

Взаимодействие когерентных оптических связанных мод в близко расположенных трехмерных ZnO-микрорезонаторах цилиндрической формы

© А.Н. Грузинцев[†], В.Т. Волков, М.А. Князев, Е.Е. Якимов

Институт проблем технологии микроэлектроники Российской академии наук,
142432 Черноголовка, Россия

(Получена 23 января 2006 г. Принята к печати 29 марта 2006 г.)

Исследованы люминесцентные свойства пар двух близко расположенных трехмерных ZnO-микрорезонаторов цилиндрической формы диаметром 1.8 мкм с разными расстояниями между ними, полученных методом электронно-лучевой литографии и реактивного ионного травления. Обнаружены узкие пики свечения в экситонной области спектра оксида цинка, обусловленные одномодовой лазерной генерацией. Проведен теоретический расчет энергии обменного взаимодействия связанных мод двух микрорезонаторов в зависимости от расстояния между ними. Обнаружено уширение линии стимулированной ультрафиолетовой люминесценции на связанных фотонных модах двух микрорезонаторов при их сближении.

PACS: 78.45.+h, 78.66.Hf, 42.60.Da

1. Введение

В последние годы широкозонный полупроводник ZnO (ширина запрещенной зоны $E_g = 3.37$ эВ) интенсивно исследуется в связи с перспективой создания на его основе коротковолновых полупроводниковых лазерных диодов. Благодаря большой энергии связи экситона в оксиде цинка, 60 мэВ, удалось получить стимулированную экситонную люминесценцию на объемных монокристаллах [1,2] и эпитаксиальных пленках [3,4] не только при криогенных температурах, но и вплоть до 550 К.

Лазерное излучение с длиной волны 397 нм было получено нами [5] на поликристаллических неэпитаксиальных пленках ZnO, нанесенных методом магнетронного распыления на окисленные подложки кремния. Стимулированная люминесценция наблюдалась при комнатной температуре в области рекомбинации электронно-дырочной плазмы при оптическом возбуждении импульсным азотным лазером. При этом пороговая мощность накачки была довольно высока и составляла 35 МВт/см². Столь большая величина обусловлена не только поликристаллическим характером пленки, но и отсутствием обратной связи вдоль пленки для стимулированных квантов света. Имеется резонатор Фабри–Перо с полным внутренним отражением на верхней и нижней гранях пленки с однопроходной лазерной генерацией в горизонтальной плоскости. Для понижения порога лазерной генерации желательно изготовить резонаторы с зеркалами на боковых гранях структуры, что требует наличия ровных сколов оптического качества.

Однако существует другой технологический путь изготовления трехмерных резонаторов высокой добротности для полупроводниковых лазеров. Дело в том, что ввиду малого времени жизни (~ 10 пс) возбужденных экситонных состояний полупроводниковой среды многопроходный режим лазерной генерации может развиваться

лишь в резонаторах микрометрового размера. Авторами [6,7] предложено использовать связанные или слабо связанные квантовые моды трехмерных фотонных точек для лазерной генерации полупроводниковых лазеров. В этом случае полупроводник в форме параллелепипеда, цилиндра или шара с размером порядка световой длины волны, помещенный в прозрачную среду с меньшим показателем преломления, имеет несколько связанных состояний — мод для излучаемого им света. Время жизни моды определяет добротность микрорезонатора и порог оптической накачки для стимулированного излучения. В работе [8] исследованы люминесцентные свойства тонкопленочных ZnO-микрорезонаторов цилиндрической формы диаметром от 0.3 до 2.7 мкм, полученных методом электронно-лучевой литографии и реактивного ионного травления. Обнаружены узкие пики свечения в экситонной области спектра оксида цинка, обусловленные лазерным квантованием фотонных волновых функций. Показано возникновение стимулированной ультрафиолетовой люминесценции на связанных фотонных модах микрорезонаторов для плотности возбуждения более 0.3 МВт/см². Удалось уменьшить пороговую мощность более чем на 2 порядка величины по сравнению с одномерным резонатором — пленкой [5].

В данной работе мы рассмотрим влияние обменного взаимодействия связанных оптических мод двух трехмерных микрорезонаторов ZnO (диаметром 1.8 мкм) цилиндрической формы, расположенных на различном расстоянии друг от друга, на спектральную форму стимулированного экситонного излучения при оптическом возбуждении.

2. Эксперимент

Тонкопленочные ZnO-микрорезонаторы цилиндрической формы диаметром 1.8 мкм и высотой 0.25 мкм были получены методом электронно-лучевой литографии и реактивного ионного травления в плазме арго-

[†] E-mail: gran@ipmt-hpm.ac.ru

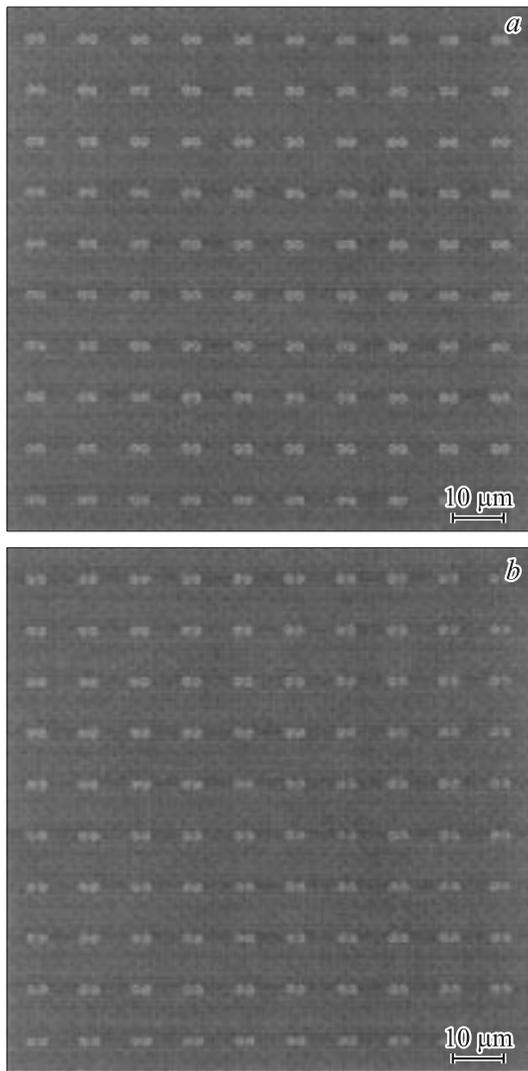


Рис. 1. Изображение массива пар цилиндрических микрорезонаторов ZnO диаметром 1.8 мкм, снятое в электронно-лучевом микроскопе, с расстоянием между цилиндрами в паре: 0 (а) и 0.3 мкм (b).

на предварительно отожженных структур ZnO–SiO₂–Si, полученных методом магнетронного распыления [5,8]. Ионное травление позволяло получать вертикальные стенки цилиндрических микрорезонаторов, из которых формировались пары с разным расстоянием между соседними цилиндрами: 0, 0.1, 0.2 и 0.3 мкм. На рис. 1 представлены изображения массива из 100 пар микрорезонаторов диаметром 1.8 мкм (вид сверху), полученные с помощью электронно-лучевого микроскопа. В данном случае расстояние между цилиндрами пары составляло 0 мкм (рис. 1, а) и 0.3 мкм (рис. 1, б). Массивы из 10 × 10 одинаковых пар цилиндрических фотонных точек были изготовлены на площади 100 × 100 мкм², приблизительно равной площади фокусного пятна возбуждающего лазера. Массив одинаковых пар формировался для увеличения интенсивности сигнала их фотолюминесценции (ФЛ) при оптических измерениях. Для

выделения эффектов квантования и обменного взаимодействия фотонных состояний трехмерных микрорезонаторов исследовались также образцы в виде сплошной пленки ZnO–SiO₂–Si и в виде массива изолированных цилиндров диаметром 1.8 мкм той же высоты.

Спектры люминесценции исследовались при возбуждении импульсным азотным лазером с длиной волны излучения 337.1 нм, длительностью импульса 9 нс и пиковой мощностью 1.5 кВт. Лазерный луч фокусировался в пятно диаметром 0.2 мм, что обеспечивало плотность оптического возбуждения $I_0 = 5$ МВт/см². Спектры фотолюминесценции пар микрорезонаторов с различным расстоянием между ними исследовались при комнатной температуре и различной мощности накачки. Для этого между образцом и лазером помещался поглотитель света с заданным коэффициентом пропускания. Возбуждающий свет лазера падал на микрорезонаторы перпендикулярно их поверхности, а люминесценция регистрировалась под углом 45°, что уменьшало вклад отраженного лазерного излучения. Люминесценция регистрировалась с помощью монохроматора МДР-23, фотоумножителя ФЭУ-106 и усилителя переменных сигналов „Упират-237“, соединенного с компьютером. Спектральное разрешение во всех экспериментах было не хуже 0.2 нм.

3. Результаты и их обсуждение

Экспрессный и неразрушающий метод ФЛ в сочетании с расчетами является весьма информативным для исследования квантовых свойств нанобъектов. Спектры ФЛ изолированных микроцилиндров ZnO представлены на рис. 2 в сравнении со спектром сплошной пленки. Как видно, спектры при одинаковой плотности мощности лазерного возбуждения 0.4 МВт/см² существенно различаются. В отличие от пленки ZnO (рис. 2, кривая 1) спектры экситонной ФЛ микроцилиндров (кривая 2) имеют тонкую структуру, обусловленную наличием связанных и слабо связанных мод трехмерных резонаторов с положениями максимумов при 3.26, 3.31, 3.35 и 3.38 эВ. На одной из этих мод (3.26 эВ) возникает лазерная генерация при увеличении мощности лазерного возбуждения (кривая 3). Оценки энергетического положения связанных мод в трехмерных микрорезонаторах цилиндрической формы в приближении абсолютно зеркальных границ приведены в работе [7]:

$$E_{n_z, n_\varphi, n_r} = \{(\hbar^2 c^2 / \varepsilon) [\pi(n_z + 1) / L]^2 + (\hbar^2 c^2 / \varepsilon) \chi_{n_\varphi, n_r}^2 / r^2\}^{1/2}, \quad (1)$$

где ε , L и r — диэлектрическая проницаемость, высота и радиус микроцилиндра, $n_z = 0, 1, 2, \dots$ — число полуволн света вдоль высоты цилиндра, а χ_{n_φ, n_r} — нули цилиндрической функции Бесселя с соответствующими значениями азимутального и радиального квантовых чисел. Формула (1) дает лишь приближенные значения

энергий, так как из-за неполной зеркальности стенок цилиндра для света даже при его полном внутреннем отражении часть энергии связанной моды проникает за границу микрорезонатора. Это приводит к росту эффективных размеров микроцилиндра, зависящему в общем случае от квантовых чисел данной моды. Точные решения задачи возможно лишь численными методами [9] для каждого конкретного микроцилиндра. Отметим лишь, что для затухающего светового поля связанной моды вне боковых стенок цилиндра может быть использовано асимптотическое разложение затухающих цилиндрических функций:

$$\Psi_1 = (\kappa/\pi)^{1/2} \exp(-\kappa\rho)/\rho^{1/2}, \quad (2)$$

где $\kappa = \{\omega^2/c^2 - (1/\epsilon)[\pi(n_z + 1)/L]^2\}^{1/2}$ — величина волнового вектора затухающей световой волны, ω — частота света, а $\rho \geq \alpha$ — расстояние до оси цилиндра радиуса α . При сближении двух цилиндров внешнее поле затухающей электромагнитной волны может быть представлено в виде суммы двух волн (2):

$$\Psi = A \exp(-\kappa\rho_1)/\rho_1^{1/2} + B \exp(-\kappa\rho_2)/\rho_2^{1/2}, \quad (3)$$

где ρ_1 и ρ_2 — расстояния до оси первого и второго микроцилиндров, A и B — нормировочные постоянные, а κ — волновой вектор затухающей волны пары, отличный от волновых векторов κ_1 и κ_2 изолированных цилиндров из-за обменного взаимодействия мод. Сохранение граничных условий на поверхности каждого из цилиндров дает уравнение связи собственных частот (волновых векторов) связанных мод пары цилиндров в зависимости от частоты (волновых векторов) мод изолированных цилиндров и расстояния R между цилиндрами в паре:

$$(\kappa - \kappa_1)(\kappa - \kappa_2) = \exp(-2\kappa R)/\{4R(\alpha_1\alpha_2)^{1/2}\}, \quad (4)$$

где α_1 и α_2 — радиусы микроцилиндров пары. В случае обменного взаимодействия одинаковых мод пары одинаковых микроцилиндров $\kappa_2 = \kappa_1 = \kappa_0$, $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$ имеем

$$(\kappa - \kappa_0)^2 = \exp(-2\kappa R)/4R\alpha. \quad (5)$$

Видно, что уравнение (5) дает два новых волновых вектора — величина одного меньше, второго больше κ_0 , и разность между ними (расщепление моды) увеличивается при уменьшении расстояния между микрорезонаторами в паре.

Экспериментально это наблюдается в спектральной форме линии лазерной генерации пар микроцилиндров ZnO (рис. 3). При большом расстоянии между цилиндрами в паре, 0.3 мкм (кривая 1), спектр их стимулированной люминесценции практически совпадает со спектром свечения изолированных микроцилиндров того же диаметра (рис. 2, кривая 3). С уменьшением расстояния между цилиндрами в паре (рис. 3) наблюдается уширение линии лазерной генерации в несколько раз именно из-за обменного взаимодействия связанных мод (5). Таким образом, обнаруженное изменение спектра одномодового режима лазерной генерации пар близко

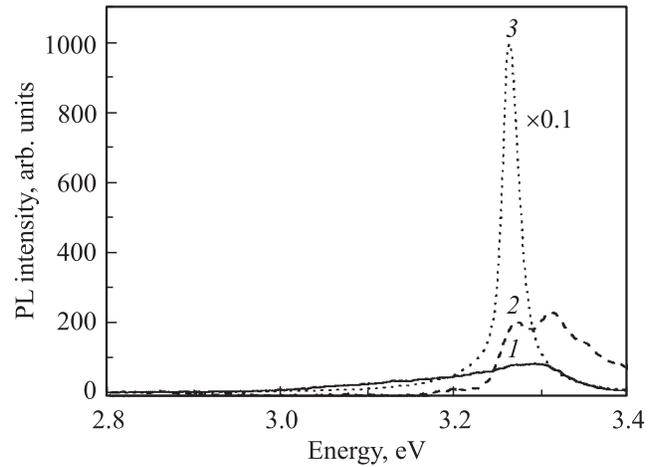


Рис. 2. Спектры фотолюминесценции (PL) пленки ZnO при возбуждении азотным лазером с плотностью мощности 0.4 МВт/см² (1) и массива одиночных микрорезонаторов диаметром 1.8 мкм при возбуждении с плотностью мощности 0.4 (2) и 5 МВт/см² (3). Температура измерения 300 К.

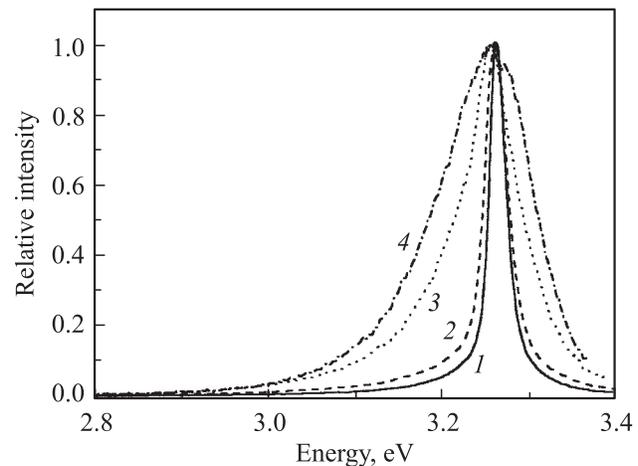


Рис. 3. Спектры фотолюминесценции при возбуждении азотным лазером с плотностью мощности 5 МВт/см² массивов пар цилиндрических микрорезонаторов ZnO диаметром 1.8 мкм с расстоянием между цилиндрами в паре: 0.3 (1), 0.2 (2), 0.1 (3) и 0 мкм (4). Температура измерения 300 К.

расположенных цилиндрических трехмерных микрорезонаторов ZnO может быть объяснено расщеплением связанной моды на два состояния, разность собственных энергий которых зависит от расстояния между резонаторами.

4. Заключение

В заключение укажем возможность применения обнаруженного эффекта расщепления связанных фотонных состояний трехмерных микро- и нанорезонаторов в квантовых вычислениях. Получение одномодовой лазерной генерации в резонаторе дает когерентное фотонное

состояние большой интенсивности при комнатной температуре. В паре близко расположенных резонаторов имеется уже два когерентных фотонных состояния, разность частот которых определяется величиной слабого обменного взаимодействия мод. На основе этих двух состояний возможно создание кубита квантового компьютера с управляемой фазой. Величину слабой связи (расщепления) между модами цилиндров в электрооптическом материале ZnO можно регулировать внешним электрическим полем.

Данная работа была выполнена при финансовой поддержке Программы РАН „Квантовые вычисления“ и грантов РФФИ (проекты № 04-02-16437 и № 05-02-39010).

Список литературы

- [1] J.M. Hvam. Phys. Rev. B, **4**, 4459 (1971).
- [2] C. Klingshirn. Adv. Mater. Opt. Electron., **3**, 103 (1994).
- [3] D.M. Bagnall, Y.F. Chen, M.Y. Shen, Z. Zhu, T. Goto. J. Cryst. Growth, **184/185**, 605 (1998).
- [4] Z.K. Tang, G.K. Wong, P. Yu, M. Kawasaki, A. Ohotomo, H. Koinuma, Y. Segawa. Appl. Phys. Lett., **72**, 3270 (1998).
- [5] A.N. Gruzintsev, V.T. Volkov, C. Barthou, P. Benalloul, J.-M. Friquier. Thin Sol. Films, **459**, 262 (2004).
- [6] M. Obert, B. Wild, G. Bacher, A. Forhel, R. Andre. Phys. Status Solidi A, **190**, 357 (2002).
- [7] T. Gutbrod, M. Bayer, A. Forhel, J.P. Reithmaier, T.L. Reinecke, S. Rudin, P.A. Knipp. Phys. Rev. B, **57**, 9950 (1998).
- [8] А.Н. Грузинцев, В.Т. Волков, С.В. Дубонос, М.А. Князев, Е.Е. Якимов. ФТП, **38**, 1473 (2004).
- [9] A.V. Maslov, C.Z. Ning. Appl. Phys. Lett., **83**, 1237 (2003).

Редактор Л.В. Шаронова

Coherent binding optical modes interaction of two neighbouring three-dimensional ZnO-microresonators of a cylinder shape

A.N. Gruzintsev, V.T. Volkov, M.A. Knyasev, E.E. Yakimov

Institute of Microelectronics Technology Problems,
Russian Academy of Sciences,
142432 Chernogolovka, Russia

Abstract Luminescent properties of pairs of two neighbouring three-dimensional ZnO microresonators, having a cylinder shape with the diameter of $1.8\mu\text{m}$ and a different distance between resonators, obtained by electron-beam lithography and by dry ion plasma methods, have been studied. Narrow peaks of the zinc oxide emission in the excitonic spectral range, related to the one photon binding modes lasing, have been detected. A theoretical calculation of the two microresonators binding modes exchange interaction as a function of the resonator spacing was made. Broadening of the binding photon modes has been observed when the microresonators spacing decreasing.