

06;07

## Влияние толщины нанографитной пленки на импульс оптического выпрямления

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

Институт прикладной механики УрО РАН, Ижевск  
Московский государственный университет  
Университет Йоеенсуу, физический факультет,  
FIN 80101, Йоеенсуу, Финляндия  
E-mail: gmmikhhev@udmnet.ru

Поступило в Редакцию 21 февраля 2005 г.

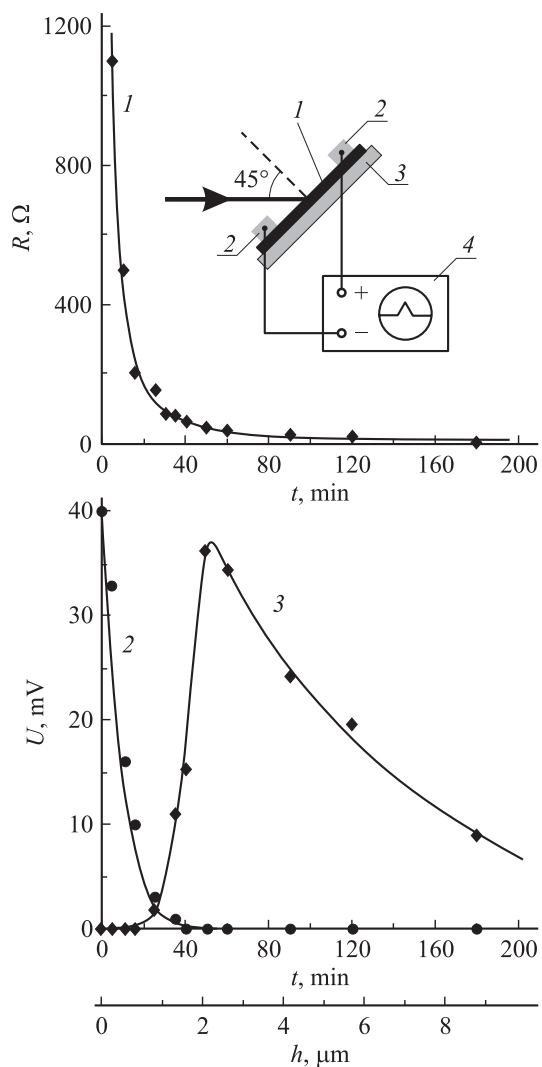
Исследован эффект оптического выпрямления при импульсном лазерном облучении поверхности нанографитных пленок, выращенных на кремниевой подложке методом плазмохимического осаждения. Показано, что амплитуда импульсного оптического выпрямления (ИОВ), повторяющего форму наносекундного лазерного импульса, существенно зависит от толщины пленки и максимальна при ее толщине около  $2.5 \mu\text{m}$ . Установлено, что при меньшей толщине пленки одновременно с ИОВ наблюдается фотоэлектрический сигнал микросекундной длительности, возникающий на кремниевой подложке. Для нанографитных пленок толщиной более  $2.5 \mu\text{m}$  ИОВ наблюдается при полном отсутствии сигнала от кремниевой подложки, что позволяет использовать указанные пленки в качестве быстродействующего фотоприемника импульсного лазерного излучения в широком спектральном диапазоне.

В последние годы наблюдается растущий интерес к изучению оптических и нелинейно-оптических свойств различных наноуглеродных материалов. Полученные результаты указывают, например, на возможность применения фуллеренов и углеродных нанотрубок в качестве ограничителей лазерного излучения (лимитеров), оптических переключателей и пассивных затворов [1–5]. В наших недавних публикациях [6–8] сообщалось о наблюдении нелинейного эффекта оптического выпрямления в нанографитных пленках, обладающих также низким порогом автоэлектронной эмиссии [9,10]. При освещении таких пленок наносекундными лазерными импульсами между двумя параллельными электродами на поверхности пленки, возникает электрический им-

пульс — импульс оптического выпрямления, временная форма которого повторяет форму лазерного импульса. Обнаружение этого эффекта открывает новые области применения указанных пленок в качестве элементов оптоэлектронных быстродействующих детекторов лазерного излучения широкого спектрального диапазона, генераторов ультракоротких электрических импульсов, а также датчиков пространственного положения объектов [6–8]. Для понимания природы возникновения сверхкоротких фотоэлектрических импульсов в нанографитных пленках представляет интерес исследование корреляции толщины указанных пленок с наблюдаемыми фотоэлектрическими эффектами, что является целью данной работы.

Исследования проводились на образцах углеродных пленок, полученных с помощью плазмохимического осаждения из смеси метана и водорода по нашей стандартной методике на установке, описанной в [10,11]. Длительность роста  $t$  для исследованных образцов составляла от 0 до 180 min, что позволило получить пленки различной толщины. В качестве подложек для роста пленок использовались пластины кремния размером  $0.5 \times 25 \times 25$  mm. Ранее было показано, что основными структурными элементами пленок, выращенных при  $t = 60$  min, являются пластинчатые кристаллиты, состоящие из нескольких (примерно от 5 до 50) параллельных хорошо упорядоченных атомных слоев графена [9,10]. По данным спектроскопии комбинационного рассеяния света, электронной и рентгеновской дифракции, а также электронной микроскопии высокого разрешения атомная структура кристаллитов соответствует хорошо упорядоченному графиту [12]. Толщина таких нанокристаллитов графита находится в пределах от 2 до 20 nm, при размерах в других измерениях около  $1\text{--}3 \mu\text{m}$ . При этом кристаллиты имеют преимущественную ориентацию атомных слоев в направлении нормали к поверхности подложки с максимальным отклонением не более  $\pm 20^\circ$ . Расстояние между отдельными кристаллитами составляет около  $0.5\text{--}1 \mu\text{m}$ . Таким образом, пленки имеют ярко выраженную пористую нанокристаллическую структуру. Средняя толщина этих наноуглеродных пленок определяется  $t$  и для  $t = 60$  min составляет  $2\text{--}3 \mu\text{m}$ .

Схема эксперимента показана на рис. 1 (вставка). Кремниевая пластина с пленкой 1 с помощью двух плоских металлических держателей, выполнявших также роль электродов 2 шириной 3 mm, прижималась к диэлектрическому основанию. Расстояние между держателями-



**Рис. 1.** Зависимости межэлектродного сопротивления  $R$  (1), амплитуды  $U$  фотоэлектрического сигнала (2) и амплитуды сигнала оптического выпрямления (3) от длительности выращивания  $t$  (или от толщины  $h$ ) нанографитной пленки, а также схема эксперимента (вставка).

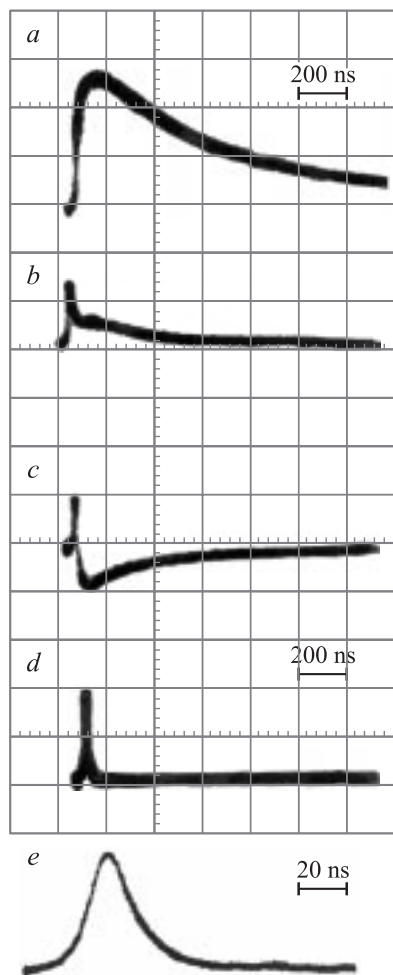
электродами составляло 18 мм. При этом поверхность кремниевой подложки 3 непосредственно соприкасалась с поверхностью основания (на рисунке не показано), а поверхность пленки оставалась практически свободной, так как расположенные параллельно друг другу электроды закрывали только ее небольшую часть. Фотоэлектрический сигнал, возникающий на электродах при облучении поверхности пленки, с помощью коаксиального кабеля непосредственно подавался на вход запоминающего осциллографа 4 с входным сопротивлением 1 МΩ (полоса пропускания 50 МГц) или же на вход осциллографа с входным сопротивлением 50 Ω (полоса пропускания 250 МГц). Измерения проводились при условиях, обеспечивающих максимальную величину амплитуды ИОВ, т.е. при угле падения лазерного луча на поверхность пленки, равном 45°, и ориентации электродов перпендикулярно плоскости падения луча [6,7]. Для облучения пленок использовалось *p*-поляризованное излучение одномодового одночастотного YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазера с пассивной модуляцией добротности [13]. Полуширина лазерных импульсов  $\tau$  гауссовой формы составляла около 20 ns, а диаметр лазерного пучка — 2 мм. Эксперименты проводились при энергии лазерных импульсов 4 мД.

В экспериментах исследовались зависимости сопротивления  $R$  постоянному току между электродами (рис. 1, кривая 1), а также амплитуды фотоэлектрических импульсов  $U$ , возникающих между электродами (рис. 1, кривые 2 и 3), от длительности выращивания пленок  $t$ . Особо исследовалась форма фотоэлектрических импульсов для пленок, выращенных при различных  $t$  (рис. 2). После проведения оптоэлектрических измерений по сколам образцов определялась толщина пленок с помощью оптического микроскопа с увеличением в 1000 раз, сопряженного с цифровой камерой [14]. Данная методика позволяла определять толщину пленок, полученных при относительно большой длительности осаждения. Толщина пленок  $h$  при малых длительностях выращивания рассчитывалась по формуле  $h = (R_0 - R)/(RR_0a)$ , выведенной из предположения, что кремниевая подложка и нанографитная пленка могут рассматриваться как два параллельно соединенных сопротивления, где  $a = L/(\rho L_0)$ ,  $R_0$  — сопротивление между электродами на кремниевой подложке без пленки,  $L$  — длина электродов,  $L_0$  — расстояние между электродами,  $\rho$  — удельная проводимость материала пленки. Параметр  $a$  определялся исходя из вышеуказанной формулы при известном  $h$ , измерявшемся с помощью оптического микроскопа для пленок

толщиной более  $3 \mu\text{m}$ . Полученная зависимость толщины пленок  $h$  от  $t$  дополнительно позволила представить результаты измерений  $U$  и  $R$  в зависимости от  $h$  (рис. 1). Необходимо отметить, что начальные стадии роста пленок существенно отличаются от последующих. В частности, при длительности роста  $5 \text{ min}$  пленка практически не возникает. Это приводит к нелинейной зависимости  $h$  от  $t$  в диапазоне от 0 до  $20 \text{ min}$  (рис. 1, дополнительная шкала оси  $h$ ).

Эксперименты показали, что при облучении поверхности чистой кремниевой подложки, а также пленок, выращенных при длительности осаждения от 0 до  $20 \text{ min}$ , между электродами возникает фотоэлектрический сигнал, длительность которого по полувысоте составляет примерно  $0.5 \mu\text{s}$  (рис. 2, *a*). Амплитуда этого сигнала зависит от положения лазерного пучка на облучаемой поверхности относительно электродов. При перемещении лазерного пятна от нижнего электрода к верхнему (рис. 1, вставка) фотоэлектрический сигнал сначала уменьшается до нуля, затем меняет полярность и снова начинает расти по модулю. Следует особо отметить, что аналогичный импульсный сигнал регистрируется при любом угле падения луча на пленку, а также при любой ориентации электродов относительно плоскости падения.

При лазерном облучении на нанографитных пленках, полученных при длительности осаждения от 20 до  $50 \text{ min}$ , на переднем фронте фотоэлектрического сигнала возникает сверхкороткий фотоэлектрический сигнал — импульс оптического выпрямления. Примечательно, что его амплитуда и полярность не зависят от положения лазерного пятна на пленке (рис. 2, *b, c*). Для него характерны ориентационные зависимости, т. е. его амплитуда и полярность существенно зависят от угла падения, поляризации излучения и от пространственной ориентации углеродной пленки с электродами относительно падающего пучка лазера [6,7]. Длительность ИОВ по полувысоте составляет около  $20 \text{ ns}$  (рис. 1, *e*), его форма повторяет форму огибающей лазерного импульса. Увеличение времени выращивания пленок приводит к полному исчезновению фотоэлектрического сигнала микросекундной длительности (рис. 1, кривая 2, рис. 2, *d*). Амплитуда  $U$  импульса оптического выпрямления в зависимости от  $t$  ведет себя иначе (рис. 1, кривая 3). Она принимает максимальное значение для пленок, выращенных при  $t = 50 \text{ min}$  (рис. 1, кривая 3). Дальнейшее увеличение  $t$  приводит к плавному уменьшению амплитуды  $U$  этого импульса.



**Рис. 2.** Типичные формы электрических импульсов, возникающие между электродами на пленках толщиной менее  $1\ \mu\text{m}$  (*a*), от 1 до  $2.5\ \mu\text{m}$  (*b*, *c*) и более  $2.5\ \mu\text{m}$  (*d*, *e*) при положении лазерного пятна вблизи нижнего (*a*, *b*), верхнего (*c*) электродов, а также при любом его положении (*d*, *e*). Форма импульсов регистрировалась с помощью запоминающего осциллографа (*a–d*) и осциллографа с полосой пропускания 250 МГц (*e*) при схеме эксперимента, представленной на рис. 1.

Фотоэлектрический импульс, возникающий между электродами для чистой кремниевой подложки и для пленок толщиной менее  $2\ \mu\text{m}$ , можно объяснить хорошо известным эффектом Дембера, обусловленным разной подвижностью неравновесных электронов и дырок, возникающих в кремниевом материале при световом возбуждении. Очевидно, что увеличение толщины наноуглеродной пленки приводит к ослаблению мощности лазерного излучения, доходящей до кремниевой подложки, что сопровождается соответствующим уменьшением амплитуды сигнала. При толщине пленки более  $2.5\ \mu\text{m}$  лазерное излучение полностью поглощается материалом углеродной пленки, в результате чего сигнал между электродами, обусловленный эффектом Дембера, полностью исчезает. Отсюда следует, что ИОВ не может быть связан с кремниевой подложкой, а возникает при взаимодействии лазерного излучения с нанографитной пленкой, обладающей особыми структурными свойствами, проявляющимися, в частности, в экспериментах по автоэлектронной эмиссии [9,10]. Нулевую или очень малую амплитуду ИОВ на пленках, полученных при  $h \leq 1\ \mu\text{m}$ , можно объяснить отсутствием у пленок этих особых структурных свойств, а также их малой толщиной. Уменьшение амплитуды ИОВ при  $h \geq 2.5\ \mu\text{m}$  объясняется значительным уменьшением межэлектродного сопротивления  $R$  (рис. 1, кривая  $I$ ), которое шунтирует импульсное электрическое напряжение, возникающее на поверхности нанографитной пленки.

Таким образом, в работе показано, что максимальный сигнал оптического выпрямления в нанографитных пленках достигается при их толщине около  $2.5\ \mu\text{m}$ . На пленках меньшей толщины происходит резкое уменьшение амплитуды сигнала, сопровождающееся появлением фотоэлектрического сигнала микросекундной длительности от подложки. На пленках толщиной более  $5\ \mu\text{m}$  сигнал оптического выпрямления значительно ослабляется.

В заключение сообщаем, что в самых последних экспериментах нами установлена возможность применения фотоприемника без внешнего источника питания на основе нанографитной пленки для регистрации формы импульсного лазерного излучения длительностью менее  $0.5\ \text{ns}$  при длине волны от  $0.266$  до  $5\ \mu\text{m}$ . Отмечаем, что приведенные характеристики такого фотоприемника являются далеко не предельными.

## Список литературы

- [1] *Tutt Lee W., Kost A.* // Nature. 1992. V. 356. P. 225.
- [2] *Smilowitz L., McBranch D., Klimov V., Robinson J.M.* et al. // Optics Letters. 1996. V. 21. N 13. P. 226.
- [3] *Elim H.I., Ji W., Ma G.H.* et al. // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 85. N 10. P. 1799–1801.
- [4] *Chen G.X., Hong M.N., He Q., Chen W.Z.* et al. // Appl. Phys. 2004. V. A79. P. 1079–1082.
- [5] *Ильичев Н.Н., Образцова Е.Д., Гарнов С.В., Мосалева С.Е.* // Квантовая электроника. 2004. Т. 34. С. 572–573.
- [6] *Mikheev G.M., Zonov R.G., Obratsov A.N., Svirko Yu.P.* // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 84. P. 4854–4856.
- [7] *Михеев Г.М., Зонов Р.Г., Образцов А.Н., Свирко Ю.П.* // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30. В. 17. С. 88–94.
- [8] *Михеев Г.М., Зонов Р.Г., Образцов А.Н., Волков А.П., Свирко Ю.П.* // Письма в ЖТФ. 2005. Т. 31. В. 3. С. 11–17.
- [9] *Образцов А.Н., Волков А.П., Боронин А.И.* и др. // ЖЭТФ. 2001. Т. 120. С. 970–997. (JETP. 2001. V. 93. P. 846).
- [10] *Obratsov A.N., Zolotukhin A.A., Ustinov A.O.* et al. // Carbon. 2003. V. 41. P. 836–839.
- [11] *Павловский И.Ю., Образцов А.Н.* // Приборы и техника эксперимента. 1998. № 1. С. 152–156.
- [12] *Obratsov A.N., Pavlovsky I.Yu., Volkov A.P.* et al. // Diamond and Related Materials. 1999. V. 8. P. 814–819.
- [13] *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).
- [14] *Михеев Г.М., Зонов Р.Г., Калюжный Д.Г., Попов А.Ю.* // Приборы и техника эксперимента. 2003. № 3. С. 164.