

УДК 621.373 : 535.421

**ДИФРАКЦИОННАЯ РЕШЕТКА,
ИНДУЦИРОВАННАЯ ПОЛЯРИЗОВАННЫМ СВЕТОМ
В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ Ag—AgCl**

Агееев Л. А., Милославский В. К.

Исследованы оптические явления, возникающие при длительном облучении линейно-поляризованным излучением лазера ($\lambda_0=633$ нм) двухслойных пленок Ag—AgCl, состоящих из слоя AgCl толщиной 50—275 нм и тонкого (~ 10 нм) слоя Ag. В спектре пропускания образцов, облученных при нормальном падении лазерного пучка, появляется спектральный провал при $\lambda=625$ нм, глубина которого зависит от поляризации измерительного пучка и толщины h . Одновременно на поверхности пленки образуется дифракционная решетка, штрихи которой расположены параллельно электрическому вектору E_0 лазерного пучка и состоят из мелких гранул Ag. Обнаружена связь дифракционной решетки с наблюдаемыми провалами в спектре пропускания и с возбуждением поверхностной TE_0 -моды в пленке AgCl. Зависимость периода решетки $d(h)$, найденная экспериментально, хорошо согласуется с вычисленной из условий фазового синхронизма и попечечного резонанса для TE_0 -моды. Обсуждается механизм формирования решетки.

Как показано в [^{1, 2}], тонкопленочная система Ag—AgCl является удобным модельным объектом для изучения природы фотографических эффектов Гершеля и Вейгерта. Для этой цели в [^{1, 2}] применялись тонкие гранулярные пленки Ag, покрытие слоем AgCl толщиной $h=20\div 30$ нм. Обнаружено, однако, что увеличение толщины слоя AgCl качественно изменяет характер фотоиндущированного дихроизма в системе Ag—AgCl [³]: в спектрах пропускания двухслойных пленок Ag—AgCl при $h=100\div 300$ нм и длительном облучении линейно-поляризованным монохроматическим излучением возникают поляризованные спектральные провалы, максимум которых близок к длине волны облучающего света λ_0 , а глубина наибольшая при $E \parallel E_0$, где E — вектор поляризации измерительного, E_0 — индуцирующего пучка. Спектральные провалы, как показано в [³], имеют интерференционное происхождение. Дальнейшее изучение фотоструктурных превращений в двухслойной системе Ag—AgCl показало, что длительное облучение линейно-поляризованным светом приводит также к формированию на поверхности AgCl дифракционной решетки со штрихами, расположенными параллельно E_0 , и с периодом $d < \lambda_0$.

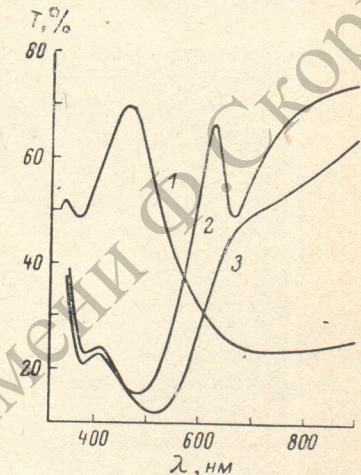
Исследованные в настоящей работе образцы представляли собой двухслойник, состоящий из тонкого слоя серебра (толщиной $15\div 20$ нм) и слоя AgCl, толщина которого варьировалась в пределах $60\div 200$ нм. Двухслойник готовился обычным напылением в вакууме на стеклянные подложки при комнатной температуре. Как показали эксперименты, расположение слоев AgCl и Ag относительно подложки не играет существенной роли в формировании решетки. Образцы подвергались облучению линейно-поляризованным светом гелий-неонового лазера ЛГ-79 ($\lambda_0=633$ нм, номинальная мощность 8 мВт, одномодовый режим) при нормальном падении пучка. Время экспозиции для получения решетки зависит от толщины серебра, от плотности лазерного пучка и изменяется от ~ 10 мин до нескольких часов. В результате облучения в образце, обладавшем ранее металлическим блеском, «выжигается» сравнительно прозрачное и поляризованное пятно диаметром ~ 3 мм. Спектральные характеристики образца до и после облучения показаны на рис. 1. Необлученный образец имеет в красной части спектра сравнительно низкое пропускание, обусловленное поглощением в сплошном слое серебра и интерференцией света

в двухслойной системе Ag—AgCl (кривая 1). После облучения пропускание в длинноволновой части спектра возрастает, а в сине-зеленой области падает за счет фотоиндущированного рассасывания сплошного слоя серебра в гранулярное серебро, полоса поглощения которого расположена при $\lambda=480-510$ нм. Полоса поглощения гранулярного серебра поляризована: $\lambda_m=480$ нм при $E \parallel E_0$ и $\lambda_m=510$ нм при $E \perp E_0$, что характерно для ранее изученного поперечного эффекта Вейгера [1, 2]. Кроме того, в спектре пропускания облученного участка при $E \parallel E_0$ наблюдается глубокий спектральный провал с максимумом при $\lambda=625$ нм, несколько смещенным в коротковолновую часть спектра относительно λ_0 .

Наряду с провалом в спектре на поверхности образца образуется дифракционная решетка, штрихи которой вытянуты вдоль E_0 . Первый главный максимум решетки наблюдается в отраженном и прошедшем свете при больших углах падения и дифракции, при этом дифрагированные пучки направлены в сторону падающего. Решетка обладает значительной дифракционной эффективностью в p -поляризованном свете (вектор E перпендикулярен штрихам) при ее облучении белым светом; в s -поляризации дифракционная эффективность мала. Имеется ряд доказательств образования решетки на внешней поверхности: дифракция света сохраняется и имеет высокую эффективность при нанесении на поверхность сравнительного толстого непрозрачного слоя серебра; если покрыть поверхность образца тонкой угольной пленкой и затем удалить в фиксаже пленку

Рис. 1. Спектральная зависимость пропускания пленки AgCl—Ag ($h_{\text{AgCl}}=130$ нм, $h_{\text{Ag}}=18$ нм).

1 — до облучения; 2, 3 — после облучения линейно-поляризованным светом ($\lambda_0=633$ нм); измерения в поляризации $E \parallel E_0$ и $E \perp E_0$ соответственно.



хлористого серебра, то решетка останется на угольной пленке, будет иметь тот же период и может быть изучена под электронным микроскопом. Микрофотография дифракционной решетки (рис. 2), полученная для образца с $h=160$ нм, указывает на регулярное расположение штрихов решетки с направлением, параллельным E_0 , и периодом $d \sim 360$ нм. Штрихи решетки состоят из гранул серебра различного размера (примерно от 10 до 80 нм). В штрихах и в промежутках между ними мелкие гранулы обнаруживают тенденцию к образованию коротких цепочек, ориентированных преимущественно перпендикулярно штрихам. С этой ориентацией цепочек связан поперечный эффект Вейгера, изученный ранее в Ag—AgCl [1, 2].

Период дифракционной решетки находится более точно, чем на микрофотографии, при измерении углов падения φ' и дифракции φ' в отраженном свете с помощью условия наблюдения главного максимума

$$d(\sin \varphi + \sin \varphi') = \lambda.$$

Практически удобно измерять угол φ^* , при котором падающий и дифрагированный пучки направлены навстречу ($\varphi^*=\varphi=\varphi'$). Измерения проведены для образцов с разной толщиной h пленок AgCl при освещении решетки пучком света с длиной волны λ_0 . Зависимость d от h показана на рис. 3, из которого видно, что в пределах толщины от 65 до 200 нм наблюдается уменьшение периода от 410 до 345 нм. Толщина пленок AgCl определялась интерферометрическим методом линий равногого хроматического порядка [4].

Следует подчеркнуть, что описываемая решетка, хотя и близка по свойствам к голограммической (период, дифракционная эффективность), однако отличается от последней по способу получения. Если обычный метод получения голограммической решетки с малым периодом основан на интерференции двух неполяризованных пучков, сходящихся под большим углом ($\delta\varphi \approx 90^\circ$), то в на-

стоящем случае решетка возникает под действием одного светового пучка, падающего нормально на образец, и формирование решетки чувствительно к состоянию поляризации падающего излучения.

Все сказанное, а также зависимость $d(h)$ заставляют предположить, что возникновение решетки связано с возбуждением поверхностных (волноводных) мод в пленке AgCl: дифракционная решетка в процессе облучения формируется таким образом, что ее период подстраивается под возбуждение определенной моды в диэлектрической пленке. Если так, то должно выполняться условие фазового синхронизма, которое при нормальном падении света на решетку (геометрия облучения) имеет вид [5]

$$kn \sin \chi = \frac{2\pi}{d},$$

где χ — угол, под которым распространяется плоская однородная волна при полном внутреннем отражении; n — показатель преломления пленки; k —

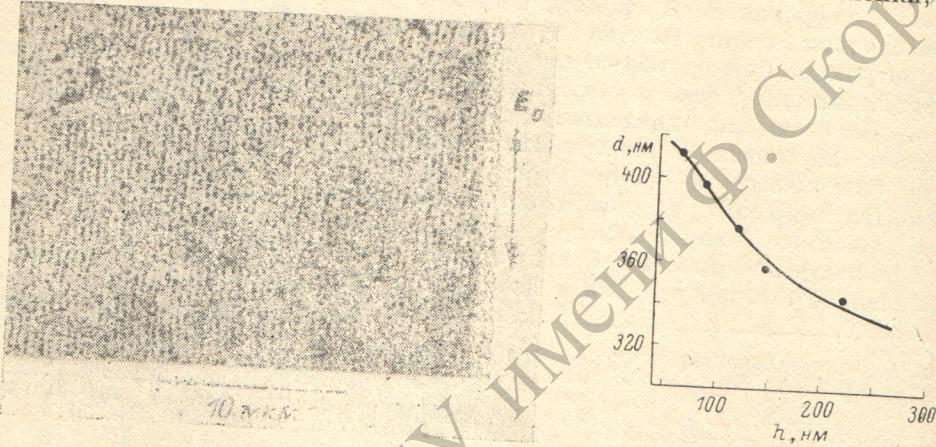


Рис. 2. Электронно-микроскопический снимок дифракционной решетки.

Рис. 3. Зависимость периода d дифракционной решетки от толщины h пленки AgCl. Сплошная кривая — расчет по (1), (2); точки — экспериментальные измерения.

$=2\pi/\lambda$. С другой стороны, угол χ может быть найден для пленки определенной толщины h из условия поперечного резонанса

$$kh \cos \chi + \psi_1 + \psi_2 = m\pi, \quad (2)$$

где индекс моды $m=0, 1, 2, 3, \dots$; ψ_1 и ψ_2 — фазовые сдвиги при полном внутреннем отражении на границе воздух—пленка и пленка—подложка. Так как вектор E_0 параллелен штрихам решетки, то в пленке возбуждаются TE_m -моды. В этом случае

$$\psi_{1,2} = -\arctg \frac{\sqrt{n^2 \sin^2 \chi - n_{1,2}^2}}{n \cos \chi},$$

где n_1 и n_2 — показатели преломления воздуха и подложки.

Из (1) и (2) следует возбуждение поверхностных мод при условии $kn_2 \leqslant 2\pi/d \leqslant kn$, что для $\lambda_0=633$ нм, $n=2.06$ и $n_2=1.52$ дает диапазон параметров решетки d от 418 до 307 нм, в который укладываются значения d , найденные экспериментально. Диапазон толщин h , в котором возможно возбуждение поверхностных мод, определяется условием отсечки ($\psi_2=0$), из которого следует минимальное значение $h=49$ нм. С другой стороны, при больших h возможно возбуждение нескольких поверхностных мод с различными индексами m , что создает неопределенность в подстройке параметра решетки. В связи с этим для эксперимента был выбран диапазон h , в котором возбуждается только TE_0 -мода. В этом случае, как следует из (2), $49 \text{ нм} \leqslant h \leqslant 275 \text{ нм}$. Формулы (1) и

(2) позволяют рассчитать зависимость d (h) при известных показателях преломления пленки и подложки и заданном значении k . Расчетная кривая, как видно из рис. 3, хорошо согласуется с экспериментальной зависимостью.

Возникает вопрос, каким образом формируется дифракционная решетка, период которой точно согласуется с условием фазового синхронизма? В процессе облучения двухслойной системы Ag—AgCl возникают фотоструктурные превращения, в результате которых сплошная исходная пленка серебра распадается на отдельные гранулы, о чем свидетельствуют спектры облученной пленки (рис. 1) и микрофотографии (рис. 2). При этом в образце возникает значительное рассеяние лазерного пучка. Часть рассеянного излучения выходит за пределы пленки в виде излучательных мод и мод подложки и не играет существенной роли в последующих процессах. Однако некоторая доля рассеянного излучения распространяется вдоль пленки AgCl в виде поверхностной моды с постоянной распространения $kn \sin \chi$. Так как вектор E_0 параллелен поверхности пленки, по-видимому, в рассеянном излучении преобладают TE-моды, распространяющиеся в направлении, перпендикулярном E_0 и волновому вектору k падающей волны. Если предположить когерентность падающей и рассеянной волн в TE-моде, то возникнет пространственная интерференционная картина, расположение плоскостей в которой легко рассчитать, учитывая, что поле падающей волны в пленке $E_1 = E_{01} \exp i(\omega t - knz)$ и поверхностной моды $E_2 = E_{02}(z) \exp i(\omega t - kn \sin \chi z)$, где ось z нормальна к поверхности образца, ось x направлена вдоль поверхности, E_1 и $E_2 \parallel y$. Условие максимума интерференции

$$kn \sin \chi x - knz = 2l\pi$$

(l — целое число) задает систему эквидистантных, параллельных оси y и между собой плоскостей, наклоненных к поверхности образца под углом $\alpha = \arctg \sin \chi$. При расчете интерференционной картины мы пренебрегли постоянным фазовым сдвигом между двумя волнами. Периодическое распределение максимумов вдоль пленки задает периодическое распределение гранул Ag в процессе фотоструктурных превращений. По-видимому, гранулы выделяются главным образом в интерференционных минимумах. Соответствующий период вдоль оси x равен расстоянию между точками пересечения соседних плоскостей осью x

$$\Delta x = x_{l+1} - x_l = \frac{2\pi}{kn \sin \chi}$$

и отвечает условию фазового синхронизма (1). Если учесть зарядовое состояние поверхности AgCl (положительный поверхностный заряд [⁶]), то гранулы серебра выделяются в основном на поверхности образца в районе интерференционных минимумов. По всей видимости, начальное формирование периодической структуры с периодом Δx способствует из-за выполнения (1) усилиению поверхностной моды, что влечет за собой увеличение видности интерференционной картины и т. д. Другими словами, формирование дифракционной решетки является необратимым процессом с положительной обратной связью.

Существует ряд фактов, указывающих на связь спектральных провалов (рис. 1) с дифракционной решеткой: спектральные провалы возникают в процессе формирования решетки, поляризованы, глубина провала зависит от толщины пленки AgCl, она наибольшая при $h \approx 160$ нм и ослабевает при уменьшении h до полного исчезновения при $h < 40$ нм. Таким образом, спектральный провал отражает спектральные свойства нулевого прошедшего пучка при дифракции падающей волны на решетке с возбуждением поверхностной моды. Однако ряд наблюдений указывает на существование дополнительных факторов, обуславливающих спектральные провалы. Провалы также образуются в неполяризованном свете [³] и при облучении монохроматическим светом массивных образцов [⁷]. Спектральное положение провала несколько отличается от длины волны индуцирующего излучения. Все это говорит о сложном происхождении спектральных провалов в спектре пропускания облученных образцов и о необходимости их дальнейшего изучения.

Литература

- [1] Агеев Л. А., Милославский В. К. — Опт. и спектр., 1978, т. 45, в. 3, с. 537.
- [2] Агеев Л. А., Милославский В. К. — Укр. физ. журн., 1979, т. 24, с. 340.
- [3] Агеев Л. А., Милославский В. К. — ЖТФ, 1980, т. 6, с. 1160.
- [4] Физика тонких пленок / Под ред. Г. Хасса и Р. Э. Туна. М., 1970, с. 42.
- [5] Интегральная оптика / Под ред. Т. Тамира. М., 1978, с. 106.
- [6] Fatuzzo E., Coppo S. — J. Appl. Phys., 1972, v. 43, p. 1467.
- [7] Wainfan N. — Phys. Rev., 1957, v. 105, p. 100; Безруков В. М., Бодягин В. И., Шаталов А. А. — ФТТ, 1970, т. 12, с. 1092.

Поступило в Редакцию 21 декабря 1982 г.