Письма в ЖЭТФ, том 118, вып. 1, с. 23 – 29 © 2023 г. 10 июля

Зависимость резонансного обращения волнового фронта света на поляритонах от интенсивности оптической накачки в пленках оксида цинка

А. Н. Грузинцев[1)]

Институт проблем технологии микроэлектроники РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 11 апреля 2023 г.
После переработки 25 мая 2023 г.
Принята к публикации 26 мая 2023 г.

Теоретически и экспериментально показана возможность резонансного обращения волнового фронта света в возбужденной полупроводниковой среде. На эпитаксиальных пленках ZnO при комнатной температуре и накачке азотным лазером обнаружено индуцированное обращение волнового фронта света в инфракрасной области спектра для энергии фотонов, равной половине энергии излучательной рекомбинации поляритонов. Исследованы зависимости интенсивности сигнала обращения волнового фронта от энергии падающего фотона и интенсивности лазерной накачки.

DOI: 10.31857/S1234567823130062, EDN: gawrst

1. Введение. В полупроводниковых материалах существуют для некоторых частот радио и оптического диапазона собственные резонансные колебания (плазмоны, фононы, экситоны и т.д.), приводящие к резонансному колебанию поляризации кристаллической решетки и возникновению особых состояний материала под общим названием – поляритоны. Характер дисперсионных кривых частота–волновой вектор для этих квазичастиц дает высокую локальную плотность состояний в точках с нулевым волновым вектором для резонансных частот. Именно поляритоны обуславливают целый ряд интересных для практического применения свойств полупроводников, таких как комбинационное рассеяние света (КРС), оптическое поглощение, люминесценция и резонансное обращение волнового фронта света. В данной работе мы будем исследовать экситонные состояния в широкозонном материале – оксиде цинка, имеющие резонанс в фиолетовой области спектра 380–400 нм. В этом полупроводнике энергия связи экситона имеет рекордно высокое значение 60 мэВ [1], что позволяет получать высокие плотности данных поляритонов при небольшой интенсивности оптической накачки при комнатной температуре. Для других соединений (например, GaN) требуется создание квантово-размерных структур, чтобы получить высокие плотности экситонов в различных диапазонах спектра. При этом спектральное положение экситонных резонансов можно менять не только химическим составом, но и геометрическим размером квантовых ям, нитей или точек. Благодаря высокой эффективности излучательной рекомбинации в пленках ZnO в ряде работ наблюдалась стимулированная люминесценция в ультрафиолетовой области 390–400 нм при возбуждении азотным лазером [2, 3]. В этом случае происходило усиление света при излучательной рекомбинации экситонов или электрон-дырочной плазмы (ЭДП) в сильно возбужденном оксиде цинка при мощном лазерном импульсном возбуждении.

Для нас особый интерес вызывает такое нелинейное явление, как обращение волнового фронта (ОВФ) световой волны в возбужденной среде [4–6]. Поскольку в этом случае падающая волна всегда отражается в строго обратном направлении, независимо от угла падения на поверхность образца возникает возможность создания устройств аддаптивной оптики для фокусировки обращенной и усиленной волны на подсвеченные объекты. Такая система может самонастраиваться и ОВФ может исправлять искажения, вызванные усиливающей средой или оптическими элементами в лазерном резонаторе. В первых экспериментах [6] по ОВФ использовалось трехволновое смешение в средах с кубической нелинейностью (1) и мощности накачки двух встречных волн порядка 1.6×10^7 Вт/см^2, а мощность отраженной волны составляла примерно $2 \cdot 10^{-3}$ от мощности третьей сигнальной волны (коэффициент отражения среды). Из-за этого первые зеркала ОВФ имели большой объем, малый коэффициент отражения и были не применимы для довольно миниатюрных по-

[1)]e-mail: gran@iptm.ru

лупроводниковых лазеров. В работе [7] теоретически и экспериментально показана возможность резонансного ОВФ в возбужденной полупроводниковой среде. На эпитаксиальных пленках ZnO при накачке азотным лазером было обнаружено обращение света для энергии фотонов, равной половине энергии излучательной рекомбинации свободных экситонов. Было предложено объяснение данного эффекта ОВФ: квадратичное взаимодействие световых и экситонных электромагнитных колебаний в возбужденной полупроводниковой среде. Ранее [8] теоретически и экспериментально была показана возможность нерезонансного обращения светового волнового фронта (ОВФ) в возбужденной полупроводниковой среде – на порошке ZnO при комнатной температуре и накачке импульсным азотным лазером. Впервые обнаружено обращение света при ступенчатом временном изменении диэлектрической проницаемости среды во время перехода Мотта. Исследованы зависимости интенсивности сигнала ОВФ от угла его регистрации. Предложено объяснение эффекта: взаимодействие световых и электрон-дырочных плазменных колебаний в полупроводниковой среде во время изменения поляризации полупроводниковой среды под действием мощной оптической накачки.

Интересно подробнее исследовать эффект резонансного ОВФ при интенсивном оптическом возбуждении в пленках оксида цинка в зависимости от интенсивности накачки. При этом происходит процесс всего лишь двухволнового смешения электромагнитных колебаний, вероятность которого довольно велика в нецентросимметричных электрооптических полупроводниковых материалах типа оксида цинка. В этом случае при комнатной температуре происходит ОВФ на поляритонной волне с нулевым волновым вектором, обусловленной образованием свободных экситонов или рекомбинацией ЭДП в тонком слое порядка 100 нм. Целью данной работы является исследование эффектов резонансного обращения волнового фронта света на поляритонах разного типа в пленках ZnO в зависимости от энергии фотона падающего света, типа поляритона и от интенсивности возбуждающего ультрафиолетового лазера.

2. Теория. 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]:

$$P_i = \chi^1_{ij}E_j + \chi^2_{ijk}E_jE_k + \chi^3_{ijkl}E_jE_kE_l + ..., \qquad (1)$$

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 тензора 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 ответственном за генерацию второй гармоники и электрооптической эффект в материале (имеющим в ZnO с решеткой гексагонального вюрцита значительную величину [7]). 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: $E_2 = \{E_{20}\exp(-i\omega t + ikx) + E^*_{20}\exp(i\omega t - ikx)\}$. При этом второе электромагнитное колебание в полупроводнике соответствует на кривой дисперсии поляритона точке экситона в состоянии покоя (волновой вектор $K = 0$) 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:

$$\chi^2(E_1 + E_2)(E_1 + E_2) = 2\chi^2E_1E_2 + \chi^2E_1^2 + \chi^2E_2^2. \quad (2)$$

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

$$2\chi^2E_1E_2 = 2\chi^2\{E_{10}E_{20}\exp(-i3\omega t + ikx) + \\ + E_{10}E^*_{20}\exp(-i\omega t - ikx) + \text{К.С.}\}, \qquad (3)$$

где К.С. обозначает комплексно сопряженные члены к первым двум слагаемым в (3). Выражение (3) для поляризации полупроводника дает две электромагнитных волны, но первая из них не укладывается на кривую дисперсию 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 ZnO, глубина поглощения которого составляет порядка 0.1–0.2 мкм, то легко получить условия больших интенсивностей накачки для ОВФ в тонком приповерхностном слое полупроводника.

Выше мы рассматривали второй квадратичный по полю член в выражении для поляризации среды (1), но поляритон характерен тем, что дает изменение поляризации и в первом линейном члене за

счет резонансной раскачки поляризуемости χ^1 в экситонной области (или за счет изменения населенности электронных уровней в полупроводнике). При этом временная зависимость поляризуемости имеет вид: $\chi^1 = \chi^{10} + \{\chi^{11}\exp(-i\Omega t) + \chi^{11*}\exp(i\Omega t)\}$, где χ^{10} – постоянная величина. Остановимся подробнее на первом слагаемом в правой части (1) и распишем его в предположении, что частота световой волны E_2 равна половине экситонной частоты, т.е. $\omega = \Omega/2$.

$$\chi^1 E_2 = \chi^{10} E_2 + \{\chi^{11} E_{20}\exp(-i3\omega t + ikx) + \\ + \chi^{11} E_{20}^*\exp(-i\omega t - ikx) + \text{К.С.}\}. \qquad (4)$$

Выражение (4) для поляризации полупроводника уже дает три электромагнитных волны, но вторая из них не укладывается на кривую дисперсию кристалла. Тогда как третья представляет собой обращенную световую волну, движущуюся на встречу падающей – E_2 не зависимо от угла падения света на поверхность полупроводника. Ее интенсивность пропорциональна интенсивности падающей волны и влиянию поляритонных колебаний на линейную оптическую восприимчивость среды. В этом случае имеем аналог КРС [9] на собственных колебаниях – поляритонах среды. Тогда как в случае квадратичной поляризуемости (3) обращение волнового фронта является аналогом параметрической генерации света (ПГС). Можно предположить, что второй механизм резонансного ОВФ – аналог КРС (4) дает большую интенсивность обращенного света, особенно, для материалов с центром симметрии в кристаллической решетке. Но даже ОВФ на квадратичной поляризуемости больше по интенсивности обычной ПГС из-за наличия 100 % фазового синхронизма обращенной волны для любого материала и из-за большой плотности локальных состояний фотонов для поляритонной волны.

3. Эксперимент. В работе использовались пленки ZnO, нанесенные на сапфир основной ориентации (0001) методом электронно-лучевого высоковакуумного напыления на установке L-560 (Leubold Haereus). Толщина пленок составляла 0.5 мкм. Пленки ZnO имели высокое кристаллическое качество с осью роста, перпендикулярной поверхности [7]. В спектре их люминесценции при комнатной температуре превалировал пик экситонного свечения с максимумом 3.22 эВ. 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 измерения сигнала обращения волнового фронта и ФЛ на пленках оксида цинка подробно описана в работах [7, 8]. Здесь важно отметить, что падающая на образец световая волна была от лампы накаливания "Нарва-100", запитанной источником постоянного тока, и падала на образец под углом более 45 градусов, 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 хуже 4 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 оксида цинка находился при комнатной температуре и был сориентирован так, чтобы электромагнитные колебания лазерной и световой волны имели составляющие вдоль оси роста пленки. Лазерный луч фокусировался на поверхности пленки в пятно диаметром менее 100 мкм, что позволяло получать максимальную плотность мощности накачки порядка 10^8 Вт/см^2. Совмещение светового и лазерного пятна на образце контролировалось с помощью оптического микроскопа. В качестве расщепителя света использовалась обычная кварцевая пластина. При регистрации спектров обращенного сигнала и люминесценции пленки использовались светофильтры ЖС-12 и СЗС-23 соответственно, для удаления паразитных сигналов второго порядка двойного монохроматора МДР-6 в регистрируемых спектрах.

4. Результаты и их обсуждение. На рисунке 1 показаны спектры сигнала обращения волнового фронта образцов ZnO в красной области спектра при мощности импульсной оптической накачки азотного лазера 70 кВт/см^2 и для разной энергии фотонов падающего непрерывного света от 1.75 эВ (рис. 1, кривая *1*) до 1.42 эВ (рис. 1, кривая *12*). В этом случае перед регистрирующим монохроматором МДР-6 ставился инфракрасный (ИК) светофильтр КС-15, который не пропускал не только рассеянный свет лазера 337.1 нм, но и сигнал люминесценции пленки ZnO. Это делалось для зарезания возможного в монохроматоре второго порядка линии люминесценции. Мы видим, что при световой подсветке с энергией фотона 1.75 эВ (рис. 1, кривая *1*) в красной области спектра отсутствует какой-либо обращенный сигнал. Однако при приближении энергии фотона к половине экситонной $3.22/2 = 1.61$ эВ 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, име-

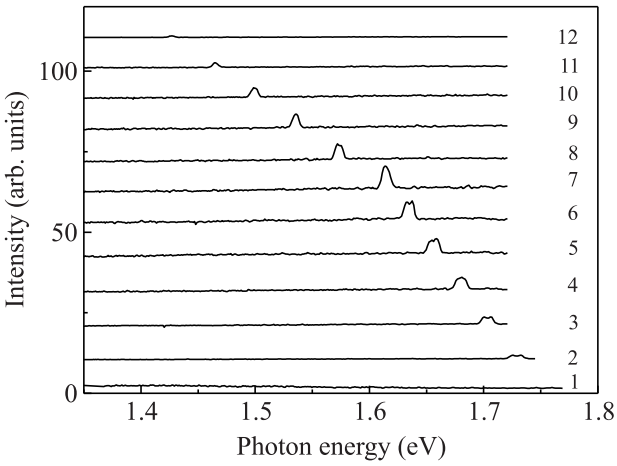

Рис. 1. Спектры сигнала обращения волнового фронта пленки ZnO в красной области спектра при энергии фотонов падающего света, эВ: *1* – 1.75, *2* – 1.72, *3* – 1.70, *4* – 1.67, *5* – 1.65, *6* – 1.63, *7* – 1.61, *8* – 1.57, *9* – 1.53, *10* – 1.49, *11* – 1.46 и *12* – 1.42. Интенсивность возбуждающего азотного лазера: 70 кВт/см^2. $T = 300$ K

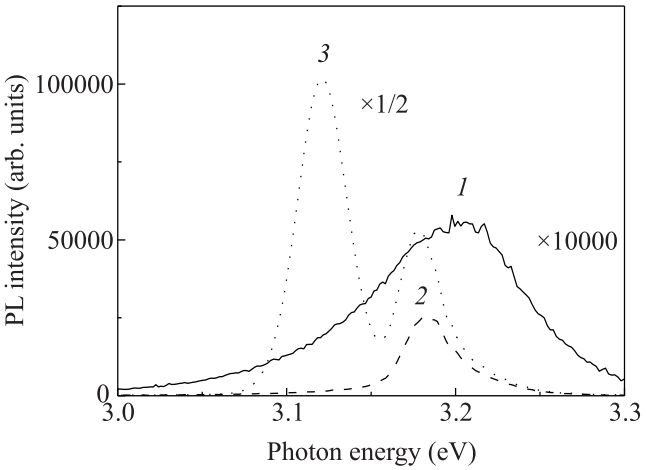

Рис. 2. Спектры ФЛ пленок ZnO при различных интенсивностях возбуждающего азотного лазера: 70 кВт/см^2 (*1*); 22 МВт/см^2 (*2*) и 70 МВт/см^2 (*3*). $T = 300$ K

ет импульсный характер с частотой возбуждающего лазера. Спектральная полуширина сигнала ОВФ совпадает с шириной падающей световой волны, а интенсивность обращенной волны зависит от ее спектрального положения.

На рисунке 2 представлены спектры ФЛ пленок при различных интенсивностях возбуждающего азотного лазера. Видно, что при малых плотностях мощности возбуждения 70 КВт/см^2 (кривая *1*) в ФЛ пленок ZnO превалирует полоса свободных экситонов, максимум которой незначительно сдвигается в длинноволновую сторону от 3.22 эВ с увеличением мощности накачки на три порядка величины. Характер зависимости площади под кривой свечения и ширины экситонной линии люминесценции на полувысоте от интенсивности лазерного возбуждения свидетельствуют о ее спонтанном характере. Далее с мощности накачки более 22 МВт/см^2 (кривая *2*) в спектре ФЛ появляется линия стимулированной люминесценции с максимумом 3.18 эВ (так называемая *P*-полоса), обусловленная рассеянием двух свободных электронов с излучением одного из них [10]. В случае стимулированной люминесценции рост площади был сверхлинейным с явно выраженным пороговым значением, а ширина линии, наоборот, уменьшалась для надпороговых плотностей мощности. При интенсивностях возбуждения 70 МВт/см^2 (рис. 2, кривая *3*) в люминесценции появляется N-пик с максимумом 3.12 эВ, связанный со стимулированной рекомбинацией ЭДП оксида цинка. Теперь одновременно с импульсным возбуждением азотным лазером направим на образец непрерывный по времени световой поток из инфракрасной спектральной области с фиксированной энергией фотона от 1.5 до 1.7 эВ, равной половине энергии излучательной рекомбинации ЭДП или экситона в оксиде цинка. В момент лазерного импульса возникает обращение волнового фронта непрерывной подсветки на поляритонных колебаниях пленки (рис. 3). Мы видим, что при разной

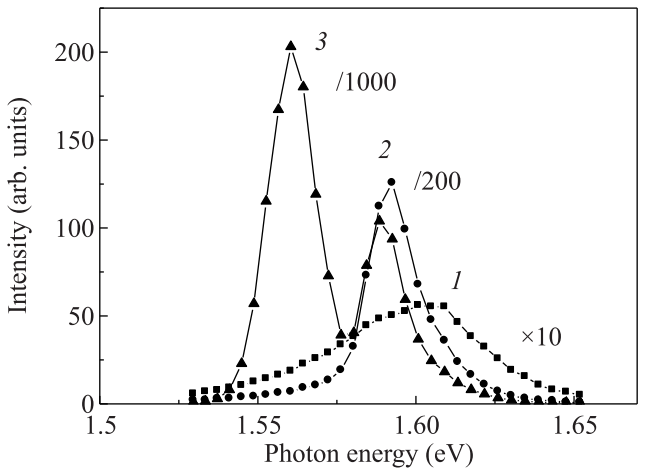

Рис. 3. Интенсивность максимума сигнала ОВФ пленок ZnO в зависимости от энергии фотона падающего света для различной мощности возбуждающего азотного лазера: 70 кВт/см^2 (*1*); 22 МВт/см^2 (*2*) и 70 МВт/см^2 (*3*). $T = 300$ K

мощности азотного лазера обращенный световой сигнал, повторяющий спектр падающего непрерывного света, присутствует не для всех ИК длин волн. Однако, при приближении энергии фотона к 1.61 эВ,

равной половине энергии рекомбинации экситона, интенсивность обращенной волны резко возрастает. Метод регистрации сигнала говорит о том, что в отличии от падающей волны обращенная имеет импульсный характер с частотой возбуждающего лазера. Спектральная полуширина сигнала ОВФ совпадает с шириной падающей световой волны, а интенсивность волны зависит от ее спектрального положения и мощности возбуждающего азотного лазера. На рисунке 3 построены зависимости интенсивности обращенной волны в максимуме от его спектрального положения. Видно, что, как и на рис. 1, сигнал ОВФ имеет максимальную интенсивность при энергии падающих фотонов 1.61 эВ, почти совпадающей с половиной энергии экситонного пика ФЛ для минимальных мощностей азотного лазера 70 кВт/см^2. Причем, на кривой *2* рис. 3 положение максимума сигнала ОВФ находится уже при энергии 1.59 эВ, равной половине энергии P-полосы в спектрах люминесценции для тех же мощностей оптического возбуждения лазера 22 МВт/см^2. Для максимальной мощности азотного лазера 70 МВт/см^2 (рис. 3, кривая *3*) характерно появление второго пика ОВФ в длинноволновой области с энергией фотона 1.56 эВ, аналогичное появлению пика рекомбинации ЭДП с энергией 3.12 эВ на кривой ФЛ (рис. 2, кривая *3*). На рисунке 3 построены зависимости интенсивности обращенной волны в максимуме ее спектрального положения для разных мощностей азотного лазера. Видно, что сигнал ОВФ имеет три максимума интенсивности с энергией фотонов 1.61, 1.59 и 1.56 эВ для мощности лазера 70 кВт/см^2, 22 МВт/см^2 и 70 МВт/см^2 (рис. 3, кривые *1*, *2* и *3*, соответственно) при энергии падающих фотонов, совпадающей с половиной энергии пиков рекомбинации одиночных экситонов, рассеянных экситонов и ЭДП в оксиде цинка. Именно рекомбинация данного типа поляритонов превалирует в спектрах ФЛ пленок оксида цинка для данных мощностей азотного лазера (рис. 2).

В нашем случае происходит резонансное ОВФ на электро-магнитных колебаниях взаимодействующих экситонов и ЭДП, обладающих нулевым волновым вектором. Отметим, что согласно приведенным в [7] теоретическим выкладкам для сред с квадратичной оптической нелинейностью может возникать резонансное обращение волнового фронта при энергии фотонов падающего света, равной половине энергии электро-магнитных колебаний-поляритонов в среде с нулевым волновым вектором (экситоны, плазмоны, фононы или примесные состояния). При этом, интенсивность резонансной обращенной волны пропорциональна интенсивности падающего света и интенсивности стоячей волны электро-магнитных колебаний поляритонов (3). Интересно отметить, что для случая оксида цинка, в процессе образования ЭДП, имеется также сигнал ОВФ света в нерезонансных видимой и ИК областях спектра [8]. При этом интенсивность сигнала нерезонансного обращения волнового фронта на порядок меньше интенсивности резонансного ОВФ и увеличивается с увеличением длины волны падающего непрерывного света в ИК спектральную область.

Остановимся подробнее на зависимости сигнала резонансного ОВФ с энергией фотона в максимуме 1.61, 1.59 и 1.56 эВ от мощности накачки импульсного азотного лазера (рис. 4). Использование калиброванных поглотителей света позволило нам получить набор мощностей от 0.070 МВт/см^2 до 70 МВт/см^2 ультрафиолетового (УФ) возбуждения пленок ZnO. Видно, что интенсивность сигнала обращения волнового фронта с энергией фотона 1.61 эВ (рис. 4, кривая *4*) растет почти линейно с интенсивностью УФ накачки во всем диапазоне измерений аналогично росту люминесценции свободных экситонов с энергией фотона 3.22 эВ (рис. 4, кривая *1*). Максимум ОВФ с энергией фотонов 1.59 эВ показывает нелинейный рост интенсивности (рис. 4, кривая *5*) для накачки выше 2500 кВт/см^2 аналогично росту ФЛ рассеянных экситонов с максимумом 3.18 эВ (рис. 4, кривая *2*). Рост же сигнала ОВФ с максимумом 1.56 эВ (рис. 4, кривая *6*) начинается с больших мощностей накачки 22 МВт/см^2 аналогично росту ФЛ ЭДП с

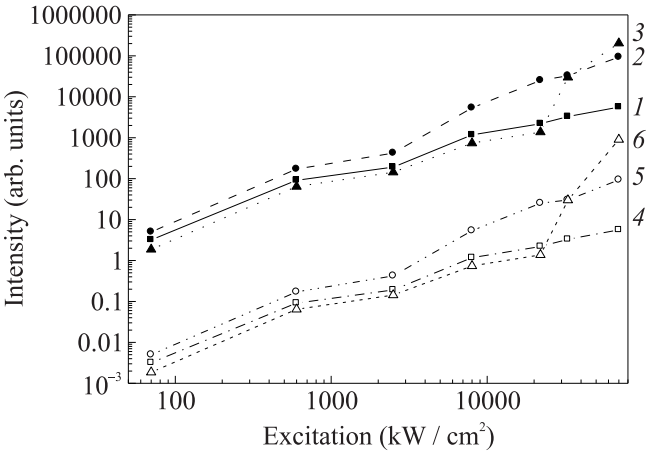

Рис. 4. Зависимость интенсивности сигнала ФЛ в максимуме 3.22 эВ (*1*); 3.18 эВ (*2*) и 3.12 эВ (*3*), а также сигнала модулированного ОВФ пленок ZnO для энергии фотона отраженного света: 1.61 эВ (*4*); 1.59 эВ (*5*) и 1.56 эВ (*6*) от интенсивности возбуждающего азотного лазера. $T = 300$ K

максимумом 3.12 эВ (рис. 4, кривая *3*). При столь высокой интенсивности накачки происходит переход Мотта в газе свободных экситонов с образованием множества свободных носителей заряда электронов и дырок (ЭДП), что видно по трансформации спектров свечения пленок (рис. 2).

Отметим, что согласно выше приведенным теоретическим выкладкам для сред с квадратичной оптической нелинейностью может возникать обращение волнового фронта при энергии фотонов падающего света, равной половине энергии поляритонных колебаний (3)–(4). При этом интенсивность обращенной волны пропорциональна интенсивности падающего света и интенсивности поляритонной волны. В нашем случае, интенсивность падающего красного света практически постоянна в исследованном спектральном диапазоне 1.4–1.7 эВ. Поэтому спектральная кривая интенсивности сигнала ОВФ повторяет кривую экситонной или ЭДП интенсивности (рис. 2, кривые *1–3*, соответственно), а сам процесс происходит лишь в момент большой плотности экситонов в полупроводнике. Поскольку время излучательной рекомбинации экситонов в пленках ZnO при комнатной температуре составляет порядка пикосекунд, 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. 3) обнаруженный нами процесс не может быть рассеянием непрерывного света на поликристаллических зернах пленки ZnO, а сигнал чисто геометрического отражения света от поверхности образца не попадал в регистрирующую систему.

Схематически возможные процессы излучательной рекомбинации поляритонов возбужденной среды между уровнями электрона $|1\rangle$ и $|0\rangle$ представлены на рис. 5. При этом по оси X показано изменение волнового вектора фотона или электрона, а по оси Y – изменение энергии. На рисунке 5a изображена стимулированная ФЛ с испусканием одного фотона и фонона, необходимого для выполнения закона сохранения импульса. Поскольку энергия фонона довольно мала, то излучается фотон с энергией $h\Omega$, почти равной энергии электронного перехода (экситона или ЭДП, в нашем случае). Однако, аналогично двухфотонному поглощению в среде может происходить и двухфотонная стимулированная ФЛ с участием виртуального уровня энергии, расположенного между уровнями электрона $|1\rangle$ и $|0\rangle$ (рис. 5b). Если энергии двух фотонов не равны, то сохранение волнового вектора не происходит и требуется еще дополнительное излучение фонона. Другое дело при резонансном двухфотонном процессе (рис. 5c), когда энергии двух излученных фотонов равны $h\omega = h/2$ и их волновые векторы противоположны. Тогда уже не требуется дополнительный фонон для сохранения импульса и имеем всего лишь двухчастичный процесс с гораздо большей вероятностью. Видно возникновение при этом, кроме фотона, аналогичного стимулирующему, еще и обращенного фотона с половиной энергии перехода (поляритона), что описано формулой (4). Возбужденная среда подразумевает колебание поляризуемости в линейном члене с частотой Ω поляритона (экситонов или ЭДП), превалирующего при данной интенсивности накачки.

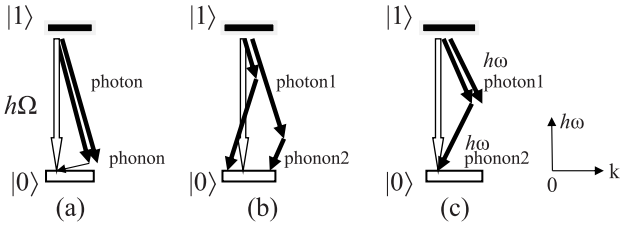

Рис. 5. Схема электронных переходов между энергетическими уровнями $|1\rangle$ и $|0\rangle$ поляритонов возбужденной среды с излучением фотонов в процессе обычной стимулированной ФЛ (a), двухфотонной нерезонансной ФЛ (b) и двухфотонной резонансной ФЛ (c)

5. Заключение. Таким образом, теоретически предсказан (3)–(4) и экспериментально исследован процесс обращения волнового фронта световой волны, падающей на поверхность сильно возбужденной азотным лазером пленки ZnO. Показано, что ОВФ происходит при энергиях падающих фотонов, равных половине энергии излучательной рекомбинации превалирующих поляритонов (экситонов или ЭДП). Следовательно, можно сказать, что в данном случае обращение волнового фронта происходит на экситонных или ЭДП состояниях полупроводниковой пленки, превалирующих для данной интенсивности возбуждения. Если учесть, что лазерное излучение при зона-зонном возбуждении поглощается в субмикронном (0.1 мкм) поверхностном слое [8], то легко получить высокую плотность экситонов при накачке полупроводника импульсным азотным лазером. При этом, для обращения света возможно использование именно тонких пленок ZnO, обладающих высоким кристаллическим и люминесцентным качеством. В нашем случае из-за большой энергии связи экситона практически вся энергия лазерной накачки переходила в экситонные или ЭДП колебания оксида цин-

ка, на которых и происходит процесс ОВФ. Для процесса резонансного ОВФ необходимо наличие каких-либо поляритонных колебаний в оптически возбужденной среде и интенсивность обращенного сигнала пропорциональна интенсивности рекомбинации этих поляритонов (рис. 4), что согласуется с теоретическими формулами (3)–(4). При этом интенсивность обращенной волны может быть выше падающей из-за перекачки энергии от рекомбинирующих поляритонов.

Обнаруженный нами механизм ОВФ в полупроводниковой среде существенно отличается от процесса четырехволнового смешения на встречных пучках в оптически нелинейной среде [11–15]. Там также происходит ОВФ сигнальной волны, но среда должна быть прозрачной для всех пучков света и обладать кубической оптической нелинейностью. Из-за малой величины кубической оптической восприимчивости эффективность обращения света невысока и требуется большой объем нелинейной среды. В нашем случае имеют место механизмы ОВФ на квадратичной (3) [16–18] или даже линейной (4) [19, 20] оптической поляризации полупроводника, которые по определению выше кубической. Для проверки участия линейной поляризуемости (4) в нашем эффекте мы использовали падающий ИК свет, поляризованный только перпендикулярно оси роста пленок. Тем самым исключалось влияние квадратичной поляризуемости (3) оксида цинка. При этом интенсивность сигнала ОВФ падала лишь в полтора раза, что говорит о существенном вкладе линейной поляризуемости и наличии КРС на поляритонных колебаниях (4). Ранее [21] мы наблюдали также нерезонансное ОВФ в пленках ZnO в широком диапазоне спектра от видимых до ИК волн. Этот эффект был на порядок меньше резонансного ОВФ и связан с изменением показателя преломления света на индуцированных лазером свободных носителях заряда в полупроводниковой среде.

Автор выражает благодарность В. Т. Волкову за предоставление пленок оксида цинка.

Работа выполнена в рамках государственного задания # 075-01304-23-00.

1. Y. Chen, D. M. Bagnall, Z. Zhu, T. Sekiuchi, and K. Park, J. Cryst. Growth **181**, 165 (1997).
2. J. Chen and T. Fujita, Jpn. J. Appl. Phys. **41**, L203 (2002).
3. А. Н. Грузинцев, В. Т. Волков, Л. Бартхоу, П. Беналул, ФТП **36**(6), 741 (2002).
4. P. A. Belanger, A. Hardy, and A. E. Seigman, Appl. Optic **19**, 602 (1980).
5. J. F. Lam and W. P. Brown, Opt. Lett. **5**, 61 (1980).
6. D. M. Bloom and G. C. Bjoklund, Appl. Phys. Lett. **31**, 592 (1977).
7. А. Н. Грузинцев, В. Т. Волков, ФТП **38**, 543 (2004).
8. А. Н. Грузинцев, ФТП **43**, 289 (2009).
9. Ф. Качмарек, *Введение в физику лазеров*, Мир, М. (1981), с. 256.
10. Y. G. Wang, N. Ohashi, Y. Wada, I. Sakaguchi, T. Ohgaki, and H. Haneda, J. Appl. Phys. **100**, 023524 (2006).
11. H. H. Eichler and O. Mehl, J. Nonlinear Opt. Phys. Mater. **10**, 43 (2001).
12. I. M. Vellekoop, M. Cui, and C. Yang, Appl. Phys. Lett. **101**, 081108 (2012).
13. A. Y. Okulov, J. Phys. B **41**, 101001 (2008).
14. G. S. He, Prog. Quantum Electron. **26**, 131 (2002).
15. P. V. Polyanskii and K. V. Felde, Opt. Spectrosc **98**, 913 (2005).
16. M. Y. Lanzerotti, A. L. Gaeta, and R. W. Boyd, Phys. Rev. A **51**, 3182 (1995).
17. M. Jang, C. Yang, and I. M. Vellekoop, Phys. Rev. Lett. **118**, 093902 (2017).
18. C. Li, Inrared and Laser Engineering **48**, 0702001 (2019).
19. D. M. Pepper and A. Yariv, Opt. Lett. **5**, 59 (1980).
20. M. R. Belic, D. Timitievich, and W. Krolikowski, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 1723 (1991).
21. А. Н. Грузинцев, ФТП **54**, 700 (2020).