# Реверсивная поляризационная голографическая запись в многослойных наноструктурах As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se

# А. Ю. Мешалкин

Институт прикладной физики АН Молдовы, ул. Академическая, 5, г. Кишинев, MD-2028, Республика Молдова, e-mail: alexei@asm.md

Исследован процесс поляризационной голографической записи дифракционных решеток и их последующего стирания в многослойной наноструктуре  $As_2S_3$ -Se. Изучено влияние предварительной засветки актиничным лазерным излучением до полного насыщения фотостимулированных изменений оптических свойств на формирование дифракционных решеток в исследуемой структуре. Показано, что засветка многослойной наноструктуры (MHC)  $As_2S_3$ -Se актиничным светом приводит к фотопросветлению, а величина максимально достижимой дифракционной эффективности (ДЭ), равной 35%, при записи решеток не изменяется, но необходимая экспозиция до достижения максимума увеличивается. Также показано, что экспозиция одним лучом приводит к полному стиранию записанной до максимума дифракционной решетки. Проведенные семь циклов записи-стирания показали, что кинетика роста ДЭ и ее максимальная величина не изменяются, что указывает на то, что на MHC  $As_2S_3$ -Se осуществима реверсивная голографическая запись при ортогональной циркулярной поляризации. Исследование полученных решеток на атомном силовом микроскопе (ACM) свидетельствует, что основным фактором, определяющим значение ДЭ записанных решеток, является модуляция рельефа, глубина которого составляет более 200 нм.

Ключевые слова: халькогенидные многослойные наноструктуры, реверсивная голографическая запись, прямое формирование поверхностного рельефа, дифракционная эффективность.

**DOI:** 10.5281/zenodo.1051276 УДК 681.785.552

#### ВВЕДЕНИЕ

Халькогенидные стеклообразные полупроводники (XCП) отличаются рядом уникальных свойств, а именно разнообразием фотостимулированных изменений физико-химических свойств, которые имеют сложную природу и включают различные эффекты, такие как фотопотемнение/просветление (сдвиг края поглощефоторефракция, фотоиндуцированное ния), изменение растворимости, фотоиндуцированная анизотропия, фотокристаллизация и др. [1, 2]. Практическое применение ХСП основывается на таких свойствах халькогенидных стекол и пленок, как квазистабильность, высокий показатель преломления, прозрачность в инфракрасной (ИК) области спектра (благодаря своей прозрачности в ИК области ХСП широко используются в ней как пассивные оптические компоненты), фотоиндуцированное изменение свойств, ионная проводимость фотолегированных ХСП и др. Наиболее интересным свойством ХСП является возможность формирования поверхностного рельефа с высоким латеральным разрешением вплоть до 100 нм. Впервые обнаруженное на стеклообразном As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> фотоселективное растворение [3] с использованием интерференционной фотолитографии часто применяют для создания

рельефных дифракционных структур. В настоящее время дифракционные оптические структуры находят широкое практическое применение в защитных голографических технологиях, оптоэлектронике и оптической памяти.

Использование рельефно-фазовых дифракционных структур на основе халькогенидных стекол позволяет добиться высокой дифракционной эффективности (ДЭ). В [4] показано получение высококачественных дифракционных решеток с предельными характеристиками с использованием халькогенидных регистрирующих сред. Такие структуры изготовляют записью электронными или ионными пучками, фото- или рентгеновской литографией, интерференционной фотолитографией, микро- или наноимпринтингом [5–7]. Необходимое селективное травление в данных методах прежде всего добавляет несколько дополнительных операций и усложняет технологический процесс. Эти традиционные литографические технологии используют жидкостное травление или более затратное сухое анизотропное травление [6, 8, 9].

Высокая чувствительность ХСП к поляризационному состоянию света, приводящая к формированию в изначально изотропном материале фотонаведенной анизотропии (двулучепреломления, дихроизма, гиротропии) [10–12],

© Мешалкин А.Ю., Электронная обработка материалов, 2017, 53(6), 97–104.

делает их перспективными для использования в качестве регистрирующих сред в поляризационной голографии. Впервые теоретическое и экспериментальное исследования поляризационной голографической записи на слоях аморфного ХСП (а-As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>) были проведены в работе [13]. Сравнительный анализ свойств скалярных и векторных (поляризационных) дифракционных решеток (ДР), записанных в слоях a-As-S-Se скалярным и поляризационным методами, был проведен в [14]. Как было показано, поляризационная запись, по сравнению со скалярной, характеризуется намного меньшей достигаемой ДЭ (0,004% против 4%), увеличенной необходимой экспозицией для достижения насыщения (6400 против 20 Дж/см<sup>2</sup>) и почти совершенной реверсивностью (в отличие от нереверсивной скалярной записи). При этом наибольший интерес представляет поляризационная запись с ортогональной циркулярной поляризацией, что дает наибольшее значение ДЭ [14]. В работе [15] было впервые обнаружено гигантское формирование рельефа при поляризационной голографической записи с увеличенной экспозицией в слоях аморфного As<sub>3</sub>S<sub>2</sub>. Далее в работах [16–18] были более детально рассмотрены процессы формирования рельефных структур в ходе поляризационной записи и на других составах ХСП (Se, As-Se, As-S-Se). В [19, 20] было предложено использовать многослойные наноструктуры (МНС) на основе ХСП в качестве регистрирующей среды для прямой голографической записи рельефных структур. В работах [21, 22] показано влияние поляризации записывающих пучков света на кинетику записи дифракционных решеток (поверхностного рельефа).

Природа прямого формирования рельефа в процессе поляризационной голографической записи еще недостаточно изучена. Многие авторы склонны считать, что процесс формирования рельефа при использованных интенсивностях света (30-100 Bт/см<sup>2</sup>) не является термическим [15]. При облучении слоев ХСП актиничным светом в области ширины запрещенной зоны возможны различные процессы - ориентация светом уже имеющихся молекулярных структурных единиц, образование полярных (анизотропных) молекулярных структурных единиц в матрице ХСП с одновременным значительным размягчением материала, то есть наведенной фотопластичностью (фототекучестью), полимеризационные процессы и т.д. [23]. Создаповерхностного рельефа ХСП. ние в по-видимому, обусловлено движением образованных анизотропных структурных единиц в неоднородном электрическом поле интерференционной картины, так называемым эффектом фотостимулированного массопереноса, что приводит к гигантской модуляции рельефа.

Одной из значимых особенностей халькогенидных регистрирующих сред является реверсивность [24-27]. Следует отметить, что реверсивностью фотостимулированных изменений свойств считается возможность среды восстанавливаться в начальное состояние, то есть состояние до облучения, при температуре ниже температуры стеклования. В противном случае фотостимулированное изменение свойств считается постоянным [28]. Исследование реверсивности регистрирующих свойств типичного ХСП As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> показало, что скалярные эффекты, то есть наблюдаемые фотопотемнения, фоторефракция и фоторасширение слоя под действием облучения могут быть восстановлены только с помощью отжига [29, 30], то есть эти эффекты являются постоянными. При этом поляризационные эффекты фотонаведенной анизотропии (двулучепреломления и дихроизма) являются реверсивными [31, 32]. Однако вопрос реверсивности фотостимулированного формирования поверхностного рельефа в слоях ХСП при поляризационной голографической записи остается открытым и в научной литературе мало освещен. В работе [33] показано, что решетки поверхностного рельефа, записанные в слоях а-As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> с помощью поляризационной голографической записи, являются стабильными, и облучение однородным светом не привело к стиранию решетки. В работе [34] Трунов показал, что латеральное направление массопереноса в слоях As20Se80 зависит от поляризационной конфигурации лучей и может быть изменено на противоположное с изменением поляризации лучей. Серия рельефных решеток, синфазных с интерференционной картиной и со сдвигом на π, была циклично записана со сменой поляризации с р:р на s:s и обратно. При изменении поляризации происходит перемена направления движущей оптической силы, приводящая к противоположному направлению массопереноса и формированию новой рельефной решетки, сдвинутой по фазе на  $\pi$  относительно предыдущей решетки. При этом происходит стирание предыдущей решетки. Как утверждает автор, подобная картина характерна и для слоев As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>. Таким образом, было показано, что для стирания записанной рельефной решетки необходимо изменить направление движущей оптической силы.

В настоящей работе была исследована реверсивность прямого формирования рельефных ДР в слоях МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se с помощью поляризационной голографической записи. Для этого была осуществлена циклическая голографическая поляризационная запись с последующим однородным экспонированием только одним лучом лазера. Также приведены результаты по влиянию предварительного облучения МНС до насыщения на эффективность поляризационной записи.

#### ЭКСПЕРИМЕНТ

В данной работе в качестве регистрирующей среды были использованы многослойные наноструктуры  $As_2S_3$ -Se и слои  $As_2S_3$ , полученные термическим испарением в вакууме на вращающуюся стеклянную подложку. Каждый состав (As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> и Se) напылялся из отдельного испарителя и через свою маску. В результате такого напыления получали три концентрических кольца составов Se/As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se/As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>. Следует отметить, что все слои были получены в одном технологическом цикле и нанесены на одну и ту же подложку, то есть в одних и тех же условиях. Это позволяет проводить сравнительный анализ свойств МНС и отдельных слоев ХСП при записи. Подробно процесс напыления МНС и анализ полученной структуры описаны в работах [35, 36]. На стеклянную подложку последовананосились слои As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> тельно толщиной  $d_1 = 9$  нм и Se толщиной  $d_2 = 6$  нм до получения МНС с общим количеством чередующихся слоев 220. B полученной структуре суммарная толщина слоев As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> составляла ~ 1 µm, Se - ~ 0,7 µm и соответственно общая толщина МНС ~ 1,7 µm. Спектры пропускания полученных слоев измеряли на спектрофотометре Specord UV-VIS. Из данных спектров по методу, предложенному Сванепоелом [37], были рассчитаны показатели преломления *n* и поглощения α исследуемых слоев. Оптическая ширина запрещенной зоны была вычислена по методу Тауца [38] с помощью программного обеспечения Parav v.2.0 [39]. Предварительное облучение пленок и запись дифракционных решеток проводили по схеме, показанной на рис. 1. В качестве источника излучения использовали одномодовый твердотельный лазер с диодной накачкой (DPSS) на длине волны 532 нм мощностью 110 мВт. Энергия кванта этого света находится в их области поглощения и является актиничной для исследуемых структур. Угол схождения лучей в 25,5 градуса был выбран для получения интерференционной картины с периодом 1,2 мкм. Интенсивность света (I) в месте падения лучей составила 4,33 Вт/см<sup>2</sup> при диаметре пятна засветки 1,0 мм. В данной работе для поляризационной голографической записи ДР были использованы ортогональные право- и левовращающие циркулярные поляризации (RCP:LCP). Для создания циркулярной поляризации из начальной линейной поляризации использовали четвертьволновые фазовые пластинки. Для прерывания облучения двух лучей или одного из лучей использовали управляемый прерыватель (Sh).



Рис. 1. Схема записи ДР и контроля ДЭ в процессе записи. DPSS – твердотельный лазер с диодной накачкой; BS – делитель пучка 50/50, Sh1 и Sh2 – прерыватели лучей; M – зеркала;  $\lambda/4$  – четвертьволновая фазовая пластинка; LD – лазерный диод; S – регистрирующая среда; PD – кремниевые фотодиоды.

Кинетику изменения ДЭ в проходящем свете при ортогональном падении излучения красного лазерного диода ( $\lambda = 650$  нм, I = 30 мВт/см<sup>2</sup>) осуществляли в режиме реального времени в процессе записи ДР. Интенсивности прошедшего нулевого порядка  $I_0$  и первого дифракционного порядка  $I_1$  регистрировались кремниевыми фотодиодами. Дифракционная эффективность η рассчитывалась по формуле  $\eta = \frac{I_1}{\Sigma I_m} \times 100\%$ ,

где  $\Sigma I_m$  – сумма интенсивностей всех порядков дифракции в пройденном свете. Данная формула оценки ДЭ позволяет исключить влияние поглощения в фоточувствительном слое и поверхностного отражения, а также их изменения в процессе записи и описывает только перераспределение пройденной энергии по всем порядкам дифракции. В соответствии с данным определением ДЭ сумма ДЭ всех порядков составляет 100%. В случае записи решеток с периодом 1,2 мкм наблюдались только три порядка дифракции: 0-й и ±1-е, причем ввиду симметричного профиля решеток и перпендикулярного падения считывающего луча интенсивности ±1-х порядков были равны. Соответственно ДЭ  $\eta = \frac{I_1}{I_0 + 2I_1} \times 100\%.$ формуле оценивалась по

После формирования ДР поверхностный рельеф измеряли с помощью атомно-силового микроскопа (ACM) Dimension 3100 (Veeco Digital Instruments, Bruker).

# РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В работе [21] показано, что формирование ДР на МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se в большой степени зависит от используемой поляризационной конфигурации записывающих лучей. Интерференционная картина в зависимости от поляризационной конфигурации лучей может быть промодулирована только по амплитуде (в случае параллельных линейных S:S и P:P поляризаций) [13], что определяет скалярное взаимодействие среды со светом, то есть не зависящим от поляризации, а только от интенсивности (рис. 2 – А). Она может быть промодулирована только по вектору поляризации без амплитудной модуляции (в случае ортогональных линейных S:P поляризаций) [13], что определяет векторное взаимодействие материала со светом (рис. 2 – В).



**Рис. 2.** Пространственная модуляция интенсивности и вектора поляризации в интерференционной картине в зависимости от угла  $\beta$  между поляризациями интерферирующих лучей: (А) модуляция интенсивности для  $\beta = 0$ , (В) модуляция вектора поляризации для  $\beta = \pi/2$  [13].

Возможна модуляция совместно – и по амплитуде, и по направлению поляризации (в случае ортогональных линейных ±45° либо циркулярных LCP:RCP поляризаций). В этом случае интерференционная картина представляет собой периодическое изменение состояния поляризации, при этом сохраняется и модуляция интенсивности. Контраст интерференционных полос (или видность полос) в случае интерференции лучей с ортогональными циркулярными поляриформуле зациями рассчитывался по  $V = \frac{E_1 \times E_2 (1 - \cos(\theta))}{E_1^2 + E_2^2}$  [40], где  $E_1$  и  $E_2$  – соответствующие амплитуды интерферирующих лучей; θ – угол схождения лучей. Как видно из приве-

денной формулы, для лучей равной интенсивности контраст полос определяется только углом схождения лучей  $\theta$  и  $V = \frac{1-\cos(\theta)}{2}$ . В нашем случае при угле схождения лучей  $\theta = 25,5^{\circ}$  контраст полос V = 0,049. Экспонирование регистрирующих сред интерференционными картинами с модуляцией либо интенсивности, либо поляризации обусловливает как различный тип взаимодействия излучения с веществом, так и формирование различных типов дифракционных

решеток: амплитудных, фазовых и поляризационных. Учитывая, что наибольшая эффективность формирования поверхностного рельефа в МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se характерна для ±45° и LCP:RCP поляризационной записи [21], можно предположить, что в процессе формирования рельефа играет роль как модуляция поляризации в интерференционной картине, так и модуляция интенсивности. Для определения степени влияния скалярных фотостимулированных превращений, а также их исключения в процессе поляризационной записи слои МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se и As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> (толщинами 1,7 и 1,0 мкм соответственно) были предварительно облучены однородным лучом используемого для записи лазера путем перекрытия второго луча (Sh2 в схеме записи на рис. 1) до насыщения. Спектры пропускания слоев до и после облучения представлены на рис. 3. Там же показаны положения длин волн, используемых для записи ДР:  $\lambda = 532$  нм и для измерения ДЭ записанных ДР:  $\lambda = 650$  нм.



**Рис. 3.** Спектры пропускания слоев МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se и As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>. Отрезками показаны положения длины волны записи 532 нм и длины волны измерения ДЭ 650 нм.

Как видно из рис. 3, в слое As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> в результате облучения наблюдается сдвиг края поглощения в длинноволновую область, так называемый эффект фотопотемнения. Насыщение ЭТОГО эффекта, когда сдвиг края поглощения больше не меняется, происходит за экспозицию 175 Дж/см<sup>2</sup>. Противоположная картина наблюдается для МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se, в которой под действием света происходит фотопросветление. В этом случае насыщение эффекта достигается за гораздо более продолжительную экспозицию 2630 Дж/см<sup>2</sup>. Эффект фотопросветления в МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se наблюдался Кикинеши в работе [41]. В МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se под действием света происходит фотоинтердиффузия стимулированная молекул составляющих нанослоев образованием с твердого соединения As-S-Se. Край поглощения исходной МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se практически совпадает с

Показатель преломления n и поглощения  $\alpha$  для длин волн 532 и 650 нм МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se и слоев As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>, а также оптическая ширина запрещенной зоны и ее изменение после облучения длиной волны 532 нм

Состав слоя	$\lambda = 532$ нм		$\lambda = 650$ нм		$E_{\alpha} \rightarrow \mathbf{P}$	$AE_{2} \rightarrow D$
	п	α,cm <sup>-1</sup>	п	α, cm <sup>-1</sup>	$Lg_{opt}$ , 3D	$\Delta E g_{opt}$ , 3B
MHC As <sub>2</sub> S <sub>3</sub> -Se	_	$2,7 \times 10^{4}$	$2,\!45 \pm 0,\!01$	$1,0 \times 10^{2}$	$2,00 \pm 0,01$	+0,06
$As_2S_3$	$2,47 \pm 0,01$	$2,3 \times 10^{3}$	$2,35 \pm 0,01$	$0.5 \times 10^{2}$	$2,40 \pm 0,01$	-0,06

краем поглощения Se, оптическая ширина запрещенной зоны ( $Eg_{opt}$ ) которого равна 1,93 эВ [21], поскольку As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> в этой области прозрачен ( $Eg_{opt} \sim 2,40$  эВ), см. рис. 3 и [21]. Поэтому взаимодействие между составляющими слоями МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se, приводящее к образованию соединений As-S-Se (у которых значения  $Eg_{opt} >$ , чем у слоев Se), приводит к смещению, показанному на рис. 3. Насыщение процесса взаимодействия демонстрирует, что образовался стабильный продукт взаимодействия слоев типа As-S-Se.

Показатели преломления n и поглощения  $\alpha$  слоев, а также оптическая ширина запрещенной зоны, вычисленные из спектров пропускания, показаны в таблице.

Как видно из таблицы, длина волны записи находится в области сильного поглощения как для MHC As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se, так и для As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> слоев, а длина волны измерения ДЭ 650 нм находится в области слабого поглощения. Малая мощность считывающего излучения (до 5 мВт) и измерение в темноте минимизировали другие фотостимулиоптической эффекты. Изменения рованные ширины запрещенной зоны  $\Delta Eg_{opt}$  под действием актиничной засветки ( $\lambda = 532$  нм, I = 4,3 BT/см<sup>2</sup>) равны по величине МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se и As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> слоев  $(\Delta Eg_{opt} = 0.06 \text{ эВ}),$  но различны по знаку и времени экспозиции. Столь существенное увеличение необходимой экспозиции (в 15 раз) до достижения насыщения фотопросветления МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se свидетельствует о различном механизме стимулированных изменений, происходящих в МНС по сравнению с As<sub>2</sub>S<sub>3</sub> слоем, что может подтвердить процесс интердиффузии слоев, предложенный Кикинеши в [41].

Для оценки влияния предварительной засветки на запись ДР была исследована кинетика изменения ДЭ в МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se при голографической записи в LCP:RCP поляризации. На рис. 4 показана эволюция ДЭ для необлученного образца (кривая 1) и предварительно облученных образцов в течение 15 (4000 Дж/см<sup>2</sup>) и 30 мин (8000 Дж/см<sup>2</sup>) (кривые 2 и 3 соответственно). Как видно, предварительное облучение до насыщения фотостимулированного просветления не влияет на величину максимально достижимой  $Д \ni \eta = 35\%$ , но время экспозиции до достижения максимума увеличивается 8.5 с МИН (2190 Дж/см<sup>2</sup>) до 10,5 (2700 Дж/см<sup>2</sup>) и 11 мин  $(2830 \, \text{Дж/см}^2)$  соответственно.

Таким образом, можно заключить, что в процессе поляризационной записи ДР влияние скалярных фотостимулированных превращений (в данном случае фотопросветления, сопровождающегося интердиффузией атомов нанослоев) незначительно и основную роль играет модуляция поляризации в интерференционной картине. Подобие И практическое совпадение кривых 1, 2, 3 на рис. 4 могут свидетельствовать в пользу того, что процесс формирования поверхностного рельефа при облучении МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se по свойствам эквивалентен продуктам взаимодействия в такой системе после ее облучения однородным светом. Как известно, теоретический предел ДЭ первого порядка для тонких синусоидальных решеток без учета поглощения в фоточувствительном слое и поверхностного отражения составляет 33,8%. Остальная энергия перераспределяется между нулевым и более высокими порядками. В нашем случае достигнутое значение ДЭ, равное 35% и незначительно превышающее теоретический передел значения ДЭ для синусоидальных решеток, может быть объяснено наличием только нулевого и первых порядков, где прошедшая энергия распределяется только между этими порядками.



Рис. 4. Кинетика изменения ДЭ в МНС  $As_2S_3$ -Se при голографической записи в LCP:RCP поляризации. 1 – необлученный образец; 2 и 3 – предварительно облученные образцы в течение 15 (4000 Дж/см<sup>2</sup>) и 30 мин (8000 Дж/см<sup>2</sup>).

Для исследования влияния однородной засветки на сформированную ДР один из интерферирующих лучей перекрывался прерывателем луча (Sh2 в схеме записи на рис. 1) после достижения максимального значения ДЭ. На рис. 5 показана кинетика изменения ДЭ при экспозиции МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se двумя лучами LCP:RCP поляризации достижения максимума до (на рис. 5 участок \*\* – два луча) и при дальнейшей экспозиции только одним лучом (участок \* – один луч) после перекрытия второго луча.



**Рис. 5.** Кинетика изменения ДЭ при экспозиции МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se двумя лучами LCP:RCP поляризации до достижения максимума (участок \*\* – два луча) и при дальнейшей экспозиции только одним лучом (участок \* – один луч).

Как видно из рис. 5, экспозиция одним лучом приводит к полному стиранию (до достижения ДЭ, равной 0%) записанной до максимума ДР. Время стирания примерно равно времени записи и составляет около 10 мин, но при этом экспозиция сокращена вдвое ввиду того, что интенсивность одного пучка вдвое меньше суммарной интенсивности двух пучков  $I_1 = I_2$ . Экспозиция для полного стирания решетки составила 1300 Дж/см<sup>2</sup> против значения экспозиции 2600 Дж/см<sup>2</sup>, необходимой для записи ДР до максимума.

Далее был проведен эксперимент по исследованию возможности реверсивной голографической записи ДР на многослойных структурах As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se. Для этого прерыватель луча Sh2 (в схеме записи на рис. 1) вновь был открыт, и участок с предварительно записанной до максимума ДР и стертой до нуля одним лучом (согласно рис. 5) вновь был проэкспонирован двумя лучами.

При достижении максимального значения ДЭ один из лучей был вновь перекрыт и экспонирование осуществлялось только одним лучом. На рис. 6 показана кинетика изменения ДЭ при циклической записи и стирании ДР (семь циклов).



Рис. 6. Кинетика изменения ДЭ при циклической записи и стирании ДР (семь циклов). Участки, обозначенные \*\*, соответствуют записи ДР при экспонировании двумя лучами, участки \* соответствует стиранию ДР при экспонировании одним лучом и «–» соответствует хранению ДР при перекрытии обоих лучей прерывателем Sh1 (на рис. 1).

Следует отметить, что ДЭ решеток при перекрытии двух лучей и хранении в темноте является постоянной величиной и не изменяется при комнатной температуре, как показано на рис. 6 (участки «-»). Измерение ДЭ решетки, записанной до максимума 35% и оставленной в темноте на сутки (24 часа) при комнатной температуре, показало постоянную величину, что свидетельствует о стабильности поверхностного рельефа во время хранения в темноте при комнатной температуре.

Таким образом, было показано, что на МНС  $As_2S_3$ -Se возможна реверсивная голографическая запись при ортогональной циркулярной поляризации LCP:RCP. При проведенных семи циклах записи-стирания кинетика роста ДЭ и ее максимальная величина существенно не изменились. Также показано, что полное стирание решетки возможно одним лучом с линейной вертикальной *s*-поляризацией. Предварительное исследование голографической записи при S:S поляризации (скалярный тип записи) в МНС  $As_2S_3$ -Se также показало реверсивный характер и будет опубликовано в другой работе.

Голографическая запись на предварительно облученных до насыщения образцах, а также реверсивный характер записи свидетельствуют о том, что при формировании решетки в ортогональной циркулярной поляризации LCP:RCP ни процессы фотоструктурных превращений, ни фотостимулированная интердиффузия слоев не участвуют. Можно предположить, что формирование ДР обусловлено фотостимулированным массопереносом, приводящим к формированию рельефного типа решетки.



**Рис. 7.** Изображение поверхностного рельефа и профиль ДР с ДЭ η = 33%, полученной после семи циклов записи-стирания на МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se.

Исследование поверхностного рельефа МНС  $As_2S_3$ -Se после многократной голографической записи проводили на атомно-силовом микроскопе Dimension 3100 в полуконтактном режиме. Топография поверхности ДР со значением ДЭ = 33% после семи циклов записи-стирания, а также профиль решетки показаны на рис. 7.

Как видно из рис. 7, ДР, записанная на МНС  $As_2S_3$ -Se, представляет собой рельефную структуру с синусоидальным профилем и глубиной рельефа порядка 210 нм. По-видимому, столь значительная глубина рельефа *h*, составляющая 12% толщины слоя, и определяет ДЭ записанных решеток. Как известно [42], ДЭ тонких фазовых синусоидальных решеток определяется из соотношения:  $n = J^2 \left(\frac{\pi}{2} \times (h \times (n-1))\right)$ , где  $J_1 - функ-$ 

ошения: 
$$\eta = J_1^2 \left( \frac{\kappa}{\lambda} \times (h \times (n-1)) \right)$$
, где  $J_1 - \phi$ унк-  
ия Бесселя первого рода:  $\lambda$  – длина волны изме-

ция Бесселя первого рода;  $\lambda$  – длина волны измерения ДЭ; h – глубина рельефа; n – показатель преломления среды решетки. Подставляя известные данные, можно показать, что теоретическое значение ДЭ для решетки глубиной 210 нм, записанной на МНС As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se, составляет порядка 31,5%, что хорошо согласуется с экспериментально измеренным значением ДЭ. Из этого можно заключить, что основным фактором, определяющим значение ДЭ записанных решеток, является модуляция рельефа.

## выводы

В настоящей работе была исследована реверсивность прямого формирования рельефных ДР в слоях МНС  $As_2S_3$ -Se с помощью поляризационной голографической записи. Было показано, что засветка МНС  $As_2S_3$ -Se актиничным светом приводит к фотопросветлению, в отличие от слоя  $As_2S_3$ , и требует намного большей экспозиции (в 15 раз). При этом предварительное облучение до насыщения фотостимулированного просветления не влияет на величину максимально достижимой ДЭ  $\eta = 35\%$ , но необходимая экспозиция до достижения максимума увеличивается с 2190 до 2830 Дж/см<sup>2</sup>. Также показано, что экспозиция одним лучом приводит к полному стиранию записанной до максимума ДР, причем экспозиция, требуемая для стирания, в два раза меньше экспозиции записи. Проведенные семь циклов записи-стирания показали, что кинетика роста ДЭ и ее максимальная величина не изменились, то есть, следовательно, на MHC  $As_2S_3$ -Se осуществима реверсивная голографическая запись при ортогональной циркулярной поляризации. Также доказана стабильность поверхностного рельефа при хранении записанных ДР в темноте при комнатной температуре. Исследование полученных решеток на АСМ свидетельствует, что основным фактором, определяющим значение ДЭ записанных решеток, является модуляция рельефа, глубина которого составляет более 200 нм, или 12% толщины слоя.

Автор выражает благодарность своему научному руководителю д-ру Елене Акимовой и д-ру Владимиру Абашкину за помощь при обсуждении результатов и подготовке работы и всему коллективу группы за консультации и помощь в проведении экспериментов.

Работа выполнена при поддержке проектов HO-LO-H2020-TWINN-2015 No 687328 и CSSDT 15.817.02.04A.

# ЛИТЕРАТУРА

- 1. Popescu M. J Optoelectron Adv M. 2005, 7, 2189–2210.
- Andriesh A.M. Physics and Applications of Non-Crystalline Semiconductors in Optoelectronics. Andriesh A., Bertolotti M. (eds). NATO ASI Series (3. High Technology), Dordrecht: Springer, 1997. vol. 36, 17–30.
- 3. Коломиец Б.Т., Любин В.М., Шило В.П. Физика и химия стекла, 1978, **4**(3), 351–357.

- Indutnyi I.Z., Stronski A.V., Kostioukevitch S.A., Schepeljavi P.E. et al. *Opt Eng.* 1995, 34(4), 1030–1039.
- Saito K., Utsugi Y., Yoshikawa A. J Appl Phys. 1988, 63, 565–567.
- Stronski A.V. Microelectronic Interconnections and Assembly. Netherlands, Dordrecht: Springer, 1998. 263–293.
- Pan W.J., Furniss D., Rowe H., Miller C.A. et al. J Non-Cryst Solids. 2007, 353, 1302–1306.
- Mizushima Y., Yoshikava A. Photoprocessing and lithographic applications. In: *Amorphous Semiconductors Technol. and Devices*. Hamakava Y. (Ed). OHM, Tokyo and North-Holland, Amsterdam, 1982, 277–295.
- Zenkin S.A., Mamedov S.B., Mikhailov M.D., Turkina E.Yu. et. al. *Glass Phys Chem+*, 1997, 23(5), 393–399.
- Жданов В.Г., Малиновский Ю.А. Письма в ЖТФ, 1977, 3(18), 943–946.
- Zhdanov V.G., Kolomiets B.T., Lyubin V.M., Malinovskii V.K. *Phys Status Solidi A*. 1979, **52**, 621–626.
- 12. Tanaka K. Science. 1997, 277, 1786–1787.
- 13. Kwak C.H., Kim J.T., Lee S.S. Opt Lett. 1988, 13, 437–439.
- Ozols A., Reinfelde M. J Opt A-Pure Appl Op. 2004, 6, S134–S141.
- 15. Saliminia A., Galstian T.V., Villeneuve A. *Phys Rev Lett.* 2000, **85**, 4112–4115.
- 16. Trunov M.L., Lytvyn P.M., Yannopoulos S.N., Szabo I.A. et al. *Appl Phys Lett.* 2011, **99**, 051906.
- 17. Trunov M.L., Lytvyn P.M., Nagy P.M., Dyachyns'ka O.M. Appl Phys Lett. 2010, 96, 111908.
- Gertners U., Teteris J. Advances in Optoelectronics. 2015, 2015, 917029.
- 19. Kikineshi A. J Optoelectron Adv Mat. 2001, **3**, 377–382.
- 20. Kikineshi A., Palyok V., Szabó I.A., Shipljak M. et al. *J Non-Cryst Solids*. 2003, **326-327**, 484–488.
- 21. Achimova E., Stronski A., Abashkin V., Meshalkin A. et al. *Opt Mater*. 2015, **47**, 566–572.
- 22. Achimova E. Surf Eng Appl Elect. 2016, **52**(5), 456–468.
- 23. Holomb R., Mitsa V., Petrachenkov O., Veres M. et al. *Phys Status Solidi C*. 2011, **8**, 2705–2708.
- 24. Igo T., Toyshima Y.A. J Non-Cryst Solids. 1973, 11, 304–308.
- Feinleib J., deNeufville J., Moss S.C., Ovshinsky S.R. *Appl Phys Lett.* 1971, 18, 254–257.
- 26. Crecmer P., Moulin A.M., Stephenson R.J., Rayment T. et al. *Science*. 1997, **277**, 1799–1802.
- 27. Гуревич С.Б., Иляшенко Н.Н., Коломиец Б.Т., Любин В.М. *ЖТФ*. 1973, **43**(1), 217–219.
- 28. Palanjyan K. Study of photoinduced anisotropy in chalcogenide Ge-As-S thin films. Doctoral

dissertation, Quebec, Canada, 2015, 169 p. Retrieved from www.theses.ulaval.ca/2015/31836/31836.pdf

- Elliott S.R., Tikhomirov V.K. J Non-Cryst Solids. 1996, 198, 669–674.
- Asatryan K.E., Frederick S., Galstian T., Vallee R. Appl Phys Lett. 2004, 84, 1626–1628.
- Lyubin V.M., Tikhomirov V.K. J Non-Cryst Solids. 1991, 135, 37–48.
- 32. Kryshenik V.M., Trunov M.L., Ivanitsky V.P. *J Optoelectron Adv M*. 2007, **9**, 1949–1964.
- 33. Asatryan K.E., Galstian T., Vallee R. *Phys Rev Lett.* 2005, **94**, 087401.
- Trunov M.L., Lytvyn P.M., Dyachyns'ka O.M. Appl Phys Lett. 2010, 97, 031905.
- 35. Abaskin V., Achimova E., Meshalkin A., Prisacar A. et al. *Surf Eng Appl Elect*. 2016, **52**(4), 380–386.
- 36. Stronski A., Achimova E., Paiuk O., Meshalkin A. et al. *Nanoscale Res Lett.* 2016, **11**(39), 1–7.
- 37. Swanepoel R. J Phys E Sci Instrum. 1983, 16, 1214–1222.
- 38. Tauc J., Grigorovici R., Vancu A. *Phys Status Solidi B*. 1966, **15**, 627–637.
- 39. Ganjoo A., Golovchak R. J Optoelectron Adv M. 2008, **10**, 1328–1332.
- 40. Cai L.Z., Yang X.L. Opt Laser Technol. 2002, 34, 671–674.
- 41. Adarsh K.V., Sangunni K.S., Shripathi T., Kokenyesi S. et al. *J Appl Phys.* 2006, **99**, 094301.
- 42. Goodman J.W. Introduction to Fourier Optics, 2nd ed., NY.: McGraw-Hill Inc, 1996, 81–83.

Поступила 16.02.17

## Summary

Polarization holographic recording of diffraction gratings and their subsequent erasing was investigated on As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se multilayer nanostructures. The influence of pre-exposure up to complete photo-induced changes of optical properties on diffraction gratings recording was studied. It was shown that pre-exposure of As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se multilayer nanostructure led to photo-bleaching and the maximum achievable diffractive efficiency equivalent to 35% did not change, but the required value of exposure was increased. Thus, we have shown that we are responsible for the use of a stylus to the maximum diffraction gratings. In addition it was shown that exposure by one laser beam led to complete erasure of recorded up to maximum diffraction grating. The performed 7 cycles of recording-erasing showed that the kinetics of the diffraction efficiency growth and its maximal value did not change that indicated that As<sub>2</sub>S<sub>3</sub>-Se multilayer structure is capable for reversible holographic recording in orthogonal circular polarizations. AFM measurements of recorded gratings showed that the main factor determining the diffraction efficiency value was surface relief modulation up to 200 nm.

Keywords: chalcogenide multilayer nanostructure, reversible holographic recording, direct surface relief formation, diffraction efficiency.