

На правах рукописи

Тарасов Андрей Петрович

**ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ МИКРОСТРУКТУР ОКСИДА ЦИНКА И ВЛИЯНИЕ
НА НЕЕ ПОВЕРХНОСТНОГО ПЛАЗМОННОГО РЕЗОНАНСА И
МАГНИТНОГО ПОЛЯ**

Специальность: 01.04.05 – Оптика

Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата
физико-математических наук

Москва – 2019

Работа прошла апробацию на кафедре твердотельной радиоэлектроники,
радиофизики и прикладных информационных технологий
Федерального государственного автономного образовательного учреждения
высшего образования «Московский физико-технический институт
(национальный исследовательский университет)»

Научный руководитель:

Маркушев Валерий Михайлович,
кандидат физико-математических наук,
старший научный сотрудник
Института радиотехники и электроники
им. В.А. Котельникова РАН

Ведущая организация: Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ».

Защита состоится 03.07.2019 в 10:00 на заседании диссертационного совета ЛФИ.01.04.05.001 по адресу: 115184, г. Москва, Климентовский пер., д.1, стр.1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте Московского физико-технического института (национального исследовательского университета):

<https://mipt.ru/education/post-graduate/soiskateli-fiziko-matematicheskie-nauki.php>

Работа представлена «27» марта 2019 г. в Аттестационную комиссию федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)» для рассмотрения советом по защите диссертаций на соискание ученой степени кандидата наук, доктора наук в соответствии с п. 3.1 ст. 4 Федерального закона «О науке и государственной научно-технической политике».

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы и степень ее разработанности

Актуальность исследования определяется необходимостью подробного исследования различных оптических свойств оксида цинка (ZnO) – материала, обладающего огромными перспективами для применения в оптоэлектронике [1].

В частности, в данной работе исследуется люминесценция и лазерная генерация различных микроструктур оксида цинка, а также влияние на это излучение магнитного поля, поверхностного плазмонного резонанса (ППР) и уровня фотовозбуждения (накачки).

Условия выращивания структур ZnO существенно влияют на их электрические и оптические свойства, в том числе, благодаря формированию собственных и примесных дефектов решетки. До сих пор нет полного понимания, какие дефекты приводят к тем или иным спектральным полосам в люминесценции ZnO [1,2]. В некоторых случаях дополнительные полосы (помимо, основной – экситонной) в спектрах люминесценции могут иметь иное, не дефектное, происхождение, что усложняет анализ. Фундаментальные знания о спектральных компонентах излучения различных структур оксида цинка необходимы для практического применения таких структур, в том числе, в оптоэлектронике.

ППР и возможные направления его использования в настоящее время активно исследуются во всем мире. Одним из таких направлений является воздействие ППР на люминесценцию различных излучателей [3,4]. С помощью этого эффекта возможно, в частности, достичь значительного увеличения светоотдачи оптических приборов, например, светодиодов, или снизить порог лазерной генерации. На примере ZnO в некоторых работах получено многократное усиление люминесценции [5]. Однако такой эффект наблюдается не всегда, и, очевидно, зависит от многих факторов, роль которых должна быть изучена.

Исследования влияния магнитного поля на люминесценцию и рекомбинационное излучение экситонов представляют интерес с нескольких точек зрения. Результаты таких исследований могут быть использованы для управления лазером, работающим на экситонном излучении, и в то же время они могут дать

новую информацию о природе полос в спектрах люминесценции и о самих экситонах [6]. Оксид цинка – материал, позволяющий проводить такие исследования благодаря своим уникальным качествам. Среди них – высокая энергия связи экситонов (60 мэВ), что дает возможность наблюдать высокоинтенсивное экситонное излучение при комнатной и более высоких температурах, а также относительная простота изготовления различных микро- и наноструктур этого материала с оптическим качеством, достаточным для возникновения в них лазерного эффекта с низким порогом.

В настоящее время в мировой науке широко распространено мнение о том, что ZnO – наиболее подходящий материал для изготовления на его основе лазера, работающего в ультрафиолетовом (УФ) диапазоне [5,7]. Обладая похожими свойствами с широко используемым GaN, ZnO имеет существенно большую энергию связи экситона и значительно проще и дешевле в изготовлении [1]. В связи с этим исследование люминесцентных и лазерных свойств структур на основе оксида цинка и влияния на них различных факторов (условий роста, допирования, ППР и др.) представляет огромный интерес. Здесь привлекают внимание и множество различных морфологических форм, в которых могут расти ZnO-структуры, и сами методы выращивания этих структур, и многое другое.

Цели и задачи

Основная цель работы – исследование влияния поверхностного плазмонного резонанса, магнитного поля и уровня фотовозбуждения на краевое излучение микроструктур оксида цинка. Для достижения этой цели поставлены следующие задачи:

- 1) Выяснение причин аномальной зависимости от накачки соотношения интенсивностей экситонной полосы и полосы, примыкающей к ней с длинноволновой стороны (что наблюдается в некоторых образцах ZnO).
- 2) Систематические исследования и приближенное количественное описание зависимости влияния эффекта ППР на экситонную люминесценцию оксида цинка от накачки на примере образцов ZnO/Ag.

3) Формулировка общего подхода к описанию процессов, принимающих участие в люминесценции оксида цинка. Апробация этого подхода на примере конкретных исследований.

4) Экспериментальное исследование возможности влияния относительно слабого (~1 Тл) магнитного поля на интенсивность краевого излучения оксида цинка в присутствии поверхностных плазмонов, а также анализ возможных физических механизмов, лежащих в основе особенностей УФ излучения ZnO в магнитном поле.

Научная новизна

Большинство ранее выполненных исследований в рассматриваемой области касается лишь отдельных эффектов. В предлагаемой работе разработан общий подход к описанию люминесценции ZnO, основанный на системе скоростных уравнений (ССУ), которые учитывают происходящие в исследуемых структурах процессы, связанные с люминесценцией. Этот подход позволяет анализировать как саму люминесценцию образцов оксида цинка, так и влияние на нее различных факторов.

Впервые продемонстрирована и исследована зависимость спектра УФ-люминесценции от уровня накачки для образцов оксида цинка с мелким дефектным уровнем. Характер этой зависимости объяснен с помощью предложенного общего подхода на основе ССУ. Результаты исследования представляют ценность для дальнейшей разработки УФ светоизлучающих приборов на основе оксида цинка.

Впервые обнаружена нелинейная зависимость от уровня накачки увеличения интенсивности (усиления) фотолюминесценции стержней ZnO с Ag-покрытием за счет ППР. Также продемонстрирована возможность количественного описания зависимости усиления от уровня накачки с помощью предложенного общего подхода на основе ССУ с учетом джоулевых потерь в металлических наночастицах. Показано, что в системе ZnO/Ag усиление люминесценции наблюдается только при достаточно низком уровне накачки, превышение которого приводит к ослаблению люминесценции. В опубликованных до сих пор экспериментальных исследованиях нет систематического анализа роли параметров, определяющих усиление люминесценции за счет ППР. Проведенное исследование дает новые сведения о механизме взаимодействия поверхностных плазмонов с экситонами.

Также с помощью предложенного общего подхода исследовано влияние на люминесценцию промежуточного диэлектрического слоя между оксидом цинка и металлом и такое влияние экспериментально продемонстрировано на примере образцов ZnO/MgO/Ag. Полученные результаты согласуются с экспериментальными результатами других исследователей [8-11].

Впервые обнаружено влияние относительно слабого магнитного поля (~1 Тл) на краевое излучение оксида цинка в присутствии поверхностных плазмонов при комнатной температуре. Предложена предварительная интерпретация физической природы обнаруженного эффекта, основанная на предположении о возникновении магнитоэкситонов в ZnO.

Достоверность научных результатов

Достоверность полученных в работе результатов, которые неоднократно докладывались и обсуждались на российских и международных конференциях и семинарах, подтверждается многократным их воспроизведением в проведенных экспериментах с применением различного современного оптического оборудования.

Теоретическая и практическая значимость

С практической точки зрения результаты работы представляют интерес для оптимизации процесса разработки светоизлучающих устройств на основе оксида цинка, работающих в УФ диапазоне, что, безусловно, найдет свое применение в светотехнике в качестве замены и дополнения устройств на основе GaN.

Также проведенное исследование позволяет получить важные сведения об оптических свойствах микроструктур оксида цинка: роли собственных дефектов в люминесценции, механизме воздействия ППР и магнитного поля на люминесценцию. На основе результатов можно выработать рекомендации для оптимизации усиления люминесценции за счет ППР.

Положения, выносимые на защиту

1. Разработан общий подход к описанию люминесценции ZnO, основанный на системе скоростных уравнений, учитывающих процессы, которые участвуют в люминесценции. Этот подход опробован при анализе ряда особенностей люминесценции ZnO.

2. Показано, что в некоторых образцах ZnO соотношение интенсивностей экситонной полосы и полосы, примыкающей к ней с длинноволновой стороны, меняется в зависимости от уровня накачки. Продемонстрирована возможность моделирования наблюдаемого эффекта с помощью предложенного общего подхода.

3. Показано, что усиление фотолюминесценции за счет поверхностного плазмонного резонанса в стержнях ZnO, покрытых серебряными наночастицами, нелинейно зависит от уровня накачки. Эффект объяснен с помощью предложенного общего подхода с учетом джоулевых потерь в серебряном покрытии.

4. Продемонстрировано увеличение интенсивности краевого излучения неупорядоченных массивов наностержней ZnO, покрытых серебряными наночастицами, в магнитном поле (~ 1 Тл) при комнатной температуре.

Личный вклад автора

Основные эксперименты, обработка их результатов и компьютерное моделирование проводились автором лично, либо при его непосредственном участии. Анализ и интерпретация экспериментальных результатов осуществлялись автором совместно с научным руководителем и коллективом лаборатории 221 ИРЭ РАН. Исследованные образцы предоставлялись российскими и зарубежными коллегами.

Апробация результатов

Основные результаты диссертации докладывались и обсуждались на следующих российских и международных конференциях:

“SPIE Photonics West 2018”, Сан-Франциско, США, январь 2018; “SPIE Photonics Europe 2016”, Брюссель, Бельгия, апрель 2016; “Advanced Optoelectronics and Lasers (CAOL)”, Одесса, Украина, сентябрь 2016; “SPIE Optics + Photonics 2015”, Сан-Диего, США, август 2015; “2nd International School and Conference on Optoelectronics, Photonics, Engineering and Nanostructures”, Санкт-Петербург, апрель 2015; “IX конференция молодых ученых Нанoeлектроника, нанофотоника и нелинейная физика”, Саратов, сентябрь 2014; “Advanced Optoelectronics and Lasers (CAOL)”, Судак, Украина, сентябрь 2013; “VIII конференция молодых ученых Нанoeлектроника, нанофотоника и нелинейная физика”, Саратов, сентябрь 2013; “ICONO/LAT 2013”, Москва, июнь 2013; “Научная сессия НИЯУ МИФИ – 2013”,

Москва, февраль 2013; “SPIE OPTO 2012”, Сан-Франциско, США, январь 2012; “VII конференция молодых ученых Нанoeлектроника, нанофотоника и нелинейная физика”, Саратов, сентябрь 2012.

Публикации

Основные результаты диссертации опубликованы в 20 работах, из них: 6 – статьи в рецензируемых научных журналах; 6 – статьи в сборниках трудов конференций; 8 – тезисы докладов российских и международных конференций. Из всех публикаций – 14 представлены в изданиях, индексируемых в базах данных Web of Science и Scopus.

Структура и объем диссертации

Диссертационная работа состоит из 7 частей: введение, пять глав, заключение. В работе 125 страниц, 49 рисунков. Работа дополнена списком литературы (196 наименований).

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении приведена общая характеристика работы, обоснована актуальность темы исследований, определены цели и основные задачи, отражены научная новизна, практическая и теоретическая ценности работы.

Первая глава посвящена обзору литературы по исследованиям особенностей излучения структур оксида цинка, в том числе, влиянию на это излучение морфологии, присутствия наночастиц металла, дефектов решетки, магнитного поля и других факторов. Определяется место представленной работы внутри большого спектра проведенных исследований и накопленных знаний об оптических свойствах оксида цинка.

Во второй главе описаны методы получения образцов оксида цинка различной морфологии, а также способы исследования их оптических свойств. Приведена схема экспериментальной установки по измерению спектров излучения образцов, созданной и модернизированной, в том числе, для достижения целей, поставленных для данной работы.

В третьей главе приведены экспериментальные результаты для столбчатых и тонких пленок ZnO, изготовленных методами импульсного лазерного осаждения и магнетронного распыления (микрофотографии приведены на рисунке 1).

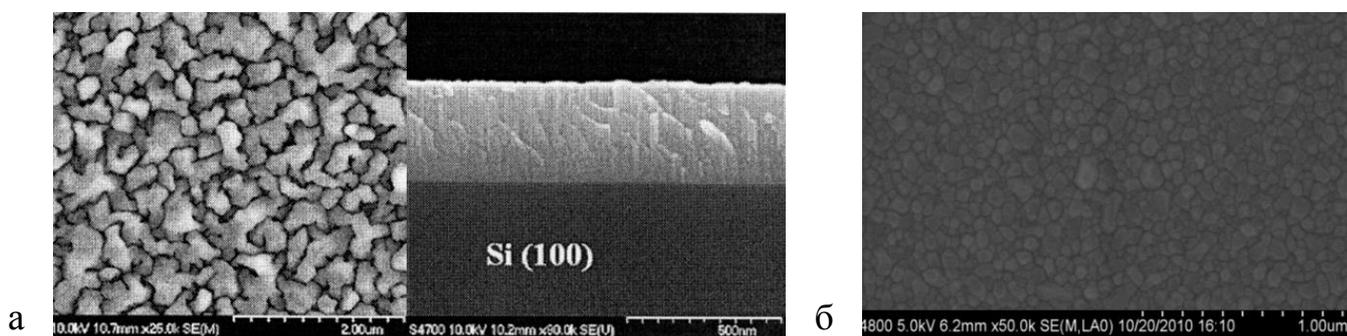


Рисунок 1 – Микрофотографии столбчатой (а) и тонкой (б) пленок ZnO.

Спектры исследованных образцов имели два пика интенсивности на краю УФ области, один из которых (коротковолновый) обусловлен экситонной рекомбинацией. Был обнаружен относительный рост интенсивности длинноволновой полосы при увеличении уровня накачки, а в некоторых случаях наблюдалось даже абсолютное уменьшение интенсивности экситонной полосы (рис. 2).

Необходимо было выяснить природу длинноволновой полосы. Обнаружено, что при понижении температуры до $T \sim 77$ К спектральное расстояние между двумя компонентами не уменьшается. Это означает, что длинноволновая компонента не может являться так называемой Р-линией, которая обусловлена рассеянием одного экситона на другом, сопровождающемся рекомбинацией одного из них. Также показано, что эта полоса не является излучением, связанным с рекомбинацией электронно-дырочной плазмы (иначе она должна сдвигаться в длинноволновую сторону с ростом уровня накачки [12]), или излучением, связанным с рекомбинацией биэкситонов (энергия связи биэкситона в ZnO существенно ниже kT при комнатной температуре). Предположено, что длинноволновая компонента связана с присутствием мелких уровней в запрещенной зоне, которые создаются дефектами. Такими дефектами могут являться вакансии цинка или атомы азота на месте кислорода, создающие акцепторные уровни у потолка валентной зоны (ВЗ) [13,14].

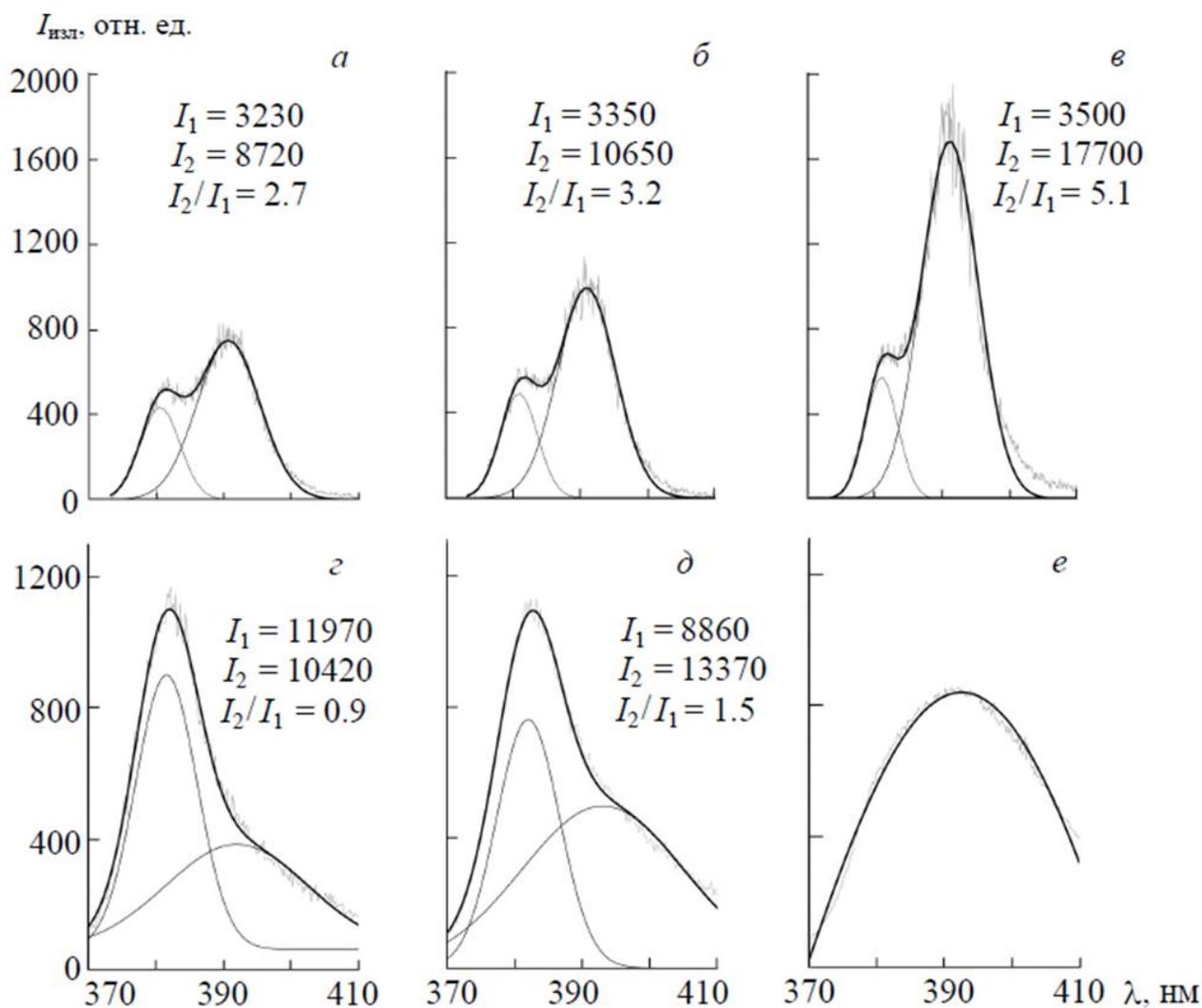


Рисунок 2 – Спектры люминесценции столбчатой (а-в) и тонкой (г-е) пленок с разложением на гауссовы компоненты при разном уровне накачки. $I_{1,2}$ – интегральная интенсивность соответствующей спектральной компоненты.

С целью приближенного моделирования наблюдаемого процесса предложен подход, основанный на ССУ и учитывающий заполнение нижней части зоны проводимости (ЗП) в ходе импульса накачки. Предположение о частичном заполнении ЗП (при использованных уровнях накачки) экспериментально подтверждено на образцах ZnO без длинноволновой полосы, где наблюдалась насыщающаяся зависимость интегральной интенсивности экситонного излучения от уровня накачки (рис. 3).

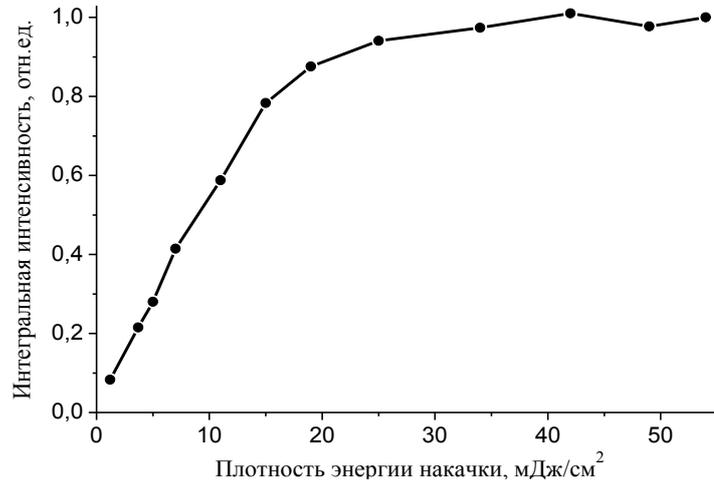


Рисунок 3 – Зависимость интегральной интенсивности люминесценции от уровня накачки.

ССУ имеет вид:

$$\begin{cases} \frac{dn_1}{dt} = P(t) \left(h + \alpha \frac{(N_0 - n_2)}{N_0} \right) - W_{CB-SL} n_1 n_2 - (W_{CB-VB} + W_X) n_1 n_3 \\ \frac{dn_2}{dt} = \alpha P(t) \frac{(N_0 - n_2)}{N_0} + W_{CB-SL} n_1 n_2 + W_{SL-VB} (N_0 - n_2) n_3 \\ \frac{dn_3}{dt} = h P(t) - (W_{CB-VB} + W_X) n_1 n_3 - W_{SL-VB} (N_0 - n_2) n_3 \\ \frac{dn_4}{dt} = W_X n_1 n_3 - W_{DF} n_2 n_4 - W_{DE} (N_0 - n_2) n_4 - W_{XE} n_1 n_4 - R n_4 \end{cases}, \quad (1)$$

где n_1, n_2, n_3, n_4 – концентрации электронов в ЗП, дырок на мелком акцепторном уровне, дырок в ВЗ и экситонов, соответственно; t – время в нс. Множитель $P(t) = P_0 \exp(-(t - 10)^2 / 26.4)$ описывает временной ход импульса лазерной накачки. Коэффициент h отличен от нуля (равен единице), пока концентрация электронов в ЗП не достигла порогового значения Q , при котором прекращается накачка в ЗП. W_{CB-VB} , W_{SL-VB} , W_{CB-SL} – скорости перехода электрона из ЗП в ВЗ, с мелкого уровня в ВЗ, из ЗП на мелкий уровень, соответственно. W_{DE} , W_{DF} , W_{XE} – величины, определяющие скорость рекомбинации экситонов на случайных примесях и электронах проводимости. W_X – вероятность образования экситонов. R – коэффициент, отражающий убывание числа экситонов за счет как излучательной, так и безызлучательной рекомбинации. N_0 – максимально возможная концентрация дырок на мелком уровне. α – коэффициент, учитывающий различие эффективности поглощения на мелкие уровни и в зону проводимости. Множитель $(N_0 - n_2)/N_0$ учитывает существование N_0 . В процессе численного решения ССУ (1) вычислялись

величины, пропорциональные интенсивностям излучения экситонов $\int_0^{\tau_d} n_4(t)dt$ и излучения с участием мелкого уровня $\int_0^{\tau_d} n_1(t)n_2(t)dt$, где интегрирование охватывает временной интервал $[0; \tau_d]$, в который осуществляется импульс накачки.

В ходе расчетов установлено, что относительное увеличение интенсивности длинноволновой компоненты с ростом уровня накачки происходит, только если в ходе импульса накачки превышает пороговая концентрация Q . Показано, что возможен такой подбор параметров, при котором численное решение ССУ дает качественно близкую к эксперименту зависимость от накачки соотношения интенсивностей изучаемых полос.

Также в данной главе показано, что по характеру зависимости интенсивности видимого излучения от уровня возбуждения можно судить о происхождении этого излучения. А именно, если видимое излучение обусловлено существованием в материале донорно-акцепторных пар (ДАП), зависимость $I(P) \sim P^{1/3}$; если же в излучательном переходе участвует только один уровень, обусловленный дефектом решетки – показатель степени больше $1/3$ (но меньше 1). Эти результаты подтверждают, в частности, предположение, сделанное авторами работы [15], о связи видимого (в зеленом спектральном диапазоне) излучения в ZnO с ДАП.

В четвертой главе исследовалось влияние ППР на интенсивность люминесценции стержней ZnO, покрытых островковыми пленками серебра различной толщины. Образцы были приготовлены методом осаждения из газовой фазы (CVD). Примеры микрофотографий образцов приведены на рисунке 5.

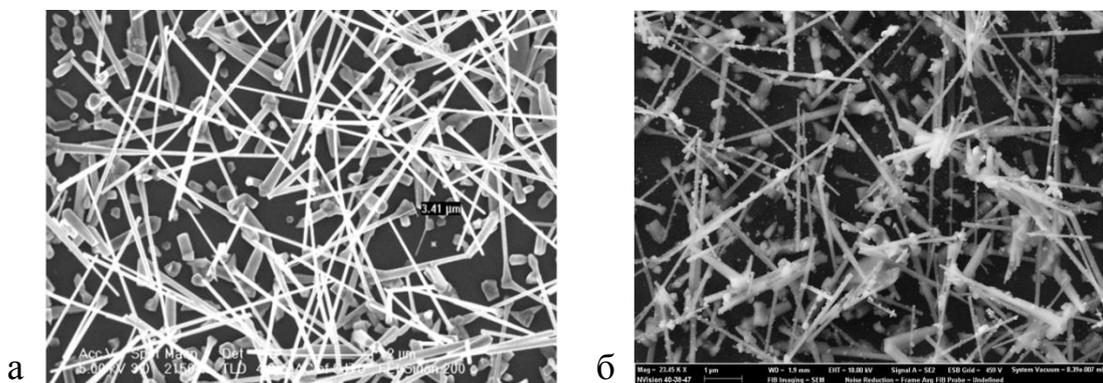


Рисунок 5 – Микрофотографии пленок оксида цинка, полученных методом CVD:
а) без покрытия серебром; б) с покрытием островковой пленкой серебра.

Изучалась зависимость интенсивности люминесценции образцов от уровня накачки. Показано, что усиление люминесценции за счет ППР наблюдается только при достаточно низком уровне накачки, превышение которого приводит к ослаблению люминесценции (рис. 6). Предположено, что ослабление люминесценции с ростом накачки связано с возрастающими потерями в серебре, носящими тепловой характер.

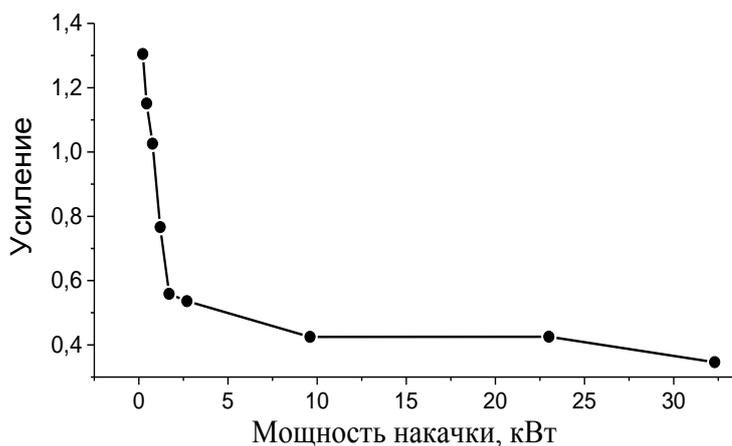


Рисунок 6 – Зависимость усиления люминесценции от уровня фотовозбуждения для образца с серебряным покрытием.

Для предварительной проверки сделанного предположения рассмотрено одно балансное уравнение для экситонов:

$$\frac{dN}{dt} = -\frac{N}{\tau} + P, \quad (2)$$

где N – число (концентрация) экситонов, P – накачка, $1/\tau = \Gamma_{рад} + \Gamma_{нерад}$ – полная скорость затухания излучения экситонов, а $\Gamma_{рад}$ и $\Gamma_{нерад}$ – скорости излучательной и безызлучательной (в том числе из-за тепловых потерь) рекомбинации экситонов. Решение уравнения (2) в приближении стационарности накачки дает: $I = \frac{R_1 P}{R_2 + P}$, где R_1 и R_2 – параметры, которые зависят, в том числе, и от тепловых потерь. Такое рассмотрение наглядно иллюстрирует в данном случае появление нелинейности в зависимости $I(P)$, однако каких-либо сведений о характеристиках самого процесса взаимодействия ППР с экситонами получить из него весьма сложно.

Для более детальной проверки предположения о потерях применен предложенный общий подход, основанный на ССУ, аналогичной (1), к которой,

помимо прочего, были добавлены уравнения для концентраций фотонов рекомбинационного излучения экситонов, фотонов, с помощью которых упрощенно описывается поле плазмонов, а также фононов в наночастицах серебра. Этот подход по сравнению с рассмотрением только одного уравнения для экситонов учитывает больше процессов, происходящих в системе ZnO/Ag, кроме того, в нем не делается таких существенно упрощающих предположений, как, например, стационарность решения. Решение ССУ для интенсивности люминесценции в зависимости от уровня накачки хорошо аппроксимирует поведение этой зависимости, полученной в эксперименте (рис. 7). При этом удастся оценить значения параметров, присущих процессу ППР.

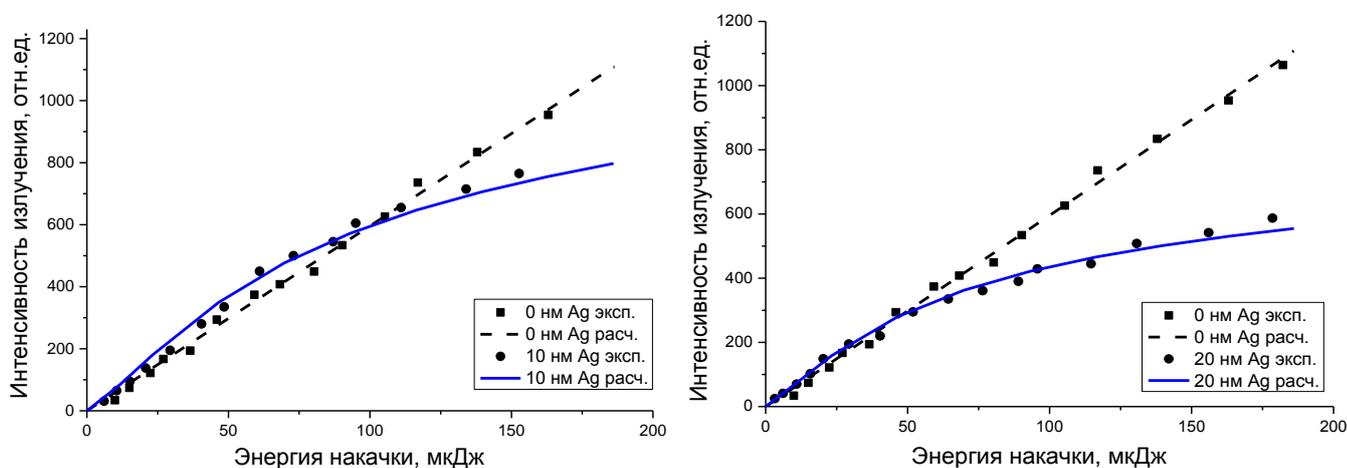


Рисунок 7 – Сравнение экспериментальной и рассчитанной зависимостей интенсивности люминесценции от уровня накачки для образца ZnO/Ag. Толщина пленки серебра: а) 10 нм; б) 20 нм.

Стоит отметить, что наличие нелинейной зависимости интенсивности люминесценции от уровня накачки, подобной той, которая представлена на рисунке 7, свидетельствует о присутствии взаимодействия между поверхностными плазмонами в металлической пленке и экситонами в полупроводнике. Это может быть полезно при изучении влияния металлических покрытий на люминесценцию полупроводниковых образцов.

Также в этой главе обсуждалась роль промежуточного диэлектрического слоя между пленкой ZnO и островковой пленкой металла. В ряде экспериментальных

работ показано, что введение диэлектрического слоя между люминесцентной полупроводниковой пленкой и металлом может существенно усиливать влияние ППР на интенсивность люминесценции [8-10]. В своих исследованиях авторы предполагали, что введение промежуточного слоя увеличивает эффективность влияния ППР за счет препятствования переходам электронов и безызлучательной передаче энергии из полупроводника в металл. Однако также есть сообщения о том, что введение промежуточного слоя может, наоборот, приводить к тушению люминесценции [11].

Нами предположено, что к наблюдаемому в экспериментах поведению интенсивности в зависимости от толщины h промежуточного слоя приводит конкуренция двух процессов. Первый связан с тем, что увеличение h приводит к уменьшению выхода из структуры фотонов, которые участвуют в формировании плазмонных колебаний в металлической пленке. Второй процесс связан с затуханием поля плазмонов с расстоянием от поверхности металла. Проверка этого предположения осуществлялась с помощью модели, основанной на соответствующей ССУ, в рамках предложенного общего подхода. Моделирование привело к результатам, качественно повторяющим экспериментальные, что подтверждает справедливость сделанного предположения, не исключая, однако, возможность процессов, о которых говорят авторы работ [8-10].

В этом параграфе возможность увеличения влияния эффекта ППР на интенсивность люминесценции ZnO также подтверждена экспериментально на примере образцов ZnO/MgO/Ag с промежуточным слоем MgO, изготовленных методом импульсного лазерного осаждения.

Пятая глава посвящена исследованию влияния магнитного поля (~ 1 Тл) на излучение изготовленных CVD-методом пленок ZnO, состоящих из случайно ориентированных наностержней и покрытых наночастицами серебра (рис. 8).

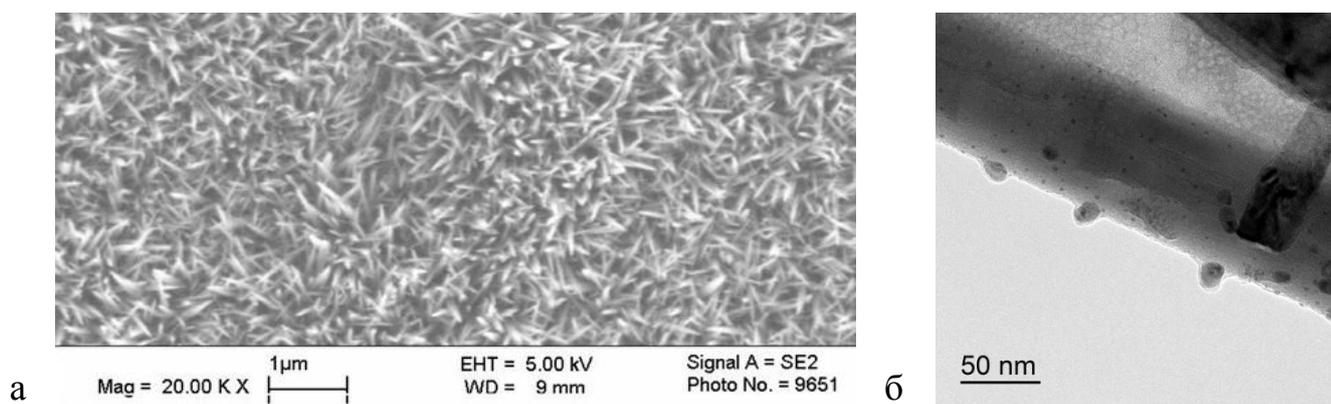


Рисунок 8 – РЭМ (а) и ПЭМ (б) микрофотографии пленки ZnO, покрытой наночастицами Ag.

На исследованных образцах обнаружены области, где регистрируется увеличение интенсивности краевой люминесценции и случайной (стохастической) лазерной генерации (СЛГ, random lasing) в магнитном поле (рис. 9). На образцах без серебра эффект обнаружен не был.

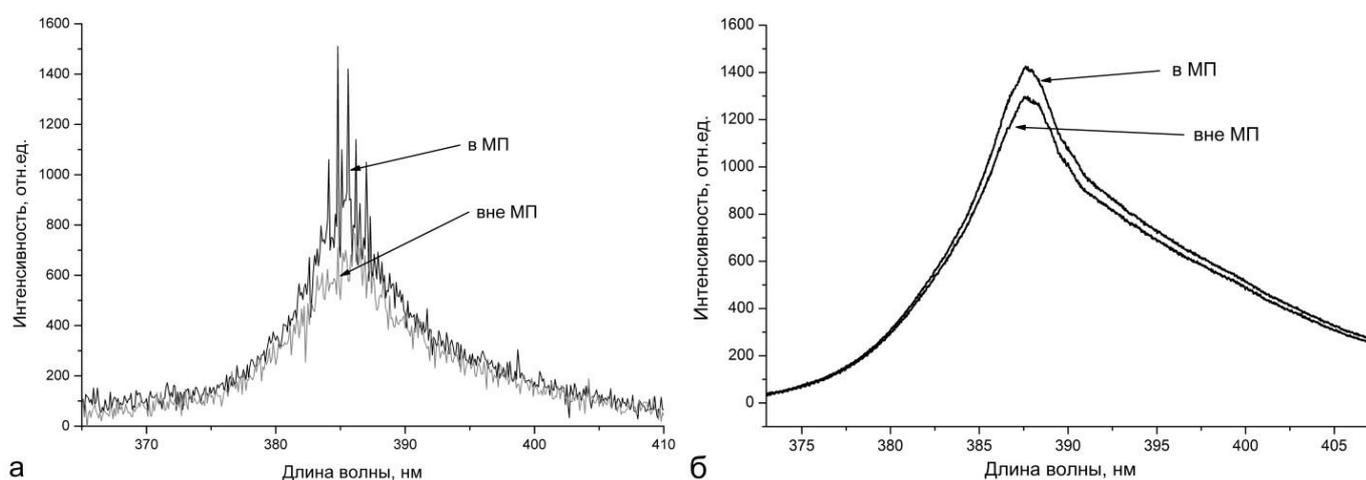


Рисунок 9 – Спектры излучения исследованных образцов: а) накачка 355 нм, плотность энергии 5 мДж/см², без накопления; б) накачка 266 нм, плотность энергии 8 мДж/см², накопление – 100 импульсов (МП – магнитное поле).

Для оценки величины усиления люминесценции в присутствии магнитного поля для образца ZnO с Ag-покрытием были посчитаны интегральные интенсивности. Усредненные значения увеличения интенсивности составили 2% при накачке 2 мДж/см² и 4% при накачке 8 мДж/см².

На рисунке 10 приведены спектры для одного из исследованных образцов в магнитном поле и без него (рис. 10а), а также спектральная зависимость увеличения интенсивности (рис. 10б). Здесь видно, что увеличение интенсивности по краям спектра, где присутствует только люминесценция, составляет 1-2 %, а в центральной области спектра, где присутствует СЛГ, оно достигает ~20% (увеличение интегральной интенсивности составляет ~5%). Это говорит о большей чувствительности СЛГ к магнитному полю по сравнению со спонтанным излучением.

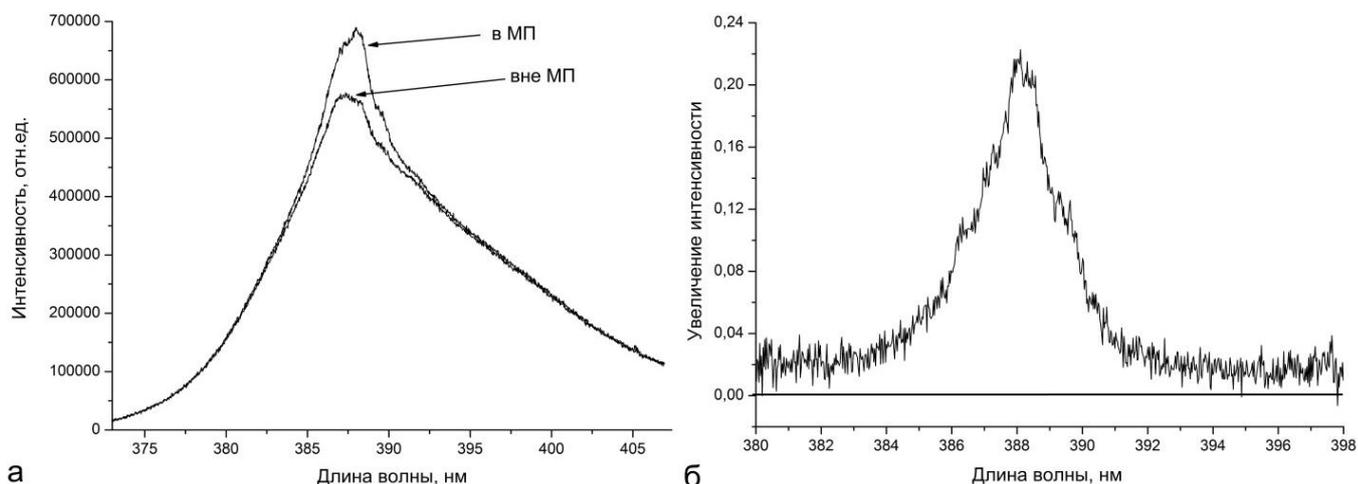


Рисунок 10 – Спектры излучения в магнитном поле и вне него при накачке 10 мДж/см² (а) и соответствующая спектральная зависимость увеличения интенсивности в магнитном поле (б).

Помимо тех мест на образцах пленок ZnO, покрытых серебром, где присутствовал эффект усиления люминесценции, также были и такие области, где эффекта не наблюдалось.

Рассмотренная в этой работе возможная интерпретация наблюдаемого эффекта основывается на концепции перехода экситон-магнитоэкситон. В работе [16] показано, что перестройка основного состояния экситона с соответствующим изменением волновой функции (переход в состояние магнитоэкситона) может происходить даже в слабых магнитных полях, если импульс экситона превышает пороговую величину:

$$P_{tr} = \sqrt{2M \left(E_b + \frac{\hbar\omega_c}{2} \right)}, \quad (3)$$

где E_b и M – энергия связи и масса экситона, ω_c – циклотронная частота. За единицу измерения импульса в [16] принято $P_0 = Me^2/\epsilon\hbar$. Пороговый импульс (3) не может быть достигнут при обычном тепловом движении экситона при комнатной температуре. Существуют теоретические исследования, в которых показано, что импульс плазмонов, возбуждаемых на поверхности наночастиц металла, может быть существенно больше, чем импульс создающего их излучения (так называемые «медленные плазмоны») [17]. Такие плазмоны могут возбуждаться с помощью краевого излучения ZnO, достигшего границы с серебром. Взаимодействие этих плазмонов с оксидом цинка может приводить к образованию экситонов, получающих при этом импульс медленного плазмона, который может быть значительно больше того, что обусловлен тепловым движением.

Достижение порогового импульса (3) может происходить и вследствие нагрева Ag-наночастиц накачкой в области плазмонного резонанса (355 нм). Простой расчет нагрева наночастицы диаметром 10 нм при плотности энергии накачки 5 мДж/см² показывает, что температура ее может подняться на ~ 200 К. Передача нагрева от серебряной наночастицы к пленке ZnO несомненно зависит от характеристик их контакта, но в любом случае нельзя исключать такую возможность.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

Работа посвящена изучению особенностей фотолюминесценции различных микроструктур оксида цинка, обусловленных как самим материалом (влияние дефектов и лазерная генерация), так и внешними воздействиями (влияние поверхностного плазмонного резонанса, магнитного поля и уровня накачки).

1) Обнаружено аномальное поведение соотношения интенсивностей экситонной и ближайшей к ней длинноволновой полос в зависимости от уровня накачки в случае некоторых образцов ZnO. Сделаны выводы о происхождении длинноволновой полосы. Предложен общий подход к анализу люминесценции ZnO на основе системы скоростных уравнений (ССУ), учитывающих процессы, происходящие при люминесценции. Поведение двух полос интерпретировано с

помощью этого подхода в предположении о частичном заполнении зоны проводимости в ходе импульса накачки.

2) Продемонстрирована возможность анализа видимого излучения в ZnO с помощью общего подхода, основанного на ССУ. В частности, на примере излучения донорно-акцепторной пары и излучения с участием одного энергетического уровня в запрещенной зоне показано, что форма зависимости интенсивности видимого излучения от уровня накачки может зависеть от вида дефекта, ответственного за это излучение.

3) Обнаружен нелинейный характер зависимости интенсивности фотолюминесценции образцов ZnO, покрытых островковой пленкой серебра, от уровня накачки. Для описания явления использован предложенный общий подход, основанный на ССУ, с учетом тепловых потерь в пленке серебра.

4) Предложенный общий подход, основанный на ССУ, успешно применен к описанию роли промежуточного диэлектрического слоя, вводимого между пленкой ZnO и островковой пленкой металла, в процессах, участвующих в люминесценции. На примере образцов ZnO/MgO/Ag экспериментально показана возможность увеличения интенсивности люминесценции при введении промежуточного слоя.

5) При комнатной температуре обнаружено влияние относительно слабого магнитного поля (~ 1 Тл) на интенсивность краевого излучения неупорядоченных массивов наностержней ZnO, покрытых Ag-наночастицами. Дана предварительная интерпретация, основанная на предположении о формировании магнитоэкситонов в результате увеличения импульса экситонов вблизи Ag-наночастиц, что становится возможным благодаря их нагреву и возбуждению в них медленных плазмонов.

СПИСОК ЦИТИРУЕМОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ozgur U., Alivov Ya. I., Liu C., Teke A., Reshchikov M. A., Doğan S., Avrutin V., Cho S.-J., Morkoc H. Comprehensive review of ZnO materials and devices // J. Appl. Phys. – 2005. – V.98. – P. 041301.

2. Родный П. А., Ходюк И. В. Оптические и люминесцентные свойства оксида цинка // Оптика и Спектроскопия. – 2011. – V.111. – P. 814-824.

3. Okamoto K., Scherer A., Kawakami Y. Surface plasmon enhanced light emission from semiconductor materials // *Phys. Stat. Sol.* – 2008. – V. 5. – P. 2822-2824.
4. Vaschenko S.V., Ramanenka A.A., Guzatov D.V., Stankevich V.V., Lunevich A.Ya., Glukhov Yu.F, Sveklo I.F., Gaponenko S.V. Plasmon-enhanced fluorescence of labeled biomolecules on top of a silver sol-gel film // *J. Nanophoton.* – 2012. – V. 6. – P. 061710.
5. Sarkar A., Gogurla N., Shivakiran B.N.B., Ray S.K. Plasmonic enhanced optical characteristics of Ag nanostructured ZnO thin films // *Mater. Res. Express.* – 2016. – V. 3. – P. 046403.
6. Wagner M.R., Hoffmann A. Ch.8: Influence of external fields. In: *Zinc oxide: from fundamental properties towards novel applications.* – Springer Science & Business Media, 2010, P. 201-229.
7. Dong H., Zhou B., Li J., Zhan J., Zhang L. Ultraviolet lasing behavior in ZnO optical microcavities // *J. Materiomics.* – 2017. – V. 3 – P. 255-266.
8. Zhang D., Ushita H., Wang P., Park Ch., Murakami R., Yang Sh., Song X. Photoluminescence modulation of ZnO via coupling with the surface plasmon resonance of gold nanoparticles // *Appl. Phys. Lett.* – 2013. – V. 103. – P. 093114.
9. Liu W.Z., Xu H.Y., Zhang L.X., Zhang C., Ma J.G., Wang J.N., Liu Y.C. Localized surface plasmon – enhanced ultraviolet electroluminescence from n-ZnO/i-ZnO/p-GaN heterojunction light-emitting diodes via optimizing the thickness of MgO spacer layer // *Appl. Phys. Lett.* – 2012. – V. 101. – P. 142101.
10. Shen K., Liao Ch., Yu Z., Wang J., Lin Ch., Kiang Y., Yang C.C. Effects of the intermediate SiO₂ layer on polarized output of a light-emitting diode with surface plasmon coupling // *J. Appl. Phys.* – 2010. – V. 108. – P. 113101.
11. Lai C., An J., Ong H.C. Surface-plasmon-mediated emission from metal-capped ZnO thin films // *Appl. Phys. Lett.* – 2005. – V. 86. – P. 251105.
12. Yamamoto A., Kido T., Goto T., Chen Y., Yao T. Bandgap renormalization of ZnO epitaxial thin films // *Sol. St. Commun.* – 2002. – V. 122. – P. 29-32.
13. Look D. C., Leedy K. D., Thomson D. B., Wang B. Defects in highly conductive ZnO for transparent electrodes and plasmonics // *J. Appl. Phys.* – 2014. – V. 115. – P. 012002.

14. Xiong G., Ucer K. B., Williams R. T., Lee J., Bhattacharyya D., Metson J., Evans P. Donor-acceptor pair luminescence of nitrogen-implanted ZnO single crystal // J. Appl. Phys. – 2005. – V. 97. – P. 043528.

15. Studenikin S. A., Cociverab M. Time-resolved luminescence and photoconductivity of polycrystalline ZnO films // J. Appl. Phys. – 2002. – V. 91. – P. 5060.

16. Лозовик Ю. Е., Волков С. Ю. Движение трехмерного экситона в магнитном поле: «фазовый» переход экситон-магнитоэкситон // ЖЭТФ. – 2003. – Т. 123. – С. 635-642.

17. Zuev V. S., Zueva G. Ya. Silver and gold films and fibers several nanometers thick: very slow optical surface plasmons // J. Russ. Laser Res. – 2006. – V. 27. – P. 167-184.

СПИСОК ПЕЧАТНЫХ РАБОТ АВТОРА

Статьи в рецензируемых журналах (Web of Science):

1. Briskina Ch., Markushev V., Tarasov A., Shiryaev M. Magnetic field influence on the intensity of ZnO random lasing and exciton luminescence // J. Nanophoton. – 2018. – V. 12. – P. 043506.

2. Брискина Ч.М., Тарасов А.П., Маркушев В.М., Ширяев М.А. Усиление краевого излучения наностержней ZnO в магнитном поле // ЖПС. – 2018. – Т. 84. – С. 1009-1012.

3. Tarasov A., Rumyantsev S., Briskina Ch., Markushev V., Lotin A. Interpretation of the dielectric spacer influence on ZnO/Ag luminescence // J. Lumin. – 2017. – V. 184. – P. 217-220.

4. Rumyantsev S., Tarasov A., Briskina Ch., Ryzhkov M., Markushev V., Lotin A., “Use of radiation intensity dependence on excitation level for the analysis of surface plasmon resonance effect on ZnO luminescence”, J. Nanophoton. – 2016. – V. 10. – P. 016001.

5. Ryzhkov M.V., Markushev V.M., Briskina Ch.M., Rumyantsev S.I., Tarasov A.P., Lyaskovskii V.L. Influence of Surface Plasmon Resonance on ZnO Films Photoluminescence. Role of Excitation Level // J. Nanoelectron. Optoelectron. – 2014. – V. 9. – P. 769-772.

6. РЫЖКОВ М.В., Румынцев С.И., Маркушев В.М., Брискина Ч.М., Тарасов А.П. Краевая люминесценция микропленок ZnO // ЖПС. – 2014. – Т. 81. – С. 805-808.

Статьи в сборниках трудов конференций (Web of Science и Scopus):

7. Tarasov A., Markushev V., Briskina Ch., Shiryaev M. ZnO exciton recombination radiation in a weak magnetic field // Proc. SPIE. – 2018. – V. 10533. – P. 105332I.

8. Tarasov A., Romyantsev S., Briskina Ch., Ryzhkov M., Markushev V., Lotin A. Interpretation of the effect of dielectric spacer on the ZnO/Ag structure luminescence intensity // Proc. SPIE. – 2016. – V. 9884. – P. 98842O.

9. Romyantsev S.I., Tarasov A.P, Briskina Ch.M., Ryzhkov M.V., Markushev V.M. Using of radiation intensity dependence on excitation level for the analysis of surface plasmon resonance effect on ZnO luminescence // Proc. SPIE. – 2015. – V. 9545. – P. 95450X.

10. Tarasov A.P, Briskina Ch.M., Ryzhkov M.V., Romyantsev S.I., Markushev V.M. Simplified approach for modeling ZnO luminescence dependence on excitation level with and without surface plasmon resonance // J. Phys.: Conf. Ser. – 2015. – V. 643. – P. 012054.

11. Tarasov A., Briskina Ch., Romyantsev S., Markushev V., Ryzhkov M. Zinc oxide exciton luminescence dependence on photoexcitation level in presence of surface plasmon resonance // Phys. Proc. – 2015. – V. 72. – P. 455-459.

12. Ryzhkov M.V., Romyantsev S.I., Markushev V.M., Briskina Ch.M., Tarasov A.P. Analysis of peculiarities of ZnO microfilms luminescence // Proc. SPIE. – 2012. – V. 8263. – P. 82631O.

Тезисы конференций:

13. Tarasov A.P. Interpretation of ZnO luminescence peculiarities by use of rate equation system / Tarasov A.P., Romyantsev S.I., Briskina Ch.M., Markushev V.M., Lotin A. A. // Proc. CAOL. – Odessa, Ukraine, 2016. – P. 117-119.

14. Tarasov A.P. Influence of surface plasmon resonance on ZnO photoluminescence. Role of pumping level / Tarasov A.P., Briskina Ch.M., Ryzhkov M.V., Romyantsev S.I., Markushev V.M. // Материалы междунар. конф. 2nd International School and Conference on Optoelectronics, Photonics, Engineering and Nanostructures – С.-Петербург, Россия, 2015. – P. 168-169.

15. Тарасов А.П. Анализ воздействия поверхностного плазмонного резонанса на люминесценцию оксида цинка / Тарасов А.П., Рыжков М.В., Румянцев С.И., Маркушев В.М., Брискина Ч.М. // Тезисы докладов IX конференции молодых ученых Нанoeлектроника, нанофотоника и нелинейная физика. – Саратов, 2014. – С. 175-176.

16. Romyantsev S.I. Effect of excitation intensity and surface morphology on the photoluminescence of ZnO films under the influence of surface plasmon resonance / Markushev V.M., Ryzhkov M.V., Tarasov A.P., Briskina Ch.M., Lotin A.A., Novodvorsky O.A., Lyaskovskii V.L. // Proc. CAOL. – Судак, Украина, 2013. – P. 211.

17. Тарасов А.П. Усиление люминесценции пленок ZnO под влиянием поверхностного плазмонного резонанса. Роль уровня накачки / Тарасов А.П., Рыжков М.В., Румянцев С.И., Маркушев В.М., Брискина Ч.М. // Тезисы докладов VIII конференции молодых ученых Нанoeлектроника, нанофотоника и нелинейная физика. – Саратов, 2013. – С. 227-228.

18. Romyantsev S.I. Enhancement of ZnO films photoluminescence under the influence of surface plasmon resonance. Role of excitation level / Romyantsev S.I., Markushev V.M., Ryzhkov M.V., Tarasov A.P., Briskina Ch.M., Lotin A.A., Novodvorsky O.A. // ICONO/LAT 2013 Technical Digest. – Москва, 2013. – С. 54-55.

19. Тарасов А.П. Анализ особенностей люминесценции микропленок ZnO / Тарасов А.П., Рыжков М.В., Румянцев С.И., Маркушев В.М., Брискина Ч.М. // Аннотации докладов Научной сессии НИЯУ МИФИ. – Москва, 2013. – Т. 2. – С. 52.

20. Тарасов А.П. Анализ особенностей люминесценции микропленок ZnO / Тарасов А.П., Рыжков М.В., Румянцев С.И., Маркушев В.М., Брискина Ч.М. // Тезисы докладов VII конференции молодых ученых Нанoeлектроника, нанофотоника и нелинейная физика. – Саратов, 2012. – С. 147-148.