

© 1991

## ФОТОРЕФРАКЦИЯ И ФОТОДВУЛУЧЕПРЕЛОМЛЕНИЕ В ПЛЕНКАХ СТЕКЛООБРАЗНЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВ

*В. М. Любин, В. К. Тихомиров*

С помощью оригинальной методики, основанной на модуляции состояния поляризации излучения, проведено параллельное исследование явлений фоторефракции и фотодвулучепреломления в пленках стеклообразных полупроводников системы As—S. Показано различие механизмов возникновения этих явлений. Обнаружен и объяснен знакопеременный осциллирующий характер кинетики нарастания фотоиндуцированной анизотропии пропускания (ФАП) длинноволнового света. Предложены интерференционные способы усиления ФАП и контраста пропускания в облученной и необлученных областях пленок.

Пленки халькогенидных стеклообразных полупроводников (ХСП) обладают рядом необычных фотоиндуцированных явлений. К их числу, в частности, относятся фотоструктурные превращения [1, 2]. Известно, что фотоструктурные превращения сопровождаются явлением фоторефракции (ФР), т. е. фотостимулированным изменением показателя преломления. ФР обладает свойством термической реверсивности, а именно: при нагреве пленки до температуры размягчения  $T_g$  ФР исчезает, а при повторном облучении при комнатной температуре ФР снова возникает. В спектрах пропускания реверсивность ФР проявляется в реверсивном изменении положения интерференционных экстремумов. Перечисленные свойства позволяют использовать пленки ХСП в устройствах оптической обработки информации.

В работах [3, 4] сообщалось о том, что при облучении пленок ХСП линейно-поляризованным светом в них, кроме ФР, возникает также фотоиндуцированная анизотропия, и в частности фотоиндуцированное двулучепреломление (ФД). При этом предполагалось, что микроскопический механизм возникновения ФД такой же, как механизм возникновения ФР, и сводится к преимущественному воздействию линейно-поляризованного света на те ковалентные связи в пленке ХСП, которые сонаправлены с электрическим вектором этого света. Используемая в работах [3, 4] методика не позволила определить величину ФД и изучить кинетику его возникновения.

В настоящей работе с помощью оригинальной высокочувствительной методики проведено подробное параллельное исследование явлений ФР и ФД в пленках ХСП на примере системы As—S при варьировании состава и способа приготовления последних. Показано, что механизмы возникновения ФР и ФД существенно различны. Предложены оптические методы усиления фотоиндуцированной анизотропии пропускания (ФАП), а также усиления контраста пропускания в облученных и необлученных областях пленок ХСП. Предварительные результаты сообщались в работе [5].

# 1. Методика и установка для исследования ФД и ФР

В качестве объекта для исследования были выбраны пленки системы As—S, получаемые методами термического испарения в вакууме и высокочастотного ионно-плазменного распыления. Большинство исследований проведено на пленках стехиометрического состава  $As_2S_3$ , наиболее часто используемого экспериментаторами. Система As—S характеризуется большой положительной ФР [6]. Пленки эти удобны также тем, что при их исследовании можно пользоваться  $Ar^+$  ( $\lambda_1=488$ ,  $\lambda_2=515$  нм) и He—Ne ( $\lambda=633$  нм) лазерами, имеющими линейно-поляризованное излучение. Излучение  $Ar^+$  лазера попадает в спектральную область межзонных переходов системы As—S и было использовано в качестве индуцирующего как ФР, так и ФД. Излучение He—Ne лазера попадает в спектральную область прозрачности ( $\alpha \sim 1$  см $^{-1}$ ) и использовалось в качестве пробного излучения, позволяющего измерять ФР и ФД.

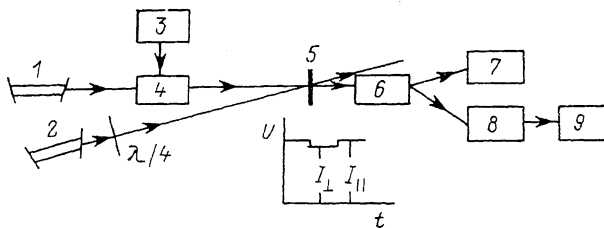


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки.

1 — He—Ne лазер, 2 —  $Ar^+$  лазер, 3 — генератор прямоугольных импульсов, 4 — электрооптический модулятор, 5 — пленка, 6 — фотоприемник, 7 — осциллограф, 8 — селективный усилитель, 9 — синхронный детектор.

Блок-схема использованной экспериментальной установки представлена на рис. 1. Эксперименты проводились по двухлучевой методике. Состояние поляризации  $E$  индуцирующего пучка  $Ar^+$  лазера задавалось с помощью пластинки  $\lambda/4$ . Пучок света He—Ne лазера 1, пропущенный через электрооптический модулятор 4, модулировался по поляризации, которая скачкообразно менялась от  $E_{\parallel} \parallel E$  до  $E_{\perp} \parallel E$  с частотой  $\nu \sim 1$  кГц, задаваемой генератором прямоугольных импульсов (ГПИ) 3. Такой пучок, пройдя через пленку, имеющую ФД, модулировался по интенсивности и попадал на фотоприемник 6, создавая электрический сигнал, подаваемый далее на осциллограф 7, синхронизованный от ГПИ, и на селективный усилитель 8, настроенный на частоту  $\nu$ . Типичная осциллограмма представлена на вставке к рис. 1. Здесь  $I_{\parallel}$ ,  $I_{\perp}$  — интенсивности пучков He—Ne лазера, прошедших через пленку и имеющих электрические векторы  $E_{\parallel}$ ,  $E_{\perp}$  соответственно. Постоянная составляющая сигнала  $I = (I_{\parallel} + I_{\perp})/2$ , регистрируемая осциллографом, несла информацию о пропускании пленки  $T = I/I_0$ , а переменная составляющая  $\Delta I = I_{\parallel} - I_{\perp}$ , содержащая информацию об анизотропии пропускания пленки  $T_{\parallel} - T_{\perp} = (I_{\parallel} - I_{\perp})/I_0$ , после усиления селективным усилителем детектировалась с помощью синхронного детектора 9. Здесь  $I_0$  — интенсивность пучка, падающего на пленку.

## 2. Экспериментальные результаты

На рис. 2 приведены временные характеристики изменения пропускания  $T(t)$  и ФАП ( $T_{\parallel} - T_{\perp}(t)$ ) на длине волны He—Ne лазера, типичные для свежеприготовленных пленок  $As_2S_3$  толщиной 2 (а) и 5 мкм (б).

Отметим характерные особенности этих зависимостей.

1) Кинетика ФАП носит осциллирующий знакопеременный характер, причем число осцилляций и их амплитуда увеличиваются с ростом толщины пленок  $h$ . Амплитуда осцилляций нарастает во времени и далее выходит на насыщение.

2) Кинетика пропускания также носит осциллирующий характер, причем осцилляции прекращаются одновременно с насыщением ФАП. Амплитуда осцилляций слабо нарастает со временем и не зависит от толщины пленок.

3) Экстремумы на кривых пропускания точно соответствуют нулевым значениям на кривых ФАП.

4) При увеличении плотности мощности  $Ar^+$  лазера число осцилляций на кривых пропускания и ФАП и их амплитуда не изменяются, но уменьшается время достижения экстремумов и выхода на насыщение.

Качественно отмеченные особенности можно понять, аппроксимируя пленку симметричным интерферометром Фабри—Перо и приняв, что про-

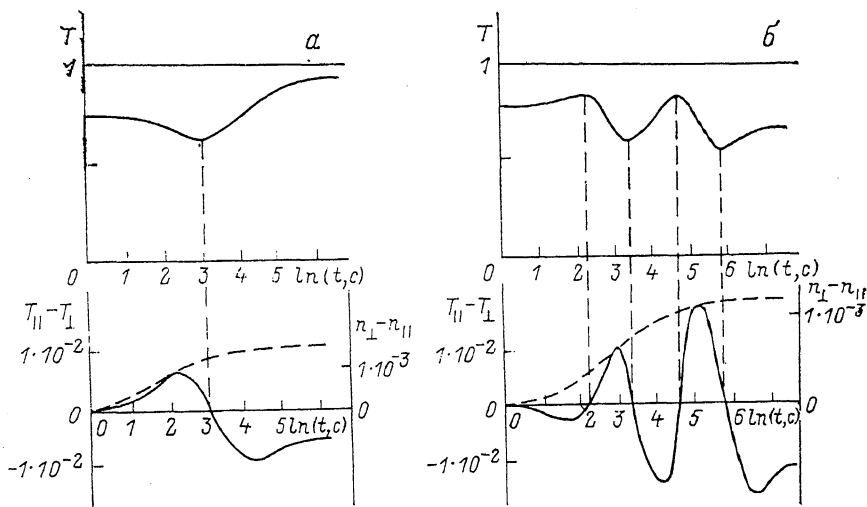


Рис. 2. Кинетика изменения пропускания и ФАП для пленок  $As_2S_3$  толщиной 2 (а) и 5 мкм (б).

Плотность мощности  $Ar^+$  лазера 30 мВт/см<sup>2</sup>.

пускание  $T$  в этом случае задается формулой Эри [7], имеющей при малых значениях коэффициента отражения  $R$  вид

$$T = 1 - 2R \left( 1 - \cos \frac{4\pi n h}{\lambda} \right), \quad (1)$$

где  $n$ ,  $h$  — показатель преломления и толщина пленки, соответственно,  $\lambda$  — длина волны He—Ne лазера.

В пленке, обладающей ФД, очевидно, пропускания  $T_{||}$  в поляризации  $E_{||}$  и  $T_{\perp}$  в поляризации  $E_{\perp}$  будут различны, т. е. возникнет ФАП.

Выражение для ФАП получается при подстановке в (1) значений показателя преломления  $n_{||}$  или  $n_{\perp}$  и коэффициента отражения  $R_{||}$  или  $R_{\perp}$

$$T_{||} - T_{\perp} = \frac{8\pi R_{||} h}{\lambda} (n_{\perp} - n_{||}) \left| \sin \frac{4\pi n h}{\lambda} + 4(R_{\perp} - R_{||}) \sin^2 \frac{2\pi n h}{\lambda} \right|. \quad (2)$$

При выводе (2) сделаны упрощения  $n_{||} + n_{\perp} \approx 2n$  и  $\sin [(2\pi h/\lambda)(n_{\perp} - n_{||})] = (2\pi h/\lambda)(n_{\perp} - n_{||})$  с учетом малости величины  $n_{\perp} - n_{||} \sim 10^{-3}$ . Выражая  $R_{||, \perp}$  через соответствующие показатели преломления по формуле для нормального падения  $R_{||, \perp} = [(n_{||, \perp} - 1)/(n_{||, \perp} + 1)]^2$ , соотношение (2) можно преобразовать к виду

$$T_{||} - T_{\perp} = \frac{8\pi R_{||} h}{\lambda} (n_{\perp} - n_{||}) \sin \frac{4\pi n h}{\lambda} + \frac{16(n^2 - 1)}{(n + 1)^4} (n_{\perp} - n_{||}) \sin^2 \frac{2\pi n h}{\lambda}. \quad (3)$$

Принимая для  $As_2S_3$  значение  $n=2.5$  [6], получаем  $8\pi R h/\lambda \approx 50$  и  $16(n^2-1)/(n+1)^4 \approx 0.5$ . Легко видеть, что ФАП определяется в основном первым слагаемым формулы (3) и может быть выражено как

$$T_{\perp} - T_{\parallel} = \frac{8\pi R h}{\lambda} (n_{\perp} - n_{\parallel}) \sin \frac{4\pi n h}{\lambda}. \quad (4)$$

Анализ формул (1) и (4) позволяет понять все представленные на рис. 2, а, б особенности. Осцилляции  $T(t)$  обусловлены, как видно из (1), фотоиндуцированным нарастанием  $n$  во времени, причем стабилизация величины  $T(t)$  соответствует насыщению ФР. При одинаковом изменении  $n$  число осцилляций должно нарастать с увеличением толщины пленки, а амплитуда осцилляций не должна зависеть от толщины пленки, так как она определяется величиной  $T=1-2R$ .

Осциллирующий знакопеременный характер ФАП вызывается, как видно из (4), одновременным проявлением двух фотоиндуцированных процессов: увеличением ФР и нарастанием ФД. Очевидно, что при одинаковом изменении  $n$  с ростом  $h$  должны нарастать число осцилляций, а также амплитуда осцилляций, что соответствует эксперименту. Экстремумам кривой

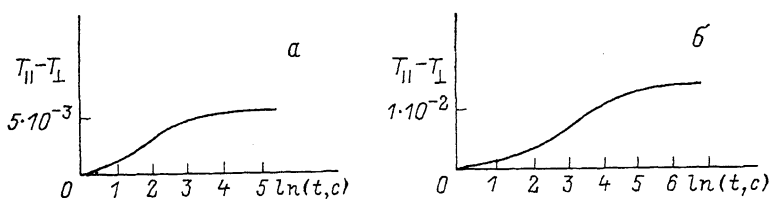


Рис. 3. Кинетика ФАП в пленках  $As_2S_3$  толщиной 2 (а) и 5 мкм (б), предварительно облученных до насыщения ФР циркулярно-поляризованным светом.

$(T_{\parallel} - T_{\perp})(t)$  соответствует  $\sin(4\pi n h/\lambda) = \pm 1$ , и, значит, огибающая этой кривой (штриховая линия на рис. 2) характеризует кинетику нарастания ФД, которая является монотонной. Нулям на кривой ФАП соответствуют значения  $\sin(4\pi n h/\lambda) = 0$ , в эти же моменты времени  $\cos(4\pi n h/\lambda) = \pm 1$ , т. е. на кривой пропускания должны наблюдаться экстремумы, что и наблюдается на опыте.

При увеличении мощности индуцирующего излучения изменения  $n$  и  $n_{\perp} - n_{\parallel}$  происходят на такую же величину, что и при меньшей мощности, но более быстро, чему соответствуют наблюдавшиеся изменения в кинетике изменения пропускания и ФАП.

Из рис. 2 видно, что даже после выхода ФД в насыщение (штриховая линия) ФАП продолжает еще осциллировать, что говорит о дальнейшем нарастании  $n$ . Стабилизация же ФАП, которая, очевидно, соответствует насыщению ФР, достигается позднее, чем насыщение ФД. Этот факт наводит на мысль о взаимонезависимости явлений ФД и ФР.

Суммируя изложенные выше результаты, можно говорить о двух существенных выводах: 1) немонотонная кинетика ФАП обусловлена одновременным монотонным нарастанием ФР и ФД и многолучевой интерференцией в пленке ХСП света с  $\lambda = 0.63$  мкм; 2) механизмы явлений ФР и ФД различны. Эти выводы подтвердились в ряде других экспериментов, излагаемых далее.

1. Свежеприготовленные пленки облучались циркулярно-поляризованным излучением  $Ag^+$  лазера до стабилизации пропускания, т. е. до насыщения ФР. При этом ФАП не возникла.

После этого пленки облучались линейно-поляризованным излучением  $Ag^+$  лазера, что приводило к возникновению ФАП, кинетика нарастания которой монотонна (рис. 3). Этот эксперимент также свидетельствует о различии механизмов ФР и ФД, поскольку ФД появляется даже в условиях насыщения ФР.

II. На рис. 4 представлена кинетика ФАП в предварительно облученной циркулярно-поляризованным излучением до насыщения ФР пленке  $As_2S_3$  толщиной 5 мкм при поочередном изменении состояния поляризации  $Ar^+$  лазера. На рис. 4, а значок 1 символизирует облучение линейно-поляризованным, а значок 2 — циркулярно-поляризованным излучением.

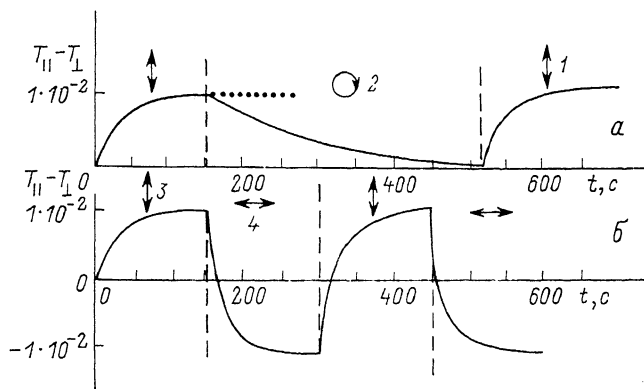


Рис. 4. Кинетика ФАП при изменении поляризации индуцирующего пучка света.

Точками показано, какой вид имела кинетика ФАП при непрерывном облучении линейно-поляризованным излучением. Видно, что циркулярно-поляризованное излучение уничтожает ФАП, т. е. разрушает ФД, создаваемое линейно-поляризованным излучением.

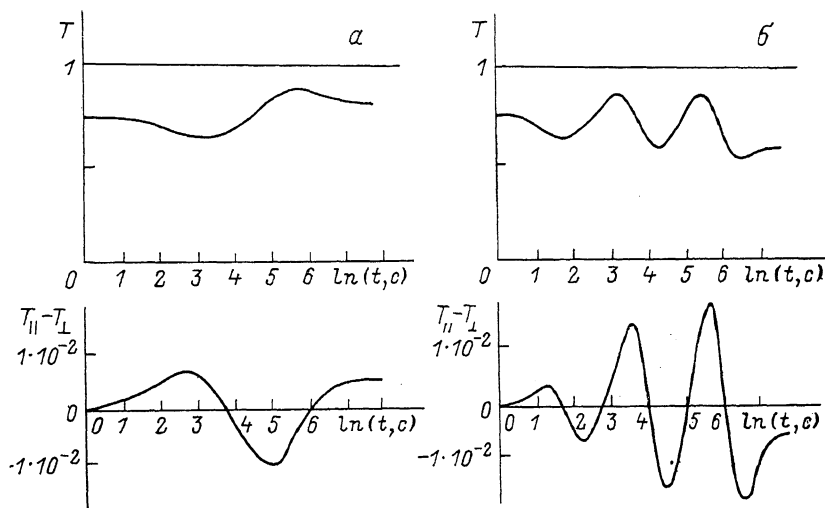


Рис. 5. Кинетика изменения пропускания и ФАП для пленок  $As_xS_{1-x}$  при  $x=0.30$  (а) и  $0.45$  (б).

Плотность мощности  $Ar^+$  лазера  $30 \text{ мВт/см}^2$ , толщина пленок 5 мкм.

На рис. 4, б значки 3 и 4 символизируют облучение линейно-поляризованным излучением со взаимно ортогональными направлениями электрического вектора. Видно, что облучение ортогонально линейно-поляризованным излучением сначала уничтожает ФД, а далее приводит к обращению знака ФД. Отметим высокую цикличность процессов (рис. 4, а, б); укажем также, что эти процессы протекают в условиях насыщения ФР, что дополнительно свидетельствует о различии природы явлений ФД и ФР.

III. Исследовались свежеприготовленные пленки системы  $As_xS_{1-x}$  при изменении  $x$  от 0.45 до 0.15. Известно, что при уменьшении  $x$  в составе

$As_xS_{1-x}$  эффект ФР значительно ослабляется [6]. Действительно, мы наблюдали свидетельствующее об ослаблении эффекта ФР уменьшение числа осцилляций на кривых  $T(t)$  и  $(T_{\perp} - T_{\parallel})(t)$  с уменьшением  $x$  при одинаковой толщине пленок в соответствии с (1) и (4) (рис. 5).

На рис. 6 представлена зависимость эффектов ФР и ФД от  $x$ . Видно, что в отличие от эффекта ФР, сильно зависящего от содержания As, эффект ФД слабо чувствителен к содержанию As, что также позволяет говорить о различии природы этих эффектов.

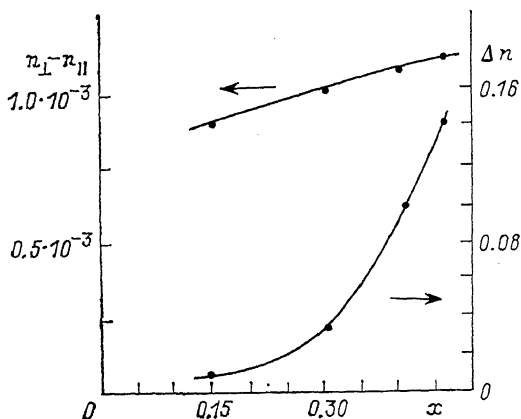


Рис. 6. Зависимость эффектов ФР и ФД от  $x$ . Толщина пленок 5 мкм.

Сильная зависимость ФР от содержания мышьяка свидетельствует о том, что этот эффект определяется количеством химических связей мышьяк—халькоген. Слабое же влияние содержания мышьяка на ЛФД позволяет считать, что этот эффект определяется не количеством связей мышьяк—халькоген, а особенностями самого атома халькогена и в частности его неподеленной электронной парой. Особая роль неподеленной пары халькогена в формировании свойств ХСП отмечалась еще в [8].

IV. О различии механизмов ФР и ФД свидетельствует и тот факт, что ФД и ФР обнаружили разную чувствительность к методике приготовления образцов. В частности, в пленках  $As_2S_3$ , приготовленных методом ионно-плазменного высокочастотного распыления, а также в так называемых «свободных» пленках  $As_2S_3$  мы обнаружили сильное уменьшение эффекта ФР (а также сопутствующего ему эффекта фотопотемнения) по сравнению с пленками  $As_2S_3$ , приготовленными методом термического испарения и нанесенными на подложки. В то же время эффект ФД был практически одинаков в пленках, приготовленных разными методами.

### 3. Интерференционные методы усиления ФАП и контраста пропускания

Как было показано выше, ФАП имеет довольно малые значения  $\sim 10^{-3} - 10^{-2}$  и менее, что вызывает экспериментальные трудности при измерении, а также накладывает ограничения на практическое использование этого явления. По этой причине мы использовали метод усиления ФАП, физическая сущность которого основана на явлении многолучевой интерференции в тонкой пленке.

Анализируя формулу (4), можно видеть, что ФАП должна нарастать при увеличении коэффициента отражения  $R$ . Для увеличения  $R$  можно использовать материалы с большими показателями преломления либо попытаться увеличить  $R$  каким-то искусственным путем, например помещая пленку между полупрозрачными зеркалами. Вспомним, однако, что формула (4) была получена на основании формулы (1), справедливой только при малых  $R$ . Для больших  $R$  следует воспользоваться полной формулой Эри [7, 9], имеющей вид

$$T = \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \sin^2 \frac{2\pi nh}{\lambda}} \quad (5)$$

Графики этой функции для разных значений  $R$  представлены на рис. 7. Величина  $T$  приобретает максимальные значения при  $\sin(2\pi nh/\lambda) = 0$ ,

т. е. при  $2\pi nh/\lambda = m\pi$ , где  $m$  — любое целое число, определяющее порядок интерференции.

Переходя к задаче усиления ФАП, отметим, что значениям показателя преломления  $n_{\parallel}$  и  $n_{\perp}$  будут соответствовать различные величины пропускания на рис. 7. При малых  $R$  это различие всегда невелико, однако при  $R \rightarrow 1$  оно резко нарастает, особенно в тех случаях, когда  $n_{\parallel}$  и  $n_{\perp}$  в результате фотоиндуцированного процесса приобретают значение вблизи резко нарастающих участков функции Эри (как это указано на рис. 7). Таким образом, при увеличении  $R$  может быть реализовано усиление ФАП.

Очевидно, что подобным же способом, за счет увеличения  $R$ , можно

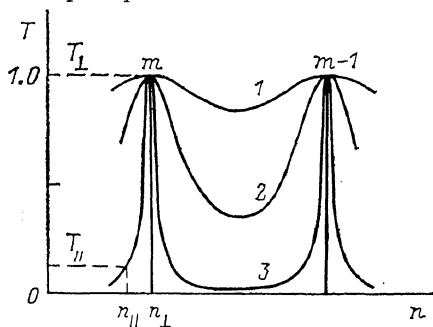


Рис. 7. Зависимость пропускания от показателя преломления при  $R=0.05$  (1),  $0.25$  (2),  $0.75$  (3).

существенно усилить контраст пропускания света в необлученной и облученной областях пленки, имеющих различные показатели преломления  $n_{\parallel}$  и  $n_{\perp}$  вследствие эффекта ФР.

Такое усиление ФАП и контраста пропускания было нами реализовано в конструкции, схематически изображенной на рис. 8, а. На стеклянную подложку напылялся полупрозрачный слой алюминия, затем — слой  $As_2S_3$  толщиной 5 мкм и затем — снова полупрозрачный слой алюминия. Удалось достичь усиления ФАП в 20 раз, а также усиления контраста пропускания света He—Ne лазера в облученных и необлученных светом  $Ar^+$  лазера участках пленки  $As_2S_3$  в 50 раз.

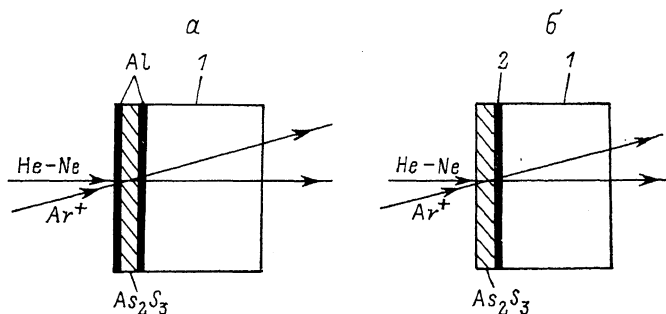


Рис. 8. Конструкции для интерференционного усиления ФАП и контраста пропускания.

1 — подложка, 2 — диэлектрическое зеркало.

Усиление наблюдалось также в конструкции, изображенной на рис. 8, б. В этом случае пленка  $As_2S_3$  напылялась на подложку, представляющую собой промышленный образец переднего зеркала He—Ne лазера.

В такой конструкции  $R$  увеличивается только на границе пленки с подложкой, вследствие чего выигрыш в усилении был меньшим. Удалось получить усиление ФАП в 3 раза и контраста пропускания в 4 раза.

Приведенные в настоящей статье экспериментальные результаты демонстрируют ряд особенностей явления ФД в пленках ХСП, и в частности особенностей кинетики изменения, вызванной этим явлением анизотропии пропускания длинноволнового излучения. Сравнительное изучение ФД и ФР, которое стало возможным благодаря применению оригинальной методики исследования, показало существенное различие этих двух явлений, обусловленное, по-видимому, различием их микроскопических ме-

ханизмов. Механизм ФР отождествляется с разрывом межатомных ковалентных связей в ХСП и рождением большого количества фотоиндуцированных дефектов [1<sup>0</sup>]. Механизм ФД следует, по нашему мнению, в отличие от ФР связывать с ориентацией собственных, так называемых «нативных» дефектов ХСП, природа которых ранее неоднократно обсуждалась в литературе [11-16]. Химические связи, участвующие в образовании этих дефектов, не являются ковалентными и обладают меньшей энергией.

Явление ФР в пленках ХСП уже используется в устройствах записи оптической информации. Явление же ФД пока не получило широкого практического применения. Очевидным преимуществом ФД является его высокая оптическая реверсивность, т. е. возможность многократного создания, разрушения и обращения при изменении поляризации индуцирующего излучения. Особенно перспективным является использование ФД, благодаря тому, что оно возникает в спектральной области прозрачности пленки ХСП. В этом случае, как и в случае использования ФР, считывающий пучок света не будет искажать записанную информацию и считывание может быть осуществлено многократно. В частности, явление ФД в пленках ХСП может найти применение в векторной голографии [17].

Возможности практического применения как ФД, так и ФР могут быть также расширены при использовании рассмотренных в настоящей статье методов интерференционного усиления ФАП и контраста пропускания.

#### С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Tanaka K. // J. Non-Cryst. 1980. V. 35—36. P. 1023—1029.
- [2] Любин В. М. // Автометрия. 1988. Т. 4. С. 18—29.
- [3] Жданов В. Г., Малиновский В. К. // Письма в ЖТФ. 1977. Т. 3. № 18. С. 943—946.
- [7] Zhdanov V. G., Kolomiets B. T., Lyubin V. M., Malinovskii V. K. // Phys. St. Sol. (a). 1979. V. 52. P. 621—629.
- [5] Любин В. М., Тихомиров В. К. // Письма в ЖТФ. 1989. Т. 15. № 20. С. 44—44.
- [6] Звонарёва Т. К., Коломиец Б. Т., Любин В. М., Фёдоров В. А. // ЖТФ. Т. 48. № 5. С. 1024—1028.
- [7] Сивухин Д. В. Общий курс физики. Оптика. М.: Наука, 1980. § 36.
- [8] Kastner M. // Phys. Rev. Lett. 1972. V. 28. P. 355—359.
- [9] Зайдель А. Н., Островский Ю. А. Техника и практика спектроскопии. М.: Наука, 1976.
- [10] Лихолит И. Л., Любин В. М., Мастеров В. Н., Фёдоров В. А. // ФТТ. 1984. Т. 26. № 1. С. 172—181.
- [11] Anderson P. W. // Phys. Rev. Lett. 1975. V. 34. P. 953—958.
- [12] Street R. A., Mott N. F. // Phys. Rev. Lett. 1975. V. 35. P. 1293—1298.
- [13] Kastner M., Adler D., Fritzsche H. // Phys. Rev. Lett. 1976. V. 37. P. 1504—1519.
- [14] Попов Н. А. // Письма в ЖЭТФ. 1980. Т. 31. С. 437—441.
- [15] Dembovsky S. A., Chechetkina E. A. // J. Non-Cryst. Sol. 1986. V. 85. P. 346—359.
- [16] Klinger M. I. // Phys. Rep. 1988. V. 165. N 5—6. P. 275—428.
- [17] Какячавили Ш. Д. // Поляризационная голография. Л.: Наука, 1989.

Физико-технический институт  
им. А. Ф. Иоффе  
Ленинград

Поступило в Редакцию  
15 января 1991 г.