

07

## Наблюдение циркулярного фотогальванического эффекта в серебро-палладиевых резистивных пленках

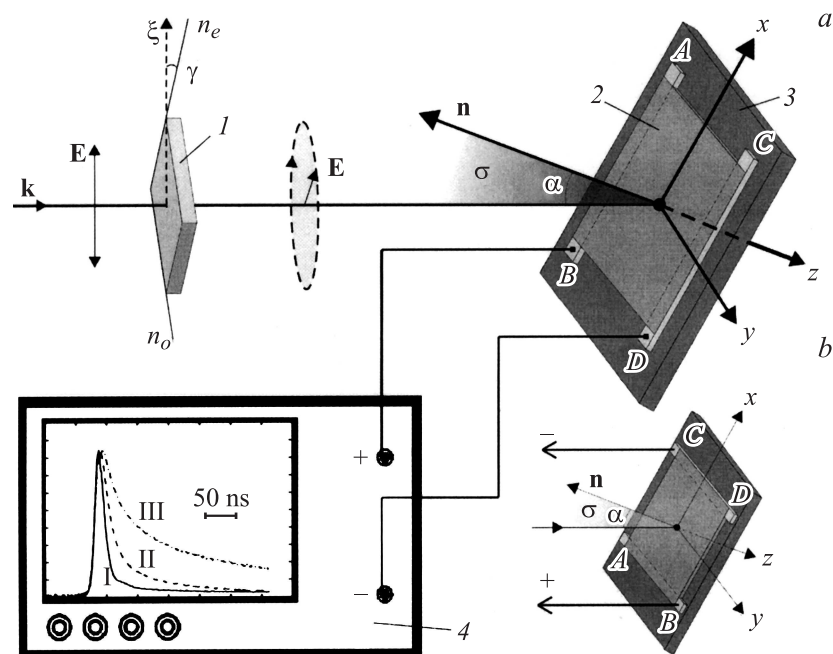
© Г.М. Михеев, В.А. Александров, А.С. Саушин

Институт прикладной механики УрО РАН, Ижевск  
E-mail: mikheev@udman.ru

В окончательной редакции 11 февраля 2011 г.

В серебро-палладиевых резистивных пленках, полученных по толстопленочной технологии, обнаружен поверхностный циркулярный фотогальванический эффект на длине волны лазерного излучения 1064 nm. Эффект наблюдается при ориентации измерительных электродов параллельно к плоскости падения и наклонном падении луча на поверхность пленки. Коэффициент преобразования импульсной лазерной мощности в светоиндуцированную ЭДС, полярность которой зависит от знака циркулярной поляризации света, при размерах пленки  $0.02 \times 20 \times 20$  mm и нагрузочном сопротивлении  $50 \Omega$  регистрирующего устройства составил около 80 mV/MW. Установлено, что максимальный коэффициент преобразования по модулю достигается при углах падения  $\pm 60^\circ$ .

Возникновение ЭДС, наведенной светом, зависящей от знака циркулярной поляризации света, не связанной с пространственной неоднородностью освещения или неоднородностью среды, получило название циркулярного фотогальванического эффекта (ЦФГЭ) [1]. Этот эффект представляет собой преобразование углового момента фотонов в трансляционное движение свободных носителей и наблюдается в гиротропных средах, в которых нарушается симметрия относительно зеркального преобразования. ЦФГЭ был предсказан в работах [2,3], наблюдался в образце кристаллического теллура [4], в пластинах кристаллов силиката висмута  $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$  [5],  $\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11}$  [6], ниобата лития [7] и квантовых ямах различной структуры и симметрии [8,9], а также в пленках InN [10]. Исследование ЦФГЭ представляет интерес с точки зрения дальнейшего развития спинтроники [11].



**Рис. 1.** Продольная (а) и поперечная (b) схемы экспериментов: 1 — четвертьволновая пластина, 2 — исследуемая пленка, 3 — подложка, 4 — осциллограф;  $AB$  и  $CD$  — измерительные электроды. Вставка на экране осциллографа: форма падающих лазерных импульсов (I), а также форма светоиндуцированных электрических импульсов положительной полярности при продольной (II) и поперечной (III) схеме эксперимента.

В данной работе мы сообщаем о наблюдении поверхностного ЦФГЭ в серебро-палладиевых резистивных пленках, полученных посредством вжигания резистивной пасты при высокой температуре. Исходная паста состояла из палладия, оксида серебра, стекла СЦ-273 и органической связки. Температура термообработки составляла  $T_{treat} = 878 \pm 5$  К. Пленки размером  $20 \times 20$  mm были получены на керамических подложках. Они снабжались двумя параллельными измерительными пленочными электродами из серебра, расположенными между подложкой и пленкой (рис. 1). Толщина полученных пленок составляла около  $20 \mu\text{m}$ ,

омическое сопротивление между измерительными электродами — от  $25 \Omega$ . Пленки состояли из AgPd, PdO и Ag<sub>3</sub>O в весовых соотношениях 80.4:18.8:0.8, соответственно, и представляли собой пористый материал с диаметром пор менее  $0.5 \mu\text{m}$ .

В экспериментах использовался YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазер [12] (диаметр пучка  $2 \text{ mm}$ , длина волны  $1064 \text{ nm}$ , длительность импульсов  $\tau = 19 \text{ ns}$ ). опыты проводились при геометриях, когда плоскость падения  $\sigma$  луча лазера на исследуемую пленку была параллельна (продольная схема) или перпендикулярна (поперечная схема) измерительным электродам. На рис. 1, *a* представлена продольная схема эксперимента, когда луч лазера падает на пленку под углом  $\alpha$ , а плоскость падения  $\sigma$ , определяемая волновым вектором  $\mathbf{k}$  и нормалью к поверхности пленки  $\mathbf{n}$ , параллельна измерительным электродам *AB* и *CD*. Электроды *AB* и *CD* подсоединялись соответственно к положительному и отрицательному входам цифрового осциллографа (полоса пропускания  $7 \text{ GHz}$ , входное сопротивление  $50 \Omega$ ). Излучение лазера после прохождения кварцевой четвертьволновой пластины *I*, установленной перпендикулярно к падающему пучку, направлялось на исследуемую пленку. Оптическая ось  $n_e$  четвертьволновой пластины лежала в ее плоскости параллельно одной из граней пластины. Поляризация излучения лазера на выходе четвертьволновой пластины определялась фазовым углом  $\gamma$  ( $\gamma$  — угол между осями  $n_e$  и  $\xi$ , где  $\xi$  лежит в плоскости  $\sigma$ , перпендикулярна вектору  $\mathbf{k}$  и параллельна вектору напряженности электрического поля  $\mathbf{E}$  излучения лазера на входе пластины). При наблюдении навстречу световому потоку угол  $\gamma$  отсчитывался против часовой стрелки. При  $\gamma = -45^\circ$  и  $\gamma = +45^\circ$  циркулярная поляризация света на выходе четвертьволновой пластины была правой (положительной) и левой (отрицательной) соответственно.

Исследования показали, что при обеих схемах эксперимента при наклонном падении луча лазера на пленку между электродами возникает однополярный импульс электрического напряжения (светоиндуцированная ЭДС), характеризующийся длительностью и экстремальным значением  $U$ , определяемым как  $U = pA$ , где  $p$  — полярность ( $p$  может принимать значения  $\pm 1$ ),  $A$  — амплитуда ( $A \geq 0$  по определению). Было установлено, что экстремальные значения  $U_x$  и  $U_y$  регистрируемых электрических импульсов, полученные при поперечной и продольной схемах эксперимента соответственно, изменяются по линейному закону при увеличении импульсной лазерной мощности  $P = \varepsilon/\tau$ , где  $\varepsilon$  —

энергия лазерных импульсов. При поперечной схеме эксперимента длительность регистрируемых электрических импульсов  $\tau_x$  существенно превышала длительность падающих лазерных импульсов и составляла около 60 ns (рис. 1, вставка, III осциллограмма), что находится в согласии с результатами наших недавних экспериментов [13]. Длительность наблюдаемых электрических импульсов  $\tau_y$  при продольной схеме эксперимента заметно зависела от поляризации падающего излучения лазера (т.е. от угла  $\gamma$ ) и находилась в пределах 20–30 ns (рис. 1, вставка, II осциллограмма).

В экспериментах исследовались зависимости коэффициентов преобразования  $\eta_x$  и  $\eta_y$  от угла  $\gamma$  при заданном угле падения  $\alpha$ , а также их зависимости от  $\alpha$  при фиксированных значениях  $\gamma$ , где  $\eta_x = U_x/P$  и  $\eta_y = U_y/P$ . Полученные зависимости  $\eta_y(\gamma)$ ,  $\eta_x(\gamma)$  при  $\alpha = 45^\circ$  для геометрии экспериментов с фиксированными ориентациями измерительных электродов, изображенных на рис. 1, *a* и *b* соответственно, представлены на рис. 2. Видно, что при поперечной схеме измерений экспериментально полученный массив данных  $\eta_x(\gamma)$  (светлые ромбики) можно аппроксимировать следующей функцией (рис. 2, кривая 1):

$$\eta_x = \eta_x^- + \eta_x^0 \sin^2 2\gamma, \quad (1)$$

где  $\eta_x^- = 39.8 \text{ mV/MW}$ ,  $\eta_x^0 = 14.9 \text{ mV/MW}$ .

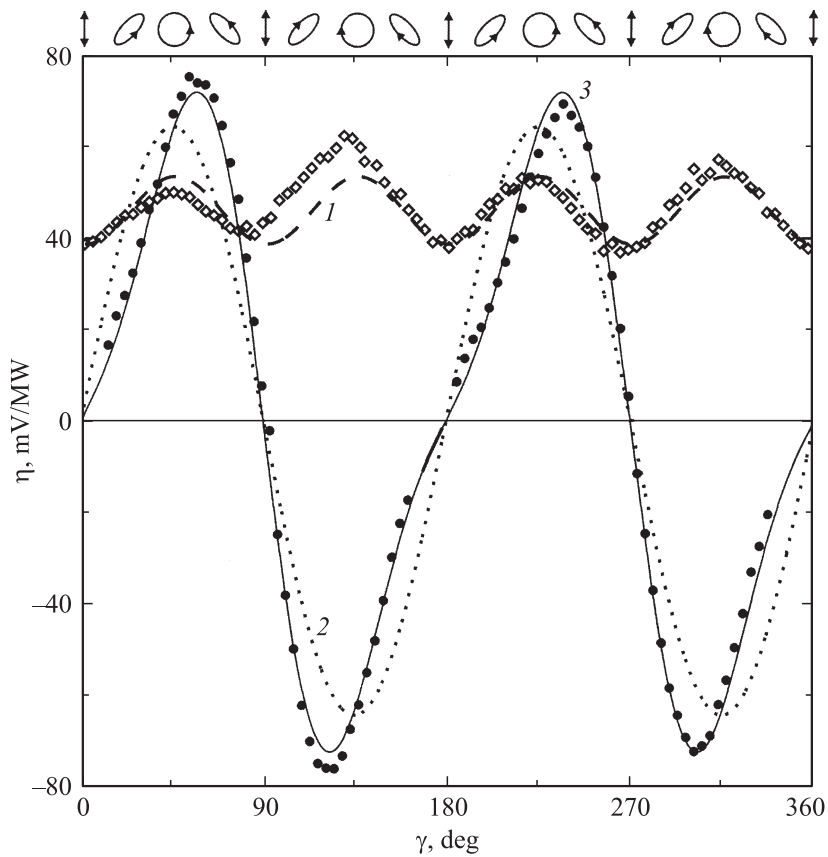
Таким образом, при поперечной схеме эксперимента для выбранной ориентации измерительных электродов (см. рис. 1, *b*) коэффициент преобразования  $\eta_x$  во всем диапазоне изменения  $\gamma$  положителен.

При продольной схеме (рис. 1, *a*) массив экспериментальных данных  $\eta_y(\gamma)$  (темные кружочки) в первом приближении можно аппроксимировать следующей зависимостью:

$$\eta_y = \eta_y^0 \sin 2\gamma, \quad (2)$$

где  $\eta_y^0 = 63.6 \text{ mV/MW}$  (см. рис. 2, кривая 2).

Зависимость (2) характерна для ЦФГЭ (см., например, [2,8,9]), для которого направление фототока, генерируемого в среде под действием эллиптически поляризованного света, зависит от направления вращения вектора электрического поля (от знака поляризации). В нашем случае при  $0 < \gamma < 90^\circ$  вращение вектора **E** происходит против часовой стрелки, а  $\eta_y$  принимает положительные значения. Когда  $90^\circ < \gamma < 180^\circ$  вращение вектора **E** происходит по часовой стрелке, сигнал становится



**Рис. 2.** Зависимости коэффициента преобразования  $\eta$  импульсной лазерной мощности в напряжение электрического импульса от фазового угла  $\gamma$  при поперечной ( $\diamond$ ) и продольной ( $\bullet$ ) схемах эксперимента. Верхняя вставка — эллипсы поляризации, соответствующие различным фазовым углам  $\gamma$ .

отрицательным ( $\eta_y < 0$ ). Все это свидетельствует о том, что в наших экспериментах наблюдается ЦФГЭ. Однако необходимо отметить, что расхождение экспериментально полученных точек (темные кружочки) от зависимости (2), описывающей чистый ЦФГЭ, значительное (см. рис. 2). Одним из объяснений этого может служить вклад другого

нелинейного эффекта, протекающего параллельно. Например, известно оптоэлектрическое выпрямление в графитовых пленках [14], возникающее при возбуждении поверхностных электрических токов передачей квазиимпульса света электронам при межзонных квантовых переходах, а также за счет поверхностного фотогальванического эффекта (ПФГЭ) [15,16]. В графитовых пленках, в соответствии с [14], ЦФГЭ не наблюдается, а соответствующая зависимость коэффициента преобразования  $\eta_y(\gamma)$  описывается функцией вида  $\sin 4\gamma$ . С учетом всего этого логично аппроксимировать экспериментальный массив данных  $\eta_y(\gamma)$ , представленных на рис. 2 (темные кружочки), функцией следующего вида:

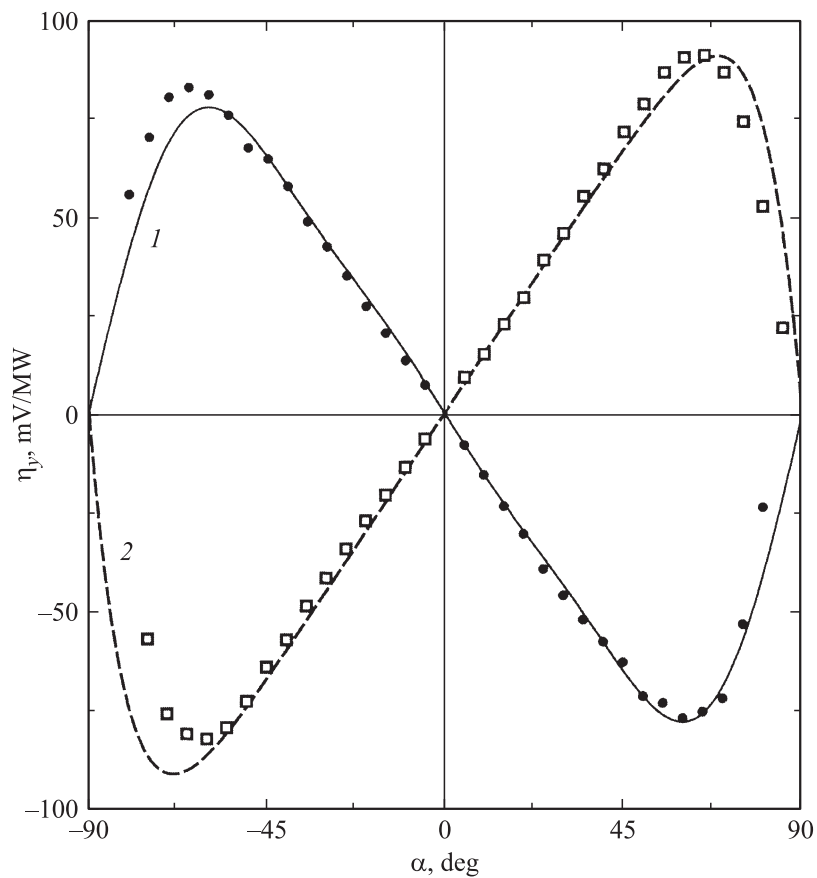
$$\eta_y = \eta_y^{02} \sin 2\gamma + \eta_y^{04} \sin 4\gamma, \quad (3)$$

где  $\eta_y^{02}$ ,  $\eta_y^{04}$  — некоторые коэффициенты. При  $\eta_y^{02} = 63.6 \text{ mV/MW}$ ,  $\eta_y^{04} = -19.1 \text{ mV/MW}$  точки экспериментальной зависимости  $\eta_y(\gamma)$  хорошо ложатся на кривую 3 (см. рис. 2), описываемую функцией (3). Это позволяет утверждать, что в исследуемых пленках ЦФГЭ происходит в присутствии других явлений.

Экспериментально полученные данные зависимости коэффициентов преобразования  $\eta_y$  от  $\alpha$  для правой ( $\eta_y^+(\alpha)$ ) и левой ( $\eta_y^-(\alpha)$ ) поляризации излучения представлены на рис. 3. Видно, что  $\eta_y^+(\alpha)$  и  $\eta_y^-(\alpha)$  достигают своих максимальных значений по модулю при углах падения  $\alpha = \pm 60^\circ$ . Заметим, что каждая из полученных зависимостей обладает свойством нечетной функции, т.е.  $\eta_y^+(\alpha) = -\eta_y^+(-\alpha)$ ;  $\eta_y^-(\alpha) = -\eta_y^-(-\alpha)$ , кроме этого для всех  $\alpha$  в пределах ошибок эксперимента справедливо соотношение  $\eta_y^+(\alpha) = -\eta_y^-(\alpha)$ . Следовательно, ЦФГЭ в исследуемых пленках наблюдается при всех углах падения  $\alpha$ .

Электрический ток ЦФГЭ, нормированный на мощность лазера, в наших пленках составляет  $4.8 \text{ nA/W}$ , что несколько больше значения, полученного для ЦФГЭ в пленках InN [10], примерно в 5 раз меньше нормированного тока, измеренного для квантовых структур InAs/AlGaSb [8]. В соответствии с результатами экспериментов [17–19], следует ожидать существенного увеличения коэффициента преобразования ЦФГЭ в исследуемых пленках при уменьшении их толщины и геометрических размеров.

Дополнительные эксперименты показали, что наблюдаемый эффект исчезает на пленках, полученных при повышенных температурах термообработки ( $T_{\text{reat}} = 1023 \text{ K}$  и  $1123 \text{ K}$ ). Между тем исследования показали, что увеличение  $T_{\text{reat}}$  приводит к резкому уменьшению весовой доли



**Рис. 3.** Зависимости коэффициента преобразования  $\eta_\gamma$  импульсной лазерной мощности в напряжение электрического импульса от угла падения  $\alpha$  для циркулярно поляризованного излучения вправо ( $\gamma = -45^\circ$ ) ( $\bullet$ ) и влево ( $\gamma = +45^\circ$ ) ( $\square$ ); сплошные кривые 1 и 2 — аппроксимирующие (полиномиальные) функции соответственно.

PdO с одновременным увеличением доли AgPd. Так, например, пленка, полученная при  $T_{\text{treat}} = 1123$  К, практически полностью состояла из AgPd и не содержала включения PdO, что находится в согласии с

результатами работы [20], где было показано, что при температурах выше 1087 К PdO разлагается. Следовательно, логично связывать появление ЦФГЭ в исследуемых пленках с PdO, являющимся полупроводником  $p$ -типа с шириной запрещенной зоны 0.8 eV [21]. Однако PdO является центросимметричным кристаллом (пространственная группа симметрии  $D_{4h}^9$  [21]), т.е. не обладает гиротропными свойствами, позволяющими наблюдать ЦФГЭ. Но с другой стороны следует иметь в виду, что в нашем случае ЦФГЭ возникает на поверхности, где имеет место нарушение центросимметричности. Действительно, при линейно поляризованном излучении и при наклонном падении света на поверхности полупроводников независимо от их симметрии возможен ПФГЭ [15]. ПФГЭ является результатом комбинации двух эффектов: анизотропии распределения фотовозбужденных электронов по импульсам при их переходе из валентной зоны в зону проводимости [22] и диффузности поверхностного рассеяния этих электронов. Проведенные нами дополнительные эксперименты показали, что в наших пленках при продольной схеме эксперимента, при которой был зарегистрирован ЦФГЭ, зависимость поверхностного фототока от угла падения  $\alpha$  и угла  $\Phi$  между плоскостью падения и вектором поляризации излучения имеет вид  $j_y \propto f(\alpha, \Phi) \sin 2\Phi$ , где  $f(\alpha, \Phi)$  — нечетная функция от  $\alpha$  (слабо зависящая от  $\Phi$ ), модуль которой для  $\Phi = 45^\circ$  имеет максимальное значение при углах  $\alpha = \pm 60^\circ$  и обращается в нуль при  $\alpha = 0$ . Заметим, что именно такая зависимость характерна для ПФГЭ при продольной схеме эксперимента [14–16]. Все это приводит нас к мысли, что в наших экспериментах наблюдается поверхностный ЦФГЭ, возможно, обусловленный спиновым расщеплением энергетического спектра PdO на поверхности. Однако PdO является малоизученным материалом и его тонкая энергетическая структура нам не известна. Установление истинного механизма обнаруженной светоиндуцированной ЭДС в серебряно-палладиевых резистивных пленках, зависящей от знака циркулярной поляризации, требует проведения дальнейших исследований.

## Список литературы

- [1] *Ивченко Е.Л.* // УФН. 2002. Т. 172. С. 1461–1465.
- [2] *Ивченко Е.Л., Пикус Г.Е.* // Письма в ЖЭТФ. 1978. Т. 27. С. 640–643.
- [3] *Белиничер В.И., Стурман Б.И.* // УФН. 1980. Т. 130. С. 415–458.
- [4] *Аснин В.М., Бакун А.А., Данишевский А.М.* и др. // Письма в ЖЭТФ. 1978. Т. 28. С. 80–84.



- [5] Петров М.П., Грачев А.И. // Письма в ЖЭТФ. 1979. Т. 30. С. 18–21.
- [6] Леманов В.В., Есаян С.Х., Максимов А.Ю., Габриэлян В.Т. // Письма в ЖЭТФ. 1981. Т. 34. С. 444–446.
- [7] Казанский П.Г., Проходов А.М., Черных В.А. // Письма в ЖЭТФ. 1985. Т. 41. С. 370–372.
- [8] Ganichev S.D., Ivchenko E.L., Danilov S.N. et al. // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. P. 4358–4361.
- [9] Ganichev S.D., Prettl W. // J. Phys.: Condens Matter. 2003. V. 15. P. R935–R983.
- [10] Zhang Z., Zhang R., Xie Z.L. et al. // Solid State Communications. 2009. V. 149. P. 1004–1007.
- [11] Кусраев Ю.Г. // УФН. 2010. Т. 180. С. 759–773.
- [12] Михеев Г.М., Малеев Д.И., Могилева Т.Н. // Квантовая электроника. 1992. Т. 19. С. 45–47 (Sov. J. Quantum Electron. 1992. V. 22. P. 37).
- [13] Михеев Г.М., Зонов Р.Г., Александров В.А. // Письма в ЖТФ. 2010. Т. 36. В. 14. С. 79–87.
- [14] Михеев Г.М., Стяпшин В.М., Образцов П.А. и др. // Квантовая электроника. 2010. Т. 40. № 5. С. 425–430.
- [15] Альперович В.Л., Белиничер В.И., Новиков В.Н. и др. // ЖЭТФ. 1981. Т. 80. С. 2298–2312.
- [16] Gurevich V.L., Laiho R. // Phys. Solid State. 2000. V. 42. P. 1807–1812.
- [17] Михеев Г.М., Зонов Р.Г., Образцов А.Н., Волков А.П. // Письма в ЖТФ. 2005. Т. 31. В. 13. С. 50–57.
- [18] Михеев Г.М., Зонов Р.Г., Образцов А.Н. и др. // ЖТФ. 2006. Т. 76. № 9. С. 81–87.
- [19] Mikheev G.M., Zonov R.G., Obratsov A.N. // Proc. SPIE. 2006. V. 6189. P. 484–490.
- [20] Zhang H., Gromek J., Fernando G.W. et al. // J. Phase Equilib. 2002. V. 23. P. 246–248.
- [21] Hass K.S., Carlsson A.E. // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. P. 4246–4249.
- [22] Земский В.И., Захарченя Б.П., Мирлин Д.Н. // Письма в ЖЭТФ. 1976. V. 24. P. 96–99.