

弯曲氧化锌微米线微腔中的回音壁模*

邱康生 赵彦辉 刘相波 冯宝华 许秀来†

(中国科学院物理研究所, 光物理重点实验室, 北京 100190)

(2014年4月1日收到; 2014年5月16日收到修改稿)

本文用微区共聚焦荧光光学显微镜在垂直于氧化锌微米线 c 轴的方向测量微米线上不同位置的光谱, 通过对比直的和弯曲的微米线上 TE 和 TM 偏振的光谱, 观察到了弯曲氧化锌微米线中不同位置的回音壁模式的移动, 其机理是在弯曲应力作用下激子能级发生了移动, 带边附近的介电常数也随之变化, 导致微腔中的回音壁模式发生移动.

关键词: 氧化锌微米线, 光学微腔, 回音壁模, 应力

PACS: 78.55.-m, 32.30.Jc, 81.40.Jj, 71.70.Fk

DOI: 10.7498/aps.63.177802

1 引言

氧化锌 (ZnO) 材料由于具有禁带宽 (~ 3.37 eV) 和激子束缚能大 (~ 60 meV) 等特性, 在紫外光电器件以及室温器件中有重要的应用. 微纳结构的 ZnO 材料, 比如纤锌矿结构的 ZnO 微纳线, 在微纳米激光器 [1,2], 非线性光学 [3,4], 纳米发电机 [5], 微米纳米传感器 [6] 等领域有重要的潜在应用价值. 纤锌矿结构的 ZnO 的光学微腔由于其品质因子高, 模式体积小, 可以实现微纳激光辐射 [7], 形成激子极化激元 [8,9] 等.

调控光与物质的相互作用是人们一直以来的研究方向, 应力是调节的方法之一. 在 ZnO 材料上施加压力, 测量激子能级的移动, 或者在弯曲的 ZnO 微米线上测量不同位置激子能级的光谱, 从而得到应力与激子能级的关系 [10–12]. 目前应力作用下 ZnO 微纳米线的研究工作主要集中在 ZnO 激子能级的移动与应力的关系. Dietrich 等报道了低温下弯曲的 ZnO 微米线激子能级在应力作用下的移动 [13,14], 同时简要报道了低温下微米线中的回音壁模, 由于在低温环境下带边附近主要是激子复

合发光, 对应的是激子的跃迁, 难以观察到回音壁模式, 因此须要在室温下测量带边附近的回音壁模式.

本文重点研究了室温下弯曲 ZnO 微米线垂直于 c 轴方向 (径向) 上带边附近回音壁微腔模式在应力作用下的移动. 在实验上制作了弯曲的单根 ZnO 微米线样品, 沿着样品径向测量 TE 和 TM 偏振的微区光致荧光光谱, 得到弯曲 ZnO 微米线的回音壁模式. 和直的 ZnO 微米线不同的是, 弯曲 ZnO 微米线在径向上回音壁模式发生了移动, 其原因是应力作用下激子能级的移动, 引起带边附近介电常数的变化, 从而导致回音壁模式发生移动. 该工作实现了应力作用下光学微腔模式的移动, 对应力调节光学微腔具有重要的参考价值.

2 ZnO 微米线的生长方法、样品的制作及测试

ZnO 微米线采用气相传输方法生长 [15]. 具体的过程如下: 将高纯度的 ZnO 粉末和碳粉末按照 1:1 的摩尔比例充分混合后置于石英舟中, 将石英

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2013CB328706, 2014CB921003)、国家自然科学基金 (批准号: 11174356, 61275060) 和中国科学院“百人计划”项目资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: xlxu@iphy.ac.cn

舟放置于石英管的封闭端, 在石英管内距离石英舟约 10 cm 处放置硅基片, 待反应炉的温度升高到 950 °C 时, 将石英管推入反应炉中; 经过 8 h 的反应后, 取出石英管并快速冷却至室温, 此时在硅基片上聚集了大量的 ZnO 晶须, 通过扫描电镜和 X 射线衍射方法可以测定晶须是纤锌矿结构的 ZnO 微纳线, 直径 0.4 μm—20 μm, 长度 3 μm—20 mm. 取出单根的微米线在显微镜下弯曲并用胶固定在石英基片上, 得到弯曲的 ZnO 微米线样品, 如图 1(a) 所示.

利用微区共聚焦荧光光学显微镜测量样品的光谱, 如图 1(b) 所示, 氦镉激光器的 325 nm 紫外激光作为激发光源, 经过一个反射式的透镜聚焦于样品, 焦点处光斑直径约 1—2 μm, 同时样品发出的荧光经过该透镜收集, 通过滤光片滤除激发光, 格兰棱镜选择偏振后, 进入一个长度为 550 mm 的单色仪, 最后采用液氮制冷的背感光电荷耦合器件 (CCD) 测量光信号得到光谱.

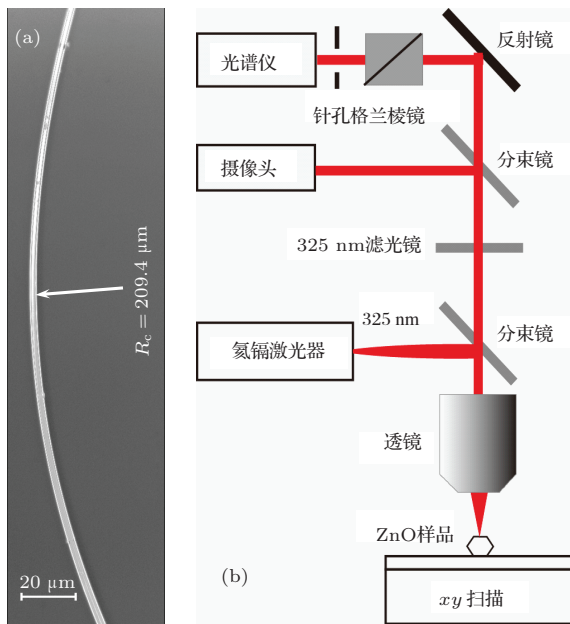


图 1 (a) 弯曲 ZnO 微米线的光学显微镜成像; (b) 实验光路图

3 测量结果与讨论

图 1(a) 是弯曲的 ZnO 微米线样品的光学显微镜下的图像, 样品的直径是 2.3 μm, 曲率半径大约是 209.4 μm. 在原子力显微镜下测试表明微米线的上表面和石英基片平行. 样品的光致荧光光谱如图 2 所示. ZnO 的荧光峰主要有两个, 一个在紫

外区域, 中心波长 380 nm 左右, 半高全宽大约是 15 nm, 另一个在可见光区域, 一般是绿光, 也有黄光或者蓝光, 普遍认为是缺陷引起的发光^[16,17], 如锌、氧缺陷等, 该荧光峰的半高全宽很宽, 一般 100—200 nm. 紫外区域的荧光峰主要是带边发光, 是激子复合发光, 与激子的特性关系密切. ZnO 材料的激子主要有三种, 晶体场作用下产生 C 激子, 自旋轨道耦合作用产生 A 和 B 激子^[18]. 由于对称性的关系, 三种激子发光的偏振有些区别, A 激子, B 激子主要存在 σ 偏振, 而 C 激子发光主要对应 π 偏振^[19], 因此实验中测到 TE 与 TM 偏振, 分别对应不同激子的跃迁.

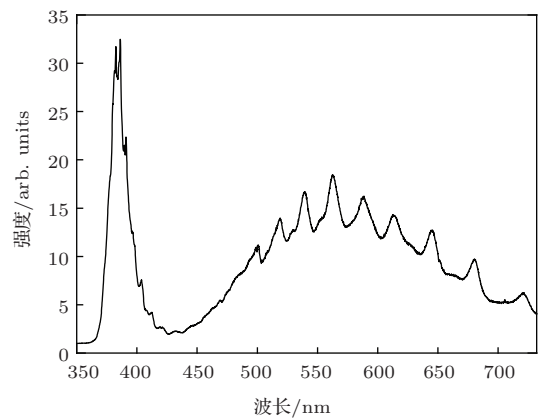


图 2 ZnO 微米线的光致荧光光谱

图 2 的光谱中, 在紫外和可见光光谱区均可以看到一些尖锐的谱峰, 而且随着波长的增加, 谱峰间隔增大. 这些尖峰是由 ZnO 微米线微腔全内反射形成光学共振引起的^[20,21], 如图 3(b) 中蓝色实线和红、绿色虚线所示, 微腔的六个面全反射形成共振模式, 这种共振模式一般称为回音壁模式. 由于微腔的每个面上都发生全反射, 因此能量损耗小, Q 值可以很高, 回音壁模式的共振方程如下^[22]:

$$R = \frac{\lambda}{3\sqrt{3}n} \left[N + \frac{6}{\pi} \arctan(\beta\sqrt{3n^2 - 4}) \right], \quad (1)$$

其中 R 是 ZnO 微米线的外接圆半径, λ 是共振波长, n 是 ZnO 材料的折射率, β 和偏振相关, TE 偏振时 $\beta = n$, TM 偏振时 $\beta = 1/n$, N 是模式阶数.

首先选取了直的 ZnO 微米线样品沿着径向进行扫描, 通过对不同直径的 ZnO 微米线进行扫描, 直的 ZnO 微米线的回音壁模式共振峰均不会发生变化.

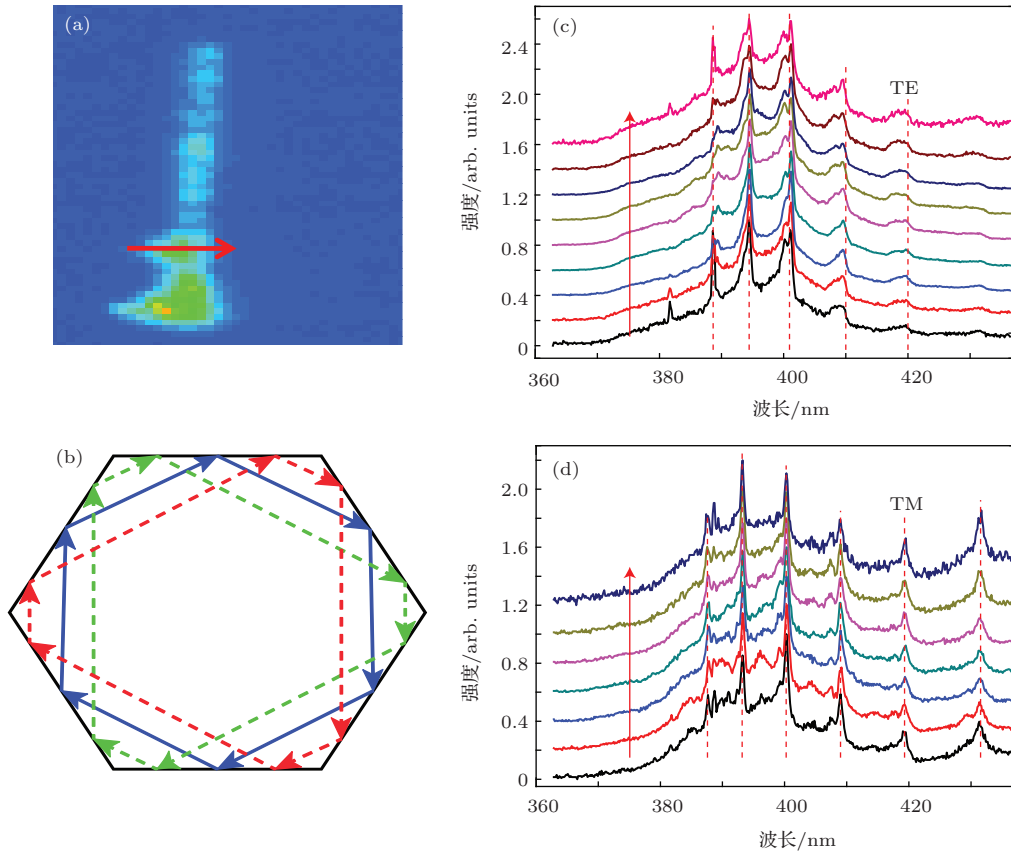


图3 (网刊色彩) 直的 ZnO 微米线的径向扫描光谱 (a) 光谱扫描成像; (b) 横截面示意图 (无应力作用下折射率分布均匀, 红绿蓝三条闭环光路); (c), (d) 分别是归一化的 TE 和 TM 偏振光谱的变化

图 3(a) 是一根直径为 $1.7 \mu\text{m}$ 的直的 ZnO 微米线扫描光谱成像. 图 3(c) 和 (d) 分别是沿着 ZnO 微米线径向进行线扫描时不同位置的归一化 TE 和 TM 偏振光谱, 扫描路径如图 3(a) 中的红色箭头线所示. 从图 3(c) 和 (d) 可以看出, 回音壁模式没有随着测量位置发生变化. 这是因为在不同位置测量的光谱时, 光学共振的路径虽然不同, 但是光程都是相等的. 例如图 3(b) 中所示的红绿蓝三条不同的路径, 通过计算可以发现, 三条路径的长度都等于 $3\sqrt{3}R$ (R 是外接圆半径), 与测量位置无关, 因此在折射率分布均匀的情况下, 不同路径的光程不变, 根据共振方程 (1) 可知, 回音壁模式不会发生移动.

当 ZnO 微米线发生弯曲以后, 在考虑纯弯曲的情况下, 中心处的应力为零, 内侧是压应力, 外侧是张应力, 激子能级在压应力的作用下发生蓝移, 张应力作用下红移 [14,23]. 在两侧受到的应力最大, 设微米线的直径是 d , 曲率半径为 R_c , 则计算测出微米线两侧的最大应力为

$$\varepsilon^{\max} = \pm \frac{d}{2R_c} = \pm 0.55\%.$$

根据文献 [10] 中的数据, A 激子的能级移动和应力

的关系为 $\partial E/\partial \varepsilon = -0.37 \text{ eV}$, 由此计算出激子能级的最大移动为 $\Delta E = \mp 2 \text{ meV}$, 对应的波长漂移大约是 0.24 nm , 在室温下由于光谱较宽, 观察不到激子能级的微小移动.

图 4(c) 和 (d) 分别是弯曲 ZnO 微米线径向进行线扫描时不同位置的归一化 TE 和 TM 偏振光谱, 扫描路径如图 4(a) 中的黑色箭头线所示. 从图 4(c) 和 (d) 中可以看出, 微腔的回音壁模式在带边附近发生了明显的偏移, 如图中的虚线所标示, 靠近带边的回音壁模式移动明显, 而随着波长远离带边, 回音壁模式的移动越来越小.

根据共振方程 (1), 由弯曲引入的回音壁模式移动主要有两方面的原因: 一是弯曲后光学微腔外形的变化. 弯曲后 ZnO 微米线微腔形状可以通过曲率半径、ZnO 的弹性模量以及弹性顺应常数计算得出, 或者根据文献 [13] 得出. 不同形变程度下光学微腔模式通过时域有限差分方法进行模拟, 模拟的结果表明由弯曲导致的光学微腔的形变量很小, 不足以对光学微腔内的共振模式产生明显影响. 另一方面是折射率的变化. 弯曲后的 ZnO 微米线内外分别受到压应力和张应力, 而应力的作用可以改变材料的折射率 [24]. 半导体材料带边附近的色散

关系如下式所示^[25]:

$$n^2 = \varepsilon(\omega, k) = \varepsilon_\infty \left(1 + \sum_{j=A,B,C} \Omega_j \frac{\omega_{j,L}^2 - \omega_{j,T}^2}{\omega_{j,T}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j} \right), \quad (2)$$

其中 ε_∞ 是背景介电常数, $\omega_{j,T}$ 和 $\omega_{j,L}$ 分别是横向和纵向的共振频率, γ_j 是衰减系数, Ω_j 是三种激子的比例系数. 共振频率和激子能级相对应. 弯曲后应力作用导致的激子能级的移动, 同时使激子能级产生更精细的结构^[23], 共振频率的微小移动会导致带边附近介电常数发生急剧变化, 因此折射率也会有较大的变化, 从而导致微腔的回音壁模式发生

变化. 由于 TE 和 TM 模式分别对应不同能量的激子发光, 因此它们的移动存在差异. 远离带边介电常数主要是背景介电常数, 受激子能级移动的影响较小, 而且激子能级的移动非常小 (~ 2 meV), 在远离带边的区域介电常数的变化可以忽略, 因此未能观察到回音壁模式的移动.

由图 4(b) 可以看出, 不同位置的回音壁模式的路径不同, 由于应力作用导致折射率分布不均匀, 每条路径 (如图 4(b) 中的红色、绿色虚线和蓝色实线) 的光程不再相等, 从而导致了带边附近回音壁模式的移动. 这种通过应力调节单根微米线折射率的物理机理还有待进一步研究.

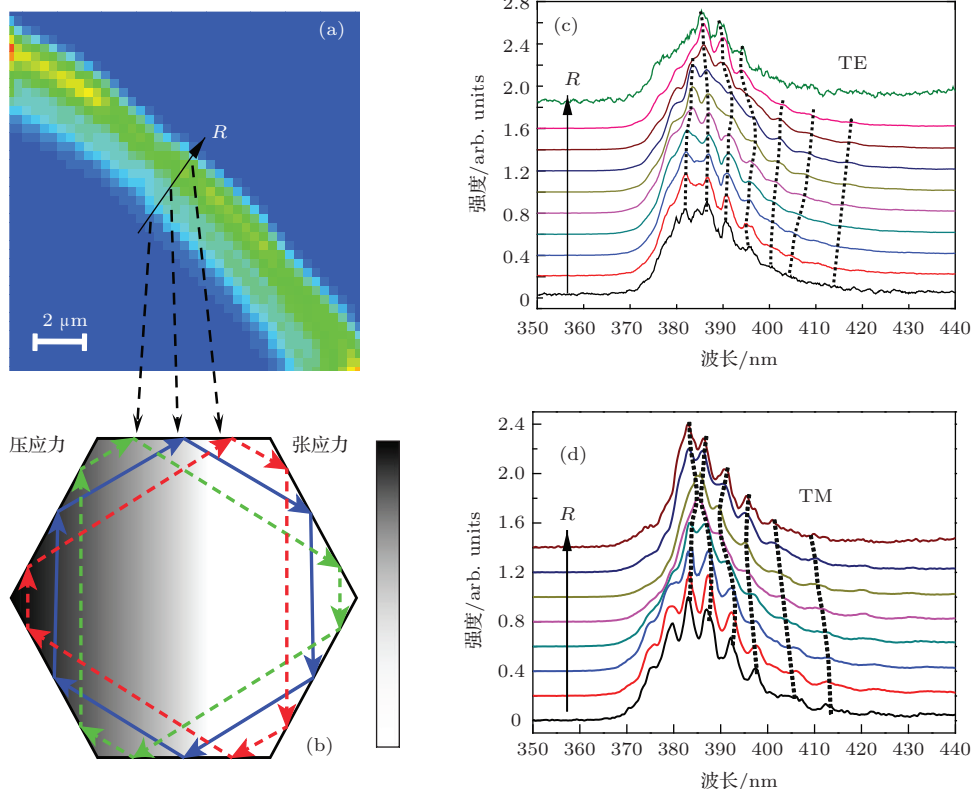


图 4 (网刊色彩) (a) 弯曲 ZnO 微米线在共聚焦扫描光学显微镜下的光谱扫描成像; (b) 应力下的 ZnO 微米线横截面示意图 (图中红色、绿色虚线和蓝色实线分别是三条闭合的光学路径); (c), (d) 分别是归一化 TE 和 TM 偏振光谱的变化

4 结 论

本文通过共聚焦显微荧光光谱的方法测量了直的和弯曲的 ZnO 微米线微腔的回音壁共振模式, 发现直的微米线在径向上不同位置的光谱的共振模式是不变的, 而弯曲的微米线中的回音壁共振模式会发生移动. 这是由于在弯曲应力作用下, ZnO 微米线中激子的能级发生了偏移, 引起了介电常数的变化, 从而导致微米线带边附近回音壁模式

在 ZnO 微米线径向上发生了偏移. 因此, 可以通过应力对单根氧化锌微米线中回音壁微腔模式进行调控.

参考文献

- [1] Dai J, Xu C X, Ding R, Zheng K, Shi Z L, Lv C G, Cui Y P 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 191117
- [2] Liu R B, Zou B S 2011 *Chin. Phys. B* **20** 047104
- [3] Si X, Su X R, Li C, Han Y B, Fang G J, Wang Q Q 2008 *Chin. Phys. B* **17** 1291

- [4] Dai J, Xu C X, Sun X W 2011 *Opt. Commun.* **284** 4018
- [5] Gao Y, Wang Z L 2007 *Nano Lett.* **7** 2499
- [6] Kon S, Horowitz R 2008 *IEEE Sens. J* **8** 2027
- [7] Wiersig J 2003 *Phys. Rev. A* **67** 023807
- [8] van Vugt L K, Rühle S, Ravindran P, Gerritsen H C, Kuipers L, Vanmaekelbergh D 2006 *Phys. Rev. Lett* **97** 147401
- [9] Sun L, Chen Z, Ren Q, Yu K, Bai L, Zhou W, Xiong H, Zhu Z, Shen X 2008 *Phys. Rev. Lett* **100** 156403
- [10] Xue H, Pan N, Li M, Wu Y, Wang X, Hou J 2010 *Nanotechnology* **21** 215701
- [11] Wagner M R, Callsen G, Reparaz J S, Kirste R, Hoffmann A, Rodina A V, Schleife A, Bechstedt F, Phillips M R 2013 *Phys. Rev. B* **88** 235210
- [12] Han X, Kou L, Zhang Z, Zhang Z, Zhu X, Xu J, Liao Z, Guo W, Yu D 2012 *Adv. Mater* **24** 4707
- [13] Grundmann M, Dietrich C P 2012 *Phys. Status. Solidi. B* **249** 871
- [14] Dietrich C, Lange M, Klupfel F, Von Wenckstern H, Schmidt-Grund R, Grundmann M 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 031105
- [15] Xu C, Sun X W, Dong Z L, Yu M 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 3878
- [16] Xu X, Lau S, Chen J, Chen G, Tay B 2001 *J. Cryst. Growth* **223** 201
- [17] Korsunska N, Borkovska L, Bulakh B, Khomenkova L Y, Kushnirenko V, Markevich I 2003 *J. Lumin.* **102** 733
- [18] Mang A, Reimann K, Rübenacke S 1995 *Solid State Commun* **94** 251
- [19] Ozgur U, Alivov Y I, Liu C, Teke A, Reshchikov M, Dogan S, Avrutin V, Cho S-J, Morkoc H 2005 *J. Appl. Phys* **98** 041301
- [20] Xu X, Brossard F S F, Williams D A, Collins D P, Holmes M J, Taylor R A, Zhang X 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94**
- [21] Xu X, Brossard F S F, Williams D A, Collins D P, Holmes M J, Taylor R A, Zhang X 2010 *New J. Phys* **12** 083052
- [22] Nobis T, Kaidashev E M, Rahm A, Lorenz M, Grundmann M 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 103903
- [23] Liao Z M, Wu H C, Fu Q, Fu X W, Zhu X L, Xu J, Shvets I V, Zhang Z H, Guo W L, Leprince Wang Y, Wu X S, Yu D P 2012 *Sci. Rep.* **2** 452
- [24] Vedam K, Davis T 1969 *Phys. Rev.* **181** 1196
- [25] Lagois J 1981 *Phys. Rev. B* **23** 5511

Whispering gallery modes in a bent ZnO microwire*

Qiu Kang-Sheng Zhao Yan-Hui Liu Xiang-Bo Feng Bao-Hua Xu Xiu-Lai†

(Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(Received 1 April 2014; revised manuscript received 16 May 2014)

Abstract

Micro-cavities play an important role in the light-matter interaction. The cross section of wurtzite-structured ZnO microwire is a hexagon, which gives a high quality factor. Exciton-polariton, micro-and nanowire lasers and polariton condensation have been investigated using the micro-cavities of ZnO microwires at room temperature. Strain, which changes the dielectric index of a material, is one of the methods to tune the interaction between the light and the matter. In this work, the photoluminescence spectra of strain free and bent ZnO microwires are measured across the wires, and the modes shifts are observed only in the bent one near the band edge. Shifting of the cavity modes across the wire can be observed in both TE and TM polarized spectra. For a bent ZnO microwire, the microcavity can be modified by the strain from bending, and the exciton energies may shift due to the strain. The shifted exciton energy induces a change of dielectric constant, resulting in the shifting of the cavity modes across the microwire.

Keywords: ZnO microwire, micro-cavity, whispering gallery mode, strain

PACS: 78.55.-m, 32.30.Jc, 81.40.Jj, 71.70.Fk

DOI: 10.7498/aps.63.177802

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2013CB328706, 2014CB921003), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11174356, 61275060), and the Hundred Talents Program of the Chinese Academy of Sciences.

† Corresponding author. E-mail: xlxu@iphy.ac.cn