

УДК 535:621.373.826:539

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-64-69

Г. М. Борисов<sup>1,2</sup>, В. Г. Гольдорт<sup>1</sup>, К. С. Журавлёв<sup>1,2</sup>, А. А. Ковалёв<sup>1</sup>  
С. А. Кочубей<sup>1</sup>, Д. В. Ледовских<sup>1</sup>, Т. В. Малин<sup>1</sup>, Н. Н. Рубцова<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН  
пр. Академика Лаврентьева, 13, Новосибирск, 630090, Россия

<sup>2</sup>Новосибирский государственный университет  
ул. Пирогова, 2, Новосибирск, 630090, Россия

rubtsova@isp.nsc.ru

## ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В ТОНКОЙ ПЛЕНКЕ $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$ \*

Вторая гармоника излучения фемтосекундного лазера  $Yb^{3+}:KY(WO_4)_2$  в пропускании тонкой пленки  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$ , выращенной на монокристалле сапфира ориентации (0001), не обнаруживает насыщения для интенсивностей инфракрасной накачки до 200 МВт/см<sup>2</sup>. Излучение второй гармоники  $p$ -поляризации зарегистрировано как для накачки  $p$ -поляризации, так и для накачки  $s$ -поляризации; во втором случае сигнал второй гармоники существенно ниже. Для обоих случаев поляризации накачки сигнал второй гармоники отсутствует при нормальном падении излучения и достигает максимального значения для угла падения около 50° с последующим уменьшением. Обнаружены признаки латеральной неоднородности образца на уровне 5 %, обсуждается отсутствие азимутальной зависимости, соответствующей оси симметрии шестого порядка.

*Ключевые слова:* генерация второй гармоники, наноразмерные полупроводниковые материалы  $A_3B_5$ .

### Введение

Полупроводниковые соединения группы  $A_3B_5$  служат объектом фундаментальных и прикладных исследований на протяжении многих лет. Наш опыт в разработке насыщающихся поглотителей, изготовленных на основе наноразмерных структур, включающих квантовые ямы  $In_xGa_{1-x}As$  и предназначенных для синхронизации мод лазеров, свидетельствует о богатых возможностях этой группы в конструировании материалов с заданными оптическими характеристиками [1–3].

Относительно новые материалы той же группы, представленные нитридами галлия

и алюминия [4; 5], оказались перспективными в разработке многих элементов фотоники. Значение этих материалов для практического применения подтверждает присуждение Нобелевской премии [6] за исследования в этой области. Физические параметры нитрида галлия и алюминия могут меняться в очень широких пределах; например, в работе [7] было показано, что нелинейная восприимчивость второго порядка в толстых пленках  $Al_xGa_{1-x}N$  может изменяться в больших пределах – от максимального значения до нуля – при изменении концентрации алюминия. В данной работе исследованы сигналы второй гармоники излучения фемтосекундного лазера ИК диапазона в

\* Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 16-02-00018.

Борисов Г. М., Гольдорт В. Г., Журавлёв К. С., Ковалёв А. А., Кочубей С. А., Ледовских Д. В., Малин Т. В., Рубцова Н. Н. Генерация второй гармоники в тонкой пленке  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  // Сибирский физический журнал. 2018. Т. 13, № 2. С. 64–69.

пропускании тонкой (субмикронной) пленки  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$ .

### Образец и техника измерений

Образец представлял собой слой AlN толщиной 170 нм и поверх него слой  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  толщиной 980 нм. Эти слои выращены методом молекулярно-пучковой эпитаксии на монокристаллической подложке сапфира  $Al_2O_3$  ориентации (0001). Образец прозрачен как для основного излучения с длиной волны 1040 нм, использованного в эксперименте, так и для второй гармоники, поэтому излучение второй гармоники регистрировалось в пропускании образца.

Схема эксперимента приведена на рис. 1. В качестве источника излучения использован инфракрасный фемтосекундный лазер  $Yb^{3+}:KY(WO_4)_2$  (Техноскан, Новосибирск). Лазер работал в режиме синхронизации мод с центральной длиной волны излучения 1040 нм, с частотой следования импульсов 80 МГц и с длительностью импульсов 400 фс. Средняя мощность лазерного излучения не превышала 0,3 Вт. При необходимости пучок излучения предварительно расширялся коллиматором. Излучение лазера фокусировалось короткофокусной линзой 3 (использовались линзы с фокусным расстоянием 15 или 6 мм) на образец. Линза 5 корректировала расходимость пучка за образцом, призма разделяла в пространстве инфракрасное и видимое излучения. Излучение накачки после призмы поглощалось экраном, а излучение второй гармоники, пройдя через механический прерыватель (частота прерывания около 200 Гц), регистрировалось фотоэлектронным умножителем. Сигнал ФЭУ поступал на вход синхронного детектора, опорный сигнал формировался оптронной парой на частоте прерывания сигнала второй гармоники. В эксперименте использован ФЭУ-79 с чувствительностью  $0,2 \cdot 10^{12}$  В/Вт в зеленой области спектра при нагрузке 50 Ом.

При необходимости можно было увеличить сигнал второй гармоники за счет увеличения интенсивности накачки (применением линзы 3 с более коротким фокусом и предварительным расширением пучка коллиматором) и за счет увеличения усиления путем подбора нагрузочного сопротивления ФЭУ. Оценка длины синхронизма для указанных спектральных областей излучения

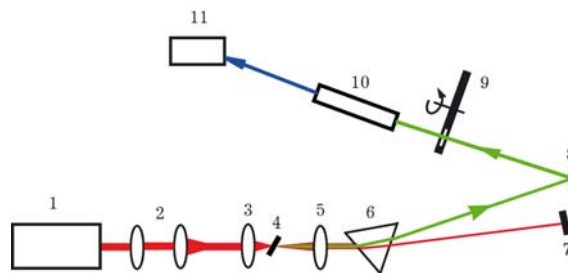


Рис. 1. Схема измерений: 1 – фемтосекундный ИК лазер; 2 – коллиматор; 3 – фокусирующая линза; 4 – образец; 5 – корректирующая линза; 6 – кварцевая призма; 7 – поглотитель ИК излучения; 8 – плоское зеркало; 9 – механический прерыватель; 10 – ФЭУ; 11 – синхронный детектор

накачки и второй гармоники излучения для материала GaN по известным из литературы значениям коэффициента преломления на частоте накачки и на частоте излучения второй гармоники составила 2,4 микрон, что меньше толщины данного образца  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  с малой долей Al. Проблема засветки ФЭУ мощным излучением накачки решалась использованием диафрагм для пучка излучения второй гармоники; положение диафрагм определялось по излучению второй гармоники в нелинейном кристалле с высокой эффективностью генерации второй гармоники, помещаемого вместо исследуемого образца.

### Результаты

При нормальном падении возбуждающего фемтосекундного излучения на образец сигнал второй гармоники отсутствовал. Световые сигналы второй гармоники существенно зависели от поляризации накачки и угла падения излучения. Угловая зависимость и поляризационные диаграммы для *p*-поляризованной и для *s*-поляризованной накачки регистрировались в разных условиях по средней мощности фемтосекундного лазера, по размеру пятна излучения накачки на образце, а также разным усилениям ФЭУ. Для удобства сравнения результатов эти сигналы приведены примерно к одной шкале, соответствующей наиболее слабому сигналу.

Зависимости сигнала второй гармоники от угла падения излучения накачки приведены на рис. 2 для *p*-поляризованной накачки и для *s*-поляризованной накачки. Ошибка в углах поворота анализатора составляла

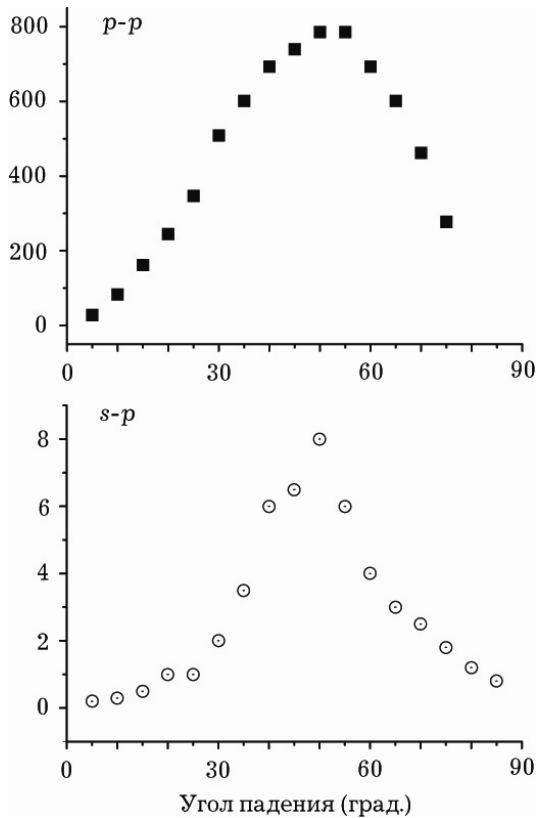


Рис. 2. Сигналы второй гармоники в зависимости для  $p$ - и  $s$ -поляризации накачки в зависимости от угла падения излучения

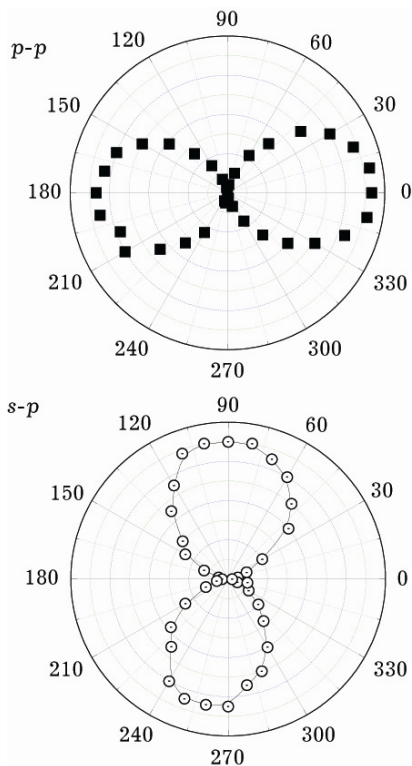


Рис. 3. Поляризационные диаграммы сигналов второй гармоники для двух типов линейной поляризации накачки

$\sim 2,5^\circ$ , ошибка в измерении амплитуды сигнала – 10 % от измеренной величины. В записи  $p$ - $p$  и  $s$ - $p$  первый символ обозначает поляризацию излучения накачки, второй – поляризацию излучения второй гармоники. Для обоих случаев вторая гармоника отсутствует при нормальном падении, а максимум достигается для угла падения излучения накачки примерно в  $50^\circ$ . Падение сигналов для углов более  $50^\circ$  объясняется потерями накачки на отражение. Амплитуды сигналов второй гармоники для случаев  $p$ - $p$  и  $s$ - $p$  существенно различаются.

Сигналы второй гармоники в данном образце были поляризованы всегда линейно и соответствовали  $p$ -типу поляризации. Поляризационные диаграммы показаны на рис. 3 для названных выше случаев; их форма указывает на линейный тип поляризации сигналов второй гармоники. Отклонения формы поляризационных диаграмм от идеальной «восьмерки», вероятнее всего, связаны с амплитудной нестабильностью излучения накачки. Горизонтальная ориентация поляризационной диаграммы сигнала второй гармоники для случая  $p$ -поляризованной накачки совпадает с поляризацией лазерного излучения. Для исследования сигнала второй гармоники для  $s$ -поляризации излучения накачки образец поворачивался так, чтобы накачка соответствовала именно этому типу. Поляризационная диаграмма второй гармоники на рис. 3 для этого случая ортогональна диаграмме лазерного излучения, т. е. соответствует  $p$ -поляризации излучения второй гармоники.

Для угла падения излучения накачки в 50 градусов и для ее  $p$ -поляризации (что соответствует максимальному сигналу второй гармоники, полученному в образце) проведено исследование зависимости сигнала второй гармоники излучения от средней мощности лазера накачки.

На рис. 4 точками представлены результаты измерений, пунктирной кривой – квадратичная зависимость с подгоночным параметром по амплитуде. Видно хорошее совпадение результатов измерений с квадратичной зависимостью. Максимальное значение интенсивности накачки, использованное в экспериментах, оценивалось по средней мощности, длительности импульсов, частоте следования фемтосекундного излучения, а также размеру перетяжки пучка излучения накачки в фокусе. По этой оценке в

200 МВт/см<sup>2</sup> можно утверждать, что в пределах такой интенсивности не наблюдается отклонения от квадратичной зависимости от интенсивности накачки в сигнале генерации второй гармоники.

Идеальный кристалл алюминий-галлий нитрида, выращенный на сапфире, должен иметь ось симметрии шестого порядка, что могло бы проявиться в сигнале второй гармоники излучения в виде азимутальной зависимости. В наших экспериментах не удалось обнаружить азимутальную зависимость. В процессе поиска этой зависимости было обнаружено нерегулярное изменение сигнала второй гармоники, что может быть объяснено неоднородностью образца. Некоторое представление о латеральной неоднородности оптических свойств исследуемого кристалла  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  дает рис. 5. Угол падения излучения накачки фиксировался, и сам образец сканировался под сфокусированным пучком накачки.

На рис. 5 показаны сигналы второй гармоники в зависимости от смещения образца. Средняя мощность излучения накачки контролировалась по сигналу, прошедшему через образец и выделенному кварцевой призмой. При обнаружении отклонений от постоянной величины для каждой измеренной точки проводилась коррекция сигнала по квадратичной зависимости. Кроме того, для каждой точки проводился поиск максимального значения сигнала второй гармоники путем микроперемещений фокусирующей линзы вдоль фокуса. По данным рис. 5 определено среднеквадратичное отклонение сигнала второй гармоники от среднего значения; по 12 точкам образца эти отклонения не превышали 5 %.

### Обсуждение результатов

Измеренные в [8] значения двух компонент тензора нелинейной восприимчивости второго порядка пленки AlN в области ИК накачки на длине волны 1064 нм (0,62 и 0,0013 пм/В) весьма малы, чтобы учитывать влияние этого слоя толщиной 170 нм на результаты измерений в нашем образце. Для подложки из сапфира ориентации (0001) не удалось найти данные по значениям нелинейной восприимчивости второго порядка объемного материала для накачки в ИК диапазоне спектра; имеются лишь данные по генерации второй гармоники на границе

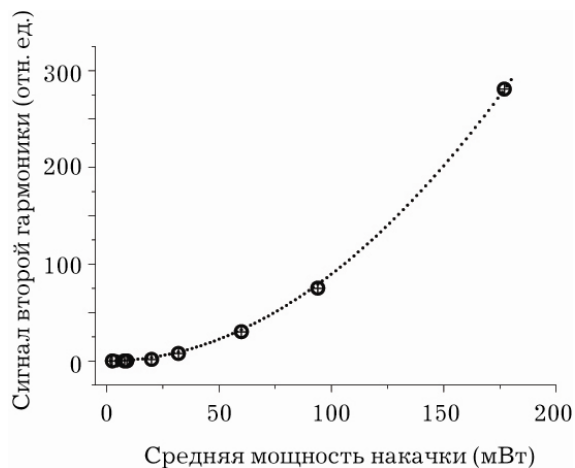


Рис. 4. Зависимость сигналов второй гармоники от мощности излучения накачки

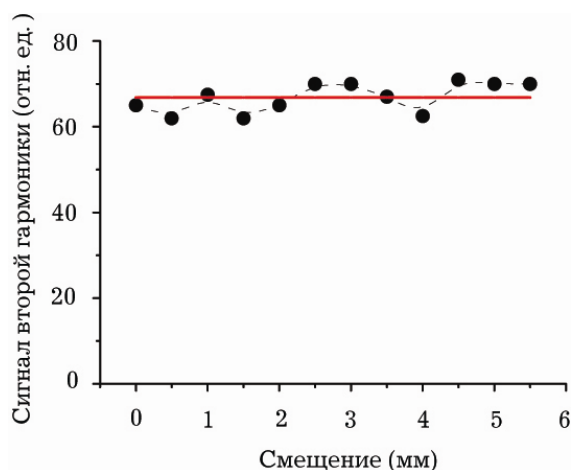


Рис. 5. Зависимость сигналов второй гармоники от латерального смещения образца

сапфира с кремнием [9] и сапфира с германием [10]. В образце монокристаллического сапфира не удалось зарегистрировать вторую гармонику излучения с доступной чувствительностью регистрации. В связи с этим полученные в данной работе результаты мы относим, главным образом, к слою  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$ .

В отличие от нашей работы [11], где исследованы азимутальные зависимости сигналов второй гармоники для квантовых ям InGaAs, а также подложки GaAs, для образца  $Al_{0,1}Ga_{0,9}N$  не удалось зарегистрировать азимутальной зависимости. Известно, что кристаллы  $Al_xGa_{1-x}N$  обычно растут в виде доменов разной ориентации с латеральными размерами не более 100 нм. Так как в наших экспериментах пятно фокусировки излуче-

ния накачки было существенно большего размера, отсутствие азимутальной зависимости сигналов второй гармоники в данном образце не удивительно. Изменение сигналов второй гармоники при латеральном перемещении образца под фокусом излучения накачки со среднеквадратичным отклонением менее 5 % от средней величины свидетельствует о достаточно высоком оптическом качестве исследованной пленки.

Найденные в данной работе зависимости сигналов второй гармоники от угла падения излучения накачки с максимумом для угла в  $50^\circ$  совпадают с результатами [7] и с другими известными нам литературными данными. Существенное различие в интенсивностях второй гармоники для случаев *p-p* и *s-p* находятся в качественном согласии с результатами [7; 12].

Для этого материала оценка ширины запрещенной зоны дает значение 3,66 эВ. В экспериментах с фемтосекундным лазерным излучением ИК диапазона мы не наблюдали деградации пленки  $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ .

Для того же образца для накачки видимого диапазона был зарегистрирован сигнал второй гармоники в ультрафиолетовой области спектра. В качестве накачки использовалось излучение второй гармоники  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$  лазера с модуляцией добротности на длине волны 532 нм. Поляризационная диаграмма второй гармоники была зарегистрирована для существенно ослабленной интенсивности накачки для случая *p-p*. Для излучения накачки с длительностью импульсов 15 нс, энергией импульсов 10 мДж при фокусировке на образец в пятно с диаметром около 1 мм наблюдалось разрушение пленки. В этом случае излучение накачки было достаточно интенсивным, а удвоенная энергия квантов излучения накачки превышала ширину запрещенной зоны материала  $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ . Трудно дать точную оценку пороговой интенсивности (или поверхностной плотности энергии) излучения накачки видимого диапазона, приводящей к разрушению пленки, так как импульсы лазера с модуляцией добротности имели нестабильную форму с нерегулярно возникающими множественными импульсами, а также с неравномерным поперечным распределением интенсивности пучка излучения. Исследование с помощью быстродействующего фотоприемника (ФЭК-22) показало, что временной профиль импульса имеет структуру, со-

стоящую из нескольких пиков длительностью  $\approx 1\div 2$  нс (до 3-х пиков по полувысоте основного импульса). Глубина модуляции от импульса к импульсу флуктуировала. Поэтому плотность мощности излучения накачки в ряде случаев могла превышать порог разрушения образца. Вероятные механизмы разрушения связаны с многофотонным поглощением излучения накачки с последующим перегревом и разрушением тонкой пленки.

Повреждение пленки мощным инфракрасным излучением в данной работе не рассматривалось, хотя интерес к механизму оптического повреждения нитридов галлия и алюминия мощным излучением ИК диапазона существует. Так, в [13] показано, что порог оптического повреждения пленки проводящего нитрида галлия в десять раз выше порога повреждения оксида индия-олова, применяемого в качестве прозрачных электродов.

В заключение отметим, что разработанная нами техника генерации второй гармоники (при умеренной пиковой и средней мощности инфракрасного фемтосекундного излучения) вполне может использоваться для диагностики новых полупроводниковых материалов, даже достаточно широкозонных.

### Список литературы

1. Борисов Г. М., Гольдорт В. Г., Ковалёв А. А., Ледовских Д. В., Рубцова Н. Н. Фемтосекундная кинетика отражения зеркал с насыщающимся поглощением // *Автоматрия*. 2016. Т. 52, № 2. С. 52–56.
2. Kisel' V. E., Rudenkov A. S., Pavlyuk A. A., Kovalyov A. A., Preobrazhenskii V. V., Putyato M. A., Rubtsova N. N., Semyagin B. R., Kuleshov N. V. High power efficient SESAM-mode-locked Yb:KGW bulk laser // *Optics Letters*. 2015. Vol. 40. No. 12. P. 2707–2710.
3. Kovalyov A. A., Preobrazhenskii V. V., Putyato M. A., Rubtsova N. N., Semyagin B. R., Kisel' V. E., Rudenkov A. S., Kuleshov N. V., Pavlyuk A. A. Efficient high power femtosecond Yb<sup>3+</sup>:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser // *Laser Physics Letters*. 2015. No. 12. P. 075801 (4 p).
4. Бохан П. А., Журавлёв К. С., Закревский Дм. Э., Малин Т. В., Осинных И. В., Фатеев Н. В. Усиление излучения в легированных AlGaIn структурах при оптической накачке // *Письма в ЖТФ*. 2017. Т. 43, вып. 1. С. 1–4.

5. Aleksandrov I. A., Zhuravlev K. S. Energy structure and radiative lifetimes of InGaN/AlN quantum dots // Superlattices and Microstructures. 2018. No. 113. P. 373–378.

6. Асаки И. Увлекательные приключения в поисках синего света // УФН. 2016. Т. 187, № 5. С. 504–517.

7. Sanford N. A., Davydov A. V., Tsvetkov D. V., Dmitriev A. V., Keller S., Mishra U. K., DenBaars S. P., Park S. S., Han J. Y., Molnar R. J. Measurement of second order susceptibilities of GaN and AlGaIn // Journal of Applied Physics. 2005. No. 97. P. 053512 (13 p).

8. Fujii Y., Yoshida S., Misawa S., Maekawa S., Sakudo T. Nonlinear optical susceptibilities of AlN film // Applied Physics Letters. 1977. No. 31. P. 814–816.

9. Fomenko V., Gusev E. P., Borguet E. Optical second harmonic generation studies of ultrathin high- $k$  dielectric stacks // J. Appl. Phys. 2005. No. 97. P. 083711 (7 p).

10. Vanbel M., Delabie A., Sioncke S., Adelman Ch., Afanas'ev V., Locquet J. P., Van Elshocht S., Caymax M., Verbiest T. Second-harmonic generation as characterization tool for

Ge/high- $k$  dielectric interfaces // Proc. SPIE. Nonlinear Optics and Applications VI. 2012. Vol. 8434. P. 84341F.

11. Борисов Г. М., Гольдорт В. Г., Ковалёв А. А., Кочубей С. А., Ледовских Д. В., Преображенский В. В., Пулято М. А., Рубцова Н. Н., Семягин Б. П. Особенности генерации второй гармоники излучения фемтосекундного лазера  $\text{Yb}^{3+}:\text{KY}(\text{WO}_4)_2$  в гетероструктурах  $\text{A}_3\text{B}_5$  с асимметричными квантовыми ямами // Вестн. НГУ. Серия: Физика. 2014. Т. 9, вып. 4. С. 5–14.

12. Miragliotta J., Wickenden D. K., Kistnermacher T. J., Bryden W. A. Linear and nonlinear optical properties of GaN thin films // JOSA B. 1993. Vol. 10. No. 8. P. 1447–1456.

13. Elhadj S., Yoo J.-H., Negtes R. A., Menor M. G., Adams J. J., Shen N., Cross D. A., Bass I. L., Bude J. D. Optical damage performance of conductive widegap semiconductors: spatial, temporal, and lifetime modeling // Optical Materials Express. 2017. Vol. 7. No. 1. P. 202–212.

Материал поступил в редколлегию 15.03.2018

**G. M. Borisov<sup>1,2</sup>, V. G. Gol'dort<sup>1</sup>, K. S. Zhuravlev<sup>1</sup>, A. A. Kovalyov<sup>1</sup>,  
S. A. Kochubei<sup>1</sup>, D. V. Ledovskikh<sup>1</sup>, T. V. Malin<sup>1</sup>, N. N. Rubtsova<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>A. V. Rzhanov Institute of Semiconductor Physics SB RAS  
13 Academician Lavrentiev Ave., Novosibirsk, 630090, Russian Federation

<sup>2</sup>Novosibirsk State University  
2 Pirogov Str., Novosibirsk, 630090, Russian Federation

rubtsova@isp.nsc.ru

## SECOND HARMONIC GENERATION IN $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ THIN FILM

Second harmonic of femtosecond laser  $\text{Yb}^{3+}:\text{KY}(\text{WO}_4)_2$  generated in transmission of thin film  $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$  grown on sapphire monocrystal of (0001) orientation does not reveal any saturation up to infrared pumping intensity  $200 \text{ MW/cm}^2$ . The  $p$ -polarized second harmonic radiation was detected both for  $p$ -polarized and  $s$ -polarized pumping radiation; the second harmonic signal is essentially lower in the second case. In both cases, the second harmonic signal is absent at normal incidence, and it reaches maximum value at incidence angle of about 50 degree with further decrease. Lateral non-homogeneity was detected at 5 % level; absence of azimuth dependence corresponding to sixth order symmetry axis is considered.

**Keywords:** second harmonic generation, nano-size  $\text{A}_3\text{B}_5$  semiconductor materials.

*For citation:*

Borisov G. M., Gol'dort V. G., Zhuravlev K. S., Kovalyov A. A., Kochubei S. A., Ledovskikh D. V., Malin T. V., Rubtsova N. N. Second Harmonic Generation in  $\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$  Thin Film. *Siberian Journal of Physics*, 2018, vol. 13, no. 2, p. 64–69. (In Russ.)

DOI 10.25205/2541-9447-2018-13-2-64-69