

УДК 535.3

ЧИСЛЕННОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В ОПТИЧЕСКИХ НАНОРЕЗОНАТОРАХ GaP

© 2025 г. А. С. Фунтикова^{а,*}, А. М. Можаров^б, В. В. Федоров^а, И. С. Мухин^а

^аСанкт-Петербургский политехнический университет им. Петра Великого, Санкт-Петербург, 195251 Россия

^бСанкт-Петербургский академический университет им. Ж.И. Алферова, Санкт-Петербург, 194021 Россия

*e-mail: n.fn@mail.ru

Поступила в редакцию 20.01.2025 г.

После доработки 11.02.2025 г.

Принята к публикации 14.02.2025 г.

Одним из актуальных на данный момент направлений является создание оптических систем суммирования и удвоения частоты излучения, активную часть которых выполняют с использованием нелинейных кристаллов. В качестве перспективного материала для таких элементов можно отметить фосфид галлия в форме нитевидных нанокристаллов, обладающий высоким значением квадратичной диэлектрической проницаемости, а также прозрачности в видимой и инфракрасной областях спектра. Благодаря форме такие кристаллы могут быть эффективно внедрены в современные системы интегральной фотоники. В настоящей работе было проведено численное исследование процесса генерации второй гармоники в нитевидных нанокристаллах GaP в зависимости от их геометрических параметров и ориентации падающего излучения. Были найдены условия, обеспечивающие наибольшую эффективность генерации вдоль оси нанокристалла. Показана возможность распространения второй гармоники вдоль оси нитевидных нанокристаллов в воздушной среде при конкретных параметрах системы — поперечном размере нитевидного кристалла и угле падения излучения. Увеличение поперечных размеров образцов приводит к уменьшению разницы между реальным и предсказанным направлениями распространения излучения, так как при увеличении нитевидного нанокристалла его характеристики, связанные с размером, стремятся к объемным. Полученные результаты могут быть использованы в создании различных устройств нанофотоники.

Ключевые слова: генерация второй гармоники, нитевидные нанокристаллы, фосфид галлия, численный расчет, моделирование, поляризация, нанофотоника, оптические интегральные схемы, нелинейно-оптические эффекты.

DOI: 10.7868/S3034573125090041

ВВЕДЕНИЕ

Влияние физических ограничений быстродействия классических интегральных схем с развитием информационных технологий становится все более и более значительным, что приводит к необходимости поиска новых физических решений. Одной из перспективных технологий является работа с информацией в виде световых сигналов — интегральные оптические схемы [1, 2]. Они позволяют не только преодолеть предел быстродействия традиционных систем, обусловленный ограниченной подвижностью носителей зарядов в полупроводниковых материалах, но и

предоставляют возможность для более эффективной защиты информации. Для подобных устройств необходимо создавать как пассивные элементы [3–5], так и активные, такие как лазеры [6, 7], оптические выпрямители, преобразователи частот [8, 9] и другие элементы нанофотоники.

Актуальным на данный момент является создание систем суммирования и удвоения частот излучения, основанных на нелинейно-оптических эффектах второго порядка, включая генерацию второй гармоники (ГВГ) [10]. Существует интерес к разработке менее прихотливых по сравнению с существующими вторичных источников ультра-

коротких импульсов в интегральных оптических схемах, работающих на основе ГВГ. Самый используемый для создания интегральных схем материал — кремний — имеет значительный недостаток: особенности симметрии кристаллической решетки обуславливают отсутствие нелинейных оптических эффектов второго порядка, поэтому ГВГ происходит по побочным механизмам, что резко уменьшает эффективность преобразования падающей волны [11, 12].

Использование кристаллов с симметрией T_d (ахиральная тетраэдральная симметрия), которой обладает большинство материалов типа $A^{III}B^V$, например GaP, решает данную проблему: благодаря высоким значениям нелинейной оптической восприимчивости второго порядка на их основе возможно создание устройств с высокой эффективностью преобразования волны падающего излучения [13–15]. Элементы в форме нитевидных нанокристаллов могут быть легко встроены в классические интегральные схемы. Помимо прочего, нитевидные нанокристаллы имеют высокое кристаллическое качество [16], а также обеспечивают возможность их роста на кремниевых подложках [17]. Таким образом, GaP в виде нитевидных нанокристаллов являются перспективной системой для использования в качестве активных элементов нанофотоники для нелинейных оптических эффектов второго порядка. Однако для разработки вторичных источников ультракоротких импульсов на основе таких объектов важно знать, в каком направлении будет распространяться сгенерированное излучение. Отметим, что самым оптимальным случаем является генерация вдоль продольной оси нитевидного нанокристалла. Этого можно добиться при определенных направлениях облучения.

В настоящей работе было проведено численное моделирование эффекта генерации второй гармоники в единичных нитевидных нанокристаллах GaP различных поперечных размеров в воздухе. Был проведен анализ результатов для нахождения оптимального направления падающего поля для дальнейшей генерации второй гармоники в направлении роста нитевидных нанокристаллов.

ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Генерация второй гармоники определяется наличием квадратичного члена разложения поляризации среды \mathbf{P} по степеням напряженности падающего электрического поля \mathbf{E} [18]:

$$\mathbf{P} = \hat{\chi}^{(1)}\mathbf{E} + \hat{\chi}^{(2)}\mathbf{E}\mathbf{E} + \hat{\chi}^{(3)}\mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots, \quad (1)$$

где $\chi^{(1)}, \chi^{(2)}, \chi^{(3)}$ — тензоры нелинейной оптической восприимчивости первого, второго и третьего порядка соответственно.

Таким образом, по отклику материала на падающее излучение возможно восстановить распределение поля второй гармоники в образце. Стоит отметить, что вектора поляризации и вектора напряженности электрического поля второй гармоники можно считать сонаправленными. Это связано с малостью интенсивности ГВГ, что позволяет для расчета распределения напряженности электрического поля второй гармоники использовать только линейную компоненту разложения (1).

Тензор $\chi^{(2)}$, определяющий возможность генерации второй гармоники, является тензором третьего ранга. Для нитевидного нанокристалла GaP, выращенного в направлении [111] (в выбранной системе координат это направление совпадает с осью z), в обозначениях Войта выглядит следующим образом [19]:

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = 2\epsilon_0\chi^{(2)} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{-1}{\sqrt{3}} & \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} \\ \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} & -\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} & 0 & \frac{-1}{\sqrt{3}} & 0 & 0 \\ \frac{-1}{\sqrt{3}} & \frac{-1}{\sqrt{3}} & \frac{2}{\sqrt{3}} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_x E_z \\ 2E_x E_y \end{pmatrix}. \quad (2)$$

Известно, что без учета лучепреломления напряженность электрического поля и волновой вектор света перпендикулярны друг другу, что приводит к выводу о перпендикулярности вектора поляризации и волнового вектора второй гармоники. Таким образом, из вида (2) можно сделать вывод, что равенство нулю компоненты P_z , а значит равенство компонент напряженности падающего поля, приведет к оптимальному распространению второй гармоники в направлении [111].

МЕТОДИКА

Моделирование процессов ГВГ в нитевидных нанокристаллах GaP проводили численно,

методом конечных элементов. Модель состоит из одиночного нитевидного нанокристалла, окруженного слоем воздуха с коэффициентом преломления $n = 1$. Численная задача была решена с помощью метода MUMPS (Multifrontal Massively Parallel Sparse Direct Solver). Для исключения влияния паразитных интерференционных эффектов на внешних границах системы использовали условие “perfect matched layer” (PML), обеспечивающее поглощение волн на границах со слоем воздуха.

Коэффициент преломления и коэффициент экстинкции для GaP были взяты из [20], значение нелинейной оптической восприимчивости второго порядка $\chi^{(2)}$ — из [19].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Анализ поведения второй гармоники в зависимости от направления падающего поля возможно провести с помощью изучения поляризации, получаемой по формуле (2). Подобная визуализация представлена на рис. 1а, 1б. На данных диаграммах представлен вид на плоскость xu : здесь θ (азимутальный угол) выражен угловой частью, а φ (угол места) — радиальной. Как было отмечено ранее, для ГВГ вдоль продольной оси нитевидных нанокристаллов (z) необходимо, чтобы вектор поляризации лежал в плоскости xu . Это соответствует утверждению о равенстве нулю компоненты P_z , что достигается при $\varphi = 55^\circ$ (рис. 1а, 1в).

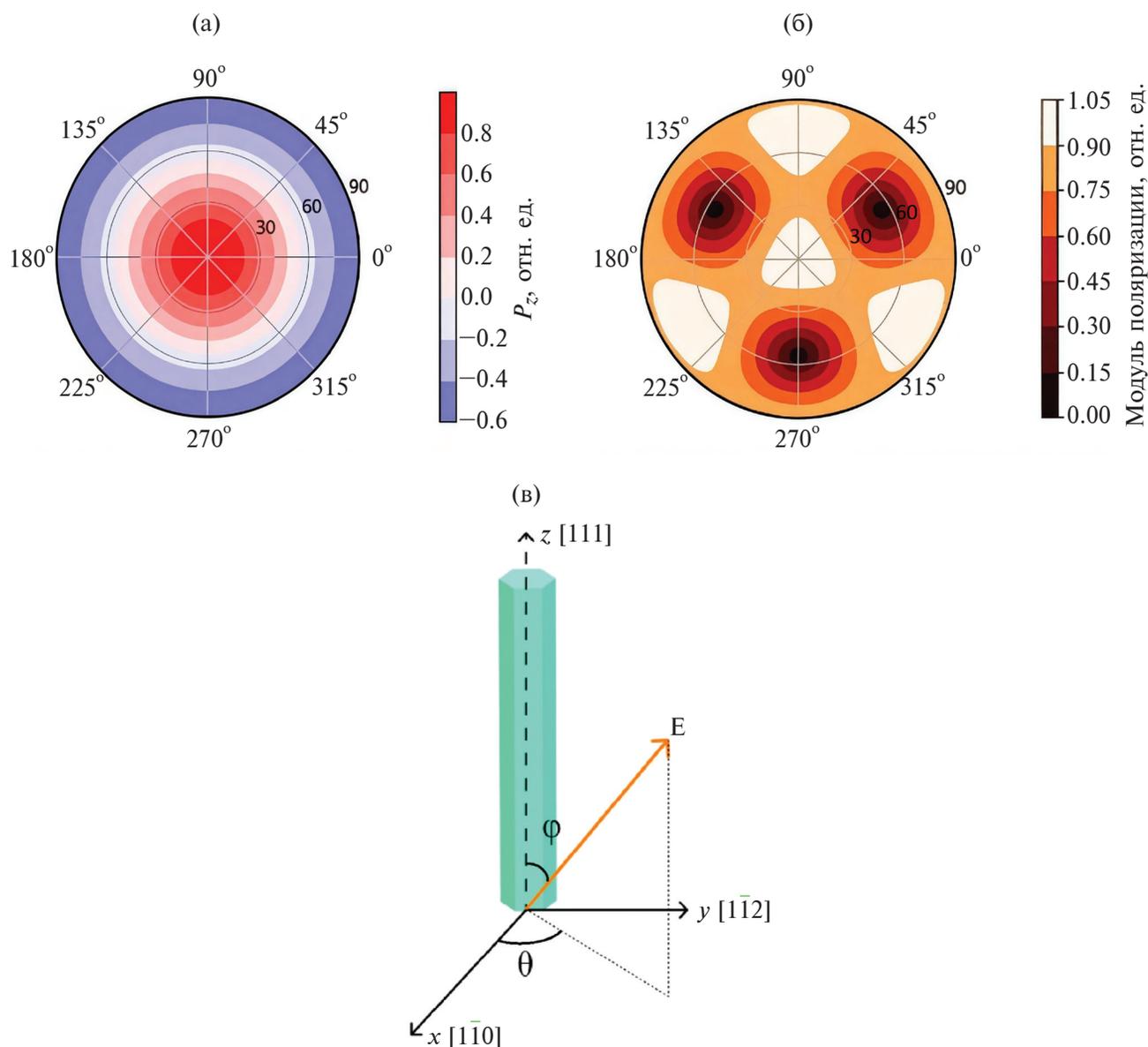


Рис. 1. Диаграмма компоненты поляризации второй гармоники P_z (а) и диаграмма модуля поляризации второй гармоники (б) в нитевидном нанокристалле GaP в зависимости от азимутального (угловая часть) и угла места (радиальная часть); геометрическая конфигурация моделируемой системы (в).

Модуль вектора поляризации прямо пропорционален интенсивности генерации. Поэтому максимум сигнала ГВГ достигается при максимуме нормы поляризации. Это условие выполняется при трех значениях: $\theta = 90^\circ$, $\theta = 210^\circ$ и $\theta = 330^\circ$ (рис. 1б, 1в). Азимутальные углы $\theta = 90^\circ$, 210° и 330° соответствуют кристаллографическим направлениям $[11\bar{2}]$, $[\bar{2}11]$ и $[1\bar{2}1]$.

Для дальнейшего исследования было выбрано оптимальное для максимального сигнала ГВГ вдоль оси z нитевидного нанокристалла направление при $\varphi = 55^\circ$, $\theta = 90^\circ$. Вид распределения напряженности электрического поля падающего

света и его диаграммы направленности при разных поперечных размерах нитевидных нанокристаллов представлены на рис. 2. Отметим, что форма диаграммы направленности электрического поля определяется распределением поля внутри кристалла.

Хотя предварительный анализ напряженности электрического поля второй гармоники показал, что при значениях угловых параметров $\theta = 90^\circ$ и $\varphi = 55^\circ$ должна возникать ГВГ в направлении оси z нитевидного нанокристалла, диаграмма направленности электрического поля имеет такую особенность только в случае малого по-

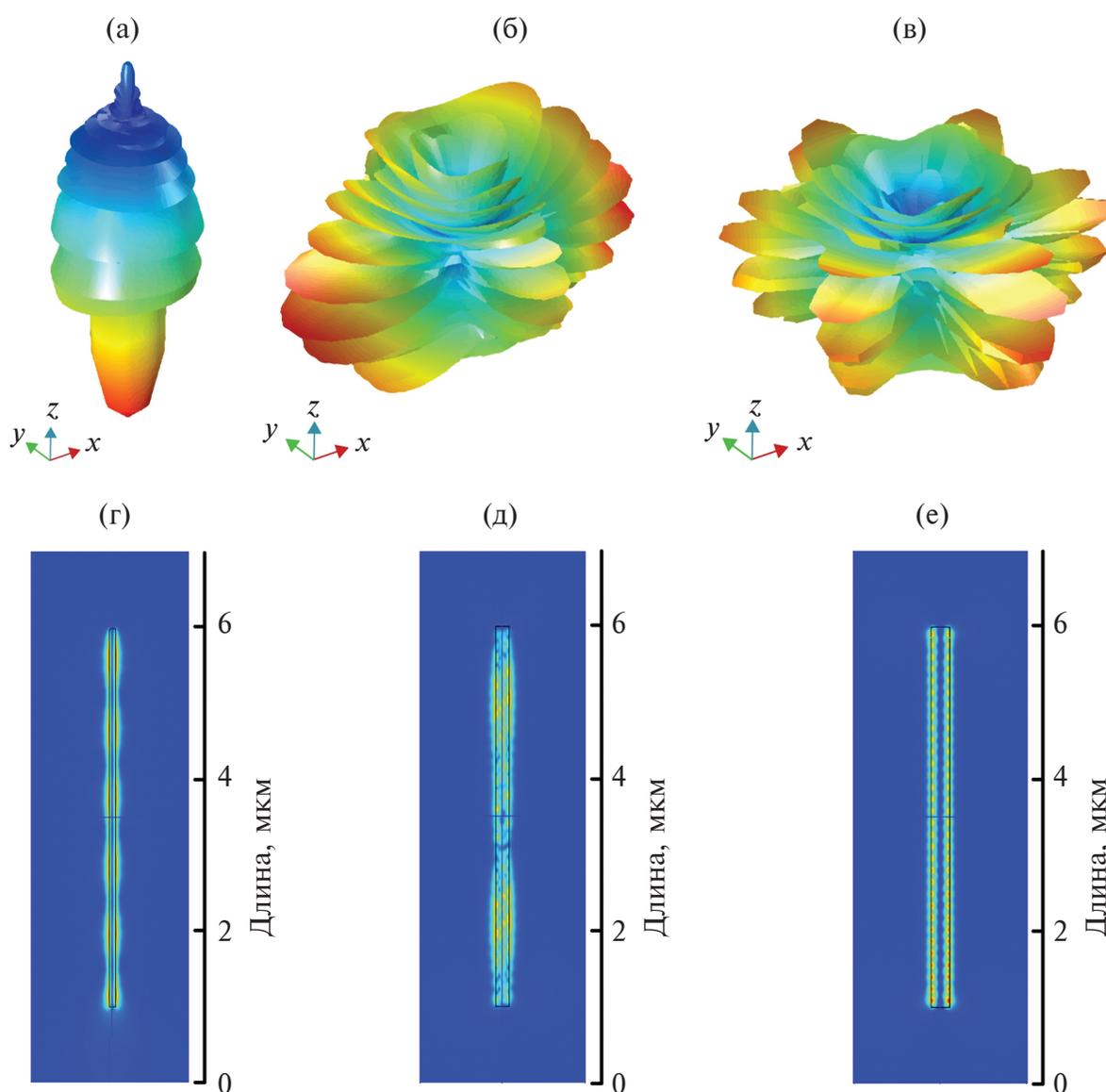


Рис. 2. Диаграмма направленности второй гармоники (а, б, в) и распределение напряженности электрического поля падающего света (г, д, е) для нитевидного нанокристалла GaP длиной $l = 5$ мкм и поперечным размером $d = 100$ (а, г), 200 (б, д), 300 нм (в, е) при $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 55^\circ$.

перечного размера образца ($d = 100$ нм). Для остальных рассмотренных нитевидных нанокристаллов наблюдали несовпадение ожидаемых результатов с результатами расчетов. Чтобы объяснить этот факт, следует отметить следующее. Во-первых, теория, рассматриваемая выше, не учитывает влияния геометрии нитевидных нанокристаллов на показатель преломления системы. Он определяет ход луча в материале: свет на границе материал–воздух меняет направление распространения, что необходимо учитывать при нахождении оптимального режима облучения. Чем больше показатель преломления, тем сильнее меняется волновой вектор падающего поля. При длинах волн, много больших поперечного размера нитевидного нанокристалла, излучение может выходить за его границы, и некоторая часть света распространяется в воздухе с меньшим n .

Это приводит к уменьшению среднего между GaP и внешней средой показателя преломления, что, в свою очередь, изменяет оптимальное направление падающего поля. Во-вторых, на процессы ГВГ сильное влияние оказывает условие фазового синхронизма, которое обеспечивает конструктивную интерференцию волн внутри образца. Данный механизм также не учтен в рассмотренной теории.

Несовпадение ожидаемых результатов с расчетными привело к необходимости дальнейшего изучения системы для нахождения оптимальных направлений падающего поля. Как было отмечено ранее, ГВГ вдоль оси z нитевидного нанокристалла может быть получена при равенстве всех компонент напряженности электрического поля облучения. Такое направление лежит в плоско-

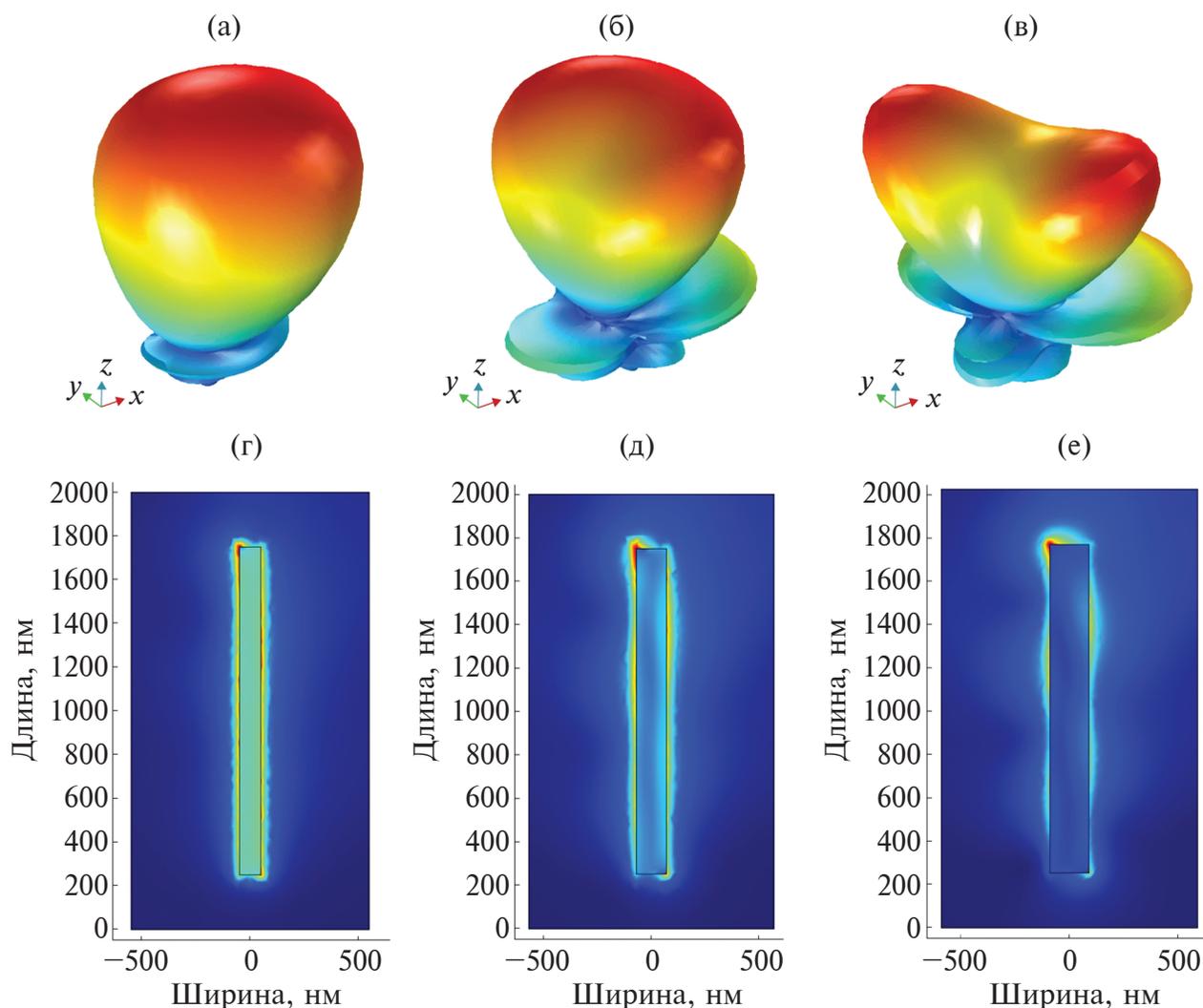


Рис. 3. Диаграмма направленности второй гармоники (а, б, в) и распределение напряженности электрического поля падающего света (г, д, е) для нитевидного нанокристалла GaP с параметрами: $d = 100$ нм, $\varphi = 77.5^\circ$ (а, г); $d = 140$ нм, $\varphi = 75^\circ$ (б, д); $d = 180$ нм, $\varphi = 62^\circ$ (в, е) при $\theta = 45^\circ$.

сти, соответствующей $\theta = 45^\circ$, которая и была выбрана для дальнейшего анализа (рис. 3).

Полученные оптимальные направления падающего поля в воздушной среде с ростом поперечного размера нитевидного нанокристалла приближаются к полученным из анализа распределений на рис. 1а, 1б. Стоит отметить, что увеличение d приводит к ухудшению локализации второй гармоники параллельно продольной оси нитевидного нанокристалла. При поперечном размере нитевидных нанокристаллов больше 180 нм оптимальных направлений падающего поля не обнаружено, что может быть связано с достижением системой ситуации полного внутреннего отражения.

Наблюдающиеся особенности можно объяснить следующим образом. Уменьшение поперечного размера нитевидного нанокристалла по сравнению с длиной волны увеличивает долю излучения, распространяющегося за границей образца. Это приводит к уменьшению среднего показателя преломления по сравнению со значением в объемном образце GaP. Рост разницы в характеристиках между нитевидным нанокристаллом и объемным кристаллом является причиной большего отклонения рассчитанных оптимальных направлений облучения от предсказанного. Помимо этого, стоит отметить, что при больших поперечных размерах образца наблюдали большее фазовое рассогласование, что также влияет на изменение направления ГВГ и ее амплитуды.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе работы было проведено численное моделирование генерации второй гармоники в нитевидных нанокристаллах GaP и дальнейший анализ полученных результатов для нахождения оптимальных направленностей падающего луча, при которых вторая гармоника распространяется вдоль продольной оси нитевидного нанокристалла z . Проведены теоретические изыскания, показавшие возможность оптимального распространения второй гармоники вдоль оси z при направлении поляризации падающего электрического поля при $\varphi = 55^\circ$, $\theta = 90^\circ$ (в сферических координатах). В результате численного моделирования выявлены параметры системы — поперечный размер нитевидных нанокристаллов и угол падения излучения, — при которых возможно распространение второй гармоники вдоль продольной оси нитевидного нанокристалла в воздушной среде. Обнаруженное несовпадение теоретических выводов и численного моделирования связано в основном с разницей показателей преломления

в нитевидном нанокристалле и в объемном кристалле, а также другими побочными механизмами. Данные результаты могут быть использованы для создания активных элементов нанофотоники с предсказуемым и оптимальным распространением второй гармоники вдоль выделенного направления в системе, а также для усиления эффективности преобразования падающего поля в луч удвоенной частоты.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования (грант государственного задания FSEG-2024-0017).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Miller D.A.B. // Proc IEEE. 2000. V. 88. №6. P. 728. <https://www.doi.org/10.1109/5.867687>
2. Семенов А.С., Смирнов В.Л., Шмалько А.В. // Квантовая электроника. 1987. Т. 14. № 7. С. 1319. <https://www.doi.org/10.1070/QE1987v017n07ABEH009450>
3. Holden H.T. // Circuit World. 2003. V. 29. № 4. P. 42. <https://www.doi.org/10.1108/03056120310478578>
4. Lelit M., Słowikowski M., Filipiak M., Juchniewicz M., Stonio B., Michalak B., Pavlov K., Myśliwiec M., Wiśniewski P., Kaźmierczak A., Anders K., Stopiński S., Beck R. B., Piramidowicz R. // Materials. 2022. V. 15. № 4. P. 1398. <https://www.doi.org/10.3390/ma15041398>
5. Xiang Ch., Jin W., Bowers J.E. // Photon. Res. 2022. V. 10. P. A82. <https://www.doi.org/https://doi.org/10.1364/PRJ.452936>
6. Zhou J., Wang X., Kang R., Liu Z., Cheng P., Zhao J., Zuo Z. // Opt. Comm. 2024. V. 554. P. 130148. <https://www.doi.org/10.1016/j.optcom.2023.130148>
7. Hirano S., Takeuchi N., Shimada S., Masuya K., Ibe K., Tsunakawa H., Kuwabara M. // J. Appl. Phys. 2005. V. 98. № 9. P. 305. <https://www.doi.org/10.1063/1.2113418>
8. Caspani L., Duchesne D., Dolgaleva K., Wagner S.J., Ferrera M., Razzari L., Pasquazi A., Peccianti M., Moss D.J., Aitchison J.S., Morandotti R. // J. Opt. Soc. Am. B. 2011. V. 28. № 12. P. A67. <https://www.doi.org/10.1364/JOSAB.28.000A67>
9. Stegeman G.I., Wright E.M., Finlayson N., Zanon R., Seaton C.T. // Journal of Lightwave Technology. 1988. V. 6. № 6. P. 953. <https://www.doi.org/10.1109/50.4087>
10. Baranova I.M., Dolgova T.V., Kolmychek I.A., Maydykovskiy A.I., Mishina E.D., Murzina T.V.,

- Fedyanin A.A.* // Quantum Electronics. 2022. V. 52. № 5. P. 407.
<https://www.doi.org/10.1070/qel18037>
11. *Widhalm A., Golla C., Weber N., Mackwitz P., Zrenner A., Meier C.* // Optics Express. 2022. V. 30. № 4. P. 4867.
<https://www.doi.org/10.1364/oe.443489>
12. *Wiecha P.R., Arbouet A., Girard Ch., Baron T., Paillard V.* // Phys. Rev. B. 2016. V. 93. P. 125421.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevB.93.125421>
13. *Levine Z.H., Allan D.C.* // Phys. Rev. B. 1991. V. 44. № 23. P. 12781.
<https://www.doi.org/10.1103/PhysRevB.44.12781>
14. *Anthur A.P., Zhang H., Akimov Y., Rong Ong J., Kalashnikov D., Kuznetsov A.I., Krivitsky L.* // Optics Express. 2021. V. 29. № 7. P. 1.
<https://www.doi.org/10.1364/oe.409758>
15. *Rivoire K., Buckley S., Hatami F., Vučković J.* // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 98. № 26. P. 263113.
<https://www.doi.org/10.1063/1.3607288>
16. *Maliakkal C. B., Gokhale M., Parmar J., Bapat R. D., Chalke B. A., Ghosh S., Bhattacharya A.* // Nanotechnology. 2019. V. 30. P. 254002.
<https://www.doi.org/10.1088/1361-6528/ab0a46>
17. *Mårtensson T., Svensson C.P.T., Wacaser B.A., Larsson M.W., Seifert W., Deppert K., Gustafsson, A., Wallenberg L.R., Samuelson L.* // Nano Letters. 2004. V. 4. № 10. P. 1987. <https://www.doi.org/10.1021/nl0487267>
18. *Капуай В.Н., Толкачёв А.И., Шамына А.А.* // Оптика и спектроскопия. 2021. Т. 129. № 12. С. 1537.
<https://www.doi.org/10.21883/os.2021.12.51742.2385-21>
19. *Fedorov V.V., Bolshakov A., Sergaeva O., Neplokh V., Markina D., Bruyere S., Saerens G., Petrov M.I., Grang R., Timofeeva M., Makarov S.V., Mukhin I.S.* // ACS Nano. 2020. V. 14. № 8. P. 10624.
<https://www.doi.org/10.1021/acsnano.0c04872>
20. *Adachi S.* // J. Appl. Phys. 1989. V. 66. № 12. P. 6030.
<https://www.doi.org/10.1063/1.343580>

Numerical Study of Second Harmonic Generation in GaP Optical Nanoresonators

A. S. Funtikova^{1,*}, A. M. Mozharov², V. V. Fedorov¹, I. S. Mukhin¹

¹*Peter the Great Saint–Petersburg Polytechnic University, Saint–Petersburg, 195251 Russia*

²*Alferov University, Saint–Petersburg, 194021 Russia*

*e-mail: n.fn@mail.ru

One of the most promising areas of research at the moment is the development of optical frequency summation and doubling systems, which use nonlinear crystals as an active element. Gallium phosphide (GaP) in the form of nanowires, which have a high dielectric constant and are transparent in the visible and infrared regions, can be used as a promising material for these elements. These crystals can be easily integrated into modern photonics systems due to their unique shape. In this study, we investigated the process of second harmonic generation in GaP nanowires, depending on their geometric parameters and the direction of incident radiation. We found the conditions that provide the highest efficiency of the generation process along the axis of the crystal. The possibility of the propagation of the second harmonic along the nanowire axis in air is demonstrated for specific parameters of the system — the diameter and angle of radiation. An increase in diameter leads to a reduction in the difference between the actual optimal direction and the predicted one, as the size-related characteristics of the filamentous nanocrystal tend to become more volumetric with increasing diameter. Results can be used to create various nanophotonic devices.

Keywords: second harmonic generation, nanowires, gallium phosphide, numerical calculation, modeling, polarization, nanophotonics, optical integrated circuits, nonlinear optical effects.