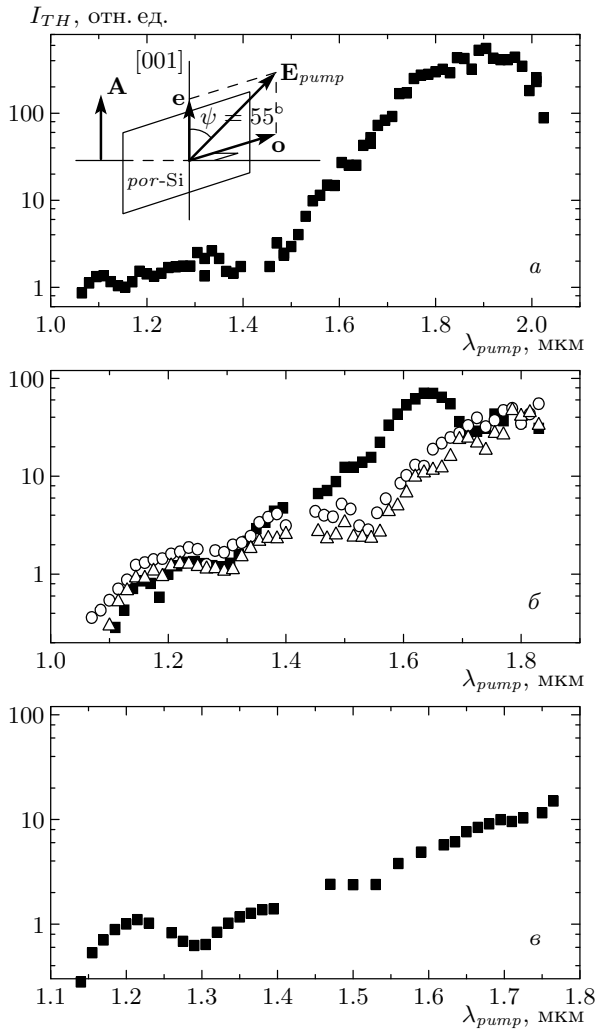


Рис. 4. Зависимости интенсивности третьей гармоники от длины волны накачки для пленок пористого кремния типов *A* (*a*), *B* (*б*) и *C* (*в*). В случаях *a* и *в* представлены графики для *ooe-e*-геометрии, в случае *б* — для геометрий *ooe-e* (■), *ooo-o* (○) и *eee-e* (△). Переход к безразмерным единицам на всех графиках осуществлялся нормировкой на интенсивность при 1.2 мкм в *ooe-e*-геометрии. На вставке к рис. 4*a* изображена схема расположения образца в эксперименте по генерации третьей гармоники в *ooe-e*-геометрии, буквой *A* обозначена призма Глана, использовавшаяся в качестве анализатора

жет быть обусловлено как слабой дисперсией тензора нелинейной восприимчивости $\chi_{ijkl}^{(3)}$, так и погрешностями экспериментальных данных.

Большой интерес представляют зависимости, полученные при ГТГ в *ooe-e*-геометрии, для пленок ПК типов *A* и *B* (рис. 4*a*, *б*). Здесь видны ярко выраженные максимумы при 1.95 мкм для образца

A и при 1.635 мкм для образца *B*. В первом случае интенсивность сигнала в экстремуме превышает уровень третьей гармоники при 1.2 мкм примерно в 500 раз, во втором — почти в 70 раз. Наличие данных максимумов в представленных зависимостях, как будет показано ниже, можно объяснить выполнением условий фазового согласования. Полученные экспериментальные значения длин волн, при которых реализуются экстремумы, для обоих образцов близки к тем, которые были получены на основании изложенного выше анализа спектров пропускания ($\lambda = 1.82$ мкм для образца *A* и $\lambda = 1.78$ мкм для образца *B*). В пределах погрешности экстраполяции показателей преломления результаты линейно-оптических измерений можно считать в достаточной мере объясняющими наличие рассмотренных экстремумов за счет фазового согласования.

Дополнительно для всех образцов мы также измеряли зависимости интенсивности третьей гармоники от длины волны накачки в различных геометриях и не зарегистрировали проявлений каких-либо других типов фазового синхронизма. В качестве примера на рис. 4*б* изображены зависимости без ярко выраженных экстремумов для процесса ГТГ в геометриях *ooo-o* и *eee-e* из объема образца *B*. Отсутствие других типов фазовосогласованных взаимодействий в исследовавшихся образцах не противоречит предположениям, сделанным нами выше при анализе возможности синхронной ГТГ в пленках оптически анизотропного ПК.

Следует, однако, заметить, что для обоих образцов, в которых была реализована синхронная ГТГ, надо учитывать, что помимо вклада фазового согласования в увеличение третьей гармоники относительно сигнала из коротковолновой области одновременно действует фактор уменьшения поглощения на частоте третьей гармоники с ростом длины волны. Таким образом, рост сигнала за счет выполнения только одних условий фазового согласования гораздо меньше. Как можно видеть из рис. 4*б*, сигнал при ГТГ в геометриях *ooo-o* и *eee-e* вблизи $\lambda = 1.635$ мкм всего лишь в 5–7 раз меньше по интенсивности, чем при генерации в *ooe-e*-геометрии. Тем не менее фактор роста третьей гармоники за счет синхронизма является ярко выраженным и может рассматриваться как вместе с явлением увеличения сигнала за счет уменьшения поглощения на частоте гармоники, так и раздельно.

Также мы исследовали ориентационные зависимости сигнала третьей гармоники в зависимости от угла между оптической осью [001] и направлением поляризации накачки при различных значениях

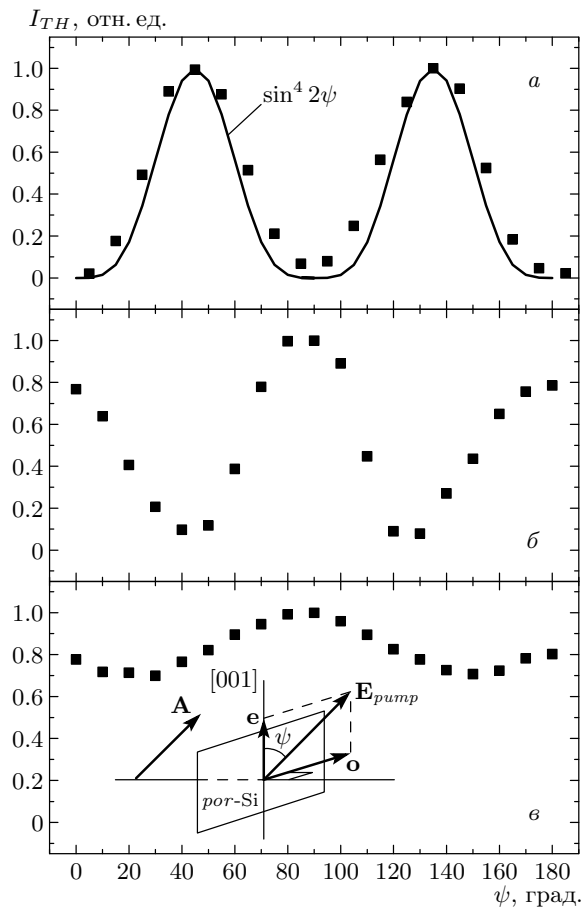


Рис. 5. Ориентационные зависимости интенсивности третьей гармоники от угла между оптической осью [001] и направлением поляризации накачки при длинах волн накачки 1.95 мкм (а), 1.35 мкм (б), 1.1 мкм (в) для пленки пористого кремния типа А толщиной $d = 20$ мкм. Нуль по оси координат на данных графиках соответствует ориентации оси [001] по направлению поляризации накачки. Нормировка по интенсивности на всех графиках производилась на максимум сигнала третьей гармоники в соответствующей зависимости. В случае синхронной генерации третьей гармоники (а) экспериментальная зависимость была аппроксимирована теоретической кривой, пропорциональной функции $\sin^4 2\psi$. На вставке к рис. 5в изображена схема расположения образца в эксперименте по измерению ориентационных зависимостей, буквой А обозначена призма Глана, использовавшаяся в качестве анализатора и пропускавшая излучение третьей гармоники по направлению поляризации накачки

длин волн накачки. Изменение ориентации оптической оси осуществлялось вращением держателя, в котором закреплялась исследуемая пленка ПК. При этом плоскость образца оставалась перпендикулярной волновому вектору накачки, а призма Глана пропускала составляющую с поляризацией, параллельной направлению поляризации накачки (вставка на рис. 5в). Характерные ориентационные зависимости для образца А толщиной $d = 20$ мкм при синхронизме и вдали от него показаны соответственно на рис. 5а и 5б, в. Нуль по оси абсцисс на данных графиках соответствует ориентации оси [001] по направлению поляризации накачки. Нормировка по интенсивности на всех графиках проводилась на максимум сигнала третьей гармоники в соответствующей зависимости.

Согласно решению (3)–(5) укороченного волнового уравнения (2), интенсивность сигнала, регистрируемого в нашем эксперименте, подчиняется закону

$$\begin{aligned}
 I_{TH}(\psi) = & \frac{9\pi\omega^2}{8\text{cn}(3\omega)} \times \\
 & \times \left| \left(\sin^4 \psi \frac{(\chi_{1111} + 3\chi_{1122}) (\exp(i(3k_1^o - k_3^o)d) - 1)}{3k_1^o - k_3^o} + \right. \right. \\
 & + 0.25 \sin^2 2\psi \frac{6\chi_{1133} (\exp(i(2k_1^e + k_1^o - k_3^o)d) - 1)}{2k_1^e + k_1^o - k_3^o} \left. \right) \times \\
 & \times \exp(ik_3^o d) + \left(\cos^4 \psi \frac{2\chi_{3333} (\exp(i(3k_1^e - k_3^e)d) - 1)}{3k_1^e - k_3^e} + \right. \\
 & + 0.25 \sin^2 2\psi \frac{6\chi_{3311} (\exp(i(2k_1^o + k_1^e - k_3^e)d) - 1)}{2k_1^o + k_1^e - k_3^e} \left. \right) \times \\
 & \times \exp(ik_3^e d) \Big|^2 I_{pump}^3. \quad (9)
 \end{aligned}$$

При синхронизме основной вклад в интенсивность регистрируемого сигнала третьей гармоники будет давать квадрат последнего слагаемого из правой части (9), пропорциональный функции $\sin^4 2\psi$. Действительно, как показывает эксперимент, ориентационная зависимость, полученная в области синхронной генерации при $\lambda_{pump} = 1.95$ мкм, с высокой степенью точности может быть аппроксимирована такой функцией (рис. 5а). Ориентационные зависимости же вдали от синхронизма (две из них представлены на рис. 5б, в), характеризовались наличием максимумов, совпадающих с экстремумами функций $\sin^4 2\psi$ и $\cos^4 2\psi$, входящих в первое и третье слагаемые правой части (9). Более слабый вклад второго и четвертого слагаемых вдали от синхронизма можно понять, если подробно рассмотреть их структуру. Все экспоненциальные множители определяют фазовый набег, дающий вклад в трансформацию по относительной величине экстремумов за счет

дисперсии показателей преломления обыкновенной и необыкновенной волн ориентационных зависимостей при изменении длины волны накачки. Такая трансформация хорошо прослеживалась в наших экспериментах (рис. 5б, в). Все фазовые расстройки в знаменателях вдали от синхронизма монотонно зависят от длины волны и по абсолютной величине не дают существенного вклада в относительное изменение между слагаемыми. Следовательно, основной вклад в величину каждого слагаемого будет определяться множителями, стоящими непосредственно перед каждой тригонометрической функцией в (9), и множителями $\chi_{1111} + 3\chi_{1122}$, $6\chi_{1133}$, $2\chi_{3333}$, $6\chi_{3311}$, которые, строго говоря, не равны между собой (равенство выполняется только в случае сред точечных групп симметрии $\infty\infty$ и $\infty\infty m$ [15]) и могут существенно различаться. В первом и третьем слагаемом множители перед тригонометрической функцией равны 1, а во втором и четвертом равны 0.25, что в значительной степени объясняет меньший вклад четных слагаемых в результирующий сигнал.

Количественные оценки соотношений между компонентами тензора нелинейной восприимчивости в рамках данной работы не были сделаны из-за сильной фазовой чувствительности решения (3)–(5) укороченного волнового уравнения (2), требующей высокоточного (до 0.1%) определения толщины пленки и дисперсии показателей преломления обыкновенной и необыкновенной волн. Тем не менее характер поведения ориентационных зависимостей в области синхронной генерации и вдали от нее не противоречит нашему предположению о том, что ПК обладает свойствами среды точечной группы симметрии $4/m\bar{3}m$, и согласуется при этом с решением (3)–(5) укороченного волнового уравнения (2).

Для образца *B* ориентационные зависимости качественно повторяют показанные на рис. 5а–в для образца *A*. В то же время образцу *C* с малой величиной двулучепреломления были присущи лишь ориентационные зависимости, характерные для областей вдали от синхронизма (аналогичные представленным на рис. 5б, в). Следовательно, наличие характерных ориентационных зависимостей в области фазового согласования и их отсутствие при значительной отстройке от нее доказывает природу синхронного усиления третьей гармоники в пленках оптически анизотропного ПК (рис. 4а, б).

Еще одним доказательством усиления нелинейно-оптического сигнала в процессе ГТГ в *ooe-e*-геометрии для пленок ПК с сильным двулучепреломлением за счет фазового согласования

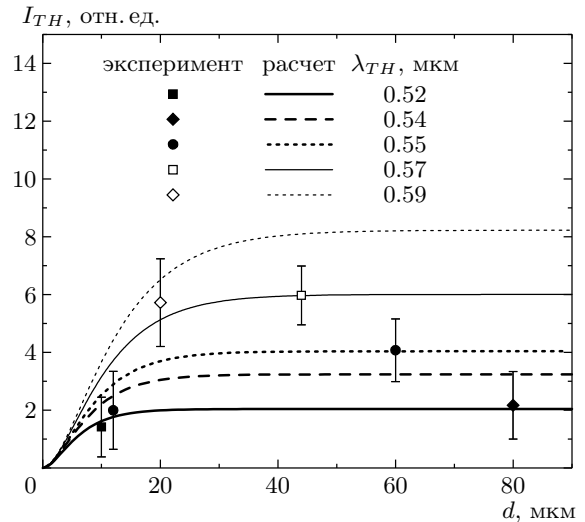


Рис. 6. Зависимость интенсивности третьей гармоники от толщины пленки пористого кремния в случае синхронной генерации в *ooe-e*-геометрии из объема образцов типа *B*. Для каждой длины волны третьей гармоники, на которой регистрировалась синхронная генерация в каком-либо из образцов, представлена соответствующая расчетная кривая с учетом поглощения на частоте третьей гармоники

послужил следующий эксперимент. Мы изготовили шесть пленок ПК типа *B* различной толщины: 10, 12, 20, 44, 60 и 80 мкм. В силу одних и тех же условий травления все полученные пленки обладали примерно одной и той же степенью двулучепреломления $\Delta n = 0.140 \pm 0.005$ при $\lambda = 2$ мкм, контролируемой по спектрам пропускания на инфракрасном фурье-спектрометре [9]. Мы исследовали процесс синхронной ГТГ в *ooe-e*-геометрии в данных образцах путем нахождения максимумов сигнала при одних и тех же условиях фокусировки излучения накачки на все пленки, что было обеспечено применением длиннофокусной линзы. Результаты измерений отображены на рис. 6 точками в системе координат толщина образца–интенсивность третьей гармоники. В проведенном эксперименте (скорее всего, из-за различий в величине оптической анизотропии от образца к образцу) максимумы третьей гармоники при синхронной генерации для исследованных пленок ПК наблюдались при различных длинах волн накачки от $\lambda_{pump} = 1.56$ мкм до $\lambda_{pump} = 1.77$ мкм, что отображено на рис. 6 различным представлением экспериментальных точек. Для третьей гармоники эти изменения наблюдались в спектральном диапазоне $\lambda_{TH} = 0.52$ – 0.59 мкм, где

происходит существенное уменьшение поглощения с увеличением длины волны (рис. 1). Поэтому для анализа полученной зависимости интенсивности третьей гармоники от толщины пленки мы построили для каждой длины волны, на которой регистрировалась синхронная генерация, соответствующую кривую с учетом поглощения на частоте третьей гармоники (рис. 6) по формуле [18]

$$I_{TH} \propto I_{pump}^3 \left(\frac{1 - \exp(-\alpha(\lambda) d/2)}{\alpha(\lambda)/2} \right)^2. \quad (10)$$

Здесь I_{TH} и I_{pump} — интенсивности третьей гармоники и накачки, $\alpha(\lambda)$ — коэффициент поглощения по интенсивности на длине волны гармоники λ , d — толщина пленки ПК. Значения коэффициента поглощения $\alpha(\lambda)$ были рассчитаны для e -волны по спектру пропускания, представленному на рис. 1. Как видно из рис. 6, экспериментальные значения интенсивности третьей гармоники из объема пленок ПК различной толщины хорошо согласуются с расчетными кривыми для синхронной ГТГ в условиях поглощения при различных длинах волн накачки. Это еще раз доказывает наши предположения о фазово-согласованном усилении третьей гармоники в пленках ПК с сильно выраженной двулучепреломлением формы.

5. ВЫВОДЫ

В заключение следует сказать, что использование наносекундной лазерной системы на основе ПГС, позволяющей изменять длину волны в ближнем ИК-диапазоне, в экспериментах по ГТГ в пленках ПК с искусственной оптической анизотропией показало возможность синхронной генерации в ooe - e -геометрии при достаточной величине двулучепреломления и соответствующей длине волны накачки. Других типов фазовосогласованной ГТГ в исследуемых образцах зарегистрировано не было, что связывается нами с нормальной дисперсией и центросимметричностью ПК. Спектральные положения максимумов сигнала третьей гармоники, соответствующие длине волны накачки $\lambda_{pump} = 1.95$ мкм для пленки типа A и $\lambda_{pump} = 1.635$ мкм для образца B , согласуются с решением укороченного волнового уравнения и расчетами фазовой расстройки через вычисленные из спектров пропускания показатели преломления обыкновенной и необыкновенной волн. В то же время отсутствие синхронного процес-

са ГТГ для образца C обусловлено недостаточной величиной двулучепреломления.

Трансформация формы ориентационных зависимостей сигнала третьей гармоники при синхронизме и вдали от него также объясняется решением укороченного волнового уравнения, что позволяет говорить о применимости изложенной в данной работе теории для описания процесса ГТГ в ПК.

Результаты измерений зависимости интенсивности синхронной третьей гармоники от толщины пленки соответствуют расчетным значениям нелинейно-оптического отклика при синхронной ГТГ в условиях поглощения на частоте гармоники.

Полученные в данной работе результаты позволяют рассматривать ПК с сильно выраженной искусственной оптической анизотропией формы в качестве материала для создания компактных преобразователей оптического излучения, основанных на изменении частоты в результате синхронных нелинейно-оптических преобразований.

Данная работа была поддержана грантами №МД-42.2003.02 Президента РФ, а также РФФИ (гранты №№ 02-02-17259, 03-02-16929, 02-02-17098), CRDF (грант № RE2-2369), Фондом Фольксваген (грант № I/76 869), Европейского офиса исследований армии США (контракт № 62558-03-M-0033) и программами министерства промышленности, науки и технологий РФ.

ЛИТЕРАТУРА

1. A. G. Cullis, L. T. Canham, and P. D. J. Calcott, *J. Appl. Phys.* **82**, 909 (1997).
2. V. I. Klimov, V. S. Dneprovskii, and V. A. Karavanskii, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 2691 (1994).
3. V. I. Klimov, D. McBranch, and V. A. Karavanskii, *Phys. Rev. B* **52**, 16989 (1995).
4. П. К. Кашкаров, Е. А. Константинова, В. Ю. Тимошенко, *ФТП* **30**, 1479 (1996).
5. W. Theiß, *Surf. Sci. Rep.* **29**, 91 (1997).
6. М. Е. Компан, Я. Салонен, И. Ю. Шабанов, *ЖЭТФ* **117**, 368 (2000).
7. О. Г. Сарбей, Е. К. Фролова, Р. Д. Федорович и др., *ФТТ* **47**, 1205 (2000).
8. D. Kovalev, G. Polisski, J. Diener et al., *Appl. Phys. Lett.* **78**, 916 (2001).

9. Л. П. Кузнецова, А. И. Ефимова, Л. А. Осминкина и др., ФТТ **44**, 780 (2002).
10. Л. А. Головань, А. М. Желтиков, П. К. Кашкаров и др., Письма в ЖЭТФ **69**, 274 (1999).
11. Т. В. Долгова, А. И. Майдыковский, М. Г. Мартемьянов и др., Письма в ЖЭТФ **75**, 17 (2002).
12. L. A. Golovan', V. Yu. Timoshenko, A. V. Fedotov et al., Appl. Phys. B **73**, 31 (2001).
13. L. A. Golovan', L. P. Kuznetsova, A. V. Fedotov et al., Appl. Phys. B **76**, 429 (2003).
14. A. M. Zheltikov, Laser. Phys. **11**, 1024 (2001).
15. Ю. И. Сиротин, М. П. Шаскольская, *Основы кристаллофизики*, Наука, Москва (1975).
16. J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et. al., Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).
17. Е. М. Воронкова, Б. Н. Гречушников, Г. И. Дистлер и др., *Оптические материалы для инфракрасной техники*, Наука, Москва (1965).
18. Дж. Райнтжес, *Нелинейные оптические параметрические процессы в жидкостях и газах*, Мир, Москва (1987).