

УСИЛЕНИЕ КРАЕВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НАНОСТЕРЖНЕЙ ZnO В МАГНИТНОМ ПОЛЕ

Ч. М. Брискина¹, А. П. Тарасов^{1,2*}, В. М. Маркушев¹, М. А. Ширяев³

УДК 535.37;620.3

¹ Институт радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова Российской АН, Москва, Россия² Московский физико-технический институт,

141701, Московская обл., Долгопрудный, Институтский пер., 9, Россия; e-mail: tarasov.ap@phystech.edu

³ Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова, Москва, Россия

(Поступила 18 апреля 2018)

Обнаружено усиление УФ люминесценции и случайной лазерной генерации неупорядоченных массивов наностержней ZnO с Ag-покрытием в магнитном поле ~1 Тл при комнатной температуре. Предложен возможный вариант интерпретации эффекта, основанный на предположении о формировании магнитоэкситонов в ZnO под действием магнитного поля в присутствии поверхностного плазмонного резонанса.

Ключевые слова: люминесценция, оксид цинка, экситон, стохастическая лазерная генерация, наночастицы серебра, магнитное поле, магнитоэкситон, плазмон, поверхностный плазмонный резонанс.

The enhancement of UV luminescence and random lasing of disordered arrays of ZnO nanorods with Ag coating has been found in the magnetic field of about 1 T at room temperature. A possible interpretation of the effect is suggested based on the assumption of the formation of magnetoexcitons in ZnO under the magnetic field action in the presence of surface plasmon resonance.

Keywords: luminescence, zinc oxide, exciton, random lasing, silver nanoparticle, magnetic field, magnetoexciton, plasmon, surface plasmon resonance.

Исследования влияния магнитного поля (МП) на излучение, обусловленное экситонной рекомбинацией, представляют интерес как минимум с двух точек зрения. Результаты таких исследований могут быть использованы для управления лазером, работающим на экситонном излучении, а также дать новую информацию о природе самих экситонов. Влияние МП на различные характеристики рекомбинационного излучения экситонов изучается уже продолжительное время. Как правило, такие работы касаются проявляющихся в МП особенностей поглощения и отражения света в спектральной области существования экситонов.

Насколько нам известно, эксперименты по влиянию МП на интенсивность экситонного излучения проводились только для Ge [1] и GaAs [2—4]. В работе [1] увеличение интенсивности экситонного излучения напряженных кристаллов Ge наблюдалось в МП ~1—2 Тл. В [2, 3] исследована низкотемпературная люминесценция экстремально чистых эпитаксиальных пленок GaAs в средних МП (~7 Тл), получено 20-кратное возрастание интенсивности излучения. В работе [4] проведены эксперименты по влиянию МП на интенсивность экситонного излучения пленок GaAs при температурах 1.5—8 К и обнаружено значительное усиление люминесценции при увеличении МП от 0 до 7 Тл.

Обладая высокой энергией связи экситонов (60 мэВ), оксид цинка предоставляет возможность наблюдать и исследовать экситонную люминесценцию и лазерную генерацию при комнатной и более высоких температурах. Цель настоящей работы — изучение влияния относительно слабого (~1 Тл) МП на краевое излучение пленок ZnO при комнатной температуре.

Исследуемые пленки ZnO, выращенные газофазным методом на Si-подложках, состоят из случайно ориентированных наностержней (рис. 1). Покрытие Ag-наночастицами осуществлялось с по-

ENHANCEMENT OF EDGE EMISSION OF ZnO NANORODS IN MAGNETIC FIELD

Ch. M. Briskina¹, A. P. Tarasov^{1,2,*}, V. M. Markushev¹, M. A. Shiryaev³ (¹ Kotelnikov Institute of Radio-Engineering and Electronics of Russian Academy of Sciences, Moscow, 125009, Russia; ² Moscow Institute of Physics and Technology (State University), 9 Institutskiy Per., Dolgoprudny, Moscow Region, 141701, Russia; e-mail: tarasov.ap@phystech.edu; ³ Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991, Russia)

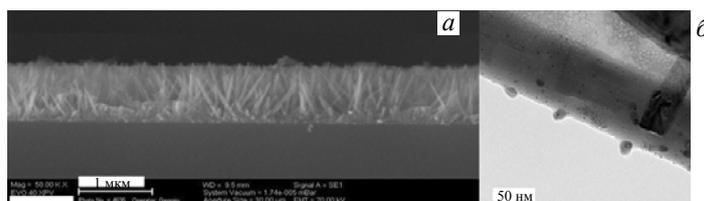


Рис. 1. Микрофотографии пленки ZnO с наночастицами Ag, полученные с помощью растрового (а) и просвечивающего (б) электронных микроскопов

мощью восстановления нитрата серебра в результате УФ облучения. Размеры осажденных наночастиц ~ 5 — 20 нм.

Возбуждение УФ люминесценции и случайной (стохастической) лазерной генерации (СЛГ) образцов осуществлялось третьей гармоникой (355 нм) импульсного YAG:Nd-лазера (длительность импульса ~ 10 нс, частота повторения 15 Гц). Лазерная накачка фокусировалась на поверхности образца в пятно размером ~ 300 мкм. Регистрировалось краевое излучение образцов при наличии и в отсутствие МП с индукцией ~ 1 Тл, создаваемого системой из двух неодимовых магнитов и ориентированного в плоскости образца (параллельно подложке). Для регистрации излучения использованы фотоэлектронный умножитель (ФЭУ), позволяющий с большой чувствительностью регистрировать оптический сигнал пошаговым методом (по длине волны), и ПЗС-камера, с помощью которой можно регистрировать спектры от отдельного импульса накачки.

Первоначально эффект усиления краевого излучения зарегистрирован на пленке с Ag-покрытием с помощью ФЭУ без накопления (рис. 2, а). Аналогичный результат получен при регистрации ПЗС-камерой с накоплением 100 импульсов (рис. 2, б). В спектрах образцов ZnO без Ag-покрытия, зарегистрированных как ПЗС-камерой, так и ФЭУ, эффект не обнаружен, что свидетельствует об определенной роли Ag в его возникновении. Отметим, что и на образцах ZnO/Ag были места, где эффект отсутствовал.

Для количественной оценки наблюдаемого эффекта использована интегральная интенсивность излучения (значение интеграла по длинам волн в пределах всего зарегистрированного спектра излучения). Увеличение интегральной интенсивности в МП для одного из образцов составило 4 % при уровне накачки 8.1 мДж/см² и 2 % при 1.8 мДж/см². Таким образом, наблюдаемый эффект зависит от уровня накачки. Отметим, что изменение угла между образцом и линиями МП на $\sim 30^\circ$ заметно на результатах не отражалось. По-видимому, это обусловлено случайной ориентацией наностержней ZnO в исследуемых пленках.

Использование интегральных интенсивностей приводит к усреднению сильно различающихся величин. Это видно на рис. 2, в, где приведена спектральная зависимость увеличения интенсивности (усиления), соответствующая случаю на рис. 2, б. Отношение интегральных интенсивностей на рис. 2, б составляет ~ 1.05 (усиление в МП 5 %). При этом усиление в центральной области спектра, где присутствует СЛГ, достигает ~ 20 %, а в области люминесценции ~ 1 — 2 % (рис. 2, в). Как известно, вероятность вынужденного перехода определяется произведением сечения этого процесса и интенсивности возбуждающего излучения, которая в свою очередь пропорциональна вероятности перехода. Этим частично объясняется большая чувствительность СЛГ к МП по сравнению со спонтанным излучением и, как следствие, возрастание эффекта в области СЛГ.

Детальный анализ различных подходов к интерпретации природы исследуемого эффекта (возможные влияния МП на вероятности образования [5] и рекомбинации [6] экситона, на характеристики поверхностного плазмонного резонанса [7] и др.) привел к выводу о возможном формировании магнитоэкситонов в ZnO при воздействии МП [8]. В теоретической работе [8] путем численного решения уравнения Шрёдингера показано, что перестройка основного состояния экситона с соответствующим изменением волновой функции (переход экситон—магнитоэкситон) может происходить даже в слабых МП, если импульс экситона P_x превышает некоторую пороговую величину.

Импульс P_x , обусловленный тепловым движением, при комнатной температуре оказывается заметно ниже порогового значения. Однако в [9] показано, что плазмоны, возбуждаемые на поверхности наночастиц металла, могут обладать импульсом, значительно превосходящим импульс создающего их излучения (так называемые “медленные плазмоны”). Такие поверхностные плазмонные волны, возбужденные в Ag-наночастицах с помощью рекомбинационного излучения ZnO, могут резонансным способом создавать в пленке ZnO экситоны с импульсом, равным импульсу плазмона.

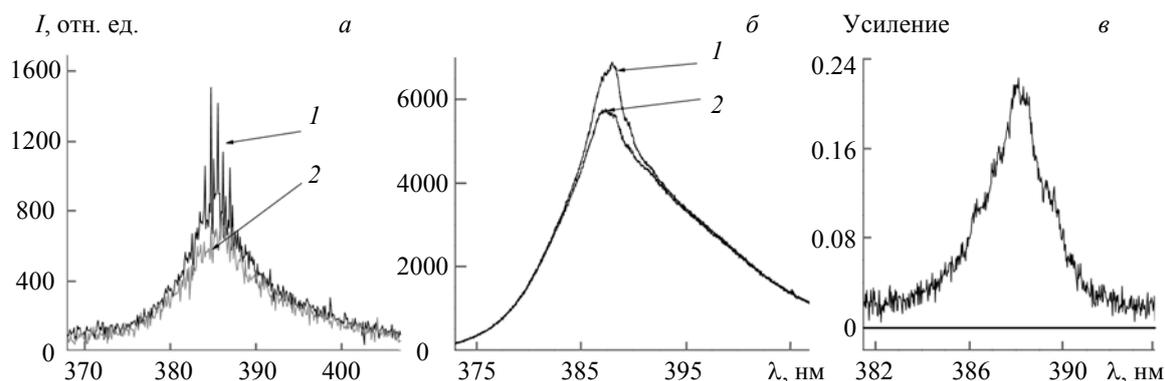


Рис. 2. Краевое излучение образца ZnO/Ag в магнитном поле (1) и без него (2) при плотности энергии накачки 5 (а) и 10 мДж/см² (б); в — спектральная зависимость увеличения интенсивности (усиления) в магнитном поле при плотности энергии накачки 10 мДж/см²

Наличие взаимодействия между плазмонами в Ag-наночастицах и экситонами в ZnO (эффект поверхностного плазмонного резонанса) в исследуемых образцах подтверждается построенными экспериментальными зависимостями интенсивности излучения от уровня накачки, которые имели нелинейный вид [10]. Импульс возникающего медленного плазмона оценен с использованием полученного в [9] уравнения для возрастания волнового вектора плазмонов в серебряном цилиндре, помещенном в диэлектрическую среду, по отношению к волновому вектору возбуждающего излучения. При значениях входящих в уравнение параметров (диэлектрические проницаемости материалов, размеры наночастиц металла), соответствующих рассматриваемому нами случаю, обнаружена возможность увеличения волнового вектора плазмона на длине волны рекомбинации экситона в несколько десятков раз. Появляется возможность перехода экситона в магнитоэкситонное состояние с измененной волновой функцией и, как следствие, вероятность рекомбинации такого экситона вырастает. Отметим, что достижение условий перехода экситон—магнитоэкситон может произойти и в результате нагрева Ag-наночастиц накачкой в области плазмонного резонанса и передачи нагрева от Ag-наночастицы к пленке ZnO. Возможно, действуя совместно, оба механизма обеспечивают увеличение интенсивности экситонного излучения.

Таким образом, впервые обнаружено влияние относительно слабого магнитного поля (~1 Тл) на люминесценцию и случайную лазерную генерацию покрытых Ag-наночастицами пленок ZnO при комнатной температуре. На исследуемых образцах также существуют области, где эффект отсутствует. На аналогичных образцах ZnO без серебряного покрытия эффект не наблюдался. Проанализированы различные подходы к интерпретации природы данного явления. Представляется вероятной возможность образования магнитоэкситонов в некоторых областях пленок, где импульс экситонов вблизи наночастиц серебра может возрастать благодаря существованию медленных плазмонов и нагреву образца накачкой. Это может приводить к росту вероятности рекомбинации даже в слабом магнитном поле из-за сильного растяжения волновой функции магнитоэкситона.

- [1] V. E. Bisti, V. M. Edel'stein, I. V. Kukushkin, V. D. Kulakovskii. *Solid State Commun.*, **44** (1982) 197—199
- [2] Ю. В. Жилаев, В. В. Россин, Т. В. Россина, В. В. Травников. *Письма в ЖЭТФ*, **49** (1989) 492—494
- [3] V. V. Rossin, P. C. M. Christianen, V. V. Travnikov. *Semicond. Sci. Technol.*, **9** (1994) 716—718
- [4] P. V. Wilhelm. *Exciton Photoluminescence Enhancement with Magnetic Field in Gallium Arsenide*, Institut für Atom- und Molekül Physik Justus-Liebig-Universität at Gießen (2015); https://sharepoint.washington.edu/phys/research/optospinlab/Documents/MPL_report.pdf
- [5] И. Г. Ланг, С. Т. Павлов, А. В. Прохоров. *ЖЭТФ*, **106** (1994) 224
- [6] D. Cabib, E. Farri, G. Fiorio. *Il Nuovo Cimento*, **10** (1972) 185—199
- [7] M. G. Kucherenko, V. M. Nalbandyan. *Phys. Proc.*, **73** (2015) 136—142
- [8] Ю. Е. Лозовик, С. Ю. Волков. *ЖЭТФ*, **123** (2003) 635—642
- [9] V. S. Zuev, G. Ya. Zueva. *J. Russ. Laser. Res.*, **27** (2006) 167—184
- [10] S. I. Romyantsev, A. P. Tarasov, Ch. M. Briskina, M. V. Ryzhkov, V. M. Markushev, A. A. Lotin. *J. Nanophoton.*, **10** (2016) 016001