

ЛАЗЕРНАЯ ГЕНЕРАЦИЯ МИКРОКРИСТАЛЛИТОВ ZnO
ПРИ ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

© 2013 г. Л. Е. Ли, А. С. Лавриков

Институт кристаллографии РАН, Москва

E-mail: lyuli@ns.crys.ras.ru

Поступила в редакцию 28.09.2012 г.

Проведены высокотемпературные исследования спектрально-люминесцентных и генерационных характеристик основных полос, обуславливающих УФ-излучение микрокристаллических объектов на основе оксида цинка – спонтанной люминесценции, линий модовой структуры стимулированного излучения, а также полосы рекомбинации электронно-дырочной плазмы. В качестве объектов исследований использовались микрокристаллиты ZnO тетраподной морфологии, генерирующие по типу II (микролазер) [1]. Это позволило детально изучить температурное поведение ряда основных параметров, связанных с особенностями генерации микролазеров.

DOI: 10.7868/S0023476113060180

Оксид цинка – широкозонный полупроводник ($\Delta E \sim 3.37$ эВ). Экстремально высокое для полупроводников группы $A^{II}B^{VI}$ значение энергии связи экситона (ZnO – 60, GaN – 26, ZnSe – 20 мэВ) обеспечивает существование УФ-люминесценции, обусловленной прямой рекомбинацией экситонов вплоть до температуры 550 К. Согласно [2], оксид цинка считается материалом максимально адаптированным для создания на его основе поляритонного лазера, работающего при комнатной температуре. Существует несколько работ, в которых проводились исследования спектров стимулированного излучения оксида цинка при высоких температурах [3–5]. Эти работы были проведены на поликристаллических пленках, генерация стимулированного излучения в которых реализуется по типу I – классические стохастические лазеры (*random laser*). В экспериментах в [1] использовались объекты ZnO, генерирующие по типу II – микролазеры. При высоких температурах были проведены исследования основных полос, обуславливающих УФ-излучение микрокристаллических объектов на основе оксида цинка – спонтанной люминесценции, модовой структуры линий стимулированного излучения, а также полосы рекомбинации электронно-дырочной плазмы (ЭДП).

Исследования лазерной генерации при повышенных температурах имеют глубокий научный и практический интерес. Температурное поведение полос в спектре излучения, связанных с разными механизмами рекомбинации экситонов в возбужденной среде, позволит уточнить и выявить основные процессы, участвующие в возникновении лазерной генерации микрокристаллических объектов ZnO. Практическое значение планируемых

исследований связано с уточнением температурного диапазона работы лазера на основе оксида цинка. Исследование спектрально-люминесцентных и генерационных характеристик при высоких температурах откроет новые возможности микро- наноразмерного лазерного материала на основе оксида цинка.

В качестве объектов исследований использовались микрокристаллиты ZnO (рис. 1а) с морфологией тетраподов, генерирующие по типу II (микролазеры) [1]. Микрокристаллические объекты оксида цинка с тетраподной морфологией были получены методом карботермального пиролитического синтеза [6]. На рис. 1а представлена микрофотография образца микрокристаллического оксида цинка, получаемого этим методом.

Возбуждение осуществлялось третьей гармоникой импульсного YAG:Nd³⁺ лазера ($\lambda = 355$ нм, $\tau \sim 5$ –10 нс). Спектры излучения регистрировались на спектрометре-полихроматоре типа МС-300 (решетка 1800 штр./мм, разрешение 0.15 нм), оснащенном CCD-линейкой. Такая схема позволяла регистрировать спектры излучения от одной вспышки возбуждения [7].

На рис. 1б представлены спектры, демонстрирующие температурные изменения в модовой структуре спектра генерации микрокристаллита ZnO. Повышение температуры приводило к красному смещению максимума контура усиления, которое проявлялось в перераспределении интенсивностей компонент модовой структуры (рис. 1б). С ростом температуры частота отдельной лазерной моды монотонно смещалась в длинноволновую область (скорость смещения ~ 0.018 нм К⁻¹). Положение моды резонатора определяется nl , где n – индекс рефракции, l –

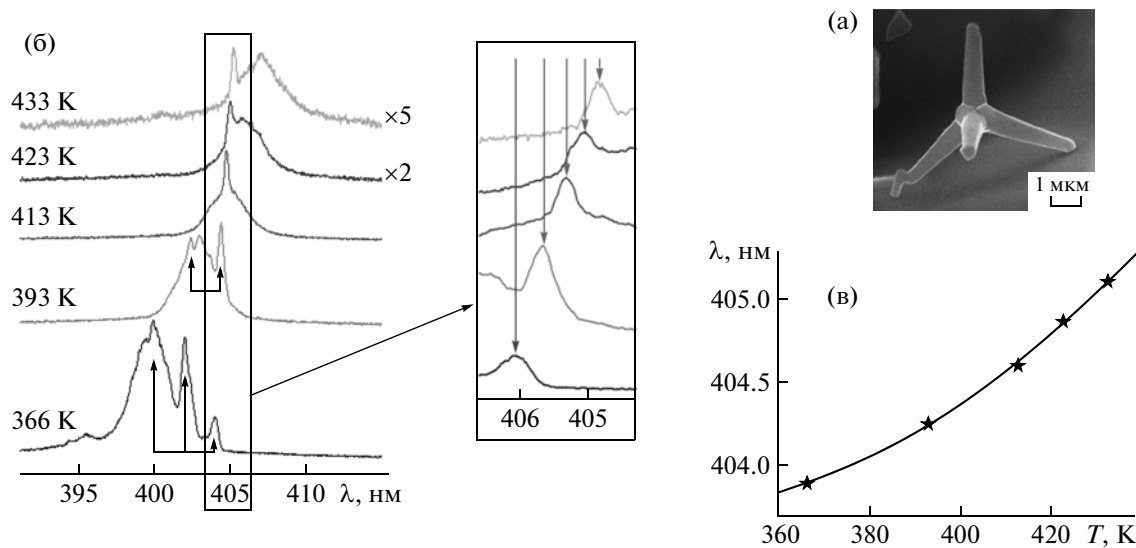


Рис. 1. СЭМ-изображение тетрапода ZnO [1] (а); температурное изменение модовой структуры в спектре генерации (б). Стрелками указаны эквидистантные линии модовой структуры. На врезке показано смещение отдельной модовой линии резонатора. Кривая температурного смещения частоты отдельной моды (в).

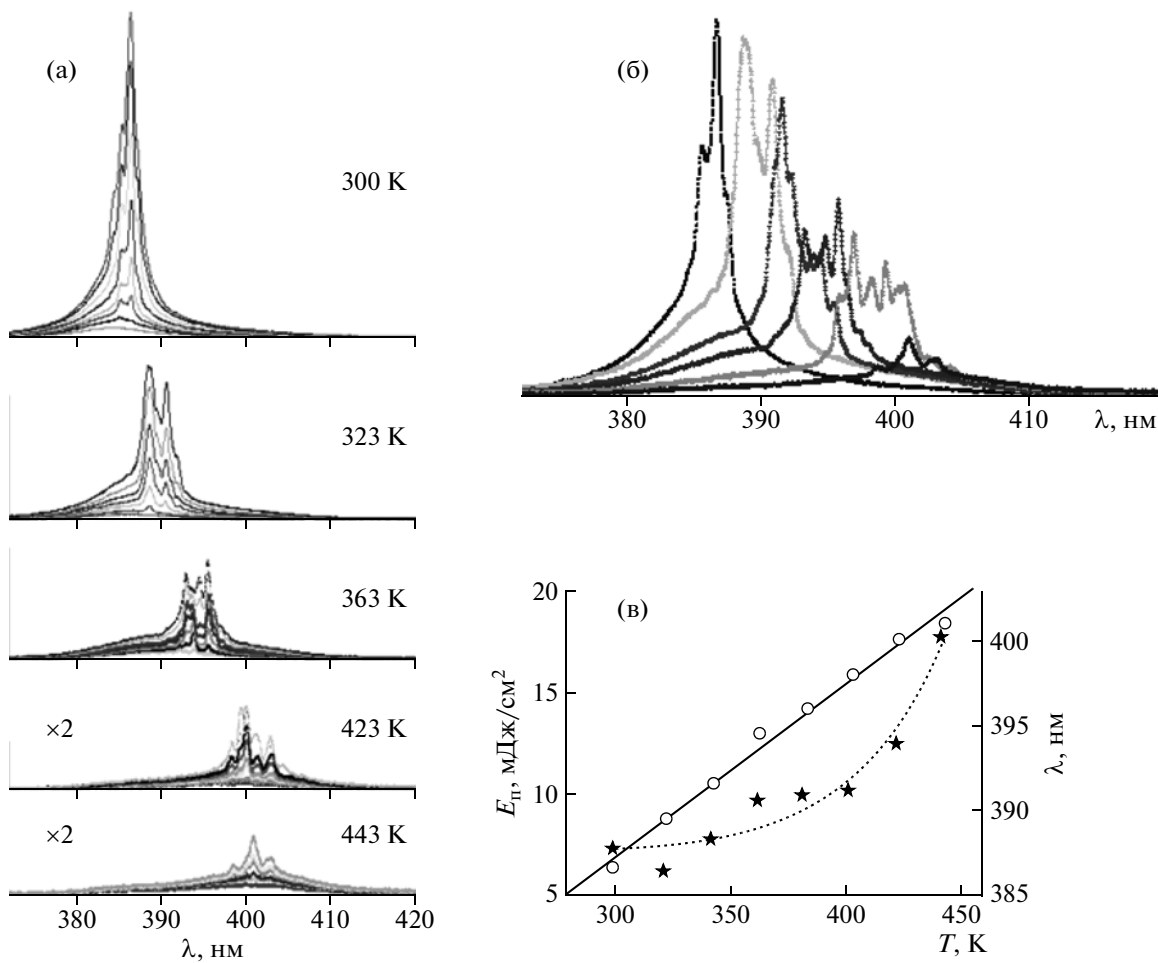


Рис. 2. Спектры стимулированного излучения: а – в нескольких фиксированных температурных точках, полученные при разных уровнях накачки, б – полученные при максимальном возбуждении в разных температурных точках, в – температурные зависимости пороговой энергии возбуждения стимулированного излучения (★) и положения максимума полосы усиления (●).

длина резонатора. Так как коэффициент температурного расширения для оксида цинка порядка 10^{-6} K^{-1} (по a_0 : 6.5×10^{-6} , по c_0 : $3.0 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$), а величина температурного смещения моды на порядок выше — 4.5×10^{-5} , был сделан вывод о том, что основной вклад в смещение моды обусловлен температурным ростом индекса рефракции на этой частоте. Температурное сужение запрещенной зоны оксида цинка приводит к красному смещению полосы собственного поглощения, которое вызывает увеличение индекса рефракции на частоте рассматриваемой моды.

Таким образом, по смещению компоненты модовой структуры в спектре стимулированного излучения можно получить значение относительного температурного изменения индекса рефракции. В данном случае коэффициент теплового изменения индекса рефракции получился $\sim 4.45 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$. Эти измерения позволили впервые косвенно оценить температурное изменение индекса рефракции на частоте моды.

На рис. 2 представлены высокотемпературные спектры стимулированного излучения микрокристаллического оксида цинка. В проведенных экспериментах УФ-люминесценция наблюдалась вплоть до 510 К. Генерация стимулированного излучения с четкой модовой структурой наблюдалась до 443 К (рис. 2а). Рост температуры вызывал смещение в красную область полосы спонтанной люминесценции, максимума контура усиления стимулированного излучения и линии рекомбинации ЭДП. Средняя скорость смещения $\sim 0.1 \text{ nm K}^{-1}$ (рис. 2в). Такое смещение связано с температурным сужением ширины запрещенной зоны, обусловленным электрон-фононным взаимодействием. С ростом температуры наблюдалось увеличение пороговой энергии возбуждения

стимулированного излучения. Экспериментальные точки и полиномиальное приближение, построенное по этим точкам, представлено на рис. 2в.

Таким образом, проведенные исследования позволили определить температурный предел работы лазера на базе микрокристаллитов оксида цинка, синтезированных методом карботермального пиролитического синтеза [6]. Модовая структура в спектре стимулированного излучения микролазеров наблюдалась вплоть до 443 К. Выявлена взаимозависимость температурного поведения интенсивностей исследованных линий, что, возможно, является дополнительным подтверждением тесной связи процессов экситон-фотонного взаимодействия, лежащих в природе возникновения модовой структуры стимулированного излучения и полосы ЭДП в микролазерах ZnO.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке государственного контракта № 16.523.11.3005

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Li L.E., Demianets L.N. // Opt. Mater. 2008. V. 30 (7). P. 1074.
2. Zamfirescu M., Kavokin A., Gil B. et al. // Phys. Rev. B. 2002. V. 65. P. 161205.
3. Li H.D., Yu S.F., Lau S.P. et al. // Adv. Mater. 2006. V. 18. P. 771
4. Yang H.Y., Lau S.P., Yu S.F. et al. // Appl. Phys. Lett. 2006. V. 89. P. 011103.
5. Bagnall D.M., Chen Y.F., Zhu Z. et al. // Appl. Phys. Lett. 1998. V. 73. P. 1038
6. Демьянец Л.Н., Ли Л.Е., Лавриков А.С., Никитин С.В. // Кристаллография. 2010. Т. 55(1). С. 149.
7. Ли Л.Е., Демьянец Л.Н. // Кристаллография. 2008. Т. 53(4). С. 707.