

# Спектры «случайных» лазеров на ZnO при наносекундной накачке

В.М.Маркушев, М.В.Рыжков, Ч.М.Брискина

*Проведены исследования спектров «случайных» лазеров на ZnO, зарегистрированных за один импульс наносекундной накачки. Установлено, что эти спектры существенно отличаются от спектров, полученных при пикосекундной накачке: их линии, как правило, значительно уширены, сами спектры часто сглажены и существенно изменяются от вспышки к вспышке. Мы предполагаем, что эти особенности могут быть результатом нескольких актов генерации в течение одного импульса накачки, а также изменения частоты лазерных линий в каждом акте генерации. Случайные вариации лазерных спектров мы связываем с флуктуациями числа спонтанных фотонов, участвующих в формировании лазерного излучения каждой моды.*

**Ключевые слова:** «случайный» лазер, оксид цинка, стимулированное УФ излучение, лазерные спектры.

## 1. Введение

Возможность получения лазерного эффекта в случайно неоднородных средах была теоретически предсказана Летоховым в 1967 г. [1], а в 1986 г. этот эффект был впервые экспериментально продемонстрирован в образцах диэлектрических порошков, активированных ионами неодима [2]. В дальнейшем лазерную генерацию получали и исследовали в различных случайно-неоднородных средах. В настоящее время в результате этих исследований появилась новая область физической оптики, которая находится на стыке таких областей, как диффузия и локализация света, нелинейная оптика, фотонные кристаллы. В зарубежной литературе эта область науки получила название random lasers («случайные» лазеры).

С 1998 г. проводятся интенсивные исследования лазерного эффекта в порошках и неупорядоченных пленках оксида цинка при оптическом возбуждении импульсами пикосекундной длительности [3].

Оксид цинка (ZnO) – широкозонный ( $E_g \approx 3.3$  эВ при комнатной температуре) полупроводник, в котором энергия связи экситона  $E_b \approx 60$  мэВ. При комнатной температуре рекомбинация экситонов в оксиде цинка обуславливает УФ излучение в области 380–390 нм с временем жизни менее 200 пс. Исходя из этого, можно предположить, что при возбуждении импульсами наносекундной длительности возможно проявление интересных особенностей лазерного эффекта в порошках ZnO. Этот эффект получен и описан нами в работе [4]. При регистрации излучения с помощью фотоумножителя было обнаружено, что лазерные спектры представляют собой множество очень узких, хаотично появляющихся спектральных линий. Пример такого спектра представлен на рис. 1. Хаотичный характер лазерного эффекта, т. е. нере-

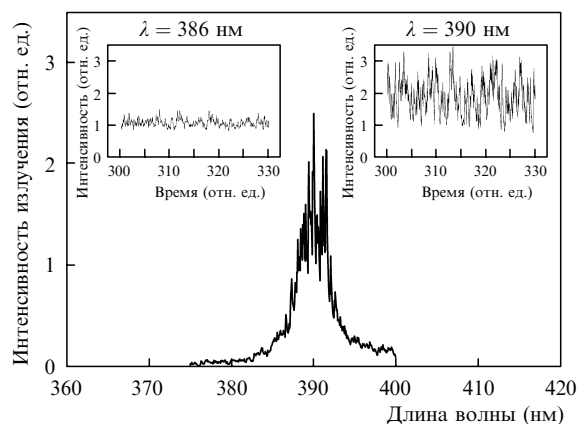


Рис. 1. Лазерные спектры, зарегистрированные с помощью ФЭУ. На вставках – поведение сигнала во времени на фиксированной длине волны.

гулярное появление и исчезновение от импульса к импульсу интенсивного излучения на фиксированной длине волны, был обнаружен нами во всех генерирующих образцах. Аналогичные эффекты описаны в работах [5, 6].

Основная цель настоящей работы – выяснить происхождение найденных особенностей спектров лазерного излучения и их вариаций от одного импульса накачки к другому. Для этого мы использовали ПЗС-камеру, которая позволяет регистрировать спектры, обусловленные отдельными возбуждающими импульсами. Предварительные результаты, полученные с помощью ПЗС-камеры при использовании одного образца, приведены в нашей статье [7].

## 2. Эксперимент

Все измерения проводились при комнатной температуре. Образцы порошков помещались в тонкостенные кварцевые пробирки. Оптическое возбуждение образцов осуществлялось третьей гармоникой двухкаскадного Nd:YAG-лазера с модуляцией добротности (длина вол-

В.М.Маркушев, М.В.Рыжков, Ч.М.Брискина. Институт радиотехники и электроники РАН, Россия, 125009 Москва, ул. Моховая, 11; e-mail: chara@mail.cplire.ru

Поступила в редакцию 25 сентября 2006 г., после доработки – 19 марта 2007 г.

ны 355 нм, длительность импульса  $\sim 5$  нс, частота повторения 10 Гц). Максимум плотности энергии накачки составлял  $\sim 70$  мДж/см<sup>2</sup> при площади пятна излучения накачки  $7 \times 10^{-4}$  см<sup>2</sup>. Излучение образца проецировалось на входную щель монохроматора МДР-23, имеющего дисперсию 1.3 нм/мм. На место выходной щели помещалась ПЗС-камера с термоэлектрическим охлаждением (Videoscan-285). В результате наша система с ПЗС-матрицей (8.8  $\times$  6.6 мм) позволяла регистрировать излучение в спектральном интервале 11.8 нм с дисперсией  $\sim 0.008$  нм/пиксель за один импульс накачки.

Необходимо отметить, что установка дает возможность регистрировать не более трех импульсов в секунду, в результате чего при частоте повторения возбуждающих лазерных импульсов 10 Гц проводилась регистрация не последовательных спектров излучения образца, а приблизительно каждого третьего.

Поскольку регистрирующий элемент установки – ПЗС-матрица, а не линейка, кроме спектрального (горизонтального) распределения, регистрируется также и пространственное (вертикальное) распределение интенсивности излучения в возбуждаемой области образца. В одном удачном случае это позволило оценить вертикальный размер области наиболее интенсивного лазерного излучения, который, по нашему мнению, приблизительно равен размеру лазерной моды в соответствующем порошке ZnO.

### 3. Результаты

При проведении экспериментов с использованием ПЗС-камеры стало ясно, что беспорядочные появления и исчезновения интенсивного излучения на фиксированной длине волны обусловлены случайными, от импульса к импульсу, вариациями спектров лазерного излучения. В работе [8] аналогичные результаты были получены при использовании таблеток, изготовленных прессованием порошка оксида цинка с размерами зерен 20–180 нм. Мы обнаружили, что общий характер и вариации лазерных спектров существенно различаются для разных порошков и неупорядоченных пленок ZnO.

*Монодисперсный порошок.* Наиболее регулярные с повторяющейся структурой спектры были получены при использовании монодисперсного образца (диаметр зерен  $\sim 150$  нм), изготовленного в Северо-Западном университете США. Типичный спектр этого образца, содержащий три линии (моды) показан на рис.2. На рис.3 представлена микрофотография данного образца, полученная с

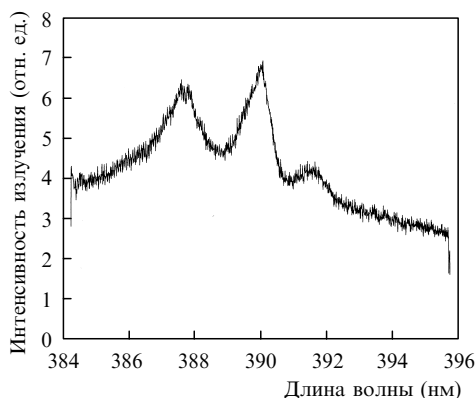


Рис.2. Спектр лазерной генерации монодисперсного образца ZnO.

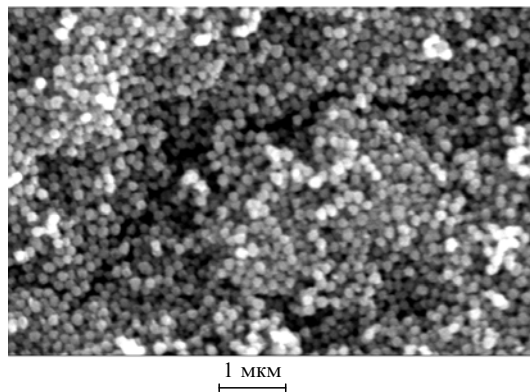


Рис.3. Микрофотография монодисперсного образца ZnO.

помощью сканирующего электронного микроскопа. Наиболее интенсивная лазерная линия имела длину волны  $\lambda = 390.1$  нм (полуширина линии  $\sim 0.8$  нм), самая слабая –  $\lambda = 391.5$  нм и наиболее широкая –  $\lambda = 387.7$  нм. В некоторых случаях наиболее широкая линия разделялась на две линии: с  $\lambda = 387.7$  и 388.5 нм (рис.4,а). Иногда соотношение между интенсивностями линий менялось. Некоторые спектры были сильно сглажены (рис.4,б). Следует отметить, что все приведенные спектры были получены в одной серии импульсов накачки.

Таким образом, наиболее регулярные и структурированные спектры лазерной генерации даже монодисперсного образца все-таки имел случайные вариации. Кроме того, ширина линий в спектрах этого образца значительно больше при наносекундной накачке, чем при пикосекундной [9] (рис.5).

Отметим сразу, что основная особенность лазерных спектров всех исследованных образцов при наносекундной накачке состоит в том, что, как правило, ширина их

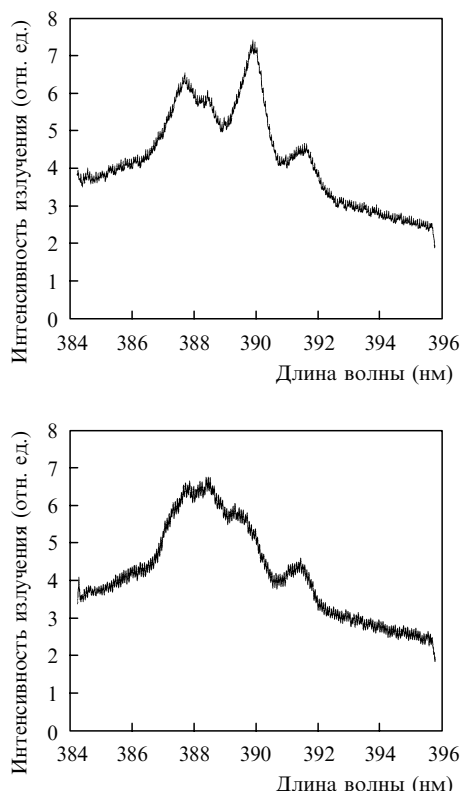


Рис.4. Примеры лазерных спектров монодисперсного образца ZnO.

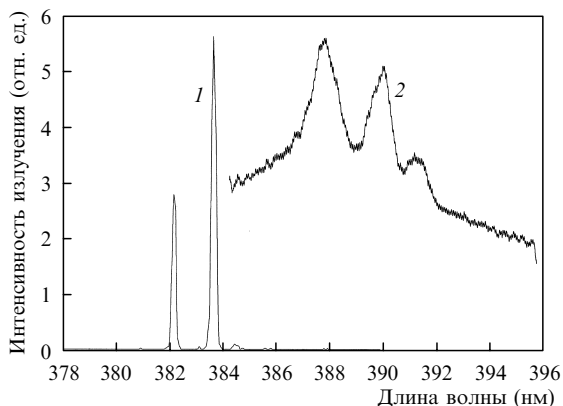


Рис.5. Лазерные спектры монодисперсного образца ZnO при пикосекундной [9] (1) и наносекундной (2) длительностях возбуждающего импульса.

линий существенно больше, чем при пикосекундной накачке. Возможные причины этого будут рассмотрены в разд.4.

**Полидисперсные порошки.** В полидисперсных образцах (размеры частиц 0.2–2.0 мкм) часто возникали спектры, состоящие из одной полосы с полушириной до ~2 нм. Положение максимумов и ширины этих полос изменялись от вспышки к вспышке случайным образом. Это свидетельствует о том, что они не могут быть обусловлены усиленным спонтанным излучением (УСИ). По нашему мнению, такие спектры представляют собой наборы перекрывающихся по частоте лазерных мод. Иногда у некоторых образцов появлялись структурированные спектры, но линии в этих спектрах не повторялись (рис.6).

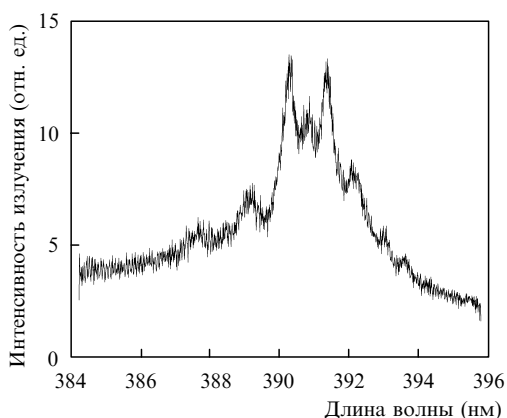
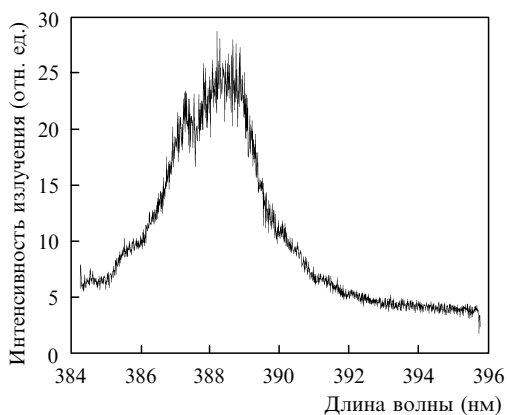


Рис.6. Примеры лазерных спектров полидисперсных образцов ZnO.

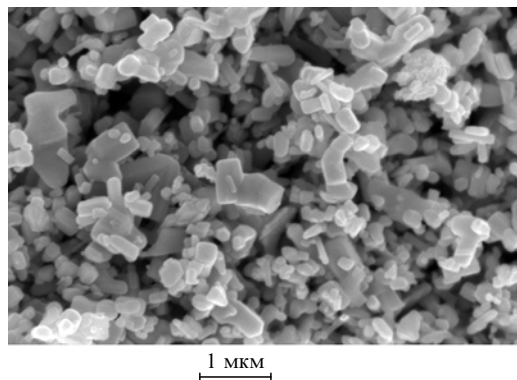


Рис.7. Микрофотография полидисперсного образца ZnO (SZ1).

Среди спектров полидисперсных образцов были обнаружены некоторые интересные варианты спектров. Так, в спектре образца SZ1 (особо чистый ZnO (рис.7)) в одной серии импульсов накачки наблюдалась достаточно добротная, часто повторяющаяся мода (линия шириной 0.7 нм) вблизи  $\lambda = 389$  нм (рис.8). Такой спектр соответствует относительно высокой интенсивности лазерного излучения. При относительно низкой (близкой к пороговой) интенсивности наблюдалась широкая полоса, на которой появлялись более узкие пики (рис.9). Мы считаем, что широкая полоса обусловлена УСИ. Среди узких линий на рис.9 присутствует линия с  $\lambda \approx 389$  нм. Из вида спектра мы можем сделать заключение, что лазерные моды возникают на фоне спектра УСИ, а не за счет сужения самой полосы УСИ. В другой серии импульсов накачки возникали совершенно другие спектры, где линия с  $\lambda = 389$  нм вообще отсутствовала.

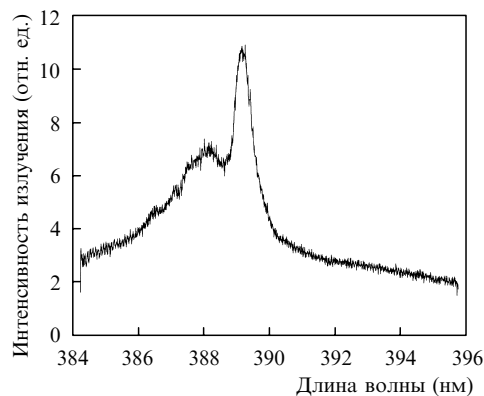


Рис.8. Спектр образца SZ1 при высокой интенсивности лазерного излучения.

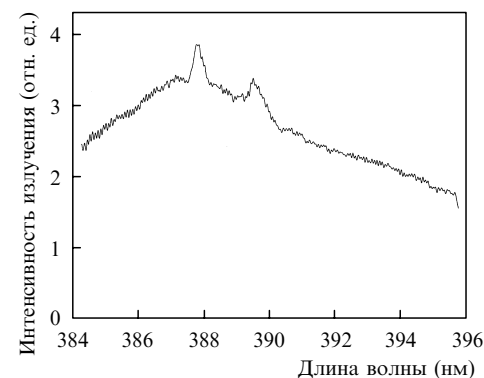


Рис.9. Спектр образца SZ1 при низкой интенсивности лазерного излучения.

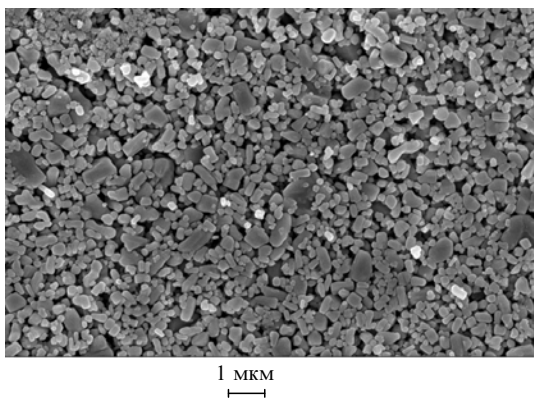


Рис.10. Микрофотография полидисперсного образца ZnO (SZ5).

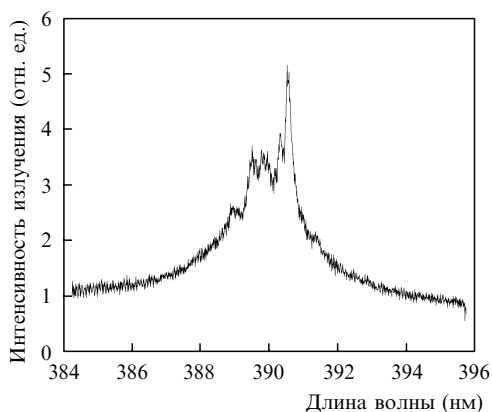


Рис.11. Пример лазерного спектра образца SZ5 с узкой линией излучения.

В последнее время нами исследовались образцы, в спектрах которых иногда, наряду с широкими линиями, возникали узкие. Один из таких образцов, SZ5 (рис.10), был изготовлен на химическом факультете Московского государственного университета из образца SZ1 путем мола с последующим отжигом. Пример спектра этого образца дан на рис.11. Ширина узкой линии составляет ~0.2 нм, что близко к ширинам линий в спектрах, наблюдавшихся при пикосекундной накачке.

Значительно чаще такие узкие линии присутствуют в лазерных спектрах образца, приготовленного в Шанхайском институте технической физики Китайской академии наук с использованием отжига на воздухе при температуре 700 °С (образец Ch-air700). Микрофотография и пример лазерного спектра этого образца представлены на рис.12 и 13 соответственно. Здесь ширина линии с  $\lambda =$

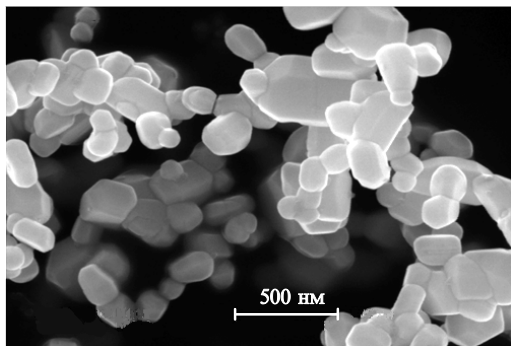


Рис.12. Микрофотография полидисперсного образца ZnO (Ch-air 700).

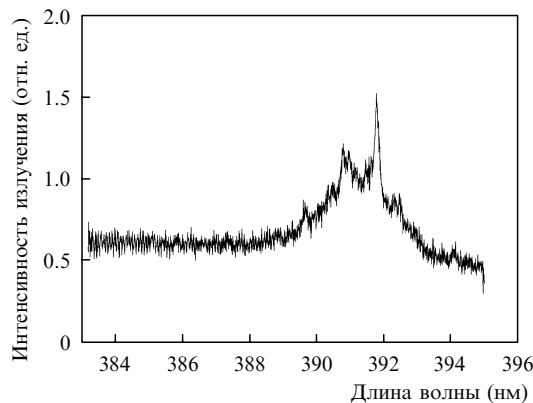


Рис.13. Пример лазерного спектра образца Ch-air700 с узкой линией излучения.

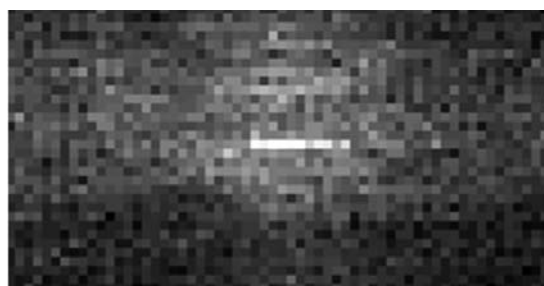


Рис.14. Увеличенное изображение рабочей части ПЗС-матрицы при регистрации лазерного спектра, приведенного на рис.13.

391.8 нм не превышает 0.1 нм. Случайно мода, определяющая эту линию, оказалась достаточно хорошо пространственно изолированной, что позволило приблизительно оценить ее вертикальный размер. Эта мода видна на рис.14, где приведено увеличенное изображение части ПЗС-матрицы. Здесь горизонтальное направление соответствует спектральной развертке, а вертикальное – пространственной. Мы предполагаем, что яркое пятно на рис.14 является «изображением моды», обуславливающей линию с  $\lambda = 391.8$  нм. Принимая во внимание то, что горизонтальный размер наиболее интенсивной области засветки соответствует 12 пикселям, а дисперсия системы равна 0.008 нм/пиксель, получаем ширину линии ~0.1 нм. Вертикальный размер моды соответствует одному пикселю, вертикальный размер которого у нашей ПЗС-матрицы составляет 6.4 мкм. Сравнение реального размера области свечения на образце и ее изображения на ПЗС-матрице дает возможность определить увеличение системы, которое оказалось равным ~0.5. Отсюда следует, что вертикальный размер моды составляет приблизительно 13 мкм. Естественно, размеры других мод могут быть иными, но по порядку величины для порошка ZnO с такими же размерами зерен, как и на рис.12, различия должны быть невелики.

Представляет значительный интерес рассмотренный в этом разделе эффект появления отдельных узких линий в образцах, которые были подвергнуты тщательному отжигу. Как известно, отжиг обеспечивает хорошее качество кристалла и отсутствие дефектов, что должно приводить к существенному уменьшению потерь в отдельных частицах порошка. На основании этого можно предположить, что узкие линии соответствуют модам, сосредоточенным в основном внутри зерен порошка.

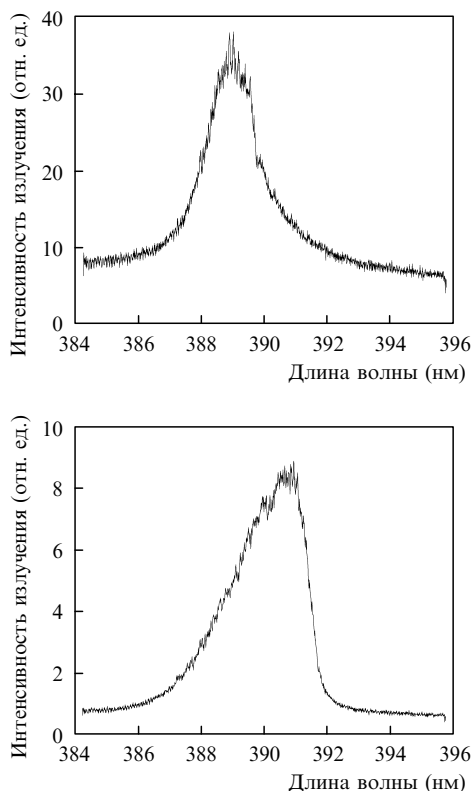


Рис.15. Примеры лазерных спектров пленок ZnO со столбчатой структурой.

*Неупорядоченные пленки.* В наших экспериментах мы использовали неупорядоченные пленки ZnO со столбчатой структурой, изготовленные в Институте кристаллографии РАН. Лазерные спектры таких пленок еще более сглажены, чем спектры полидисперсных образцов (рис.15). Поскольку положение максимумов интенсивности спектров меняется от одного импульса накачки к другому, мы уверены, что на рис.15 приведены спектры не УСИ, а лазерной генерации.

#### 4. Обсуждение результатов

Вначале сделаем два предварительных замечания.

1. Одновременное существование в лазерных спектрах широких и узких линий говорит о том, что нагрев вряд ли может быть причиной уширения линий при наносекундной накачке.

2. Сглаженность и случайный характер лазерных спектров неупорядоченных пленок (рис. 15) свидетельствуют о том, что эти эффекты в порошках не являются следствием движения гранул порошка под действием импульсов накачки.

В проведенных экспериментах с наносекундной накачкой при относительно большом размере пятна излучения накачки в лазерных спектрах порошков и неупорядоченных пленок были обнаружены следующие интересные особенности: ширины линий, как правило, значительно больше, чем при пикосекундной накачке; спектры случайным образом существенно изменяются от импульса к импульсу.

Мы предполагаем, что первая особенность связана с возникновением нескольких актов лазерной генерации в течение каждого импульса накачки. Отдельные акты генерации происходят в разные моменты времени и обус-

ловлены разными лазерными модами. Это возможно потому, что время рекомбинации экситонов в оксиде цинка (менее 200 пс) существенно меньше длительности импульса накачки (~5 нс). Длины волн и ширины линий генерации в этих актах соответствуют существующим в среде модам, которые могут перекрываться как по частоте, так и в пространстве.

Относительно большой размер пятна излучения накачки также обеспечивает наличие многих мод. Кроме того, весьма вероятно, что частоты некоторых линий изменяются в течение каждого акта генерации, подобно тому, как это наблюдалось при пикосекундной накачке в работе [10]. Для проверки этого предположения мы подготавливаем эксперименты с временным разрешением лазерных спектров.

Задача выяснения происхождения случайных изменений лазерных спектров от импульса к импульсу достаточно сложна. Можно было бы предположить, что эти изменения обусловлены изменениями распределения интенсивности в пятне излучения накачки. Экспериментальная проверка показала, что в нашей системе распределение интенсивности накачки сохраняется от вспышки к вспышке, хотя полная интенсивность накачки заметно изменяется.

Одной из возможных причин случайного изменения спектров могут быть флуктуации числа спонтанных фотонов, участвующих в формировании лазерного излучения каждой моды. Чтобы оценить роль такого эффекта, проводится упрощенное моделирование процесса лазерной генерации с использованием квантового уравнения Лиувилля для матрицы плотности и укороченных уравнений Максвелла для электромагнитного поля. Предварительные расчеты показали что, если моды пространственно не перекрываются, флуктуации числа спонтанных фотонов играют существенную роль только при накачке, близкой к пороговой. При большой интенсивности накачки эти флуктуации незначительны. Однако, если имеет место пространственное перекрытие мод и разные моды возбуждаются, хотя бы частично, за счет одних и тех же источников излучения, роль флуктуаций числа спонтанных фотонов становится весьма существенной. Детали моделирования и его результаты предполагается описать в отдельной статье.

Возможно, этот же механизм объясняет и различие степени случайности спектров моно- и полидисперсных порошков, т. к. в спектрах порошков первого типа мы наблюдали меньшее число мод, чем в спектрах порошков второго типа. Соответственно вероятность пространственного перекрытия мод в монодисперсном порошке должна быть меньше, и роль случайности спонтанного излучения менее существенна.

Случайные вариации лазерных спектров неоднородных сред привлекают внимание многих исследователей. Интересное предположение о происхождении этого эффекта высказано в работе [11], где случайное изменение лазерных спектров было экспериментально зафиксировано в красителях с рассеивателями. Авторы [11] рассматривают лазерный эффект как процесс размножения спонтанных фотонов на очень длинных траекториях в случайной среде с усилением. Они пишут: «В этом явлении спектры различны от вспышки к вспышке из-за присутствующей спонтанной излучения случайности». Конечно, применимость такого предположения к порошкам ZnO требует детальной проверки.

Другой возможной причиной случайных изменений лазерных спектров могут быть случайные блуждания экситонов в течение промежутка времени между актами генерации. Такие блуждания могут приводить к случайным распределениям источников излучения и, следовательно, величины усиления.

## 5. Заключение

Итак, в наших экспериментах было обнаружено, что лазерные спектры порошков и неупорядоченных пленок ZnO при наносекундной накачке существенно отличаются от лазерных спектров при пикосекундной накачке. С нашей точки зрения, это может быть результатом возникновения нескольких актов генерации в течение одного импульса накачки, а также возможного изменения частоты лазерных мод в каждом акте генерации.

Кроме того, лазерные спектры случайно изменяются от вспышки к вспышке. Возможной причиной этого, по нашему мнению, являются флуктуации числа спонтанных фотонов, участвующих в формировании лазерного излучения той или иной моды. Упрощенное моделирование подтвердило существенную роль этих флуктуаций при наличии пространственного перекрытия лазерных мод.

Авторы благодарны Н.Сао за полезные дискуссии и предоставление образцов, а также Е.И.Гиваргизову, Л.А.Задорожной, А.Н.Баранову, П.С.Соколову, Н.Zhong, Sh.-W.Wang и W.Lu за предоставление образцов.

Работа частично поддержана Программой фундаментальных исследований Президиума РАН.

1. Летохов В.С. *ЖЭТФ*, **53**, 1442 (1967).
2. Маркушев В.М., Золин В.Ф., Брискина Ч.М. *ЖЛС*, **45**, 847 (1986).
3. Cao H., Xu J.Y., Ling Y., et al. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, **9**, 111 (2003).
4. Markushev V.M., Ryzhkov M.V., Briskina Ch.M., Cao H. *Laser Phys.*, **15**, 1611 (2005).
5. Anglos D., Stassinopoulos A., Das R.N., et al. *J. Opt. Soc. Amer. B*, **21**, 208 (2004).
6. Noginov M.A., Zhu G., Fowlkes I., Bahoura M. *Laser Phys. Lett.*, **1**, 291 (2004).
7. Markushev V.M., Ryzhkov M.V., Briskina Ch.M. *Appl. Phys. B*, **84**, 333 (2006).
8. Sun Y., Ketterson J.B., Wong G.K.L. *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 2322 (2000).
9. Cao H., Xu J.Y., Seelig E.W., Chang R.P.H. *Appl. Phys. Lett.*, **76**, 2997 (2000).
10. Soukolis C.M., Jiang X., Xu J.Y., Cao H. *Phys. Rev. B*, **65**, 041103 (2002).
11. Mujumdar S., Ricci M., Torre R., Wiersma D. *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 053903 (2004).