

УДК 621.315.592

## Моделирование генерации второй гармоники в наночастицах Si

© А.С. Фунтикова<sup>1</sup>, А.М. Можаров<sup>2</sup>, В.А. Масталиева<sup>2</sup>, В.В. Неплох<sup>2</sup>, И.С. Мухин<sup>1,2</sup>, В.В. Федоров<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский Академический университет им. Ж.И. Алфёрова,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Санкт-Петербургский политехнический университет им. Петра Великого,  
195251 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: n.fn@mail.ru

Поступила в Редакцию 2 мая 2024 г.

В окончательной редакции 13 июля 2024 г.

Принята к публикации 30 октября 2024 г.

Численными методами было изучено влияние собственных оптических резонансов сферических наночастиц Si на процесс генерации второй гармоники. Обнаружено увеличение эффективности процесса генерации второй гармоники за счет резонансного усиления падающего электрического поля или резонансной фазировки ближнего поля второй гармоники за счет резонансов Ми.

**Ключевые слова:** вторая гармоника, кремний, сферические наночастицы, резонансы Ми.

DOI: 10.61011/FTP.2024.09.59301.6236A

### 1. Введение

Нелинейные оптические явления второго порядка находят широкое применение в создании когерентных источников света, преобразователей частот, оптических усилителей и других устройств. Наиболее распространенными полупроводниковыми материалами для этих приложений являются соединения A<sup>III</sup>B<sup>V</sup>. Благодаря высоким значениям нелинейной оптической восприимчивости на базе этих материалов возможно создание устройств с высокой эффективностью удвоения частоты падающего излучения [1,2]. В свою очередь серьезными недостатками структур на основе соединений A<sup>III</sup>B<sup>V</sup> являются высокая стоимость их синтеза, а также ограничение по их интеграции в традиционные оптоэлектронные устройства и элементы интегральной фотоники, основой для которых является кремний. Кремниевая платформа позволяет создавать разнообразные двумерные и трехмерные структуры. Главной проблемой активного развития нелинейной фотоники на кремнии является низкая эффективность конверсии падающей оптической мощности в рамках нелинейных процессов. Известно, что в объемном материале с кристаллической структурой типа алмаза генерация второй гармоники (ГВГ) невозможна, что связано с наличием центра инверсии кристаллической решетки. Несмотря на это, существует несколько механизмов ГВГ в центросимметричных средах как на поверхности, так и в самой структуре, определяющихся возможностью понижения симметрии решетки или самого процесса. Если внутри кристалла понижение симметрии достигается неоднородностью электрического поля, то поверхность кристалла сама по себе обладает пониженной симметрией решетки за счет нарушения трансляционной симметрии [3,4]. Данный механизм реализуется на малых расстояниях от поверхности, порядка нескольких атомных слоев. Другим механизмом понижения симметрии является деформация

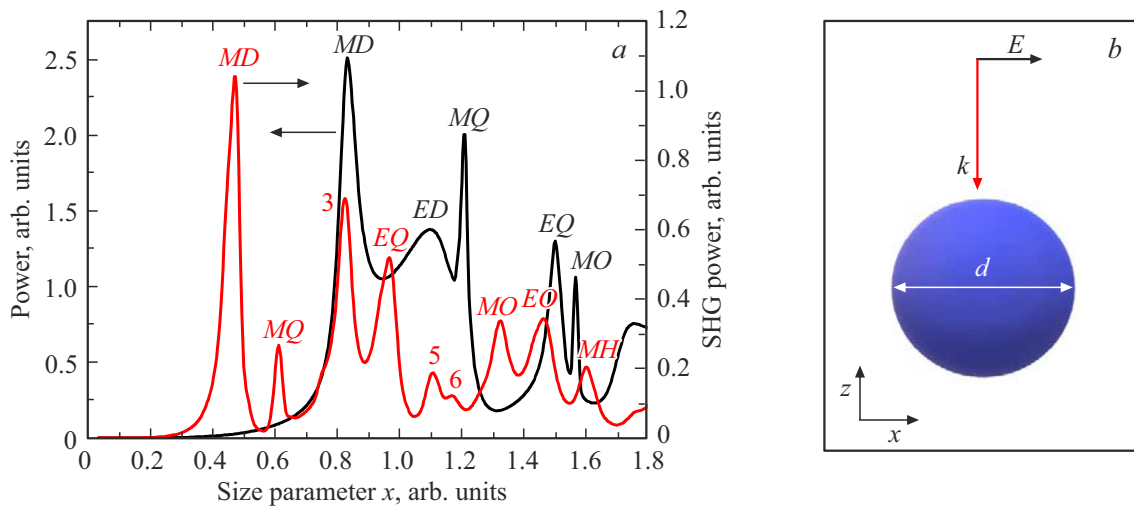
электронной плотности за счет поляризации материала в постоянном или медленно меняющемся электрическом поле пространственного заряда (EFISH — electric-field-induced second harmonic generation) [5]. Преимуществом этого механизма является возможность управления распределением полей пространственного заряда, что открывает просторы для повышения эффективности процесса ГВГ в кремниевых и кремний-металлических наноструктурах [6]. Поскольку основными источниками электрических полей в кристалле является поверхностный заряд, на процесс EFISH оказывает сильное влияние распределение падающего поля, которое, в частности, зависит от наличия оптических резонансов в системе, что требует проведения исследований по влиянию таких резонансов на эффективность процесса EFISH, чему и посвящена данная работа.

### 2. Методика расчета

В общем случае ГВГ определяется появлением квадратичного слагаемого в разложении поляризации среды  $P$  по степеням напряженности падающего электрического поля [7]. В случае ГВГ по полевому механизму EFISH его можно представить в виде [5]

$$P = \hat{\chi}^{(3)} \mathbf{E}^{DC} \mathbf{E}^\omega \mathbf{E}^\omega = \hat{\chi}_{EFISH}^{(2)} \mathbf{E}^\omega \mathbf{E}^\omega, \quad (1)$$

где  $\mathbf{E}^{DC}$ ,  $\mathbf{E}^\omega$  — векторы напряженности электрического поля пространственного заряда и падающего света соответственно,  $\hat{\chi}^{(3)}$  — тензор нелинейной оптической восприимчивости 3-го порядка,  $\hat{\chi}_{EFISH}^{(2)}$  — тензор нелинейной оптической восприимчивости 2-го порядка, определяющий генерацию второй гармоники по механизму EFISH. Отдельно стоит отметить, что помимо связанных некомпенсированных поверхностных зарядов поле  $E_{DC}$  может быть сформировано свободными оптически-индуцированными зарядами, которые также оказывают



*a* — график зависимости эффективности рассеяния света и генерации второй гармоники от относительного диаметра частицы  $x = \pi d/\lambda$ . Представлена сквозная нумерация пиков на зависимости, а также указаны некоторые виды резонансов:  $E/MD$  — электрический/магнитный диполь,  $Q$  — квадруполь,  $O$  — октуполь,  $H$  — гексадекаполь; *b* — геометрическая конфигурация системы,  $k$  — волновой вектор падающего света,  $d$  — диаметр частицы,  $E$  — напряженность электрического поля падающего света.

значительное влияние на приповерхностное поле кристалла [6].

Численное моделирование проводилось с помощью пакета COMSOL Multiphysics. Были рассмотрены сферические Si-частицы с диаметрами  $d = 10\text{--}550$  нм, длина волны падающего света  $\lambda = 920$  нм. Оценки поверхностного электрического поля [6] показывают, что в системе Si-частиц можно достичь величину напряженности  $E^{DC} \sim 10^8$  В/м при ширине ОПЗ  $\sim 4$  нм, из чего можно оценить величину эффективной нелинейной оптической восприимчивости  $\chi_{EFISH}^{(2)} \sim 17$  пм/В, что является хорошим показателем для их применения [8]. Постоянное электрическое поле задавалось линейно растущей функцией вблизи поверхности частиц с максимальным значением на границе Si и спадающим до нуля на глубине 4 нм. В качестве источника излучения была использована плоская линейно поляризованная электромагнитная волна. Спектральные зависимости показателей преломления и экстинкции для Si были взяты из работы [9], значения нелинейной оптической восприимчивости 3-го порядка  $\chi_{1111}^{(3)}$  — из работы [10].

### 3. Обсуждение результатов

Полученные результаты представлены на рисунке в виде зависимостей эффективности упругого рассеяния падающего излучения и генерации сигнала ГВГ от приведенных размеров сферических Si-частиц ( $x = \pi d/\lambda$ ). Данная величина рассчитывалась по следующей формуле:

$$P = \frac{4 \iint S_n dS}{I_0 \pi d^2}, \quad (2)$$

где  $S_n$  — нормальная к поверхности компонента вектора Пойнтинга,  $S$  — площадь внешней поверхности воздуш-

ного слоя, окружающего частицу,  $I_0$  — интенсивность падающего света,  $d$  — диаметр частицы.

Для малых  $x$  на обеих зависимостях наблюдается рэлеевское рассеяние, которое при увеличении размеров частицы сменяется пиками, характерными для резонансов при рассеянии Ми, описывающих различные мультипольные состояния электромагнитного поля. Для рассеянного диэлектрической частицей света первый максимум на графике в соответствии с теорией Ми связан с магнитным диполем  $MD$ , второй пик — с электрическим диполем  $ED$ , третий — с магнитным квадруполем  $MQ$  и т.д. [11,12]. В спектре ГВГ также наблюдаются подобные пики при вдвое меньших относительных размерах: это собственные резонансы системы (частицы того же абсолютного размера  $d$ ) при длине волны  $\lambda/2$ . Появление пиков при  $\pi d/\lambda = 0.81, 1.11$  и  $1.17$  на кривой эффективности ГВГ не связано с наличием резонансов на длине волны второй гармоники, а объясняется влиянием  $MD, ED$  и  $MQ$  резонансов падающего поля соответственно. Таким образом, усиление сигнала ГВГ может происходить как благодаря резонансной локализации света, связанной с возникновением резонансов Ми в наночастице на длине волны накачки, так и благодаря резонансам на длине волны второй гармоники.

Заметно, что для пика электрического квадруполя  $EQ$  на графике рассеянного поля (см. рисунок) нет соответствующего максимума на графике второй гармоники. Это может быть связано со слиянием пика, вызванного резонансом падающего поля, и собственного резонанса  $EO$  на удвоенной частоте и слишком малом усилении ГВГ за счет данного резонанса. Также для сигнала ГВГ нет максимума, соответствующего электрическому диполю  $ED$  в теории Ми. Эта особенность связана с видом тензора  $\chi_{EFISH}^{(2)}$ , включающего в себя симметрию

кристаллической решетки и структуры, а также с направлением поляризации падающей волны [13].

#### 4. Заключение

Полученные результаты позволяют сделать вывод о возможности усиления интенсивности сигнала второй гармоники с помощью двух механизмов: за счет резонансной локализации света в наночастице на длине волны накачки и резонансов Ми на длине волны второй гармоники. Таким образом, можно говорить о повышении эффективности ГВГ в наночастицах за счет использования сфер, диаметры которых соответствуют появлению электрических или магнитных резонансов Ми для длины волны падающего света или второй гармоники. Данные результаты могут быть использованы для создания эффективных преобразователей частот, источников когерентного света и других нелинейных оптических приборов.

#### Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования (грант государственного задания FSEG-2024-0017). В.В. Неплох благодарит Российский научный фонд за финансовую поддержку исследований нелинейных оптических процессов в Si-частицах (соглашение 23-79-00018).

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] A.P. Anthur, H. Zhang, Y. Akimov, J. Rong Ong, D. Kalashnikov, A.I. Kuznetsov, L. Krivitsky. *Opt. Express*, **29** (7), 1 (2021). DOI: 10.1364/oe.409758
- [2] K. Rivoire, S. Buckley, F. Hatami, J. Vučković. *Appl. Phys. Lett.*, **98** (26), 263113-1 (2011). DOI: 10.1063/1.3607288
- [3] О.А. Акципетров, В.О. Бессонов, Т.В. Долгова, А.И. Майдыковский. *Письма ЖЭТФ*, **90** (11), 813 (2009). DOI: 10.1134/S0021364009230064
- [4] B. Huo, X. Wang, S. Chang, M. Zeng. *J. Opt. Soc. Am. B*, **29** (7), 1631 (2012). DOI: 10.1364/JOSAB.29.001631
- [5] A. Widhalm, C. Golla, N. Weber, P. Mackwitz, A. Zrenner, C. Meier. *Opt. Express*, **30** (4), 4867 (2022). DOI: 10.1364/oe.443489
- [6] Y. Sun, A. Larin, A. Mozharov, E. Ageev, O. Pashina, F. Komissarenko, I. Mukhin, M. Petrov, S. Makarov, P. Belov, D. Zuev. *Light: Sci. Appl.*, **12** (1), 237-1 (2023). DOI: 10.1038/s41377-023-01262-8
- [7] В.Н. Капшай, А.И. Толкачев, А.А. Шамына. *Опт. и спектр.*, **129** (12), 1537 (2021). DOI: 10.21883/OS.2021.12.51742.2385-21
- [8] C.K.N. Patel. *Phys. Rev. Lett.*, **16**, 613 (1966). DOI: 10.1103/PhysRevLett.16.613
- [9] M.A. Green. *Solar Energy Mater. Solar Cells*, **92** (11), 1305 (2008). DOI: 10.1016/j.solmat.2008.06.009
- [10] N.K. Hon, R. Soref, B. Jalali. *J. Appl. Phys.*, **110** (1), 011301-1 (2011). DOI: 10.1063/1.3592270
- [11] A.B. Evlyukhin, S.M. Novikov, U. Zywietz, R.L. Eriksen, C. Reinhardt, S.I. Bozhevolnyi, B.N. Chichkov. *Nano Lett.*, **12** (7), 3749 (2012). DOI: 10.1021/nl301594s
- [12] D. Timbrell, J.W. You, Y.S. Kivshar, N.C. Panoiu. *Sci. Rep.*, **8** (1), 3586 (2018). DOI: 10.1038/s41598-018-21850-8
- [13] K. Frizyuk, I. Volkovskaya, D. Smirnova, A. Poddubny, M. Petrov. *Phys. Rev. B*, **99**, 075425 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevB.99.075425

Редактор Г.А. Оганесян

#### Numerical modeling of second harmonic generation in Si nanoparticles

A.S. Funtikova<sup>1</sup>, A.M. Mozharov<sup>2</sup>, V.A. Mastalieva<sup>2</sup>, V.V. Neplokh<sup>2</sup>, I.S. Mukhin<sup>1,2</sup>, V.V. Fedorov<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Alferov University,  
194021 St. Petersburg, Russia  
<sup>2</sup> St. Petersburg Polytechnic University,  
195251 St. Petersburg, Russia

**Abstract** The influence of intrinsic optical resonances of spherical Si nanoparticles on the second harmonic generation process was studied by numerical methods. An increase in the efficiency of the second harmonic generation process was found due to the resonant amplification of the incident electric field or the resonant phasing of the near field of the second harmonic due to the Mie resonances.