

07

Эффект увлечения в нанокompозитной пленке Ag/Pd: генерация двуполярных импульсов

© Г.М. Михеев¹, А.С. Саушин¹, В.М. Стяпшин¹, Ю.П. Свирко²

¹ Институт механики Удмуртского федерального исследовательского центра УрО РАН, Ижевск, Россия

² Институт фотоники, Университет Восточной Финляндии, Йоэнсуу, Финляндия
E-mail: mikheev@udman.ru

Поступило в Редакцию 12 апреля 2018 г.

Впервые исследованы особенности генерации продольного фототока в нанокompозитных пленках Ag/Pd при наклонном падении импульсного лазерного излучения наносекундной длительности в области длин волн 1350–4000 nm. Пленки толщиной 20 μm, состоящие из нанокристаллитов твердого раствора Ag–Pd и оксида палладия PdO, получены по толстопленочной технологии. Исследовано влияние длины волны на импульсы фототока при *p*- и *s*-поляризациях лазерной накачки. Показано, что импульс фототока при *s*-поляризованной накачке в диапазоне длин волн 1350–4000 nm является однополярным, а при *p*-поляризации в зависимости от длины волны он может быть однополярным и двуполярным. Полученные результаты объясняются одновременной генерацией фототока за счет эффекта увлечения и поверхностного фотогальванического эффекта.

DOI: 10.21883/PJTF.2018.18.46616.17329

Эффект увлечения (ЭУ), впервые обнаруженный в работе [1], обусловлен тем, что при поглощении фотона носителем заряда, последний получает от фотона не только энергию, но и импульс. В результате в среде возникает фототок (фотоэдс), полярность которого зависит от направления волнового вектора падающего излучения. При импульсном лазерном возбуждении фототок ЭУ возникает в виде однополярного импульса. В массивных металлических образцах фототок ЭУ очень мал [2], однако в пленочных электропроводящих структурах при наклонном

падении излучения он может быть значительным [3]. В последнее время появились публикации, посвященные наблюдению и исследованию ЭУ в различных наноразмерных структурах [4–10]. Такие исследования представляют интерес с точки зрения различных приложений, в частности для разработки и создания не содержащих оптических элементов анализаторов поляризации лазерного излучения [11,12].

При наклонном падении излучения на пленочную структуру фототок ЭУ можно наблюдать в плоскости падения (продольный фототок) и в направлении, перпендикулярном плоскости падения (поперечный фототок) (см., например, [5,13]). В наших недавних публикациях [14,15] были представлены исследования поперечного фототока ЭУ в серебропалладиевых (Ag/Pd) нанокompозитных пленках. Было установлено, что в этих пленках в широком спектральном диапазоне 266–2100 nm наблюдается фототок, зависящий от степени циркулярной поляризации падающего излучения. Было показано, что в инфракрасном диапазоне 1064–2100 nm поляриность фототока однозначно определяется знаком циркулярной поляризации (направлением вращения вектора электрического поля) возбуждающего излучения. Между тем особенности продольного фототока ЭУ в нанокompозитных пленках Ag/Pd исследовались только в спектральном диапазоне 266–1064 nm [16]. Целью настоящей работы является наблюдение и исследование продольного фототока в нанокompозитных пленках Ag/Pd в инфракрасной области 1350–4000 nm.

В работе исследовались пленки Ag/Pd, полученные на керамической подложке по толстопленочной технологии при температуре вжигания 878 К [17]. Пленки с проводимостью *p*-типа имели размер 20 × 20 mm при толщине около 20 μm. Рентгеноструктурный анализ показал, что исследуемые пленки состоят из твердого раствора Ag–Pd, оксида палладия PdO и оксида серебра Ag₂O в весовом соотношении 80.3%, 18.7% и 1% соответственно. По ширине рентгеновской дифракционной линии установлено, что минимальный размер кристаллитов Ag–Pd и PdO составляет 39 и 28 nm соответственно [17]. Для измерения фототока пленки снабжались двумя параллельными пленочными электродами *A* и *B*, выполненными из серебра. Они располагались на противоположных сторонах квадратной пленки между подложкой и самой пленкой. Омическое сопротивление между измерительными электродами составляло 29 Ω.

В экспериментах использовался перестраиваемый по длине волны λ (1350–4000 nm) лазер, состоящий из параметрического генератора и усилителя света. Длительность лазерных импульсов τ_p составляла 7 ns, а энергия E_{in} не превышала 2 мДж. Эксперименты проводились по оптической схеме, представленной на рис. 1 (вставка). С помощью поворота полуволновой пластины на угол φ менялась ориентация плоскости поляризации, определяемая углом Φ (углом между плоскостью поляризации и плоскостью падения излучения на пленку, $\Phi = 2\varphi$). При $\varphi = 0$ угол поляризации $\Phi = 0$, и на пленку падает p -поляризованное излучение. При $\varphi = 45^\circ$ угол поляризации $\Phi = 90^\circ$, и на пленку падает s -поляризованное излучение. Измерительные электроды подсоединялись к входу широкополосного цифрового осциллографа с входным сопротивлением $r = 50 \Omega$. В экспериментах измерялись и записывались экстремальные значения импульсов напряжения и временные параметры одиночных импульсов фотоэдс, возникающих между электродами A и B при облучении пленки. Продольный фототок i_x (далее фототок), лежащий в плоскости падения σ , определялся по формуле $i_x = U_x/r$, где U_x — экстремальные значения импульсов фотоэдс. В зависимости от угла падения α и поляризации падающего излучения значения U_x могли быть положительными, отрицательными или равными нулю.

Эксперименты, проведенные на длинах волн 1350–1550 nm, показали, что для p - и s -поляризаций выполняются следующие соотношения: $i_x = 0$ при $\alpha = 0$; $i_x > 0$ при $\alpha > 0$; $i_x < 0$ при $\alpha < 0$; для любого угла падения α справедливо равенство $i_x(-\alpha) = -i_x(\alpha)$. Все эти закономерности характерны для ЭУ в пленочных структурах (см., например, [3,8]). На рис. 1 показана экспериментально полученная зависимость коэффициента преобразования η_x лазерной мощности P_{in} в фототок i_x при $\lambda = 1550$ nm в зависимости от угла поляризации Φ , где $\eta_x = i_x/P_{in}$, $P_{in} = E_{in}/\tau_p$. Видно, что величина η_x максимальна при s -поляризации и минимальна при p -поляризации. Влияние угла поляризации Φ на η_x хорошо описывается функцией $\eta_x(\Phi) \propto [C - \cos 2\Phi]$, где C — постоянная. Дальнейшие эксперименты показали, что при s -поляризованном излучении накачки и при $\alpha > 0$ фототок в широком диапазоне длин волн (1350–4000 nm) появляется в виде положительно-однополярного импульса (рис. 2, вставка), длительность которого практически не зависит от длины волны. Однако форма импульса фототока при p -поляризации существенно зависит от длины волны накачки (рис. 2). В области длин волн менее 1670 nm продольный

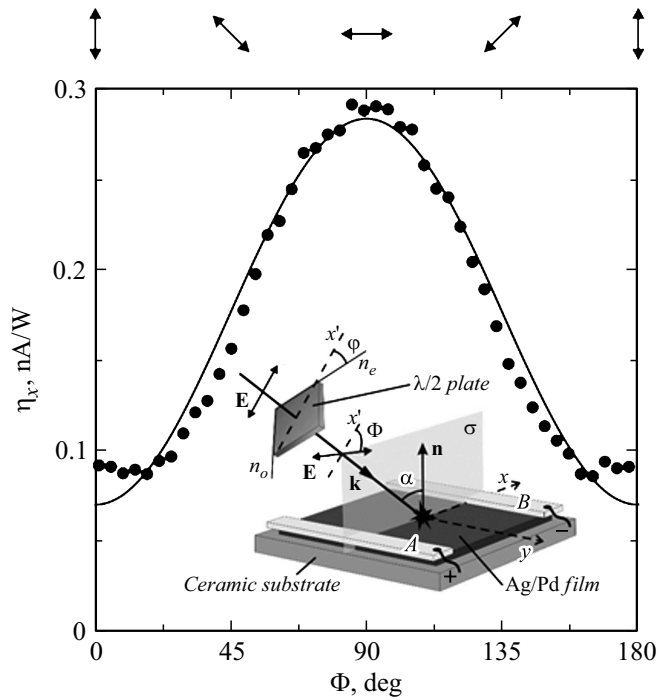


Рис. 1. Зависимость коэффициента η_x преобразования лазерной мощности в продольный фототок на длине волны 1550 nm. Точки — эксперимент, кривая — аппроксимирующая функция $\eta_x = 0.107[1.66 - \cos(2\Phi)]$. Сверху показана ориентация плоскости поляризации при различных Φ). На вставке — геометрия эксперимента: \mathbf{E} — вектор напряженности электрического поля, \mathbf{k} — волновой вектор, φ — угол поворота пластинки $\lambda/2$ относительно плоскости падения σ , Φ — угол между σ и \mathbf{E} ($\Phi = 2\varphi$), α — угол падения, \mathbf{n} — нормаль к поверхности пленки, A и B — измерительные электроды, x, y — прямоугольная система координат (оси x и x' лежат в плоскости σ).

фототок, возбужденный p -поляризованным импульсным излучением, имеет вид положительного однополярного импульса. При $\lambda = 1670$ nm и p -поляризации на переднем фронте положительного импульса фототока возникает отрицательный импульс. С увеличением λ амплитуда и длительность этого отрицательного импульса претерпевают существенные

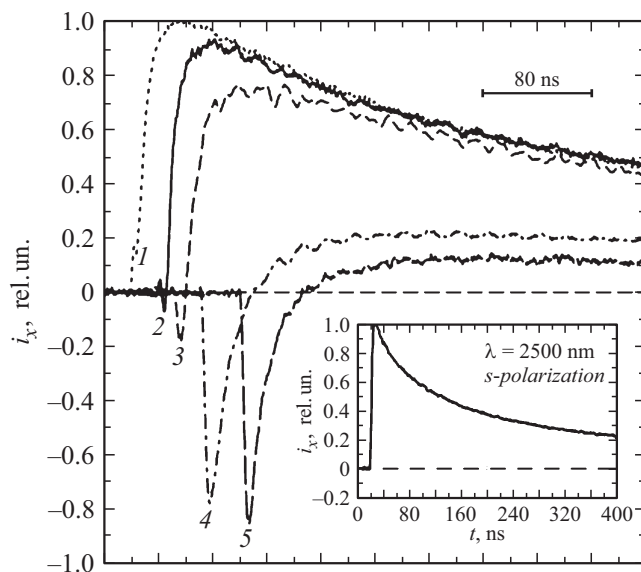


Рис. 2. Временные формы импульсов фототока при p -поляризации на длинах волн 1500 (1), 1670 (2), 1900 (3), 2600 (4), 3600 nm (5), сдвинутые относительно друг друга по временной шкале на произвольную величину, а также временная форма импульса фототока при s -поляризации на длине волны 2500 nm (на вставке). Мгновенные значения импульсов фототока нормированы на разницу между их минимальным и максимальным значениями.

изменения. В итоге, как видно из рис. 2 (осциллограмма 3), при $\lambda = 1900$ nm импульс фототока представляет собой ярко выраженный двуполярный импульс. Его передняя часть состоит из короткого отрицательного импульса, а задняя часть представляет собой положительный импульс, длительность которого существенно больше длительности отрицательного импульса. С увеличением λ амплитуда положительного импульса монотонно уменьшается.

На рис. 3 представлено отношение μ амплитуд отрицательной и положительной частей двуполярного импульса фототока в зависимости от λ . Видно, что зависимость $\mu(\lambda)$ носит немонотонный характер и имеет максимальное значение при $\lambda = 3200$ nm. В диапазоне длин волн 3400–3800 nm отношение μ резко уменьшается и при

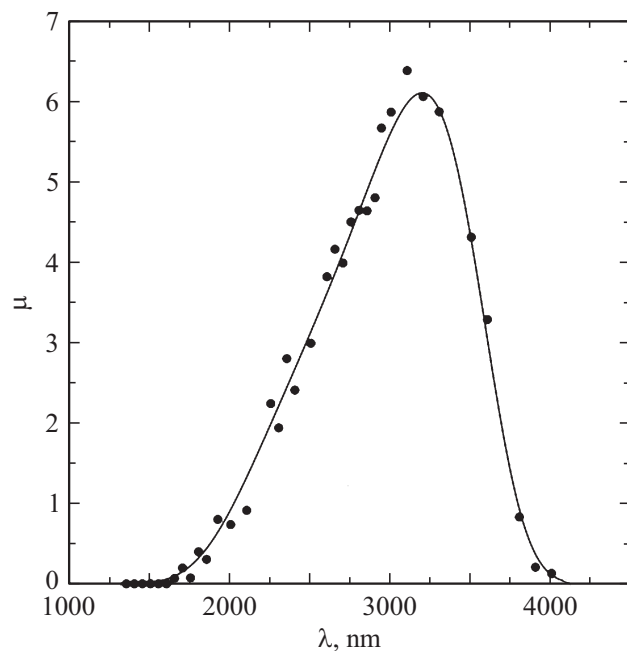


Рис. 3. Зависимость отношения μ амплитуд отрицательной и положительной частей импульса фототока при p -поляризации от длины волны λ .

$\lambda = 4000$ nm становится близким к нулю. Таким образом, двуполярный импульс при p -поляризованном излучении наблюдается в диапазоне длин волн 1670–4000 nm.

Представленные выше результаты нельзя объяснить только с привлечением механизма генерации фототока за счет ЭУ. Действительно, фототок ЭУ пропорционален поглощенной лазерной мощности, т.е. чем больше поглощенная мощность, тем больше фототок [1]. Хорошо известно, что для проводящих материалов, например для металлов, для любого угла падения коэффициент отражения при s -поляризации больше, чем при p -поляризации. Следовательно, коэффициент поглощения при s -поляризации меньше, чем при p -поляризации, что должно приводить к уменьшению фототока ЭУ при переходе от p -поляризации к

s -поляризации. Однако, как видно из рис. 1, фототок при s -поляризации больше, чем при p -поляризованной накачке.

Известно, что одновременно с фототоком за счет ЭУ может протекать фототок за счет поверхностного фотогальванического эффекта (ПФГЭ) [2,6,18]. ПФГЭ является результатом комбинации двух явлений: анизотропии распределения фотовозбужденных электронов по импульсам при их переходе из валентной зоны в зону проводимости и диффузного рассеяния этих электронов поверхностью [19]. Фототок i_x , обусловленный ПФГЭ, имеет следующую поляризационную зависимость [2]:

$$i_x \propto (1 + \cos 2\Phi). \quad (1)$$

Из формулы (1) следует, что при $\Phi = 90^\circ$, т.е. при s -поляризации, фототок, обусловленный ПФГЭ, исчезает.

Из теории ЭУ и ПФГЭ [2] следует, что при линейной поляризации направления продольных фототоков, возникающих при этих эффектах, должны быть противоположными. Для геометрии эксперимента и электрической схемы, представленной на рис. 1, фототок, обусловленный ЭУ, должен быть направлен вдоль оси x . В соответствии с рис. 2 импульс фототока при $\lambda < 1670$ nm действительно имеет положительную полярность. Теперь представим, что фототок возбуждается одновременно по обоим механизмам. В этом случае можно записать следующее соотношение: $i_x = i_{x,\text{PDE}} - i_{x,\text{SPGE}}$, где $i_{x,\text{PDE}}$, $i_{x,\text{SPGE}}$ — фототоки, обусловленные ЭУ и ПФГЭ соответственно. При s -поляризации $i_{x,s,\text{SPGE}} = 0$; следовательно, полный ток при s -поляризации $i_{x,s} = i_{x,s,\text{PDE}}$. При p -поляризации фототок ПФГЭ $i_{x,p,\text{SPGE}}$ не равен нулю; следовательно, полный ток при p -поляризации $i_{x,p} = i_{x,p,\text{PDE}} - i_{x,p,\text{SPGE}}$, где $i_{x,p,\text{PDE}}$ — фототок ЭУ при p -поляризации возбуждающего излучения. Отсюда следует, что возможно выполнение неравенства $i_{x,s,\text{PDE}} > i_{x,p,\text{PDE}} - i_{x,p,\text{SPGE}}$, обеспечивающего выполнение условия $i_{x,s} > i_{x,p}$. Таким образом, поляризационную зависимость фототока, представленную на рис. 1, можно объяснить возрастанием амплитуды импульса фототока ПФГЭ, имеющего противоположную полярность по отношению к импульсу ЭУ, при переходе от s -поляризованного к p -поляризованному излучению лазера.

Одновременное проявление ЭУ и ПФГЭ хорошо видно из осциллограмм, представляющих временные формы импульсов фототока для p - и s -поляризованного возбуждающего излучения при $\lambda > 1670$ nm

(рис. 2). Из рис. 2 видно, что импульс фототока при p -поляризации для $\lambda > 1670$ nm является двуполярным, в то время как импульс фототока при s -поляризации независимо от λ остается однополярным. Возникновение двуполярного импульса при p -поляризации можно объяснить одновременной генерацией однополярных импульсов фототока, имеющих противоположные полярности и разные амплитуды, а также различные время нарастания, длительность и время спада. Очевидно, что в зависимости от амплитудных и временных характеристик разнополярных импульсов импульс суммарного фототока также может быть однополярным, как это видно из осциллограммы, полученной при p -поляризации на длине волны 1500 nm (рис. 2, осциллограмма 1).

ПФГЭ в исследуемом нанокompозите возникает за счет возбуждения электронов из валентной зоны в зону проводимости PdO. Ширина запрещенной зоны E_g в PdO точно не установлена [20]. Однако в соответствии с данными работ [21,22] она может находиться в диапазоне 0.6–0.8 eV. Известно, что E_g наночастиц зависит от их размера (см., например, [23]). В нашем случае минимальный размер наночастиц PdO составляет 28 nm. Очевидно, что в исследуемом образце имеются частицы значительно больших размеров. Кроме того, частицы PdO находятся в окружении нанокристаллитов Ag–Pd, что также может привести к изменению E_g нанокристаллитов PdO по сравнению с шириной запрещенной зоны сплошной пленки PdO [20]. Все это означает, что ПФГЭ в нанокompозите Ag/Pd может наблюдаться в широком диапазоне длин волн. Однако при относительно больших длинах волн, когда энергия кванта возбуждающего излучения меньше E_g наночастиц PdO, наблюдение ПФГЭ становится невозможным, что демонстрирует зависимость $\mu(\lambda)$, представленная на рис. 3.

Таким образом, импульс продольного фототока в нанокompозитной пленке Ag/Pd существенно зависит от поляризации и длины волны возбуждающего излучения. При s -поляризации накачки фототок, обусловленный ПФГЭ, исчезает и происходит генерация однополярного импульса фототока ЭУ в широком диапазоне длин волн. При p -поляризации одновременно возникают разнополярные импульсы фототока ЭУ и ПФГЭ, по-разному зависящие от длины волны лазерного излучения. В результате в зависимости от длины волны происходит генерация однополярного или двуполярного импульса фототока.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке госзадания ИМ УдмФИЦ УрО РАН (№ гос. рег. ААА-А16-116031110138-0), РФФИ (проект № 18-32-00224) и Финской академии наук (грант N 309672).

Список литературы

- [1] Данишевский А.М., Кастальский А.А., Рывкин С.М., Ярошецкий И.Д. // ЖЭТФ. 1970. Т. 58. В. 2. С. 544–550.
- [2] Gurevich V.L., Laiho R. // ФТТ. 2000. Т. 42. В. 10. С. 1762–1767.
- [3] Берегулин Е.В., Валов П.М., Рывкин С.М., Ярошецкий И.Д., Лускер И.С., Пукианский А.И. // Письма в ЖЭТФ. 1977. Т. 25. В. 2. С. 113–116.
- [4] Vengurlekar A.S., Ishihara T. // Appl. Phys. Lett. 2005. V. 87. N 9. P. 091118.
- [5] Karch J., Olbrich P., Schmalzbauer M., Zoth C., Brinsteiner C., Fehrenbacher M., Wurstbauer U., Glazov M.M., Tarasenko S.A., Ivchenko E.L., Weiss D., Eroms J., Yakimova R., Lara-Avila S., Kubatkin S., Ganichev S.D. // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 105. N 22. P. 227402.
- [6] Obraztsov P.A., Mikheev G.M., Garnov S.V., Obraztsov A.N., Svirko Yu.P. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 98. N 9. P. 091903.
- [7] Mikheev G.M., Nasibulin A.G., Zonov R.G., Kaskela A., Kauppinen E.I. // Nano Lett. 2012. V. 12. N 1. P. 77–83.
- [8] Noginova N., Rono V., Bezares F.J., Caldwell J.D. // New J. Phys. 2013. V. 15. N 11. P. 113061.
- [9] Durach M., Noginova N. // Phys. Rev. B. 2016. V. 93. N 16. P. 161406(R).
- [10] Akbari M., Onoda M., Ishihara T. // Opt. Express. 2015. V. 23. N 2. P. 823–832.
- [11] Михеев Г.М., Стяпшин В.М. // Приборы и техника эксперимента. 2012. № 1. С. 93–97.
- [12] Akbari M., Ishihara T. // Opt. Express. 2017. V. 25. N 3. P. 2143–2152.
- [13] Glazov M.M., Ganichev S.D. // Phys. Rep. 2014. V. 535. N 3. P. 101–138.
- [14] Михеев Г.М., Саушин А.С., Зонов Р.Г., Стяпшин В.М. // Письма в ЖТФ. 2014. Т. 40. В. 10. С. 37–45.
- [15] Михеев Г.М., Саушин А.С., Ванюков В.В. // Квантовая электроника. 2015. Т. 45. № 5. С. 635–639.
- [16] Михеев Г.М., Зонов Р.Г., Александров В.А. // Письма в ЖТФ. 2010. Т. 36. В. 14. С. 79–87.
- [17] Михеев Г.М., Саушин А.С., Гончаров О.Ю., Дорофеев Г.А., Гильмутдинов Ф.З., Зонов Р.Г. // ФТТ. 2014. Т. 56. В. 11. С. 2212–2218.
- [18] Михеев Г.М., Стяпшин В.М., Образцов П.А., Хестанова Е.А., Гарнов С.В. // Квантовая электроника. 2010. Т. 40. № 5. С. 425–430.
- [19] Альперович В.Л., Белиничер В.И., Новиков В.Н., Терехов А.С. // ЖЭТФ. 1981. Т. 80. В. 6. С. 2298–2311.

- [20] *McBride J.R., Hass K.C., Weber W.H.* // Phys. Rev. B. 1991. V. 44. N 10. P. 5016–5028.
- [21] *Nilsson P.O., Shivaraman M.S.* // J. Phys. C. 1979. V. 12. N 6. P. 1423–1427.
- [22] *Ahuja R., Auluck S., Johansson B., Khan M.A.* // Phys Rev. B. 1994. V. 50. N 4. P. 2128–2132.
- [23] *Sadovnikov S.I., Gusev A.I.* // J. Alloys Compd. 2013. V. 573. P. 65–75.