

07;12

Нелинейность оптических свойств тонких пленок при низкой интенсивности света

© А.В. Хомченко

Институт прикладной оптики АН Белоруссии,
212793 Могилев, Белоруссия
E-mail: ipo@physics.belpak.mogilev.by

(Поступило в Редакцию 3 марта 2000 г.)

Обнаружена и исследована нелинейность оптических параметров полупроводниковых и диэлектрических пленок на длине волны излучения 0.63 μm при интенсивности света менее 100 mW/cm^2 .

При создании оптических устройств обработки информации используются материалы, показатель преломления и коэффициент поглощения которых зависят от интенсивности света. Наибольшие значения нелинейного показателя преломления n_2 характерны для полупроводниковых материалов. Поэтому особое внимание исследователей сосредоточено на создании и поиске полупроводниковых материалов или структур с гигантской оптической нелинейностью. Оптическая нелинейность в полупроводниковых материалах при различных механизмах, ответственных за ее существование, наблюдается обычно при плотности световой мощности, по крайней мере $\sim 10 \dots 100 \text{ W/cm}^2$.

В настоящей работе сообщается о наблюдении изменений показателя преломления и коэффициента поглощения полупроводниковых пленок при интенсивности падающего света порядка нескольких милливольт. Измеренные при этом значения n_2 и нелинейного коэффициента поглощения k_2 достигали значений $\sim 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{W}$.

Исследованы свойства аморфных пленок сульфида мышьяка, селенида галлия, двуокиси олова, поликристаллических пленок селенида цинка, пленок цветных и кварцевых стекол. Аморфные и поликристаллические полупроводниковые пленки были получены методами вакуумного осаждения. В качестве материала подложки использовались плавленый кварц или оптическое стекло К8. Температура подложки в процессе осаждения не превышала 250°C . Спектрально-оптические параметры материала пленки (показатель преломления n и коэффициент поглощения k) были исследованы волноводным методом на длине волны излучения He-Ne лазера [1], а также в спектральном диапазоне несобственного поглощения полупроводникового материала. В эксперименте определялись действительная h' и мнимая h'' части постоянной распространения h волноводной моды, которые находились по результатам обработки зарегистрированного фурье-спектра светового пучка, отраженного от основания призмного элемента связи. Нелинейные показатель преломления n_2 и коэффициент поглощения k_2 были определены в условиях самовоздействия на длине волны излучения $0.633 \mu\text{m}$ [2]. Диапазон изменения мощности падающего излучения

составлял $0.5 \mu\text{W} \dots 1.0 \text{ mW}$. Радиус светового пучка на основании призмы связи не превышал $150 \mu\text{m}$.

При исследовании оптических свойств тонких пленок из стеклообразного сульфида мышьяка были измерены нелинейные оптические постоянные n_2 и k_2 в диапазоне интенсивности светового пучка $10 \dots 100 \text{ W/cm}^2$. Измерения выполнены на длине волны излучения $0.63 \mu\text{m}$. Данные измерений $n_2 = 1.5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{W}$ удовлетворительно согласуются с результатами других работ [3]. Однако при проведении измерений в диапазоне интенсивности излучения менее 0.1 W/cm^2 обнаружена сильная нелинейная зависимость спектрально-оптических параметров тонких пленок от интенсивности падающего светового пучка [2]. Значение нелинейной постоянной при этом составляло $n_2 = 2.65 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{W}$. В качестве материала подложки было использовано кварцевое стекло. Изменения оптических параметров пленки, обусловленные повышением температуры пленки при поглощении света, были на пять порядков меньше регистрируемых значений [4], что свидетельствовало о нетепловом характере наблюдаемой оптической нелинейности.

Такая особенность зависимости оптических свойств пленок сульфида мышьяка указывает на существование нескольких механизмов оптической нелинейности с различными энергиями насыщения. Аналогичные измерения, выполненные для поликристаллических пленок селенида цинка, позволили также обнаружить значительные нелинейные изменения спектрально-оптических свойств тонких пленок [5]. Зависимости приращения $\Delta h'$ от мощности падающего светового пучка приведены на рис. 1, где $\Delta h' = h' - h'_0$, а h'_0 — значение h' при минимальной интенсивности света. Существенный разброс получаемых значений h' , который намного превышал ошибку измерений ($\delta h' = 5 \cdot 10^{-6}$), потребовал проведения более тщательных исследований зависимости параметров пленок селенида цинка от интенсивности излучения. Полученные зависимости носили немонотонный характер и имели зубчатую структуру. При этом оказалось, что характер немонотонной зависимости и значение n_2 материала осаждаемой пленки определялись кристаллическим качеством осаждаемой пленки. На рис. 1 приведены зависимости $\Delta h'(I)$ для пленок, осажденных при различной температуре подложки 140,

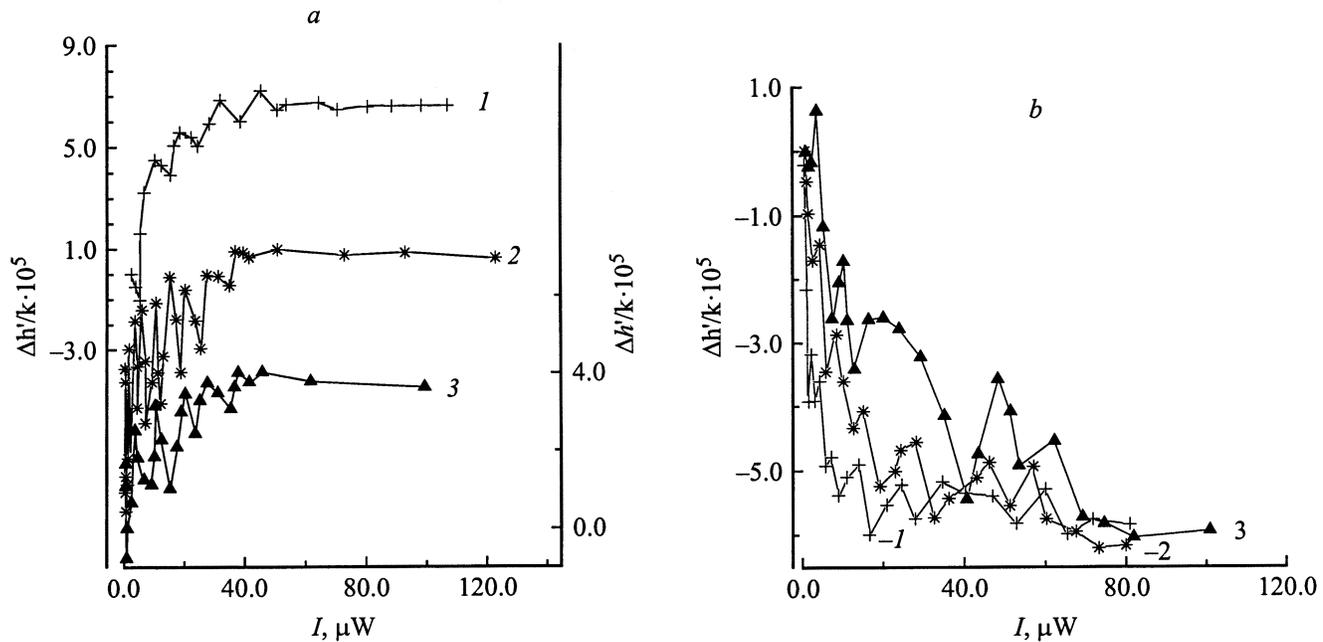


Рис. 1. Зависимости $\Delta h'(I)$ для пленок ZnSe (а), осажденных при температуре подложки 140 (1), 180 (2) и 250°С (3); для пленок из цветных стекол (b) до (1) и после термического отжига (3), осажденных при температуре подложки 140 (1) и 190°С (2).

180, 250°С (кривые 1–3 соответственно). При этом по оценкам, полученным из спектрофотометрических измерений, данные поликристаллические пленки имели средние размеры отдельных кристаллитов 19, 7 и 12 nm соответственно.

Аналогичные изменения спектрально-оптических свойств при увеличении интенсивности падающего света наблюдалась и для пленок GaSe, ZnO, SnO₂, LiNb₂O₃ и др.

Тонкопленочные структуры, в которых проявляются квантово-размерные эффекты, нередко получают из стекол, легированных полупроводниковыми соединениями. Поэтому были исследованы нелинейные оптические свойства тонкопленочных структур, полученных распылением цветных стекол (OC12) и керамических мишеней, в состав которых входили S:O₂, ZnSe или CdSe. И в этом случае наблюдалась аналогичная немонотонная зависимость $h'(I)$. Особенностью свойств таких пленок являлось лишь то, что в отличие от поликристаллических пленок селенида цинка, для которых наблюдалось "просветление", в пленках на основе цветных стекол регистрировался рост коэффициента поглощения с увеличением интенсивности света. Оптическая нелинейность в таких материалах определяется размерами полупроводниковых кристаллитов, внедренных в матрицу стекла [6]. Размеры полупроводниковых кристаллитов можно изменять, проводя термический отжиг либо меняя условия осаждения пленки. На рис. 1, b приведены зависимости $h'(I)$ для пленок из стекла OC12 до и после термического отжига при температуре 400°С в течение 6 h. Увеличение температуры подложки в процессе

осаждения пленки также меняли характер немонотонной зависимости $h(I)$ (рис. 1, b, кривые 1 и 3).

Следует отметить, что оптическая нелинейность при низких интенсивностях падающего излучения наблюдалась и в пленках, полученных распылением плавленого кварца. Значения n_2 при этом были значительно ниже, чем у полупроводниковых пленок или пленок из окрашенных стекол, и составляли $\sim 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{W}$. Нелинейная зависимость спектрально-оптических параметров от интенсивности падающего излучения уверенно регистрировалась для пленок с нарушенной стехиометрией. При оптических потерях в волноводной пленке $\sim 2 \text{ dB/cm}$ эффект практически не наблюдался (рис. 2).

Результаты проведенных экспериментов по исследованию нелинейных оптических свойств тонкопленочных структур, в которых проявляются квантово-размерные эффекты, позволяют предположить, что оптическая нелинейность в таких структурах обусловлена электронными процессами, протекающими на границах раздела полупроводник–диэлектрик. В связи с этим была предпринята попытка воссоздать подобную нелинейную среду путем нанесения многослойной структуры. Последняя была изготовлена послойным осаждением проводящего материала SnO₂ и диэлектрика SiO₂. Такая структура с толщиной слоев около десяти нанометров моделировала нелинейную среду с низкой размерностью. Зависимость $h'(I)$ для структуры, содержащей три слоя оксида олова, разделенных слоями диоксида кремния, представлена на рис. 3. При этом толщины проводящих пленок составляли 12, 24 и 36 nm. На зависимости $h'(I)$ также отчетливо прослеживается 3 пика различной ширины. Оптическая

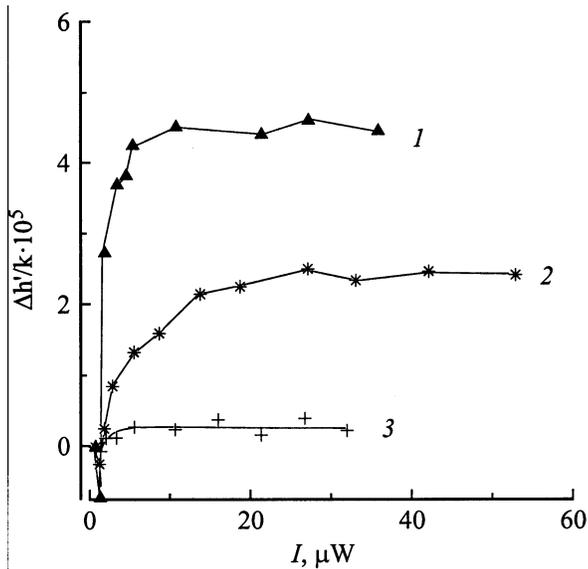


Рис. 2. Изменение h' при увеличении мощности падающего света для пленок SiO_x при значениях коэффициента поглощения материала пленки равных $3 \cdot 10^{-5}$ (1), $9 \cdot 10^{-6}$ (2) и $3 \cdot 10^{-6}$ (3).

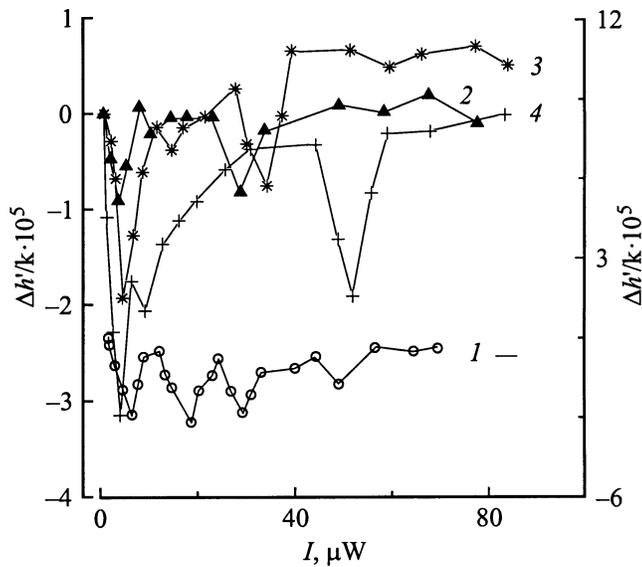


Рис. 3. Зависимости $\Delta h'(I)$ для многослойной структуры на основе SnO_2 , содержащей три проводящих слоя (1), для структур SnO_2 -подложка (2), SnO_2 - SiO_x -подложка при коэффициенте поглощения для SiO_x , равном $1.5 \cdot 10^{-5}$ (3) и $5 \cdot 10^{-6}$ (4).

нелинейность в таких структурах также зависит от оптического качества диэлектрических слоев. На рис. 3 приведены зависимости $h'(I)$ для трех пленок SnO_2 , изготовленных в течение одного процесса осаждения на различные подложки. В качестве подложки при этом использовано чистое кварцевое стекло, структуры — кварцевое стекло-пленка SiO_x . Коэффициент поглоще-

ния для пленок SiO_x был равен $1.5 \cdot 10^{-5}$ (кривая 3) и $5 \cdot 10^{-6}$ (кривая 4), толщина пленки составляла $1 \mu\text{m}$. Большие значения n_2 и k_2 свидетельствуют о возможности управления света светом в таких структурах при интенсивности $\sim 10 \text{ mW/cm}^2$.

Как следует из представленных результатов, нелинейный характер зависимости наиболее ярко проявляется для структур, в которых в качестве подложки была использована дефектная пленка SiO_x . Это позволяет предположить, что состояние поверхности и определяет нелинейную зависимость спектрально-оптических параметров тонких пленок в данном случае. В поликристаллических пленках и квантово-размерных структурах на основе стекол, легированных полупроводниковыми соединениями, дополнительный вклад в оптическую нелинейность вносит поверхность отдельных полупроводниковых кристаллитов.

Анализ приведенных данных свидетельствует о схожести процессов, протекающих в многослойных структурах, поликристаллических пленках и пленках из стекол, легированных полупроводниками, и объясняющих немонотонный характер зависимости их оптических свойств от интенсивности излучения. Вероятно, процессы генерации и рекомбинации носителей заряда на энергетических уровнях поверхностных состояний играют здесь столь существенную роль. Естественно, не все поверхностные состояния участвуют в процессах рекомбинации. Для части состояний доступны лишь переходы зона-уровень, и тогда уровень поверхностного состояния является ловушкой. Такие состояния более характерны для границ раздела полупроводник-диэлектрик.

В ходе экспериментов не обнаружено зависимости показателя преломления и коэффициента поглощения материала пленок от экспозиции. Дополни-

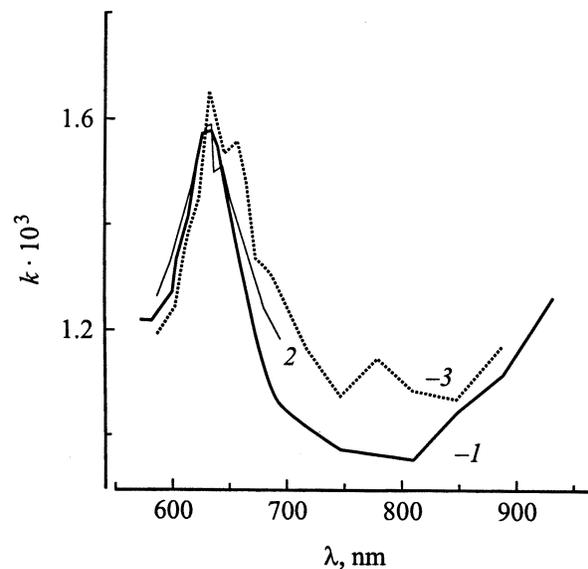


Рис. 4. Спектр поглощения пленки SnO_2 до (1) и в процессе (2) дополнительного облучения светом с $\lambda = 0.63 \mu\text{m}$ в парах воды (3).

ная же засветка вторым пучком лазерного излучения на $\lambda = 0.63 \text{ nm}$ изменяла и спектральный коэффициент поглощения материала пленки. На рис. 4 приведены спектры поглощения пленки SnO_2 до и в процессе дополнительной подсветки пучком света с $\lambda = 0.63 \text{ nm}$. Спектры измерены методом волноводной фурье-спектроскопии. Там же (кривая 3) представлен спектр поглощения этой же пленки в парах воды. Анализ данных результатов указывает на существование и незаполненных энергетических уровней поверхностных состояний в области прозрачности материала пленки. Существование поверхностных состояний, вероятно, и определяет значительную нелинейность спектрально-оптических параметров тонких пленок, в том числе диэлектрических, в области низкой интенсивности света.

Зарегистрирована значительная нелинейность оптических свойств тонких пленок при интенсивности падающего света менее 100 mW/cm^2 на длине волны 0.63 nm . При этом величина нелинейного показателя преломления достигали значений $n_2 \sim 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{W}$. Вероятно, оптическая нелинейность в тонких пленках обусловлена существованием уровней поверхностных состояний внутри запрещенной зоны. Для структур с низкой размерностью ее характер определяется качеством границы раздела полупроводник–диэлектрическая матрица, а для поликристаллических пленок — кристаллическим качеством материала пленки и размерами отдельных кристаллитов.

Автор выражает благодарность А.И. Войтенкову за плодотворное обсуждение результатов.

Список литературы

- [1] Редько В.П., Романенко А.А., Сотский А.Б., Хомченко А.В. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. Вып. 3. С. 14–18.
- [2] Сотский А.Б., Хомченко А.В., Сотская Л.И. // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20. Вып. 16. С. 49–54.
- [3] Виноградов А.Ю., Сморгонская Э.А., Шифрин Е.И. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. Вып. 7. С. 642–645.
- [4] Сотский А.Б., Хомченко А.В., Сотская Л.И. // Опт. и спектр. 1995. Т. 78. № 3. С. 502–511.
- [5] Хомченко А.В. // ЖТФ. 1997. Т. 67. Вып. 9. С. 60–63.
- [6] Геворкян С.Ш., Никоноров Н.В. // Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. Вып. 13. С. 32–36.