

nc-Si/SiN_x 超晶格薄膜实现 Nd:YAG 激光器调 Q 和锁模

王国立¹, 郭亨群^{1*}, 苏培林¹, 张春华¹, 王启明², 徐 骏³, 陈坤基³

(1 华侨大学 信息科学与工程学院, 福建 泉州 362021;

2 中国科学院 半导体研究所, 北京 100083; 3 南京大学 物理学系, 江苏 南京 210093)

摘要: 采用射频磁控反应溅射法制备 a-Si/SiN_x 超晶格薄膜材料, 热退火后形成纳米 Si 晶粒。把 nc-Si/SiN_x 薄膜作为饱和吸收体插入 Nd:YAG 激光器腔内, 在腔长较短时, 实现 1.064 μm 激光的被动调 Q 运转, 获得最小脉宽 23 ns 的调 Q 单脉冲输出, 当腔长增加到 124 cm 时, 获得平均脉宽 35 ps 的锁模脉冲序列。根据实验现象结合薄膜结构, 分析了材料调 Q 与锁模的产生机制, 并研究了不同工作条件下的调 Q 输出性能。

关键词: 激光技术; nc-Si/SiN_x 超晶格薄膜; 调 Q; 锁模; 射频磁控反应溅射

中图分类号: TN248.1; O484

PACC: 4255P

文献标识码: A

1 引 言

以全 Si 光电子集成为目标的 Si 基纳米薄膜材料的研究, 是半导体光电子学的研究热点, 实验表明, Si 基低维纳米薄膜材料不仅具有良好的发光特性^[1], 增强的三阶光学非线性响应^[2], 还具有饱和吸收作用^[1,3], 因此有望作为一种有效的饱和吸收材料, 在全 Si 光开关、光逻辑器件上获得广泛应用。采用饱和吸收体实现被动调 Q 锁模的技术具有设计简单、体积小、成本低等优点。对于 1.064 μm 激光的饱和吸收, 常用的固体材料有 Cr³⁺ 掺杂晶体、单晶 Si、GaAs 以及可饱和吸收镜 (SESAM) 等^[3]。但使用 Cr³⁺ 掺杂晶体获得的脉冲较宽, 锁模几率和稳定性相对较差; 用单晶硅或 GaAs 实验条件较苛刻; 而 SESAM 制作比较复杂, 成本比较高, 且都是作为端镜使用。作者在研究 Si 基材料的发光与非线性光学性能时发现, a-Si/SiN_x 超晶格薄膜材料经过退火之后插入 Nd:YAG 激光器中表现出明显饱和吸收效应, 实现了 1.064 μm 激光的被动调 Q 与锁模。本文报道这一实验结果, 并对材料的被动调 Q 与锁模原理进行了探讨。

2 实 验

采用射频磁控反应溅射法, 在 p 型 (100) 单

晶 Si 片和石英片上沉积 a-Si/SiN_x 超晶格薄膜。衬底选择不加热, 经常规清洗后置入溅射室。溅射靶材为高纯度单晶 Si 靶。腔室本底真空度为 8×10^{-4} Pa。溅射 Si 层时通入高纯 Ar 气 (90 sccm), 溅射 SiN_x 层时通入 Ar 和 N₂, 流量比 $R[Ar/N_2]$ 为 40/20 (sccm)。为了保持陡的界面, 每淀积一层 Si 或 SiN_x 薄膜后, 立即关闭等离子体源并抽空反应室内气体, 再通入相应工作气体进行下一层淀积。实验中射频功率均为 150 W, 工作气压 $P_{SiN_x} = 0.8$ Pa, $P_{Si} = 1$ Pa, 在此条件下可以将沉积速率控制在每分钟几个纳米之内, 从而可较好地控制薄膜厚度的精确性与重复性。样品结构为: a-Si 层厚度 6 nm, SiN_x 层厚度 3 nm, 以此重复 4 个周期, 薄膜总厚度 36 nm。沉积完毕后在 N₂ 气保护下 1000 °C 退火 30 min, 以形成纳米 Si 颗粒。采用德国 Bruker 公司 D8 Advance 型 X 射线衍射仪对薄膜进行 XRD 分析。利用 UV-2800H 型紫外可见分光光度计对样品进行光吸收测量, 所有测试均在室温下进行。

被动调 Q 与锁模实验装置如图 1 所示, M1 是曲率半径 300 cm 的全反射凹面镜; M2 是透过率 40% 的平面输出镜; SA 是薄膜沉积样品, 靠近平面输出镜放置。φ 4 mm × 60 mm 的 Nd:YAG

收稿日期: 2008-04-01; 修订日期: 2008-06-10

基金项目: 国家自然科学基金 (60678053); 国家自然科学基金重点 (60336010); 国家重点基础研究发展“973”计划 (2007CB613401) 资助项目

作者简介: 王国立 (1984-), 男, 福建莆田人, 主要从事光电子材料与器件的研究。

E-mail wangguoli@hqu.edu.cn

* : 通讯联系人; E-mail hqguo@hqu.edu.cn

棒由单根脉冲氙灯抽运,工作重复率 1 Hz,棒的右端面与 M2 镜的距离在实验中调整,腔长较短时得到调 Q 波形,腔长较长时为锁模输出。输出激光由响应时间 1 ns 的 PN 硅光电二极管接收并输入到数字存储示波器 (OSC) 观察脉冲波形。

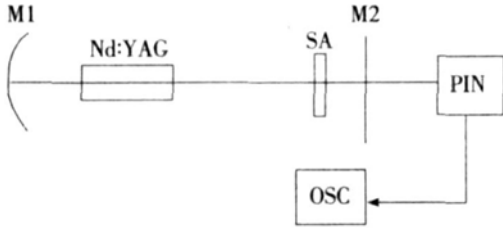


图 1 Nd:YAG 激光器被动运转实验装置

Fig 1 Experimental setup for passive Nd:YAG laser

3 结果与讨论

获得纳米颗粒镶嵌半导体薄膜结构的有效方法之一且技术简单。研究表明,硅晶粒的直径

并得出薄膜中纳米晶粒的平均尺寸约为 10 nm,按照 Zhang 等^[5]的理论,纳米 Si 晶粒呈圆柱状分布,镶嵌在 a-Si 层中。

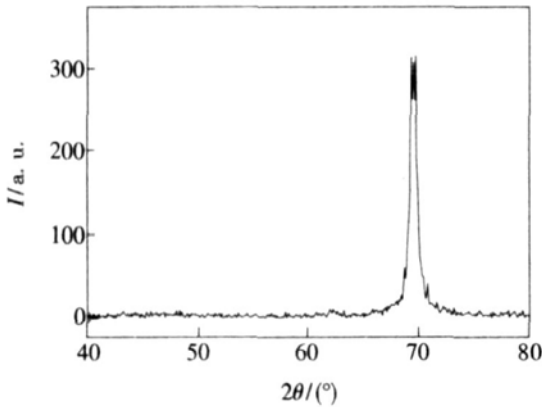


图 2 1 000 °C 退火 30 min 后 nc-Si/SiNx 样品的 XRD 谱

Fig 2 XRD spectrum of nc-Si/SiNx annealed at 1 000 °C for 30 min

把沉积在 Si 衬底上的超晶格样品插入谐振腔中靠近平面输出镜处(与输出镜的距离可以在较大范围内调整),当腔长 $L = 36$ cm 时,在 900 V 的抽运电压下,检测得到 24.73 ns 的调 Q 脉冲,如图 3 所示。当腔长 L 较长时,激光器呈现被动

锁模运转,输出较为稳定的锁模脉冲。图 4 是腔长 $L = 124$ cm 时示波器上观察到的锁模脉冲波形。可以看出,脉冲间隔为 875 ns,与光脉冲在腔内往返的渡越时间基本符合,脉冲包络时间约为 320 ns,调制深度接近 100%,没有出现次脉冲。用非共线自相关二次谐波法测得脉冲平均宽度为 35 ps,用激光能量计测得单脉冲序列能量为 8 mJ。

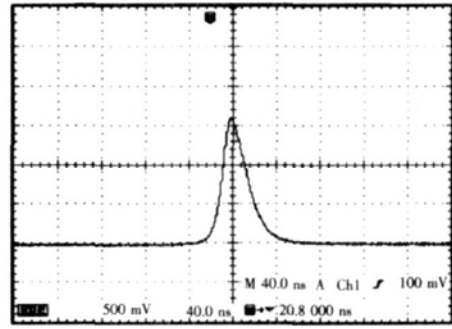


图 3 nc-Si/SiNx 薄膜样品的调 Q 激光脉冲

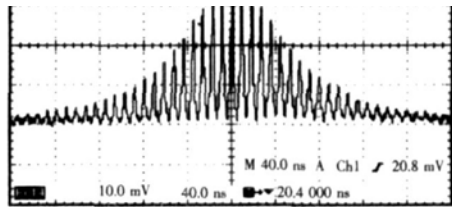


图 4 nc-Si/SiNx 薄膜样品的锁模脉冲序列

Fig. 4 Mode-locked laser pulses of nc-Si/SiNx films; $L = 124$ cm, pumped at 950 V.

4 结果分析

4.1 材料锁模与调 Q 工作原理

nc-Si/SiNx 薄膜能够实现 Nd:YAG 激光器的被动锁模与调 Q,说明材料对 1 064 nm 的激光具有饱和吸收效应。饱和吸收是一种三阶非线性光学效应。样品的结构参数表明,薄膜为 a-Si 与 SiNx 交替生长的超晶格结构,退火后出现纳米 Si 晶粒, a-Si 层的厚度以及 Si 晶粒粒径接近于载流子德布罗意波长,在氮化硅介质势垒强限域作用下表现出明显的量子尺寸效应, a-Si 层以及纳米 Si 晶粒能带中电子占有能级量子化,量子限制效

应使其三阶光学非线性响应也得到极大的增强。刘宁宁等^[6]研究了 a-Si/SiO₂ 超晶格中三阶非线性效应的增强。吕蓬等^[2]在纳米 Si 镶嵌在 SN_x 薄膜材料观察到了较大的三阶非线性极化率。利用 nc-Si/SN_x 薄膜进行调 Q 与锁模实验, 是对其非线性光学响应的一种验证与应用。

样品的吸收谱实验表明, Si 体系的能隙由于量子限制效应的作用被有效地增大, 薄膜退火前与退火后的光学带隙分别为 1.93 2.2 eV。实验中激光器工作波长为 1.06 μm, 入射光子能量 (1.17 eV) 小于样品能带间隙, 而两个光子能量又超过能隙, 因此材料中很可能存在双光子吸收。双光子吸收属于非共振吸收, 光响应时间快, 它将引起材料吸收系数乃至折射率的变化。Cotter 等^[7]研究发现: 在非共振区, 材料的三阶极化率的实部和虚部与材料的非线性折射率系数和双光子吸收系数密切相关。我们前期以皮秒脉冲激光单光束 Z 扫描技术研究了该材料在非共振吸收区的三阶非线性光学特性, 结果表明其非线性吸收属于双光子吸收, 所得到的非线性吸收系数 $\beta = 1.12 \times 10^{-7} \text{ m/W}$, 材料的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 均比体硅材料的相应值大 5 个数量级。

由于 Si 体系的低维化, 电子跃迁不再受动量守恒的限制, 光吸收响应得到增强。当入射光光强较大时, 低维纳米 Si 体系吸收两个光子, 并产生大量光生载流子^[8], 聚集在量子尺寸效应引起的量子化能级上。随着量子化能级的大量被占据, 薄膜吸收系数锐减, 双光子吸收达到饱和。研究表明, 在声子的参与下, 半导体光生载流子在导带能级上的弛豫时间为 ps 量级^[10-11], 这就很有可能引发激光器 ps 宽度的超短光脉冲产生。

镶嵌在绝缘介质中的纳米 Si 有着相当大的比表面积, 由于晶相不同纳米 Si 与介质之间形成较陡的界面, 界面原子排列和键的组态有较大的无规则性, 故而存在有大量的界面态。丁文革等^[12]在研究氮化硅镶嵌纳米 Si 薄膜的键合特性时, 发现了来自于纳米硅颗粒和氮化硅网络界面悬键引起的次带吸收。通过对镶嵌纳米 Si 颗粒的 Si 基薄膜光致发光的研究^[13], 也可以发现纳米 Si 界面大量的 Si 悬键造成的影响。这些 Si 悬键将在薄膜材料的禁带中引入缺陷能级, 并俘获材料光吸收产生的光生载流子, 一般认为该缺陷能级寿命在 ns 量级以上^[13-14]。我们的材料在退

火后同样形成纳米 Si 颗粒镶嵌结构, 因未经 H 的钝化, 势必在薄膜中引入界面缺陷, 双光子吸收产生的载流子在缺陷态上获得积累并最终导致缺陷能级与量子化能级饱和, 薄膜对于 1.064 μm 的光吸收变小甚至消失, 因此可应用于激光器调 Q。类似的结果也曾在 nc-Si/SiO₂ 材料中得到^[11]。

按照上面的分析, 我们可以对光脉冲产生过程作如下描述: 较强的 1.064 μm 激光入射到样品中, 诱发材料低维纳米 Si 体系 (a-Si 层和纳米 Si) 的双光子吸收, 载流子跃迁并分布在量子化能级上, 而后载流子迅速弛豫到较为稳定的表面缺陷态, 随着缺陷能级的大量被占据, 材料吸收系数锐减, 透射激光形成调 Q 脉冲波形。腔长较长时激光峰值功率增大, 吸收加剧, Si 中的量子化能级在瞬间大量聚集光生载流子并趋于饱和, 吸收体被“漂白”而变得透明, 由此产生 ps 量级的超短光脉冲。在激光增益介质自发辐射的噪声光脉冲中, 最强尖峰脉冲因为吸收饱和效应而被选出, 多次经过薄膜和增益介质时, 其前沿因为被吸收, 损耗大于增益而不断削弱; 中间部分没有被吸收或吸收很少而不断增强; 后沿因为被吸收或因为增益介质的增益饱和没有被放大也不断削弱, 所以形成了周期 $2L/c$ 的脉冲序列。

4.2 激光器工作参数对调 Q 脉冲的影响

在 900 V 的抽运电压下, 移动 M2 得到不同腔长下调 Q 脉冲宽度的变化情况, 结果如图 5(a)。可以看出, 随着腔长 L 变大, 脉冲宽度逐渐变大, 当 $L = 30 \text{ cm}$ 时, 得到最小脉宽 23.08 ns。由于脉冲宽度和腔内光子寿命成正比关系, 而腔内光子寿命又与腔长成正比关系, 所以腔长的增加使得激光的脉冲宽度变大。

固定 $L = 36 \text{ cm}$, 其它参数不变, 在不同抽运电压下观测调 Q 主脉冲宽度, 经多次测量取平均值后结果如图 5(b)。可以看出, 抽运电压增大, 脉宽先是减小, 当 $U = 900 \text{ V}$ 时达到最小, 随后脉宽变化趋于平缓, 并略有增大。这是因为: 当腔长一定时, 抽运电压越高, 增益介质反转布居数密度越大, 腔内的净增益系数也就越大, 则腔内光子数的增长及反转集数衰减就越迅速, 因此脉冲的建立和熄灭过程也就越短。但是在过高的抽运电压下, 增强的光子输出使得样品中位于导带内的电子和价带内的空穴以及缺陷态能级上的电子与空穴, 可以直接再吸收光子跃迁到更高的能态

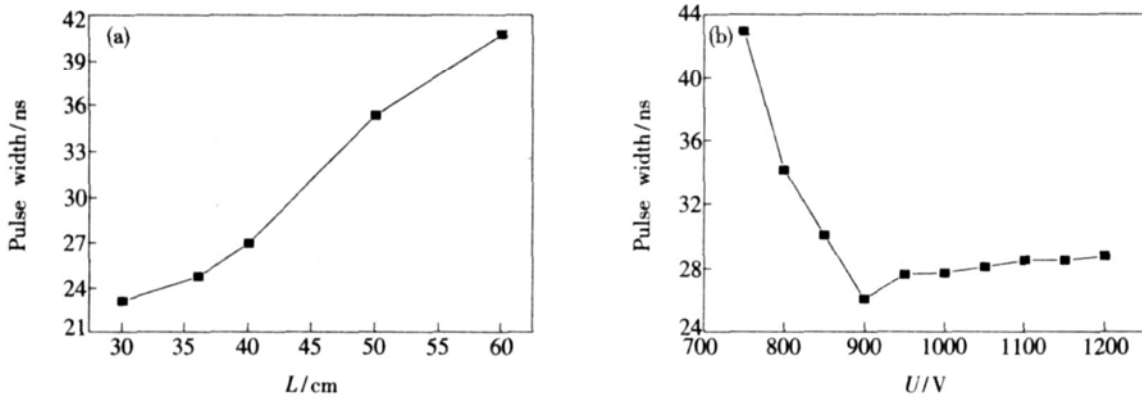


图 5 (a) $U = 900$ V, 不同腔长下调 Q 脉冲宽度; (b) $L = 36$ cm, 不同抽运电压下调 Q 脉冲宽度

Fig 5 (a) Laser pulse width with respect to cavity length fix pumped voltage at 900 V; (b) Laser pulse width with respect to pumped voltage fix cavity length at 36 cm.

上去, 出现材料“不完全漂白”现象, 调 Q 主脉冲展宽, 由于这种再吸收比较微弱, 因此展宽并不明显。

5 结 论

以射频磁控反应溅射法及热退火处理制备的 nc-Si/SN_x 超晶格薄膜, 可以作为饱和吸收体在 Nd:YAG 激光器中实现稳定的被动调 Q 与锁模

运转, 获得较窄的脉冲波形与调制深度良好的脉冲序列。分析认为, 由于薄膜中 Si 的低维化与纳米颗粒镶嵌结构, 双光子吸收产生的大量光生载流子在量子化能级与缺陷态上获得积累, 并以不同的速度进行能量弛豫, 从而导致了锁模调制与调 Q 脉冲输出。纳米 Si 材料具有吸收损耗小, 成本低廉等优点, 所以在光开关方面有一定的应用价值。

参 考 文 献:

- [1] Guo H engqun, Lin Shangxin, Wang Q ining Photoluminescence and application of nonlinear optical property of nc-Si/SiO₂ films [J]. *Chin. J. Semiconductors* (半导体学报), 2006, **27**(2): 345-349 (in Chinese).
- [2] Lu Peng, Guo H engqun, Shen Jiwei *et al* The preparation and nonlinear optical properties of nc-Si/SN_x composite films [J]. *J. Functional Materials* (功能材料), 2008, **39**(1): 44-47 (in Chinese).
- [3] Wang Jiaxian, Guo H engqun, Li Liwei *et al* Passive mode-locking in Nd:YAG laser using nanocrystalline silicon embedded in SN_x film [J]. *Chin. J. Lasers* (中国激光), 2007, **34**(11): 1498-1501 (in Chinese).
- [4] Wang Li, Wang Xiaowei, Huang Xinfan *et al* The effect of post-treatments on crystallization in a-Si:H/a-SN_x:H multilayers [J]. *Non-Crystalline Solids*, 2002, **299-302**: 751-755.
- [5] Zhang L, Chen K, Huang X, *et al* Control of size and shape of nc-Si in a-SN_x/a-Si:H multilayers by laser induced constrained crystallization [J]. *Appl Phys A*, 2003, **77**: 485-489.
- [6] Liu Ningning, Sun Jianing, Pan Shaohua *et al* Nonlinear optical property of a-Si/SiO₂ superlattice structure [J]. *Chin. Science Bulletin* (科学通报), 2000, **45**(22): 2383-2387 (in Chinese).
- [7] Cotter D, Burt M G, Manning R J Below-band-gap third-order optical nonlinearity of nanometer-size semiconductor crystallites [J]. *Phys Rev Lett*, 1992, **68**(8): 1200-1203.
- [8] Yao Weiguang, Yue Lanping, Qi Zhenzhong *et al* Visible photoluminescence of Ge nanocrystallites embedded in SiO₂ thin film [J]. *J. Functional Material* (功能材料), 1997, **28**(5): 477-488 (in Chinese).
- [9] Tang Haixia, Wang Q ining Theoretical simulation of enhanced luminescence from nc-Ge/Si islands by photonic crystal [J]. *Chin. J. Luminescence* (发光学报), 2006, **27**(4): 435-441 (in Chinese).
- [10] Ma L B, Song R, Huang R. Tunable light emission and decaying process of photoluminescence from a nanostructured Si/a-SN_x film [J]. *J. Luminescence*, 2007, **126**(2): 536-540.
- [11] Dao V L, Davis J, Hannaford P, *et al* Ultrafast carrier dynamics of Si quantum dots embedded in SN matrix [J]. *Appl*

Phys Lett, 2007, **90**(8): 081105-1-3

[12] Ding Wenge, Yu Wei, Yang Yanbin, *et al*. Bonding structure in silicon nitride thin films containing silicon nano-particles

Passive Q-switching and Mode Locking of Pulsed Nd:YAG Laser with nc-Si/SN_x Multilayer

WANG Guo-li¹, GUO Heng-qun¹, SU Pei-lin¹, ZHANG Chun-hua¹,
WANG Qiming², XU Jun³, CHEN Kun-ji³

(1 College of Information Science and Engineering, Huaqiao University, Quanzhou 362021, China;

2 Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China;

3 Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

Abstract The nc-Si/SN_x superlattice was prepared by RF magnetron reaction sputtering technique and thermal annealing which made Si nanocrystals appear in the nc-Si films. In the experiment, the sample was inserted as saturable absorber into the resonator of Nd:YAG laser. The passive Q-switched operation of 1.064 μm laser was achieved when cavity-length was short, and a single pulse waveform of 23 ns-wide was measured. In addition, a single pulse train with average pulse duration of 35 ps was obtained when the cavity-length was set to

Key words laser techniques; nc-Si/SN_x superlattice thin film; Q-switched; mode-locked; RF magnetron reaction sputtering