

# TEPLEM INDUKOVANÁ MODIFIKACE GENERACE DRUHÉ HARMONICKÉ V $\text{Si}_3\text{N}_4$ TENKÝCH VRSTVÁCH

Jakub Lukeš <jakub.lukes@tul.cz>, Karel Žídek

V této práci byla zkoumána modifikace generace druhé harmonické (SHG) na tenkých vrstvách  $\text{Si}_3\text{N}_4$  a  $\text{SiO}_x\text{N}_y$  v závislosti na různých parametrech. Obdobné změny v efektivitě SHG byly pozorovány již dříve v jiných studiích, avšak převážně se jednalo o zesilování SHG ve vlnovodech, kdy bylo toto zesílení připisováno fotogalvanickému efektu. V této studii se nám však podařilo popsat zesilování, které má obdobné vlastnosti jako fotogalvanický efekt, avšak po podrobném zkoumání bylo zjištěno, že hlavním mechanismem je s největší pravděpodobností teplem indukovaná změna mechanického napětí ve vrstvě. Pokud víme, tato práce je první, která tento mechanismus v tenkých vrstvách  $\text{Si}_3\text{N}_4$  popsala.

**Klíčová slova:** SHG, tenké vrstvy,  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , mechanické napětí

## ÚVOD

$\text{Si}_3\text{N}_4$  stejně jako  $\text{SiO}_x\text{N}_y$  se v poslední době těší velké pozornosti, a to zejména pro jejich nelineární optické vlastnosti, které se využívají například v optických vlnovodech, fotonických krystalech, optických modulátorech a plazmonických strukturách. Mnoho studií se již dříve zabývalo zkoumáním a popisem nelineárních optických vlastností těchto materiálů, kde mimo jiné zkoumali i příčinu vzniku SHG.  $\text{Si}_3\text{N}_4$  stejně jako  $\text{SiO}_x\text{N}_y$  jsou centrosymetrické materiály a dle teorie by zde tedy nemělo docházet k SHG, avšak jak ukazuje mnoho studií, k SHG zde skutečně dochází. Dle současných poznatků jsou zde dva důvody, proč tomu tak je.

Prvním důvodem je SHG na rozhraní mezi  $\text{Si}_3\text{N}_4$  a jiným materiálem (ať už substrát nebo okolní médium), kde je vždy porušena symetrie a je tak umožněna efektivní SHG. Druhým důvodem je pak SHG v objemu způsobena především nečistotami v materiálu a mechanickým napětím, které opět narušují symetrii materiálu a umožňují tak efektivní SHG.

V posledních letech se několik studií věnovalo i zkoumání laserem indukovaného zesílení SHG ve vlnovodech a mikrozonařích. Toto zesílení bylo v tomto případě připisováno výhradně fotogalvanickému efektu, který v materiálu způsobuje vytváření lokálních elektrických polí, díky nimž dochází k nelineárnímu jevu třetího řádu, takzvané elektricky indukované generaci druhé harmonické frekvence (EFISH). K fotogalvanickému jevu dochází, pokud je vzorek vystaven záření o základní frekvenci a její druhé harmonické. V tomto případě může být zdroj druhé harmonické frekvence jak vnější, tak i generovaný přímo ve vzorku. [1]

Pro ultratenké vrstvy  $\text{SiO}_x\text{N}_y$  (do 10 nm) pak byl pozorován i další efekt způsobující změnu v efektivitě SHG,

který byl založen na multifotonové absorpci ve vrstvě. [2] Pro vrstvy přesahující 10 nm se však předpokládalo, že efektivita SHG je dána depozičním procesem a vlastnostmi použitých materiálů. V této studii však předkládáme naše pozorování opticky indukovaných změn v efektivitě SHG v tenkých vrstvách  $\text{Si}_3\text{N}_4$  a  $\text{SiO}_x\text{N}_y$ . [3]

## METODIKA

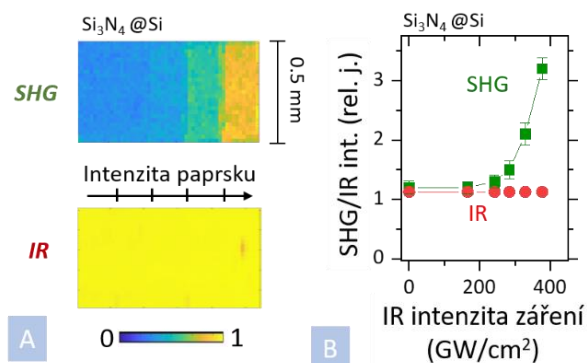
Měření probíhala na sestavě popsané v [4]. Tato sestava nám umožňuje měřit efektivitu SHG se základní frekvencí 1028 nm v závislosti na úhlu natočení vzorku vůči laserovému paprsku. Dále je umožněno měnit intenzitu záření, vstupní polarizaci a snímanou polarizaci. Sestava umožňuje provádět plošná měření, kde je postupně proměřen bod po bodu na určité oblasti se zadaným krokem. Měření probíhají v módu na odraz a je najednou zaznamenávána jak intenzita SH, tak i odražená složka IR.

Měření změny efektivitě SHG byla prováděna ve dvou krocích. V prvním kroku bylo provedeno plošné měření na několika oblastech vedle sebe, kdy pro každou oblast byla použita jiná intenzita laserového svazku. V druhém kroku bylo provedeno jedno plošné měření s nízkou intenzitou laserového svazku, které obsahovalo všechny oblasti měřené v předešlém kroku. Z naměřených dat v druhém kroku pak bylo možné vidět změnu intenzity SH mezi jednotlivými oblastmi.

## VÝSLEDKY A DISKUZE

Změna intenzity SH byla zprvu zkoumána pouze na vrstvách  $\text{Si}_3\text{N}_4$  o tloušťkách 300 – 3000 nm deponovaných na substrátech Si. Všechny tyto vzorky vykazovali zvyšování intenzity SH při zvyšování intenzity IR při prvotním měření. Jak je možné vidět z obrázku 1, u některých vzorků docházelo až k trojnásobnému zvýšení intenzity SH, bez pozorovatelné

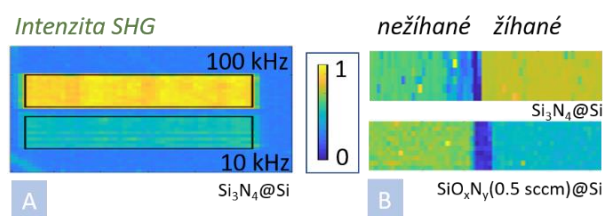
změny v intenzitě odraženého IR záření (intenzita SH a IR je měřena zároveň v jednom měření).



Obrázek 1 - laserem indukované zesílení SHG (A) Plošný XY scan (B) Průměrná intenzita SH a IR z jednotlivých oblastí (nulová intenzita záření odpovídá referenční oblasti bez prvotního měření)

Silně nelineární závislost mezi intenzitou paprsku při prvním měření a změnou intenzity SH při druhém měření odpovídá vlastnostem fotogalvanického efektu, který je běžně pozorovaným jevem například u mikrozreznátorů. Tomuto jevu dále odpovídalo naše pozorování kumulace zesílení SH, kdy byla jedna oblast měřena několikrát po sobě a docházelo k postupnému zesilování SH až do určité míry saturace. Dalšími měřeními však bylo postupně odhaleno, že dominantní příčinou změny SH nebude v tomto případě fotogalvanický jev.

Jedním z hlavních měření, které vyvrátilo fotogalvanický jev jako hlavní příčinu změny SH, bylo měření s různou opakovací frekvencí pulsního laseru. Pro fotogalvanický efekt by měla úroveň změny SH zůstat stejná bez ohledu na opakovací frekvenci laseru za předpokladu, že zůstane stejná celková intenzita záření a počet pulzů (tzn. při nižší opakovací frekvenci byla zvýšena expoziční doba). Pokud by však příčinou změny SH byl například teplotní jev, změna SH by na opakovací frekvenci byla silně závislá. Jak je vidět z obrázku 2A, změna intenzity SH je výrazně závislá na opakovací frekvenci laseru.



Obrázek 2- (A) Vliv opakovací frekvence na změnu intenzity SH (B) Vliv žíhání na změnu intenzity SH

Další měření pak ukázala, že ne vždy dochází k zesilování intenzity SH, avšak u některých vzorků (primárně některé vzorky  $\text{SiO}_x\text{N}_y$ ) docházelo k snižování intenzity SH, což neodpovídá fotogalvanickému jevu, u kterého by dle teorie vždy mělo docházet k zesilování. Díky tomuto a dalším

měřeními byla jako pravděpodobná příčina určena teplem indukovaná změna v mechanickém napětí vrstvy, jež zde zůstává po depozici.

Pro potvrzení teorie o teplem indukovaných změnách mechanického napětí ve vrstvě byl proveden experiment, jehož výsledky je možné vidět na obrázku 2B. Při tomto experimentu bylo několik vzorků, u nichž jsme dříve pozorovali změnu v SHG, rozpuštěno na dvě části, z nichž jedna část byla umístěna do pece a bylo provedeno žíhání. Následně byl vzorek ponechán v pokojové teplotě vychladnout a poté byl umístěn do měřicí sestavy vedle nežíhané části. Obě části vzorku pak byly měřeny najednou a výsledky je možné vidět na obrázku 2B. Jak je možné si povšimnout, u vzorku  $\text{Si}_3\text{N}_4$  došlo u žíhané části k zesílení intenzity SH a naopak u vzorku  $\text{SiO}_x\text{N}_y$  došlo ke snížení intenzity SH, což odpovídá našim předešlým pozorováním.

## ZÁVĚR

Tato práce poslouží při dalším výzkumu nelineárních optických jevů na tenkých vrstvách. Výsledky práce zároveň naznačují, že dříve pozorované zesilování SH pomocí fotogalvanického jevu a dalších procesů může mít ve skutečnosti komplexnější původ, kdy se na procesu zesilování podílí více efektů najednou. Výsledky práce byly publikovány v tomto roce v článku [3].

## PODĚKOVÁNÍ

Tato práce byla podpořena z projektu Studentské grantové soutěže (SGS) na Technické univerzitě v Liberci v roce 2023.

## REFERENCE

- [1] O. Yakar, E. Nitiss, J. Hu, C.-S. Brès, "Generalized Coherent Photogalvanic Effect in Coherently Seeded Waveguides," *Laser Photonics Rev*, 16, 2200294 (2022).
- [2] J. Bloch, J. G. Mihaychuk, and H. M. van Driel, "Electron Photoinjection from Silicon to Ultrathin Si Films via Ambient Oxygen," *Phys. Rev. Lett.* 77, 920 (1996).
- [3] J. Lukeš, V. Kanclíř, J. Václavík, R. Melich, U. Fuchs a K. Židek. Optically modified second harmonic generation in silicon oxynitride thin films via local layer heating. *Sci Rep* 13, 8658 (2023). <https://doi.org/10.1038/s41598-023-35593-8>
- [4] N. K. Das, V. Kanclíř, P. Mokrý, and K. Židek, "Bulk and interface second harmonic generation in the  $\text{Si}_3\text{N}_4$  thin films deposited via ion beam sputtering," *J. Opt.* 23, 024003 (2021).