

多波长飞秒激光激发下 GaAs 纳米线 SHG 特性研究*

张晓青¹⁾ 贺号^{1)†} 胡明列¹⁾ 颜鑫²⁾ 张霞²⁾ 任晓敏²⁾ 王清月¹⁾

1) (天津大学精密仪器与光电子工程学院, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300072)

2) (北京邮电大学信息光子学与光通信国家重点实验室, 北京 100876)

(2012年9月20日收到; 2012年11月6日收到修改稿)

本文基于有限元法研究了直立生长于 GaAs 衬底的 GaAs 纳米线的光场响应和光场增强性质. 实验使用多个波长的飞秒激光脉冲激发 GaAs 纳米线, 测得了较高效率的二次谐波信号, 并首次使用宽带超连续飞秒脉冲 (1000—1300 nm) 在纳米线上获取了宽带、无杂散荧光噪声的二次谐波信号. 这种高效的二次谐波产生过程主要归因于纳米结构引起的局域场增强效应. 本文阐明了 GaAs 纳米线的二次谐波倍频特性, 这些结果对于其在纳米光学中的光器件、光集成等领域的进一步研究和实际应用具有很好的参考价值.

关键词: GaAs 纳米线, 二次谐波, 飞秒激光

PACS: 61.46.Km, 42.65.Ky, 42.55.Wd

DOI: 10.7498/aps.62.076102

1 引言

半导体纳米线的纳米量级尺度带来的局域场增强效应, 使其呈现出独特的光学、电学、以及热学性质, 从而有效解决了传统半导体薄膜材料难以克服的多种问题^[1,2]. 近年来, 半导体纳米线在信息处理^[3]、能量转化与储存^[4]、生物样品操控^[5]等领域的发展十分迅速, 成为纳米光学中最为活跃的领域之一. 纳米线结构与强场脉冲之间相互作用所引起的非线性光学效应可以极大地提高材料的光吸收效率, 进而通过非线性吸收过程产生丰富的频率变换信号, 这一现象在纳米激光器^[6,7]、变频器^[8]、光学成像探针^[9]等领域的研究已经取得了重要进展. 最近的研究发现, 单根 ZnO, CdS 等半导体纳米线对某些波段的光激励具有明显的二次谐波产生 (second harmonic generation, SHG) 特性^[10,11], 并伴随着由激子辐射或晶体杂质导致的荧光噪声. 纳米结构的 SHG 信号在近场光学探测以及回音壁模式 (whispering gallery) 的纳米光学器件等领域都具有极高的应用价值^[9,12], 因此对纳米线结

构非线性光学效应的研究对于纳米光学器件的制备、应用和集成都具有重要意义.

GaAs 属直接带隙半导体材料, 禁带宽 (1.424 eV)、电子迁移率高, 具有很高的发光效率且生产工艺成熟, 已经广泛应用于半导体激光器、发光二极管、以及太阳能电池等光电器件的制造生产. 值得注意的是, 它的二阶非线性电极化率 $\chi^{(2)}$ 很大, 具有很高的激光损伤阈值且化学性质稳定, 是一种极具潜力的非线性光学材料^[13]. 因此, 本文对单晶结构 GaAs 纳米线的 SHG 效应进行了研究. 由于飞秒激光峰值功率高、脉宽窄、热效应小, 不会对纳米线结构造成破坏, 因此非常适合微结构材料非线性效应的研究. 本实验分别使用单波长和超连续飞秒脉冲研究 GaAs 纳米线的 SHG 特性, 并基于有限元法 (finite element method, FEM) 对纳米线的稳态和瞬态电场分布特点进行了模拟分析. 通过使用不同波长的飞秒激光脉冲对垂直于衬底纵向生长的 GaAs 纳米线进行轴向激发, 发现 GaAs 纳米线可以对 810 nm, 1041 nm 等波长实现倍频, 并且可以对 1000—1300 nm 的宽带超连续光源实现整个波段的倍频. 此外, 在上述倍频过程中

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB327600, 2011CB808101)、教育部博士点新教师基金 (批准号: 20110032120057) 和国家自然科学基金 (批准号: 61108080, 61020106007) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: haohe@tju.edu.cn

并没有发现伴随的荧光噪声, 倍频信号具有很高的信噪比.

2 GaAs 纳米线的有限元法数值模拟

本文所使用的是在 GaAs (111) 衬底上利用金催化方式生长的纯闪锌矿结构的 GaAs 纳米线. 单根纳米线的平均直径约为 110 nm, 平均长度约为 5 μm , GaAs 衬底上纳米线的分布密度约为

$10^9/\text{cm}^2$ [14], SEM 图像如图 1 所示.

近期的研究表明, 纳米线具有一定的表面波导特性 [15], 因而在纳米尺度下, 纳米线结构可以对电场产生很强的空间束缚效应. 根据实验所使用的 GaAs 纳米线样品的尺寸结构, 我们使用商用软件 COMSOL Multiphysics 对其进行建模并基于有限元法计算了光场与纳米线的相互作用. 计算中选取 GaAs 作为块状衬底, 其上直立分布直径为 110 nm, 高 5 μm 的 GaAs 柱状纳米线.

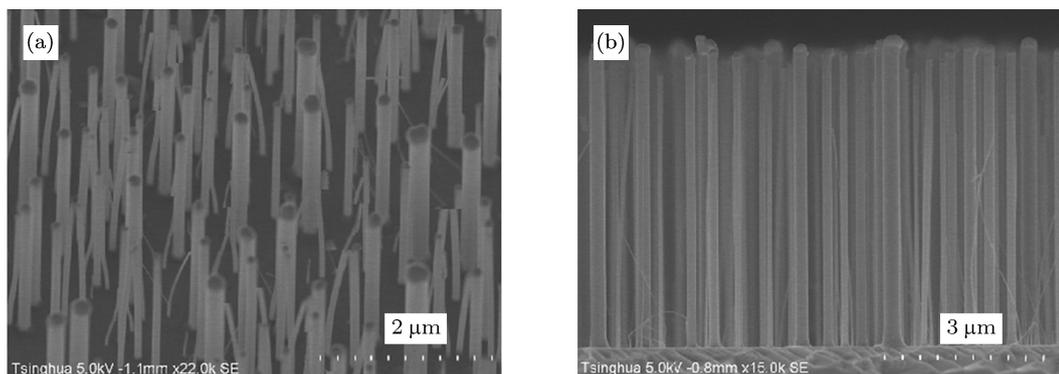


图 1 GaAs 纳米线 SEM 图像 (a) GaAs 纳米线分布均匀, 少数纳米线有小角度倾斜; (b) 纳米线高度几乎一致 (平均高度约 5 μm)

2.1 纳米线阵列稳态电场的线性响应

单个飞秒脉冲的时间尺度远大于其作用于纳米线上的时间长度, 为考察飞秒激光脉冲与纳米线相互作用时的电场分布情况, 可将准单色入射光波简化为平面波进行模拟以简化计算过程. 空气介质 (折射率 $n = 1$) 中, 令波长为 1041 nm 的平面波沿纳米线自上而下入射纳米线阵列. 入射电场为线偏振平面波, 由大小相等 (均为 1 V/m) 的 E_x 方向分量和 E_z 方向分量合成, 入射波矢方向为 $-y$, 模拟中采用散射边界条件. 用有限元法求解各区域的频域波方程

$$\nabla \times \mu_r^{-1} (\nabla \times E) - k_0^2 \left(\epsilon_r - \frac{j\sigma}{\omega\epsilon_0} \right) E = 0, \quad (1)$$

其中 E 表示求解域电场强度, 相对磁导率 $\mu_r = 1$, k_0 与 ω 分别对应入射光的频率和真空波矢, 与该入射波长 (1041 nm) 相对应的 GaAs 材料的复相对介电常数 $\epsilon_r = 3.492^2$ (虚部为 0)[16], ϵ_0 为真空介电常数, j 为虚数单位, 电导率 $\sigma = 0$. 由此计算得到的 x - y 平面内稳态电场强度分布如图 2 所示.

图 2(a) 为入射光波长为 1041 nm 时纳米线阵列的稳态电场强度分布. 可以看出, 纳米线阵列对

空间电场有显著的局域场增强效应, 即入射光在传播至纳米线阵列结构时, 光场会被限制在纳米线附近约 100 nm 的区域以内 (图 2(a)), 沿纳米线轴向产生明显的强度聚集现象. 若分别将入射电场设为单一 E_x 偏振 (图 2(b)) 和 E_z (图 2(c)) 偏振进行计算, 可以发现纳米线附近光场均出现了与偏振方向一致的明显增强. 纳米线所具有的这种表面场分布特性使得光场在一个很小的纳米尺度空间上达到了很高的电场强度, 这一现象应该与纳米线结构的表面等离子体效应有关 [17]. 考虑到 GaAs 纳米线自由端带有 Au 颗粒, 因此在 FEM 模拟时在每根纳米线自由端同时放置了厚度 10—150 nm 不等的 Au 颗粒 ($n = 0.2754$, $k = 7.1432$)[18] 分别进行电场强度分布模拟. 由图 2(d) 结果可以看出 (以厚 50 nm 的结果为例), 与无 Au 颗粒的纳米线相比, 除了由本征吸收引起的强度衰减更为明显之外, 自由端带有 Au 颗粒的纳米线的电场强度分布规律并无明显变化. 另外, 对纳米线横截面电场分布模式的模拟结果也进一步证明, 单根纳米线 (图 2(e)) 和直径 2 μm 的激光聚焦光斑激发区域内的纳米线阵列 (图 2(f)) 对 1041 nm 的入射光场具有强烈的表面场增强作用.

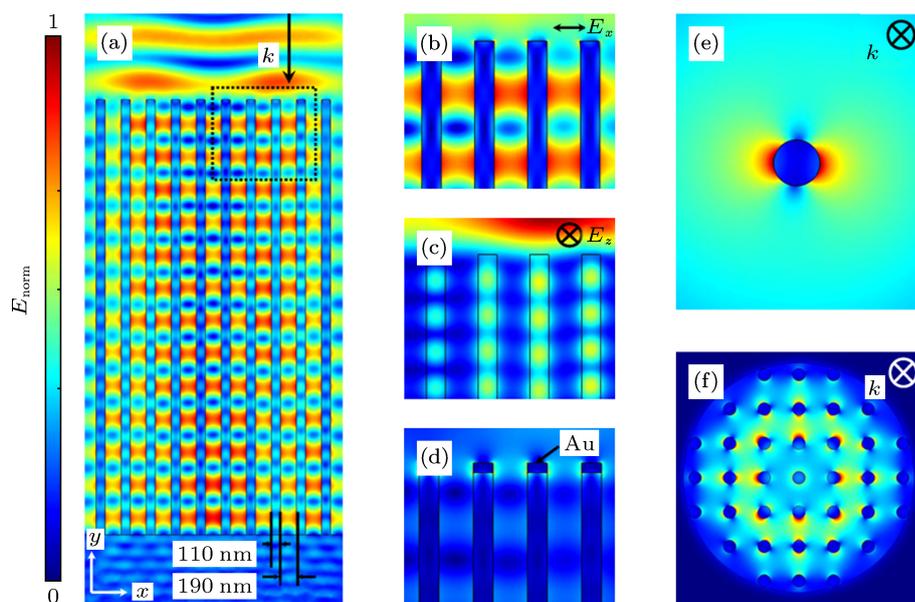


图2 入射光波长为 1041 nm 时纳米线阵列的稳态电场分布 (a) x - y 平面内纳米线阵列稳态电场分布. 单根纳米线直径为 110 nm, 相邻纳米线间距 190 nm, 入射光场沿 $-y$ 方向传播; (b) 入射光场为 E_x 偏振时 (a) 图虚线框区域内的稳态电场分布; (c) 入射光场为 E_z 偏振时 (a) 图虚线框区域内的稳态电场分布; (d) 纳米线自由端带有 Au 颗粒 (厚 50 nm) 时 (a) 图虚线框区域内的稳态电场分布; (e) 单根纳米线的横截面电场分布模式; (f) 直径 $2 \mu\text{m}$ 的光斑范围内纳米线阵列的横截面电场分布模式 (图中黑色实线为衬底和纳米线的轮廓线)

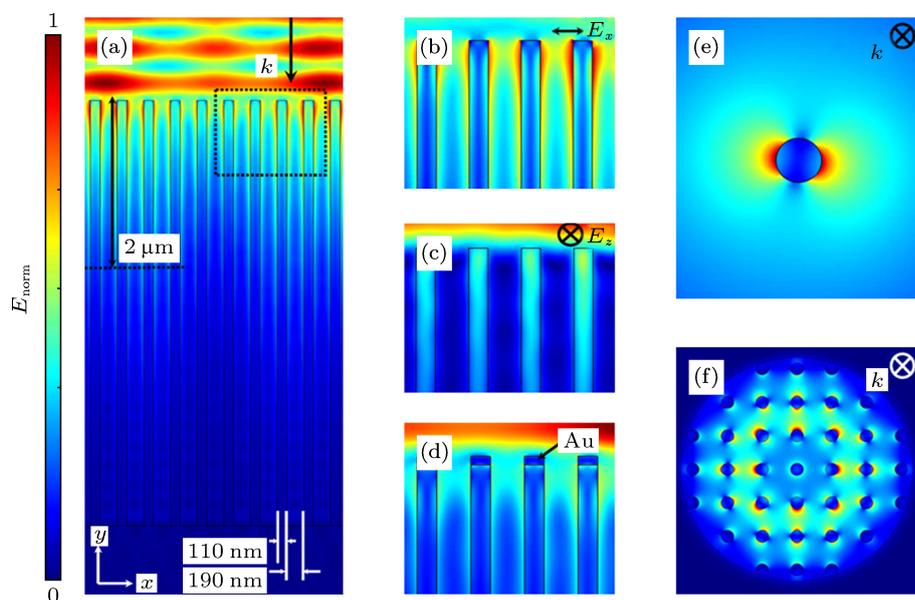


图3 入射光为 810 nm 时纳米线阵列的稳态电场分布 (a) x - y 平面内纳米线阵列稳态电场分布. 单根纳米线直径为 110 nm, 相邻纳米线间距 190 nm, 入射光场沿 $-y$ 方向传播, 沿纳米线传播 $2 \mu\text{m}$ 后电场强度出现明显减弱; (b) 入射光场为 E_x 偏振时 (a) 图虚线框区域内的稳态电场分布; (c) 入射光场为 E_z 偏振时 (a) 图虚线框区域内的稳态电场分布; (d) 纳米线自由端存在 Au 颗粒 (厚 50 nm) 时 (a) 图虚线框内区域的稳态电场分布; (e) 单根纳米线的横截面电场分布模式; (f) 直径 $2 \mu\text{m}$ 的光斑范围内纳米线阵列的横截面电场分布模式 (图中黑色实线为衬底和纳米线的轮廓线)

改变入射光波长为 810 nm, 取复相对介电常数 $\epsilon_r = (3.666 - 0.08j)^{2[16]}$, 其他条件保持不变, 重复上述模拟过程, 得到场分布如图 3 所示. 光场强度沿纳米线轴向呈现明显衰减, 在距离纳米线自由端

$2 \mu\text{m}$ 处近似衰减一半, 这一特征与半导体强烈的光吸收特性相符合 [19]. 纳米线表面场的分布特点与 1041 nm 入射光类似, 也具有强烈的局域场增强效应, 区别仅在于此时的纳米线对光强的衰减作用

有所增强,这一现象的产生与 GaAs 材料的吸收特性有关,下文中将进行进一步解释.

2.2 飞秒激光脉冲激发下纳米线的瞬态电场非线性响应及 SHG 信号产生

上文结论表明,纳米线结构对电场的稳态线性响应具有局域场增强效应,为进一步研究纳米线的非线性响应场特征,模拟了瞬态电场的信号输出.为简化模型仅使用单根纳米线作为运算对象,使用有限元法对模型纳米线区域的波方程

$$\nabla \times \mu_r^{-1}(\nabla \times E) + \mu_0 \sigma \frac{\partial E}{\partial t} + \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left(\epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial E}{\partial t} - D_r \right) = 0 \quad (2)$$

进行求解.其中 $\mu_r = 1$, μ_0 为真空磁导率, $\sigma = 0$, 设 ϵ_r 仅与激发波长有关, D_r 为剩余电位移矢量,表

征材料的二阶非线性特性,与电场强度的二次方呈正比.

令入射光为中心波长 1041 nm, 延时 $t_0 = 40$ fs, 脉宽 $dt = 70$ fs 的飞秒激光高斯型脉冲

$$E = E_0 \cos(\omega t + k_0 y) \exp(-(t - t_0)^2 / dt^2) e_x + E_0 \cos(\omega t + k_0 y) \exp(-(t - t_0)^2 / dt^2) e_z, \quad (3)$$

其中 $E_0 = 30$ kV/m, e_x 和 e_z 分别为 x 和 z 方向的单位矢量,入射光的偏振方向和波矢方向均与上文相同. GaAs 半导体属于 $\bar{4}3m$ 点群,是各向同性晶体,其二阶非线性极化率张量为

$$d_{ij} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{bmatrix},$$

其中三个非零元素 d_{14} 大小相等,模拟时取值在 1.13×10^6 pm/V 附近.

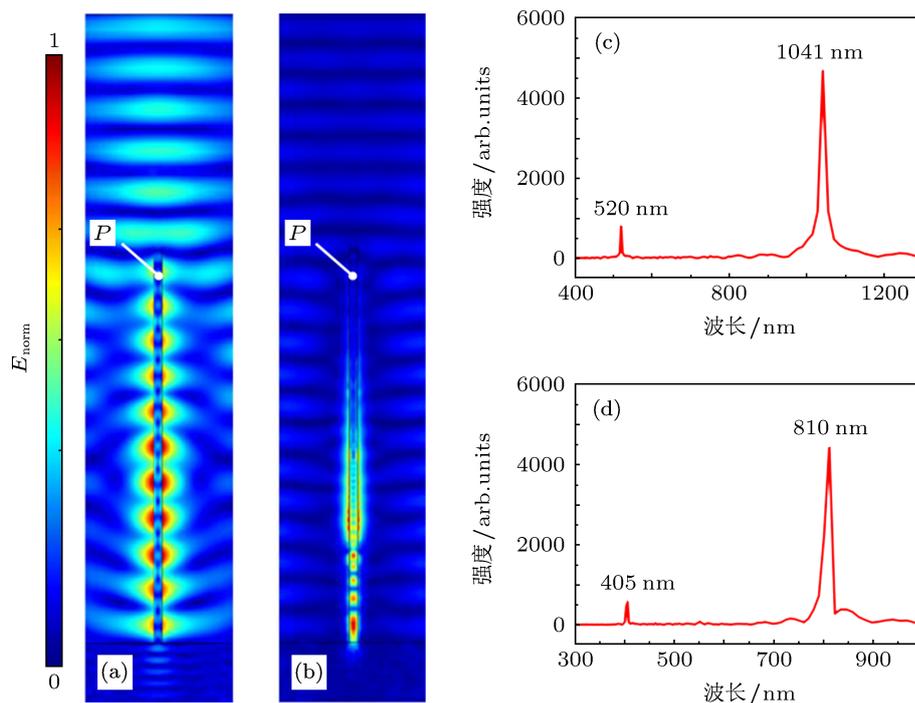


图4 不同波长的飞秒激光脉冲沿纳米线传播时的瞬态空间电场强度分布及傅里叶变换频谱 (a) 纳米线在 1041 nm 飞秒激光脉冲激发下, 80 fs 时刻的电场强度分布; (b) 纳米线在 810 nm 飞秒激光脉冲激发下, 80 fs 时刻的电场强度分布; (c) 1041 nm 飞秒脉冲激发下点探针 P 处 0—130 fs 内的傅里叶变换频谱 (点探针 P 在纳米线表面距自由端 0.3 μm 处放置); (d) 810 nm 飞秒脉冲激发下点探针 P 处 0—100 fs 内的傅里叶变换频谱 (点探针 P 在纳米线表面距自由端 0.3 μm 处放置) (电场分布图中黑色实线为衬底和纳米线的轮廓线)

将入射光从距纳米线自由端上方 3 μm 处进入空气介质的时刻记为 0 fs 时刻,对 0—130 fs 内纳米线的轴向电场强度分布进行实时观测 (时间间隔 2 fs),结果表明纳米线对入射光场始终呈现出明显

的局域场增强效应.图 4(a) 所示为 80 fs 时刻单根纳米线的瞬态电场强度分布图,可见在 1041 nm 飞秒激光脉冲的传播过程中,纳米线始终具有强烈的场增强效应.

对中心波长为 810 nm 的飞秒激光脉冲的模拟结果如图 4(b) 所示, 可见纳米线对飞秒脉冲的局域场增强效应也是普遍存在的. 对比图 4(a), (b), 之所以不同波长的入射场在纳米线中的场分布形态会出现较大差异, 通过替换材料的光学特征参数可知主要原因是不同波长对应的 GaAs 的消光系数存在较大差异. 对于较长波长的入射光场能量, GaAs 材料的吸收特性出现明显减弱, 特别是在 1041 nm 及更长波长范围内, GaAs 材料的吸收能力几乎为零, 这使得光场在传播过程中损耗较小, 分布较为均匀.

为得到二阶非线性过程对应的频谱, 在 P 点设置了探针以提取光场信息, 将该点的时变归一化电场强度信号进行傅里叶变换后得到相应光谱. 如图 4(c) 所示, 1041 nm 峰为基频光, 新出现的 520 nm 峰为非线性作用过程之后得到的倍频光. 类似地, 图 4(d) 中 810 nm 峰为基频光, 同时产生了 405 nm 的倍频信号.

上述有限元法数值模拟结果表明, GaAs 纳米线结构对于单光子能量在禁带宽度附近的入射光波都具有明显的束缚效应, 使得光子密度在空间和时间尺度上都很高, 在横向尺度远小于入射波长的条件下仍有明显的 SHG 信号产生. 对此现象一种

较为可能的推论是, 纳米线结构的局域场增强特性有助于大幅提高 GaAs 材料的非线性激发效率, 若采用具有极高光子密度的激发光源来泵浦, 很可能使 GaAs 材料在室温下产生高效可探测的 SHG 信号.

3 实验及讨论

飞秒激光峰值功率高、平均功率低, 不仅可以提供高光子密度的激发光源, 且有助于保护样品. 因此, 为验证上述现象, 使用飞秒激光作为抽运光源进行实验. 对前文所述尺寸的 GaAs 纳米线, 以不同波长的飞秒脉冲激发并测量其荧光信号光谱的探测装置如图 5 所示. 实验使用三种飞秒激光器作为激发光源, 分别为钛宝石激光器 (Millenia V 抽运, 中心波长 810 nm, 脉宽 75 fs, 重复频率 82 MHz), 光子晶体光纤飞秒激光器 (自制, 中心波长 1041 nm, 脉宽 70 fs, 重复频率 50 MHz), 以及由 1041 nm 飞秒激光器末端连接全固带隙光子晶体光纤 (图 5 中光纤 1) 所产生的超连续飞秒脉冲. 超连续谱宽范围约 600—1700 nm.

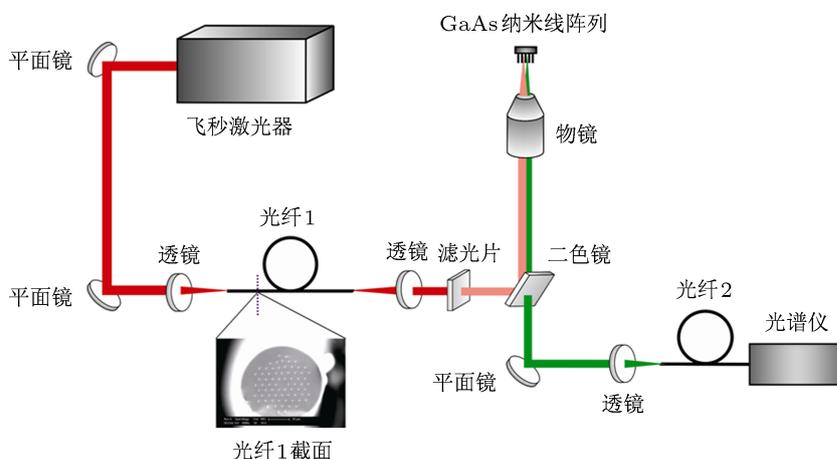


图 5 SHG 信号探测光路示意图 (飞秒激光器发出的激光光束由二色镜 (Semrock, HT:360—650 nm, HR:680—1080 nm) 反射, 通过显微物镜 (Olympus, 40 \times , NA=0.65) 沿垂直于纳米线衬底的方向聚焦到样品表面对其进行激发, 聚焦光斑尺寸约 2 μ m. 激发出的荧光信号透过二色镜用普通光纤 (SMA905, 直径 200 μ m, NA=0.22) 收集进入光谱仪 (Ocean Optics SD 2000) 进行分析处理. 光纤 1 为用于产生超连续飞秒脉冲的全固带隙光子晶体光纤, 下方插图为其纤芯截面的 SEM 图像; 光纤 2 是普通光纤, 为光谱仪收集荧光信号. 二色镜前使用 1000 nm 的滤光片将激发光谱宽限制在 1000—1700 nm)

当 1041 nm 的飞秒激光脉冲 (50 mW) 对 GaAs 纳米线进行激发时, 可以观察到明显的绿光倍频信号, 其基频与倍频光谱如图 6(a) 所示, 倍频光谱中心波长为 520 nm, 没有其他杂散峰值, 实现了对基频光的严格倍频. 作为对照, 如果直接使用飞秒激

光对 GaAs 块状衬底进行激发, 在激发光功率增加到 1 W 时, 可在光谱仪上观察到 SHG 信号, 可见 GaAs 纳米线结构可以有效提高 GaAs 半导体材料的非线性激发效率. 图 6(b) 定量测量了不同激发功率下产生的荧光信号强度值, 发现激发功率大小

对 SHG 信号的谱宽没有影响. 取各激发功率下的 SHG 信号光谱峰值强度, 得到图 6(c) 所示的激发光功率²-SHG 强度曲线, 发现二者之间存在很好的线性关系, 符合 SHG 激发生规律^[20], 不存在多光子激发和弛豫, 这与理论计算和预期是相符的.

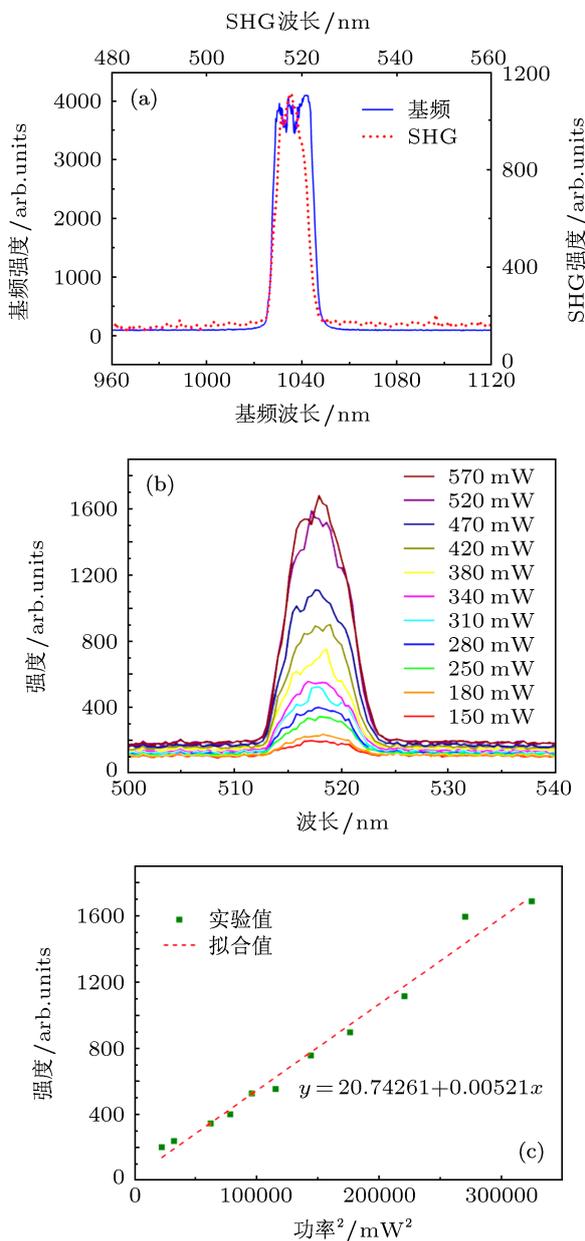


图 6 中心波长 1041 nm 飞秒激光激发下 (a) 基频信号与 SHG 信号光谱图; (b) 不同功率激发下的 SHG 光谱图; (c) 激发光功率²-SHG 光谱峰值强度及其拟合直线 (图中功率为激光器输出功率, 到达样品处的耦合效率约为 45%)

在此结果之上, 我们尝试了更短波长的倍频. 以钛宝石激光器产生的中心波长为 810 nm 的飞秒脉冲作为激发光源 (单光子能量大于 GaAs 禁带宽度 (1.424 eV)), 得到基频光谱以及纳米线产生的

SHG 光谱如图 7(a) 所示, SHG 信号的中心波长为 405 nm. 改变激发功率测量 SHG 信号 (图 7(b)), 可见荧光强度随激发功率增大而增大且对光谱宽度没有影响. 取不同功率下光谱峰值强度作图并进行线性拟合 (图 7(c)), 可见实验值与拟合值高度符合.

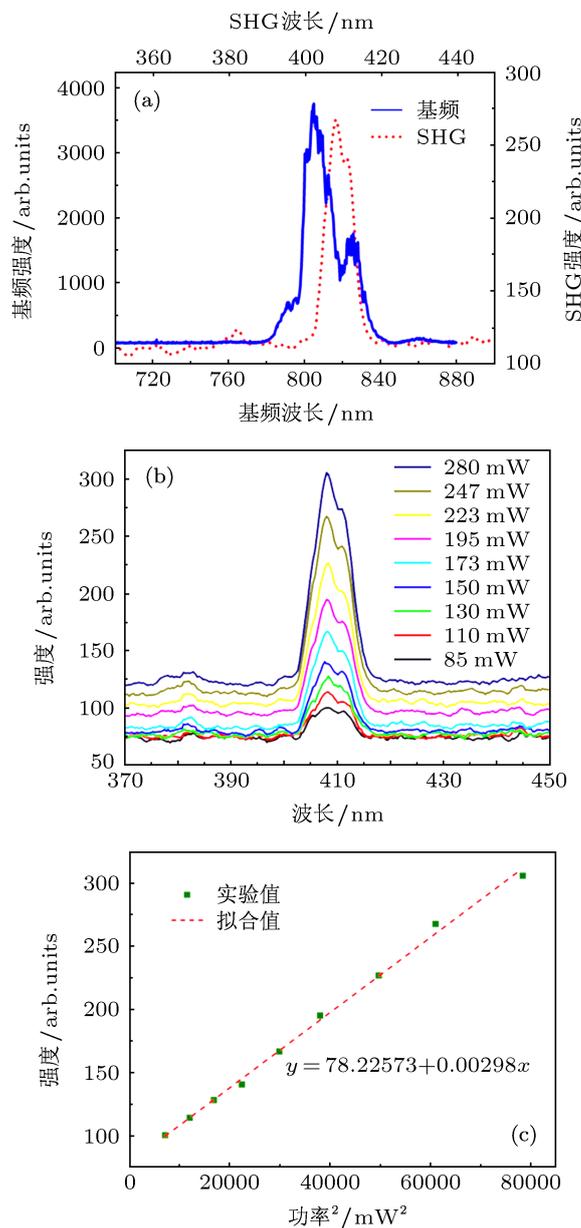


图 7 中心波长 810 nm 飞秒激光激发下 (a) 基频信号与 SHG 信号光谱图; (b) 不同功率激发下的 SHG 光谱图; (c) 激发光功率²-SHG 光谱峰值强度及其拟合直线 (图中功率为激光器输出功率, 到达样品处的耦合效率约为 45%)

进一步地, 我们考察了这种纳米线结构是否有可能同时对一个宽波段的脉冲光实现整体的倍频. 实验使用全固带隙光子晶体光纤将中心波长为 1041 nm 的飞秒激光脉冲展宽成 600—1700 nm

的超连续光,为排除可见光波段对荧光测量的影响,使用 1000 nm 的滤光片对激发光进行了滤光处理,将其限制在 1000—1700 nm 波段.由于实验光路中二色镜的高透波段范围有限,因此只能收集到 1000—1300 nm 的激发光所产生的倍频光.超连续光最高功率输出为 460 mW,到达样品处约为 200 mW,平均每纳米带宽的功率不足 1 mW.实验结果如图 8(a) 所示,光谱位于 1000—1300 nm 波段的超连续基频光经过纳米线的倍频作用之后,得到了波长为 500—650 nm 的倍频光谱,由此可见 GaAs 纳米线的确具有宽谱连续倍频的特性,且满足 SHG 的激发规律(图 8(c)).

SHG 效应对晶体材料中原子或分子的组织结构以及材料的纳米结构都非常敏感^[21].常温下 GaAs 半导体禁带宽度为 1.424 eV,波长 1041 nm (1.19 eV) 以及谱宽 1000—1300 nm 的超连续光 (0.954—1.24 eV) 的单光子能量均大于 GaAs 的半禁带宽度,单个入射光子的能量借助激子吸收过程跃迁至禁带,并在飞秒脉冲极高的光子密度条件下借助虚拟能级辅助的边带跃迁过程形成电子-空穴对储存能量.纳米线结构的尺寸效应能够形成强烈的电场约束使得纳米线的局部态密度显著增强,从而使上述双光子吸收过程所形成的大量电子-空穴对很容易复合回到基态,同时产生 SHG 信号.对于 810 nm 波长的激发光 (1.55 eV),单光子吸收即可满足形成电子-空穴对所需能量.由于单光子能量与禁带宽度相近,单光子激发形成的电子-空穴对复合率很高从而降低了双光子吸收效率,但实验发现在飞秒激光脉冲的强场作用下,电子仍有较大概率能够吸收两个光子的能量跃迁至导带形成电子-空穴对,并通过复合产生 SHG 信号.

上述实验表明,与模拟结果相一致, GaAs 纳米线对于 810 nm 和 1041 nm 两种波长的飞秒脉冲都具有良好的倍频作用,且在更宽波段内 (1000—1300 nm) 也可以实现宽谱连续倍频,这一结果远大于已有文献报道的半导体纳米线倍频光谱宽度^[10].实验中并没有观察到参考文献 [10] 中所描述的 ZnO 纳米线 SHG 光谱中由激子辐射和晶体缺陷辐射所产生的另外两个峰值,因此 GaAs 纳米线的倍频信号具有更少的杂散峰和更高的信噪比.此外,纳米线阵列结构有利于纳米线的高密度集成,从而增大光场与纳米线的作用面积,与已报道的单根纳米线产生的 SHG 信号相比,这一结构可以进一步有效提高 SHG 效应的发光效率,并且在结构

上也更为简单稳固.

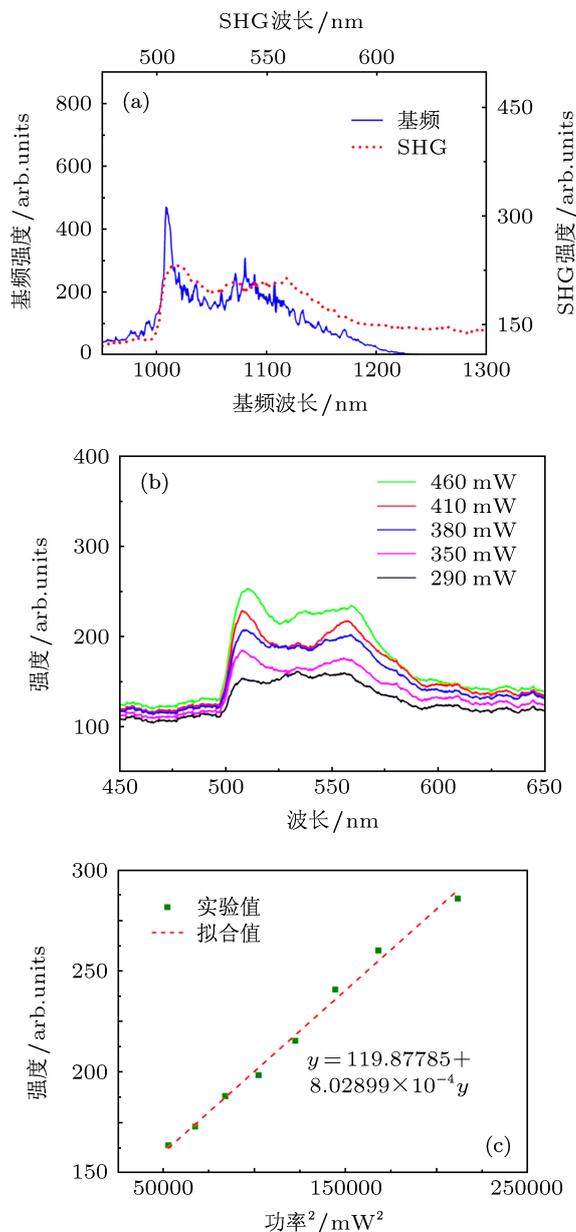


图 8 超连续飞秒脉冲激发下 (a) 基频信号与 SHG 信号光谱图 (其中 SHG 信号光谱已做平滑处理); (b) 不同功率激发下的 SHG 光谱图 (其中各曲线已做平滑处理); (c) 激发功率²-SHG 光谱峰值强度及其拟合直线 (图中功率为激光器输出功率,到达样品处的耦合效率约为 45%)

4 结论

本研究首次发现 GaAs 纳米线对于 810 nm 和 1041 nm 的准单色飞秒激光以及 1000—1300 nm 的超连续飞秒脉冲光可以实现宽谱精确倍频.飞秒脉冲激发 GaAs 纳米线材料产生 SHG 信号的倍频效率远高于 GaAs 体材料,且没有伴随的荧光噪声.实验中倍频效率的增强主要来自于纳米线对光场

的场束缚和场增强作用, 使用有限元法的模拟计算结果也符合这一设想. GaAs 纳米线所具有的这种宽带多波长的 SHG 特性对于纳米线非线性光学性

质的理论研究, 以及纳米光学器件集成、高速数据传输、纳米传感器等众多纳米光学领域的应用研究都具有重要意义.

- [1] Qin J M, Tian L F, Zhao D X, Jiang D Y, Cao J M, Ding M, Guo Z 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 107307 (in Chinese) [秦杰明, 田立飞, 赵东旭, 蒋大勇, 曹建明, 丁梦, 郭振 2011 物理学报 **60** 107307]
- [2] Ren S T, Wang Q, Zhao F, Qu S L 2012 *Chin. Phys. B* **21** 038104
- [3] Yan H, Choe H S, Nam S W, Hu Y, Das S, Klemic J F, Ellenbogen J C, Lieber C M 2011 *Nature* **470** 240
- [4] Garnett E, Yang P 2010 *Nano Lett.* **10** 1082
- [5] Patolsky F, Timko B P, Zheng G, Lieber C M 2007 *Mrs Bulletin* **32** 142
- [6] Johnson J C, Choi H, Knutsen K P, Schaller R D, Yang G P, Saykally R J 2002 *Nature Mater.* **1** 106
- [7] Liu R B, Zou B S 2011 *Chin. Phys. B* **20** 047104
- [8] Johnson J C, Yan H, Schaller R D, Petersen P B, Yang P, Saykally R J 2002 *Nano Lett.* **2** 279
- [9] Nakayama Y, Pauzauskie P, Radenovic A, Onorato R, Saykally R, Liphardt J, Yang P 2007 *Nature* **447** 1098
- [10] Prasanth R, van Vugt L K, Vanmaekelbergh D A M, Gerritsen H C 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 181501
- [11] Barrelet C J, Ee Ho-Seok, Kwon S, Park H 2011 *Nano Lett.* **11** 3022
- [12] Zhang Y, Zhou H, Liu S W, Tian Z R, Xiao M 2009 *Nano Lett.* **9** 2109
- [13] Fan W, Zhang S, Panoiu N-C, Abdenour A, Krishna S, Osgood Jr. R M, Malloy K J, Brueck S R J 2006 *Nano Lett.* **6** 1027
- [14] Ye X, Huang H, Ren X, Yang Y, Guo J, Huang Y, Wang Q 2010 *Chin. Phys. Lett.* **27** 046101
- [15] Carl J B, Andrew B G, Lieber C M 2004 *Nano Lett.* **4** 1981
- [16] Lide D R 2009 *CRC handbook of chemistry and physics: a ready-reference book of chemical and physical data, 90 th Edition* (CRC Press)
- [17] Duan X, Wang J, Lieber C M 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 1116
- [18] Palik E D 1985 *Handbook of Optical Constants of Solids* (Boston, Academic Press)
- [19] Ditlbacher H, Hohenau A, Wagner D, Kreibig U, Rogers M, Hofer F, Aussenegg F, Krenn J R 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 257403
- [20] Lu C, Huang W, Luan J, Lu Z, Qian Y, Yun B, Hu G, Wang Z, Cui Y 2008 *Opt. Commun.* **281** 4038
- [21] Gualtieri E J, Hauptert L M, Simpson G J 2008 *Chem. Phys. Lett.* **465** 167

Optical SHG properties of GaAs nanowires irradiated with multi-wavelength femto-second laser pulses*

Zhang Xiao-Qing¹⁾ He Hao^{1)†} Hu Ming-Lie¹⁾ Yan Xin²⁾ Zhang Xia²⁾
Ren Xiao-Min²⁾ Wang Qing-Yue¹⁾

1) (*Ultrafast Laser Laboratory, School of Precision Instruments & Optoelectronics Engineering, Tianjin University; Key Laboratory of Optoelectronic Information Technical Science, Chinese Ministry of Education, Tianjin 300072, China*)

2) (*Key Laboratory of Information Photonics and Optical Communications, Ministry of Education, Beijing University of Posts and Telecommunications, Beijing 100876, China*)

(Received 20 September 2012; revised manuscript received 6 November 2012)

Abstract

The nonlinear optical properties of semiconductor nanowires are of vital importance in the researches of nano-optics and fabrication of nano-scale optoelectronic components. GaAs is a direct bandgap semiconductor material of wide bandgap, high electron mobility, large $\chi^{(2)}$, high laser damage threshold and stable chemical properties, all of which make it a potential nonlinear optical material. In this report, based on the finite element method (FEM), we investigated the optical response and local field enhancement of GaAs nanowires perpendicular to the GaAs substrate surface. Under the radiation of femto-second laser pulses at different wavelengths, efficient second harmonic generation (SHG) signal was acquired from the nanowires. Furthermore, noise-free broadband SHG signal was also detected to be excited by super-continuous femto-second pulses (1000–1300 nm). The high-efficiency SHG process could be attributed mainly to the local field enhancement effect of the nanowires. Our investigation is the first, as far as we know, demonstrate the SHG properties of GaAs nanowires, and the results suggest that GaAs nanowires are promising in the potential applications in nano-scale optical devices, integrated nanophotonic circuits, from which related nano-optics researches can benefit.

Keywords: GaAs nanowire, second harmonic generation, femto-second laser

PACS: 61.46.Km, 42.65.Ky, 42.55.Wd

DOI: 10.7498/aps.62.076102

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2010CB327600, 2011CB808101), the New Teachers' Foundation for Doctor Stations of Ministry of Education of China (Grant No. 20110032120057), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61108080, 61020106007).

† Corresponding author. E-mail: haohe@tju.edu.cn