

05:07

Наблюдение эффекта оптического выпрямления в наноклеродных пленках

© Г.М. Михеев, Р.Г. Зонов, А.Н. Образцов, Ю.П. Свирко

Институт прикладной механики УрО РАН, Ижевск
Московский государственный университет
Физический факультет университета Йоенсуу, Йоенсуу, Финляндия
E-mail: gmmikheev@udmnet.ru

Поступило в Редакцию 23 марта 2004 г.

При облучении импульсным излучением неодимового лазера с модуляцией добротности наноклеродной пленки, полученной методом плазмохимического осаждения и закрепленной между двумя параллельными электродами, на последних обнаружено появление электрического напряжения, воспроизводящего по форме огибающую лазерного импульса. Экспериментально показано, что амплитуда и полярность возникающего импульсного напряжения существенно зависят от угла падения, поляризации излучения и от пространственной ориентации углеродной пленки с электродами относительно падающего пучка лазера. Представленные закономерности охватывают все особенности, присущие эффекту оптического выпрямления. При оптимальной пространственной ориентации пленки измеренный коэффициент преобразования мощности лазерного импульса в электрическое напряжение составил около 500 mV/MW , что во много раз превосходит соответствующие значения, полученные при эффекте оптического выпрямления для известных диэлектрических нелинейно-оптических кристаллов.

Эффект оптического выпрямления (ЭОВ) заключается в том, что при прохождении достаточно мощного лазерного импульса через нелинейно-оптический кристалл в последнем возникает диэлектрическая поляризация, воспроизводящая по форме огибающую лазерного импульса [1,2]. Если нелинейно-оптический кристалл поместить между металлическими электродами, то возникающая в кристалле поляризация приводит к появлению на электродах напряжения. В прозрачных средах за появление ЭОВ ответствен второй член разложения вектора диэлектрической поляризации в ряд по степеням напряженности электрического поля, т.е. нелинейная восприимчивость второго порядка. Поэтому регистрация оптического выпрямления в дипольном прибли-

жении возможна только в нелинейно-оптических кристаллах, не обладающих центром инверсии. В работе [3] теоретически рассмотрен ЭОВ на углеродных нанотрубках, возможный за счет нарушения условия centrosymmetrichности в постоянном электрическом поле. Известно, что ЭОВ экспериментально наблюдался в сравнительно большом количестве нецентросимметричных кристаллов (см., например, обзор [2]). Насколько нам известно, об исследовании и наблюдении ЭОВ на пленочных графитных структурах ранее не сообщалось. Необходимо отметить, что исследование ЭОВ представляет интерес с точки зрения измерения мощности, поляризации и формы лазерных импульсов в широком диапазоне длин волн шкалы электромагнитного излучения, а также для генерации ультракоротких электромагнитных импульсов в диапазоне частот $0.1 \div 50$ THz [4].

В данной работе сообщается об экспериментальном наблюдении эффекта оптического выпрямления в нанокристаллических пленках.

Исследования проводились на образцах углеродных пленок, полученных с помощью плазмохимического осаждения из смеси метана и водорода по нашей стандартной методике [5,6]. Пленки осаждались на кремниевые подложки размером 25×25 mm. Основными структурными элементами пленок являются кристаллиты неправильной формы, состоящие из нескольких (примерно от 5 до 50) параллельных хорошо упорядоченных атомных слоев графита. Толщина кристаллитов находится в пределах от 2 до 20 nm при размерах в других измерениях около $1-3 \mu\text{m}$. Все кристаллиты имеют преимущественную ориентацию атомных слоев в направлении нормали к поверхности подложки с максимальным отклонением не более ± 20 градусов. Расстояние между отдельными кристаллитами составляет около $0.5-1 \mu\text{m}$. Таким образом, исследованные пленки имеют ярко выраженную пористую нанокристаллическую структуру. Средняя толщина этих нанокристаллических пленок составляет около $3-4 \mu\text{m}$.

Изготовленные пленки (6) на кремниевой подложке (8) с помощью двух плоских проводящих электродов (7) прижимались к диэлектрическому держателю (9) (рис. 1). Амплитудное значение напряжения U , возникающего между электродами при лазерном облучении графитной пленки, измерялось с помощью запоминающего осциллографа (10) с входным сопротивлением $1 \text{ M}\Omega$, а форма электрических импульсов наблюдалась на осциллографе с полосой пропускания 650 MHz . В качестве источника оптического излучения использовался одномодовый

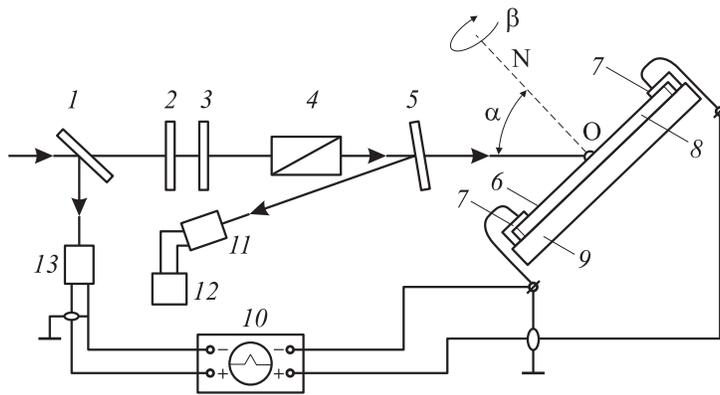


Рис. 1. Схема эксперимента.

одночастотный $\text{YAG}:\text{Nd}^{3+}$ -лазер [7]. Полуширина лазерных импульсов τ гауссовой формы составляла около 22 нс, а диаметр лазерного пучка — 2 мм. Излучение лазера после ослабления нейтральными фильтрами проходило через две четвертьволновые пластины (2, 3) и оптический поляризатор (4). С помощью четвертьволновых пластинок (2, 3) осуществлялось изменение направления плоскости поляризации излучения, падающего на поляризатор. Это позволило плавно управлять мощностью линейно поляризованного излучения на выходе поляризатора. Возможность поворота поляризатора вокруг своей оси на 90° обеспечивала получение p - и s -поляризации. Делительная пластина (5) совместно с фотодиодом (11) и автоматизированной многоканальной системой регистрации (12) [8] позволяла измерять энергию импульсного излучения, падающего на исследуемую пленку. Пластина (1) совместно с лавинным фотодиодом (13) обеспечивала возможность наблюдения на экране осциллографа форму импульсов лазерного излучения. В экспериментах также использовалось излучение второй гармоники указанного выше лазера по описанной выше схеме. Все представленные ниже результаты были получены при импульсных энергиях лазера ниже порога видимого разрушения исследуемых графитных пленок [9].

Эксперименты показали, что при облучении наноуглеродной пленки лазерным излучением с $\lambda = 1064 \text{ nm}$ на электродах возникает им-

пульсное электрическое напряжение (ИЭН), форма импульса которого практически повторяет форму импульса лазерного излучения, полученного с помощью лавинного фотодиода. Аналогичные результаты были получены при облучении излучением с $\lambda = 532 \text{ nm}$ при длительности импульсов 16 ns.

Дальнейшие исследования показали, что амплитуда U , полярность ИЭН, существенно зависят от поляризации излучения лазера и пространственной ориентации исследуемой пленки с закрепленными относительно падающего пучка лазера электродами. При падении пучка лазера перпендикулярно к поверхности пленки для любой поляризации излучения лазера и при любом положении проводящих электродов относительно пленки амплитуда сигнала принимала нулевое значение. На рис. 2, *a* представлены зависимости амплитуды U импульсного электрического напряжения от угла падения α пучка лазера к плоскости пленки (рис. 1) при p - и s -поляризации лазерного излучения. Заметим, что в соответствии с рис. 1 угол $\alpha = 0$, когда поверхность пленки перпендикулярна падающему пучку лазера (исходное положение пленки); угол α считается положительным, когда пленка повернута по часовой стрелке относительно исходного положения, и отрицательным, когда она повернута против часовой стрелки. При этом ось вращения, проходящая через точку O , плоскость исследуемой пленки, проводящие электроды направлены перпендикулярно к плоскости чертежа, совпадающей с плоскостью падения. Необходимо отметить, что на рис. 2, *a* отсутствуют значения U , полученные при углах падения, близких $\pm 90^\circ$. Это связано с тем, что при скользящем падении пучка лазера на исследуемую поверхность пленки часть лучей попадала на проводящие электроды, а длительность ИЭН становилась заметно длиннее длительности лазерного импульса. Из рис. 2, *a* видно, что полученные экспериментальные зависимости имеют вид нечетных функций. Кроме того, видно, что U по модулю принимает максимальное значение при $\alpha = \pm(45-55^\circ)$, а зависимости $U(\alpha)$ для излучения при p - и s -поляризации существенно отличаются друг от друга. Если фиксирована энергия лазерного импульса, то амплитуда ИЭН во всем диапазоне изменения α для p -поляризации превосходит соответствующее значение для s -поляризации.

На рис. 2, *b* представлена зависимость U от угла поворота β исследуемой пленки (6) с закрепленными электродами (7) вокруг оси ON (рис. 1), совпадающей с нормалью к поверхности, при фиксированном

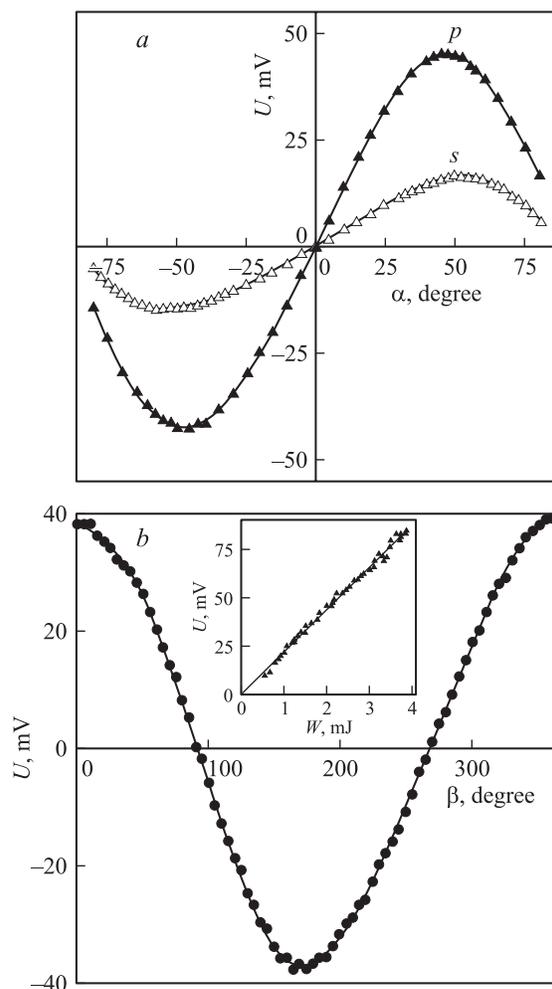


Рис. 2. Зависимости амплитуды U импульсного электрического напряжения, возникающего между электродами, закрепленными на нанокуглеродной пленке, от угла падения α (а) лазерного излучения ($\tau = 22$ ns, $\lambda = 1064$ nm) для p - и s -поляризации при $W = 2$ mJ, а также от угла поворота β (б) пленки для p -поляризации излучения при $W = 1.7$ mJ, $\alpha = 50^\circ$ и от импульсной энергии W при $\alpha = +50^\circ$, $\beta = 0$ (б, вставка).

$\alpha = +50^\circ$ и p -поляризации падающего излучения. Заметим, что $\beta = 0$, 180° соответствует положению проводящих электродов (7), перпендикулярных к плоскости падения (плоскости чертежа). Из рис. 2, *b* видно, что вращение пластины с электродами вокруг оси ON приводит к косинусоидальному изменению значения ИЭН. Когда электроды (7) расположены в плоскостях, параллельных плоскости падения ($\beta = 90^\circ$, 270°), амплитуда ИЭН принимает нулевое значение. При $\beta = 180^\circ$, когда верхний электрод становится нижним, а нижний — верхним (рис. 1), сигнал становится отрицательным, а его амплитуда по модулю приблизительно соответствует значению, полученному при $\beta = 0$.

Эксперименты показали, что при фиксированных углах α и β зависимости U от импульсной энергии W лазерного излучения в хорошем приближении являются линейными (см. вставку на рис. 2, *b*). При $\alpha = 50^\circ$, $\beta = 0$ коэффициент преобразования $\eta_{\lambda=1064}$ импульсной мощности в амплитуду ИЭН составил около 500 mV/MW , а коэффициент преобразования $\eta_{\lambda=532}$, полученный при $\lambda = 532 \text{ nm}$, оказался выше и составил около 650 mV/MW . Особо необходимо отметить, что при фиксированной импульсной мощности уменьшение или увеличение диаметра пучка не приводило к изменению амплитуды импульсного электрического напряжения, возникающего на электродах.

Совокупность экспериментальных результатов и зависимостей, полученных и приведенных выше, охватывает все особенности, присущие эффекту оптического выпрямления [2]. Однако в отличие от известных экспериментов по ЭОВ в наших экспериментах оптическое выпрямление наблюдается на поверхности поглощающих электропроводящих нанолayers. Известно, что проекция вектора квадратичной по полю статической поляризации среды на декартову ось j в общем виде имеет следующее разложение:

$$P_j(0) = P_j^D(0) + P_j^{DS}(0) + P_j^Q(0) + P_j^M(0),$$

где первые два члена соответствуют поляризации в дипольном приближении и описывают объемные и поверхностные вклады, а третий и четвертый члены являются квадрупольными и магнитно-дипольными объемными вкладками. Для centrosymmetric среды объемный дипольный вклад отсутствует, а дипольный поверхностный и квадрупольный объемный вклады в квадратичную поляризацию могут оказаться соизмеримыми [10]. Необходимо отметить, что для поглощающих centrosymmetric кристаллов вклады в квадратичную по полю

статической поляризации среды от членов квадрупольного и магнитно-дипольного приближения могут быть значительны. Действительно, предварительный теоретический анализ показывает, что сигнал ЭОВ на квадрупольной нелинейности пропорционален $F(\alpha) \sin 2\alpha \cos \beta$, где $F(\alpha)$ — слабо меняющаяся с α функция, что подтверждается вышеизложенными экспериментальными результатами.

Авторы искренне признательны Т.Н. Могилевой за помощь, оказанную при выполнении данной работы.

Работа выполнена при финансовой поддержке INTAS (проект # 01–0254).

Список литературы

- [1] *Ward J.F.* // Phys. Rev. 1966. V. 143. P. 596–574.
- [2] *Морозов Б.Н., Айвазян Ю.М.* // Квантовая электроника. 1980. Т. 7. № 1. С. 5–32. (Sov. J. Quantum Electronics. 1980. V. 10. P. 1).
- [3] *Margulis V.L., Gaiduk E.A., Zhidkin E.N.* // Opt. Commun. 2000. V. 183. P. 317–326.
- [4] *Nuss M.C., Orenstein J.* // Millimeter and Submillimeter Wave Spectroscopy of Solids. Berlin: Springer, 1998. P. 7–50.
- [5] *Образцов А.Н., Волков А.П., Боронин А.И.* и др. // ЖЭТФ. 2001. Т. 120. С. 970–978 (JETP. 2001. V. 93. P. 846).
- [6] *Obraztsov A.N., Zolotukhin A.A., Ustinov A.O.* et al. // Carbon. 2003. V. 41. P. 836–839.
- [7] *Михеев Г.М., Малеев Д.И., Могилева Т.Н.* // Квантовая электроника. 1992. Т. 19. № 1. С. 45–47 (Sov. J. Quantum Electron. 1992. V. 22. P. 37).
- [8] *Михеев Г.М., Могилева Т.Н., Попов А.Ю., Калюжный Д.Г.* // ПТЭ. 2003. № 2. С. 101–107. (Instrum. and Exper. Techn. 2003. V. 46. N 2. P. 233).
- [9] *Михеев Г.М., Зонов Р.Г., Образцов А.Н., Волков А.П.* // ЖЭТФ. 2004. Т. 125. В. 3. С. 548–555 (JETP. 2004. V. 98. N 3. P. 483).
- [10] *Ахманов С.А., Емельянов В.И., Коротеев Н.И., Семиногов В.Н.* // УФН. 1985. Т. 147. С. 675–745 (Sov. Phys.–Usp. 1985. V. 28. P. 1084).