

Обращение волнового фронта на поверхности оптически возбужденных пленок CuI

А. Н. Грузинцев¹⁾

Институт проблем технологии микроэлектроники РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 20 июня 2003 г.

Теоретически и экспериментально показана возможность обращения светового волнового фронта (ОСВФ) в возбужденной полупроводниковой среде. На пленках CuI при комнатной температуре при накачке азотным лазером обнаружено обращение света для энергии фотонов, равной половине энергии излучательной рекомбинации экситонов. Исследованы зависимости интенсивности сигнала ОВФ от его спектрального состава. Предлагается объяснение эффекта: квадратичное взаимодействие световых и экситонных электромагнитных колебаний в полупроводниковой среде.

PACS: 42.65.Lm, 42.65.Ky

Широкозонный полупроводниковый материал йодид меди – CuI обладает максимальной для своего класса соединений энергией связи экситона 40 мэВ [1], что позволяет наблюдать экситонное свечение при комнатной температуре. Несмотря на возможность различных кристаллических модификаций (цинковой обманки, вюрцита и гексагональной [2]) в поликристаллических пленках CuI, все они имеют близкую ширину запрещенной зоны. В спектрах фотолюминесценции (ФЛ) почти всегда наблюдается интенсивный экситонный пик в фиолетовой области с максимумом при 410 нм (полушириной около 10 нм) при возбуждении азотным лазером [3]. Это делает йодид меди модельным материалом для изучения физики экситонов и перспективным для создания мощных полупроводниковых лазерных источников света в фиолетовом спектральном диапазоне. Одним из важнейших элементов в полупроводниковом лазере являются зеркала резонатора, определяющие его добротность, порог генерации, направленность и спектральную полуширину лазерного излучения.

Применение зеркал, обращающих волновой фронт (ЗОВФ), в газовых лазерных резонаторах рассматривали ряд авторов [4–6]. Достоинства такого типа зеркал состоят в том, что резонатор может самонастраиваться и ЗОВФ способны исправлять искажения, вызванные усиливающей средой или оптическими элементами в резонаторе. Поскольку в этом случае падающая волна всегда отражается в строго обратном направлении, нет необходимости в строгой параллельности зеркал резонатора. В этих экспериментах [6] по ОВФ использовались мощности накачки порядка $1.6 \cdot 10^7$ Вт/см², а мощность отражен-

ной волны составляла примерно $2 \cdot 10^{-3}$ от мощности сигнальной волны (коэффициент отражения зеркала). Во всех выше указанных вариантах для обращения волнового фронта используется процесс трехволнового смешения в нелинейном кристалле или газообразной среде. Из-за этого ЗОВФ имеют большой объем, малый коэффициент отражения и не применимы для довольно миниатюрных полупроводниковых лазеров.

В данной работе обнаружен и исследован эффект обращения волнового фронта электромагнитных волн на экситонах в сильно возбужденных ультрафиолетовым лазером пленках йодида меди. В этом случае происходит процесс всего лишь двухволнового смешения электромагнитных колебаний, вероятность которого довольно велика в нецентросимметричных электрооптических полупроводниковых материалах со структурой вюрцита.

Выражение для поляризации \mathbf{P} полупроводниковой среды при воздействии электромагнитных колебаний E_1 и E_2 с двумя разными частотами Ω и ω можно записать в тензорном виде [7]:

$$P_i = \chi_{ij}^1 E_j + \chi_{ijk}^2 E_j E_k + \chi_{ijkl}^3 E_j E_k E_l + \dots, \quad (1)$$

где суммирование в правой части идет по всем одинаковым индексам ($j, k, l = 1, 2, 3$) или трем составляющим суммарного электрического поля, а χ^1 , χ^2 , и χ^3 – линейная, квадратичная и кубическая оптическая восприимчивость среды, представляющая в общем случае тензоры второго, третьего и четвертого рангов, соответственно. Остановимся в (1) более подробно на члене с квадратичной оптической восприимчивостью, характерном для кристаллов с отсутствием центра симметрии в кристаллической решетке и ответственным за генерацию второй гармоники и электрооптический эффект в материале (име-

¹⁾e-mail: gran@ipmt-hpm.ac.ru

ющим в CuI с решеткой гексагонального вюрцита значительную величину [1]). Для упрощения выкладок положим, что вектор поляризации \mathbf{P} и оба электрических поля E_1 и E_2 направлены вдоль оси роста кристалла, совпадающей с осью Z пространства. Световая волна движется в направлении оси X и имеет вид $E_2 = \{E_{20} \exp(-i\omega t + ikx) + E_{20}^* \cdot \exp(i\omega t - ikx)\}$. При этом другое электромагнитное колебание в полупроводнике соответствует на кривой дисперсии поляритона точке экситона в состоянии покоя ($\mathbf{K} = 0$) и имеет вид $E_1 = \{E_{10} \exp(-i\Omega t) + E_{10}^* \exp(i\Omega t)\}$. Тогда второй член в уравнении (1) будет иметь вид

$$\chi^2(E_1 + E_2)(E_1 + E_2) = 2\chi^2 E_1 E_2 + \chi^2 E_1^2 + \chi^2 E_2^2. \quad (2)$$

Остановимся подробнее на первом слагаемом в правой части (2) и распишем его в предположении, что частота световой волны равна половине экситонной частоты, то есть $\omega = \Omega/2$:

$$2\chi^2 E_1 E_2 = 2\chi^2 \{E_{10} E_{20} \exp(-i3\omega t + ikx) + E_{10} E_{20}^* \exp(-i\omega t - ikx) + \text{к.с.}\}, \quad (3)$$

где: к.с. обозначает комплексно-сопряженные члены к первым двум слагаемым в (3). Выражение (3) для поляризации полупроводника дает две электромагнитные волны, но первая из них не укладывается на кривую дисперсии кристалла, тогда как вторая представляет собой обращенную световую волну, движущуюся навстречу падающей – E_2 не зависимо от угла падения света на поверхность полупроводника. Ее интенсивность пропорциональна интенсивности падающей волны, интенсивности экситонных колебаний и квадратичной нелинейной оптической восприимчивости среды. Если возбуждать экситоны ультрафиолетовым азотным импульсным лазером в CuI, глубина поглощения которого составляет порядка 0.1–0.2 мкм, то легко получить условия для ОВФ в тонком приповерхностном слое полупроводника.

В работе использовались пленки CuI, нанесенные на кварцевые подложки методом термического высоковакуумного испарения. Толщина пленок составляла 1.5 мкм. Пленки CuI имели поликристаллическое качество с наличием кубической, вюрцитной и гексагональной фаз. В спектре их люминесценции при комнатной температуре превалировал пик экситонного свечения с максимумом 410 нм (см. ниже рис.2). Спектры фотолюминесценции (ФЛ) пленок исследовались при возбуждении импульсным азотным лазером ЛГИ-505 с длительностью импульса 10 нс, пиковой мощностью 15 кВт и длиной волны 337.1 нм. Схема установки использованной для обращения волнового фронта на пленке йодида меди,

показана на рис.1. Здесь важно отметить, что падающая на образец световая волна была от лампы нака-

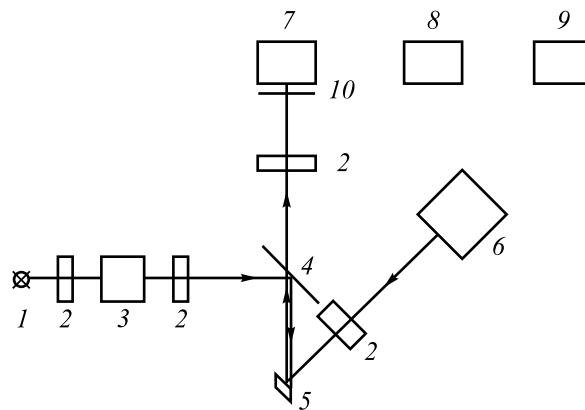


Рис.1. Схема установки, использованной для обращения волнового фронта на пленке оксида цинка: 1 – источник света “Нарва-100”, 2 – линзы, 3 – монохроматор МДР-12, 4 – расщепитель пучка, 5 – образец CuI, 6 – лазер ЛГИ-505, 7 – монохроматор МДР-6, 8 – фотоумножитель ФЭУ-79, 9 – система регистрации спектра и 10 – светофильтр

ливания “Нарва-100”, запитанной источником постоянного тока, и падала на образец под углом более 45°, чтобы геометрически отраженный свет не попадал в регистрирующий монохроматор МДР-6. Свет лампы накаливания после прохождения через светосильный монохроматор МДР-12 был непрерывным во времени и имел спектральную полуширину не более 5 нм. Система регистрации спектра была настроена на частоту возбуждающего лазера ЛГИ-505 и состояла из усилителя переменных сигналов “Unipan-237” с выходом на компьютер. Образец йодида меди находился при комнатной температуре и был сориентирован так, чтобы электромагнитные колебания лазерной и световой волн имели составляющие вдоль оси роста пленки. Лазерный пучок фокусировался на поверхности пленки в пятно диаметром менее 100 мкм, что позволяло получать плотность мощности накачки порядка 10^8 Вт/см². Совмещение светового и лазерного пятен на образце контролировалось с помощью оптического микроскопа. В качестве расщепителя света (рис.1) использовалась обычная стеклянная пластина. При регистрации спектров обращенного сигнала и люминесценции пленки использовались светофильтры КС-15 и СЗС-23, соответственно, для удаления паразитных сигналов второго порядка двойного монохроматора МДР-6 в регистрируемых спектрах.

На рис.2 приведен спектр ФЛ (кривая 1) исследуемых пленок CuI, зарегистрированный при возбуждении лазером без дополнительной подсветки. Видно

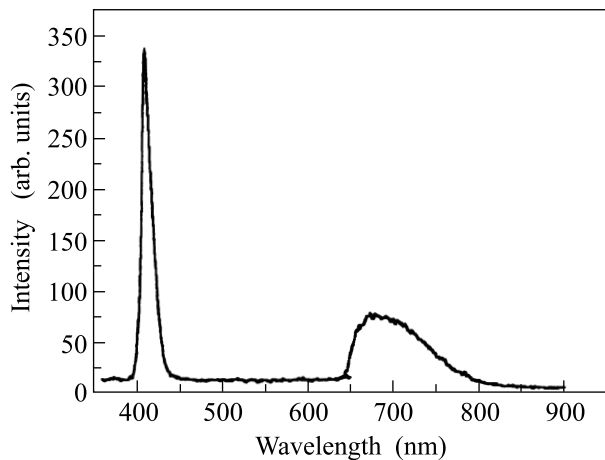


Рис.2. Спектр фотолюминесценции пленки CuI на кварце. Температура измерений $T = 300$ K

присутствие экситонного пика с максимумом 410 нм и пика в длинноволновой примесной области при 680 нм. Эту особенность спектра можно связать с излучательной рекомбинацией на комплексах собственных и примесных дефектов в CuI [2, 3].

Теперь одновременно с импульсным возбуждением азотным лазером направим на образец непрерывный по времени световой поток из сине-фиолетовой спектральной области с различной длиной волны фотона от 370 до 470 нм (рис.3). Из рис.3 видно, что в регистрируемом сигнале в сине-фиолетовой обла-

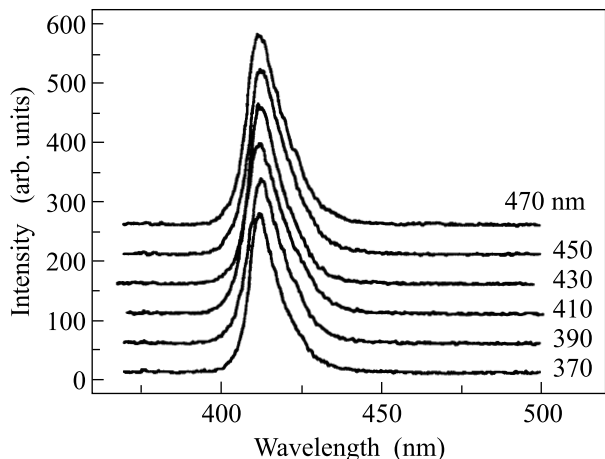


Рис.3. Спектр сигнала люминесценции и ОВФ пленки CuI на кварце в сине-фиолетовой спектральной области при длине волны фотонов световой подсветки. Температура измерений $T = 300$ K

сти имеется лишь сигнал фотолюминесценции пленки с максимумом 410 нм. При этом изменение спектрального положения непрерывной подсветки никак не сказывается на форме и интенсивности спектральных линий.

Гораздо интересней получается картина регистрируемого сигнала в красной спектральной области с энергией фотона подсветки, равной половине энергии излучательной рекомбинации экситона в йодиде меди (рис.4 и 5). В этом случае перед регистрирующим монохроматором МДР-6 ставился инфра-

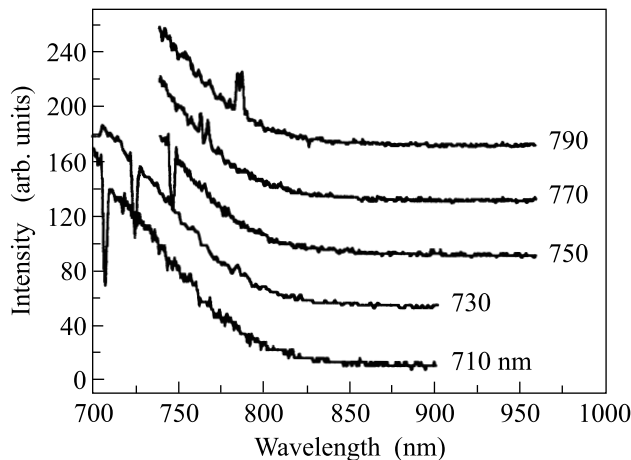


Рис.4. Спектр сигнала люминесценции и ОВФ пленки CuI на кварце в красной спектральной области при длине волны фотонов световой подсветки. Температура измерений $T = 300$ K

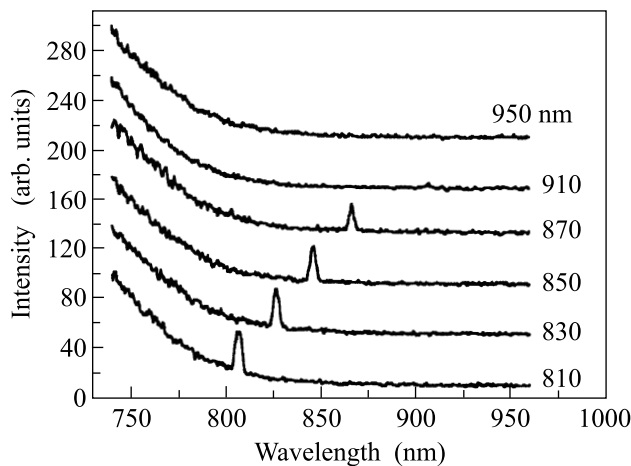


Рис.5. Спектр сигнала люминесценции и ОВФ пленки CuI на кварце в красной спектральной области при энергии фотонов световой подсветки. Температура измерений $T = 300$ K

красный светофильтр КС-15, который не пропускал не только рассеянный свет лазера 337.1 нм, но и сигнал экситонной люминесценции пленки CuI. Это делалось для отсеечения возможного в монохроматоре второго порядка линии люминесценции 410 нм. Мы видим, что при световой подсветке с длиной волны фотона 710 нм (рис.4, кривая 1) в красной области спектра на фоне сигнала ФЛ виден провал с миниму-

мом при 710 нм. Положение этого провала зависит от длины волны непрерывной подсветки (рис.4, кривые 2 и 3). Однако при приближении длины волны падающего фотона к краю полосы ФЛ (кривые 4 и 5) вместо провала появляется узкий пик обращенной световой волны, энергетическое положение которого совпадает с энергией падающих на образец фотонов. Метод регистрации сигнала говорит также о том, что он, в отличие от падающей волны, имеет импульсный характер с частотой возбуждающего лазера. Спектральная полуширина сигнала ОВФ совпадает с полушириной падающей световой волны, а интенсивность обращенной волны зависит от ее спектрального положения. Максимальную интенсивность обращенный сигнал имеет при длине волны падающего света 810 нм (рис.5, кривая 1). Этот узкий пик практически исчезает для длин волн, больших, чем 870 нм (кривые 5 и 6).

Из рис.4 и 5 видно, что сигнал ОВФ имеет максимальную интенсивность для длины волны падающих фотонов 810–830 нм, почти совпадающей с удвоенной длиной волны экситонного пика ФЛ (рис.2). Отметим, что, согласно выше приведенным теоретическим выкладкам, для сред с квадратичной оптической нелинейностью может возникать ОВФ при энергии фотонов падающего света, равной половине энергии экситонных колебаний (3). При этом интенсивность обращенной волны пропорциональна интенсивности падающего света и интенсивности экситонной волны. Поскольку время излучательной рекомбинации экситонов в пленках CuI при комнатной температуре составляет порядка пикосекунды, то экситонные колебания существуют лишь в момент действия лазерного импульса накачки. Следовательно ОВФ носит также импульсный характер, что подтверждается регистрацией переменного сигнала на частоте лазера в наших исследованиях. Ввиду ярко выраженной спектральной зависимости интенсивности пика обращенного сигнала (рис.2, кривая 2) обнаруженный нами процесс не может быть рассеянием непрерывного света на поликристаллических зернах пленки CuI, а сигнал чисто геометрического отражения света от поверхности образца не попадал в регистрирующую систему.

Интересна природа провалов на кривой красной полосы ФЛ (рис.4, кривые 1-3) для длин волн непрерывной подсветки 710–750 нм, лежащих в пределах полосы. В этом случае происходит процесс стимулированной люминесценции и большая часть энергии возбужденных состояний комплексов примесных и собственных дефектов излучается не изотропно в телесный угол 4π , а уходит вдоль направления под-

светки, не попадая в нашу регистрирующую систему.

Таким образом, теоретически предсказан (см. формулу (3)) и экспериментально исследован процесс обращения волнового фронта световой волны, падающей на поверхность сильно возбужденной азотным лазером пленки CuI. Показано, что ОВФ происходит при энергиях падающих фотонов, равных половине энергии излучательной рекомбинации экситона. Следовательно, можно сказать, что в данном случае ОВФ происходит на экситонных состояниях полупроводниковой пленки. Если учесть, что лазерное излучение при зона-зонном возбуждении поглощается в субмикронном (0.1 мкм) поверхностном слое, то легко получить высокую плотность экситонов при накачке полупроводника импульсным азотным лазером. При этом для обращения света возможно использование именно тонких пленок CuI, обладающих гексагональной фазой и высоким люминесцентным качеством.

Обнаруженный нами механизм ОВФ в полупроводниковой среде существенно отличается от процесса четырехволнового смешения на встречных пучках в оптически нелинейной среде. Там также может происходить ОВФ сигнальной волны, но среда должна быть прозрачной для всех пучков света и обладать кубической оптической нелинейностью. Из-за малой величины кубической оптической нелинейности эффективность обращения света невысока и требуется большой объем нелинейной среды. В нашем случае полупроводник непрозрачен для волны накачки и возможно использование тонких слоев. Зеркала же обращенного волнового фронта для полного восстановления фазы в обращенной волне должны быть как раз оптически тонкими, то есть порядка длины волны света, что возможно лишь в нашем случае.

Автор выражает благодарность А.Л.Деспотули за предоставление пленок йодида меди.

Работа выполнена при поддержке ИНТАС (проект # 2002-0796).

1. A. Kamilli, W. Send, D. Gerthen et al., Phys. Rev. **B62**, 13053 (2000).
2. M. Cardona, Phys. Rev. **152**, 262 (1963).
3. B. Honerlage, R. Levy, J. B. Grun et al., Phys. Rep. **124**, 161 (1985).
4. P. A. Belanger, A. Hardy, and A. E. Seigman, Appl. Optic **19**, 602 (1980).
5. J. F. Lam, W. P. Brown et al., Opt. Lett. **5**, 61 (1980).
6. D. M. Bloom and G. C. Bjoklund, Appl. Phys. Lett. **31**, 592 (1977).
7. Ф. Качмарек, *Введение в физику лазеров*, М.: Мир, 1981, с. 256.