# РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ

## АВТОМЕТРИЯ

Nº 2

1992

# ТЕХНОЛОГИИ И ЭЛЕМЕНТЫ ФОТОНИКИ

УДК 666.113.32: 535.212

Л. А. Агеев, В. К. Милославский, Т. Штайнборн, В. И. Лымарь

(Харьков)

## СПОНТАННЫЕ РЕШЕТКИ, ИНДУЦИРОВАННЫЕ ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ В ПЛЕНКАХ Аs<sub>2</sub>S<sub>3</sub>—Аg

Спонтанные решетки (СР) были обнаружены в тонких пленках  $As_2S_3$ —Ag при облучении поляризованным лазерным светом в области прозрачности  $As_2S_3$  ( $\lambda = 633$  нм). Измерением периодов СР в зависимости от толщины пленок и после обработки результатов методами интегральной оптики установлена связь СР с рассеянными в пленках волноводными модами. С помощью электронной микроскопии обнаружена доменная структура СР, связанная с рассеянием мод отдельными дефектами.

Интерес к оптическим свойствам халькогенидных стеклообразных пленок связан с их применением в интегральной оптике [1], фотографии и голографии. Использование указанных пленок для регистрации световых пучков основано на их способности к фотопревращениям под действием излучения. Известен ряд эффектов, возникающих при облучении пленок (фотопотемнение, фотодиффузия и др. [2]), число которых расширяется при облучении поляризованным лазерным пучком, приводящим к различным явлениям фотоанизотропии [3]. Записи голограмм и голографических решеток с высокой дифракционной эффективностью способствует фотолегирование пленок различными металлами, и в частности серебром [4, 5].

Известно, что рост дифракционной эффективности в ряде случаев ограничивается возникновением шумовых голограмм. В тонких светочувствительных пленках к шумовым голограммам относятся спонтанные периодические структуры, появление которых связано с рассеянием в пленках волноводных мод [6].

В настоящей работе сообщается об обнаружении и исследовании спонтанных решеток (СР), индуцируемых в тонких аморфных пленках As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>, фотолегированных Ag при действии поляризованного лазерного пучка.

Описание эксперимента. Тонкие пленки  $As_2S_3$  были получены путем вакуумного испарения порошка на ненагретые стеклянные подложки. Толщина пленок  $As_2S_3$  варьировалась от 20 до 380 нм. Пленка покрывалась сверху тонким слоем Ag, постоянная толщина которого (около 10 нм) контролировалась кварцевым измерителем толщин. Суммарная толщина образцов измерялась с точностью  $\pm 2$  нм методом Толанского. Приготовленные образцы облучались нормально падающим на образец линейно поляризованным пучком лазеров (He—Cd, аргоновый, He—Ne-лазеры,  $\lambda = 442$ , 488, 515 и 633 нм).

О появлении СР можно судить по характерным картинам малоуглового рассеяния на экране, поставленном между лазером и облучаемым образцом. Как показано в [6], рост СР из-за разброса их волновых векторов сопровождается появлением узкой, вытянутой параллельно вектору поляризации  $E_0$  индуцирующего пучка полосы рассеянного излучения. Малоугловое рассеяние позволяет контролировать появление и рост СР в процессе облучения без



изменения установки образца. Облучение пленок As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>—Ag лазерным светом всех длин волн приводит за короткий промежуток времени к появлению на облученном участке относительно прозрачного пятна, свидетельствующего о фоторастворении пленки Ag в As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> за счет фотодиффузионных и фотохимических процессов. Обнаружено, что при действии коротковолнового излучения с  $h\nu > E_g$ , где  $E_g = 2,3$  эВ — ширина запрещенной зоны As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>, фоторастворение Ag не сопровождается появлением малоуглового рассеяния и СР; в то же время малоугловое рассеяние и СР появляются при действии излучения от Не-Ne-лазера (До = 633 нм) в области относительной прозрачности As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>.

Фотоиндуцированные CP из-за их малого периода, меньшего $\lambda_0$  (зачастую  $d < \lambda_0/2$ ), не могут быть обнаружены обычным образом по дифракции с помощью пробного пучка с длиной волны  $\lambda_0$ . В связи с этим для определения d образец облучался пробным пучком с  $\lambda < \lambda_0$  от He—Cd-лазера и углы дифракции измерялись по автоколлимационной схеме. Дифракционный рефлекс от СР имеет вид серповидной дуги с касательной к центру II Е., что свидетельствует об образовании нерегулярной СР со штрихами, преимущественно вытянутыми вдоль Е. Период решетки находился по углу дифракции в центре дуги. В заданном интервале толщин h As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> была исследована зависимость d(h). Структура СР после обработки облученных образцов в фиксирующем растворе щелочи исследовалась с помощью электронного микроскопа ПЭМ-100.

Результаты эксперимента и их обсуждение. Расположение рефлексов от СР относительно Ео свидетельствует о связи СР с рассеянными в пленке волноводными ТЕ-модами. Волноводные моды возбуждаются в визуально нерассеивающих пленках As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> за счет слабого рэлеевского рассеяния случайными дефектами, малыми по сравнению с  $\lambda$  размерами. Если предположить, что преобладающими являются изотропные центры рассеяния (гранулы Ag, дефекты точечного типа и др.), то рассеянное излучение имеет вид поляризованной сферической волны с амплитудой, зависящей от полярных углов  $\theta$  и  $\gamma$ , где  $\theta = < (k_s, z), \gamma = < (k_s, x), k_s$  — волновой вектор рассеянной волны;  $k_s$  — тангенциальная составляющая k,, равная волновому вектору волноводной моды  $\beta$ ; ось x II E<sub>0</sub>, ось z нормальна к поверхности образца. Вектор поляризации рассеянной волны Е, удобно разделить на ТЕ- и ТМ-компоненты в плоскости, перпендикулярной k<sub>s</sub>, где E<sub>STE</sub> параллелен поверхности пленки; E<sub>STM</sub> лежит в плоскости, проходящей через векторы k, и k,; ТЕ- и ТМ-компоненты возбуждают в пленке ТЕ- и ТМ-моды соответственно. Амплитуды компонент при нормальном падении света на образец равны

$$A_{STE} = \frac{r_0}{r} A_0 \exp(-\alpha r) \sin\gamma, \qquad (1a)$$

$$A_{STM} = \frac{r_0}{r} A_0 \exp(-\alpha r) \cos\gamma \cdot \cos\theta, \qquad (1b)$$

где  $\alpha$  — амплитудный коэффициент поглощения пленки;  $r_0$  — характерная длина, зависящая от структуры и размеров центра рассеяния [7]; A<sub>0</sub> амплитуда падающей волны.

На рассеянных модах при их сложении с падающей волной формируется интерференционное поле с периодом вдоль пленки  $d = 2\pi\beta^{-1}$  и с видностью, зависящей от амплитуд  $A_{STE}$  и  $A_{STM}$  и азимутов у и  $\theta$ ; в частности, при рассеянии TE-мод видность пропорциональна  $\sin^2 \gamma$  [8]. На начальном интерференционном поле в результате фотодиффузионных процессов и фотохимических превращений возникают СР, дальнейший рост которых определяется положительной обратной связью. Из (1a) и (1b) следует, что интерференционная картина с заметной видностью формируется при  $d << a^{-1}$ , что объясняет отсутствие СР при облучении пленок в районе фундаментальной полосы As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>, где  $\alpha > 10^4$  см<sup>-1</sup>, и возникновение СР при облучении Не-Ne-лазером. Так как  $|A_{STE}|$  максимален при  $\gamma = \pm \pi/2$ , а  $|A_{STM}|$  — при  $\gamma = 0, \pi, TE$ -

38

Рис. I. Зависимость периода СР от суммарной толщины пленки  $As_2S_3(Ag)$ : точки – жеперимент, I – расчетная зависимость d(h) для  $TE_0$ -решеток при n = 2,80 (20  $\le h \le 60$  нм); 2 – расчетная зависимость d(h) для  $TE_0$ - и  $TE_1$ -решеток при n = 2,52 (160  $\le h \le 360$  нм)

решетки растут на модах, преимущественно рассеянных  $\perp E_0$ , *TM*решетки — на модах, рассеянных II E<sub>0</sub>. Отношение  $\eta =$ =  $A_{STM}(0)/A_{STE}(\pi/2) = \cos\theta$ , и так как в лучевом приближении  $\beta = (2\pi/\lambda_0)n\sin\theta$  и для пленок конечной толщины  $\beta < (2\pi/\lambda_0)n$ ,



величина  $\eta < 1$ , что определяет в согласии с экспериментом преимущественный рост *TE*-решеток.

Зависимость d(h) (рис. 1) характерна для СР, формируемых на волноводных модах [6]. При малых h (около 20 нм) d близок к ( $\lambda_0/n_1$ ) = 418 нм, где  $n_1 = 1,515$  — показатель преломления стеклянной подложки. С ростом hпериод уменьшается до ( $\lambda_0/n^*$ ), где  $n^* < n = 2,61$  — показатели преломления As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> при $\lambda_0 = 633$  нм. При  $h \ge h_1 = 180$  нм возникают новые СР, период которых также уменьшается с ростом h, новые СР появляются при  $h \ge h_2 = 343$  нм, начиная с  $d = (\lambda_0/n_1)$ . Таким образом, при  $h < h_1$  СР растут на рассеянных  $TE_0$ -модах, при  $h_2 \ge h \ge h_1$  — на рассеянных  $TE_0$ - и  $TE_1$ -модах и т. д. В двухи трехмодовых пленках, кроме  $TE_0 - TE_m$ -решеток (m = 1, 2), наблюдаются также «сверхрешетки» с большим d и с волновым вектором  $K = K_{TE_0} - K_{TE_m}$ , дифракционные рефлексы от которых проявляются уже в процессе облучения пленок. Причиной возникновения «сверхрешеток» является интерференционное взаимодействие  $TE_0$ - и  $TE_m$ -мод, рассеянных в одном направлении [6].

Расчет зависимости d(h) проведен путем совместного решения уравнения фазового синхронизма  $d = 2\pi\beta^{-1}$  и дисперсионного уравнения для  $TE_m$ -мод [9] в предположении оптической однородности пленки. Фотолегирование As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> серебром приводит к образованию двухслойной системы, состоящей из слоя As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>(Ag), обогащенного Ag определенной концентрации, и слоя As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> [10, 11]. Соотношение толщин As2S3 и Ag, при котором достигается полное фоторастворение Ag в As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>, приближенно равно 2 [11]. При толщине пленки Ag 10 нм средняя толщина обогащенного слоя As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>(Ag) около 30 нм, т. е. слой  $As_2S_3(Ag)$  можно считать однородным при h < 30 нм, в то время как при h >> 30 нм имеет место однородный слой As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> с тонкой пленкой As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>(Ag) на его поверхности. Так как показатель преломления неотожженной пленки  $As_2S_3$  заметно меньше [12] *п* массивного стекла (2,61), а фотолегирование Ag приводит к заметному росту n [11, 13], флуктуацией n-слоя As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> и h- и *п*-слосв  $As_2S_3(Ag)$  можно объяснить большой разброс точек в зависимости d(h)на участке h (80-180 нм), где проявляется двухслойный характер облученной пленки.

В связи с изложенным расчет d(h) проведен на участке малых (20—60 нм) и больших (180—380 нм) h путем подбора n на заданном участке посредством минимизации квадрата разностей экспериментальных и расчетных значений d. Расчет на первом участке дает n = 2,80, а на втором — n = 2,52. Сходные значения n получаются из толщин отсечек для  $TE_1$ - и  $TE_2$ -мод. Для однородного слоя

$$h_m = \frac{\lambda_0}{2\pi (n^2 - n_1^2)^{1/2}} \operatorname{arctg} \left( \frac{n_1^2 - n_0^2}{n^2 - n_1^2} \right)^{1/2} + \frac{m\lambda_0}{2(n^2 - n_1^2)^{1/2}}.$$

(2)

39

Если  $n_0 = 1$ ,  $n_1 = 1,515$ ,  $\lambda_0 = 633$  нм, имеем n = 2,54 при  $h_1 = 180$  нм и n = 2,51при  $h_2 = 343$  нм. Из приведенных оценок следует увеличение показателя преломления слоя As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>(Ag) на 0,3 по сравнению с пленкой As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> (n = 2,50); рост n на несколько десятых при фотолегировании As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> серебром отмечался в [11, 13].

Электрономикроскопические снимки СР облученных пленок (рис. 2, *a*, *b*) сходны с микрофотографиями СР в пленках AgCl—Ag [6]. В одномодовых пленках (см. рис. 2, *a*) СР нерегулярны и состоят из отдельных микрорешетокдоменов, вытянутых  $\perp$  E<sub>0</sub>, в то время как штрихи внутри домена преимущественно || E<sub>0</sub>. Ширина домена составляет десятые доли микрометра, длина доменов в среднем равна 20 периодам СР (4—6 мкм). Отчетливо видны штрихи основной решетки с периодом  $d = 2\pi\beta^{-1}$ . Наблюдаются также домены с d' = d/2. Возможной причиной появления последних является интерференция двух *TE*<sub>0</sub>-мод, рассеянных навстречу друг другу, при этом возникает интерференционное поле с волновым вектором K = 2 $\beta$ . Из-за малости d' такие решетки не обнаруживаются по дифракции.

Причиной появления доменов является рассеяние TE-мод отдельными центрами рэлеевского типа. На это указывает искривление штрихов, вогнутая сторона которых обращена к наиболее узкой части домена. Равновесная форма доменов определяется азимутальным распределением амплитуды рассеянных TE-мод и видностью начальной интерференционной картины, пропорциональной sin<sup>2</sup> $\gamma$ , конкуренцией TE-мод, рассеянных различными центрами, и положительной обратной связью, определяющей большую скорость развития CP с большей амплитудой.

Более сложный вид имеют снимки для двухмодовых пленок, на которых видны домены с большим ( $TE_1$ -микрорешетки) и с малым ( $TE_0$ -микрорешетки) периодами и микрорешетки с d' = d/2. Кроме обычных СР на TE-модах, на отдельных редких участках наблюдаются микрорешетки со штрихами  $\bot E_0$  (см. рис. 2, b). Происхождение таких решеток связано с рассеянием  $TM_0$ -мод. Наложение  $TM_0$ - и  $TE_1$ -решеток приводит к двумерной решетке, имеющей точечный характер, с периодами  $d_{TE_1} > d_{TM_0}$ . На рис. 2, b также отчетливо проявляется положение рассеивающего центра, приводящего к одновременному возбуждению  $TE_1$ - и  $TM_0$ -мод. Дифракционные рефлексы от  $TM_0$ -решеток гораздо слабее рефлексов от TE-решеток и часто не видны, что затрудняет построение зависимости d(h).

В силу недостаточного в настоящее время понимания механизма фоторастворения серебра в  $As_2S_3$  трудно предложить конкретный механизм переноса массы при росте СР. Рост *n* при растворении Ag указывает на образование фазовой решетки с модуляцией *n* вдоль пленки. По-видимому, из-за боковой диффузии Ag [14] имеет место перенос Ag из максимумов в минимумы интерференционной картины, что приводит при полном растворении Ag к повышен-



## Рис. 2. Микрофотография СР:

a -одномодовая пленка As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> - Ag, h = 105 нм,  $d_{TE0} = 309$  нм; b -двухмодовая пленка, h = 247 км,  $d_{TE1} = 340$  нм,  $d_{TM0} = 266$  нм

40

ной толщине слоя As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>(Ag) в интерференционных минимумах. Модуляция толщины этого слоя возможно вызывает модуляцию суммарной толщины пленки с образованием периодического поверхностного рельефа. Для дальнейшего изучения структуры CP и механизма переноса массы при их росте следует провести исследования спектральных характеристик облученных пленок и кинетики развития CP.

Эксперименты по наблюдению СР указывают на необходимость их учета как шумовых решеток при формировании голографических решеток монохроматическим излучением в области прозрачности  $As_2S_3$ , а также при изучении различных фотоанизотропных эффектов [3], возникающих при облучении халькогенидных пленок поляризованным светом с  $h\nu < E_g$ .

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Андриеш А. М., Пономарь В. В., Смирнов В. Л. и др. Использование халькогенидных стекол в интегральной и волоконной оптике (обзор) // Квантовая электрон.—1986.—13, № 6.
- 2. Любин В. М. Фотоструктурные превращения в халькогенидных стеклообразных полупроводниках // Автометрия.—1988.—№ 4.
- 3. Любин В. М., Тихомиров В. К. Фотоиндуцированный дихроизм в пленках халькогенидных стеклообразных полупроводников // ФТТ.—1990.—32, № 6.
- 4. Костышин М. Т., Романенко П. Ф., Стронский А. В. и др. О влиянии толщины слоя металла на процесс записи голографических решеток в светочувствительных системах As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>—As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>—Ag // Укр. физ. журн.—1986.—31, № 1.
- 5. Zakery A., Slingert C. W., Ewen P. I. S. et al. Chalcogenide gratings produced by the metal dissolution effect // J. Phys. D.-1988.-21, N 10.-P. 78.
- 6. Агеев Л. А., Блоха В. Б., Милославский В. К. Свойства периодических структур, фотоиндуцированных в тонкопленочной системе AgCi—Ag // Укр. физ. журн.—1985.—30, № 4.
- 7. Ван де Хюлст Г. Рассеяние света малыми частицами. --- М.: Изд-во иностр. лит., 1961.
- Агеев Л. А., Ассаад Н., Милославский В. К. и др. Самозарождающиеся фотоиндуцированные периодические структуры в пленках светочувствительных материалов при наклонном падении лазерного излучения // Оптика и спектроскопия.—1990.—68, вып. 3.
- 9. Хансперджер Р. Интегральная оптика. М.: Мир, 1985.
- Kahnt H., Schirrmeister F., Feltz A. Model of photostimulated diffusion of Ag in amorphous chalcogenides // Phys. Stat. Sol. (a). ---1988.---108, N1.--P. 149.
- 11. Костышин М. Т., Касярум О. П., Кудрявцев А. А. Моделирование процесса фотолегирования в системе полупроводник — металл на основе представления о се трехслойной структуре // Укр. физ. журн.—1987.—32, № 7.
- Kumar W., White K. Thermal aging effects in vitreous As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> films // Thin Solid Films.—1986.— 135, N 1.—P. L13.
- 13. Zakery A., Zekak A., Ewen P. I. S. et al. Optical constants of Ag photodoped As—S amorphous films // J. Non-Cryst. Sol.—1989.—114, N 1.—P. 109.
- Suptitz P., Fischer A. Lateral diffusion of photodoped silver in amorphous Ge0,25Se0,75 layers // Phys. Stat. Sol. (a).-1984.-82, N 1.-P. 157.

Поступила в редакцию 29 апреля 1991 г.

41

#### УДК 621.378: 681.33

### Л. А. Борыняк, Е. А. Краснопевцев, А. В. Логинов, А. А. Штыгашев

### (Новосибирск)

## ПАНОРАМНЫЕ ИНТЕРФЕРОМЕТРЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ДЕФОРМАЦИЙ ОБЪЕКТОВ ОСЕСИММЕТРИЧНОЙ ФОРМЫ

Разработаны панорамные интерферометры для контроля формоизменения поверхности тел вращения. При необходимости можно регистрировать и выделять отдельно нормальные и внутриплоскостные компоненты вектора перемещения деформируемой поверхности. Приведены метрология и примеры контроля деформаций цилиндрических оболочек.

4 Автометрия № 2, 1992 г.