



LATVIJAS
UNIVERSITĀTE
ANNO 1919

EIROPAS SAVIENĪBA

IEGULDĪJUMS TAVĀ NĀKOTNĒ

LATVIJAS UNIVERSITĀTE

Fizikas un matemātikas fakultāte

Cietvielu fizikas institūts

UĢIS GERTNERS

Fizikas, astronomijas un mehānikas doktora studiju programmas students

Promocijas darbs

**AMORFO HALKOGENĪDU VIRSMAS FOTO
INDUCĒTĀ MODULĀCIJA**

Zinātniskais vadītājs:
Dr.phys. Jānis Teteris

Rīga 2015

Promocijas darbs izstrādāts Latvijas Universitātes Cietvielu fizikas institūtā laika posmā no 2010. gada līdz 2014. gadam.



**LATVIJAS
UNIVERSITĀTE**
ANNO 1919

Darbs izstrādāts ar Eiropas Sociālā fonda atbalstu projektā „Atbalsts doktora studijām Latvijas Universitātē” Nr.2009/0138/ 1DP/1.1.2.1.2./ 09/IPIA/ VIAA/004.

Darba forma: disertācija fizikas nozarē, cietvielu fizikas apakšnozarē.

Darba zinātniskais vadītājs :

Dr. phys. Jānis Teteris, vadošais pētnieks, Cietvielu fizikas institūts,
Latvijas Universitāte.

Darba recenzenti:

- 1) *Dr. habil. phys. Andrejs Cēbers*, profesors, Latvijas Universitāte;
- 2) *Dr. habil. phys. Andris Ozols*, profesors, Rīgas Tehniskā universitāte;
- 3) *Dr. phys. Vjačeslavs Gerbreders*, vadošais pētnieks, Inovatīvās mikroskopijas centrs, Daugavpils Universitāte;

Promocijas darba aizstāvēšana notiks Latvijas Universitātes Fizikas, astronomijas un mehānikas zinātņu nozares promocijas padomes atklātā sēdē 2015. gada 17. aprīlī, pulksten 15:00, Ķengaraga ielā 8, konferenču zālē.

Ar promocijas darbu un tā kopsavilkumu var iepazīties Latvijas Universitātes Bibliotēkā Rīgā, Raiņa bulvārī 19.

LU Fizikas, astronomijas un mehānikas specializētās promocijas padomes priekšsēdētājs *Dr. phys. Uldis Rogulis*
promocijas padomes sekretāre **Laureta Buševica**

ANOTĀCIJA

Amorfo halkogenīdu pusvadītāju (As-S, As-Se, Ge-S, Ge-Se u.c.) plānās kārtiņas izraisa pieaugošu interesi kā perspektīvi materiāli informācijas optiskam ierakstam un apstrādei. Būtiskas optisko īpašību foto inducētās izmaiņas, kā laušanas koeficienta (Δn līdz 0.8), viskozitātes, mikrocietības un zonas platuma izmaiņas (ΔE_g līdz 0.4eV), šajos materiālos dod iespēju veikt kā fāzu tā arī amplitūdas ierakstu plānās kārtiņās. Foto inducētās izmaiņas halkogenīdu pusvadītājos saistītas ar ķīmisko saišu transformāciju, kas arī nosaka šo materiālu augsto izšķiršanas spēju ($\sim 10^4 \text{ mm}^{-1}$) [1-2]. Šīs uzskaitītās lietas arī padara amorfos halkogenīdus kā konkurētspējīgus materiālus gan optiskajam ierakstam hologrāfijā, gan virsmas reljefa optisko elementu veidošanā nanolitogrāfijā, gan datu pārraidē un uzglabāšanā informācijas tehnoloģijās [3-4]. Nesenie pētījumi rāda, ka gaismas iedarbībā mīkstos materiālos (kā amorfajos halkogenīdos) veidojas ievērojamas deformācijas [5], kas saistītas ar to jutību pret starojumu. Šis process ir atgriezenisks un iegūtās deformācijas nav blīvuma efekts, jo ierakstu ir iespējams dzēst gan termāli- izkarsējot [5], gan arī optiski- izgaismojot [6] paraugu. Uz šīs parādības pamata arī balstās promocijas darbs, kura mērķis ir izpētīt amorfo halkogenīdu jutību pret gaismu. Kā viena no izpētes metodēm tiks izmantots *tiešais* hologrāfiskais ieraksts, *t.i.*, virsmas reljefa jeb hologrāfisko režģu veidošana halkogenīdos tieši ieraksta laikā bez jebkādas papildus apstrādes kā, piemēram, kodināšanas. Šīs metodes pilnīga izstrāde paver plašas pielietojuma iespējas optisko elementu ražošanā un pielietošanā, kā arī jaunu un inovatīvu tehnoloģiju ieviešanā. Vēl joprojām daudz interesantas parādības amorfajos halkogenīdos nav labi izprastas un izskaidrotas mikroskopiskā līmenī [7-8], un tāpēc šī darba uzdevumi būs tieši saistīti ar šo procesu izpēti. Darbā tiks apzināta ieraksta efektivitātes atkarība no tā parametriem (intensitātes, polarizācijas) un ieraksta apstākļiem, iegūtajām nanostrukturām tiks pētītas to optiskās īpašības- caurlaidība, atstarošanās, difrakcijas efektivitāte u.c. Iegūtās struktūras tiks skatītas ar atomspēku mikroskopijas palīdzību, nosakot to formu un izmērus.

Darbs satur 96 lappuses ar 69 attēliem un 2 tabulām. Tas sastāv no ievada, 5 nodaļām un nobeiguma ar secinājumiem. Pirmās trīs ir literatūras apskata nodaļas.

ANNOTATION

Amorphous chalcogenide semiconductors (As-S, As-Se, Ge-S, Ge-Se e.g.) thin films causes increasing interest as promising material for data optical recording and processing. Significant changes of photo-induced optical properties, such as the refractive index (Δn to 0.8), viscosity, micro hardness and bandgap changes (ΔE_g to 0.4eV) in these materials make it possible to perform phase as well as amplitude recording thin films. Photo-induced changes in chalcogenide semiconductors are related to the transformation of chemical bonds, which determines the high resolution ($\sim 10^4 \text{ mm}^{-1}$) [1-2] of the material. The listed things are those that make amorphous chalcogenides as competitive materials for optical recording in holography, as well as in making optical elements of the surface relief in nanolithography, and also in data transmission and storage in information technology [3-4]. Recent studies have shown that soft material (such as amorphous chalcogenide) exposure to light forms a significant deformation [5], which is associated with the susceptibility to radiation. This process is reversible and the obtained deformation is not a density effect, because the entry can be deleted thermally - by heating [5], as well as optically - by illuminating the sample [6]. The dissertation is based on this phenomenon, which objective is to do a research on the amorphous chalcogenide susceptibility to light. As one of the research methods, a direct holographic record will be used, i.e., creating surface relief or holographic grating in chalcogenides directly during the recording without any additional processing, like etching. Complete development of this method opens wide range of usage possibilities in optical element production and utilization, as well as in introduction of new and innovative technologies. There is still a lot of interesting phenomena in amorphous chalcogenide that are not well understood and explained in a microscopic level [7-8] and so this work will be directly involved in the process of research. Record efficiency dependence from its parameters (intensity, polarization) and recording conditions will be examined, recording process in microscopic level will be explained. Optical properties for obtained nanostructures will be studied, such as transmission, reflection, diffraction efficiency, etc. The obtained structures will be viewed by atomic force microscopy, determining their shape and size.

SATURS

BIEŽĀK LIETOTO APZĪMĒJUMU UN SAĪSINĀJUMU SARAKSTS	6
VISPĀRĪGAIS DARBA RAKSTUROJUMS	7
1. AMORFIE HALKOGENĪDU PUSVADĪTĀJI	16
1.1. Halkogenīdu pusvadītāju savienojumi	16
1.2. Struktūra un optiskās īpašības	16
1.3. Foto inducētie procesi amorfajās halkogenīdu pusvadītāju plānās kārtiņās	20
1.3.1. Fāzu pārejas amorfajos pusvadītājos	21
1.3.2. Foto inducētā nomelnošanās	22
1.3.3. Polarizācijas ietekme foto inducētajos procesos	23
1.3.3.1. Optiski mehāniskā deformācija	23
1.3.3.2. Paliekošā optiski mehāniskā deformācija	24
1.3.3.3. Plaisas deformācija	25
1.3.3.4. Anizotropa M tipa deformācija	26
1.3.3.5. Fokusēts un polarizēts stars, tā trūkumi	27
1.3.4. Foto inducētā masas pārnese procesa iespējamie mehānismi	28
2. VIĻŅU OPTIKAS PAMATELEMENTI	31
2.1. Viļņu vienādojums	31
2.2. Intensitāte (W/cm^2), jauda (W) un enerģija (J)	31
2.3. Monohromatisks vilnis	32
2.4. Viļņu funkcijas kompleksā reprezentācija	32
2.5. Divu viļņu interference	33
3. HOLOGRĀFISKAIS IERAKSTS	35
3.1. Hologrammu klasifikācija	35
3.1.1. Divdimensionālas un trīsdimensionālas hologrammas	36
3.1.2. Amplitūdas un fāzes hologrammas	37
3.1.3. Caurlaidības un atstarojošās hologrammas	38
3.2. Hologrāfisko režģu galvenie parametri	38
3.2.1. Hologrāfiskā ieraksta interferences ainas periods	38
3.2.2. Hologrāfiskā ieraksta difrakcijas efektivitāte	40
3.3. Virsmas reljefa režģu iegūšanas veidi hologrāfijā	42
3.3.1. Ķīmiskā kodināšana pēc hologrāfiskā ieraksta	42
3.3.2. Virsmas reljefa veidošanās hologrāfiskā ieraksta laikā	43

4. TIEŠĀ VIRSMAS RELJEFA IERAKSTA IZPĒTES METODES	45
4.1 Halkogenīdu fotorezistu iegūšana	45
4.2. Fotorezistu pētīšanas metodes	46
4.2.1. Raupjā virsmas reljefa noteikšana ar profilometra un optiskā mikroskopa palīdzību	46
4.2.2. Materiāla caurlaidības un absorbcijas spektru noteikšana	47
4.2.3. Atomspēku mikroskopija	47
4.3. Tiešā ieraksta eksperimentu realizēšanas metodes	48
4.3.1. Hologrāfiskās pētījumu metodes un lietotie apzīmējumi	48
4.3.2. Virsmas reljefa veidošana un izpēte pēc parauga apstarošanas caur šauru spraugu	52
4.4. Mērījumu metodika	53
5. REZULTĀTI UN TO ANALĪZE	54
5.1. Plāno kārtiņu izpēte	54
5.1.1. As_2S_3 plāno kārtiņu absorbcijas spektrs	54
5.1.2. Hologrāfiskā ieraksta atgriezeniskums	55
5.2. Tiešais ieraksts un tā izpēte ar hologrāfiskām metodēm	57
5.2.1. Tiešais ieraksts amorfās plānās kārtiņās	57
5.2.2. Plakanu viļņu interferences datora vizualizācija	58
5.2.3. Daudzstaru hologrāfijas eksperimentu salīdzinājums ar teoriju	63
5.2.4. Halkogenīdu foto inducētās mīkstināšanās iespaids uz tiešo hologrāfisko ierakstu	66
5.2.5. Polarizācijas ietekme hologrāfiskā režģa ierakstam un papildus apgaismojumam	71
5.2.6. Teorētiskais polarizācijas sadalījums divu staru interferences gadījumam	73
5.2.7. Masas pārnese virzieni hologrāfiskā ieraksta laikā, pamatojoties uz materiāla dubultlaušanu	76
5.3. Tiešais ieraksts un tā izpēte pēc parauga apstarošanas caur šauru spraugu	79
5.3.1. Masas pārnese virzieni	79
5.3.2. Optiskās spraugas eksperimentu apkopojums	81
5.3.3. Optiskās spraugas eksperimentu ieraksta attīstība laikā	83
5.3.4. Ieraksta laika un gaismas intensitātes sakarības	85
5.4. Dielektroforēzes modelis foto inducēto procesu fizikālai interpretācijai	87
NOBEIGUMS UN SECINĀJUMI	90
IZMANTOTĀ LITERATŪRA UN AVOTI.....	91
PIELIKUMS	97

BIEŽĀK LIETOTO APZĪMĒJUMU UN SAĪSINĀJUMU SARAKSTS

DE – Difrakcijas efektivitāte;

η – Difrakcijas efektivitāte [%];

AFM – Atomspēku mikroskops (*no angļu val.*, Atomic Force Microscop);

He-Ne – Hēlija-Neona (lāzers);

SRG – virsmas reljefa režģis (*no angļu val.*, Surface Relief Grating);

spin-coating – kārtiņas rotācijas uzklāšana;

blade-coating – kārtiņas liešanas uzklāšana;

DOKS – Dekarta ortogonālā koordinātu sistēma;

Nd:YAG – kristāls ($\text{Nd:Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) lāzera aktīvajai videi;

CW – nepārtraukta režīma (lāzers).

VISPĀRĪGAIS DARBA RAKSTUROJUMS

Pēdējā laikā tiek aktīvi pētīta dažādu gaismas jutīgu materiālu virsmas reljefa foto inducētās izmaiņas, kas paver iespēju strukturētu virsmu (difrakcijas režģi, litogrāfijas maskas, uz režģiem bāzēti rezonatori, filtri viļņvadiem, spektrometri utt.) iegūšanai atteikties no sarežģītās ķīmiskās kodināšanas apstrādes. Tiešā jeb foto inducētās virsmas reljefa ieraksta metode ir arī viena no perspektīvākajām virsmas strukturēšanas metodēm dažādos gaismas jutīgos materiālos. Gaismas intensitātes gradienta dēļ ir iespējams iegūt virsmas struktūras, kuras būtu daudz grūtāk iegūstamas kodināšanas ceļā vai kādā citā apstrādes veidā. Darbā tiks apskatīts tiešais ieraksts amorfajos halkogenīdos (As-S, As-S-Se u.c.), kā arī salīdzināts tas ar attiecīgo ierakstu organiskajos gaismu jutīgajos materiālos. Galvenais uzsvars tiks likts uz iespējamo virsmas reljefa veidošanās modeļu apzināšanu, kas balstās uz foto inducētā plastiskuma bāzes.

Darba mērķis

Darba mērķis ir padziļināti pētīt amorfo materiālu plāno kārtiņu mehānisko un optisko īpašību izmaiņas optiskā starojuma iespaidā, pievēršot uzmanību starojuma viļņa garumam, intensitātei un polarizācijai.

Promocijas darbs būs maģistra studiju laikā sāktu pētījumu turpinājums, kur vairāk tiks pievērsta uzmanību tieši fizikālajai interpretācijai un procesu izskaidrošanai. Maģistra un bakalaura laikā izmantotā metodika, iegūtie rezultāti un apskatītā literatūra būs ļoti noderīga un tiks izmantota kā pamats promocijas darbam.

Darba uzdevumi

Lai sasniegtu darba mērķi, nepieciešams veikt šādus uzdevumus:

1. Iegūt amorfo halkogenīdu (As-S, As-S-Se un Ge-Se savienojumi) plānās kārtiņas ar vakuumuzputināšanas iekārtu;
2. Izpētīt kārtiņu optiskās īpašības un pārbaudīt tiešā ieraksta iespējas tajos;
3. Gan teorētiski, gan eksperimentāli izpētīt daudzstaru tiešā hologrāfiskā ieraksta iespējas amorfajos halkogenīdos;
4. Izpētīt tiešo hologrāfisko ierakstu amorfās halkogenīdu kārtiņās ar dažādu viļņa garuma gaismu, kā arī izpētīt ieraksta atkarību no gaismas intensitātes, polarizācijas un paraugu mīkstināšanās temperatūras;
5. Noteikt iegūto struktūru formu un izmērus atkarībā no dažādiem ieraksta parametriem;

6. Teorētiski izpētīt intensitātes un polarizācijas sadalījumu hologrāfiskā ieraksta laikā un salīdzināt dotos rezultātus ar režģu ieraksta efektivitāti;
7. Noteikt masas pārnese virzienus hologrāfiskā ieraksta laikā;
8. Izmantojot taisnstūrveida gaismas intensitātes sadalījumu, izpētīt tiešā ieraksta iespējas un masas pārnese virzienus pie dažādām gaismas intensitātēm, polarizācijām un ieraksta laikiem;

Pētījumu metodika

Pieejamā eksperimentālā aparatūra:

- Vakuumuzputināšanas, *spin-coating* (rotācijas) un *blade-coating* (liešanas) iekārtas dažādu paraugu iegūšanai;
- Augstas kvalitātes optika (spoguļi, viļņu plāksnītes, prizmas, polarizatori u.c.) un optikas turētāji no *Standa*;
- *OPHIR* digitālie jaudas/enerģijas mērītāji;
- *Aerotech* plaša diapazona datorvadāms *xyz* galdiņš.

Tiešā ieraksta eksperimentiem:

- Ierakstam: *Nd:YAG Verdi-8* 532nm lāzers (0.01 – 8.00W ar 0.01W soli);
- Rezonanses frekvences dubultotājs CW lāzeriem: *Standa FD-SF-07*;
- Citi CW un impulsu lāzeri ar viļņa garumu: 325nm, 441.6nm, 488nm, 514.5nm, 632.8nm u.c.- ieraksta kvalitātes nolasīšanai un/vai ierakstam.

Rezultātu apstrādei:

- *Ocean Optics* augstas izšķirtspējas spektrometrs *HR4000CG-UV-NIR*;
- Augstas izšķirtspējas optiskais mikroskops *ECLIPSE L150*;
- *Autoprobe CP* atomspēku mikroskops;
- Literatūras analīze;
- Teorētiskie aprēķini.

Darba struktūra

Amorfu materiālu kārtiņu iegūšanai tiks izmantota CFI pieejamā vakuuma putināšanas iekārta. Ar interferences metodi tiks kontrolēts kārtiņas biezums, kas būs robežās no dažiem desmit nanometru līdz 10 μ m. Par putināmās kārtiņas sastāvu tiks izvēlēti jau iepriekš maģistra studiju laikā sevi labi pierādījušie As-S un As-S-Se savienojumi, kā arī tiks meklēti

jauni, pietiekoši nepētīti savienojumi (piem., Ge-S u.c.). Salīdzināšanas nolūkos un lai papildinātu aplūkoto paraugu klāstu, tiks iegūti arī organisko azo-savienojumu plānās kārtiņas ar *spin-coating* metodi. Šie savienojumi arī ir pietiekami gaismas jutīgi, bet to ķīmiskais sastāvs un optiskās/mehāniskās īpašības lielā mērā atšķiras no halkogenīdiem, tādējādi tiešā ieraksta gaita un tajā notiekošo procesu interpretācija varētu nebūt tāda pati kā halkogenīdos.

Iegūto kārtiņu virsmas strukturēšanas eksperimentiem tiks izmantota salīdzinoši jauna un vēl pilnībā neizpētīta ieraksta metode, *t.i.*, virsmas strukturēšana halkogenīdos un citos materiālos tieši starošanas laikā. Šī metode paver iespēju strukturētu paraugu iegūšanai neizmantojot papildus apstrādes posmus, piemēram, kodināšanu, kas savukārt samazinātu nepieciešamo izejvielu klāstu gatavo optisko elementu iegūšanas procesam un ievērojami samazinātu kopējās izmaksas. Šī metode sevi ir jau labi pierādījusi bakalaura un maģistra studiju laikā un ir ļoti efektīva doto mērķu sasniegšanai. Procesa izstrādne un atteikšanās no sarežģītās ķīmiskās kodināšanas būtu liels solis strukturētu virsmu iegūšanas tehnoloģiju uzlabošanas virzienā. Darbā tiks aprakstīts gan vienmērīgā apgaismojuma un noteikta platuma/dziļuma hologrāfiskie režģi (divu koherentu gaismas avotu interference), gan arī sarežģītas 3D gaismas polarizācijas atkarīgas struktūras (trīs un vairāk koherentu gaismas avotu interference), kas tiks iegūtas ar optiskās litogrāfijas palīdzību un nekodinot paraugu.

Izmantojot dažādas attēlu iegūšanas metodes, kā arī iegūstot virkni optisko īpašību raksturojošus parametrus (caurlaidība, atstarošanās, difrakcijas efektivitāte un to spektrālās atkarības), darba noslēdzošais posms sastāvēs no iegūto struktūru optisko un reljefa īpašību izpētes un tajā notiekošo izmaiņu fizikālās interpretācijas. Tiks arī izveidots 2D un 3D datora vizualizācijas modelis līdz šim vēl neapskatītam elektriskā lauka un intensitātes sadalījumam koherentu gaismas staru interferences gadījumā. Šajos paraugos ieraksts ir atgriezenisks (apskatīts maģistra darbā)- to ir iespējams dzēst un atkārtoti ierakstīt, līdz ar to šajā darbā uzsvars tiks likts uz iespējamo virsmas reljefa veidošanās modeļu, kas balstās uz foto inducētā plastiskuma bāzes, apzināšanu.

Darba zinātniskā novitāte

Sakarā ar virkni gaismas inducētajām izmaiņām fotorezista ķīmiskajā sastāvā, kā arī viskozitātes, absorbcijas un atstarošanas izmaiņām (piem., [9-10]) amorfie halkogenīdi ir konkurēt spējīgi materiāli optisko elementu ražošanai. Kodināšanas ceļā šīs foto inducētās izmaiņas rezista materiālā ļauj aizvākt specifiskus plāna parauga apgaismotos reģionus, iegūstot nepieciešamo strukturēto elementu. Ķīmiskā kodināšana ir diezgan sarežģīts un dārgs process, kas katram materiālam piemēklējams individuāli. Šis finansiālais faktors virsmas reljefu elementu ražošanā (rezonatoriem, filtri viļņvadiem, difraktometriem, spektrometriem

u.c.) ir devis vienu no galvenajiem impulsiem Chomat ([11] 1976. gadā) iesākto tiešā ieraksta pētījumu turpmākai izmeklēšanai un izskaidrošanai amorfajos halkogenīdos un arī citos gaismu jutīgos materiālos. Turklāt līdzās ar lāzeru un izmantojamās optikas attīstību interese par gaismas un vielas mijiedarbību palielinās eksponenciāli. Visbiežāk virsmas reljefa elementu veidošanas un izpētes pieeja ir saistīta ar interferometrisku vai hologrāfisku optisko shēmu un apgaismojumu, kas tuvs absorbcijas sliekšnim.

Pēdējo gadu laikā zinātnieki pēta vairāku veidu gaismas inducētās izmaiņas gaismu jutīgos materiālos. Šajā darbā apskatīsim dažus to piemērus, ieguvumus un problēmas, ar kurām jāsaskaras un jāmeklē risinājumi. Virsmas reljefa veidošanās tieši hologrāfiskā ieraksta laikā [12-15] apstiprina no gaismas polarizācijas atkarīgu masas pārnesei, bet dēļ periodiskuma nav iespējams pateikt neko vairāk par masas pārnesei virzieniem. Šī procesa izskaidrošanai arī tiek lietota cita shēma – lēcu sistēma jeb viena fokusēta stara ieraksts (piem., [16-17]). Tā kā ieraksta laikā ir novērojama nepārtraukta masas pārnese, šāda veida eksperimentos ieregulētais fokuss nepārtraukti maina savu atrašanās vietu un ieraksta laikā pārvietojas, kas noved pie grūti interpretējamiem rezultātiem (kā parādīts [18-19]). Lai samazinātu iespējamās kļūdu avotus, kas rodas no intensitātes gradienta normālvirzienā (perpendikulāri pret paraugu), ir jāizmanto gaisma, kas šajā virzienā ir ar vienmērīgu intensitātes sadalījumu jeb bez intensitātes gradienta. Ir virkne eksperimentu, kur tas ir ievērots: kontaktmaskas izmantošana [4, 20], brīvi stāvošas plāksnītes vai dažādu veidu plaisu anizotropas deformācijas no vienmērīga apgaismojuma [21-23] vai koherentu staru interferences eksperimenti (piem., [9, 24]). Visos šajos gadījumos tika novērots, ka reljefa vai deformāciju veidošanās ir būtiski atkarīga no izmantotās gaismas polarizācijas. Tātad ir iemesls ticēt, ka visam pamatā ir foto inducētā dubultlaušana, kas tiek aktīvi pētīta gan amorfajos halkogenīdos [25], gan arī dažādu veidu polimēros [26-28]. Ir būtiski turpināt pētīt gaismas inducētos procesus un pilnveidot tiešā ieraksta procesu, lai būtu iespējams ieviest jaunas un inovatīvas tehnoloģijas.

Darba apjoms un struktūra

Darbs satur 96 lappuses ar 69 attēliem un 2 tabulām. Tas sastāv no ievada, 5 nodaļām, nobeiguma ar secinājumiem. Pirmās trīs nodaļas ir veltītas literatūras apskatam.

Pirmā nodaļā tiek aprakstīti amorfie halkogenīdu pusvadītāji, to struktūra un optiskās īpašības, iespējamie foto inducētie procesi un to mehānismi. Savukārt otrā nodaļā aplūko viļņu optikas pamatelementus, kā viļņu vienādojumu, gaismas intensitāti, jaudu, enerģiju un interferenci. Trešā nodaļa tiek veltīta hologrāfiskajam ierakstam- tiek noskaidroti galvenie hologrammu veidi un hologrāfisko režģu galvenie parametri. Ceturtajā nodaļā tiek aprakstītas

tiešā ieraksta izpētes metodes, kā arī pētījumu metodika un piektajā nodaļā tiek apkopoti gan eksperimentālie, gan teorētiskie promocijas darba rezultāti.

Nobeigumā un secinājumos ir apkopoti promocijas darba rezultāti, iztirzāti izvirzītie darba uzdevumi un noformulēti secinājumi.

Aizstāvamās tēzes

1. **Efektīvākais tiešais hologrāfiskais ieraksts** amorfās halkogenīdu plānās kārtiņās **iespējams gadījumos, kad ierakstošie stari ir ar -45 un 45 grādu polarizāciju vai ar pretēji cirkulāru polarizāciju;**
2. **Tiešā hologrāfiskā ieraksta efektivitāti ir iespējams būtiski uzlabot, ieraksta laikā izmantojot papildus nekoherentu vienmērīgu apgaismojumu;**
3. Masas pārneši nodrošina gaismas elektriskā lauka intensitātes gradients, un **masas pārnese virziens ir atkarīgs no gaismas elektriskā lauka intensitātes gradienta un elektriskā lauka virziena savstarpējā novietojuma;**
4. **Tiešajam hologrāfiskajam ierakstam ir iespējams noteikt aktīvo ieraksta dziļumu jeb optimālo kārtiņas biezumu, salīdzinot ierakstus no kārtiņas un pamatnes (stikla) puses.**
5. Šauras spraugas jeb **taisnstūrveida gaismas instensitātes sadalījuma izmantošana tiešajam ierakstam dod iespēju modelēt hologrāfiskās iekārtas viena atsevišķa perioda ierakstu gaismu jutīgā materiālā.**

Darba aktualitāte un pētījuma novitāte

Ātra, viena soļa un atgriezeniska virsmas tiešā strukturēšana ir atklāta un tiek aktīvi pētīta dažādos gaismu jutīgos materiālos, bet tā fizikālā interpretācija un pilnīgs ieraksta mehānisma modelis nav vēl pilnībā saprasts (sīkāk skatīt 1.3.4. sadaļu). Šī procesa pilnīga izziņāšana sniedz plašas pielietojuma iespējas dažādās iekārtās gan virsmas nano/mikro strukturēšanai, gan arī kā jau gatavas sastāvdaļas iekārtu sastāvā. Iegūtie režģi jau ir tikuši demonstrēti kā optiskie polarizatori [29], leņķiskie vai spektrālie filtri [30-31], pārejas optiskajām ierīcēm [32], difraktometros, spektrometros un citās ierīcēs. Tiek piedāvāti arī risinājumi fotoniskajiem kristāliem [33] un arī tiek izmantoti lāzeru ražošanai, kur viļņa garums ir maināms atkarībā no režģa ģeometriskajiem parametriem [34-35]. Tiešā ieraksta tehnika, protams, var tik izmantota arī datu uzglabāšanas ierīcēs [36]. Ātrs, viena soļa tiešais hologrāfiskais ieraksts tiek piedāvāts kā risinājums momentānu hologrammu veidošanā [37] (no angļu val., *instant holography*), kas noteikti var atrast praktisku pielietojumu dažādās

sfērās. Šie ir tikai daži varianti no iespējām, ko spēj dot vai uzlabot tiešās ieraksta metodes un tāpēc tas ir tik svarīgi, lai turpinātos šī procesa pilnīgāka izpēte. Arī šis promocijas darbs ir veltīts tiešā ieraksta iespēju padziļinātai izpētei gaismu jutīgos amorfos halkogenīdos. Darba pētījumu novitāte iekļauj sevī sekojošas daļas:

- Attēlota tiešā hologrāfiskā ieraksta dzēšana ar to pašu ieraksta iekārtu, pārbīdot interferences ainu par pusi no tā perioda;
- Iegūts daudzstaru (trīs un četrstaru) interferences jeb hologrāfiskā ieraksta intensitātes sadalījums plašā interferējošo gaismas avotu polarizāciju diapazonā, kā arī caurskatāmi attēlots dotā teorētiskā modeļa iegūšanas process;
- Pirmo reizi ir iegūta detalizēta divstaru tiešā hologrāfiskā ieraksta efektivitātes atkarība no papildus apgaismojuma, tā intensitātes un polarizācijas, kā arī iegūta atkarība no ierakstošo staru polarizācijām ar un bez papildus apgaismojuma;
- Iegūts detalizēts divstaru interferences jeb hologrāfiskā ieraksta intensitātes, kā arī polarizācijas sadalījums plašā interferējošo gaismas avotu polarizāciju diapazonā un izanalizēts dotā intensitātes sadalījuma polarizācijas spektrs, kā arī caurskatāmi attēlots dotā teorētiskā modeļa iegūšanas process;
- Izskaidrots masas pārnese process hologrāfiskā ieraksta laikā, pamatojoties uz materiāla fotoinducēto dubultlaušanu un difrakcijas efektivitātes kopsakarībām;
- Pirmo reizi veikti masas pārnese eksperimenti, izmantojot taisnstūrveida gaismas intensitātes sadalījumu, kas iegūts no šauras spraugas;
- Iegūts detalizēts taisnstūrveida gaismas intensitātes sadalījuma tiešā ieraksta eksperimentu apkopojums pie dažādām gaismas intensitātes gradienta un/vai papildus apgaismojuma polarizācijām, intensitātēm un ekspozīcijas laikiem

Aprobācija

Promocijas darba saturs ir atspoguļots sekojošos recenzētos zinātniskajos žurnālos, kas atrodami bibliogrāfiskajā datubāzē SCOPUS:

2013. gads

1. **U.Gertners**, Z.Gertnere, E.Potanina, J.Teteris, Optical-field induced volume- and surface-relief formation phenomenon in thin films of vitreous chalcogenide semiconductors, *Proc. of SPIE*, Vol.8836, (September 2013), 88360X;
2. **U.Gertners**, J.Teteris, Photo-induced Mass Transport in Thin Films of Amorphous As₂S₃, *Physics Procedia*, Vol.44, (May 2013), 45 – 51;
3. J.Teteris, M.Reinfelde, J.Aleksejeva, **U.Gertners**, Optical field-induced mass transport in soft materials, *Physics Procedia*, Vol.44, (May 2013), 151 – 158.

2012. gads

4. **U.Gertners**, J.Teteris, The impact of light polarization on the direct relief forming processes in As_2S_3 thin films, *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, Vol.38, (August 2012), 012026;
5. J.Teteris, **U.Gertners**, Optical field-induced surface relief formation on chalcogenide and azo-benzene polymer films, *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, Vol.38, (August 2012), 012012.

2011. gads

6. **U.Gertners**, J.Teteris, Light intensity and its polarization relation to the photoinduced mass movement in thin layers of chalcogenide vitreous semiconductors, *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, (November-December 2011), Vol. 13, No 11-12, pp. 1462-1466;
7. A.Gerbreders, J.Aleksejeva, **U.Gertners**, J.Teteris, The synthesis of different variants of azo-polyurethane polymers for optical recording, *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, (November-December 2011), Vol. 13, No 11-12, pp. 1559-1562;
8. **U.Gertners**, J.Teteris, Photo-induced Mass Transfer in Chalcogenides, *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, Vol.23, (June 2011), 012007.
9. J.Teteris, **U.Gertners**, M.Reinfelde, Photoinduced mass transfer in amorphous As_2S_3 films, *Physica Status Solidi (c)*, 8, (May 2011), 2780–2784;
10. J.Teteris, J Aleksejeva, **U.Gertners**, Photoinduced mass transport in soft materials, *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, Vol.23, (June 2011), 012002.

2010. gads

11. **U.Gertners**, J.Teteris, Surface relief formation in amorphous chalcogenide thin films during holographic recording, *Optical Materials*, 32 (8), (June 2010) , 807-810.

2009. gads

12. **U.Gertners**, J.Teteris, Surface relief formation during holographic recording, *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 11 (12), (December 2009), 1963-1966.

Promocijas darba rezultāti ir ziņoti sekojošās konferencēs:

2014. gads

1. **U. Gertners**, J. Teteris, Z. Gertnere, E. Potanina, Direct Light-Induced Surface Patterning in a- As_2S_3 Thin Films, Scientific Conference of Physics and Natural Sciences: Open Readings, Vilnius, Lithuania, March 19-21, 2014
2. **U. Gertners**, J. Teteris, Z. Gertnere, E. Potanina, Investigation of Several Techniques for Light Induced Surface Patterning, 5th International Conference on Radiation interaction with materials: fundamentals and applications, Kaunas, Lithuania, May 12-15, 2014

2013. gads

3. **U.Gertners**, J.Teteris, Gaismas inducētās izmaiņas amorfās As_2S_3 plānās kārtiņās, LU CFI 29.zinātn. konference, 20. – 22. februāris 2013

4. **U.Gertners**, J.Teteris, Optical-Field Induced Surface-Relief Formation Phenomenon in Thin Films of Vitreous Chalcogenide Semiconductors, International conference Functional materials and nanotechnologies (FMNT13), Tartu, Estonia, April 21-24, 2013
5. **U.Gertners**, J.Teteris, Optical-field Induced Surface-relief Modification in Amorphous As₂S₃ Films, 6th International Conference on Amorphous and Nanostructured Chalcogenides (ANC6), Brasov, Romania, June 24-28, 2013
6. **U.Gertners**, Z.Gertnere, E.Poanina, J.Teteris, Optical-field induced volume- and surface-relief formation phenomenon in thin films of vitreous chalcogenide semiconductors, SPIE Optics + Photonics 2013, San Diego, ASV, August 24-29, 2013.

2012. gads

7. **U.Gertners**, J.Teteris, The Impact of Light Polarization on the Direct Relief Forming Processes in As₂S₃ Thin Films, International conference Functional materials and nanotechnologies (FMNT12), Riga, Latvia, April 17-20, 2012, p.176
8. **U.Gertners**, Z.Alute, J.Teteris, The Correlation Between Polarization and Light-induced Mass Transfer Processes in Chalcogenide Vitreous Semiconductors, Radiation Interaction with Material and its Use in Technologies 2012 (4th International Conference), Lithuania, Kaunas, May 14-17, 2012, Book of abstracts, p.474-478
9. **U.Gertners**, J.Teteris, Photo-induced Mass Transfer in Thin Films of Amorphous As₂S₃, 10th International Conference Solid State Chemistry 2012 (SSC2012), Czech Republic, Pardubice, June 10-14, 2012, p.143
10. **U.Gertners**, J.Teteris, Photo-induced Mass Movement in Chalcogenide Vitreous Semiconductors and Its Direction Versus the Polarization, 16th edition of the International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS12), Genoa, Italy, July 1-6, 2012, MonA-POM.22
11. **U.Gertners**, J.Teteris, Surface relief modulation phenomena by light induced interference, 18th International Symposium on Non-Oxide and New Optical Glasses (ISNOG12), St. Malo, France, July 1-5, 2012, II-P31
12. **U.Gertners**, J.Teteris, Polarization Driven Light-induced Relief Formation in Amorphous Chalcogenide Materials, 14th International Conference-School Advanced Materials and Tehnologies (AMT), Palanga, Lithuania, August 27-31, 2012, p. 48

2011. gads

13. **U.Gertners**, Foto-inducētā masas pārnese halkogenīdos, LU CFI 27.zinātn. konference, 14. – 16. februāris 2011, 86.lpp.
14. **U.Gertners**, J.Teteris, Photo-induced Mass Transfer in Chalcogenides, Int. Conf. Functional materials and nanotechnologies (FM&NT2011), Latvia, Riga, April 5 – 8, 2011, p.110.;

15. J.Teteris, **U.Gertners**, Photoinduced Mass Transport in Soft Materials, Int. Conf. Functional materials and nanotechnologies (FM&NT2011), Latvia, Riga, April 5 – 8, 2011, p.62.;
16. **U.Gertners**, J.Teteris, Light intensity and Its Polarization Relation to the Photo-induced Mass Movement in Thin Layers of Chalcogenide Vitreous Semiconductors, 5th International Conference on Amorphous and Nanostructured Chalcogenides (ANC5), Magurele-Bucharest, Romania, June 26 – July 1, 2011, p.35.;
17. J.Teteris, J.Aleksejeva, **U.Gertners**, Photoinduced Mass Transport in Amorphous Chalcogenide and Organic Polymer Films, 24th International Conference on Amorphous and Nanocrystalline Semiconductors (ICANS24), Nara, Japan, August 21 – 26, 2011, p.38.;
18. **U.Gertners**, J.Aleksejeva, J.Teteris, Photo-induced Structural Transformations in Chalcogenide Vitreous Semiconductors, 24th International Conference on Amorphous and Nanocrystalline Semiconductors (ICANS24), Nara, Japan, August 21 – 26, 2011, p.143.;
19. **U.Gertners**, Direct Photo-induced Surface-relief Formation in Thin Layers of Chalcogenide Vitreous Semiconductors, The 13th International Conference – School: Advanced Materials and Technologies 2011, Lithuania, Palanga, August 27 – 31, 2011, p.46.
2010. gads
20. J.Teteris, **U.Gertners**, M.Reinfelde, Photoinduced Mass Transfer in Disordered Materials, 17th International Symposium on Non-Oxide and New Optical Glasses (XVII ISNOG), Ningbo, China, June 13 – 18, 2010;
21. **U.Gertners**, Surface Relief Modulation Phenomena by Light Induced Interference, 4th International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA2010), Budapest, Hungary, August 15 – 18, 2010, p.230.;
22. J.Teteris, **U.Gertners**, M.Reinfelde, Photoinduced Mass Transfer in Soft Materials, 4th International Conference on Optical, Optoelectronic and Photonic Materials and Applications (ICOOPMA2010), Budapest, Hungary, August 15 – 18, 2010, p.204.;

1. AMORFIE HALKOGENĪDU PUSVADĪTĀJI

1.1. Halkogenīdu pusvadītāju savienojumi

Halkogenīdu pusvadītājus veido VI. grupas elementi (S, Se, Te, jeb halkogēnu), kas ir kovalenti sasisīti ar blakus V. grupas (P, As, Sb, Bi) vai arī ar IV. grupas (Si, Ge) elementiem. Halkogenīdi var būt divu, trīs un vairāku elementu savienojumi. Kā piemēru var minēt As-S, Ge-Se, As-Se, As-S-Se, As-Te-Si-Ge u.t.t. Tie var atrasties kā kristāliskajā, tā arī amorfajā stāvoklī (sk. 1.1., 1.2. att.) [38].

1.2. Struktūra un optiskās īpašības

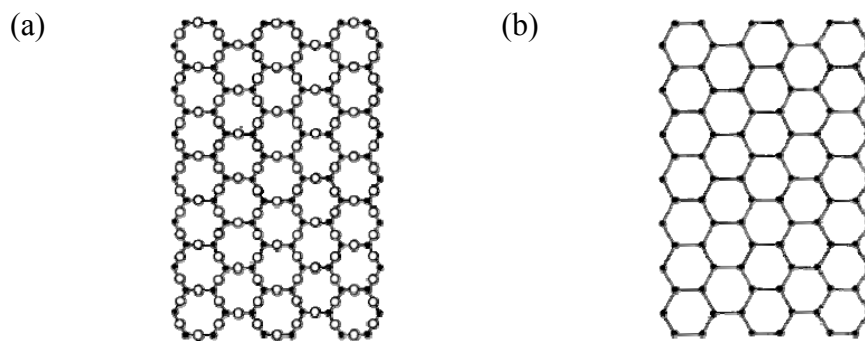
Vielas *amorfais stāvoklis* ir ciets agregātstāvoklis ar tai piemītošām sekojošām īpašībām:

1) raksturīga fizikālo (optisko, elektrisko, mehānisko) un formas īpašību izotropija jeb neatkarība no virziena, tai raksturīga lūzuma līnijas neregulāra forma.

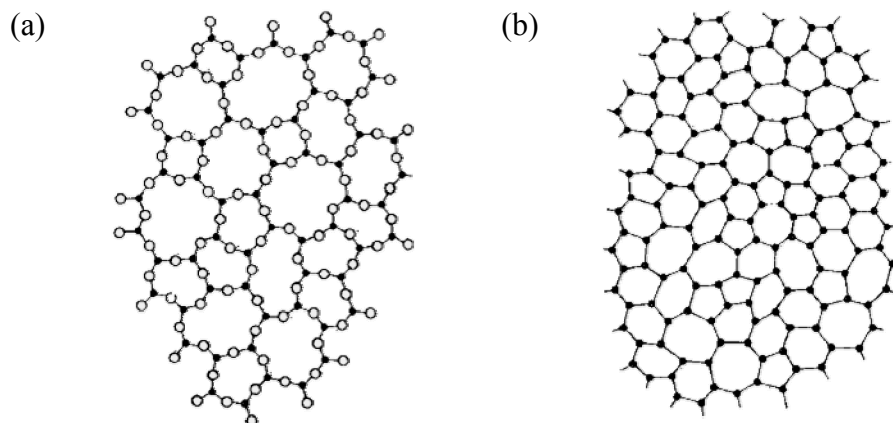
2) nav precīzas stiklošanās temperatūras, bet gan temperatūras intervāls, kur tā pāriet no šķidra agregātstāvokļa cietā.

Šīs divas minētās īpašības ir pilnīgi pretējas kristāliska stāvokļa īpašībām, līdz ar to amorfam stāvoklim kā sinonīmu lieto terminu *nekristāliskais stāvoklis*. Tā kā stikls ir viens no tipiskajām amorfām vielām, tad šādu stāvokli mēdz saukt arī par *stiklveida stāvokli*, bet tas nav pilnībā korekti. Par stiklveida vielām uzskata tikai tās amorfas vielas, kurām struktūra amorfā stāvoklī ir līdzīga ar vielas šķidrā stāvokļa struktūru.

Amorfām vielām nav raksturīga tālā kārtība, jeb noteiktu atomu vai atomu grupu periodiska atkātošanās (kristāliskām vielām tā ir uzbūves pamatīpašība). Savukārt amorfam stāvoklim piemīt tuvā vai arī vidējā kārtība, kas raksturo atomu sakārtotību attiecīgi 3-5 Å vai 5-20 Å attālumā. Tas nozīmē, ka amorfai vielai nav regulāra atomu režģa. Krīstālais vielai ar lielu defektu skaitu var arī nebūt regulāra atomu struktūra. Vidējā kārtība (3-5 Å attālumos) raksturo vielas sakārtotības pakāpi, ja tās nav, tad amorfa viela līdzinās pārdzesētam šķidrumam (sk. 1.4. att.) [39].



1.1. att. A_2B_3 kristāliskās struktūras atomu izvietojums divdimensionālā telpā (a) un tās vienkāršotais attēlojums (b) [38]



1.2. att. A_2B_3 amorfās (stiklveida) struktūras atomu izvietojums divdimensionālā telpā (a) un tās vienkāršotais attēlojums (b) [38]

Arī šķidrumiem, kur daļiņas var apmainīties vietām, piemīt tuvā kārtība, tāpēc arī amorfās vielas bieži tiek uzskatītas par pārdzesētiem šķidrumiem ar lielu viskozitātes koeficientu (1.4. att.).

Amorfo un kristālisko vielu atomstruktūras raksturojumam izmanto šādus parametrus:

- 1) koordinācijas skaitlis jeb tuvāko kaimiņu (atomu) skaits;
- 2) valences leņķis;
- 3) saites garums jeb attālums no kāda atoma līdz tā kaimiņam;
- 4) atoma valence.

Atšķirībā no kristāliskā stāvokļa, amorfam stāvoklim šie parametri nav konstanti, bet mainās pa noteiktiem apgabaliem vai atkarībā no vielas sakārtotības pakāpes [38-40].

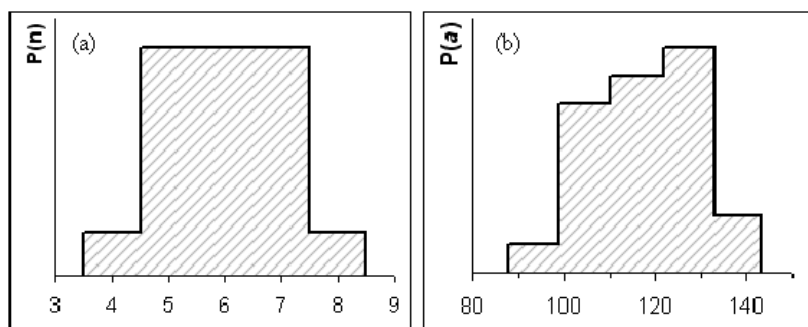
Amorfās struktūras tuvo un vidējo kārtību var aprakstīt ar tādu struktūras raksturlielumu kā molekulārā struktūras vienību. Šādu elementu kopa veido amorfo struktūru (1.2. att.). Salīdzinot 1.1. un 1.2. attēlus redzam, ka amorfām vielām valences leņķi sažādās savienojuma vietās nedaudz atšķirās, kas nojauc vielas tālo kārtību. Varbūtību sadalījuma funkcijas molekulāro gredzenu un valences leņķiem ir attēlotas 1.3. attēlā.

Ir iespējamas trīs pārejas vielai no šķidrā stāvokļa cietā (sk. 1.4. att.):

- 1) termodinamiski stabilā kristāliskā stāvoklī (V veida);
- 2) pārdzesētā termodinamiski nestabilā šķidrā stāvoklī (III veida);
- 3) amorfā termodinamiski nestabilā cietā stāvoklī (I un II veida).

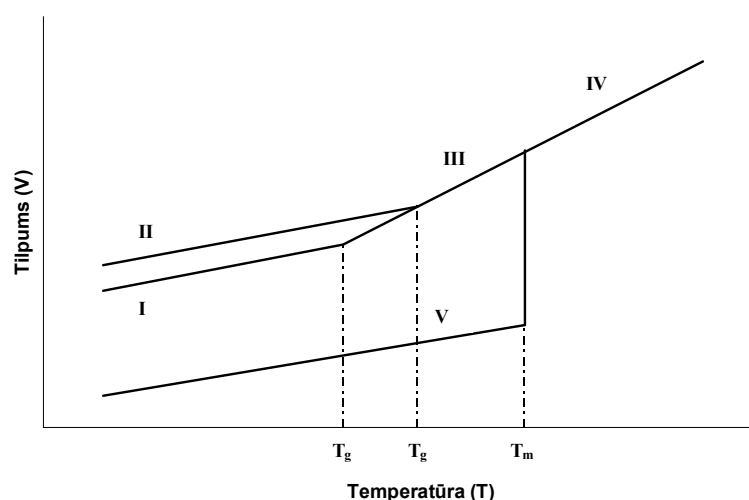
Vielā no pārdzesētā šķidruma stāvokļa var pāriet gan stabilā kristāliskā stāvoklī, gan nestabilā amorfā stāvoklī. Kāda pāreja realizēsies, nosaka dotās vielas tendence amorfizēties. Šīs parādības iemesli vēl līdz šim nav pilnībā noskaidroti. Kā viens no iemesliem vielai amorfizēties ir atomu koordināciju skaitļu un valences dažādība cietvielā. Vielas amorfais stāvoklis ir metastabils stāvoklis, šāda stāvokļa relaksācija ir ļoti ilga (sākot ar tūkstošgadi).

Tikai dažas vielas atrodas vienīgi amorfā stāvoklī, un tikai dažas var atrasties kā kristāliskajā, tā arī amorfajā stāvoklī (atkarībā no dotajiem apstākļiem). Lielākai daļai vielu amorfos stāvokli iegūt ir ļoti sarežģīti vai arī vispār nav iespējams. Atkarībā no amorfas vielas iegūšanas paņēmiena mainās to struktūra.



1.3.att. Varbūtību sadalījums amorfos vielu molekulāro gredzenu lielumam As_2S_3 (a) un halogēna valences leņķiem (b) [38]

Uz ordinātu asīm attēlota dotā varbūtība un uz abscisa asīm attiecīgi molekulāro gredzenu lielums un halogēna valences leņķis



1.4.att. Shematiska ilustrācija vielas tilpuma izmaiņai atkarībā no temperatūras [39]

I- stikls lēnās atdzišanas gadījumā; II- stikls ātrās atdzišanas gadījumā,

III- pārdzesēts šķidrums; IV- šķidrums; V- kristāliska viela.

T_g - stiklošanās (mīkstināšanās) temperatūra; T_m - kušanas temperatūra

Amorfo vielu iegūšanas paņēmienus var iedalīt sekojoši:

- 1) uzputinot vielu uz pamatnītes;
- 2) ķīmiskās reakcijās;
- 3) atdzesējot vielas šķidro stāvokli;
- 4) dažādi iedarbojoties uz kristāliskiem materiāliem (starojums, mehāniskā deformācija, u.c.).

Plānās kārtiņas iegūst ar pirmā veida metodi, bet ar trešā veida - stiklus. Vienas vielas paraugi, kas iegūti uzputinot vielu uz pamatnes un atdzesējot vielas šķidro stāvokli, atšķiras savā starpā pēc to struktūras [39].

Amorfos pusvadītājus parasti iedala divās klasēs: *Si-veida* ar nesakārtotu telpiska režģa struktūru un *Se-veida* - izteikti slāņainu struktūru [41]. *Se-veida* amorfiem pusvadītājiem ir Se_n veida (n robežās no 2 līdz 8) molekulārie gredzeni. Šādu gredzenu koncentrācija dažādos materiālos (piemēram, stiklos un plānās kārtiņās) ir būtiski atšķirīga. Savukārt *Si-veida* amorfie pusvadītāji raksturojas ar neregulāru atomu režģi un koordinācijas skaitli 4. Šīm amorfām vielām piemīt stipra tieksme kristalizēties un šo stāvokli nevar iegūt atdzesējot šķidrumu. *Si-veida* amorfos pusvadītājus iegūst plāno kārtiņu veidā uzputināšanas ceļā. Šī materiālu klase ir līdzīga amorfajiem metāliem, kuriem arī ir stipra tendence kristalizēties jau pie istabas temperatūras.

Par *stikliem* sauc tādas amorfas vielas, kas tiek iegūtas atdzesējot šķidrumu. Šīm vielām parasti ir mazāka tieksme kristalizēties jeb ir stabilākas salīdzinot ar vielām, kuras iespējams iegūt tikai uzputināšanas ceļā. Sildot šādus stiklus, tie sasniedz vielas šķidro stāvokli bez jebkādam krasām īpašību izmaiņām. Tomēr tiem stiklošanās temperatūras T_g , sasniegšana raksturojas ar II veida pāreju (sk. 1.4. att.). Šīs pārejas laikā vielai samazinās viskozitāte (tā kļūst mīkstāka), pieaug tās termiskās izplešanās koeficients un arī siltumietilpība. Šīs vielas lielākoties ir pusvadītāji vai dielektriķi, piem., Se, As_2Se_3 u. c. [39]

Optiskās absorbcijas robežu halkogenīdos raksturo absorbcijas koeficients α (sk. 1.5. att.). Spektu $\alpha(\nu)$ ir iespējams sadalīt trīs daļās [40]:

kur $\alpha \geq 10^4 \text{cm}^{-1}$, spektu iespējams aprakstīt kā pakāpes funkciju

$$\alpha(\nu) \propto (h\nu - E_g^T)^{1/2}, \quad 1-1$$

kur $10^4 \text{cm}^{-1} \geq \alpha \geq 10^0 \text{cm}^{-1}$, spektu iespējams aprakstīt kā eksponentes (Urbaha likums) funkciju

$$\alpha(\nu) \propto \exp\left[\frac{h\nu}{E_U}\right] \quad 1-2$$

un, kur $\alpha \leq 10^0 \text{cm}^{-1}$, ir novērojama vāja absorbcijas aste, kas arī aprakstāma ar eksponentes funkciju

$$\alpha(\nu) \propto \exp\left[\frac{h\nu}{E_W}\right]. \quad 1-3$$

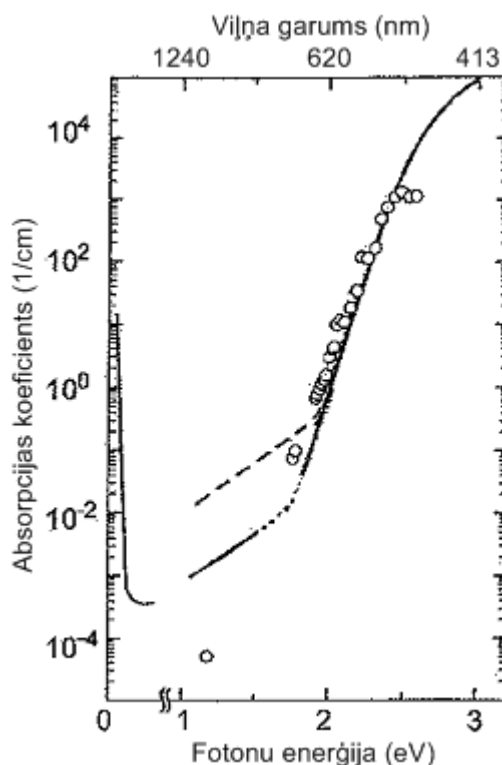
Šeit arī tiek definēts aizliegtās zonas platums E_g^T , kurš As_2S_3 pie istabas

temperatūras ir $E_g^T = 2,36 \pm 0,02 \text{eV}$. Savukārt $E_U \approx 50 \text{meV}$ un $E_W \approx 250 \text{meV}$.

Halkogenīdi ir caurspīdīgi IR viļņu apgabalā. Bināriem amorfiem halkogenīdiem piemīt pusvadītāju īpašības- to aizliegtās zonas platums (E_g) ir no dažiem eV līdz to desmitdaļām (atkarībā no vielas sastāva).

1.3. Foto inducētie procesi amorfajās halkogenīdu pusvadītāju plānās kārtiņās

Optiskā starojuma iedarbīdā amorfās halkogenīdu pusvadītāju kārtiņās tiek inducētas vesela virkne fizikālķīmisko īpašību izmaiņas. Ir iespējams novērot fotovadamību, fotoluminiscenci, mehānisko un ķīmisko īpašību izmaiņas, kā arī optisko ierakstu, u.c. Visus šos foto inducētos procesus izsauc absorbētā gaisma. Tas attiecas kā uz fotorefraktīviem (laušanas koeficienta n izmaiņas Δn), tā arī uz fotohromiem (absorbcijas koeficienta a izmaiņas $\Delta\alpha$) un fototermiskiem procesiem.



1.5.att. Optiskās absorbcijas līknes As_2S_3 pie istabas temperatūras [40]

Nepārtrauktā un pārtrauktā līnija rāda absorbcijas spektru dažādiem paraugiem, aplī rāda iegūtos rezultātus izmantojot konstantās fotostrāvas metodi

Gaismas absorbciju halkogenīdos definē Bugēra-Lamberta likums (1.6. att.) [42]:

$$I = I_0 e^{-\mu_a d} \quad 1-4$$

I_0, I – krītošās un caurizgājušās gaismas intensitāte;

d - absorbējošā slāņa biezums;

μ_a - lineārais absorbcijas koeficients.

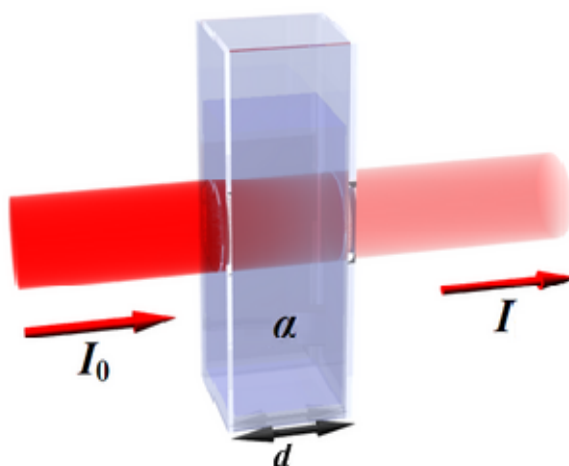
Praksē doto likumu bieži izmanto formā:

$$I = I_0 \cdot 10^{-\mu'_a d}, \text{ kur } \mu'_a = 0,4343 \mu_a$$

Attiecība $\frac{I}{I_0} = T$ tiek saukta par *caurlaidības koeficientu*.

Savukārt, kvantitatīviem aprēķiniem izmanto optisko blīvumu:

$$D = \lg(I / I_0) = \mu'_a d, \text{ kur } d\text{- parauga biezums.} \quad 1-5$$

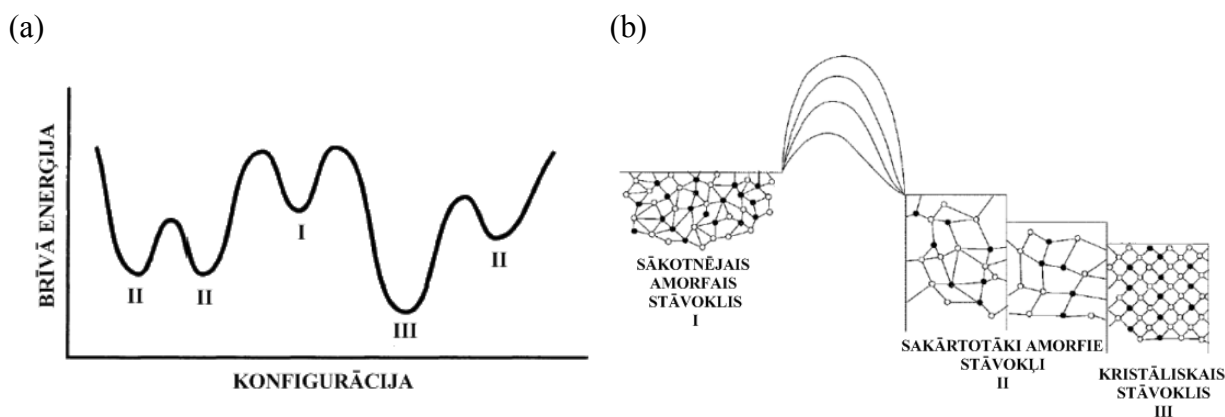


1.6. att. Gaismas absorbcija materiālā (Bugēra-Lamberta likums)

1.3.1. Fāzu pārejas amorfajos pusvadītājos

Amorfie pusvadītāji atrodas metastabilā jeb nelīdzsvarotā stāvoklī. Grafikā (1.7. att.) ir attēlota brīvās enerģijas atkarība no vielas atomārās konfigurācijas materiālā. III stāvoklis attēlo minimālās brīvās enerģijas līmeni, kas šajā gadījumā atbilst kristāliskajam stāvoklim. Pārējie stāvokļi (I, II utt) attēlo lokālo jeb šķietamo enerģijas minimumu, kas atbilst vielas metastabilam stāvoklim. Katra iekšējās enerģijas vērtība atbilst dažādam metastabilam stāvoklim. Šie stāvokļi ir atkarīgi no dažādiem amorfā pusvadītāju iegūšanas vai veidošanās procesiem. Šie metastabilie stāvokļi ir atdalīti no III stāvokļa ar enerģijas barjerām. Ārējo iedarbību rezultātā, piemēram, optiskās, termālās, mehāniskās vai elektriskās iedarbības rezultātā, vielai ir iespēja no metastabilā stāvokļa nokļūt kristāliskajā stāvoklī.

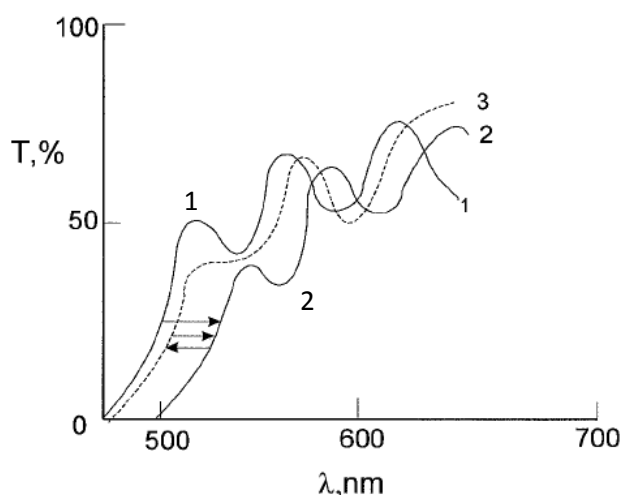
Optiskam ierakstam amorfā pusvadītāju materiālos tiek izmantotas fāzu pārejas (1.7. att.). Pārejas amorfais stāvoklis \Leftrightarrow kristāliskais stāvoklis (piem., II \Leftrightarrow III) visbiežāk izmanto reversīvam ierakstam. Abi šie stāvokļi ir pietiekami stabili, lai novērotu pāreju, ir nepieciešams pievadīt noteiktu enerģiju. Sākuma stāvoklī vielu var atgriezt to sildot (termiski dzēšot) vai ar gaismas iedarbību (optiski dzēšot). Optiskam ierakstam amorfajos halkogenīdos bieži izmanto amorfā stāvokļa pārejas (piem., amorfais stāvoklis I \Leftrightarrow amorfais stāvoklis II). Šīs fāzu pārejas ir atgriezeniskas, lai gan pirmais ieraksts ir visefektīvākais [39].



1.7. att. Fāzu pārejas amorfajos pusvadītājos [39]
 I- sākotnējais amorfais stāvoklis, II- sakārtotāki amorfie stāvokļi, III- kristālais stāvoklis

1.3.2. Foto inducētā nomelnošanās

Apstarojot amorfās halkogenīdu kārtiņas, mainās to caurlaidības spektrs (sk. 1.8. att.). Caurlaidības līkne pārbīdās uz garāko viļņu pusi un tiek novērota parauga foto inducētā nomelnošanās. Šī procesa rezultātā mainās arī interferences ekstrēmumu izvietojums. Kad paraugs tiek izkarsēts pie T_g , caurlaidības spektrs pārvietojās uz īsāko viļņu pusi, bet tas neatgriežas sākuma stāvoklī. Caurlaidības spektra izmaiņas tiek raksturotas ar spektra nobīdi pa enerģijas jeb viļņu garumu asi- $\Delta\lambda$, kā arī sākuma caurlaidības kontrasta izmaiņu vērtību- T_1/T_2 un atgriezeniskās caurlaidības kontrasta izmaiņu vērtību- T_3/T_2 , kā arī laušanas koeficienta izmaiņām- Δn [43].



1.8. att. Optiskās absorbcijas līknes izmaiņas foto inducēto procesu ietekmē As-S plānās kārtiņās [43]
 1 - jauns paraugs; 2 - paraugs pēc gaismošanas ar Ar^+ lāzeru; 3 - paraugs pēc gaismošanas un izkarsēšanas pie T_g

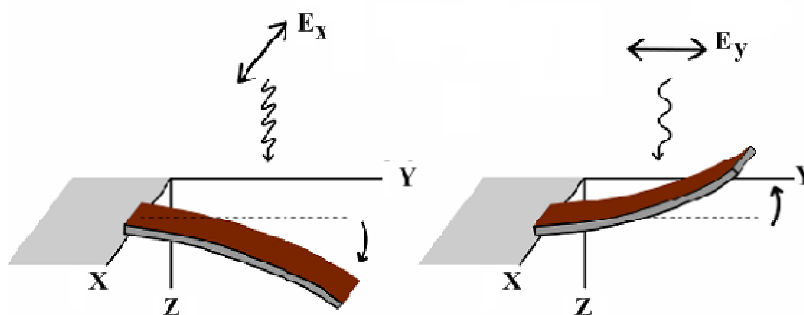
Foto inducētos procesus amorfos halkogenīdos ietekmē vairāki parametri: gaismas intensitāte, temperatūra, vielas sastāvs un biezums, kā arī krītošās gaismas viļņa garums. Paaugstinot vielas temperatūru, samazinās maksimāli iespējamais kontrasts, kā arī foto inducētās nomelnošanas gaismas jutība. Process skaidrojams ar to, ka pie T_g tuvām temperatūrām notiek termiska foto inducēto centru sagraušana. Caurlaidības spektra nobīde arī ir atkarīga no vielas sastāva attiecībām. Piemēram, paaugstinot vielā arsēna daudzumu, plānās halkogenīdu AsSe un As₃Se₂ kārtiņās pieaug T_1/T_2 un Δn , kā arī uzlabojas reversivitāte.

1.3.3. Polarizācijas ietekme foto inducētajos procesos

Kā jau iepriekš tika minēts, foto inducētos procesus vielā izsauc absorbētā gaisma. Šī parādība amorfajos halkogenīdos jau tiek pētīta salīdzinoši sen. Bet visi šie mērījumi un līdz ar to arī rezultāti ir nepilnīgi, jo tas nav apskatīts no gaismas polarizācijas viedokļa. Šajā apakšnodaļā tiks ieskicēta un promocijas darbā tiks uzskatāmi parādīta polarizācijas acīmredzamā ietekme šajos foto inducētajos procesos.

1.3.3.1. Optiski mehāniskā deformācija

Paraugs sastāv no viendabīga, sub-milimetru biezuma Si₂N₄ plāksnītes, kas no vienas puses pārklāta ar As-S-Se kārtiņu (1.9. att.). Apstarojot šo plāksnīti ar polarizētu gaismu, tā noliecās uz vienu vai otru pusi, atkarībā no krītošās gaismas polarizācijas. Pēc apstarošanas pārtraukšanas, paraugs ieņem sākotnējo formu. Šādu gaismas iedarbību pirmais novēroja Krecmers [44-45]. Šeit jāņem vērā arī tas, ka apgaismojums eksperimentu laikā ir izvēlēts vienmērīgs pa visu paraugu un polarizācijas jutīgā noliekšanās ir mazāka par termālo izplešanos efektu par 1/5 – 1/10 [45-46]. Šādas deformācijas ieguvuši arī Asao un Tanaka, apgaismojot tikai nepilnu 1/10 daļu no plāksnītes [46].

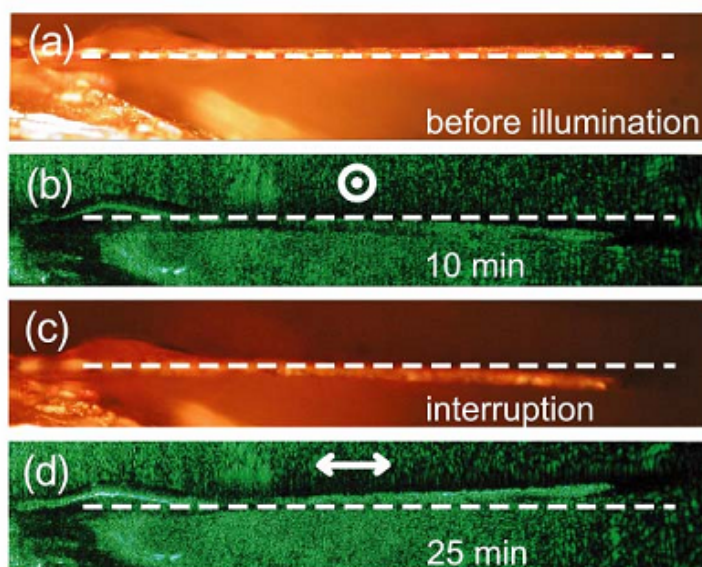


1.9. att. Shematiska ilustrācija optiski mehāniskajam efektam [21]
(tumši brūnais reprezentē halkogenīdu kārtiņu)

1.3.3.2. Paliekošā optiski mehāniskā deformācija

Līdzīgi kā jau iepriekš apskatītajai deformācijai, tikai šoreiz kā paraugu izmanto As_2S_3 monoslāni, kas tāpat ir vienā galā nostiprināts (1.10. att.). Tika izmantota As_2S_3 plāksne ar dimensijām $10 \times 150 \times 550 \mu\text{m}$, kur biezums $\sim 10 \mu\text{m}$. 1.10. attēlā redzam sānskatā šo halkogenīdu plāksnīti, kurai kreisā puse ir fiksēta.

Apstarojot paraugu ar vienmērīgu lāzera gaismu (2.4eV ($\sim 540\text{nm}$), $400\text{mW}/\text{cm}^2$), kura orientēta pret parauga normāli un tās elektriskā lauka komponentes ir ortogonālas parauga garākai malai (b), tiek novērota plāksnītes deformācijas gaismas izplatīšanās virzienā ($\sim 15 \mu\text{m}/500 \mu\text{m}$). Šīs deformācijas ir līdzīgas jau iepriekš apskatītajām, bet tikai šoreiz deformācijas ir paliekošas (c). Tad, apgaismojot paraugu ar paralēli polarizētu gaismu (d), paraugs deformējas uz pretējo pusi un arī paliek deformētā stāvoklī. Šīs deformācijas ir atkārtojamas vairākas reizes un līdz ar to šo tehniku ir iespējams izmantot dažādās atmiņas ierīcēs.



1.10. att. As_2S_3 parauga noliekšanās polarizētas gaismas ietekmē [21]

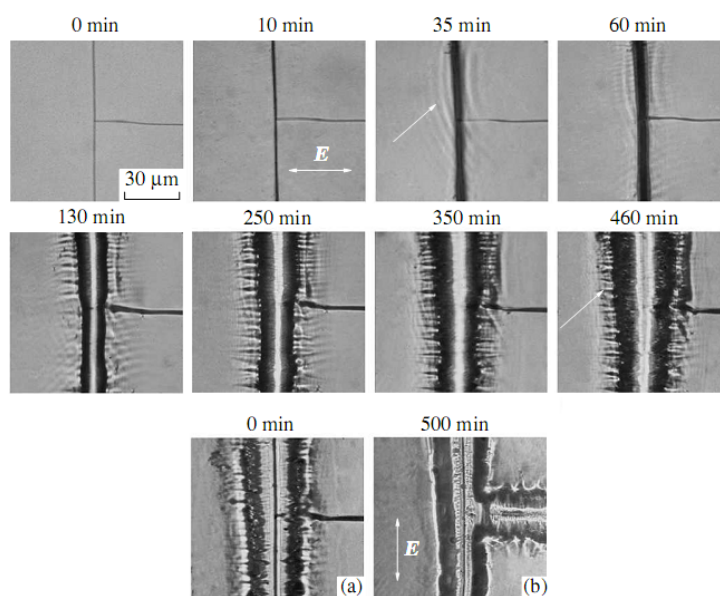
Parauga monoslānis ir redzams sānskatā, tās kreisā puse ir fiksēta

(a) un (c) attēli uzņemti attiecīgi pirms un pēc apstarošanas, (b) un (d) attēli uzņemti apstarošanas laikā, attēlos redzams arī elektriskā lauka virziens un laiks no pirmās apstarošanas

Noliešanās mehānisms ir ļoti spekulatīvs jautājums. Iespēšanās dziļums As_2S_3 ir aptuveni $50\mu\text{m}$ (2.3eV gaisma, absorbcijas koeficients $\alpha \approx 200\text{ cm}^{-1}$, $n \approx 2.7$ pie $\hbar\omega = 2.3\text{eV}$). Tā kā izvēlētais paraugs ir tikai $10\mu\text{m}$ biezs, tad ir diezgan lieki runāt par gaismas iespēšanās dziļuma efektu šajā ziņā. Pie tam polarizācijas atkarība un stabila noliece izslēdz vairākus efektus, kas saistīti ar termālo izplešanos [21]. Tiek minēts arī fakts, ka polarizēta gaisma rada materiālā anizotropu spriegumu, kas, dēļ parauga mīkstināšanās (plūstamības), izpaužas kā anizotropas deformācijas.

1.3.3.3. Plaisas deformācija

Trunovs ir atklājis foto inducētu anizotropu plaisas deformāciju As_2S_3 un citos halkogenīdos [22, 47]. Kā rādīts 1.11. attēlā, vienmērīgi apstarojot T-veida plaisu ar lineāri polarizētu gaismu, novērojam anizotropas deformācijas. Plaisā, kas ir perpendikulāra krītošās gaismas polarizācijai, sākuma stadijā veidojot U veida deformācijas, kas vēlāk pāriet uz M veida deformācijām (1.11. att.). Savukārt blakus esošajai plaisai ievērojamas deformācijas netiek novērotas. Pēc 460min, pagriežot gaismas polarizāciju par 90° grādiem, tiek novērota arī otrās plaisas deformācijas (1.11. att. (a) un (b)). Šāds process tiek skaidrots ar anizotropu foto inducēto mīkstināšanos [48-49].

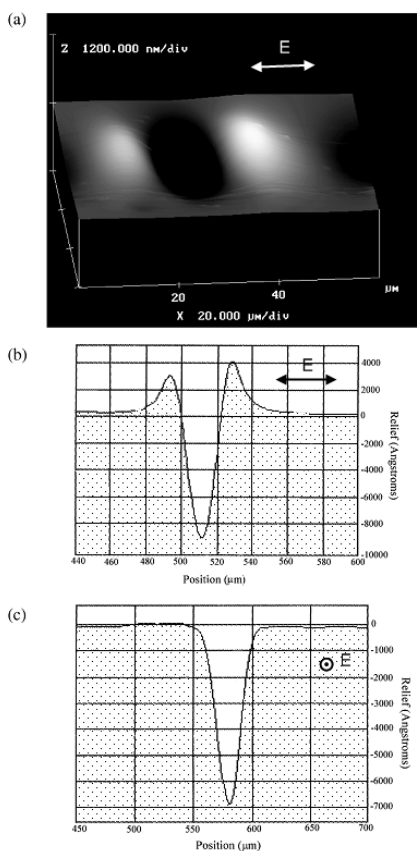


1.11. att. Anizotropa T-veida plaisas deformācija As-S kārtiņās [47]

Deformācijas iespējams iedalīt kā U veida (pirmā rinda) un M veida (otrā rinda) Apstarots ar 532nm lāzeru (diametrs $500\mu\text{m}$), jauda $\sim 350\text{mW}/\text{cm}^2$, plaisu dziļums vienāds ar kārtiņas biezumu ($3\mu\text{m}$); pēc 460min, pagriežot gaismas polarizāciju par 90° , novēro otras plaisas deformācijas (b)

1.3.3.4. Anizotropa M tipa deformācija

Saliminia u.c. ir pētījuši anizotropas deformācijas (M tipa) As_2S_3 halkogenīdos [25]. Istabas temperatūrā ar fokusētu argona jonu lāzera staru (514.5nm , $f \approx 95\text{mm}$) tika apstarota As_2S_3 kārtiņa, kur apstarotais laukums bija ar diametru $\sim 50\mu\text{m}$. Pie apgaismošanas enerģijas, kas lielāka par $0.6\text{kJ}/\text{cm}^2$ tika novērota reljefa modulācija (1.12. att.), kura sastāvēja no centrālās ieplakas un uzkalniņiem, kuru izvietojums bija atkarīgs no krītošās gaismas polarizācijas. Šie uzkalniņi arī norādīja krītošās gaismas polarizācijas virzienu.



1.12. att. Anizotropa M tipa deformācija [25]

(a) polarizētas gaismas apstarotās vieta AFM bilde, jauda $\sim 10\text{mW}$, apstarošanas laiks $\sim 480\text{sek}$, apstarotais laukums $\sim 40\text{-}50\mu\text{m}$, (b) un (c) 2D profili attiecīgi paralēli un perpendikulāri gaismas polarizācijai

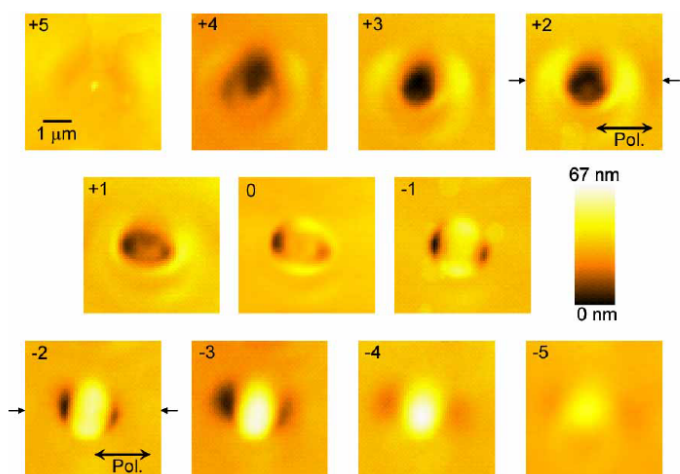
Attēlā 1.12. (a) redzam parastu 3D profilu foto inducētai reljefa modulācijai. 2D profili (b) un (c) uzskatāmi parāda uzkalniņu veidošanos (neveidošanos) attiecīgi paralēli un perpendikulāri krītošās gaismas polarizācijai. Deformētā laukuma lielums tika novērots aptuveni tāds pats kā krītošās gaismas diametrs [25]. Atkārtojot eksperimentu ar cirkulāri polarizētu gaismu, nekādas anizotropas parādības netiek novērotas. Iegūts simetrisku virsmas profilu ar vienmērīgu uzkalniņu apkārt ieplakai. Tanaka piedāvātais skaidrojums šim

procesam balstās uz foto-elektronu-atomu mijiedarbi, jeb anizotropu foto-inducēto iekšmolekulāro sakārtošanos un tam sekojošu struktūras relaksāciju [50].

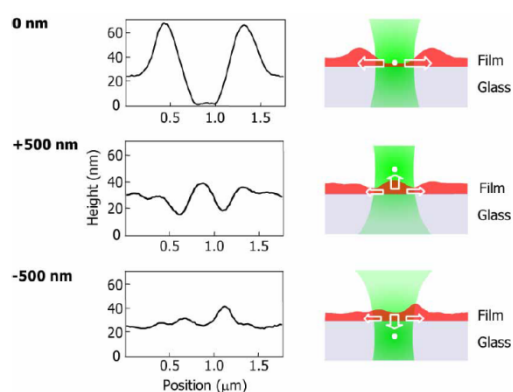
Tiek novēroti arī vēl citi foto inducēti anizotropi efekti amorfajos halkogenīdu pusvadītājos, kas ir līdzīgi jau apskatītajiem, tāpēc tos šeit neaplūkosim.

1.3.3.5. Fokusēts un polarizēts stars, tā trūkumi

Reljefa ierakstiem bieži tiek izmantota stara fokusēšanas tehnika (arī iepriekš aprakstītajām M tipa deformācijām). Šādi eksperimenti ir relatīvi vienkārši realizējami un nav nepieciešami lāzери ar augstu koherenci. Ishitobi un citi 2008. gadā [18-19] ir parādījuši, ka fokusēta stara izvēle reljefa ierakstam nebūt nav tas labākais variants no ieraksta izpētes viedokļa- nezinot precīzu fokusa atrašanās vietu, rezultāts var būt neprognozējams. Respektīvi, ir parādīts, ka stingri fokusēta stara izveidotas virsmas deformācijas azopolimēros ir stipri atkarīgas no fokusa atrašanās vietas (1.13. un 1.14. att.). Šajos attēlos redzam, ka, mainot fokusa attālumu no $-5\mu\text{m}$ (fokuss parauga iekšienē) līdz $+5\mu\text{m}$ ar $1\mu\text{m}$ periodu, ir iespējams iegūt visdažādākās formas struktūras. Pirmais ieraksts tika veikts ar fokusu $5\mu\text{m}$ virs parauga (atzīmēts ar “+5” uz attēla) un tad periodiski fokuss tika bīdīts tuvāk paraugam par $1\mu\text{m}$ un veikts jauns ieraksts. Process tika atkārtots līdz fokusa attālums sasniedza $-5\mu\text{m}$ jeb $5\mu\text{m}$ paraugā iekšā. Ierakstiem, kur fokuss bija virs parauga tiek novērotas M tipa deformācijas, bet, fokusam atrodoties parauga iekšienē, tiek novērotas W tipa



1.13. att. AFM topogrāfijas attēli dažādiem virsmas reljefa deformācijas gadījumiem [19]
Ieraksts veikts PMA-DR1 (Aldrich, $T_g=82^\circ\text{C}$) ar 920nm gaismu, mainot lāzera fokusa attālumu līdz vismai no $-5\mu\text{m}$ (fokuss parauga iekšienē) līdz $+5\mu\text{m}$ ar $1\mu\text{m}$ periodu, polarizācijas virziens atzīmēts ar bultiņu,



1.14. att. AFM topogrāfijas profils polarizācijas virzienā kā arī shematisks stara fokusa un parauga attēlojums gadījumos, kad fokusa attālums līdz paraugam ir vienāds ar 0, +500 vai -500nm [19]

deformācijas. Pie maziem fokusa attālumiem, kur ierakstītais reljefs salīdzināms ar fokusa attālumu (1.14. att.) situācija ir vēl sarežģītāka, jo masas pārnese rezultātā fokusa attālums būtiski mainās.

Turpmākos eksperimentos, analizējot rezultātus, šīs visas lietas ir jāņem vērā un pēc iespējas vairāk jāizvairās no iespējamām divdomīgām situācijām.

1.3.4. Foto inducētā masas pārnese procesa iespējamie mehānismi

Neskatoties uz to, ka ir iegūti salīdzinoši daudz tiešā ieraksta eksperimentu rezultātu veselai virknei neorganisko materiālu (tai skaitā amorfos halogēnu pusvadītājos) [1, 4-5, 7, 9, 11-12, 14-15, 21, 25, 51-65] kā arī dažādos gaismu jutīgos organiskajos azo molekulu savienojumos [16, 26, 66-76], pilnīgs un visaptverošs ieraksta mikroskopiskais modelis vai mehānisms vēl joprojām nav atrasts. Līdz šim visko-elastiskais (jeb viskozas masas plūsmas) ieraksta modelis, tieši neaprakstot mikroskopiskos spēkus, ir ļoti labi sakritis ar eksperimentāli novērotajiem tiešajiem optisko ierakstu rezultātiem [77]. Vēlāk modelī tika ņemts vērā kārtiņas biezums un ātruma sadalījums kārtiņas iekšienē [78-79], kas modelī noteica ieraksta efektivitāti jeb ieraksta dziļuma atkarību no kārtiņas biezuma. Nākamajā uzlabojumā tika ņemta vērā foto-inducētā anizotropija [80], kas turpmāk labi aprakstīja anizotropās deformācijas dažādos eksperimentos [81]. Galīgo elementu lineārais visko-elastiskais modelis sevī ietver arī galīgu saspiežamību [82], no kura izriet arī fakts, ka virsmas spraigums darbojas kā pretspēks virsmas reljefa veidošanai, kas savukārt izskaidro ieraksta piesātinājuma efektu. Visbeidzot, reljefa veidošanās kinētika jeb nelineārā visko-elastiskā plūsma un deformācijas tika iegūtas ar šūnas Monte Carlo simulācijas metodi [83-85]. Lai cik labs būtu visko-elastiskais modelis, tas tomēr nedod priekšstatu par tajā iesaistītajiem spēkiem un to dabu, līdz ar to joprojām notiek aktīva pētniecība pie mikroskopisko spēku izcelsmes materiālā noskaidrošanas.

Šajā daļā tiks apskatīti populārākie modeļi, kas, iespējams, apraksta foto inducētos spēkus un to virzienus kā rezultātā tiek novērota masas pārnese kādā noteiktā virzienā. Tā kā tiešais ieraksts salīdzinoši vairāk ir pētīts organiskajos materiālos, arī šie modeļi galvenokārt izveidoti balstoties uz organiskajiem azo savienojumiem, kurus ir iespējams arī vispārināt uz visiem gaismas jutīgiem materiāliem.

Asimetriskās difūzijas modelis

Vienkāršu anizotropu masas pārnese mehānismu pirmais aprakstīja Lefins ar kolēģiem 1998. gadā [86-87]. Šajā modelī masas pārnese tiek novērota azo savienojumos sakārtotības

gradienta iespaidā. Pēc nejauša pārvietojuma principa molekulas, kas satur hromoforus, ātras trans-cis pārslēgšanās jeb izomerizācijas rezultātā pārvietojas galvenokārt savas garākās ass virzienā. Šo procesu apraksta difūzijas vienādojums. Pārvietojuma varbūtība ir proporcionāla molekulu izomerizācijas varbūtībai, kas, protams, ir atkarīga no gaismas intensitātes un leņķa starp molekulu asīm un gaismas polarizācijas virzienu. Šis modelis paredz molekulu plūsmu prom no apgaismotajiem apgabaliem uz neapgaismotiem, kas arī sakrīt ar eksperimentu rezultātiem. Tomēr pretēji eksperimentos novērotajam, asimetriskās difūzijas modelis paredz labākos rezultātus nevis polimēriem, bet gan mazmolekulārajiem savienojumiem.

Vidējā lauka modelis

Mehānisms, kas balstās uz elektromagnētiskajiem spēkiem, ir visai daudzsološs, jo tas jau pamatā iekļauj izmantotā starojuma intensitāti un tā polarizāciju. Šo modeli pirmais aprakstīja Pedersens ar kolēģiem 1998. gadā [88-89]. Organiskajos azo savienojumos hromofori atrodas kaimiņu hromoforu dipola momenta radītā potenciālā. Vidējā lauka modelī gaisma orientē hromoforus noteiktā virzienā un, vienādi orientētu dipolu pievilkšanās spēku rezultātā, hromofori pievelkas viens pie otra. Šāds modelis paredz masas pārneši gaismas virzienā, tādējādi iegūtā reljefa maksimumi sakrīt ar gaismas intensitātes maksimumiem, kas izpildās šķīdros kristālos, bet ne vienmēr eksperimentāli izpildās amorfos halkogenīdos vai amorfos polimēros.

Dielektriskās caurlaidības (ϵ) gradienta modelis

Modeli, balstītu uz dielektriskās caurlaidības ϵ telpisku sadalījumu, pirmais ir aprakstījis Baldus 2001. gadā [90]. Šeit tiek pieņemts, ka kārtiņā tiek inducēts telpiski sadalīts laušanas koeficients, kas savukārt ir saistīts ar telpiski sadalītu dielektrisko caurlaidību. Šāds pieņēmums ir pilnībā pamatots, jo lielākā daļa gaismu jutīgo organisko un neorganisko materiālu raksturojas ar foto orientācijas īpašību un foto inducēto dubultlaušanu. Elektriskais lauks un dielektriskās caurlaidības gradients rada spēku:

$$\vec{f} = -\frac{\epsilon_0}{2} \vec{E}^2 \nabla \epsilon \quad 1-6$$

Dotais spēks ir proporcionāls dielektriskās caurlaidības gradientam un elektriskā lauka intensitātei masas pārnese virzienā. No formulas seko, ka masa tiek bīdīta prom no dielektriskās caurlaidības gradienta, kas vairums gadījumos nozīmē masas pārneši virzienā uz neapgaismoto vietu. No šī modeļa seko, ka jebkurai sistēmai ar telpiski sadalītu laušanas koeficientu vajadzētu būt iespējai veidot tiešos ierakstus, bet vēl nekas tāds literatūrā nav aplūkots.

Elektriskā lauka intensitātes gradienta spēka modelis

Kumars ar kolēģiem ieviesa mehānismu balstītu uz novērojumiem, ka veiksmīgam tiešajam ierakstam ir nepieciešama elektriskā lauka komponente masas pārnesei virzienā [91-94]. Šādu modeli var aprakstīt ar optiskā gradienta spēku [95-96]. Telpisks gaismas sadalījums jeb elektriskā lauka intensitātes un orientācijas sadalījums noved pie dielektriskās uzņēmības χ sadalījuma uz kārtiņas virsmas. Elektriskais lauks polarizē materiālu un inducētā polarizācija ir saistīta ar izmantotās gaismas intensitāti un lokālo dielektrisko uzņēmību χ :

$$\vec{P}_i = \varepsilon_0 \chi_{ij} \vec{E}_j, \quad 1-7$$

kur \vec{P}_i ir polarizācija, ε_0 ir dielektriskā caurlaidība vakuumā, χ_{ij} ir kārtiņas dielektriskā uzņēmība un \vec{E}_j ir gaismas radītais elektriskais lauks. Līdzīgi kā uz dipolu elektriskajā laukā darbojas spēks, tā pat arī šajā gadījumā no gaismas lauka parādās spēki polarizētā materiālā. Laikā vidējots spēks ir ar sekojošu izskatu [93]:

$$\vec{f} = \langle (\vec{P} \cdot \nabla) \vec{E} \rangle \quad 1-8$$

No šīs formulas redzam, ka ieraksta efektivitāte ir saistīta ar kārtiņas dielektriskās uzņēmības telpisko sadalījumu, elektriskā lauka lielumu un tā intensitātes gradientu. Elektriskā lauka intensitātes gradienta spēka modelis sevī iekļauj ierakstu atkarībā no izmantotās gaismas polarizācijas un tādējādi labi apraksta eksperimentos novēroto polarizācijas atkarību. Savukārt citā literatūrā tiek aprakstīts, ka dotais spēks ir nepietiekams masas pārnesei reālā sistēmā [82]. Rakstā tiek minēts, ka, piemēram, divu cirkulāru staru interferences gadījumā x-ass virzienā vērtais spēks var tik aprakstīts kā:

$$f = -k \varepsilon_0 \chi E_0^2 \sin \theta (1 + \cos^2 \theta) \sin(kx \sin \theta), \quad 1-9$$

kur 2θ ir leņķis starp \mathbf{k} vektoriem un $k=2\pi/\lambda$. Tā kā $E_0^2 = 2Iz_0$ un z_0 ir vakuuma impedance (elektriskā un magnētiskā lauka attiecība) un I ir gaismas intensitāte seko, ka maksimālais sagaidāmais spēks ir:

$$f_{\max} = \frac{4\pi}{\lambda} \varepsilon_0 z_0 \chi I \quad 1-10$$

Izmantojot sekojošās vērtības $\varepsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{-12} \text{C}^2/(\text{Nm}^2)$, $|\chi| \approx 1$ un $z_0 = 377\Omega$, kā arī raksturīgās gaismas intensitātes un viļņa garuma vērtības $I = 100 \text{mW/cm}^2$ un $\lambda = 488 \text{nm}$, iegūstam aptuveno spēku 100N/m^3 . Iegūtā spēka vērtība ir tālu prom no sagaidāmās vērtības ($10^{11} - 10^{14} \text{N/m}^3$) masas pārnesei, turklāt tā ir par divām kārtām mazāka par gravitācijas spēku, kas pats par sevi ir nenozīmīgs lielums.

2. VIĻŅU OPTIKAS PAMATELEMENTI

2.1. Viļņu vienādojums

Gaisma izplatās viļņveidīgi jeb tai ir viļņu daba. Brīvā vidē gaismas viņi ceļo ar ātrumu c_0 . Caurspīdīgās un homogēnās vidēs (kā stikls) ar laušanas koeficientu n , kas ir lielāks par vienu, gaismas viļņi ceļo ar samazinātu ātrumu:

$$c = \frac{c_0}{n} \quad 2-1$$

Matemātiski vilnis ir aprakstāms ar reālu funkciju u no novietojuma $r=(x,y,z)$ un laika t . Šī funkcija $u=u(r,t)$ ir pazīstama kā viļņu funkcija un tā apmierina viļņu vienādojumu:

$$\nabla^2 u - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = 0 \quad 2-2$$

Kur ∇^2 ir Laplasa operators. Katra funkcija, kas apmierina doto vienādojumu, apraksta iespējamo optisko vilni. Tā kā viļņu vienādojums ir lineārs, superpozīcija no atsevišķām viļņu funkcijām $u(r,t)=u_1(r,t)+u_2(r,t)$ arī apmierina doto vienādojumu.

2.2. Intensitāte [W/cm^2], jauda [W] un enerģija [J]

Intensitāte $I(r,t)$ viļņu optikā tiek definēta kā jauda uz laukuma vienību (W/cm^2), kas ir proporcionāla vidējai vērtībai no viļņu funkcijas kvadrāta [97]:

$$I(\vec{r}, t) \propto 2 \langle u^2(\vec{r}, t) \rangle \quad 2-3$$

Operators $\langle \rangle$ apzīmē vidējošanu laika intervālā, kas ir daudz lielāks par optisko ciklu, bet daudz mazāks par apskatīšanai derīgo intervālu (piem., gaismas impulsa ilgums). Optiskā cikla laiks ir ļoti niecīgs, tik $2 \cdot 10^{-15} \text{s} = 2 \text{fs}$ gaismai ar viļņa garumu 600nm.

Jauda $P(t)$, kas krīt uz laukumu A - perpendikulāru gaismas izplatīšanās virzienam, ir intensitātes integrālis šajā laukumā:

$$P(t) = \int_A I(\vec{r}, t) dA \quad 2-4$$

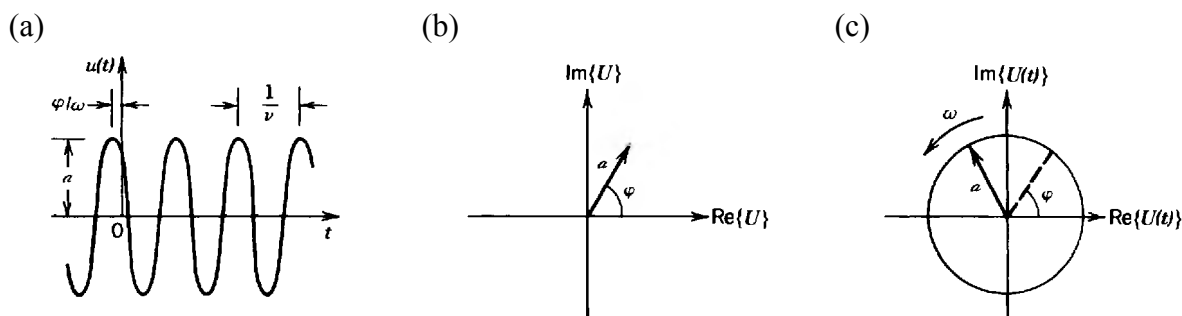
Iegūtā *enerģija* kādā laika intervālā ir jaudas $P(t)$ laika integrālis šajā intervālā.

2.3. Monohromatisks vilnis

Monohromatisks vilnis ir attēlojams ar viļņu funkciju, kas periodiski atkārtojas laikā [97]:

$$u(\vec{r}, t) = a(\vec{r}) \cos[2\pi\nu t + \varphi(\vec{r})] \quad 2-5$$

kā attēlots 2.1a. attēlā, kur $a(\vec{r})$ - amplitūda, $\varphi(\vec{r})$ - fāze, ν - frekvence, $\omega = 2\pi\nu$ - leņķiskā



2.1. att. Monohromatiskā viļņa reprezentācija fiksētā stāvoklī r [97]

(a) viļņu funkcija $u(t)$ ir harmoniska laika funkcija; (b) no laika neatkarīgās kompleksās amplitūdas $U = a \exp(i\varphi)$ reprezentācija; (c) kompleksās viļņu funkcijas $U(t) = U \exp(i2\pi\nu t)$ reprezentācija kā kompleksās amplitūdas rotēšana ar ātrumu $\omega = 2\pi\nu$ (radiāni sekundē)

frekvence. Amplitūda un fāze ir galvenokārt stāvokļa funkcijas, bet viļņa funkcija ir harmoniska funkcija laikā ar frekvenci ν . Optiķā apskata viļņus frekvenču intervālā no $3 \cdot 10^{11}$ līdz $3 \cdot 10^{16}$ Hz.

2.4. Viļņu funkcijas kompleksā reprezentācija

Reizēm ir ērti izteikt reālo viļņa funkciju $u(r,t)$ no (2-5) ar kompleksas funkcijas palīdzību [97]:

$$U(\vec{r}, t) = a(\vec{r}) \exp[i2\pi\nu t + i\varphi(\vec{r})] = a(\vec{r}) \exp[i\varphi(\vec{r})] \exp[i2\pi\nu t] \quad 2-6$$

kur

$$u(\vec{r}, t) = \text{Re}\{U(\vec{r}, t)\} = \frac{1}{2} [U(\vec{r}, t) + U^*(\vec{r}, t)] \quad 2-7$$

Funkciju $U(r,t)$ sauc par komplekso viļņa funkciju, kas pilnībā apraksta doto vilni. Viļņa funkcija $u(r,t)$ ir vienkārši tās reālā daļa. Kompleksajai viļņa funkcijai arī jāapmierina viļņa vienādojums:

$$\nabla^2 U - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 U}{\partial t^2} = 0 \quad 2-8$$

Vienādojums (2-6) var tikt uzrakstīts kā:

$$U(\vec{r}, t) = U(\vec{r}) \exp(i2\pi\nu t) \quad 2-9$$

kur no laika neatkarīgā komponente $U(\vec{r}) = a(r) \exp[i\varphi(\vec{r})]$ tiek saukta par komplekso amplitūdu. Viļņu funkcija $u(r,t)$ ir saistīta ar komplekso amplitūdu kā

$$u(\vec{r}, t) = \text{Re}\{U(\vec{r}) \exp(i2\pi\nu t)\} = \frac{1}{2} [U(\vec{r}) \exp(i2\pi\nu t) + U^*(\vec{r}) \exp(-i2\pi\nu t)] \quad 2-10$$

Ievietojot 2-9 izteiksmi 2-8 vienādībā, iegūstam sekojošu diferenciālvienādojumu:

$$(\nabla^2 + k^2)U(\vec{r}) = 0 \quad 2-11$$

kur k ir pazīstams kā viļņu skaitlis

$$k = \frac{2\pi\nu}{c} = \frac{2\pi}{\lambda} \quad 2-12$$

Apskatot vēlreiz intensitātes formulu (2-3) un pārveidojot to kompleksās viļņu funkcijas gadījumam, iegūstam:

$$2u^2(\vec{r}, t) = 2a^2(r) \cos^2[2\pi\nu t + \varphi(\vec{r})] = |U(\vec{r})|^2 \{1 + \cos(2[2\pi\nu t + \varphi(\vec{r})])\} \quad 2-13$$

Šo izteiksmi vidējot par laiku, kas lielāks par optisko periodu $1/\nu$, otrais loceklis izteiksmē (2-13) izzūd. Līdz ar to, optiskā intensitāte izsakās kā [97]:

$$I(\vec{r}) \propto |U(\vec{r})|^2 \quad 2-14$$

Tātad, monohromatiska viļņa intensitāte ir vienāda ar absolūto kompleksās amplitūdas moduļa kvadrātu, un tā nemainās laikam plūstot.

2.5. Divu viļņu interference

Kad divi monohromatiski viļņi ar kompleksām amplitūdām $U_1(r)$ un $U_2(r)$ nonāk kontaktā, veidojas monohromatisks vilnis ar to pašu frekvenci un kompleksu amplitūdu:

$$U(\vec{r}) = U_1(\vec{r}) + U_2(\vec{r}) \quad 2-15$$

No (2-14) seko, ka katra stara intensitāte ir $I_1 = |U_1|^2$ un $I_2 = |U_2|^2$ un viļņu summas intensitāte [97]:

$$I = |U|^2 = |U_1 + U_2|^2 = |U_1|^2 + |U_2|^2 + U_1^* U_2 + U_1 U_2^* \quad 2-16$$

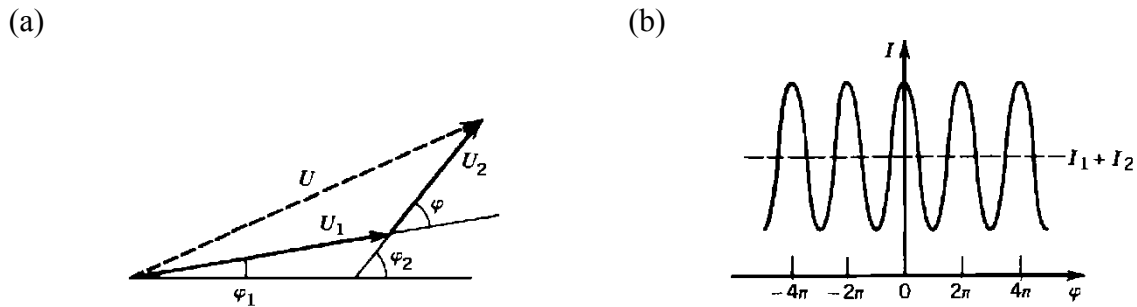
Ieviešot jaunus apzīmējumus

$$U_1 = I_1^{1/2} \exp(i\varphi_1) \quad \text{un} \quad U_2 = I_2^{1/2} \exp(i\varphi_2) \quad 2-17$$

Un ievietojot (2-17) izteiksmē (2-16), kur φ_1 un φ_2 abu viļņu fāzes ($\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$), iegūstam

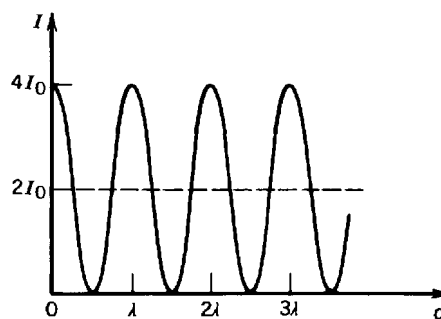
$$I = I_1 + I_2 + 2(I_1 I_2)^{1/2} \cos \varphi \quad 2-18$$

Šo izteiksmi sauc par interferences vienādojumu, kas arī redzams no komplekso viļņu funkciju vektoru diagrammas ģeometrijas (sk. 2.2a. att.). Tā rāda, ka summārā viļņu funkciju amplitūda ir atkarīga ne tikai no katras viļņu funkcijas amplitūdas, bet arī no fāzu starpības φ



2.2. att. (a) viļņu funkciju vektoru diagramma divu viļņu ar intensitātēm I_1 un I_2 un fāzu starpību $\varphi = \varphi_2 - \varphi_1$ superpozīcijas gadījumā, (b) summārās intensitātes atkarība no fāzu starpības φ [97]

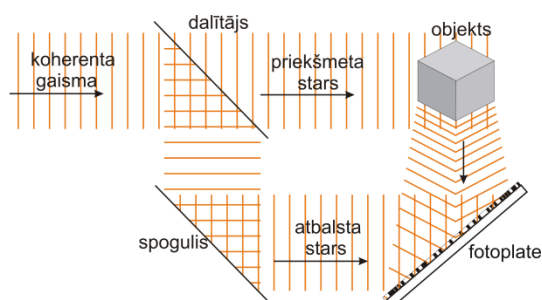
Divu viļņu summas intensitāte nav tas pats, kas summa no to intensitātēm (2.2b. att.), jo papildus loceklis rodas dēļ interferences starp abiem viļņiem, kas redzams arī formulā (2-18). Šis loceklis var būt gan pozitīvs, gan negatīvs, raksturojot konstruktīvu vai destruktīvu interferenci. Ja $I_1 = I_2 = I_0$, tad $I = 2I_0(1 + \cos \varphi) = 4 I_0 \cos^2(\varphi/2)$ (sk. 2.3. att.). Šajā gadījumā pie $\varphi = 0$, $I = 4I_0$ (summārā gaismas intensitāte ir četras reizes lielāka par katra atsevišķā viļņa intensitāti) un pie $\varphi = \pi$ summētie viļņi dzēš viens otru un $I = 0$. Savukārt, kad $\varphi = \pi/2$ vai $\pi/3$, interferences loceklis pazūd un $I = 2I_0$ (summārā intensitāte ir katra atsevišķā viļņa intensitāte). Lielā intensitātes izmaiņa, mainoties fāzu starpībai φ , atļauj mērīt fāzu diferenci detektējot gaismas intensitāti. Šis princips tiek izmantots ļoti daudzās optiskās sistēmās.



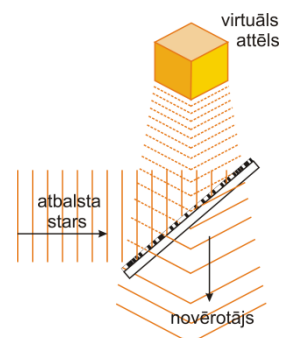
2.3. att. Intensitātes I sadalījums divu viļņu superpozīcijas gadījumā (katra viļņa intensitāte vienāda ar I_0) atkarība no viļņu ceļu starpības d [97]

Gadījumā, kad d ir daudzkārtņis no viļņa garuma λ , interference ir konstruktīva, bet kad nepāra daudzkārtņis no $\lambda/2$, tad interference ir destruktīva

3. HOLOGRĀFISKAIS IERAKSTS



3.1. att. Tipiska hologrāfiskā ieraksta shēma



3.2. att. Telpiska objekta restaurēšanas shēma

Hologrāfija ir priekšmeta telpiska attēla iegūšanas process. Šis process sastāv no vairākām daļām jeb pakāpēm. Pirmajā pakāpē objektu apgaismo ar koherentu gaismu un fotoplatē jeb gaismu jutīgajā materiālā reģistrē dotā objekta caurizgājušās vai atstarotās gaismas interferences ainu. Lai to panāktu, krītošo gaismas kūli sadala divos, kur ar vienu gaismas kūli apgaismo fotoplati, bet ar otru fotoplati apgaismo tikai pēc atstarošanas no objekta (3.1. att.). Šie divi koherentie- priekšmeta un atbalsta stari (kūļi) pārklājoties veido hologrammu jeb interferences ainu. Līdz ar to hologramma ir interferences aina, kas tikusi reģistrēta gaismas jutīgajā materiālā. Hologramma satur optisko priekšmeta kodu jeb šifru, no kura ir iespējams iegūt telpisko attēlu. Ja priekšmeta un atbalsta stari ir plakani viļņi (objekts tiek aizstāts ar spoguļi), tad hologrammu veidojošā interferences aina būs sinusoidāla, un tās orientācija būs atkarīga no ieraksta nosacījumiem. Savukārt, otra hologrāfijas daļa jeb pakāpe ir saistīta ar telpiska objekta restaurēšanu (3.2. att.). Hologrammu apgaismojot ar atbalsta staru, izkliedētajā gaismā ir iespējams novērot ierakstītā objekta telpisku attēlu - hologramma gaismu izkliedē tāpat kā objekts. Tādā veidā ierakstītā hologramma restaurē objekta izkliedētās gaismas viļņa fronti. Restaurējot šo viļņu fronti, ir iespējams iegūt attēla telpiskumu. Ierakstītais un vēlāk restaurētais attēls ir objekta precīza optiska kopija.

3.1. Hologrammu klasifikācija

Hologrammu klasifikācijai parasti tiek izmantotas interferences ainas īpašības vai reģistrējošās vides optiskās un mehāniskās īpašības. Atkarībā no hologrammu ieraksta veida,

gaismu jutīgā materiāla optiskajām īpašībām un biezuma, izšķir sekojošus hologrammu veidus:

- 1) divdimensionālas (plānas) vai trīsdimensionālas (biezas, tilpuma);
- 2) amplitūdas vai fāzes;
- 3) caurlaidības (transmisijas) vai atstarojošās (refleksijas).

3.1.1. Divdimensionālas un trīsdimensionālas hologrammas

To, vai hologramma būs 2D jeb *plāna* vai 3D jeb *bieza (tilpuma)*, nosaka hologrāfiskā ieraksta interferences ainas perioda Λ un gaismas jutīgā slāņa biezumu d attiecība.

Plānām hologrammām hologrāfiskā režģa (interferences ainas) periods Λ ir lielāks par gaismu jutīgā materiāla biezumu d vai arī ir vienāds ar to. Restaurējot plāno hologrammu, ir iespējams iegūt divus attēlus- gan šķietamo, gan reālo. *Biezās* hologrammās, savukārt, hologrāfiskā režģa periods ir mazāks attiecībā pret gaismu jutīgā materiāla biezumu ($\Lambda \ll d$). Ierakstot elementāro hologrammu, biezas hologrammas gadījumā, optiskajā reģistrējošajā vidē veidojas 3D hologrāfiskais režģis. Atšķirībā no plānām hologrammām, biezas kalpo ir arī kā difrakcijas (interferences) filtri un attēlu tajā ir iespējams restaurēt arī baltajā gaismā. 3D tilpuma hologrammās reģistrē ne tikai gaismas viļņu fāzes un amplitūdu, bet arī to viļņu vektorus, kuri viennozīmīgi nosaka gaismas izplatīšanās virzienu un viļņu garumu. Līdz ar to, restaurējot biezas hologrammas, ir iespējams iegūt tikai vienu vienīgu attēlu- reālo vai šķietamo, ko nosaka restaurējošā (krītošā) stara virziena un hologrammas attiecība [41].

Atkarībā no leņķa lieluma starp parauga normāli un krītošo staru, kā arī no gaismas viļņa garuma, ierakstītā hologrāfiskā režģa periods ir iespējams plašā intervālā. Vienā un tai pašā fotoplatē ar uzdotu biezumu var ierakstīt gan plānās, gan arī biezas hologrammas. Tāpēc tiek ieviest stingrāks hologrammas tipa kritērijs- Kleina kritērijs:

$$Q = \frac{2\pi \lambda d}{n\Lambda^2}, \text{ kur} \quad 3-1$$

d - reģistrējošās vides biezums;

λ - gaismas viļņa garums gaisā;

Λ - interferences režģa periods.

n - vides laušanas koeficients;

Kleina kritērijs saka, ja $Q \geq 10$, tad hologramma ir bieza, bet $Q \leq 1$ -hologramma ir plāna.

3.1.2. Amplitūdas un fāzes hologrammas

Atkarībā no foto inducēto optisko konstanšu izmaiņu lieluma, hologrammas vai reģistrējošos materiālus var iedalīt kā amplitūdas vai fāzes hologrammas (3.3. att.).

Amplitūdas hologrammai gaismas izraisītās absorbcijas koeficienta izmaiņas materiālā ir daudzkārt lielākas par materiāla laušanas koeficienta izmaiņām ($\Delta\alpha \gg \Delta n$). Šajā gadījumā hologrāfisko režģa ierakstu nosaka $\Delta\alpha$ telpiskā modulācija. Plakano viļņu interferences gadījumā, reģistrēto ainu gaismu jutīgā materiālā raksturo ar sinusoidālo funkciju:

$$\alpha(x) = \alpha_0 + \alpha_A \cos(|\vec{K}| \cdot x), \text{ kur } |\vec{K}| = \frac{2\pi}{\Lambda}, \quad 3-2$$

α_0 - vidējais absorbcijas koeficients pēc ieraksta,

α_A - absorbcijas koeficienta modulācijas amplitūda.

x - koordināta gar parauga virsmu,

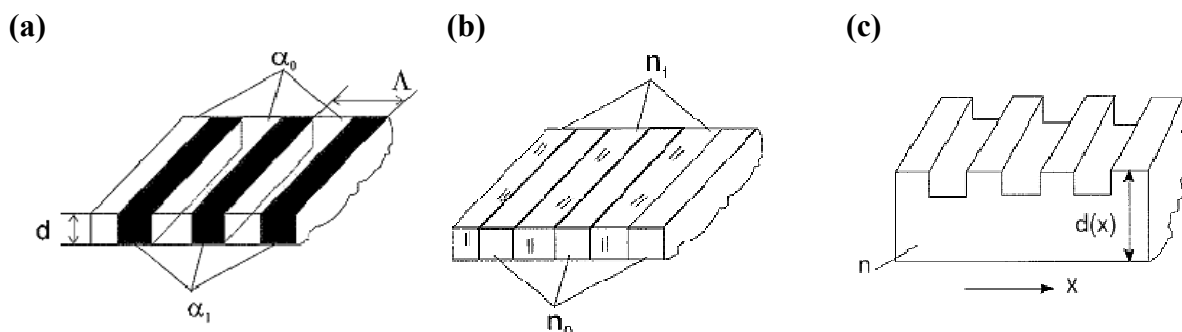
Fāzes hologrammai gaismas izraisītās laušanas koeficienta izmaiņas materiālā ir daudzkārt lielākas par materiāla absorbcijas koeficienta izmaiņām ($\Delta\alpha \ll \Delta n$). Tādā gadījumā hologrāfisko režģa ierakstu nosaka Δn telpiskā modulācija. Plakanu viļņu interferences gadījumā, reģistrēto laušanas koeficienta modulāciju var raksturot ar izteiksmi:

$$n(x) = n_0 + n_A \cos(|\vec{K}| \cdot x), \text{ kur} \quad 3-3$$

n_0 – vides vidējais vides laušanas koeficients pēc ieraksta,

n_A - laušanas koeficienta modulācijas amplitūda.

Jāievēro tas, ka izteiksmes (3-2) un (3-3) ir spēkā vienīgi, ja Δn un $\Delta\alpha$ ir lineāri atkarīgas no ekspozīcijas. Vispārīgā gadījumā laušanas koeficients un absorbcijas koeficients vidē mainās nelineāri un rezultātā hologrammu veido nesinusoidāli telpiskie režģi.



3.3. att. Hologrāfisko ierakstu veidi [41]

(a) amplitūdas (α modulācija); (b) fāzes (n modulācija); (c) reljefa (d modulācija)

Atkarībā no izmantotās gaismas viļņa garuma gan ieraksta, gan nolasīšanas laikā, vienā un tai pašā gaismu jutīgā materiālā var ierakstīt gan amplitūdas, gan arī fāzes hologrammas. Materiāla absorbcijas spektra maksimuma tuvumā iespējamāks ir amplitūdas ieraksts (anomālās dispersijas rajons). Savukārt, viļņu garumu rajonā, kas pārsniedz absorbcijas spektra viļņa garumu, dominē fāzes ieraksta efekts. Reālās vidēs parasti realizējas jaukts gadījums- gan amplitūdas, gan arī fāzes hologrāfisks ieraksts.

3.1.3. Caurlaidības un atstarojošās hologrammas

Caurlaidības vai *atstarojošās* hologrammas ierakstu nosaka ieraksta-objekta un atbalsta stara (ar staru amplitūdām attiecīgi A_S un A_R) relatīvie virzieni attiecībā pret optisko reģistrējošo vidi (3.4. un 3.5. att.). Ja ierakstošie stari krīt uz gaismu jutīgo materiālu no vienas puses, tad tiek iegūta *caurlaidības* hologrammu. Šāda tipa hologrammu restaurējot, šķietamais attēls veidojas caur paraugu izgājušajā gaismā. Gadījumā, ja ierakstošie stari krīt uz gaismu jutīgo materiālu no pretējām pusēm- tiek ierakstīta *atstarojošā* hologramma, un, šo hologrammu restaurējot, šķietamais attēls veidojas nolasošā stara atstarotajā gaismā [41].

3.2 Hologrāfisko režģu galvenie parametri

3.2.1. Hologrāfiskā ieraksta interferences ainas periods

Plakanu ierakstošo staru viļņu ar viļņa vektoru \mathbf{K}_S un \mathbf{K}_R un viļņu amplitūdu A_S un A_R gadījumā, gaismas intensitātes sadalījums reģistrējošā vidē apraksta sekojoši [41]:

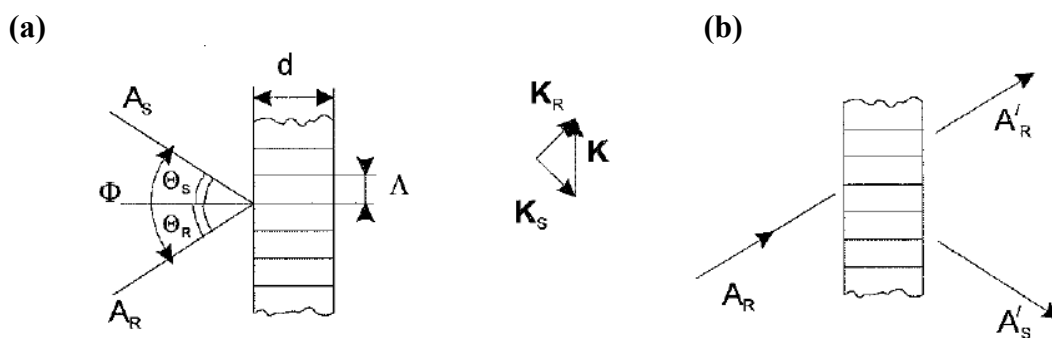
$$I(\vec{r}) = A_S^2 + A_R^2 + 2A_S A_R \cos[(\vec{K}_R - \vec{K}_S) \cdot \vec{r}], \text{ kur} \quad 3-4$$

\vec{r} - rādiusvektors.

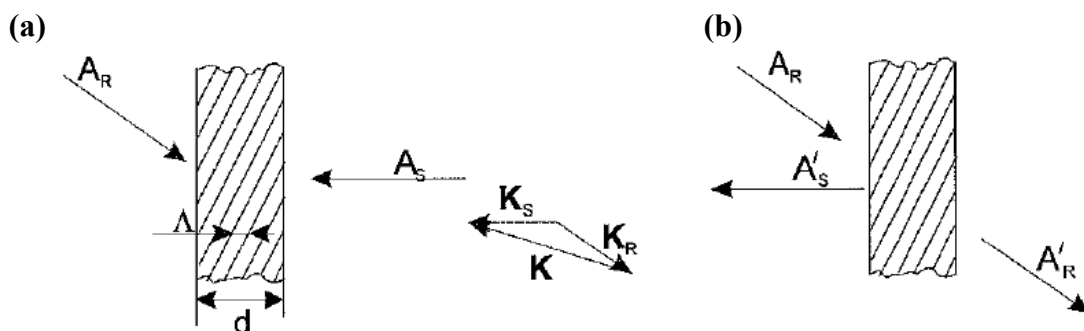
Gaismu reģistrējošā vidē ir iespējams izveidot dažādu struktūru interferences ainu, kas ir atkarīga no objekta un atbalsta staru izplatīšanās virziena. Gaismas interferences intensitātes sadalījums gaismu jutīgā materiālā izsauc attiecīgas laušanas koeficienta n un absorbcijas koeficienta α izmaiņas.

Gadījuma, ja tiek uzdoti objekta un atbalsta staru viļņu vektori, tad gaismas interferences ainu ir iespējams raksturot ar vektoru \vec{K} (3.4. un 3.5. att.):

$$\vec{K} = \vec{K}_R - \vec{K}_S \quad 3-5$$



3.4. att. Interferences ainas struktūra (a) un viļņa frontes restaurēšanas shēma (b) caurlaidības (transmisijas) hologrammās [41]



3.5. att. Interferences ainas struktūra (a) un viļņa frontes restaurēšanas shēma (b) atstarojošās (refleksijas) hologrammās [41]

Plakano viļņu ieraksta gadījumā vektors \vec{K} ir perpendikulārs attiecībā pret interferences ainas joslām un šī vektora modulis ir apgriezti proporcionāls gaismas interferences ainas periodam Λ :

$$|\vec{K}| = \frac{2\pi}{\Lambda} \quad 3-6$$

Vienkāršākajā gadījumā, ja $|\vec{K}_R| = |\vec{K}_S|$ un objekta un atbalsta staru krišanas leņķi sakrīt, t.i., $\Theta_R = \Theta_S = \Theta = \frac{\Phi}{2}$, tad gaismas interferences ainas periods Λ ir sekojošs:

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2 \sin \Theta} = \frac{\lambda}{2 \sin \frac{\Phi}{2}}, \text{ kur} \quad 3-7$$

λ - gaismas viļņa garums.

Biezo hologrammu gadījumā ($\Lambda \ll d$) veidojas telpisks interferences režģis, līdz ar to informācijas optiskajam ierakstam tiek izmantotas visas trīs dimensijas. Ierakstot

šādas hologrammas ir jāievēro gaismas izplatīšanas virziena izmaiņas, gaismai pārejot no gaisa uz vidi ar laušanas koeficientu n . Ja hologrāfiskajā ierakstā Θ_S un Θ_R ir objekta un atbalsta staru krišanas leņķi un Θ'_S un Θ'_R - šo staru laušanas leņķi, tad gaismas interferences režģa periods plakaniem viļņiem ir attiecīgi:

$$\Lambda = \frac{\lambda}{\sin \Theta_S + \sin \Theta_R} = \frac{\lambda'}{\sin \Theta'_S + \sin \Theta'_R} \quad 3-8$$

kur λ - gaismas viļņu garums gaisā un λ' - gaismas viļņa garums vidē.

Gadījumā, ja $\Theta_S = \Theta_R = \Theta = \frac{\Phi}{2}$, formula (3-8) pāriet formulā (3-7).

3.2.2. Hologrāfiskā ieraksta difrakcijas efektivitāte

Viens no pašiem galvenajiem hologrāfiskā ieraksta raksturojošiem parametriem ir *difrakcijas efektivitāte* (DE jeb η), tā raksturo hologrāfiskā attēla spožumu. Plakano gaismas viļņu gadījumā, DE vērtību nosaka kā attiecību starp hologrammas difragētās gaismas viļņa amplitūdas A'_S kvadrātu un uz hologrammu krītošā stara amplitūdas A_R kvadrātu (3.4. un 3.5. att.):

$$\eta = \left(\frac{A'_S}{A_R} \right)^2 \quad 3-9$$

Vienkāršākā gadījumā vai sarežģītiem attēliem DE izsaka ar gaismas staru jaudu attiecību:

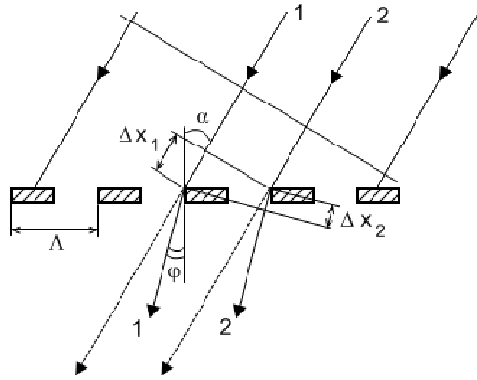
$$\eta = \frac{P'_S}{P_R}, \quad 3-10$$

kur P_R - krītošās gaismas jauda un P'_S - difragētās gaismas jauda.

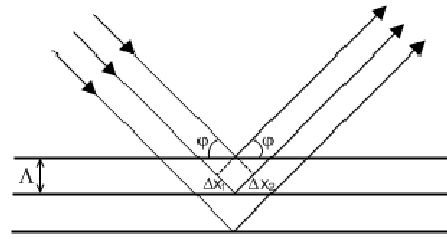
Lai sasniegtu pēc iespējas lielāku difrakcijas efektivitātes vērtību, ir jāievēro noteikti nosacījumi gan ieraksta, gan arī nolasīšanas (restaurēšanas) laikā. Restaurēšanas laikā 2D režģi apgaismojot ar plakanu vilni, izpildās nosacījums (režģa vienādojums) (3.6. att.):

$$\Lambda(\sin \varphi - \sin \alpha) = m\lambda, \quad 3-11$$

kur Λ - režģa periods; α - staru krišanas leņķis; φ - difragētā stara leņķis; λ - gaismas viļņa garums; m - difrakcijas maksimuma kārtā.



3.6. att. Gaismas difrakcija divdimensionālā jeb plakanā režģī [42]



3.7. att. Gaismas difrakcija trīsdimensionālā jeb tilpuma režģī [42]

Gadījumā, ja gaisma difragē aiz normāles, ka gājuma differences (Δx_1 un Δx_2 , 3.6. att.) pirmajam un otrajam staram summējas un līdz ar to formula (3-11) pārrakstās kā:

$$\Lambda(\sin \varphi + \sin \alpha) = m\lambda \quad 3-12$$

Apvienojot abas šīs vienādības (3-11) un (3-12), varam teikt, ka ierakstošo staru slīpas krišanas gadījumā, ierakstītā difrakcijas režģa pilnā formula ir šāda:

$$\Lambda(\sin \varphi \mp \sin \alpha) = m\lambda \quad 3-13$$

Ja leņķi φ un α atrodas vienā pusē normālei, tad vienādībā (3-13) lietojama plusa zīme, ja dažādās, tad- mīnusa zīme [42].

Tilpuma režģis savukārt sastāv no vairākām, periodiski izvietotām un izkliedējošām plaknēm. Šādam režģim ir jāievēro Brega nosacījums (3.7. att.):

$$2\Lambda \sin \varphi = \frac{\lambda_a}{\bar{n}}, \quad 3-14$$

kur \bar{n} - vides vidējais laušanas koeficients (gaisā $\bar{n}=1$), λ_a -viļņa garums gaisā, φ -leņķis starp krītošo vai difragēto staru un 3D režģa izkliedējošo plakni.

Salīdzinot izteiksmes (3-13) un (3-14), var secināt, ka (3-14) izteiksme 3D režģim uzliek stingrākus nosacījumus difrakcijas novērošanai. Izvēloties šādam tilpuma režģim nolasošā stara krišanas leņķi, tiek definēts gan viļņa garums, gan arī gaismas difrakcijas leņķis. (3-13) nosacījums 2D režģim ļauj mainīt gan staru skrišanas leņķi, gan arī viļņa garumu [42]. No šīm divām izteiksmēm 2D un 3D režģim varam redzēt, ka DE un difragētā stara virziens atkarīgs arī no izmantotās gaismas viļņa garuma nolasīšanas laikā. Difrakcijas efektivitāti un tās lielumu var izmantot kā fāzes komponentes esamības noteikšanai ieraksta procesā, jo fāzes hologrammu ierakstā DE ir ievērojami lielāka salīdzinot ar amplitūdas hologrammām.

Iegūtā hologrāfiskā režģa kvalitāti nosaka gaismu jutīgā materiāla īpašības:

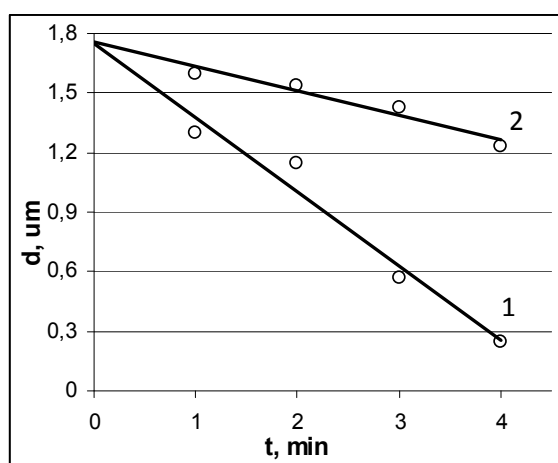
- 1) izšķiršanas spēja
- 2) gaismas jutība,
- 3) relaksācija,
- 4) signāls/troksnis attiecība u.c.

Izvēloties hologrāfiskam ierakstam gaismu jutīgu materiālu, ir būtiski jāņem vērā katru no šīm materiālu raksturīpašībām.

3.3. Virsmas reljefa režģu iegūšanas veidi hologrāfijā

3.3.1. Ķīmiskā kodināšana pēc hologrāfiskā ieraksta

Kā jau iepriekš tika minēts, hologrāfija ir priekšmeta telpiska attēla divpakāpju iegūšanas process- ieraksts fotoplatē jeb fotorezistā (gaismas jutīgā materiālā) un restaurēšana. Lai no ieraksta nonāktu pie restaurēšanas, ir jāveic virkni darbību ar apgaismoto fotoplati. Lai novērotu gaismas difrakciju, ir nepieciešams iegūt difrakcijas režģi no apgaismotās fotoplates. Ķīmisko īpašību izmaiņas rezista materiālā gaismas ietekmē dod tieši šo iespēju- veikt virsmas reljefa strukturēšanu ar *slapjo* vai *sauso* kodināšanu. 3.8. attēlā varam uzskatāmi redzēt kodināšanas kinētiku, *t.i.*, parauga krasās biezuma izmaiņas apgaismotai un neapgaismotai daļai ķīmiskās kodināšanas procesā (grafiks no [43]). Tātad ieraksta process sastāv no vismaz divām daļām: hologrāfiskais ieraksts un tā attīstīšana kodinot.



3.8. att. Parauga biezuma izmaiņas ķīmiskās kodināšanas procesā (1) un (2) attiecīgi apgaismotā un neapgaismotā As-S daļa

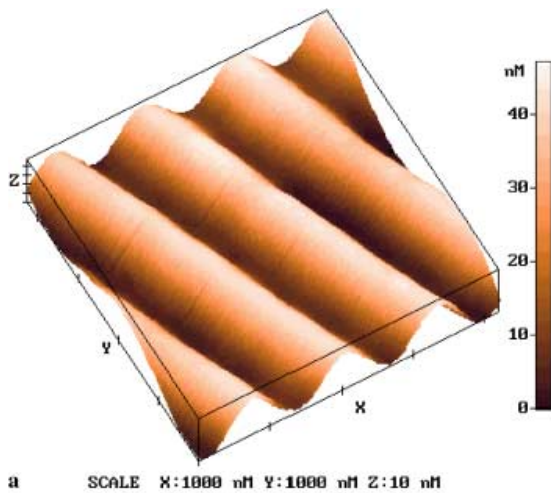
Ķīmiskās kodināšanas process ir viens no pašiem kritiskākajiem posmiem hologrāfisko materiālu izgatavošanā. Ir gandrīz vai neiespējami nopirkt jau gatavu ķīmikāliju risinājumu ķīmiskās kodināšanas procesam, līdz ar to tās ir jātaisa pašam individuāli. Hologrammu kvalitāte ir stipri atkarīga no tā, cik precīzi un no kādām ķīmikālijām ir iegūts ķīmiskais šķīdinātājs. Hologrāfiju tāpat kā fotogrāfiju iegūšanas procesā izmanto ļoti daudz un dažādas ķīmiskās apstrādes metodes. Atkarībā no fotoplates un hologrāfiskā ieraksta shēmas piemeklē attiecīgās ķīmiskās vielas un to procentuālo daudzumu ķīmiskajai kodināšanai. Pietiek pamainīt kādas vielas koncentrāciju ķīmiskajā šķīdinātājā un rezultāts jau būs pavisam cits gaidītajam.

3.3.2. Virsmas reljefa veidošanās hologrāfiskā ieraksta laikā

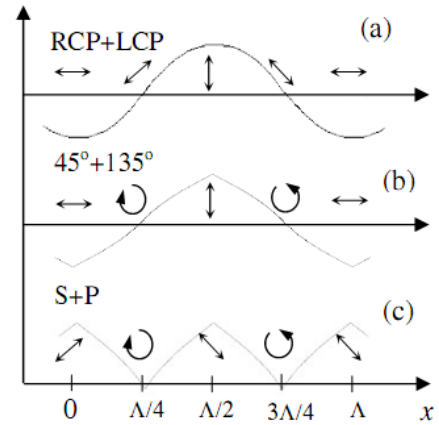
Pēdējā laikā daudzos organiskos un neorganiskos materiālos tiek veikti pētījumi par tiešu reljefa veidošanos starošanas procesa laikā ar gaismu vai e-starojumu (3.9. att. piem., [4, 98]).

Daudzu foto inducēto procesu vielā (arī anizotropo procesu [47]) rezultātā, amorfajās halkogenīdu pusvadītāju plānās kārtiņās hologrāfiskā ieraksta laikā ir novērojama masas anizotropa pārnese, kuras rezultātā veidojas regulāras virsmas reljefa struktūras. Virsmas reljefa paliekošais efekts arī pēc ekspozīcijas ir izskaidrojams ar pašu amorfo halkogenīdu pusvadītāju dabu, *t.i.*, tos kā materiālus raksturo ar mīkstināšanās temperatūru, kas amorfajiem halkogenīdiem normālos apstākļos ir $T_g \cong 180^\circ\text{C}$. Veicot hologrāfisko ierakstu, masas pārnese As_2S_3 un citiem halkogenīdiem veicina mīkstināšanās temperatūras foto inducētās izmaiņas tieši hologrāfiskā ieraksta laikā [23]. Tātad pietiek jau ar istabas temperatūru, lai veiksmīgi veiktu tiešo virsmas reljefa hologrāfisko ierakstu.

Ne vienmēr gaismas gradients ir tas, kas veido šo reljefu ieraksta laikā. Pat gadījumos, kad starp interferējošiem stariem ir 90 grādi un netiek novērota nekāda intensitātes modulācija, virsmas reljefa veidošanās tomēr tiek novērota. Tiek izvirzīta hipotēze, ka šis fakts izskaidrojams ar to, ka šajos gadījumos virsmas reljefa veidošanās piedalās summārais mainīgais elektriskais lauks (3.10. att.), kas spēj formēt reljefu ar tādu pašu periodu Λ . Šis process detalizētāk tiks apskatīts pašā promocijas darbā.



3.9. att. Atomspēku mikroskopa (AFM) virsmasreljefa attēlojums tiešajam ierakstam amorfajos pusvadītājos [3]

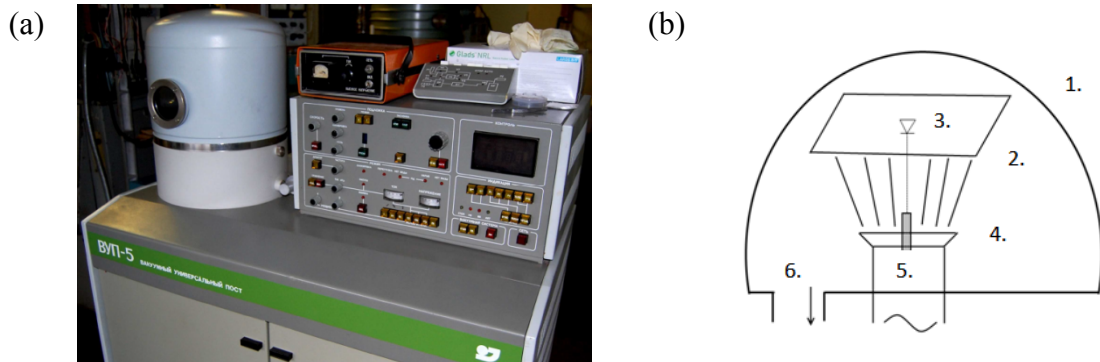


3.10. att. Divstāru interferences summārā elektriskā lauka periodiskums gadījumos, kad interferējošie stari ir (a) pretēji cirkulāri, (b) 45 un -45 grādu un (c) s un p polarizēti [7]

Šīs apskatītās virsmas reljefa iegūšanas metodes ir ļoti vilinoša no praktiskās pielietojuma viedokļa, jo dod iespēju vienkāršot virsmas reljefa veidošanas tehnoloģiju. Kā metode tā ir samērā jauna, vēl joprojām notiek aktīva darbība pie jau pieminēto procesu vielā izpētes un izskaidrošanas mikroskopiskā līmenī. Arī šis promocijas darbs būs veltīts amorfo halkogenīdu foto jutības izpētei, ieraksta efektivitātes atkarības pētījumiem un dažādiem teorētiskajiem aprēķiniem.

4. TIEŠĀ VIRSMAS RELJEFA IERAKSTA IZPĒTES METODES

4.1 Halkogenīdu fotorezistu iegūšana



4.1. att. Amorfas kārtiņas uzputināšanas iekārta (a) un tās principiālā shēma (b)
1- vakuumkamera, 2- stikla pamatne, 3- foto diode, 4- tantāla laiviņa ar sintezēto materiālu,
5- pusvadītāja lāzers (650nm), 6- izeja uz vakuumsistēmu

Vakuumuzputināšanas metode ir tradicionāls paņēmieni relatīvi tīru kārtiņu iegūšanai. Tā balstās uz uzputināmā materiāla daļiņu plūsmas radīšanu, tās virzīšanu uz pamatnes virsmu un šo daļiņu kondensāciju (4.1. att.). Dotais process ietver vairākus posmus: uzputināmā materiāla pāreja no kondensētas fāzes gāzveida stāvoklī, molekulu pārnese uz pamatnes virsmu, to kondensācija uz virsmas, aizmetņu veidošanās un augšana, kārtiņas veidošanās.

Vakuumuzputināšanas iekārta sastāv no:

- Darba kamera jeb vakuumkamera, kurā notiek kārtiņas uzputināšana;
- Putināmo materiālu avoti un to energoapdrošināšanas un vadības ierīcēm;
- Gāzu atsūkņēšanas sistēmas, kas nodrošina nepieciešamo vakuuma iegūšanu;
- Elektriskās barošanas sistēma un visu ierīču un darba mezglu bloķēšanas sistēma;
- Vakuumuzputināšanas iekārtas vadības un kontroles sistēma, kas nodrošina uzdoto uzputināšanas ātrumu, kārtiņas biezumu un pamatnes virsmas temperatūru;
- Palīgierīces, tai skaitā kameru iekšējie ekrāni, aizbīdņi u.c.

Pētījumiem tika izvēlēti fotorezisti, kuru sastāvs atbilst formulai As_2S_3 , $As_4S_{1.5}Se_{4.5}$ un $GeSe_3$ savienojumu rezisti. Fotorezists tika iegūts ar kondensācijas

metodi uz stikla pamatnes pēc iztvaicēšanas vakuumā ($\sim 5 \times 10^{-5}$ Torr). Kā iztvaicētāju lietoja tantāla laiviņu, kurā tika ievietots sintezētais materiāls. Fotorezista kārtiņas biezums 1.7-3.3 μm .

Kārtiņas putināšanas ātrums un biezums tika kontrolēts reālā laikā ar interferences metodi, *t.i.*, uzņemot caurlaidības līkni perpendikulāri pret paraugu krītošajam lāzera staram. Biezumu kārtiņai aprēķina pēc sekojošas formulas:

$$d = \frac{m \cdot \lambda}{2 \cdot n}, \quad 4-1$$

kur m - interferences maksimumu skaits,

λ - izmantotā lāzera viļņa garums (650nm),

n - kārtiņas laušanas koeficients.

4.2. Fotorezistu pētīšanas metodes

4.2.1. Raupjā virsmas reljefa noteikšana ar profilometra un optiskā mikroskopa palīdzību

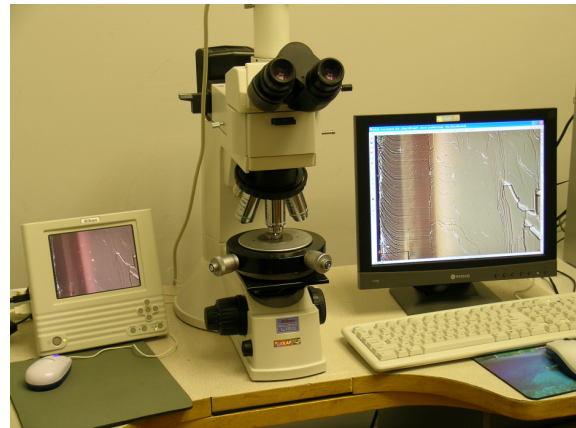
Kārtiņas biezums un liela perioda virsmas reljefs tika noteikts arī ar profilometra palīdzību (4.2. att.), ieskrāpējot kārtiņu līdz pamatnei un nolasot kārtiņas un pamatnes augstuma atšķirības. Mērīšanas princips balstās uz adatas pārvietošanu pa parauga virsmu. Uz reljefa nelīdzenumiem adata maina savu stāvokli vertikālās ass virzienā ko fiksē profilometra sensori. 10 μm diametra adatas pārvietošanās ātrums un tās svars ir regulējams atkarībā no tā, cik mīksta ir pētāmā kārtiņa.

Kārtiņas vizuālo īpašību novērtēšanai un virsmas topogrāfijas izpētei, uzņemot mikro-foto attēlus, tika izmantots augstas izšķirtspējas optiskais mikroskops NIKON ECLIPSE L150 (4.3. att.). Mikroskops ir piemērots pirmreizējai attēlu apstrādei un analīzei, tai skaitā lineāro dimensiju, laukumu, leņķu un rādiusu mērījumiem. Dotā mikroskopa tehniskā specifikācija:

- Palielinājums līdz 1000x;
- Objektīvi 10x, 20x, 50x, 100x (atstarotā gaisma);
- Vienkāršota polarizācijas mikroskopija;
- 5MP Nikon digitālā kamera ar krāsu matricu attēlu iegūšanai.



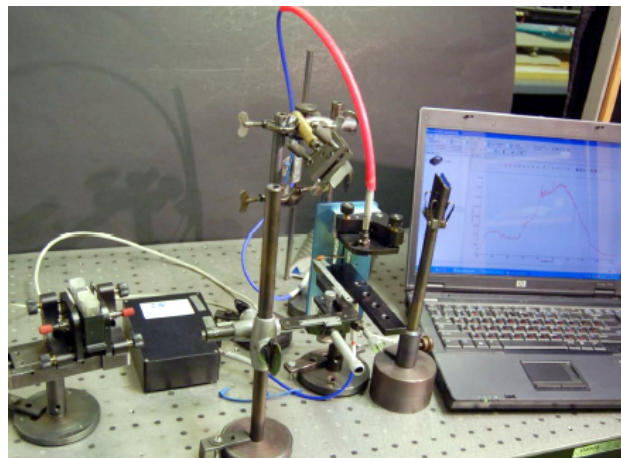
4.2. att. Profilometrs Veeco Dektak 150.



4.3. att. Augstas izšķirtspējas optiskais mikroskops NIKON ECLIPSE L150

4.2.2. Materiāla caurlaidības un absorbcijas spektru noteikšana

Kārtiņu caurlaidības spektri tika noteikti 250 – 800nm diapazonā ar spektrometra Ocean Optic HR4000CG palīdzību (4.4. att.). Iekārtas princips balstās uz gaismas avota un caur paraugu izgājušās vai arī atstarotās gaismas spektru salīdzināšanu.

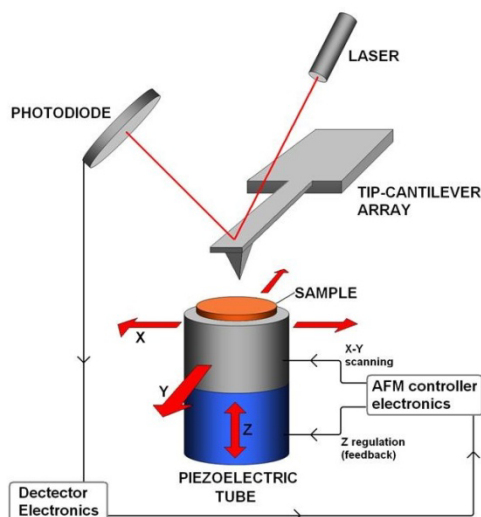
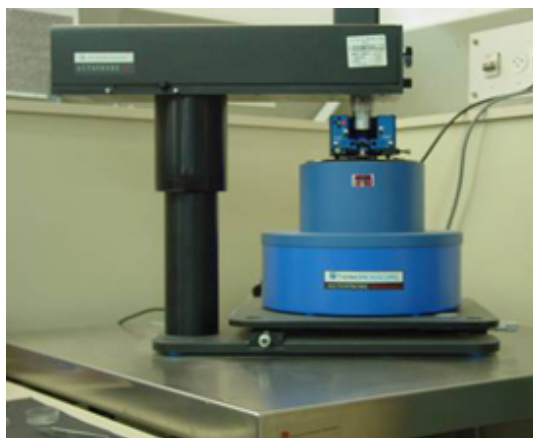


4.4. att. Spektrofotometrs Ocean Optic HR4000CG.

4.2.3. Atomspēku mikroskopija

Apstarotie ieraksta apgabali tika pētīti ar *Veeco AFM CP-II* atomspēku mikroskopu (4.5. att.). Skenēšanai tika izvēlēts apgabals ar minimālu virsmas defektu skaitu. Virsmu topogrāfijas pētījumi tika veikti izmantojot kontakta, pieskares un spēka modulācijas režīmus. Dotā mikroskopa tehniskā specifikācija:

- Skenēšanas laukums līdz $100 \times 100 \mu\text{m}$;
- Optimālais paraugu izmērs: līdz $10 \times 10 \text{ mm}$;
- Motorizēts Z galdiņš;
- Manuāls XY galdiņš $8 \times 8 \text{ mm}$;
- Optiskais mikroskops ($20\times$) ar adatas un parauga video monitoringu.



4.5. att. Veeco AFM CP-II un tā principiālā shēma

4.3. Tiešā ieraksta eksperimentu realizēšanas metodes

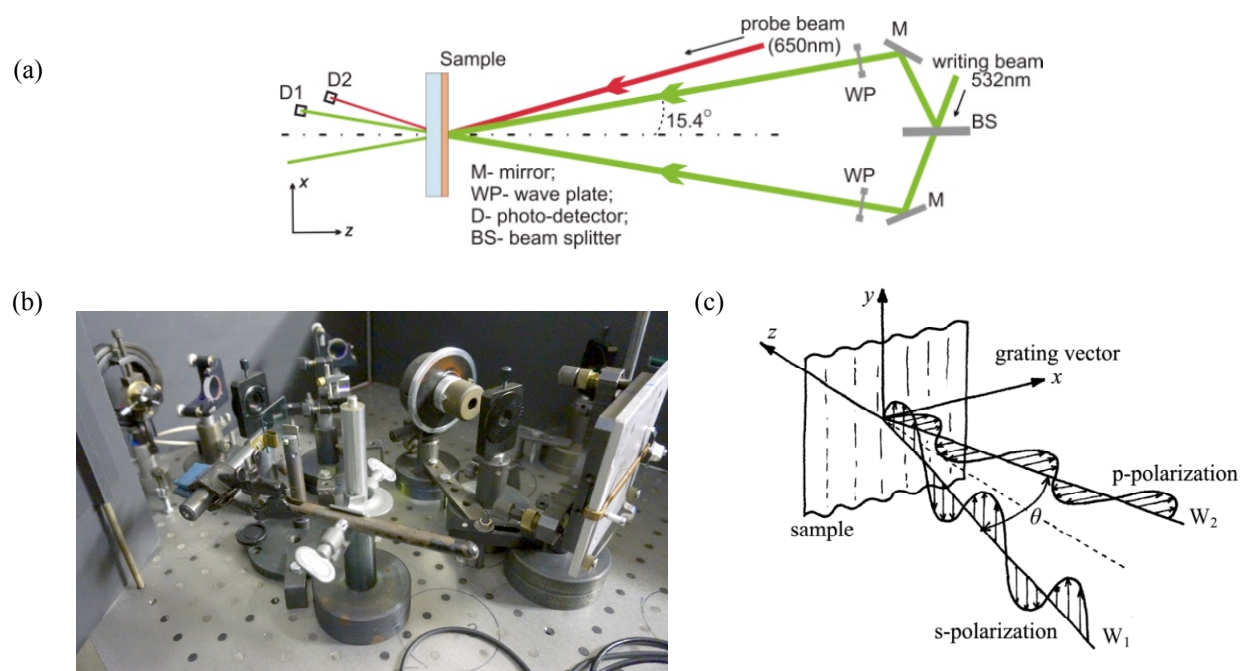
Lai realizētu izvirzītos mērķus un vairākkārtīgi pārliecinātos par iegūto rezultātu pareizu interpretāciju, tika izveidotas trīs tiešā ieraksta shēmas: hologrāfiskā ieraksta, optiskās spraugas ieraksts un viena stara ieraksts. Ieraksta shēmu izveide tika balstīta uz nosacījumu, ka tajā ir jābūt gaismas intensitātes gradientam vai (kā vēlāk noskaidrosies) tieši elektriskā lauka intensitātes gradientam, lai tiktu novērota masas pārnese.

4.3.1. Hologrāfiskās pētījumu metodes un lietotie apzīmējumi

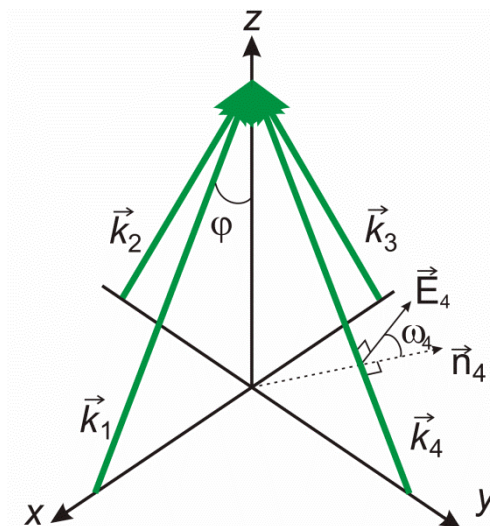
Hologrāfiskā pētījumu metode jeb hologrāfiskais ieraksts gaismu jutīgos materiālos ir salīdzinoši plaši pētīts zinātniskajā literatūrā, tikai pēdējos gados ir aktualizējies jautājums par iespēju neizmantojot ķīmisko kodināšanu, bet iegūt jau strukturētu virsmu tieši ieraksta laikā. Šāds process ir interesants ne tikai no praktiskā pielietojuma viedokļa, bet arī no zinātniskā viedokļa. Lai pētītu virsmas reljefa

veidošanos tieši ieraksta laikā, tiek izmantots elementārās hologrammas ieraksts. Elementāra hologramma ir periodisks viena vai vairāku paraugu raksturojošu parametru telpiskais sadalījums, piemēram, absorbcijas, laušanas koeficienta, caurlaidības koeficienta vai atstarošanas koeficientu sadalījums. Periodiskas virsmas reljefa izmaiņas (difrakcijas režģis), kuras rodas gaismas jutīgā vidē divu pārklājušos staru interferences rezultātā arī ir uzskatāmas par elementāro hologrammu. Citiem vārdiem sakot, hologrāfiskais difrakcijas režģis jeb elementārā hologramma nav nekas cits kā divu plakānu viļņu hologrāfiskais ieraksts gaismu jutīgā materiālā. Šis process padziļināti tiks pētīts šajā darbā, īpašu uzmanību pievēršot gaismas intensitātei, polarizācijai un ieraksta laikā notiekošo procesu interpretācijai.

Virsmas reljefa jeb hologrāfisko režģu ierakstu eksperimenti tika realizēti izmantojot Optiskā ieraksta laboratorijā izveidotu optisko iekārtu (4.6. att.). Ieraksts tika veikts ar Nd:YAG *Verdi-8* CW (532nm) lāzeru, tika pētīts tā divu simetrisku un vienādu intensitāšu lāzeru staru hologrāfiskais ieraksts kārtiņās ar periodu $\Lambda=1\mu\text{m}$. Pēc formulas (3-7) tiek viennozīmīgi noteikti ierakstošo staru leņķiskie parametri. Četrstaru un trīsstaru hologrāfiskā ieraksta eksperimentiem tika izmantotas divas



4.6. att. (b) divstaru hologrāfiskā ieraksta iekārta, (a) tās principiālā shēma un (c) s un p polarizācijas plaknes



4.7. att. Četrstu staru konfigurācija hologrāfiskajam ierakstam

Polarizācija tiek definēta ar leņķi ω_i starp elektrisko lauku E_i un plakni, kurā atrodas viļņu vektors k_i un vienības vektors z

divstaru optiskās iekārtas, kas viena pret otru pagrieztas par 90 grādiem, tādējādi veidojot jaunu- daudzstaru hologrāfiskā ieraksta iekārtu (4.7. att.).

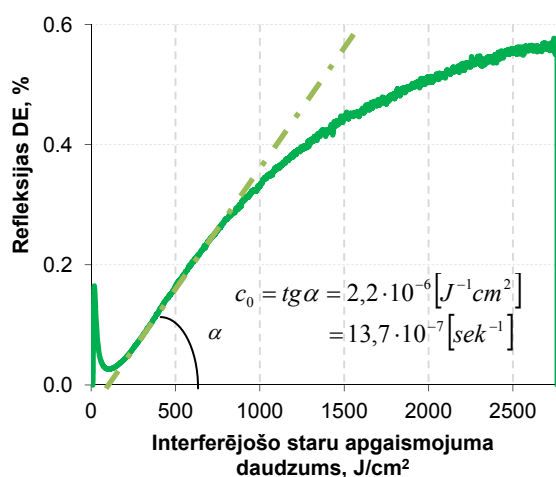
Polarizācija staru slīpas krišanas gadījumā tiek definēta ar leņķi starp elektriskā lauka oscilācijas plakni un plakni, kurā atrodas attiecīgais k -vektors un parauga virsmas normāles vektors. Gadījumā, ja leņķis vienāds ar nulli, tad gaisma ir p -polarizēta, bet ja ar 90 grādiem- s -polarizēta. 4.6c. attēlā parādītas elektriskā lauka p un s polarizācijas plaknes. Līdzīgi arī ar četrstaru iekārtu, bet šeit jāņem vērā tas, ka divas divstaru ieraksta iekārtas ir 90 grādu leņķī viena pret otru. Tāpat kā iepriekš, arī šeit polarizācija tiek definēta ar leņķi ω_i starp elektriskā lauka oscilācijas plakni un plakni, kurā atrodas viļņu vektors k_i un koordinātu sākumpunkts vai parauga normāles vektors (4.7. att. redzams tikai k_4 staram).

Difrakcijas efektivitāte η (jeb DE) tiek definēta kā difragētās gaismas un uz parauga krītošās gaismas intensitāšu attiecība. DE tika kontrolēta reālā laikā, mērot pirmās kārtas refleksijas jeb atstarotās un transmisijas jeb caurizgājušās difragētās gaismas intensitātes. Refleksijas DE tiek mērīta ar 405nm viļņa garuma gaismu un transmisijas DE ar 650nm viļņa garuma diožu lāzeru (4.6a. attēlā parādīts tikai transmisijas režīms 650nm viļņu garumam). Tā kā transmisijas DE tiek mērīta caur paraugu difragētai gaismai, tad tās DE raksturo tilpuma kā amplitūdas vai (un) fāzes hologrāfiskā ieraksta efektivitāti. Savukārt virsmas reljefa modulācijas jeb starpību Δd starp reljefa augstuma maksimālo un minimālo vērtību hologrāfiskā ieraksta laikā tiek

kontrolētas ar refleksijas DE (tipisks ieraksts redzams 4.8. att.). Tilpuma ieraksts arī ietekmē refleksijas DE, bet šī atkarība ir neliela un izpaužas tikai ieraksta pirmajās sekundēs ([5], arī 4.8. att. sākuma pīķis). Sīkāk par šo procesu tiks runāts rezultātu sadaļā.

Tālākai datu analīzei ir nepieciešams ievest tādu parametru, kā *ieraksta efektivitāti*. Tā tiek definēta kā refleksijas DE aproksimācijas ar pirmās kārtas polinoma $\eta=c_0 \cdot t$ slīpuma koeficients jeb $\text{tg}(\alpha)=c_0=\Delta\eta/\Delta t$, kur t ir ekspozīcijas laiks. Tipiska refleksijas DE līkne ieraksta laikā ir redzama 4.8. attēlā. Ieraksta efektivitāte tiek aprēķināta ekstrapolējot sākuma pieauguma lineāro daļu (grafikā redzama ar pārtraukto līniju) un nosakot tā slīpuma koeficientu c_0 .

Gadījumos, kad ieraksta laikā tiek izmantots papildus apgaismojums, tad *ieraksta uzlabojums jeb labums* tiek definēts kā ieraksta efektivitātes ar papildus apgaismojumu attiecība pret ieraksta efektivitāti bez tās (c_i/c_0). Kā difrakcijas efektivitāte tā arī ieraksta labums sniedz tikai netiešu informāciju par virsmas reljefa izmaiņām hologrāfiskā ieraksta laikā. Tiešie reljefa mērījumi tiks veikti ar atomspēku mikroskopa palīdzību.

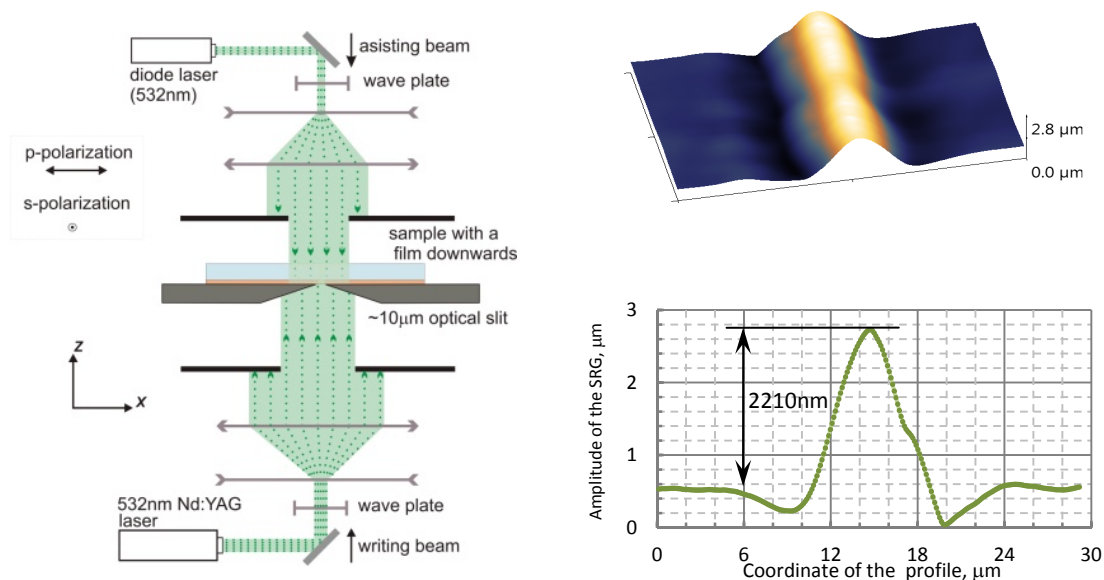


4.8. att. Tipiska refleksijas difrakcijas efektivitātes līkne hologrāfiskā ieraksta laikā
Ieraksts veikts ar p-polarizētu 532nm lāzeru

4.3.2. Virsmas reljefa veidošana un izpēte pēc parauga apstarošanas caur šauru spraugu

Lai izpētītu virsmas reljefa veidošanos ne tikai hologrāfiskā ieraksta ceļā, tika izveidota 4.9. attēlā parādītā eksperimenta shēma. Realizējot vienmērīga intensitātes sadalījuma (nefokusēta) un viena stara ierakstu caur $\sim 10\mu\text{m}$ spraugu, ir iespējams pētīt virsmas reljefa veidošanos pilnīgi kontrolētā vidē. Šāda vienkārša tiešā virsmas reljefa ieraksta gadījumā gaismas intensitāti un polarizāciju ir iespējams pieņemt par nemainīgu gan laikā, gan arī telpā. Lai panāktu dotā materiāla lielāku plūstamību, tiks izmantots arī papildus vienmērīgs nekoherents apgaismojums no parauga otrās puses. Kā turpmāk redzēsīm, šāds ieraksta shēmas papildinājums dos nozīmīgu ieraksta uzlabojumu.

Virsmas reljefa ierakstam un papildus apgaismojumam tika izmantots attiecīgi 532nm viļņa garuma Nd:YAG Verdi-8 un tāda paša viļņa garuma diožu lāzers. Pusviļņu plāksnītes tika izmantotas, lai piemeklētu vajadzīgo ieraksta un papildus apgaismojuma polarizācijas kombināciju. Polarizācija šajā eksperimentā (staru perpendikulāras krišanas gadījumā) tiek definēta attiecībā pret spraugu- paralēlā spraugas un polarizācijas gadījumā tiek runāts par s-polarizāciju un perpendikulārā attiecīgi par p-polarizāciju. Tiks apskatīts ieraksts As_2S_3 kārtiņās ar biezumiem 1-4 μm .



4.9. att. $10\mu\text{m}$ optiskās spraugas reljefa ieraksta principiālā shēma, kā arī iegūtais virsmas reljefs un tā profils $3.3\mu\text{m}$ biezā As_2S_3

4.4. Mērījumu metodika

Promocijas darba rezultāti sastāv no trim daļām, kur pirmā daļa ir veltīta darbā izmantoto plāno kārtiņu izpētei. Tiks noteikts kārtiņu absorbcijas spektrs, pēc kura tiks izvēlēti noteikta viļņa garuma lāzeri tiešā ieraksta izpētei tajos. Pārlicināsimies par tiešā ieraksta procesa atgriezeniskumu, dzēšot ierakstu pēc principiāli jaunas tehnikas. Ieraksta dzēšanas iespēja, savukārt liecina par masas fizisku pārnesei nevis par ieraksta blīvuma vai tilpuma efektu. Atgriezeniskuma faktors ir vitāli svarīgs posms promocijas darbam, jo viss darbs turpmāk balstīsies uz masas pārnesei procesu izpēti amorfajos halogenīdos.

Otrā daļā apskatīsimies uz tiešā jeb viena soļa (apejot ķīmiskās kodināšanas procesu) virsmas reljefa hologrāfisko ierakstu un tā efektivitāti. Tiks sīkāk apskatīts režģa veidošanās process, tā īpatnības- atkarība no polarizācijas un parauga mīkstināšanās temperatūras. Lai samazinātu parauga viskozitāti un palielinātu tā plūstamību, tiks izmantots neatkarīgs gaismas avots, kas režģa ieraksta laikā apgaismos paraugu. Pārlicināsimies par šī papildus apgaismojuma viļņa garuma un polarizācijas izvēles būtisko ietekmi uz tiešo virsmas reljefa hologrāfisko ierakstu. Pamatojoties uz materiāla dubultlaušanu, ar netiešiem mērījumiem tiks noskaidroti masas pārnesei virzieni tiešā hologrāfiskā ieraksta laikā. Tiks iegūts plakānu viļņu interferences intensitātes, kā arī polarizācijas sadalījuma teorētiskais modelis, kas būtiski atvieglos eksperimentālo datu analīzi šajā daļā.

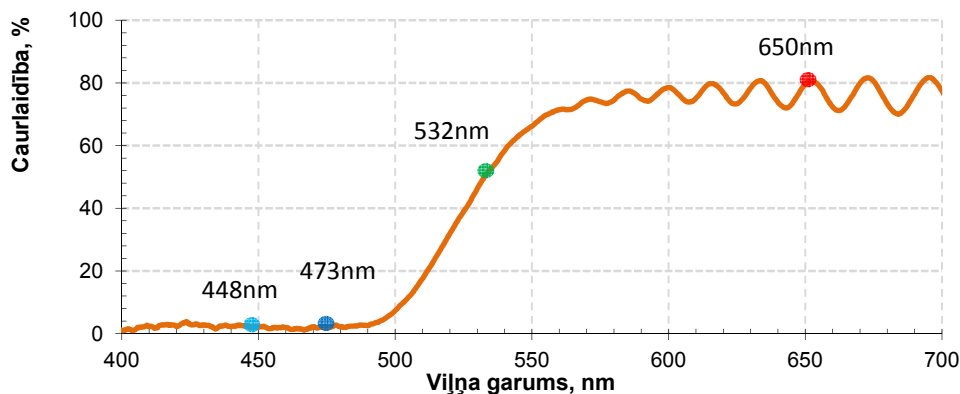
Trešajā daļā tiks apkopoti rezultāti par taisnstūrveida gaismas intensitātes sadalījuma ietekmi uz dotajiem paraugiem. Šāda veida gaismas sadalījums tiks nodrošināts izmantojot šauru, aptuveni 10 μ m platu optisko spraugu. Dotā iekārta ļauj ar tiešiem mērījumiem noteikt ieraksta procesu virzību atkarībā no jebkura parametra, tai skaitā intensitātes, polarizācijas vai ekspozīcijas laika. Ieraksta iekārtas shēmas uzbūve ir ļoti vienkārša un raksturojas ar labu izturību pret vibrācijām, lāzera intensitātes svārstībām un sliktu vai neesošu koherenci, kas kopumā garantē ļoti precīzus un akurātus rezultātus.

5. REZULTĀTI UN TO ANALĪZE

5.1. Plāno kārtiņu izpēte

Gaismas un materiāla mijiedarbes pētīšanas process sākas ar pašu paraugu meklēšanu un laboratorijas iespēju robežu apzināšanu. Pētāmajam paraugam, kā hologrāfiskā ieraksta materiālam, jābūt pietiekoši gaismu jutīgam un ar potenciālu virsmas reljefa modulēšanai tieši optiskā ieraksta laikā. Visus šādus materiālus var iedalīt divās lielās grupās: organiskie un neorganiskie materiāli. Šajā darbā tika izvēlēti neorganiskie materiāli, precīzāk, amorfie halkogenīdi (As_2S_3 un citi). Līdz ar to darbs jāsāk ar doto materiālu optisko īpašību izpēti un laboratorijas aprīkojuma izvēli. Lai turpmāk runātu par gaismas inducētu masas pārnesei, ir jāpārlicinās par šī procesa atgriezeniskumu. Ja ir iespējama masas pārnese kādā noteiktā virzienā, tad šim procesam noteikti jābūt atgriezeniskam jeb, citiem vārdiem sakot, ir jābūt iespējai šo procesu dzēst. Pretējā gadījumā nebūtu jāapskata masas pārnese procesi, bet gan tilpuma (blīvuma) izmaiņas.

5.1.1. As_2S_3 plāno kārtiņu absorbcijas spektrs

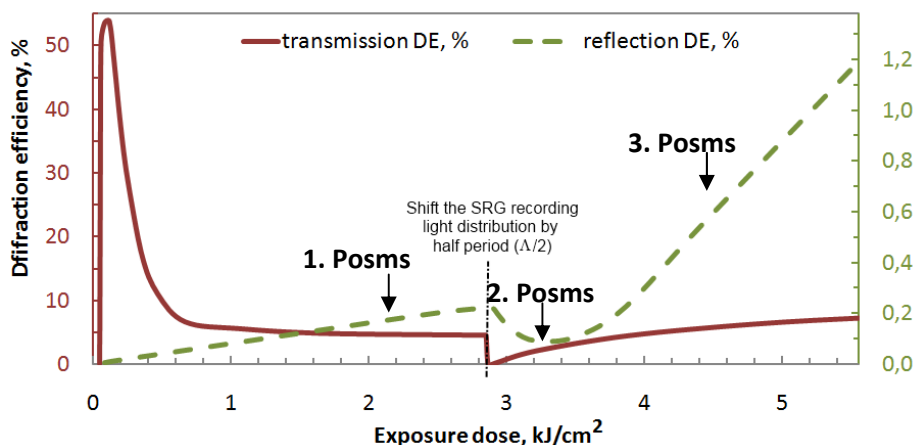


5.1. att. Ar Ocean Optics spektrometru iegūtais As_2S_3 kārtiņas spektrs
Uz līknes atzīmēti eksperimentos izmantotie papildus apgaismojuma viļņu garumi: 448, 473 un 532nm

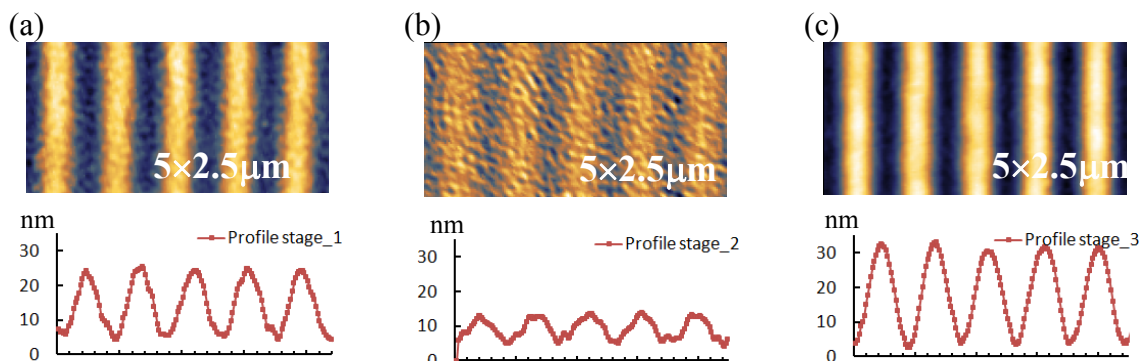
Hologrāfiskā divstaru ieraksta iekārtā kā interferējošie ierasta stari tika izmantoti vienādās intensitātēs sadalīta Verdi-6 532nm lāzera gaisma. Par papildus apgaismojumu tika izvēlēti pusvadītāju lāzери ar pietiekami lielu absorbciju dotajam gaismu jutīgam As_2S_3 paraugam. Tādi bija trīs lāzери ar 448, 473 un 532nm viļņu garumiem (5.1. att.). Savukārt 650nm viļņa garuma gaisma, kas praktiski neabsorbējas materiālā, tika

izmantota transmisijas DE mērījumiem. Refleksijas DE mērījumiem, savukārt, piemēroti ir 448 un 473nm viļņa garuma lāzeri.

5.1.2. Hologrāfiskā ieraksta atgriezeniskums



5.2. att. Tipiskas difrakcijas efektivitātes vērtības hologrāfiskā režģa ieraksta laikā *Transmisijas DE vērtības kreisajā pusē, refleksijas DE- labajā, režģa periods 1 μm, ierakstošie stari p-polarizēti. Pēc vertikālās raustītās līnijas attēlots arī ieraksts pēc režģa pārbīdes par ½ no tā perioda*



5.3. att. AFM virsmas topogrāfijas mērījumi difrakcijas režģim dažādos tā ieraksta posmos: (a) pirmais posms- pirms režģa pārbīdes (*sk. 5.2. att.*), (b) otrais posms- pēc režģa pārbīdes DE minimumā un (c) trešais posms- pēc režģa pārbīdes jauna režģa veidošanās stadijā

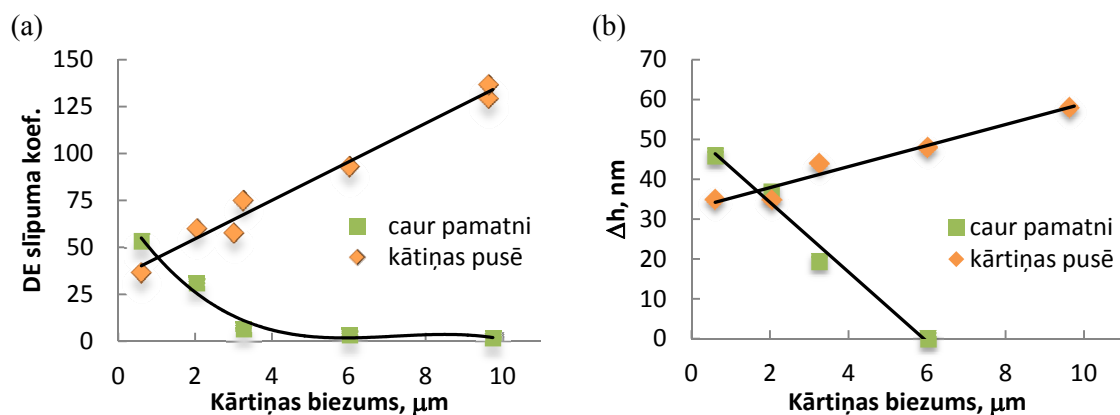
Balstot promocijas darbu uz tiešo virsmas reljefa (SRG) ierakstu gaismu jutīgos materiālos, ir nepieciešams pārbaudīt hologrāfiskā difrakcijas režģa ieraksta atgriezeniskumu jeb pārliecināties par masas pārnesei ieguldījumu difrakcijas režģa izveidē. Lai to īstenotu, tika veikts līdz šim vēl nekur neaprakstīts eksperiments- ieraksta dzēšana ar to pašu ieraksta iekārtu, pārbīdot interferējošo gaismu par ½ no ieraksta perioda.

SRG ieraksts As_2S_3 plānās kārtiņās tika veikts ar Nd:YAG *Verdi6* 532nm lāzeru, izmantojot divstaru hologrāfiskā ieraksta shēmu (shēma 4.6.att.). Difrakcijas efektivitāte (DE) tika kontrolēta reālā laikā, mērot pirmās difrakcijas kārtas intensitāti transmisijas un refleksijas režīmā. Transmisijas DE tiek mērīta caur paraugu difragētai gaismai un tā raksturo tilpuma kā amplitūdas vai (un) fāzes hologrāfiskā ieraksta efektivitāti. Savukārt virsmas reljefa modulācijas jeb starpību Δd starp reljefa augstuma maksimālo un minimālo vērtību hologrāfiskā ieraksta laikā tiek kontrolētas ar refleksijas DE. Interferējošo staru nobīde tiek realizēta pagriežot viena stara pusviļņu plāksnīti par 90 grādiem, tādējādi, nemainoties polarizācijai, stara fāze izmainās par $\pi/2$ kam seko interferences perioda nobīde par pus periodu- $\Lambda/2$.

Tipisks SRG ieraksta process plānās amorfās As_2S_3 kārtiņās ir redzams 5.2. attēlā (līdz vertikālai raustītai līnijai). Tā kā absorbcijas un/vai laušanas koeficienta foto inducētās izmaiņas ir salīdzinoši ātrs process, transmisijas DE sasniedz maksimumu dažās sekundēs (5.2. att., nepārtrauktā līkne pie ~55%). Turpinot apstarot paraugu, tilpuma ieraksta kontrasts pasliktinās un transmisijas DE vērtība krītas un tajā pašā laikā refleksijas DE (5.2. att., pārtrauktā līkne) sāk pieaugt, kas liecina par virsmas reljefa veidošanos. Pēc salīdzinoši ilgas ekspozīcijas (šajā gadījumā virs 1kJ/cm^2) jaunizveidotais reljefs dod ieguldījumu arī transmisijas DE vērtībai, tādējādi tās vērtība nenokrītas līdz nullei, bet lēnām pieaug pieaugot virsmas reljefam. Šis ieraksta process ir atgriezenisks. Pārbīdot interferējošo gaismu par $\frac{1}{2}$ no tā perioda (5.2. att., vertikālā pārtrauktā taisne), refleksijas DE sāk samazināties līdz sasniedz minimumu- reljefs ir sācis dzēsties. Tālāk seko refleksijas DE pieaugums, kas liecina par jauna režģa veidošanos.

Vizualizēšanas nolūkos, virsmas reljefa ieraksta, dzēšanas un jauna ieraksta posmos virsmas topogrāfijas ir uzņemtas ar AFM (5.3. att.). Kā jau bija sagaidāms, difrakcijas režģa ieraksts 1. posmā (pirms interferences pārbīdes) un 3. posmā (kad jau refleksijas DE ir pieaugusi), salīdzinot ar ieraksta dzēšanas posmu (2. posms), ir ar vismaz divas reizes lielāku amplitūdu.

Difrakcijas režģa ieraksta un dzēšanas process ir atkārtojams vairākkārtīgi un liecina par masas pārneses procesiem ieraksta laikā. Zinātniskajā literatūrā līdzīgi secinājumi ir iegūti arī ar citām metodēm, piemēram, vienmērīgi sadalītas gaismas apstarošana vai termālā dzēšana metode [9], bet šī apskatītā metode ir daudz vienkāršāka un vieglāk realizējama un kontrolējama. Šī eksperimentu sērija sniedz



5.4. att. Tiešā hologrāfiskā ieraksta (a) refleksijas DE slīpuma koeficienta relatīvs salīdzinājums dažādiem As_2S_3 parauga biezumiem ierakstam gan no kārtiņas puses, gan no pamatnes puses, (b) iegūtā ieraksta augstuma salīdzināšana abos šajos gadījumos 45 un -45 grādu polarizācijas hologrāfiskais ieraksts veikts ar 532nm lāzeru ($I_1=I_2=0.25\text{W}/\text{cm}^2$, $\Lambda=1\mu\text{m}$)

1. Tabula. Tiešā hologrāfiskā ieraksta iespējas amorfās As_2S_3 kārtiņās Ieraksts veikts ar Nd:YAG 532nm lāzeru ($I_1=I_2=0.25\text{W}/\text{cm}^2$, $\Lambda=1\mu\text{m}$)

Ieraksta polarizācija	Ieraksta efektivitāte ($\Delta\eta/\Delta t$), $10^{-7}/\text{sek.}$	Tiešā ieraksta relatīvs novērtējums
$p + p$	0.35	Labi (3)
$s + s$	0.1	Slikti (4)
$s + p$	0.04	Ļoti slikti (5)
$45^0 + 45^0$	0.72	Labi (2)
$45^0 + -45^0$	44	Ļoti labi (1)

iespēju veikt tālākos pētījumus gaismas un materiāla mijiedarbības izpētei, balstoties uz gaismas radītu masas pārneši nevis uz tilpuma vai blīvuma izmaiņām.

5.2. Tiešais ieraksts un tā izpēte ar hologrāfiskām metodēm

5.2.1. Tiešais ieraksts amorfās plānās kārtiņās

Iepriekšējā sadaļā jau noskaidrojām, ka refleksijas DE līkne raksturo tiešā ieraksta procesu un līdz ar to tās forma vai precīzāk slīpuma koeficients ($\Delta\eta/\Delta t$) raksturo ieraksta efektivitāti. Lai atvieglo ierakstu relatīvu salīdzināšanu, šī koeficienta mērvienība darbā tiek lietota $10^{-7}/\text{sek.}$ No 5.4a. un 5.4b. attēla grafikiem redzam, ka DE slīpuma koeficienta taisnes dažādiem parauga biezumiem labi raksturo iegūto reljefu augstumus. Salīdzinot ierakstus no kārtiņas un pamatnes (stikla) puses, redzam, ka tiešajam hologrāfiskajam ierakstam ir iespējams noteikt aktīvo ieraksta dziļumu jeb

optimālo kārtiņas biezumu, kas šajā gadījumā ir aptuveni 2.5 μm. Šāda biezuma paraugi arī turpmākajā darbā tiks izmantoti.

Ierakstu ar vairākām interferējošo staru polarizāciju kombinācijām apkopojums redzams 1. Tabulā. Pēc tiešā ieraksta novērtējuma, kas balstīts uz slīpuma koeficienta vērtībām, redzam, ka tiešais ieraksts ir stipri atkarīgs no izvēlētās polarizācijas. Lai varētu turpināt datu analīzi un noskaidrotu doto rezultātu lielo diverģenci, ir nepieciešams veikt teorētiskos interferences aprēķinus, kas darba ietvaros arī tika paveikts.

5.2.2. Plakanu viļņu interferences datora vizualizācija

Uzdevums ir eksperimentāli noskaidrot hologrāfiskā ierakstā veidojošos virsmas reljefa režģu efektivitātes atkarību no izmantotās gaismas polarizācijas, kā arī masas daļiņu kustību virzienu- vai tas ir gaismas lauka virzienā vai prom no tā. Šeit arī apskatīsim datora vizualizāciju hologrāfiskā ieraksta intensitātes sadalījumam, ko reģistrē gaismu jutīgais materiāls jeb paraugs, kurā veic ierakstu. Kā vēlāk noskaidrosies, ka ar divstaru hologrāfijas iekārtu pirmajā tuvinājumā nebūs iespējams neko noteikt par masas pārnesei un tāpēc jau tagad apskatīsim arī daudzstaru, *t.i.*, četrstaru (laboratorijā realizējamu) hologrāfisko ierakstu, kuram speciālgadījums arī būs divstaru ieraksts.

Izvēlos DOKS tā, lai x - y plakne ir paralēla parauga plaknei un tās centrs atrodas vienādos attālumos no simetriski izvietotiem četriem koherentiem gaismas avotiem tā, kā redzams 4.7. attēlā. Izvēlamies ievaddatus tālākajiem aprēķiniem tāds, kādus būtu iespējams realizēt Cietvielu fizikas institūta Optiskā ieraksta laboratorijā: staru krišanas leņķis $\varphi=15.4^\circ$ (*no formulas (3-7), lai periods būtu 1 μm*); gaismas avotu viļņu garums $\lambda=532\text{nm}$ (*Verdi V8 CW lāzers*); viļņu skaitlis $k=2\pi/\lambda$.

Katra gaismas avota izplatīšanos telpā raksturo ar tā k -vektoru:

$$\left[\begin{array}{l} \vec{k}_1 = k(-\sin \varphi, 0, \cos \varphi) \\ \vec{k}_2 = k(0, -\sin \varphi, \cos \varphi) \\ \vec{k}_3 = k(\sin \varphi, 0, \cos \varphi) \\ \vec{k}_4 = k(0, \sin \varphi, \cos \varphi) \end{array} \right] \quad 5-1$$

Polarizācija tiek definēta ar leņķi ω_i , starp elektrisko lauku \vec{E}_i un plakni, kurā atrodas viļņu vektors \vec{k}_i un vienības vektors \vec{z} vai parauga virsmas normāles vektors (4.7. att. redzams tikai priekš \vec{E}_4). Līdz ar to, elektriskie lauki ir formā:

$$\begin{bmatrix} \vec{E}_1 = E(\cos \omega_1 \cos \varphi, \sin \omega_1, \cos \omega_1 \sin \varphi) \\ \vec{E}_2 = E(-\sin \omega_2, \cos \omega_2 \cos \varphi, \cos \omega_2 \sin \varphi) \\ \vec{E}_3 = E(-\cos \omega_3 \cos \varphi, -\sin \omega_3, \cos \omega_3 \sin \varphi) \\ \vec{E}_4 = E(\sin \omega_4, -\cos \omega_4 \cos \varphi, \cos \omega_4 \sin \varphi) \end{bmatrix} \quad 5-2$$

Lai vienkāršotu procesu, izvēlamies, lai visu elektrisko lauku absolūtās vērtības ir vienas un tās pašas un vienādas ar viens, *t.i.*, $E = 1$. Līdz ar to tiek definēta interferējošo staru intensitāte, kas arī ir vienāda ar vienu vienību.

Nedaudz pārveidojot (2-16) formulu daudzstaru interferences gadījumam, iegūstam:

$$I(\vec{r}) = \sum_{l,m} \vec{E}_l \cdot \vec{E}_m^* e^{-i\vec{k}_{lm} \cdot \vec{r} - i(\varphi_l - \varphi_m)} \quad 5-3$$

Kur $\vec{k}_{lm} = \vec{k}_l - \vec{k}_m$ un fāžu starpība $\varphi = \varphi_l - \varphi_m$, kas tiek izvēlēta vienāda ar nulli. Gadījumā, kad tiek izmantota lineāri polarizēta gaisma, vienādojumu (5-3) iespējams vienkāršot:

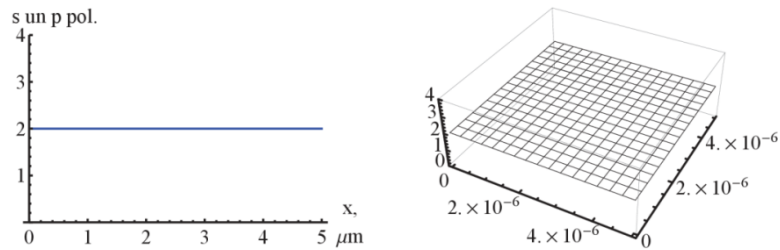
$$I(\vec{r}) = \sum_{l=m} \vec{E}_l \cdot \vec{E}_m + 2 \sum_{l < m} \vec{E}_l \cdot \vec{E}_m \cos(\vec{k}_{lm} \cdot \vec{r}) \quad 5-4$$

Doto interferences sadalījuma funkciju ir iespējams vizualizēt ar jebkuru 3D zīmēšanas programmu, ko arī šeit tālāk darīsim.

Divstaru interference

Lai apskatītu divstaru interferences intensitātes sadalījumu, no dotā modeļa ir jāizņem laukā divi pretējie gaismas avoti, piemēram, pirmais un trešais. Vienkāršākajā gadījumā, kad starp abiem elektriskajiem laukiem leņķis ir vienāds ar 90 grādi, proti, *s* un *p* polarizēti, gaismas interference netiek novērota (sk. 5.5. att.). Tā kā ortogonālu vektoru reizinājums ir vienāds ar nulli, tad otrais loceklis (5-4) formulā ir vienāds ar nulli un līdz ar to interferējošo staru summārā intensitāte ir katru atsevišķo staru intensitāšu summa.

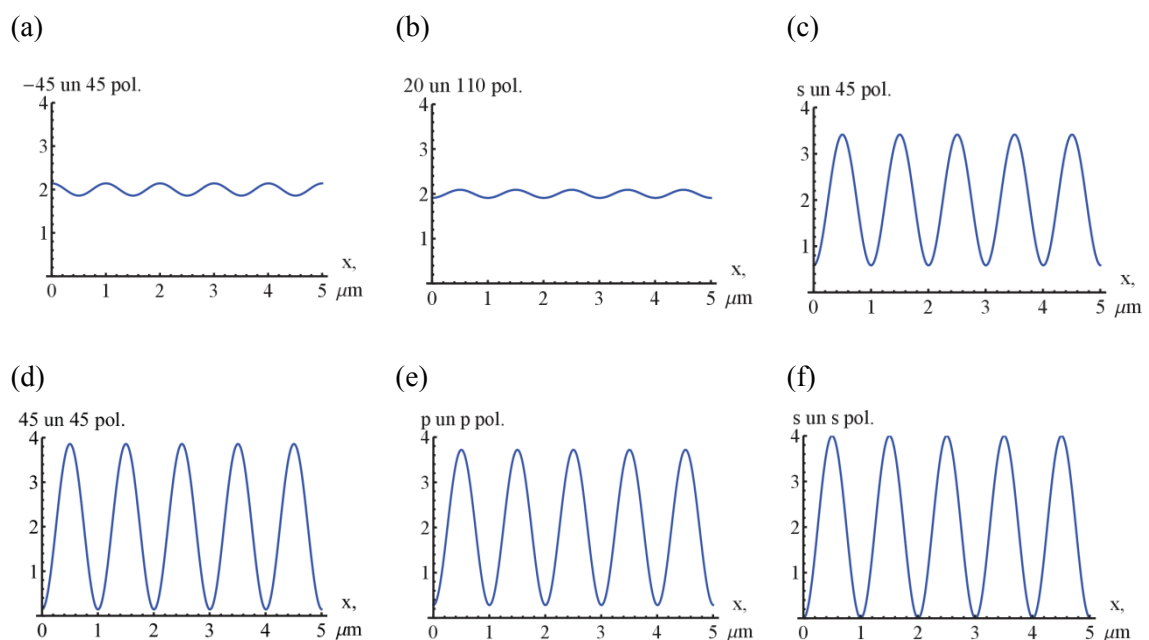
Pārējos gadījumos, kad starp interferējošo staru polarizācijām modelī arī ir 90 grādi un gaisma nav *s* un *p* polarizēta (sk. 5.6. att. a,b), tomēr ir novērojama arī neliela interference. Tā kā gaismas avoti krīt nelielā leņķī (15.4 grādi) viens pret otru,



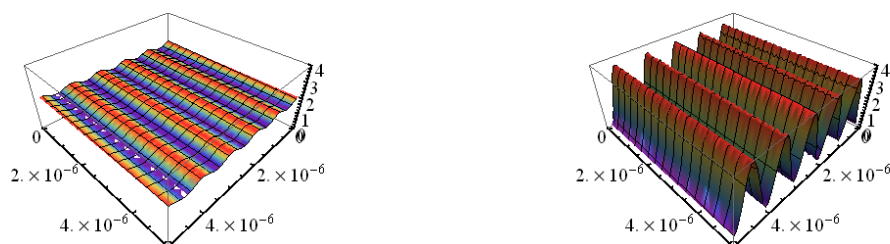
5.5. att. Divstaru interferences teorētiskais intensitātes sadalījums $5 \times 5 \mu\text{m}$ laukumā un tā profils gadījumā, kad interferējošie stari ir s un p polarizēti, starp polarizācijām ir 90 grādu leņķis

elektriskajiem laukiem tomēr veidojas kopēja komponente, kas arī veido nelielu interferences ainu. Ir iespējams parādīt, ka šajos gadījumos, ievēdot korekciju polarizācijai, var izlīdzināt nelielu gaismas interferences ainu. Piemēram, -45 un 45 grādu polarizācijas gadījumam abiem stariem polarizāciju jāizmaina par aptuveni 2 grādiem (uz -43 un 43), lai starp tiem būtu precīzi 90 grādi un gaismas interferenci nevarētu novērot.

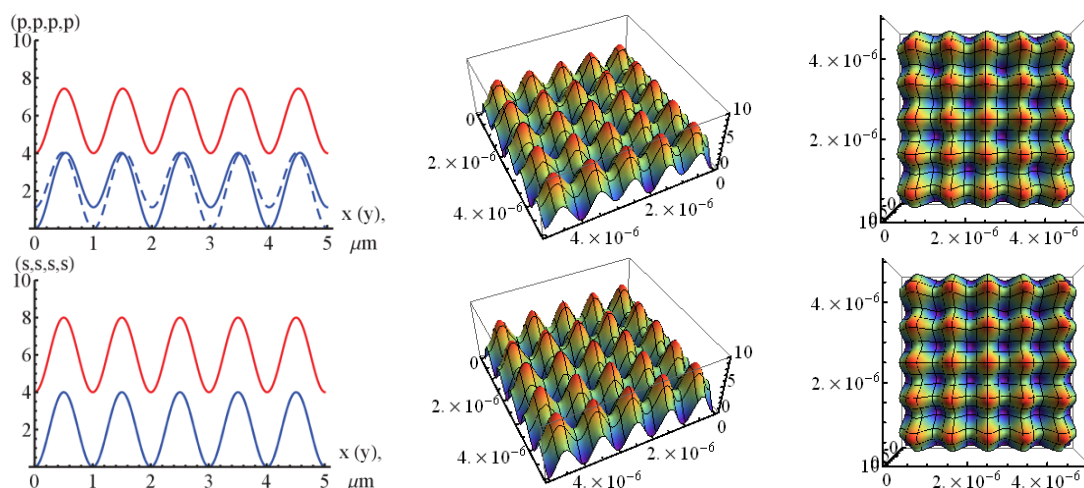
Kad abi interferējošie stari ir s polarizēti (sk. 5.6f. att.), ir iespējams sasniegt maksimālo intensitātes gradientu. Šajā vienīgajā gadījumā arī tās interferences amplitūda nav atkarīga no staru krišanas leņķa, kas varētu būt pozitīvs aspekts no praktiskā pielietojuma viedokļa. 3D piemēri divstaru interferences gadījumam ir redzami 5.7. attēlā.



5.6. att. Divstaru interferences teorētiskais intensitātes sadalījums, kad leņķis starp interferējošo staru polarizācijām modelī ir 90 grādi (a, b), 45 grādi (c) un 0 grādi (d, e, f)



5.7. att. Maza gradienta (*piem.*, -45 45) un liela gradienta (*piem.*, p p) divstaru hologrāfiskā ieraksta gaismas interferences intensitātes sadalījuma 3D datora vizualizācija



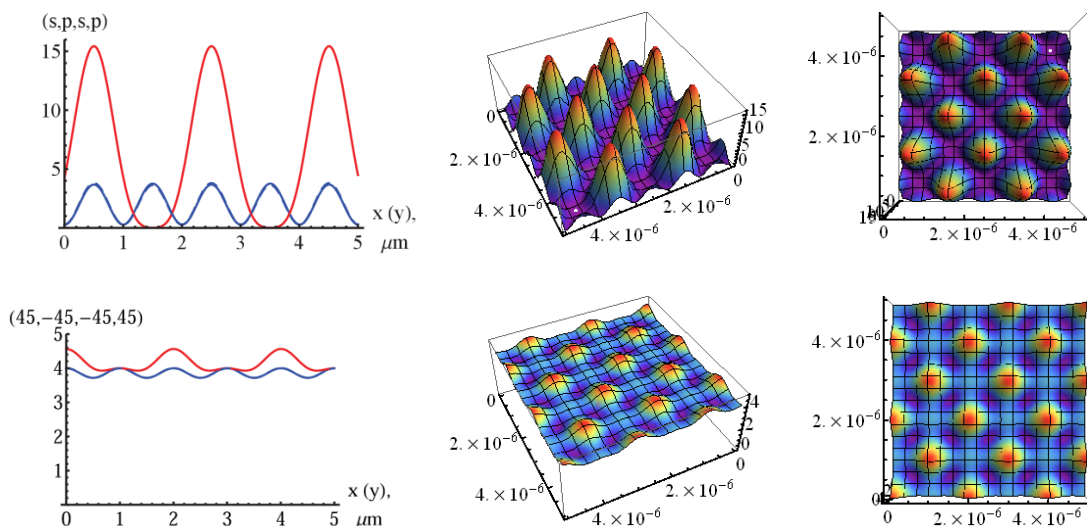
5.8. att. Četrstaru interferences intensitātes sadalījuma (sānskats un virsskats) 3D datora vizualizācija $5 \times 5 \mu\text{m}$ laukumā un tā profils, kur sarkanā līnija iet caur sadalījuma minimumiem, bet zilā- caur maksimumiem x vai y ass virzienā

Staru polarizācija redzama uz profila ordinātu ass kā vektors, kura komponentes arī apzīmē attiecīgi no pirmā līdz ceturtā gaismas avota polarizāciju (šajā gadījumā blakus stari ir ortogonāli polarizēti)

Četrstaru un trīsstaru interference

5.8. attēlā redzami četrstaru interferences vienkāršākie gadījumi, kad visu gaismas staru polarizācijas ir vienādas- p vai s polarizētas (starp blakus staru polarizācijām ir 90 grādu leņķis). Polarizācija attēlos ir atzīmēta vektora pieraksta formā, kura komponentes arī apzīmē no pirmā līdz ceturtā gaismas avota polarizāciju. Interferences aina abos šajos gadījumos ir ar simetriski 2D izvietotiem gaismas minimumiem un maksimumiem, caur kuriem izmērītie profili ir ar vienādām to amplitūdām un arī periodiem (5.8. att. sarkanā un zilā līkne).

No gaismas un parauga mijiedarbības pētīšanas viedokļa, interesantāki teorētiskie rezultāti ir iegūti ar citām polarizācijas kombinācijām. Ja polarizācija ir vērsta vienā virzienā (5.9. att. spsp gadījums)- visi gaismas avoti interferē viens ar otru un var iegūt gaismas sadalījumu, kur summārās gaismas intensitāte mainās no nulles



5.9. att. Četrstaru interferences intensitātes sadalījuma (sānskats un virsskats) 3D datora vizualizācija $5 \times 5 \mu\text{m}$ laukumā un tā profils, kur sarkanā līnija iet caur sadalījuma minimumiem, bet zilā- caur maksimumiem x vai y ass virzienā.

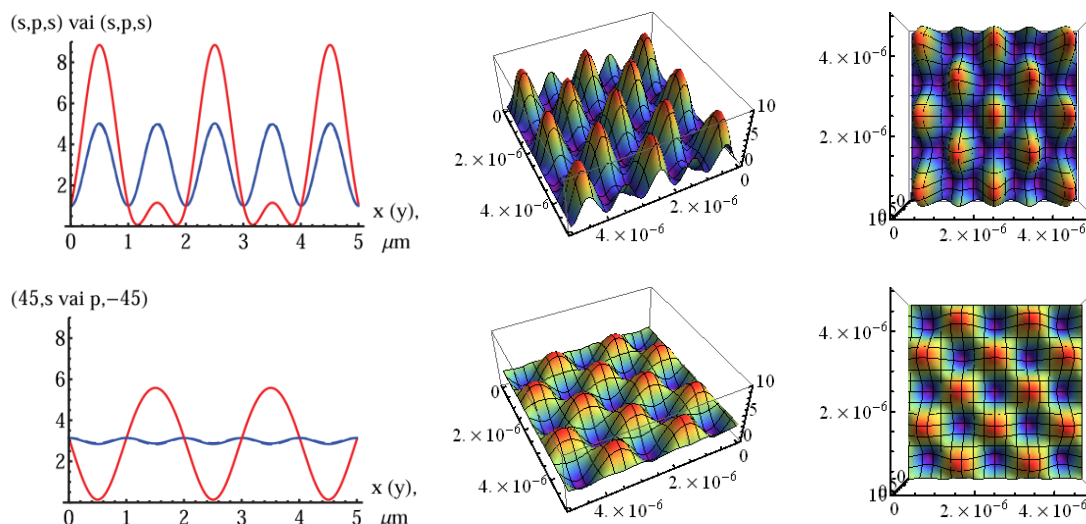
Staru polarizācija redzama uz profila ordinātu ass kā vektors, kura komponentes arī apzīmē attiecīgi no pirmā līdz ceturgtā gaismas avota polarizāciju

līdz 16 reizēm no viena gaismas avota intensitātes. Savukārt 45 grādu polarizācijas gadījumā, kad starp pretējiem gaismas avotiem ir 90 grādi un tie neinterferē (5.9. att. 45 -45 -45 45 gadījums) kopējais punktveida interferences ainas intensitātes gradients tiecas uz nulli. Viesiem pārējiem gadījumiem interferences aina ir ar tādu pašu ģeometriju, bet dažādu gaismas intensitātes gradientu. Uzmanības vērts ir arī fakts, ka visos šajos gadījumos interferences periods ir dubultojies- $1 \mu\text{m}$ vietā ir $2 \mu\text{m}$. Šādi punktveida intensitātes sadalījumi ir saistoši ne tikai no praktiskā pielietojuma, bet arī no parauga pētīšanas viedokļa, jo ļauj vienā piegājienā ierakstīt unikālas un augstas precizitātes struktūras, kuras ir viegli sasaistīt ar aprēķināto interferences sadalījumu.

Ar šiem pēdējiem apskatītajiem gaismas avotu polarizācijas gadījumiem vajadzētu pietikt, lai eksperimentāli noskaidrotu masas pārvietošanas virzienu tiešā ieraksta eksperimentos. Ja gaismas intensitātes gradienta iespaidā masas pārnese ir virzienā uz vietu ar lielāku gaismas intensitāti, iegūsim intensitātes sadalījumam līdzīgu virsmas reljefu, pretējā gadījumā (kad tiks bīdītas prom no apgaismotas vietas) iegūsim intensitātes sadalījumam negatīvo attēlu jeb *nospiedumu* paraugā.

Trīsstaru interference

Četrstaru hologrāfijas gadījumā aizsedzot, piemēram, ceturto gaismas avotu, ļoti vienkārši iegūstam trīsstaru eksperimentālo iekārtu. Tā kā mērķis ir izprast masas



5.10. att. Trīs staru interferences intensitātes sadalījuma (sānskats un virsskats) 3D datora vizualizācija $5 \times 5 \mu\text{m}$ laukumā un tā profils, kur sarkanā līnija iet caur sadalījuma minimumiem, bet zilā- caur maksimumiem x vai y ass virzienā.

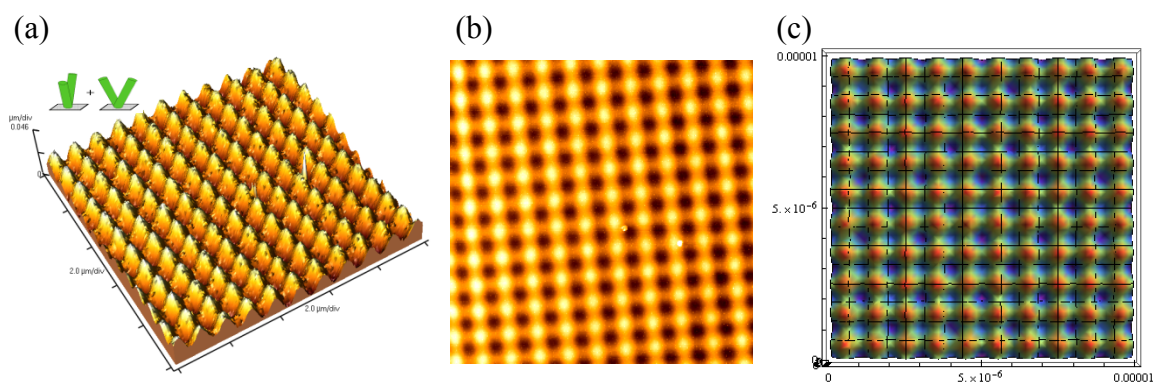
Staru polarizācija redzama uz profila ordinātu ass kā vektors, kura komponentes apzīmē attiecīgi no pirmā līdz trešā gaismas avota polarizāciju

pārneses procesu apgaismošanas laikā, pārējo staru ģeometrija (k -vektoru virzieni) var palikt nemainīga. Gadījumā, kad pretējie gaismas avoti ir vienādi polarizēti un sāna-izvēlēts ar tādu pašu (5.10. att. sps vai psp) vai tuvu tādai pašai polarizācija, iegūstam intensitātes sadalījumu nedaudz izstieptu vienā no virzieniem. Arī šajos gadījumos interferences ainu periods ir dubultojies un arī šeit būtu iespējams izdarīt kvalitatīvus secinājumus par virsmas reljefa veidošanās procesiem.

5.2.3. Daudzstaru hologrāfijas eksperimentu salīdzinājums ar teoriju

Uzdevums ir eksperimentāli noskaidrot hologrāfiskā ieraksta laikā novērotās masas pārneses virzienu. Zinot daudzstaru interferences teorētiskos intensitātes sadalījumus, ir jāizvēlas tikai vispiemērotākais gadījums hologrāfiskajam ierakstam, pēc kura būtu nepārprotami redzami procesi, kas norisinājušies ieraksta laikā. Šajā sadaļā pārlicināsimies, ka ar daudzstaru (trīs un četrstaru) hologrāfiskā ieraksta iekārtu ne tikai ir iespējams iegūt dažādu veidu 3D punktveida intensitātes sadalījumus, bet arī ierakstīt dažādas 3D punktveida struktūras.

Pirmie eksperimenti tika veikti ar divstaru hologrāfisko iekārtu. Tika ierakstīts vienkāršs difrakcijas režģis, pagriezts paraugs par 90 grādiem un ierakstīts vēl viens difrakcijas režģis. Ar šāda manevra palīdzību tika ierakstīts krustots režģis (5.11. att. a



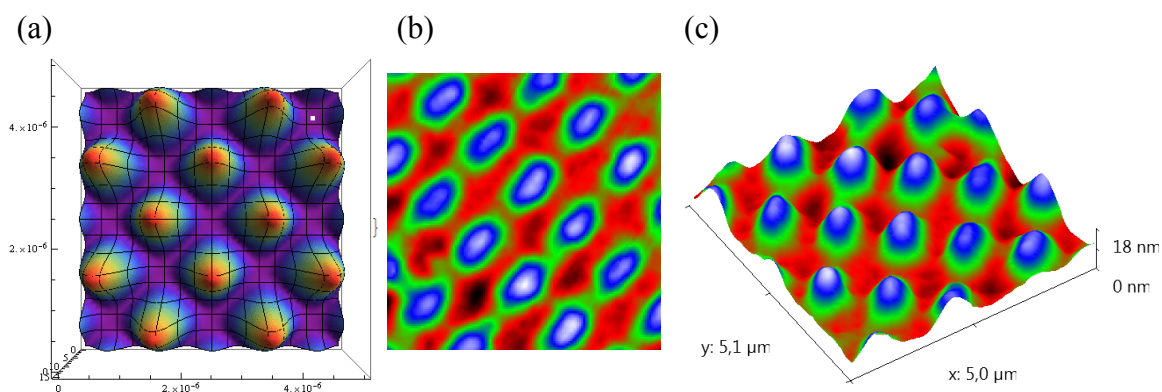
5.11. att. $10 \times 10 \mu\text{m}$ AFM virsmas reljefa 3D un 2D attēlojums (a un b) divstaru hologrāfiskajam ierakstam, paraugs ieraksta laikā pagriezts par 90 grādiem, tā salīdzinājums ar 3D datora vizualizāciju (c)

Tiešais ieraksts As_2S_3 kārtiņā ar $Nd:YAG$ 523nm lāzeru, p un p pol. $I_1=I_2=0.3W/cm^2$, $\Lambda=1\mu m$

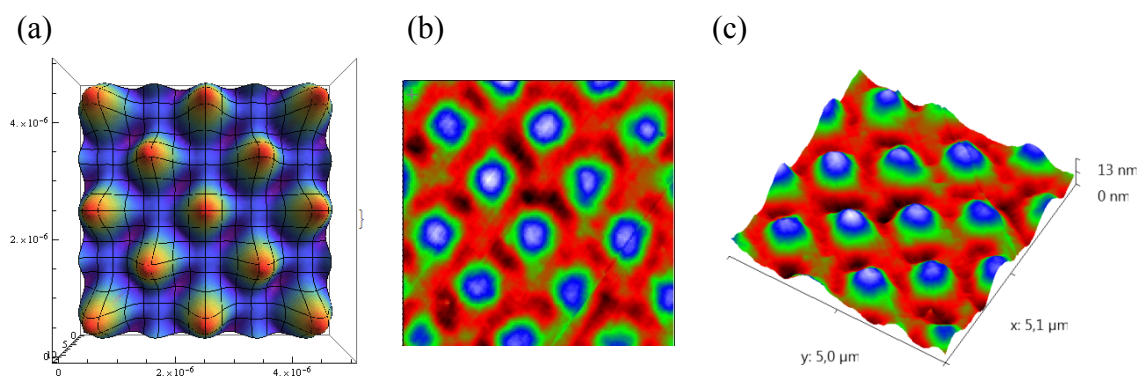
un b). Izanalizējot iegūtos rezultātus ir secināts, ka no iegūtā profila attēla nav iespējams neko pateikt par masas pārnese virzieniem. Ierakstot sinusoidālu režģi un krustām pāri pārrakstot citu, neatkarīgi no notiekošajiem procesiem ieraksta laikā, neko citu kā režģi ar kalniņiem iegūt nav iespējams. Pēc šādiem eksperimentiem arī radās vajadzība pēc četrstaru ieraksta iekārtas un teorētiskā interferences intensitātes sadalījuma noteikšanas. Vēlāk, salīdzinot šos iegūtos rezultātus ar teorētiski aprēķinātajiem (5.11c. att.), apstiprinājās iepriekš izvirzītā hipotēze par masas pārnese virziena nenoteiktību.

Četrstaru hologrāfiskajā iekārtā, kur visi gaismas avoti polarizēti vienā virzienā, piemēram, (p,s,p,s) gadījumā, gaismas interference ir ar stipri izteiktiem pīķiem (16 reizes intensīvāki par katru no krītošās gaismas stariem) un minimumos gaismas intensitāte ir vienāda ar nulli. Šāda gadījuma hologrāfiskajā ierakstā redzam, ka iegūtais virsmas reljefs atkārto intensitātes sadalījumu (5.12. att.). No iegūtā rezultāta varam secināt, ka šajā gadījumā masas daļiņas ir pārvietojušās gaismas intensitātes virzienā.

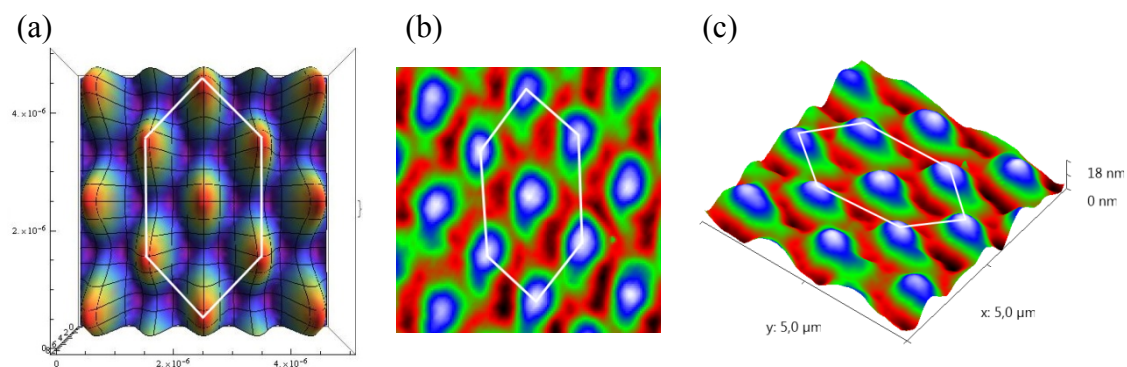
Gadījumā, kad divu pretējo staru gaismas polarizācijas tiek pagrieztas par 45 grādiem, intensitātes sadalījums paliek ļoti līdzīgs iepriekš apskatītajam. Šādi tiek samazināts gaismas intensitātes gradients un intensitātes pīķi vairs nav tik izteikti, minimumos intensitāte arī vairs nav vienāda ar nulli. Eksperimentālajos ieraksta gadījumos nekas nemainās- masas pārnese notiek virzienā uz intensīvāk apgaismotajām vietām (5.13. att.). Identiska situācija tiek novērota trīsstaru hologrāfiskā ierakstā, kad visi trīs gaismas avoti polarizēti vienā virzienā (5.14. att.). Arī šeit gaismas interferences sadalījums ir līdzīgs jau apskatītajiem un AFM virsmas reljefa attēlojumā vēlreiz pārliccināmies, ka reljefs atkārto interferences intensitātes sadalījumu.



5.12. att. Četrstaru hologrāfiskā ieraksta As-S-Se kārtiņā (a) interferences ainu datora vizualizācija un (b, c) AFM virsmas reljefa attēlojums
Ieraksts veikts gadījumā, kad visi gaismas avoti polarizēti vienā virzienā, t.i., (p,s,p,s)



5.13. att. Četrstaru hologrāfiskā ieraksta As-S-Se kārtiņā (a) interferences ainu datora vizualizācija un (b, c) AFM virsmas reljefa attēlojums
Ieraksts veikts gadījumā, kad divi pretējie gaismas avoti polarizēti 45 grādu leņķī, t.i., (s,45,s,45)



5.14. att. Trīsstaru hologrāfiskā ieraksta As-S-Se kārtiņā (a) interferences ainu datora vizualizācija un (b, c) AFM virsmas reljefa attēlojums
Ieraksts veikts gadījumā, kad visi gaismas avoti polarizēti vienā virzienā, t.i., (s,p,s)

5.2.4. Halkogenīdu foto inducētās mīkstināšanās iespaids uz tiešo hologrāfisko ierakstu

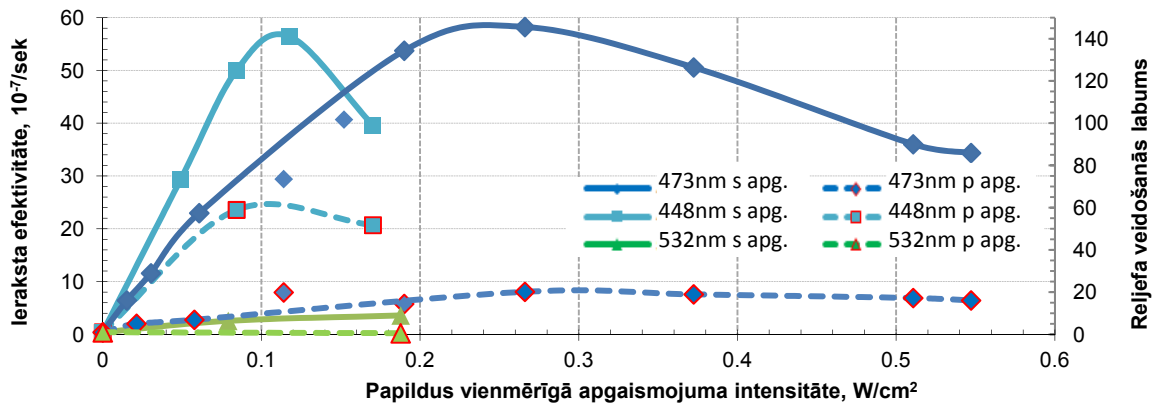
Šajā daļā tiks apskatīts tiešā hologrāfiskā ieraksta virsmas reljefa veidošanās efektivitāte, kā arī polarizācijas ietekmes anizotropija uz parauga foto inducēto mīkstināšanos un līdz ar to arī uz hologrāfisko režģu veidošanās procesu.

Teorētiskie aprēķini (5.6. att.) rāda, ka hologrāfiskajam ierakstam kopējā gaismas intensitāte periodiski mainās no I_{min} līdz I_{max} , t.i., divu gaismas avotu interferences gadījumā ir iespējamas lokālas vietas, kur gaisma vispār nenonāk (s un s pol., $I_{min}=0$). Tiešā virsmas reljefa hologrāfisko režģu ieraksta gadījumā tas nozīmē, ka uz parauga atradīsies lokālas neapgaismotas vietas. Tā kā paraugs ir amorfa kārtiņa un nav šķidrums, šīs periodiski neapgaismotās vietas praktiski nepiedalās virsmas reljefa veidošanās procesā un līdz ar to pasliktina režģa ieraksta efektivitāti. Šo problēmu varētu apiet hologrāfiskā ieraksta laikā karsējot paraugu. Uzturot tā temperatūru tuvāku kārtiņas mīkstināšanās jeb stiklošanās temperatūrai ($\sim 170^{\circ}\text{C}$), varam atvieglot masas pārneses procesu hologrāfisko režģu ieraksta laikā pat no vietām, kur gaismas intensitāte bija vienāda ar nulli. Laboratorijas apstākļos šādi eksperimenti ir pārāk nestabili un grūti realizējami. Tādu pašu efektu varam iegūt ar papildus nekoherentu apgaismojumu hologrāfiskā ieraksta laikā, tādējādi apgaismojot (mīkstinot) tās pašas vietas, kur gaismas avotu interferences intensitāte vienāda ar nulli.

Apgaismojot paraugu ar nekoherentu gaismas avotu ar intensitāti I_0 , iegūsim to pašu periodisko gaismas intensitātes gradientu, bet tikai šoreiz nevis intervālā no I_{min} līdz I_{max} , bet gan no $I_{min}+I_0$ līdz $I_{max}+I_0$. Rezultātā iegūstam to pašu karsēšanas efektu, bet ar plašāku rīcības brīvību, pārbaudot polarizācijas anizotropo iespaidu uz parauga foto inducēto mīkstināšanos.

Papildus apgaismojuma polarizācijas un viļņa garuma izvēles ietekme uz tiešo virsmas reljefa hologrāfisko ierakstu

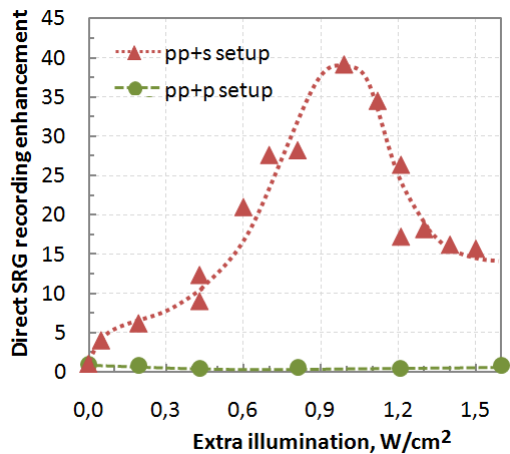
Hologrāfiskā divstaru ieraksta iekārtā kā interferējošie ieraksta stari tika izmantoti vienādās intensitātēs sadalīts Nd:YAG 532nm lāzera stars. Par papildus apgaismojumu tika izvēlēti CFI Optiskā ieraksta laboratorijā pieejamie pusvadītāju lāzери ar pietiekami lielu absorbciju dotajam gaismu jutīgajam As_2S_3 paraugam: 448, 473 un 532nm viļņu garumi.



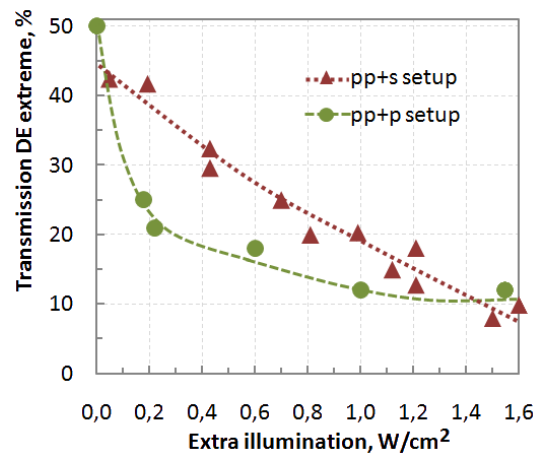
5.15. att. Hologrāfiskā režģa ieraksta efektivitāte un reljefa veidošanās labums As_2S_3 kārtiņā atkarībā no papildus apgaismojuma viļņa garuma, intensitātes un tās polarizācijas. Ieraksts tika veikts ar Verdi-6 532nm p un p polarizētiem gaismas avotiem ($I_1=I_2=0.2W/cm^2$, $\lambda=1\mu m$)

5.15. attēlā redzams šīs daļas eksperimentu apkopojums- hologrāfiskā režģa ieraksta efektivitātes ($\Delta\eta_R/\Delta t$) salīdzinājums ar un bez papildus apgaismojuma As_2S_3 kārtiņā un tā atkarība no papildus apgaismojuma viļņa garuma, intensitātes un polarizācijas. Mainot papildus apgaismojuma intensitāti un viļņa garumu, interferējošo gaismas staru polarizācija un intensitāte (*p*-polarizācija un $0.2W/cm^2$ katrā starā) tika uzturēta nemainīga. No grafika redzam, ka, palielinoties papildus apgaismojuma intensitātei, virsmas reljefa formēšanās efektivitāte palielinās ļoti strauji. Šis efekts visvairāk izpaužas pie papildus apgaismojuma viļņu garumiem, kas atrodas tālāk no parauga absorbcijas sliekšņa (tiek vairāk absorbēti). 532nm apgaismojuma gadījumā, hologrāfiskā režģa ieraksta efektivitāte arī palielinās, bet vairs ne tik strauji, jo šis viļņu garums vairs netiek tik aktīvi absorbēts materiālā (5.15. att. redzams līdz $0,19W/cm^2$). Pēc lielākas jaudas 532nm viļņa garuma lāzera iegādes, tika noteikta arī piesātinājuma vērtības pie šī viļņa garuma papildus apgaismojuma (5.16. att.). Neatkarīgi no apgaismojuma polarizācijas, katra viļņa garuma papildus apgaismojuma ieguldījums hologrāfiskā režģa ieraksta efektivitātes uzlabošanā piesātinās pie tai noteiktas papildus apgaismojuma intensitātes ($I_{448nm}=0.11W/cm^2$, $I_{473nm}=0.24W/cm^2$, $I_{532nm}=1.25W/cm^2$). Pie apgaismojuma intensitātes, kas lielākas par šīm vērtībām, interferējošie gaismas avoti vairs nespēj pietiekami labi formēt hologrāfisko režģi, paraugs paliek pārāk plūstošs, palielinātā apgaismojuma intensitāte sāk pasliktināt ieraksta efektivitāti.

No grafikiem (5.15., 5.16. att.) arī redzam, ka ieraksta efektivitāte ir stipri atkarīga ne tikai no papildus apgaismojuma viļņa garuma un intensitātes, bet arī no tā polarizācijas. *P*-polarizācijas ieraksta gadījumā, neatkarīgi no papildus apgaismojuma viļņa garuma, labākos rezultātus hologrāfisko režģu veidošanas procesā dod tieši *s* jeb



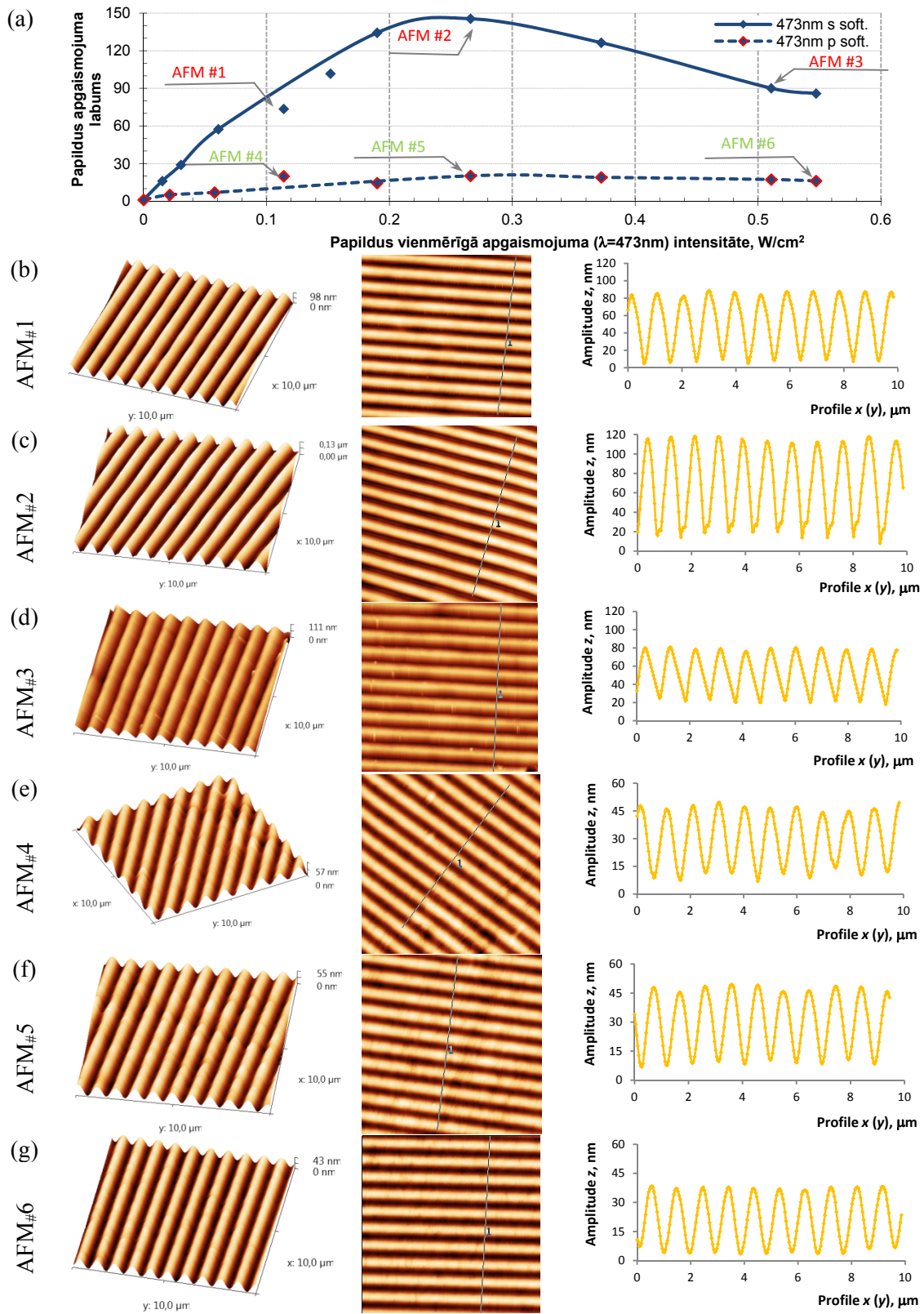
5.16. att. Hologrāfiskā režģa ieraksta efektivitāte As_2S_3 kārtiņā atkarībā no papildus 532nm viļņa garuma apgaismojuma intensitātes un polarizācijas Ieraksts tika veikts ar 532nm p un p polarizētiem gaismas avotiem, kā papildinājums 5.8. att. ($I_1=I_2=0.2W/cm^2$, $\Lambda=1\mu m$)



5.17. att. Transmisijas DE maksimālās vērtības atkarībā no papildus 532nm apgaismojuma intensitātes un polarizācijas Hologrāfiskais ieraksts tika veikts ar 532nm p un p polarizētiem gaismas avotiem ($I_1=I_2=0.2W/cm^2$, $\Lambda=1\mu m$)

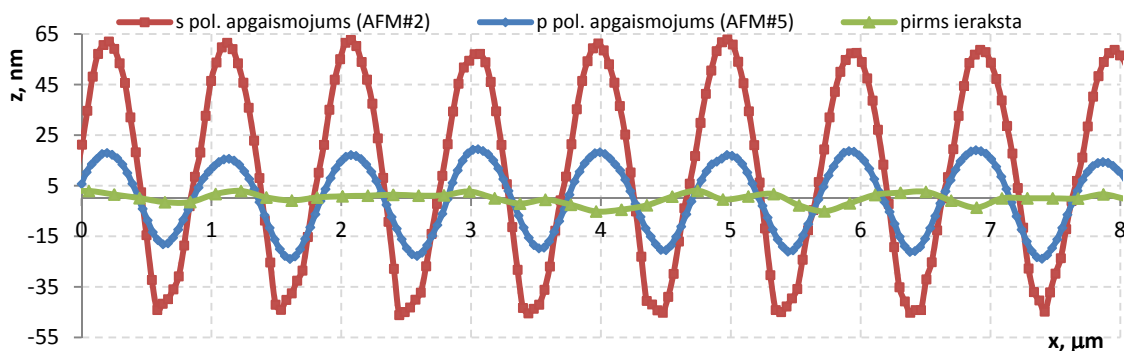
ortogonāli polarizēts papildus apgaismojums. Salīdzinot šīs ieraksta efektivitātes līknes pie s un p papildus apgaismojuma polarizācijas, redzam, ka līknes pa pāriem atkārtoti viena otru, tikai p -polarizācijas gadījumā ordinātas vērtības ir stipri zemākas. Piemēram, tikai samainot 473nm papildus apgaismojuma polarizāciju no p uz s , jau iegūstam aptuveni sešas reizes labākus ieraksta efektivitātes rādījumus. Šeit varam ļoti labi pārlicināties par vienmērīgā apgaismojuma polarizācijas anizotropo iespaidu uz parauga optiskajām un mehāniskajām īpašībām (sk. teorijas apraksta 1.3.3. daļu). Anizotrops iespaids arī tiek novērots, apskatot pirmo sekunžu transmisijas DE (sk. tipisku ierakstu 5.2. attēlā) maksimālās vērtības (5.17. att.). Transmisijas DE ir tilpuma ieraksta raksturojošs parametrs, kas šajā gadījumā, palielinoties papildus apgaismojuma intensitātei, lineāri samazinās pie s papildus polarizācijas un kvadrātiski pie p papildus polarizācijas apgaismojuma.

Difrakcijas efektivitāte un līdz ar to arī ieraksta efektivitāte ($\Delta\eta_R/\Delta t$) un reljefa veidošanās labums (reljefa ieraksta efektivitāte bez papildus apgaismojuma normēta uz 1) sniedz tikai netiešu informāciju par tiešā hologrāfiskā ieraksta virsmas reljefa amplitūdas izmaiņām ieraksta laikā. Eksperimenta ietvaros ir nepieciešams veikt tiešos režģa profila mērījumus ar CFI pieejamo atomspēku mikroskopa (AFM) palīdzību un pārbaudīt iepriekš izvirzītās hipotēzes par papildus apgaismojuma ieguldījumu režģu veidošanā.



5.18. att. Papildus vienmērīgā 473nm apgaismojuma pielietojuma (a) hologrāfisko režģu ieraksta efektivitātes uzlabošanai vizuālais AFM 10x10 μm attēlojums (b-g) 3D, 2D un 1D jeb profils

Hologrāfiskais ieraksts tika veikts As_2S_3 ar 532nm p un p polarizētiem gaismas avotiem ($I_1=I_2=0.2\text{W}/\text{cm}^2$, $\Lambda=1\mu\text{m}$)



5.19. att. Virsmas reljefa profils tiešajam hologrāfisko režģu ierakstam gadījumos, kad paraugs papildus apgaismots ar $0.24\text{W}/\text{cm}^2$ 473nm *s* vai *p* polarizētu gaismu, to salīdzinājums ar parauga virsmu pirms ieraksta

*Hologrāfiskais ieraksts tika veikts As_2S_3 ar 532nm *p* un *p* polarizētiem gaismas avotiem ($I_1=I_2=0.2\text{W}/\text{cm}^2$, $\Lambda=1\mu\text{m}$)*

Apskatot virsmas topogrāfiju vairākiem hologrāfiskā režģa ieraksta gadījumiem pie papildus 473nm apgaismojuma, vizuāli varam pārliecināties par režģa ieraksta efektivitātes uzlabojumiem. Pie trīs dažādām *s* polarizēta papildus apgaismojuma intensitātēm un pie nemainīga ierakstošo gaismas avotu uzstādījumiem (5.18. att. a-d), tiek iegūtas atšķirīgas difrakcijas režģu augstuma izmaiņas. Pie papildus apgaismojuma intensitātes, kas mazāka par piesātinājuma intensitāti ($I_{473\text{nm}}=0.24\text{W}/\text{cm}^2$) vai būtiski pārsniedz to, difrakcijas režģa izmaiņas pa *z*-asi ir zem 70nm lielas (5.18. att. b un d). Savukārt $0.24\text{W}/\text{cm}^2$ papildus apgaismojuma gadījumā (5.18a. att. AFM#2) izmaiņas pa *z*-asi palielinās par 50%- līdz 100nm un vairāk (5.18c. att.). Līdzīgām papildus apgaismojuma intensitātēm, bet tikai papildus *p* polarizētas gaismas gadījumā (5.18a. att. AFM#4-6), situācija mainās. Tā kā papildus apgaismojuma grafikā visi trīs mērījumi atrodas uz *x*-asij aptuveni paralēlas taisnes, arī iegūtā režģa *z*-ass izmaiņas ir aptuveni vienādas- 35nm (5.18. att. e-g).

Tātad, ja šim konkrētajam tiešā hologrāfiskā režģa ieraksta gadījumam (532nm, *p* un *p* polarizācija, $I_1=I_2=0.2\text{W}/\text{cm}^2$) izvēlamies laboratorijā pieejamā 473nm lāzera apgaismojumu ar *s* polarizāciju un intensitāti $I_{473\text{nm}}=0.24\text{W}/\text{cm}^2$, iegūsim maksimāli labāko iespējamo rezultātu. To pašu arī redzam profilu grafikā (5.19. att.), kur parādīts papildus apgaismojuma ieguldījums hologrāfisko režģu ierakstā.

5.2.5. Polarizācijas ietekme hologrāfiskā režģa ierakstam un papildus apgaismojumam

Šo eksperimentu sērijas otrajā daļā tiek apskatīts, kādi rezultāti ir iegūstami veicot hologrāfisko ierakstu pie dažādām polarizācijām. Ieraksta efektivitāte tiek salīdzināta ar rezultātiem, kuri tika iegūti eksperimentos ar papildus dažādu polarizāciju 473nm lāzera apgaismojumu.

Tātad, 2. Tabula apkopo datus ne tikai priekš p un p polarizācijas ierakstošajiem stariem, bet arī par visām pārējām polarizācijas kombinācijām. Bez papildus apgaismojuma labākie ieraksta rezultāti ir iegūti ar pretēji cirkulārām (LC un RC) un arī ar 45 un -45 (45° un 135°) grādu ierakstošo staru polarizācijām. Ja ierakstošo staru krišanas leņķis ir neliels, 45 un -45 polarizācijas gadījumā varam pieņemt, ka leņķis starp ierakstošo staru polarizācijām ir vienāda ar 90 grādiem un interference starp tiem netiek novērota (sk. 5.6. att.). Tādā gadījumā kopējā gaismas intensitāte ir ar vienmērīgu sadalījumu $I_{sum} = I_{45^\circ} + I_{-45^\circ}$ un ieraksta laikā nav neapgaismotas vietas uz parauga, kas traucētu hologrāfisko režģu ieraksta procesam. Tā kā gaismas intensitātes gradients šajā gadījumā ir vienāds vai tuvs nullei, virsmas reljefu, iespējams, veido elektriskais lauks, kas periodiski mainās no p , LC, s līdz RC (sk. teorijas aprakstu 3.3.2. daļu) ar to pašu periodu Λ . Šie fakti par intensitātes sadalījumu un elektrisko lauku ļoti labi izskaidro, kāpēc šajā gadījumā (arī pretēji cirkulāru ieraksta polarizācijai) ir iespējams iegūt ļoti labus ieraksta efektivitātes rādījumus pat bez papildus apgaismojuma. Izvērstāk tas tiks apskatīts nākamajā sadaļā.

Kad tiek izmantots papildus apgaismojums, situācija mainās. Kā jau iepriekš noskaidrojām, pie p un p (jeb sāsinot p:p) interferējošiem stariem papildus s polarizētas gaismas apgaismojums ir nepieciešams maksimālas režģa efektivitātes iegūšanas. Savukārt $s:s$ ieraksta gadījumā, papildus apgaismojumam jābūt p polarizētam. Abos gadījumos ir nepieciešams ortogonāls papildus nekoherentais apgaismojums, kur varam iegūt reljefa veidošanās uzlabojumu līdz pat 200 un vairāk reizēm. Savukārt, kad ieraksts tiek veikts 45:45 grādu polarizāciju, labākie rezultāti tomēr sasniegti ar s polarizētu papildus apgaismojumu. Tas varētu būt izskaidrojams ar to, ka, staru slīpas krišanas gadījumā, leņķis starp abām polarizācijām nav precīzi 0 grādi, bet gan nedaudz vairāk.

2. Tabula. Hologrāfisko režģu difrakcijas un virsmas reljefa veidošanās efektivitātes atkarība no ierakstošo un apgaismošanas staru polarizācijas
 Hologrāfiskais ieraksts tika veikts As_2S_3 kārtiņā ar Verdi-6 532nm lāzeru ($I_1=I_2=0.25W/cm^2$, $\Lambda=1\mu m$), papildus apgaismojot ar 473nm viļņu garuma gaismu (0 vai $0,24W/cm^2$)

Ieraksta polarizācija	Papildus apgaismojuma polarizācija	Ieraksta efektivitāte ($\Delta\eta/\Delta t$), $10^{-7}/sek.$	Reljefa veidošanās labums	Ieraksts bez apgaismojuma novērtējums	Ieraksts ar apgaismojumu novērtējums
$p : p$	s	91	260.0		Ļoti labi
	p	13.7	39.1		
	-	0.35	1.0	Labi	
$s : s$	s	0.22	2.2		
	p	19	190.0		Labi
	-	0.1	1.0	Slikti	
$s : p$	s	0.17	4.3		Ļoti slikti
	p	0.035	0.9		
	-	0.04	1.0	Ļoti slikti	
$45^{\circ} : 45^{\circ}$	s	23	31.9		Labi
	p	0.2	0.3		
	-	0.72	1.0	Labi	
$45^{\circ} : -45^{\circ}$	s	102	2.3		Ļoti labi
	p	90.4	2.1		
	-	44	1.0		
	45°	98	2.2	Ļoti labi	
$LC : RC$	s	58	0.6		Ļoti labi
	p	62	0.7		
	-	90	1.0	Ļoti labi	
$LC : LC$	s	57	100.0		Ļoti labi
vai	p	0.25	0.4		
$RC : RC$	-	0.57	1.0	Labi	

Savstarpēji ortogonālu ierakstošo staru gadījumā, ja izmanto -45 un $+45$ grādu polarizāciju, tad, neatkarīgi no tā, kādas polarizācijas apgaismojumus tiek izmantots, iegūstam aptuveni divkārt uzlabotu ieraksta efektivitāti. Ja hologrāfiskajam ierakstam izmanto cirkulāri polarizētu gaismu, papildus apgaismojums dod daudzkārtīgu ieraksta uzlabojumu gadījumā, kad interferējošie gaismas avoti ir vienādi cirkulāri polarizēti (piem., $LC:LC$). Savukārt pretēji cirkulāras polarizācijas gadījumā ($LC:RC$), papildus apgaismojums tikai pasliktina rezultātus. Šo rezultātu izskaidrošanai ir nepieciešams veikt jaunus teorētiskos aprēķinus divstaru interferences intensitātes sadalījuma sīkākai izpētei, proti, izpētīt polarizācijas sadalījumu divstaru interferences gadījumā.

5.2.6. Teorētiskais polarizācijas sadalījums divu staru interferences gadījumam

No iepriekš apskatītajiem rezultātiem (sk. 2. Tabula) varam secināt, ka ir tādas ierakstošo staru polarizāciju kombinācijas (piem., -45 un 45) pie kurām tiešais ieraksts ir iespējams ar ļoti lielu efektivitāti. Tā kā aprēķinātais intensitātes sadalījums -45:45 gadījumā ir praktiski vienmērīgs (sk. 5.6. att.), radās doma, ka režģa ieraksta nepieciešamais nosacījums ir polarizācijas jeb elektriskā lauka intensitātes gradients, nevis gaismas intensitātes gradients. Ir pieejams ļoti maz zinātniskās literatūras ar apskatītiem plakānu viļņu interferences elektriskā lauka intensitātes sadalījumiem un tā ir nepilnīga (ietver tikai dažus gadījumus, informācijas vai paskaidrojumu trūkumi u.c.) un nav parādīta vai paskaidrota rezultātu izcelsme (matemātiski aprēķini, modelis utt.). Lai atvieglotu eksperimentālo rezultātu interpretāciju un analīzi, šajā daļā tiks teorētiski apskatīts visu populārāko ierakstošo staru interferences elektriskā lauka sadalījumi.

Teorētisko eksperimentu shēma ir izvēlēta tāda pati kā tiešā ieraksta eksperimentiem (sk. 4.3.1. sadaļu). Dotais Bregga vienādojums definē leņķi 2α starp abiem \mathbf{k} vektoriem, lai, izmantojot 532nm viļņa garuma gaismu, iegūtu 1µm periodiskas struktūras:

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2 \sin \alpha} \quad 5-5$$

Ņemot skalāra viļņa vienādojuma atrisinājumu homogēnā vidē:

$$w = A \cdot \cos(k \cdot s - \omega \cdot t) \quad 5-6$$

kur A - amplitūda, k - viļņu skaitlis, s - viendimensionāla koordināta, ω - leņķiskā frekvence, t - laiks, ir iespējams definēt vertikāli jeb z ass virzienā polarizētu vilni, kas izplatās gar y asi:

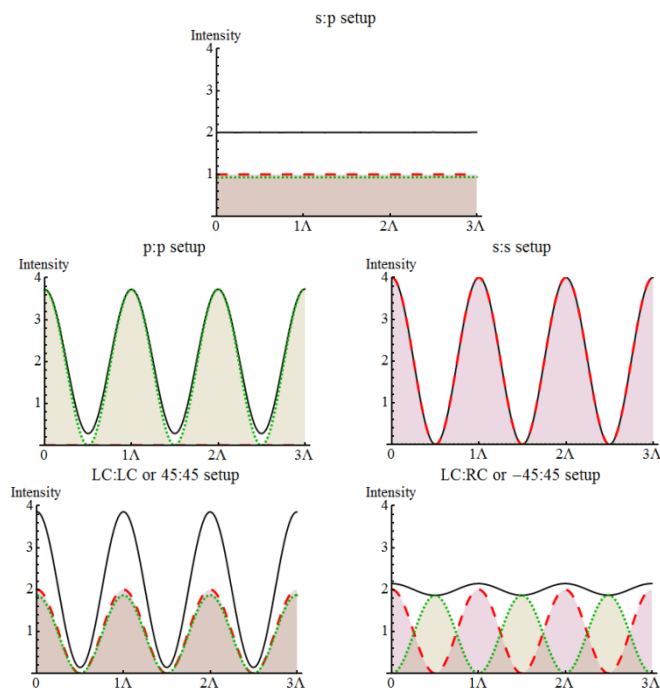
$$\vec{w} = \{0, s, w\}, \quad 5-7$$

vai arī horizontāli jeb x ass virzienā polarizētu vilni, kas izplatās gar y asi:

$$\vec{w} = \{w, s, 0\} \quad 5-8$$

Izmantojot koordinātu transformācijas matricu un datu vizualizācijas programmu (piem., *Mathematica*), ir iespējams izveidot datora vizualizāciju polarizācijas sadalījumam divu staru interferences gadījumā.

Teorētiski aprēķinātais divu plakānu viļņu interferences polarizācijas sadalījums redzams 5.20. attēlā. Ar melno līkni ir attēlota kopējā gaismas interferences intensitāte,



5.20. att. Teorētiski aprēķinātais divu staru interferences intensitātes sadalījums (melnā nepārtrauktā līkne), kā arī summārās intensitātes s un p komponentes attēlotas ar pārtrauktām līknēm un iekrāsotiem apgabaliem zem tām
Interferējošās gaismas intensitāte $I_1=I_2=1$ vienība, interferences periods $\Lambda=1\mu\text{m}$, leņķis starp \mathbf{k} vektoriem $2\alpha=30.86^\circ$, $\lambda=532\text{nm}$

Polarization of the beams		$\Delta\varphi$	Sum of the electric fields in x-y plane				
first (I=1)	second (I=1)		x: $-\pi$	$-\pi/2$	0	$+\pi/2$	$+\pi$
s ↑	s ↑		n/a	↑	↑	↑	n/a
p ←	p ←		•	←	←	←	•
s ↑	p ←		↘	○	↗	○	↘
+45 ↗	-45 ↙		←	○	↑	○	←
-45 ↙	-45 ↙		•	↘	↘	↘	•
RC ○	RC ○		•	○	○	○	•
RC ○	LC ○		←	↗	↑	↘	←
		I:	0.00	2.00	4.00	2.00	0.00
		I:	0.28	2.00	3.72	2.00	0.28
		I:	2.00	2.00	2.00	2.00	2.00
		I:	1.86	2.00	2.14	2.00	1.86
		I:	0.14	2.00	3.84	2.00	0.14
		I:	0.14	2.00	3.86	2.00	0.14
		I:	1.86	2.00	2.14	2.00	1.86

5.21. att. Teorētiski aprēķinātais divu staru interferences polarizācijas sadalījums dažādu interferējošo staru polarizācijas gadījumos
Interferējošās gaismas intensitāte $I_1=I_2=1$ vienība, interferences periods $\Lambda=1\mu\text{m}$, leņķis starp \mathbf{k} vektoriem $2\alpha=30.86^\circ$, $\lambda=532\text{nm}$

kas ir identiski ar tiem rezultātiem, kas iegūti pie daudzstaru interferences 5.2.2. sadaļā (5.6. att.). Papildus gaismas interferences intensitātei ar raustītām līnijām un iekrāsotiem laukumiem ir attēlotas arī tās komponentes- pret krišanas plakni perpendikulāri (s virziens) un paralēli (p virziens) polarizētas gaismas apgabali. Šeit jāuzsver tas, ka ir vēl arī trešā gaismas komponente ar radiālu polarizācijas virzienu (perpendikulāri s un p virzieniem), bet tā ir salīdzinoši maza un netiks šajā darbā apskatīta. Savukārt teorētiski aprēķinātā summārā polarizācija pie dažādām interferējošo staru polarizācijām ir attēlota 5.21. attēlā. Šajā attēlā var arī redzēt summārās polarizācijas un intensitātes absolūtās vērtības pie vairākām interferējošo viļņu fāzu starpībām $\Delta\varphi$ ($-\pi$; $-\pi/2$; 0; $\pi/2$ un π).

Salīdzinot iegūtos rezultātus ar eksperimentālajiem virsmas reljefa ierakstiem (no 2. Tabulas), redzam, ka liels gaismas intensitātes gradients (piem., s:s, p:p, LC:LC) nav noteicošais faktors režģu veidošanai. Labākajos ieraksta gadījumos (-45:45 un LC:RC) gaismas intensitātes gradienta vietā ir novērojams liels s un p polarizēta elektriskā lauka

intensitātes gradients. Abu šo gaismas polarizāciju intensitātes gradientu periodiskums ir ar pretējām fāzēm, kas, visticamāk, arī ir atbildīgs par ieraksta lielo efektivitāti. Gadījumā, kad ir tikai viena no s vai p komponentēm (s:s vai p:p ieraksts) vai abas šīs komponentes ir ar vienādu fāzi (45:45 vai LC:LC ieraksts), vai arī bez elektriskā lauka intensitātes gradienta (s:p ieraksts) ir iespējams iegūt vidējas vai sliktas efektivitātes ierakstu.

Eksperimentāli ir parādīts (2. Tabula), ka ieraksta efektivitāti ir iespējams vairākkārtīgi uzlabot ieviešot hologrāfiskā ieraksta shēmā trešo- nekoherento gaismas avotu. Šis papildus gaismas avots neinterferē ar pārējiem un tādējādi kalpo tikai kā papildus apgaismojums, kas ieraksta laikā papildus mīkstina paraugu. Ieraksta efektivitātes palielināšanos tagad ir iespējams izskaidrot: izmantojot papildus apgaismojumu, ir iespējams iegūt summārās intensitātes sadalījumu tuvu 45:-45 vai LC:RC gadījumam (ar s un p komponentēm pretējās fāzēs), tādējādi palielinās ieraksta efektivitāte arī visiem pārējiem ierakstošo staru polarizācijas gadījumiem. No tā arī seko, ka, izmantojot ortogonālas polarizācijas apgaismojumu attiecībā pret interferējošo staru summāro polarizāciju, ir iespējams vairākkārtīgi uzlabot ieraksta efektivitāti (2. Tabula). Piemēram, p:p ieraksta gadījums, kas tika novērtēts kā salīdzinoši „labs” virsmas reljefa ieraksts, bet izmantojot papildus s polarizētu apgaismojumu, ieraksts ir ar tikpat lielu efektivitāti kā 45:-45 un LC:RC gadījumos. Turklāt papildus apgaismojums 45:-45 un LC:RC gadījumos ieraksta efektivitāti nemaina vai arī pasliktina.

Analizējot līdz šim iegūtos ieraksta rezultātus, nav iespējams izdarīt nekādus secinājumus par masas pārnesei virzieniem ieraksta laikā- ir zināms tikai tas, ka hologrāfiski ierakstīts režģis visos gadījumos būs ar sinusoidālu formu un 1 μ m periodu. Līdz ar to paliek aktuāls jautājums par to, kādā veidā ir iespējams identisks ieraksts gan s:s vai p:p polarizāciju gadījumā, gan arī gadījumā, kad interferējošo staru polarizācijas sadalījums ir abu iepriekšējo gadījumu kombinācija un turklāt to sadalījumi ir pretējās fāzēs (45:-45 ieraksts, sadalījums 5.20. attēlā). Tas ir iespējams tikai tādā gadījumā, ja masu pārbīda elektriskā lauka intensitātes gradients, turklāt pārnesei virziens ir atkarīgs no attiecīgā elektriskā lauka virziena. Citiem vārdiem sakot, visefektīvākais ieraksts ir iespējams 45:-45 vai LC:RC gadījumā, kur gaismas interferences intensitātes periodiskās s un p komponentes ir pretējās fāzēs, jo tās vienlaicīgi *palīdz* viena otrai veidot kalnu un rakt bedri. Katra no komponentēm atbild par vienu šiem procesiem.

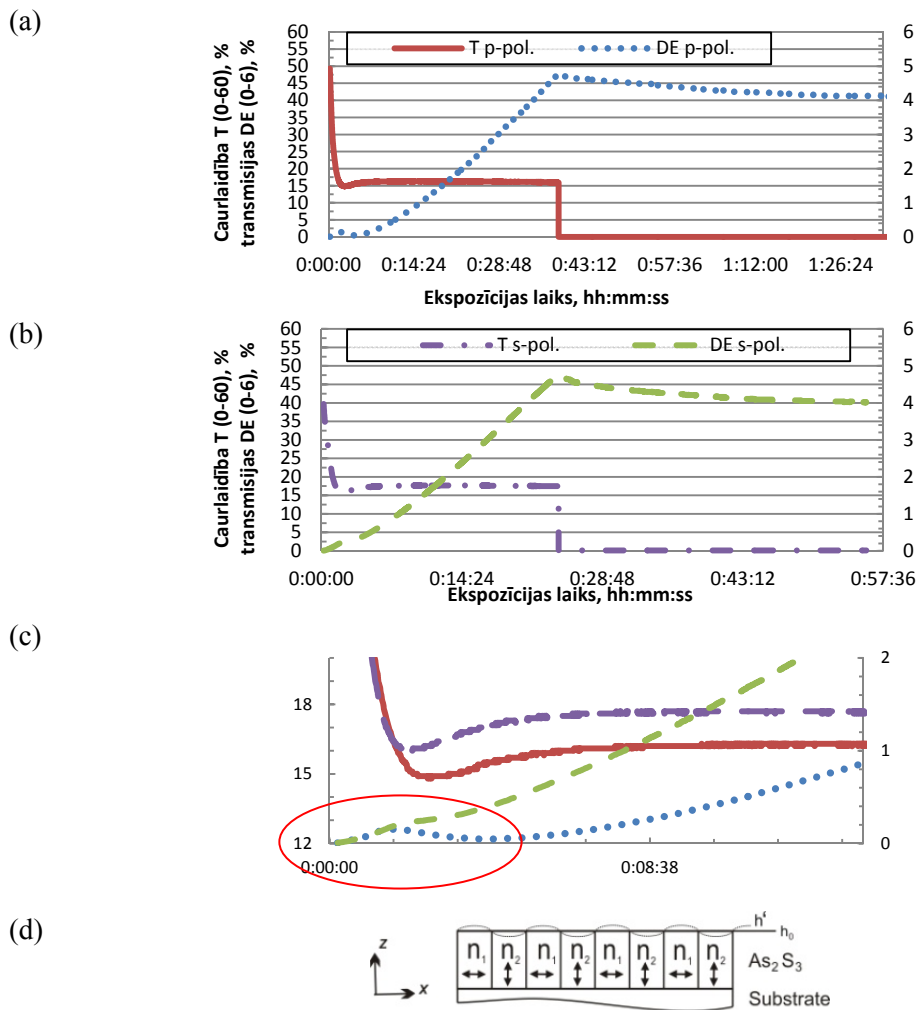
Nākamās daļas tiks veltītas šī procesa smalkākai izpētei un ieraksta laikā notiekošā interpretēšanai.

5.2.7. Masas pārnese virzieni hologrāfiskā ieraksta laikā, pamatojoties uz materiāla dubultlaušanu

No iepriekš apskatītajām sadaļām (*sk.* 1. Tabula) varam secināt, ka vislabākais hologrāfiskais virsmas reljefa ieraksts ir iespējams pie divām polarizāciju kombinācijām: -45:45 un pretēji cirkulārām. Šo gadījumu teorētiski aprēķinātais interferences intensitātes sadalījums ir gandrīz vienmērīgs- ar ļoti vāju kontrastu. Apskatot sīkāk aprēķināto intensitātes sadalījumu, redzam, ka tas sastāv no periodiskām *s* un *p* polarizācijas komponentēm ar lielu kontrastu jeb gradientu (5.20. att. iekrāsotās daļas -45:45 gadījumam). Abu šo komponentu periodi ir pretfāzēs. Ņemot vērā šo faktu un to, ka amorfajos halkogenīdos un arī citos gaismu jutīgos materiālos tiešais ieraksts ir atgriezenisks (*sk.* 5.1.2. daļu), ir iespējams tikai viens vienīgs ieraksta procesa izskaidrojums, kas arī tiks apskatīts šajā daļā.

Hologrāfiskā ieraksta laikā, masas pārnese tiek novērota paralēli elektriskā lauka intensitātes gradientam (nevis gaismas intensitātes gradientam) un arī dažādos virzienos, kas ir atkarīgi no dotā elektriskā lauka virziena. Ar hologrāfiskā ieraksta shēmu šos masas pārnese virzienus ir iespējams noteikt eksperimentāli, mainot transmisijas DE lāzera polarizāciju no *p* uz *s* vai otrādi. 5.22a. attēlā ir redzams režģa ieraksta process, kur nepārtrauktā līkne attēlo viena ierakstošā stara absorbciju (transmisiju) paraugā un otra līkne attēlo transmisijas DE ieraksta laikā. Šeit DE tiek mērīta ar *p* polarizētu gaismu. Sākuma posmā, kad caurlaidība strauji samazinās, veidojas tilpuma ieraksts jeb laušanas koeficienta un/vai absorbcijas koeficienta izmaiņas. Līdz ar straujo caurlaidības izmaiņu apstāšanos, parādās neliels DE pīķis. Identiskos apstākļos, mērot ar *s* polarizētu gaismu, šāds pīķis netiek novērots (5.22b. att.). Abi rezultāti kopā ar izceltu sākuma posmu ir redzami 5.22c. attēlā. Šādu atšķirību un reizē arī masas pārnese virzienu var izskaidrot ar parauga foto inducēto dubultlaušanu Δn .

Amorfajiem halkogenīdu pusvadītājiem foto inducētā dubultlaušana ir negatīva, t.i., $\Delta n = n_{\parallel} - n_{\perp} < 0$ [99], kur n_{\parallel} un n_{\perp} ir attiecīgi laušanas koeficienti gaismai izplatoties paralēli un perpendikulāri ierosinošās gaismas elektriskajam laukam. Pirms hologrāfiskā ieraksta laušanas koeficients paraugam ir izotropas attiecībā pret gaismas polarizāciju. Pirmajās ieraksta sekundēs periodisks laušanas koeficients sāk veidot



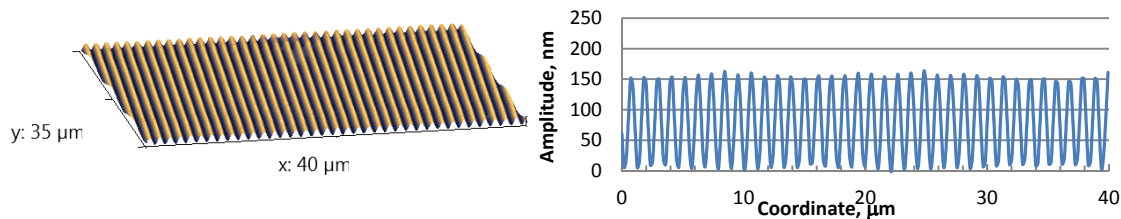
5.22. att. (a) un (b) hologrāfiskā ieraksta viena ierakstošā stara transmisijas (T) līknes (nepārtrauktā un punktoti-raustītā līkne) un attiecīgā ieraksta transmisijas difrakcijas efektivitātes (DE) līknes (punktotā un raustītā līkne) atkarībā no DE lāzera polarizācijas. (c) izcelts abu ierakstu sākuma posms. (d) hologrāfiskā ieraksta reljefa veidošanās modelis *Ieraksts veiks As_2S_3 kārtiņā ar -45 un 45 grādu polarizāciju*

tilpuma ierakstu. Vienkāršots ieraksta modelis redzams 5.22d. attēlā. Pie laušanas koeficienta režģa pēc nejaušības principa attēlā arī tiek piekārtots ieraksta interferējošo staru (sk. -45:45 datora vizualizāciju 5.20. att.) polarizācijas komponentes. Ņemot vērā to, ka $\Delta n < 0$, s polarizētam (5-9) un p polarizētam (5-10) DE gaismas avotam, uzsākot ierakstu, varam uzrakstīt sekojošo:

$$n_1 \cdot h_0 > n_2 \cdot h_0 \quad 5-9$$

$$n_1 \cdot h_0 < n_2 \cdot h_0 \quad 5-10$$

kur pierēzinātā konstante h_0 ir parauga biezums. Turpinot ierakstu, n_1 un n_2 starpība pieaug un attiecīgi abu eksperimentu DE pieaug, līdz brīdim, kad sāk veidoties reljefs.



5.23. att. Tipisks virsmas reljefa difrakcijas režģis un tā profils, iegūts ar tiešo hologrāfiskā ieraksta metodi

Reljefa veidošanās sākuma posmā, iepriekšējās formulas s polarizētam (5-11) un p polarizētam (5-12) DE gaismas avotam var uzrakstīt sekojoši:

$$n_1 \cdot h_1' > n_2 \cdot h_2' \quad 5-11$$

$$n_1 \cdot h_1' < n_2 \cdot h_2' \quad 5-12$$

kur h_i' apzīmē kārtiņas lokālo biezumu virsmas reljefa veidošanās rezultātā. Reljefam augot, h_1' palielinās un h_2' samazinās vai arī otrādi- h_1' samazinās un h_2' palielinās. Kā jau iepriekš minēts, p polarizētam DE ieraksta gadījumam vienīgajam parādās sākuma ieraksta pīķis. Šis fakts ir izskaidrojams tikai un vienīgi ar to, ka ieraksta laikā h_1' palielinās un attiecīgi h_2' - samazinās. Tādējādi p polarizētam DE ieraksta gadījumam n_1 , h_1' palielinās un n_2 , h_2' samazinās- attiecīgā DE līkne monotoni pieaug. Savukārt s polarizētam DE ieraksta gadījumam n_2 , h_1' palielinās ieraksta laikā un n_1 , h_2' - samazinās. Sākuma posmā tilpuma ieraksts nosaka DE augšanu, tālāk jaunizveidotais virsmas reljefs sāk dzēst DE un attiecīgajai līknei izveidojas sākuma maksimums. Ierakstu turpinot, difrakcija no $\Delta h'$ paliek daudz izteiktāka par ieguldījumu no Δn un tam seko p polarizētās (arī s polarizētās) gaismas DE monotons pieaugums.

Ierakstītā virsmas reljefa uzvedības izpētei tika nomērītas DE relaksācijas abiem gadījumiem pie izslēgtiem ierakstošajiem stariem (5.22. att. grafikos, kur transmisija nokrīt līdz nullei). Kad DE tika sasniegta aptuveni 4.6%, ierakstošais lāzers tika izslēgts un DE nokritās līdz aptuveni 4%. Šajā stāvoklī DE abos gadījumos palika nemainīga ilgu laiku, kas liecina par ierakstītā reljefa stabilitāti. Šādi ir iespējams ierakstīt liela laukuma, augstas kvalitātes un perfektas ģeometrijas režģus bez jebkādas papildus apstrādes (kā 5.23. att.), kas no praktiskā pielietojuma viedokļa, protams, ir liels ieguvums.

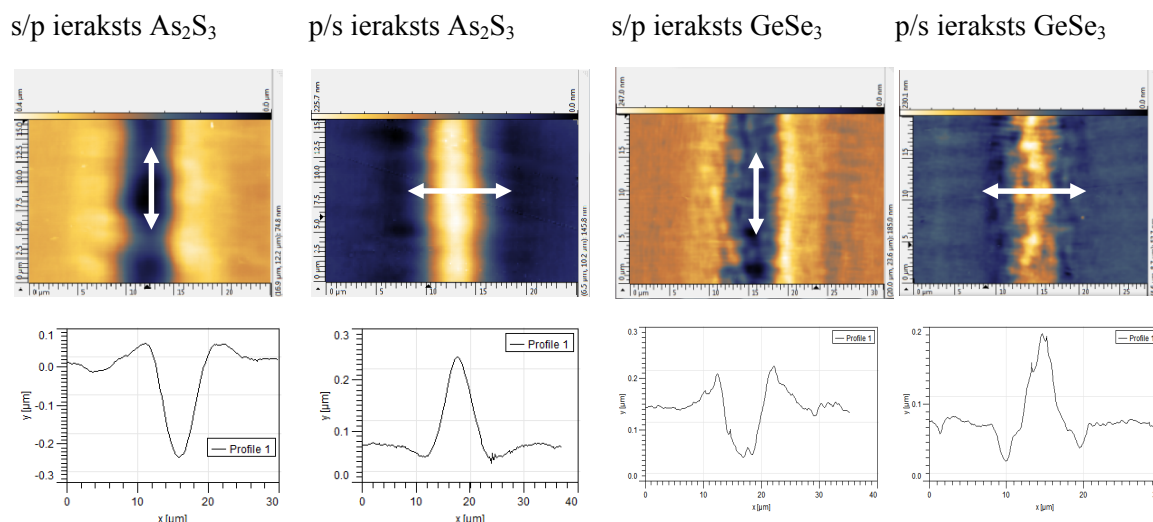
5.3. Tiešais ieraksts un tā izpēte pēc parauga apstarošanas caur šauru spraugu

Lai eksperimentāli pārlicinātos par iepriekšējās sadaļās noteikto masas pārnese virzienu un elektriskā lauka intensitātes gradienta kopsakarībām, tika izveidota jauna ieraksta shēma (*sk. shēmu 4.9. attēlā*). Shēmas galvenā sastāvdaļa ir aptuveni $10\mu\text{m}$ šaura sprauga, kas ideālā variantā dod iespēju apstarot paraugu ar taisnstūrveida gaismas intensitātes sadalījuma gaismu. Realizējot šādu vienmērīga intensitātes sadalījuma ierakstu, ir iespējams pētīt virsmas reljefa veidošanos pilnīgi kontrolētā vidē, kur polarizāciju ir iespējams pieņemt par nemainīgu un konstantu gan laikā, gan arī telpā. Tā kā šeit ieraksta stars krīt perpendikulāri pret parauga virsmu, polarizācija tiek definēta attiecībā pret spraugas virzienu: paralēlas polarizācijas gadījumā (s virziens) ir iespējams simulēt s:s gadījuma hologrāfiskā ieraksta viena perioda ierakstu gaismu jutīgā materiālā. Perpendikulāras polarizācijas gadījums (p virziens), savukārt, simulē viena perioda p:p hologrāfisko ierakstu.

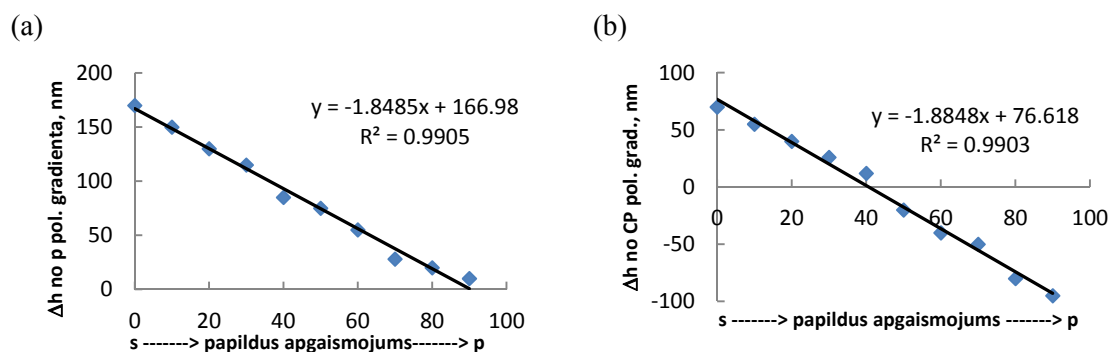
5.3.1. Masas pārnese virzieni

Iepriekš apskatītais hologrāfiskais ieraksts tikai netieši izskaidro masas pārnese procesus ieraksta laikā. Izmantojot šauras spraugas ieraksta shēmu, ir iespējams to noskaidrot vienkārši nomērot iegūto topogrāfiju uz AFM. Pirmie ierakstītie reljefi bija ļoti mazi un neizteiksmīgi (tikai dažu nanometru izmaiņas). Lai panāktu dotā materiāla lielāku plūstamību, tika nolemts izmantot arī papildus vienmērīgu nekoherentu apgaismojumu no parauga otrās puses. Šādu eksperimentu ieraksta polarizācija tiks saīsināta kā a/b , kur a - ieraksta jeb elektriskā lauka intensitātes gradienta polarizācija un b - papildus vienmērīgā apgaismojuma polarizācija. Kā turpmāk redzēsīm, šāds shēmas papildinājums dod nozīmīgu ieraksta uzlabojumu.

Realizējot pirmos s un p polarizācijas ierakstus ar ortogonāli polarizētu papildus apgaismojumu, redzam, ka ir iespējami divi dažādi masas pārnese virzieni (*5.24. att.*). Tātad, s polarizētas gaismas ieraksts, stimulēts ar p polarizētu papildus vienmērīgu apgaismojumu (s/p ieraksts), izveido aptuveni $10\mu\text{m}$ platu bedri. Attiecīgi p polarizētas gaismas ieraksts, stimulēts ar s polarizētu papildus vienmērīgu apgaismojumu (p/s ieraksts), izveido tikpat platu kalnu. Varam secināt, ka s polarizācijas gaismas



5.24. att. S polarizēta (s/p ieraksts) un p polarizēta (p/s ieraksts) gaismas intensitātes gradienta iespāids uz masas pārneses virzienu As_2S_3 un GeSe_3 kārtiņās
Ieraksta elektriskā lauka virziens attēlots ar abpusējām bultiņām



5.25. att. Papildus vienmērīgā apgaismojuma polarizācijas ietekme uz tiešo ierakstu gadījumā, ja ierakstošās gaismas intensitātes gradienta polarizācija ir (a) p virzienā jeb perpendikulāri spraugai vai (b) cirkulāri polarizēta
Uz abscisu ass atliktās vērtības apzīmē leņķi starp papildus apgaismojuma polarizāciju un izmantoto ieraksta spraugu

intensitātes gradients atgrūž no sevis masas daļiņas, bet savukārt p polarizācijas gaismas intensitātes gradients pievelk masas daļiņas. Citiem vārdiem sakot, parauga masas pārnese tiek novērota pie elektriskā lauka intensitātes gradienta, un pārneses virziens ir atkarīgs no šī gradienta virziena un elektriskā lauka virziena savstarpējā novietojuma – abu šo virzienu sakrišanas gadījumā masa tiek bīdīta elektriskā lauka intensitātes gradienta virzienā. Savukārt, ja elektriskā lauka virziens ir perpendikulārs attiecībā pret doto gradienta virzienu, masa tiek bīdīta pretēji elektriskā lauka intensitātes gradienta virzienam (prom no intensīvāk apgaismotās vietas). Šeit iegūto rezultātu secinājumi pilnībā sakrīt ar iepriekšējās sadaļās par hologrāfisko ierakstu iegūtiem secinājumiem.

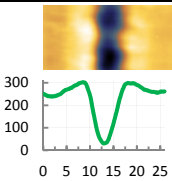
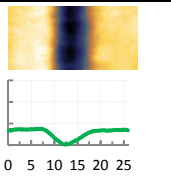
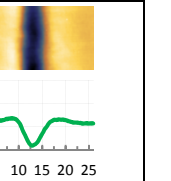
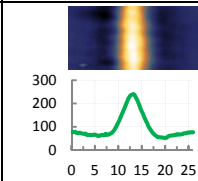
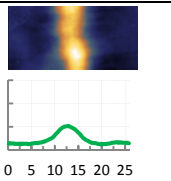
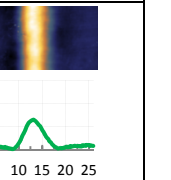
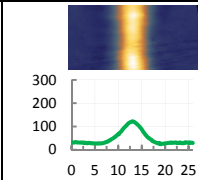
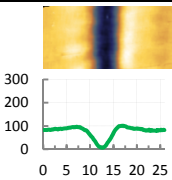
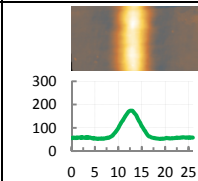
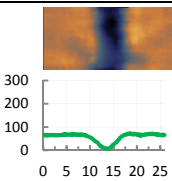
Gan papildus apgaismojumam, gan arī ierakstošās gaismas polarizācijai ir būtiska loma reljefa izveidē. Pie p jeb perpendikulāri spraugai polarizēta gaismas intensitātes gradienta, mainot tikai papildus apgaismojuma polarizāciju no s uz p , iegūtais reljefa augstums lineāri samazinās līdz nullei (5.25a. att.). Gadījumā, ja ierakstošā gaismas intensitātes gradienta polarizācija ir cirkulāra (5.25b. att.), papildus apgaismojuma polarizācija maiņa no s uz p lineāri ietekmē gan reljefa veidošanos efektivitāti, gan arī tā veidošanos virzienu. No grafikiem arī redzam, ka abos aprakstītajos gadījumos lineārās atkarības slīpuma koeficients ir praktiski vienāds. Nākamā sadaļā tiks apkopota informācija arī par visām citām polarizāciju kombinācijām.

5.3.2. Optiskās spraugas eksperimentu apkopojums

Ieraksta shēmā ievietojot pusviļņa un/vai $\frac{1}{4}$ viļņa plāksnītes, ir iespējams variēt ieraksta un papildus apgaismojuma polarizācijas un iegūtos ieraksta reljefus nomērīt uz *Veeco CPII* AFM. Šādu eksperimentu rezultātu apkopojums tiks apskatīts šajā sadaļā.

5.26. attēlā rezultātu apkopojums ir izkārtots tabulā. Dažās vietās redzams ieraksts $\Delta h \rightarrow 0$, kas norāda uz ieraksta kombinācijām, kurām tika novērotas niecīgas reljefa izmaiņas, kas grūti atšķiramas no līdzenas virsmas. Neizmantojot papildus apgaismojumu, nenozīmīgs ieraksts arī tika novērots pie visām ierakstošo staru polarizācijām (nav atzīmēts grafikā). Pārējās tabulas vietās, kur ir bijis iespējams ierakstīt reljefu, ir attēlots ieraksta 3D AFM attēls un tā profils. Apskatot ieraksta polarizāciju kombinācijas, no kurām veidojas reljefa ieraksts, varam jau daudz vairāk secinājumus izdarīt par polarizētas gaismas intensitātes gradienta iespaidu uz paraugu.

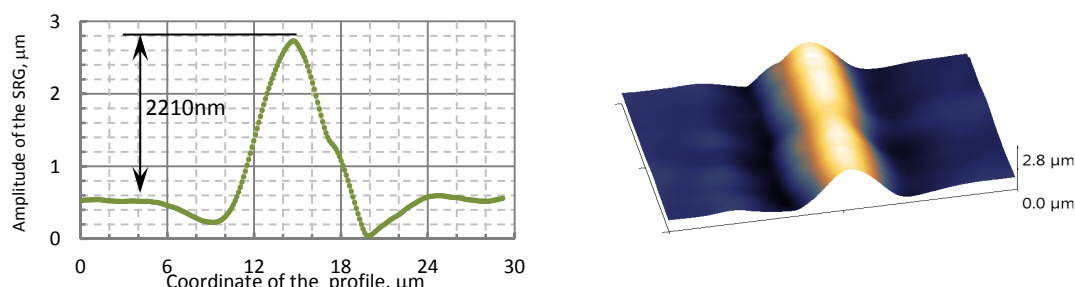
Gadījumā, ja ierakstošā stara polarizācijas virziens sakrīt ar spraugas virzienu (definēta kā s polarizācija), neatkarīgi no papildus apgaismojuma polarizācijas (*sk.* pirmā rinda 5.26. attēlā: CP- cirkulāra, p- perpendikulāra spraugai vai 45 grādu polarizācija), masas pārnese tiek novērota virzienā prom no gaismas intensitātes gradienta un tiek formēts grāvis. Ieraksta efektivitāte jeb izveidotā grāvja dziļums mainās no labākā gadījuma, kad papildus apgaismojuma polarizācija ir perpendikulāra ieraksta polarizācijai, tad seko 45 grādu un CP polarizācija. Tas pats ir novērojams arī tad, kad ieraksta polarizācija ir perpendikulāra spraugai (p polarizācija, *sk.* otro rindu attēlā),

	Assisting by s pol.	Assisting by p pol.	Assisting by CP pol.	Assisting by 45° pol.
Rec. by s pol.	w/out $\Delta h \rightarrow 0$	 $\Delta h = -220\text{nm}$	 $\Delta h = -65\text{nm}$	 $\Delta h = -96\text{nm}$
s Rec. by p pol.	 $\Delta h = 200\text{nm}$	w/out $\Delta h \rightarrow 0$	 $\Delta h = 78\text{nm}$	 $\Delta h = 113\text{nm}$
Rec. by CP pol.	 $\Delta h = 95\text{nm}$	 $\Delta h = -80\text{nm}$	w/out $\Delta h \rightarrow 0$	w/out $\Delta h \rightarrow 0$
Rec. by 45° pol.	 $\Delta h = 115\text{nm}$	 $\Delta h = -60\text{nm}$	w/out $\Delta h \rightarrow 0$	w/out $\Delta h \rightarrow 0$

5.26. att. Optiskās spraugas eksperimentu apkopojums pie dažādām ieraksta jeb gaismas intensitātes gradienta polarizācijām un papildus apgaismojuma polarizācijām, attēlota ir AFM $26 \times 13 \mu\text{m}$ topogrāfija un tā profils $25 \mu\text{m} \times 300\text{nm}$ rāmī
Ieraksts veikts $2.1 \mu\text{m}$ biezā As_2S_3 kārtiņā, ierakstošā stara intensitāte 1000 mW/cm^2 un papildus apgaismojums 1500 mW/cm^2 , ieraksta laiks 1 h

tikai šajā gadījumā masas pārnese tiek novērota tuvāk ieraksta zonai un tiek formēts kalns. Ierakstošā stara polarizācija nav vienīgais faktors, kas nosaka masas pārnese virzienu. Neatkarīgi no ierakstošā stara polarizācijas, pie papildus s polarizēta apgaismojuma tiek novērota kalna veidošanās (pirmā kolona 5.26. attēlā), bet pie p polarizēta papildus apgaismojuma- grāvja veidošanās (otrā kolona attēlā).

Visas ieraksta polarizāciju kombinācijas 5.26. attēlā ir simetriski izvietojušās attiecībā pret galveno tabulas diagonāli. Tas liecina par to, ka masas pārnese procesos nozīmīgu lomu spēlē ne tikai ierakstošā stara polarizācija, bet arī papildus apgaismojuma polarizācija. Bez attiecīgi polarizēta papildus apgaismojuma ieraksts netiek realizēts. Vislielākā efektivitāte jeb labākais ieraksts tiek iegūts pie savstarpēji ortogonālu ieraksta un papildus apgaismojuma polarizācijas (s/p un p/s ieraksts), kas pie dotajiem ieraksta uzstādījumiem ir aptuveni 200nm. Pamainot ierakstošo staru



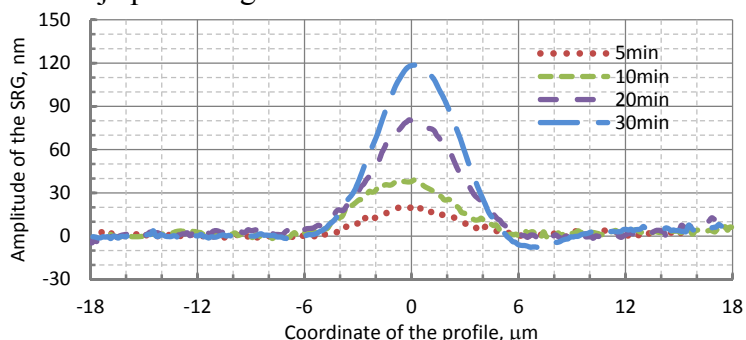
5.27. att. AFM topogrāfijas mērījumi un tā profils optiskās spraugas eksperimentam pie p polarizēta $3\text{W}/\text{cm}^2$ ieraksta un s polarizēta $1.5\text{W}/\text{cm}^2$ papildus apgaismojuma (s/p ieraksts)
Ieraksts veikts $3.3\mu\text{m}$ biežā As_2S_3 kārtiņā, ieraksta laiks 5h

intensitātes un/vai ieraksta laiku, ir iespējams iegūt lielākus reljefus. Piemēram, 5.27. attēlā redzam vairāku stundu p/s shēmas ierakstu, kur $3.3\mu\text{m}$ biežā kārtiņā ir izveidots $2.2\mu\text{m}$ augsts reljefs (relatīvās augstuma izmaiņas $\Delta d/d$ attiecībā pret parauga virsmu 67%, kopējās izmaiņas 83%). Tāda paša veida ierakstam, neizmantojot papildus apgaismojumu vai izmantojot tādas pašas polarizācijas gaismu kā ierakstošajam staram, reljefs praktiski netiek novērots. Ieraksta spraugas platums ir $10\mu\text{m}$, par to liecina arī uzņemtā profila minimumi (5.27. att., no 10 līdz $20\mu\text{m}$), bet aktīvais ieraksta apgabals ir aptuveni $19\mu\text{m}$ (no 5 līdz $24\mu\text{m}$). Līdz ar to šim ierakstam ir vismaz $4.5\mu\text{m}$ plati apgabali abās spraugas pusēs, kas aktīvi piedalās reljefa veidošanā un ir apgaismoti tikai ar papildus lāzera starojumu. Acīmredzot vienmērīgs un polarizēts papildus apgaismojums anizotropi jeb kādā noteiktā virzienā mīkstina paraugu (sarauj ķīmiskās saites) un, izmantojot attiecīgas polarizācijas gaismas intensitātes gradientu, šim procesam ir iespējams pielikt arī virzību kādā noteiktā virzienā.

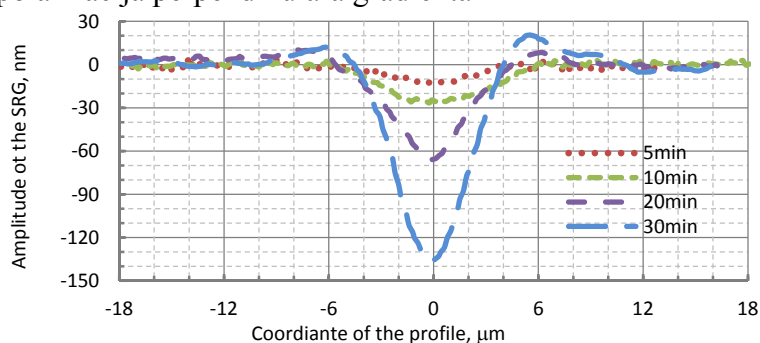
5.3.3. Optiskās spraugas eksperimentu ieraksta attīstība laikā

Iepriekšējās sadaļās tika noskaidrots, ka amorfajos halkogenīdos p polarizētas gaismas intensitātes gradients veido kalnu paraugā, bet, savukārt, s polarizēts- bedri. Citiem vārdiem sakot, ja gaismas intensitātes gradienta virziens sakrīt ar tās gaismas polarizācijas virzienu, masas pārnese tiks novērota gradienta virzienā (no mazākās gaismas intensitātes uz lielāko). Savukārt, ja gaismas intensitātes gradienta virziens būs perpendikulārs tās gaismas polarizācijas virzienam, masas pārnese tiks novērota pretēji gradienta virzienam (no lielākās gaismas intensitātes uz mazāko). Reljefa veidošanos atkarībā no

(a) ieraksta polarizācija paralēla gradientam



(b) ieraksta polarizācija perpendikulāra gradientam



5.28. att. Optiskās spraugas eksperimentu ieraksta attīstība laikā
Rezultāti iegūti no AFM mērījumiem, ieraksts veikts As_2S_3 kārtiņā ar (a) p polarizācijas
gaismas intensitātes gradientu (p/s ieraksts) un (b) s polarizācijas gaismas intensitātes
gradientu (s/p ieraksts), ieraksta un papildus apgaismojuma intensitātes: $4.24W/cm^2$ un
 $0.37W/cm^2$, ieraksta laiks 5, 10, 20, 30 minūtes

dažādiem ieraksta parametriem (galvenokārt no ieraksta laika un ierakstošo staru intensitātes) sīkāk apskatīsim šajā sadaļā.

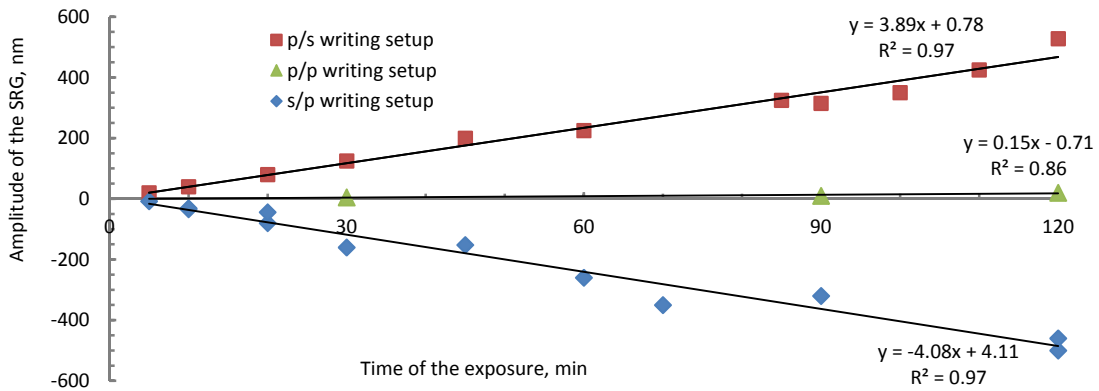
Reljefa veidošanās pirmajās 5, 10, 20 un 30 ieraksta minūtēs ir redzama 5.28. attēlā. Aktīvas masas pārneses rezultātā abos p/s un s/p gadījumos reljefs sāk veidoties nevis pie lielākā gradienta (spraugas malas), bet no spraugas vidusdaļas. Neliela laika ierakstam (līdz 10min) veidojas A vai V veida profils. Ja ieraksta laiks pārsniedz 10 minūtes, masas *drūzmēšanās* rezultātā, ierakstītais reljefa jau ir ar W vai M veida profilu. Šāda veida ieraksta attīstība liecina par to, ka reljefa veidošanās procesā piedalās viss tilpums, nevis tikai virsējais tā slānis.

5.3.4. Ieraksta laika un gaismas intensitātes sakarības

Lai izpētītu ieraksta attīstību sīkāk, tiks aplūkoti optiskās spraugas eksperimenti pie dažādiem ieraksta laikiem un arī plašā ieraksta un papildus apgaismojuma intensitāšu apgabalā. Šajā sadaļā tiks apskatīti tikai iegūto reljefu augstumi, kas nomērīti attiecībā pret parauga virsmu. Pilnai augstuma izmaiņai ir nepieciešams pieskaitīt aptuveni 20% no dotās vērtības.

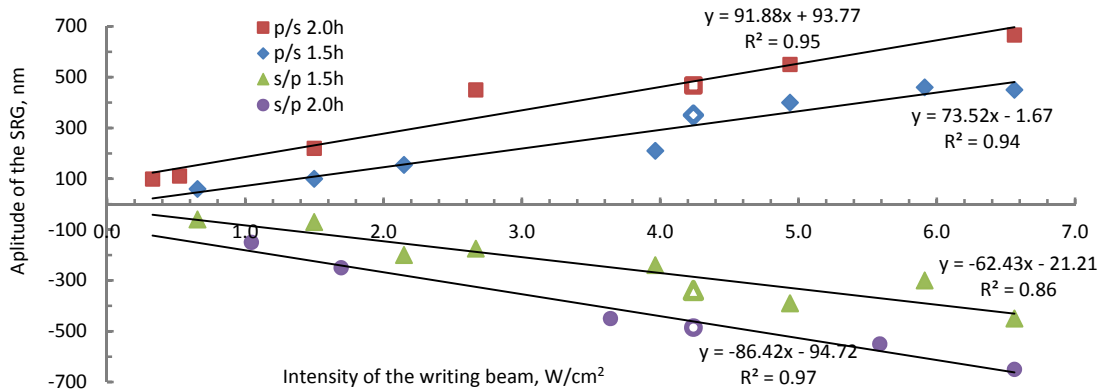
Kalnu un grāvju ieraksts caur $10\mu\text{m}$ optisku spraugu attēlots attiecībā pret ekspozīcijas laiku ir redzams [5.29. attēlā](#). Eksperimentālie punkti raksturo iegūtā reljefa augstumu pie nosacījuma, ja ierakstošā stara un papildus apgaismojuma intensitātes ir attiecīgi $4.24\text{W}/\text{cm}^2$ un $0.37\text{W}/\text{cm}^2$. No grafika redzam, ka gan kalnu, gan bedres veidošanos laikā ir iespējams aproksimēt ar taisni. Iegūto taisņu slīpuma koeficienti raksturo dotās shēmas ieraksta efektivitāti, kas ortogonāli polarizēta papildus apgaismojuma gadījumā ir $\pm 4\text{nm}/\text{min}$ („+” no p/s un „-” no s/p). Kad ieraksta un papildus apgaismojuma polarizācijas sakrīt (p/p ieraksts, [5.29. attēls](#)), iegūtais reljefs jeb ieraksta efektivitāte ir vismaz 25 reizes vājāka ($0.15\text{nm}/\text{min}$). Zemas efektivitātes ierakstu uzrāda arī s/s ieraksts (nav attēlos grafikā). Šajos eksperimentos bez papildus apgaismojuma iegūtais reljefa ieraksts praktiski līdzinās gludai virsmai pie visām ieraksta polarizācijām un tā intensitātēm.

Iegūtā reljefa augstums attiecībā pret ierakstošās (gradienta) gaismas intensitāti ir redzams [5.30. attēlā](#). Papildus apgaismojuma intensitāte tiek turēta nemainīga un tāda pati kā iepriekšējā eksperimentā- $0.37\text{W}/\text{cm}^2$, bet ierakstošās gaismas intensitāte tiek mainīta no 0.3 līdz $6.6\text{W}/\text{cm}^2$. Visā $6.3\text{W}/\text{cm}^2$ ierakstošā stara intensitātes apgabalā visām ieraksta polarizācijas kombinācijām un ekspozīcijas laikiem, iegūtais reljefa augstums ir proporcionāls ieraksta intensitātei- iegūtās vērtības ar lielu precizitāti var aproksimēt ar taisni. Līdz ar to, ja šajā reljefa ieraksta procesā ir negatīvs termālais efekts, kas traucē ierakstu, tad tas izpaužas tikai pie vēl lielākām apgaismošanas intensitātēm. Tukšie punkti grafikā tika aprēķināti teorētiski no iepriekšējo rezultātu (no [5.29. attēla](#)) aproksimācijas taisņu vienādojumiem. Arī šie aprēķinātie punkti ļoti labi papildina doto ierakstu rezultātus. Salīdzinot šīs sērijas eksperimentu aproksimācijas taisņu slīpuma koeficientus, varam redzēt, ka kalnu veidošanās salīdzinot ar grāvju veidošanos ir ar nedaudz lielāku efektivitāti.



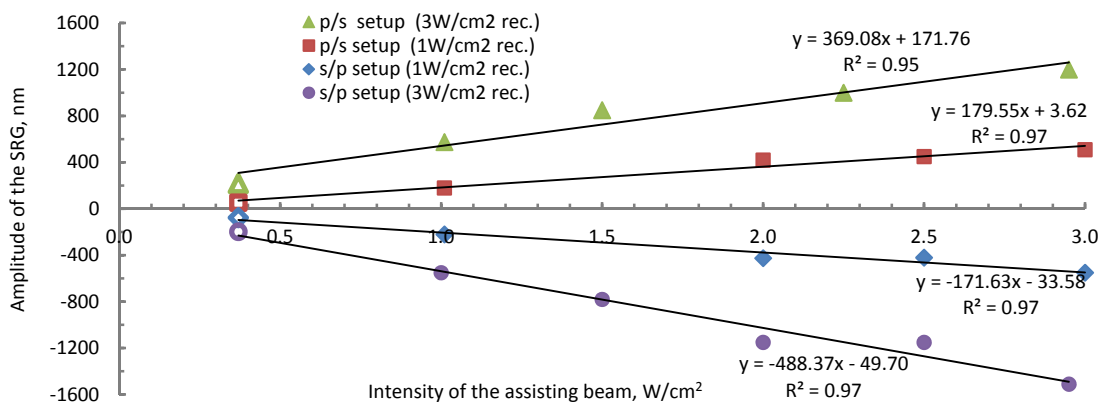
5.29. att. Iegūtā virsmas reljefa amplitūdas atkarība no ekspozīcijas laika dažādiem ierakstošo un papildus apgaismojuma polarizācijas gadījumiem

Ieraksts veikts As_2S_3 kārtiņā caur $10\mu m$ šauru spraugu (gradianta jeb ierakstošās gaismas un papildus apgaismojuma polarizācija apzīmēta kā a/b), ierakstošā un papildus apgaismojuma intensitātes attiecīgi $4.24W/cm^2$ un $0.37W/cm^2$



5.30.att. Iegūtā virsmas reljefa amplitūdas atkarība no ierakstošās gaismas intensitātes dažādiem ierakstošo un papildus apgaismojuma polarizācijas gadījumiem

Ieraksts veikts As_2S_3 kārtiņā caur $10\mu m$ šauru spraugu, ekspozīcijas laiks 1.5h vai 2.0h, papildus apgaismojuma intensitāte $0.37W/cm^2$



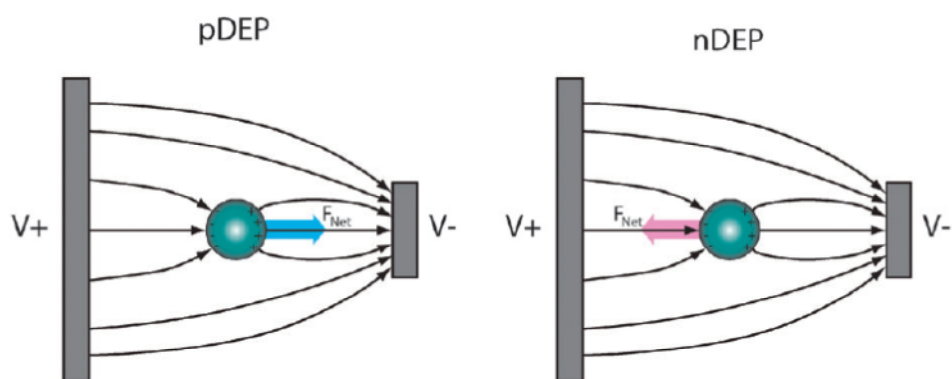
5.31. att. Iegūtā virsmas reljefa amplitūdas atkarība no papildus apgaismojuma intensitātes dažādiem ierakstošo un papildus apgaismojuma polarizācijas gadījumiem

Ieraksts veikts As_2S_3 kārtiņā caur $10\mu m$ šauru spraugu, ekspozīcijas laiks 1.5h, ierakstošās gaismas intensitāte 1 vai $3W/cm^2$

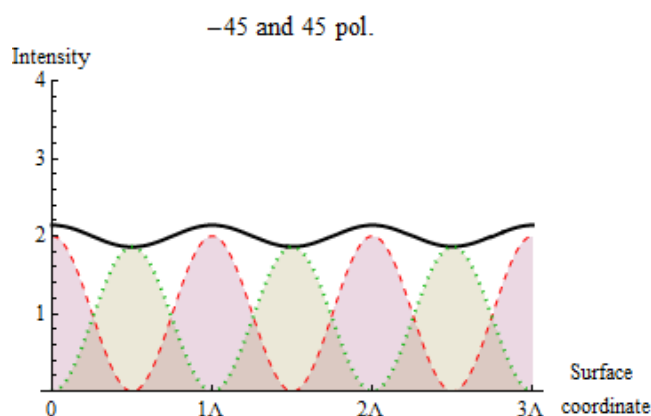
Iepriekšējos eksperimentos papildus apgaismojuma intensitāte bija nemainīga un relatīvi zema- $0.37\text{W}/\text{cm}^2$. Iegūtā reljefa augstums attiecībā pret papildus apgaismojuma intensitāti diapazonā no 0.37 līdz $3\text{W}/\text{cm}^2$ ir redzams 5.31. attēlā. Ieraksta intensitāte tika izvēlēta 1 un $3\text{W}/\text{cm}^2$ un ekspozīcijas laiks 1.5h . Arī šajos eksperimentos var redzēt, ka reljefa veidošanās visā apskatītajā intensitātes diapazonā ir stingri proporcionāla dotajai papildus apgaismojuma intensitātei, *t.i.*, rezultātus ir iespējams aproksimēt ar taisni. Tukšie punkti grafikā tika aprēķināti teorētiski no iepriekšējo rezultātu (no 5.30. attēla) aproksimācijas taisņu vienādojumiem un arī tie labi papildina iegūtos rezultātus. Šajā eksperimentu sērijā, mainot papildus apgaismojuma intensitāti, tiek novēroti vislielākie reljefa augstuma ieraksti. Gadījumā, kad ieraksta un papildus apgaismojuma intensitātes ir $3\text{W}/\text{cm}^2$, 1.5h ieraksta laikā ir iespējams iegūt aptuveni $1.3\mu\text{m}$ augstas struktūras. Līdz ar to ir noskaidrots, ka reljefa tiešajam ierakstam izmantotā papildus apgaismojuma intensitātei arī ir būtiska loma reljefu iegūšanai.

5.4. Dielektroforēzes modelis foto inducēto procesu fizikālai interpretācijai

Balstoties uz promocijas darba rezultātiem, masas pārnese procesu izskaidrošanai amorfās halkogenīdu kārtiņās ir iespējams ievest jaunu, hipotētisku tiešā ieraksta modeli- foto inducētās dielektroforēzes jeb DEP modeli (no angļu val., *dielectrophoretic* vai *DEP model*). DEP spēki un DEP modelis šajā sadaļā tiek apskatīts hipotētiskā līmenī un ir nepieciešams veikt turpmākos eksperimentus dotajā virzienā, lai pilnībā izprastu masas pārnese procesus mīkstos materiālos.



5.32. att. DEP spēku ilustrācija: pozitīvas dielektroforēzes jeb pDEP gadījumā daļiņa tiek pārvietota virzienā uz lielāku elektriskā lauka intensitāti, savukārt negatīva jeb nDEP gadījumā virzienā uz mazāku elektriskā lauka intensitāti [100]



5.33. att. Divu staru interferences teorētiskais intensitātes sadalījums gadījumā, ja interferējošie stari ir polarizēti -45 un 45 grādu leņķī (melnā nepārtrauktā līkne)
 Dotajam intensitātes sadalījumam atsevišķās s un p polarizācijas komponentes ir attēlotas ar pārtrauktām līknēm

Modelis balstās uz parauga foto inducēto mīkstināšanos, defektu ar palielinātu vai samazinātu polarizējamību veidošanos un to pārvietošanos gaismas elektriskā lauka iespaidā. Dielektroforēze nav nekas jauns- H. Pohl pirmo reizi to jau pētījis 1951. gadā [101]. Jau ir zināms, ka dažādu šķidrumu sistēmās ir iespējams manipulēt ar molekulām un nano daļiņām izmantojot tieši DEP spēkus [102], kuri tiek ģenerēti neitrālai daļiņai atrodoties nehomogēnā elektriskā laukā. 5.32. attēlā ir ilustratīvi attēloti šie DEP spēki. Elektriskais lauks daļiņā inducē lādiņu, izveidojot dipolu. Ja ir pielikts nehomogēns elektriskais lauks, dipola un elektriskā lauka mijiedarbības spēki neizlīdzinās (Kulona likums) un tādējādi veidojas nenulles daļiņai uzliktais spēks. Ja daļiņas polarizējamība ir zemāka kā apkārtējai videi, tā tiek atgrūsta no augstāka elektriskā lauka intensitātes reģiona un kustība tiek saukta par negatīvu dielektroforēzi. Pretējā gadījumā daļiņas polarizējamība ir augstāka un tā tiek pievilktā pie augstāka elektriskā lauka intensitātes reģiona un kustība tiek saukta par pozitīvu dielektroforēzi.

Izmantojot DEP spēkus, tiek veiksmīgi realizētas iekārtas, kur, šķidrumam plūstot caur šo iekārtu, no tā tiek atdalītas vai sašķirotas tajā esošās daļiņas [101]. DEP spēki ir tieši proporcionāli elektriskā lauka intensitātes gradientam, kas šāda veida šķidrums eksperimentos ir relatīvi mazs, bet rezultāts tiek sasniegts. Hologrāfiskā ieraksta vai gaismas interferences gadījumā, elektriskā lauka intensitātes gradientu ir iespējams iegūt daudzkārtīgi lielāku, un masas pārnese var tikt realizēta arī daudz viskozākās vidēs (kā amorfajos halogēnīdos). Kā jau tika noskaidrots, 45 un -45 grādu (arī pretēji cirkulāru) polarizētu staru hologrāfiskā ieraksta laikā materiāla fiksēto interferences ainu var izteikt ar divu lineāri polarizētu gaismu komponentēm- paralēli un perpendikulāri ierakstītā režģa vektoram (5.33. att.). Šāda veida gaismas interferences

gadījumam summārā intensitāte ir praktiski homogēna jeb bez gaismas intensitātes gradienta. Tas nozīmē, ka ieraksta laikā paraugs tiek vienmērīgi izgaismots jebkurā punktā, kas savukārt izslēdz jebkākus termiskos efektus, kas varētu traucēt vai kā savādāk ietekmēt masas pārnesi un šī procesa fizikālo interpretāciju. Abām šīm apskatītajām komponentēm elektriskā lauka intensitātes gradienta virziens sakrīt ar režģa vektora virzienu. Polarizācijas modulācijas rezultātā, amorfos halkogenīdos veidojas polāri foto inducēti defekti. Atkarībā no polarizācijas un elektriskā lauka intensitātes gradienta virziena attiecības, šo defektu polarizējamība pieaug par attiecīgi p elektriskā lauka komponenti un samazinās par s elektriskā lauka komponenti. DEP spēku ietekmē, amorfos halkogenīdos masa tiek pārnesta prom no s polarizēta gaismas intensitātes gradienta iekšā p polarizēta gaismas intensitātes gradientā. Šis process ir pretējs organiskajos azo-savienojumos (salīdzinājums ar organiku skatīt pielikumā) un varētu tikt raksturots ar pavisam citiem (*trans-cis* pārgrupēšanos) procesiem paraugā.

NOBEIGUMS UN SECINĀJUMI

Doktora darba ietvaros tika veikti visi iepriekš paredzētie uzdevumi: ir apzināta tiešā ieraksta efektivitātes atkarība no tā parametriem (intensitātes un polarizācijas) un ieraksta apstākļiem, apskatīts gan intensitātes, gan arī polarizācijas sadalījuma teorētiskais modelis dažādiem staru interferences gadījumiem. Izmantojot unikālu un relatīvi vienkāršu iekārtu ir izpētītas tiešā ieraksta iespējas un masas pārnese virzieni ar taisnstūrveida gaismas intensitātes sadalījumu pie dažādām gaismas intensitātēm, polarizācijām un ieraksta laikiem.

Kā jau tika minēts, hologrāfiskā ieraksta laikā, apgaismojot paraugu ar papildus nekoherentu apgaismojumu, ir iespējams palielināt režģu ieraksta efektivitāti- dažos gadījumos pat vairāk nekā simts reizes. Iegūtie režģi ir augstas kvalitātes un praktiski nav iegūstami ne ar kodināšanas, ne litogrāfijas, ne arī kādu citu metodi. Lai iegūtu noteiktu difrakcijas efektivitāti, papildus apgaismojot paraugu, ir iespējams stipri samazināt režģu ieraksta laiku, kas arī uzlabo to kvalitāti un iegūšanas tehnoloģiju. Iegūtais hologrāfiskais režģis ir stabils pie istabas temperatūras un, kopā ar reālā laika virsmas reljefa ieraksta amplitūdas kontroli, iegūtās zināšanas un tehnoloģija var atrast praktisko pielietojumu gan optikā (hologrāfija, litogrāfija, anti-refleksijas pārklājumi, saules baterijas u.t.t.), gan elektronikā (mikro un nano matricu veidošanā), gan nanotehnoloģijās (*top-down* metode), gan arī vēl daudzos citos sektoros.

IZMANTOTĀ LITERATŪRA UN AVOTI

- [1] A. Kikineshi, V. Palyok, I. A. Szabó, M. Shipljak, I. Ivan, and D. L. Beke, "Surface deformations and amplitude-phase recording in chalcogenide nanolayered structures," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 326&327, pp. 484-488, 2003.
- [2] R. P. Wang, *Amorphous Chalcogenides: Advances and Applications*: Pan Stanford Publishing, 2014.
- [3] A. Kikineshi, V. Palyok, M. Shiplyak, I. A. Szabo, and D. L. Beke, "Photo-induced surface deformation during hologram recording in a-Se films," *J. of Optoelectronics and Adv. Materials* vol. 2 (1), pp. 95-98, 2000.
- [4] S. Kokenyesi, I. Iván, V. Takátsa, J. Pálkása, S. Birib, and I. A. Szabo, "Formation of surface structures on amorphous chalcogenide films," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 353 (13-15), pp. 1470-1473, 2007.
- [5] V. Palyok, I. A. Szabó, D. L. Beke, and A. Kikineshi, "Surface grating formation and erasing on a-Se films," *Appl Phys A*, vol. 74 (5), pp. 683-687, 2002.
- [6] U. Gertners and J. Teteris, "Photo-induced Mass Transfer in Chalcogenides," *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, vol. 23, p. 012007, 2011.
- [7] K. E. Asatryan, T. Galstian, and R. Vallée, "Optical Polarization Driven Giant Relief Modulation in Amorphous Chalcogenide Glasses," *Phys Rev Lett*, vol. 94 (8), p. 087401, 2005.
- [8] M. Reinfelde, R. Grants, and J. Teteris, "Photoinduced mass transport in amorphous As-S-Se films," *P hys. Status Solidi C*, vol. 9 (12), pp. 2586-2589, 2012.
- [9] V. M. Kryshenik, M. L. Trunov, and V. P. Ivanitsky, "Vectorial response under photo-excitation in amorphous chalcogenides and azobenzene polymer films: a comparison," *J Optoelectron Adv Mater*, vol. 9, pp. 1949-1964, 2007.
- [10] K. Tanaka and K. Shimakawa, *Chalcogenide Semiconductors and Related Materials*: Springer, New York, 2011.
- [11] M. Chomát, D. Ležal, I. Gregora, and I. Srb, "Relief holograms in thin films of amorphous As₂Se₃ under high laser exposures," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 20 (3), pp. 427-437, 1976.
- [12] C. Floreaa, J. S. Sangherab, L. B. Shawb, V. Q. Nguyenb, and I. D. Aggarwalb, "Surface relief gratings in AsSe glass fabricated under 800-nm laser exposure," *Materials Letters*, vol. 61 (6), pp. 1271-1273, 2007.
- [13] U. Gertners and J. Teteris, "Surface relief formation in amorphous chalcogenide thin films during holographic recording," *Optical Materials*, vol. 32, pp. 807-810, 2010.
- [14] Z. Guo, S. Qu, L. Ran, and S. Liu, "Modulation grating achieved by two interfered femtosecond laser pulses on the surface of the silica glass," *Appl. Surf. Sc.*, vol. 253 (21), pp. 8581-8583, 2007.
- [15] Y. Kaganovskii, M. L. Trunov, C. Cserhati, P. M. Lytvyn, D. L. Beke, and S. Kőkényesi, "Electron-beam induced variation of surface profile in amorphous As₂₀Se₈₀ films " *J. Appl. Phys.* , vol. 115 (18), p. 183512, 2014.
- [16] S. Bian, L. Li, J. Kumar, D. Y. Kim, J. Williams, and S. K. Tripathy, "Single laser beam-induced surface deformation on azobenzene polymer films " *Appl. Phys. Lett.* , vol. 73, p. 1817 1998.
- [17] H. Hisakuni and K. Tanaka, "Giant photoexpansion in As₂S₃ glass " *Appl. Phys. Lett.* , vol. 65, p. 2925 1994.

- [18] H. Ishitobi, S. Shoji, T. Hiramatsu, H. B. Sun, Z. Sekkat, and S. Kawata, "Two-photon induced polymer nanomovement " *Opt Express*, vol. 16 (18), pp. 14106-14114, 2008.
- [19] H. Ishitobi, M. Tanabe, Z. Sekkat, and S. Kawata, "The anisotropic nanomovement of azo-polymers " *Opt Express*, vol. 15 (2), pp. 652-659, 2007.
- [20] J. Teteris, J. Aleksejeva, and U. Gertners, "Photoinduced mass transport in soft materials," *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, vol. 23, p. 012002, 2011.
- [21] K. Tanaka, N. Terakado, and S. Saitoh, "Photoinduced anisotropic deformations in covalent chalcogenide glasses," *J Optoelectron Adv Mater*, vol. 10 (1), pp. 124-130, 2008.
- [22] M. L. Trunov, V. S. Bilanich, and S. N. Dub, "The non-Hookian behavior of chalcogenide glasses under irradiation: a nanoindentation study," *J. Non-Cryst. Solids* vol. 353 (18-21), pp. 1904–1909, 2007.
- [23] M. L. Trunov, S. N. Dub, P. M. Nagy, and S. Kokenyesi, "Photoplasticity of As₂S₃ films investigated with combined nanoindentation and AFM methods," *J. of Phys. and Chem. of Solids* vol. 68, pp. 1062-1068, 2007.
- [24] U. Gertners and J. Teteris, "Surface relief formation during holographic recording," *J. of Optoelectronics and Adv. Materials*, vol. 11 (12), pp. 1963-1966, 2009,.
- [25] A. Saliminia, T. V. Galstian, and A. Villeneuve, "Optical Field-Induced Mass Transport in As₂S₃ Chalcogenide Glasses," *Phys. Rev. Lett.* , vol. 85, p. 4112 2000.
- [26] C. Cojocariu and P. Rochon, "Light-induced motions in azobenzene-containing polymers," *Pure Appl. Chem.*, vol. 76 (7-8), pp. 1479–1497, 2004.
- [27] E. Mohajerani and N. H. Nataj, "Studying the temperature dependence of the laser induced birefringence in azo dye doped polymer films," *Opt. Mat.*, vol. 29, pp. 1408–1415, 2007.
- [28] J. Yang, J. Zhang, J. Liu, P. Wang, H. Ma, H. Ming, *et al.*, "Holographic grating recording in azobenzene polymer films," *Opt. Mat.* , vol. 27, pp. 527–532, 2004.
- [29] S. K. Tripathy, N. K. Viswanathan, S. Balasubramanian, and J. Kumar, "Holographic fabrication of polarization selective diffractive optical elements on azopolymer film," *Polym Adv Technol* vol. 11 (8 12), pp. 570-574, 2000.
- [30] P. Rochon, A. Natansohn, C. L. Callendar, and L. Robitaille, "Guided mode resonance filters using polymer films," *Appl Phys Lett*, vol. 71 (8), pp. 1008-1010, 1997.
- [31] R. J. Stockermans and P. L. Rochon, "Narrow band resonant grating waveguide filters constructed with azobenzene polymers," *Appl Opt* vol. 38 (17), pp. 3714-3719, 1999.
- [32] J. Paterson, A. Natansohn, P. Rochon, C. L. Callendar, and L. Robitaille, "Optically inscribed surface relief diffraction gratings on azobenzene containing polymers for coupling light into slab waveguides," *Appl Phys Lett* vol. 69 (22), pp. 3318-3320, 1996.
- [33] T. Nagata, T. Matsui, M. Ozaki, K. Yoshino, and F. Kajzar, "Novel optical properties of conducting polymer photochromic polymer systems," *Synth Met* vol. 119 (1 3), pp. 607-608, 2001.
- [34] V. Dumarcher, L. Rocha, C. Denis, C. Fiorini, J. M. Nunzi, F. Sobel, *et al.*, "Polymer thin film distributed feedback tunable lasers," *J Opt A: Pure Appl Opt* vol. 2 (4), pp. 279-283, 2000.

- [35] L. Rocha, V. Dumarcher, C. Denis, P. Raimond, C. Fiorini, and J. M. Nunzi, "Laser emission in periodically modulated polymer films," *J Appl Phys* vol. 89 (5), pp. 3067-3069, 2001.
- [36] C. Egami, Y. Kawata, Y. Aoshima, S. Alasfar, O. Sugihara, H. Fujimura, *et al.*, "Two stage optical data storage in azo polymers," *Jpn J Appl Phys* vol. 39 (3B), pp. 1558-1561, 2000.
- [37] P. S. Ramanujam, M. Pedersen, and S. Hvilsted, "Instant holography," *Appl Phys Lett* vol. 74 (21), pp. 3227-3229, 1999
- [38] R. Zallen, *The Physics of Amorphous Solids*: Wiley-VCH, 1998.
- [39] K. Morigaki, *Physics of Amorphous Semiconductors*: World Scientific Pub Co Inc, 1999.
- [40] A. Kolobov, *Photo-Induced Metastability in Amorphous Semiconductors*: Wiley-VCH, 2003.
- [41] К. Шварц, *Физика оптической записи в диэлектриках и полупроводниках*, 1986.
- [42] O. Students, *Optika*, 1971.
- [43] А. Л. Картужанского, *Несеребряные фотографические процессы*, 1983.
- [44] P. Kremer, A. M. Moulin, R. J. Stephenson, T. Rayment, M. E. Welland, and S. R. Elliott, "Reversible Nanocontraction and Dilatation in a Solid Induced by Polarized Light," *Science*, vol. 277 (5333), pp. 1799-1802, 1997.
- [45] M. Stuchlik and S. R. Elliott, "All-optical actuation of amorphous chalcogenide-coated cantilevers," *J. Non-Cryst. Solids* vol. 353, pp. 250–262, 2007.
- [46] H. Asao and K. Tanaka, "Polarization-dependent photoinduced mechanical deformations in covalent chalcogenide glasses," *J. Appl. Phys.*, vol. 102, 2007.
- [47] M. L. Trunov, "Polarization-dependent laser-induced giant mass transport in glassy semiconductors," *JETP Letters*, vol. 86 (5), pp. 313-316, 2007.
- [48] H. Hisakuni and K. Tanaka, "Optical Microfabrication of Chalcogenide Glasses," *Science* vol. 270, pp. 974-975, 1995.
- [49] K. Tanaka, "Photoinduced fluidity in chalcogenide glasses," *C. R. Chimie* vol. 5, pp. 805–811, 2002.
- [50] K. Tanaka and H. Asao, "Photoinduced anisotropic deformation in As₂S₃ glass " *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 45, p. 1668 2006.
- [51] M. Csetea, A. K. Kisb, C. Vassa, Á. Siposa, G. Szekeres, M. Delic, *et al.*, "Atomic force microscopical and surface plasmon resonance spectroscopical investigation of sub-micrometer metal gratings generated by UV laser-based two-beam interference in Au-Ag bimetallic layers," *Appl. Surf. Sc.*, vol. 253 (19), pp. 7662–7671, 2007.
- [52] A. Csik, M. Malyovanika, J. Dorogovicsa, A. Kikineshia, D. L. Beke, I. A. Szabo, *et al.*, "Photo-stimulated structural transformations and optical recording in amorphous semiconductor multilayers," *J Optoelectronics and Adv. Materials*, vol. 3 (1), pp. 33-36 2001.
- [53] M. Fischer, T. Galstian, R. Vallée, and A. Saliminia, "Surface and volume contributions to total diffractive efficiency in As₂S₃ thin film glasses " *Synthetic Metals*, vol. 127 (1-3), pp. 303-306, 2002.
- [54] T. V. Galstyan, J. F. Viens, A. Villeneuve, K. Richardson, and M. A. Duguay, "Photoinduced Self-Developing Relief Gratings in Thin Film Chalcogenide As₂S₃ Glasses," *Lightwave Technology*, vol. 15 (9), pp. 1343 - 1347 1997.

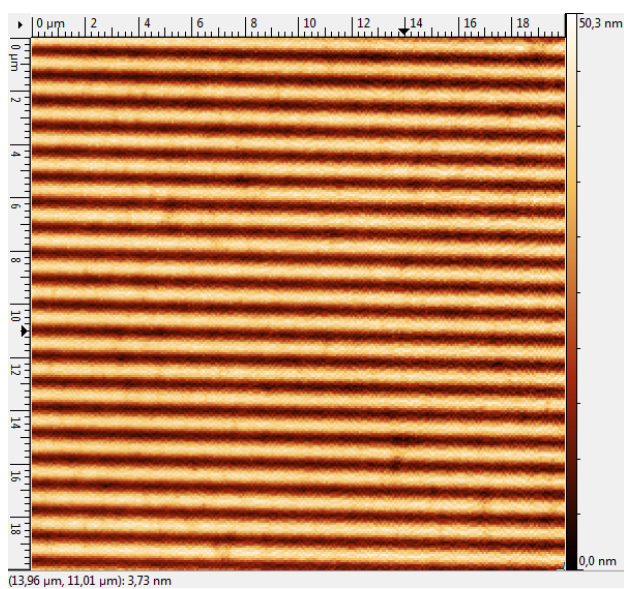
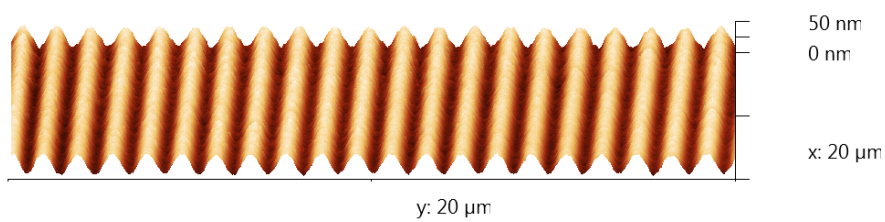
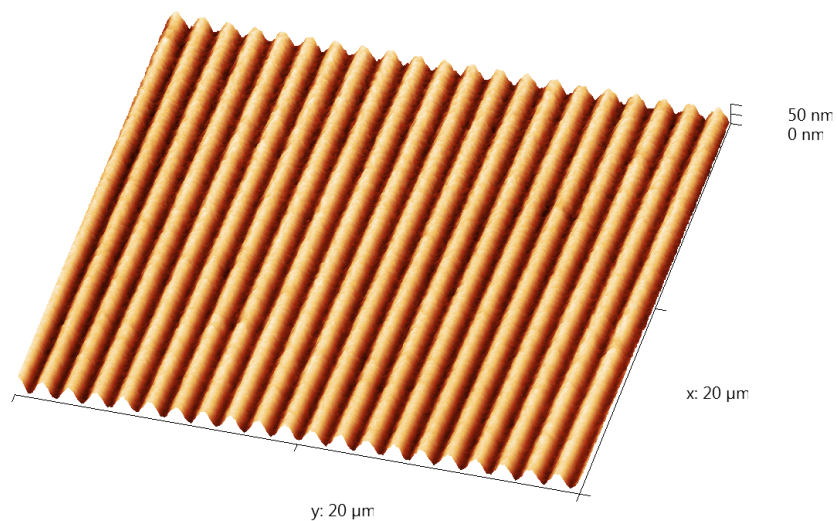
- [55] Y. Hayasaki and D. Kawamura, "High-density bump formation on a glass surface using femtosecond laser processing in water," *Appl. Phys. A*, vol. 87 (4), pp. 691-695, 2007.
- [56] A. Kikineshi, "Light-stimulated structural transformations and optical recording in amorphous nano-lauered structures," *J Optoelectronics and Adv. Materials*, vol. 3 (2), pp. 377-0382, 2001.
- [57] A. Kikineshi, V. Palyok, M. Shilyak, I. A. Szabo, and D. L. Beke, "Photo-induced surface deformation during hologram recording in a-Se films," *J Optoelectronics and Adv. Materials*, vol. 2, pp. 95-98 2000.
- [58] V. Palyok and M. Malyovanik, "Photoinduced extension and optical recording in a-Se/As₂S₃ multilayers," *J Optoelectronics and Adv. Materials*, vol. 1 (3), pp. 77-80, 1999.
- [59] J. U. Park, W. S. Kima, and B. S. Bae, "Photoinduced low refractive index in a photosensitive organic-inorganic hybrid material," *J. Mater. Chem.*, vol. 13, pp. 738-741, 2003.
- [60] E. Spanakis, E. Stratakis, and P. Tzanetakis, "Metastable photoexpansion of hydrogenated amorphous silicon produced by exposure to short laser pulses," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 352 (5), pp. 429-433, 2006.
- [61] M. L. Trunov, "Photoplastic effect in non-crystalline materials: a nanoindentation study," *J Physics D: Appl Physics*, vol. 41, p. 074011 2008.
- [62] H. Ukita, H. Uemi, and A. Hirata, "Near Field Observation of a refractive Index Grating and a Topographical Grating by an Optically-Trapped Gold Particle," *Opt. Rev.*, vol. 11 (6), pp. 1-5, 2004.
- [63] C. Vass, K. Osvay, and B. Hopp, "Fabrication of 150 nm period grating in fused silica by two-beam interferometric laser induced backside wet etching method," *Opt Express*, vol. 14 (18), pp. 8354-8359, 2006.
- [64] F. S. D. Vicente, M. S. Li, and Y. Messaddeq, "Holographic recording in [Sb(Po-3)(3)](n)-Sb₂O₃ glassy films by photoinduced volume and refraction index changes," *J. Non-Cryst. Solids*, vol. 348, pp. 245-249, 2004.
- [65] M. Vlcek, S. Schroeter, S. Brueckner, S. Fehling, and A. Fiserova, "Direct fabrication of surface relief gratings in chalcogenide glasses by excimer laser interference lithography," *J Mat Science: Materials in Electronics*, vol. 20 (1), pp. 290-293, 2009.
- [66] R. Bachelot, F. H'Dhili, D. Barchiesi, G. Lerondel, R. Fikri, P. Royer, *et al.*, "Apertureless near-field optical microscopy: A study of the local tip field enhancement using photosensitive azobenzene-containing films," *J. Appl. Phys.*, vol. 94, pp. 2060-2072 2003.
- [67] C. Fiorini, N. Prudhomm, G. d. Veyrac, I. Maurin, P. Raimond, and J. M. Nunzi, "Molecular migration mechanism for laser induced surface relief grating formation," *Synthetic Metals*, vol. 115 (1-3), pp. 121-125, 2000.
- [68] Y. He, J. Yin, P. Che, and X. Wang, "Epoxy-based polymers containing methyl-substituted azobenzene chromophores and photoinduced surface relief gratings," *European Polymer Journal*, vol. 42 (2), pp. 292-301, 2005.
- [69] H. Ishitobi, M. Tanabe, Z. Sekkat, and S. Kawata, "Nanomovement of azo polymers induced by metal tip enhanced near-field irradiation," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, p. 091911 2007.
- [70] P. Karageorgiev, D. Neher, B. Schulz, B. Stiller, U. Pietsch, M. Giersig, *et al.*, "From anisotropic photo-fluidity towards nanomanipulation in the optical near-field," *Nat. Mater.*, vol. 4, pp. 699-703 2005.

- [71] D. Y. Kim, S. K. Tripathy, L. Li, and J. Kumar, "Laser-induced holographic surface relief gratings on nonlinear optical polymer films," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 66, pp. 1166-1168, 1995.
- [72] N. Koyayashi, C. Egami, and Y. Kawata, "Optical Storage Media with Dye-Doped Minute Spheres on Polymer Films," *Opt. Rev.*, vol. 10, pp. 262-266 2003.
- [73] F. L. Labarthe, J. L. Bruneel, T. Buffeteau, and C. Sourisseau, "Chromophore Orientations upon Irradiation in Gratings Inscribed on Azo-Dye Polymer Films: A Combined AFM and Confocal Raman Microscopic Study," *J. Phys. Chem. B*, vol. 108, pp. 6949-6960 2004.
- [74] K. Munakata, K. Harada, M. Itoh, S. Umegaki, and T. Yatagai, "A new holographic recording material and its diffraction efficiency increase effect the use of photoinduced surface deformation in azo-polymer film," *Opt. Commun.*, vol. 191, pp. 15-19 2001.
- [75] L. L. Nedelchev, A. S. Matharu, S. Hvilsted, and P. S. Ramanujam, "Photoinduced anisotropy in a family of amorphous azobenzene polyesters for optical storage," *Appl. Opt.*, vol. 42, pp. 5918-5927 2003.
- [76] P. Rochon, E. Batalla, and A. Natansohn, "Optically induced surface gratings on azoaromatic polymer films," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 66, pp. 136-138 1995.
- [77] C. J. Barrett, P. L. Rochon, and A. L. Natansohn, "Model of laser driven mass transport in thin films of dye functionalized polymers," *J Chem Phys* vol. 109 (4), pp. 1505-1516, 1998.
- [78] T. Fukuda, K. Sumaru, T. Yamanaka, and H. Matsuda, "Photo induced formation of the surface relief grating on azobenzene polymers analysis based on the fluid mechanics," *Mol Cryst Liq Cryst* vol. 345 pp. 587-592, 2000.
- [79] K. Sumaru, T. Yamanaka, T. Fukuda, and H. Matsuda, "Photoinduced surface relief gratings on azopolymer films analysis by a fluid mechanics model," *Appl Phys Lett* vol. 75 (13), pp. 1878-1880, 1999.
- [80] D. Bublitz, B. Fleck, and L. Wenke, "A model for surface relief formation in azobenzene polymers," *Appl Phys B Lasers*, vol. 72 (8), pp. 931-936, 2001.
- [81] D. Bublitz, M. Helgert, B. Fleck, L. Wenke, S. Hvilsted, and P. S. Ramanujam, "Photoinduced deformation of azobenzene polyester films," *Appl Phys B Lasers Opt* vol. 70 (6) pp. 863-865, 2000.
- [82] M. Saphiannikova, T. M. Geue, O. Henneberg, K. Morawetz, and U. Pietsch, "Linear viscoelastic analysis of formation and relaxation of azobenzene polymer gratings," *J Chem Phys* vol. 120 (8), pp. 4039-4045, 2004.
- [83] A. C. Mitus, G. Pawlik, A. Miniewicz, and F. Kajzar, "Kinetics of diffraction gratings in a polymer matrix containing azobenzene chromophores experiment and Monte Carlo simulations," *Mol Cryst Liq Cryst* vol. 416 pp. 113-126, 2004.
- [84] G. Pawlik, A. C. Mitus, A. Miniewicz, and F. Kajzar, "Kinetics of diffraction gratings formation in a polymer matrix containing azobenzene chromophores experiments and Monte Carlo simulations," *J Chem Phys* vol. 119 (13) pp. 6789-6801, 2003.
- [85] G. Pawlik, A. C. Mitus, A. Miniewicz, and F. Kajzar, "Monte Carlo simulations of temperature dependence of the kinetics of diffraction gratings formation in a polymer matrix containing azobenzene chromophores," *J Nonlinear Opt Phy Mater*, vol. 13(3-4), pp. 481-489, 2004.
- [86] P. Lefin, C. Fiorini, and J. M. Nunzi, "Anisotropy of the photo induced translation diffusion of azobenzene dyes in polymer matrices," *Pure Appl Opt* vol. 7 (1) pp. 71-82, 1998.

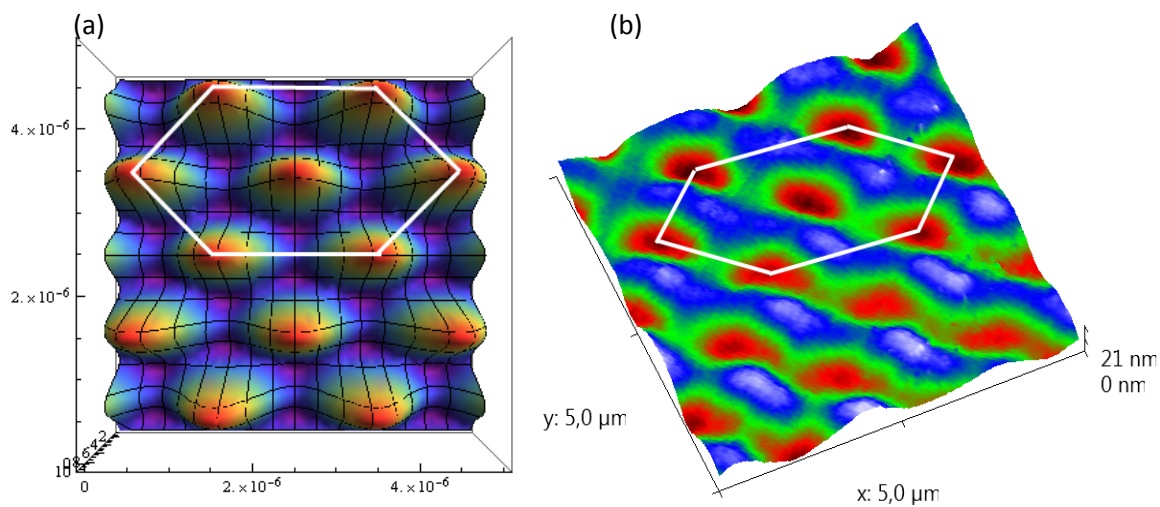
- [87] P. Lefin, C. Fiorini, and J. M. Nunzi, "Anisotropy of the photoinduced translation diffusion of azo dyes," *Opt Mater*, vol. 9 (1-4), pp. 323-328, 1998.
- [88] T. G. Pedersen and P. M. Johansen, "Mean field theory of photoinduced molecular reorientation in azobenzene liquid crystalline side chain polymers," *Phys Rev Lett* vol. 79 (13) pp. 2470-2473, 1997.
- [89] T. G. Pedersen, P. M. Johansen, N. C. R. Holme, P. S. Ramanujam, and S. Hvilsted, "Mean field theory of photoinduced formation of surface reliefs in side chain azobenzene polymers," *Phys Rev Lett* vol. 80 (1) pp. 89-92, 1998.
- [90] O. Baldus and S. J. Zilker, "Surface relief gratings in photoaddressable polymers generated by cw holography," *Appl Phys B Lasers Opt*, vol. 72 (4) pp. 425-427, 2001.
- [91] S. P. Bian, W. Liu, J. Williams, L. Samuelson, J. Kumar, and S. Tripathy, "Photoinduced surface relief grating on amorphous poly(4 phenylazo phenol) films," *Chem Mater* vol. 12 (6) pp. 1585-1590, 2000.
- [92] J. Kumar, L. Li, X. L. Jiang, D. Y. Kim, T. S. Lee, and S. Tripathy, "Gradient force: the mechanism for surface relief grating formation in azobenzene functionalized polymers" *Appl Phys Lett* vol. 72 (17) pp. 2096-2098, 1998.
- [93] N. K. Viswanathan, S. Balasubramanian, L. Li, S. K. Tripathy, and J. Kumar, "A detailed investigation of the polarization dependent surface relief grating formation process on azo polymer films," *Jpn J Appl Phys* vol. 38 (10) pp. 5928-5937, 1999.
- [94] K. Yang, S. Z. Yang, and J. Kumar, "Formation mechanism of surface relief structures on amorphous azopolymer films," *Phys Rev B* vol. 73 (16), p. 165204 2006.
- [95] A. Ashkin, "Optical trapping and manipulation of neutral particles using lasers," *Proc Natl Acad Sci USA* vol. 94 (10) pp. 4853-4860, 1997.
- [96] P. C. Chaumet and M. N. Vesperinas, "Time averaged total force on a dipolar sphere in an electromagnetic field," *Opt Lett* vol. 25 (15) pp. 1065-1067, 2000.
- [97] B. E. A. Saleh and M. V. Teich, *Wiley Series in Pure and Applied Optics*, 2007.
- [98] B. Bellini, J. Ackermann, H. Klein, C. Grave, P. Dumas, and V. Safarov, "Light-induced molecular motion of azobenzene containing molecules: a random-walk model," *J. Phys: Condensed Matter* vol. 18 pp. 1817-1835, 2006.
- [99] V. G. Zhdanov and V. K. Malinovsky, "Photoinduced birefringence and dichroism in As₂S₃ films," *Sov. Tech. Phys. Lett.*, vol. 3, pp. 387-388, 1977.
- [100] A. Lenshof and T. Laurell, "Continuous separation of cells and particles in microfluidic systems," *Chem. Soc. Rev.*, vol. 39, pp. 1203-1217, 2010.
- [101] H. Pohl, "The Motion and Precipitation of Suspensoids in Divergent Electric Fields," *J. Appl. Phys.*, vol. 22, pp. 869-871, 1951.
- [102] G. G. Wells, N. Sampara, E. E. Kriezis, J. Fyson, and C. V. Brown, "Diffraction grating with suppressed zero order fabricated using dielectric forces," *Opt Lett.*, vol. 36 (22), p. 4404, 2011.

PIELIKUMS

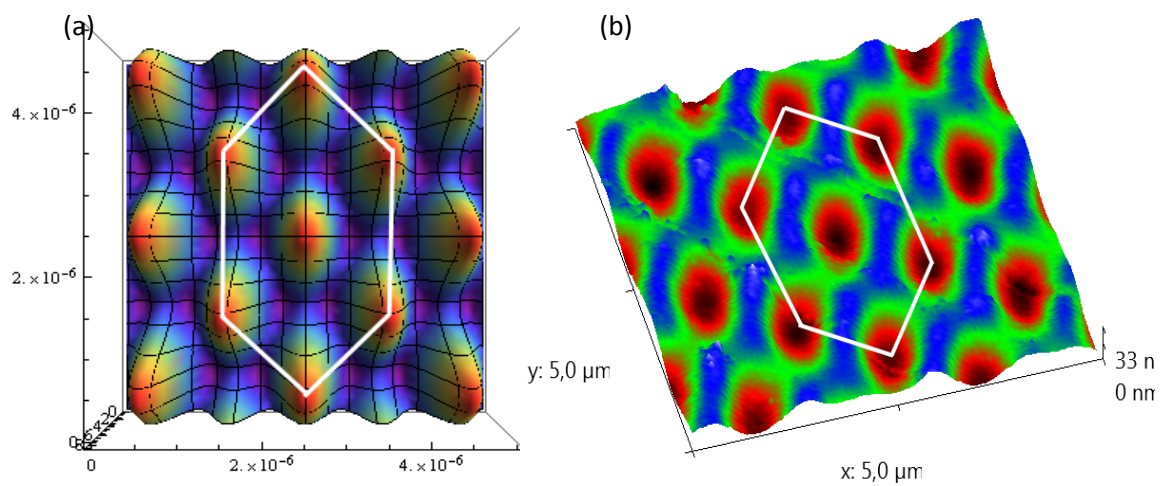
1. Pielikums. Augstas kvalitātes difrakcijas režģis
Ieraksts veikts As_2S_3 ar $CW \text{Nd:YAG } 532\text{nm}$ ($p+p$ pol.) lāzeru pie papildus p -pol.
apgaismojuma



2. Pielikums. Daudzstaru hologrāfijas eksperimenti organiskā
Ieraksts veikts ar CW Nd:YAG 532nm lāzeru

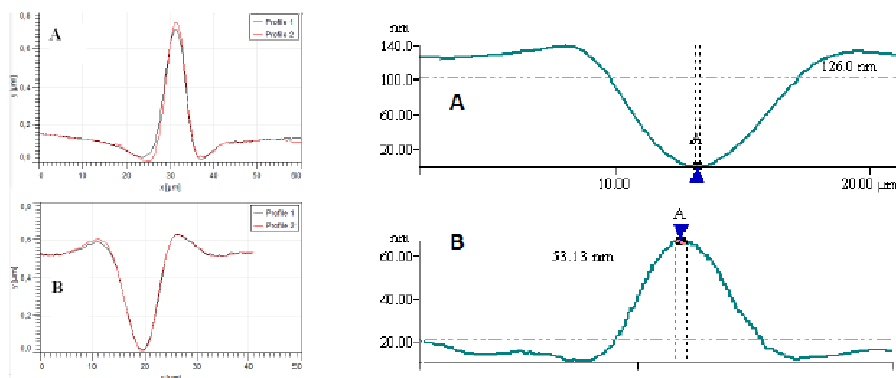


Četrstaru (s,s,s,p) polarizācijas ieraksts azo-savienojumos (b), tā salīdzinājums ar teorētisko intensitātes sadalījumu (a)
(masas pārnese tiek novērota virzienā prom no intensīvi apgaismotām vietām)



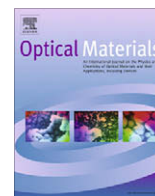
Trīsstaru (p,s,p) polarizācijas ieraksts azo-savienojumos (b), tā salīdzinājums ar teorētisko intensitātes sadalījumu (a)
(masas pārnese tiek novērota virzienā prom no intensīvi apgaismotām vietām)

3. Pielikums. Optiskās spraugas eksperimentu salīdzinājums amorfajos halogēnīdos un organiskajos azo savienojumos



Ieraksts caur 10 μ m platu spraugu As₂S₃ kārtiņā (kreisā pusē) un poliuretānā (labā pusē);
A gadījumā veikts p/s ieraksts (ieraksta staram elektriskais lauks perpendikulārs spraugai) un B gadījumā- s/p ieraksts (ieraksta staram elektriskais lauks paralēls spraugai)
(ir novērojama masas pārnese dažādiem materiāliem dažādos virzienos)

3. Pielikums. Promocijas darba rezultāti
publicēti sekojošos zinātniskos žurnālos



Surface relief formation in amorphous chalcogenide thin films during holographic recording

U. Gertners*, J. Teteris

Institute of Solid State Physics, University of Latvia, 8 Kengaraga Street, LV1063 Riga, Latvia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 9 September 2009

Received in revised form 10 January 2010

Accepted 14 January 2010

Available online 4 February 2010

Keywords:

Amorphous chalcogenide films

Holographic recording

Softening temperature

Surface relief

Polarization

ABSTRACT

This report presents the studies of direct holographic recording of the surface relief gratings on amorphous As_2S_3 films by 532 nm laser light. By giving extra time for recording exposure (more than necessary for volume amplitude-phase optical recording, e.g. Kikineshi, 2000 [2]), changes of surface relief in the resist material can be observed. This direct surface relief formation phenomenon during holographic recording is discussed here from the side of recording light polarization. Efficiency of the relief formation may also depend on softening temperature of the film material and this influence was studied as well by using additional incoherent light for extra exposure during recording. The results show several times larger grating efficiency during recording in case of extra exposure by additional incoherent light. Also the mechanism of the direct recording of surface relief on amorphous chalcogenide films based on the photoinduced plasticity has been discussed.

© 2010 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The key element for the production of surface relief holographic optical elements is photoresist or light sensitive material. Changes of the local chemical properties, optical parameters, microhardness, viscosity and some other characteristics [1–3] induced in the resist material by light or e-beam exposure enable the surface relief structuring by *wet* or *dry* etching. Therefore this process includes at least two steps: recording and following development by etching. Due to polarization dependent anisotropic changes in the resist material, like opto-mechanical [7], M-shaped [8] or anisotropic crack [9] deformations during exposure it is possible to obtain a structured surface relief optical elements without etching.

A number of organic and inorganic materials have been studied for direct surface relief formation during the process of exposure by light or e-beam [4–6]. It is very promising for practical applications, it makes possible to simplify the technology of surface patterning.

Also in this report the surface relief formation during holographic recording in amorphous chalcogenide semiconductor thin films is presented. A number of studies have been carried out on photoinduced structural transformation in amorphous chalcoge-

nides during the past few years [4,10,11], but in this case particular attention is given to the polarization state of exposure light.

The intensity distribution of the two coherent, equal intensities and *p*-polarized beams interference can be approximated by sin function: $I_{\text{local}} = I_{\text{max}} \cdot \sin^2(\pi \cdot x / \Lambda)$, where Λ -period of the light interference (usually around 1 μm) and x -profile coordinate. This formula shows that the local intensity of the light periodically varies from zero to I_{max} , i.e. there are places where light intensity equals to zero. In case of holographic recording and direct surface relief formation during the exposure process it means that there are local unexposed places on the sample which do not participate in surface relief formation process and moreover it may disturb the relief formation efficiency. If and how can we change this situation? What happens if we during recording process extra illuminate the sample by additional incoherent light with intensity I_0 , which do not participate in the surface relief formation processes? We keep the same local light gradient and lift up total local light intensity in range from I_0 to $I_0 + I_{\text{max}}$ – exposure also places where intensity of the recording beams are equal to zero. This leads to softening temperature decreasing and increasing efficiency of the direct surface relief formation during holographic recording. Main task for this report is to investigate this influence of the surface relief formation by using additional incoherent laser light for extra illumination during holographic recording.

There are other methods or techniques what cause softening temperature changes and are suitable for holography like heating of the sample during recording process etc. In our case extra exposure is more stable and easy to realize and control.

* Corresponding author. Tel.: +371 2 875 1557.

E-mail address: gertners@gmail.com (U. Gertners).

2. Experimental

Amorphous As_2S_3 films were obtained by thermal evaporation in vacuum of $\sim 5 \times 10^{-6}$ Torr onto the glass substrates. Thickness of the film was controlled in real time by diode laser and it was from 0.5 to 10 μm .

The surface relief formation experiments were performed using a holographic recording system (see scheme in Fig. 1a) where Verdi-6 532 nm wavelength laser beam was splitted into two of nearly equal intensity beams that were used for interference experiments. Diffraction efficiency (η) was controlled in real time by measuring the first order intensity of the reflected and transmitted recording beams. During holographic recording the changes in volume were controlled by measuring the transmission diffraction efficiency (DE) η_T (like those in absorption and refractive index). The changes in surface relief modulation were controlled by measuring the reflection DE η_R . The volume gratings also affect the reflection

DE, however contribution is insignificant (see [2]) and will not be discussed here.

For future data analysis we need to define some parameters like recording efficiency that is defined as the slope of the first order polynomial equation $\eta = c_0 \cdot t$, i.e. $c_0 = \Delta\eta/\Delta t$ (here t is the time of exposure). The enhancement of relief formation is defined as the efficiency of recording with extra illumination divided by efficiency without extra illumination. Diffraction efficiency and recording efficiency as well as relief formation enhancement provides only indirect information about changes of the surface relief depth, direct measurements of the surface relief profile was obtained by atomic force microscope (AFM).

The polarization state is defined by the plane where the electric field oscillates versus the x - y plane where both recording beams are located (see Fig. 1b). Therefore, if both planes have the same orientation this means that the light has a p or horizontal polarization state; otherwise, if both the planes are at an angle to each

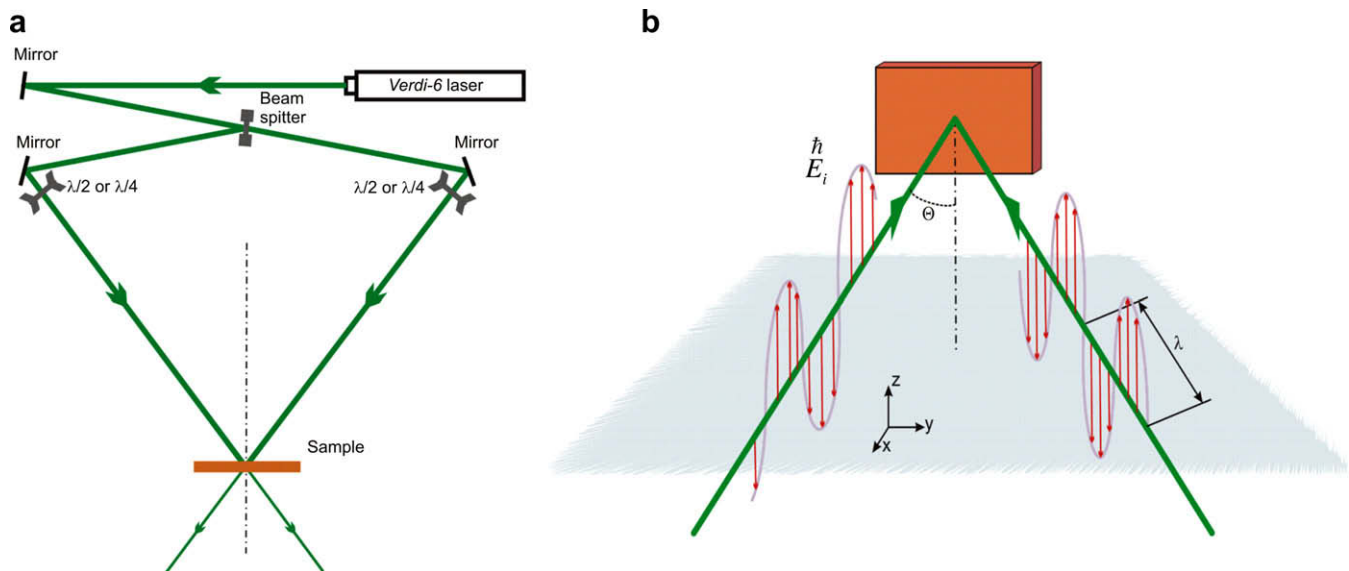


Fig. 1. (a) Experimental setup for holographic recording experiments; recording was performed by YAG Verdi-6 532 nm laser and (b) polarization is defined by the x - y plane where both recording beams are located – in this case both laser beams are vertically polarized, i.e. are in s -polarization state.

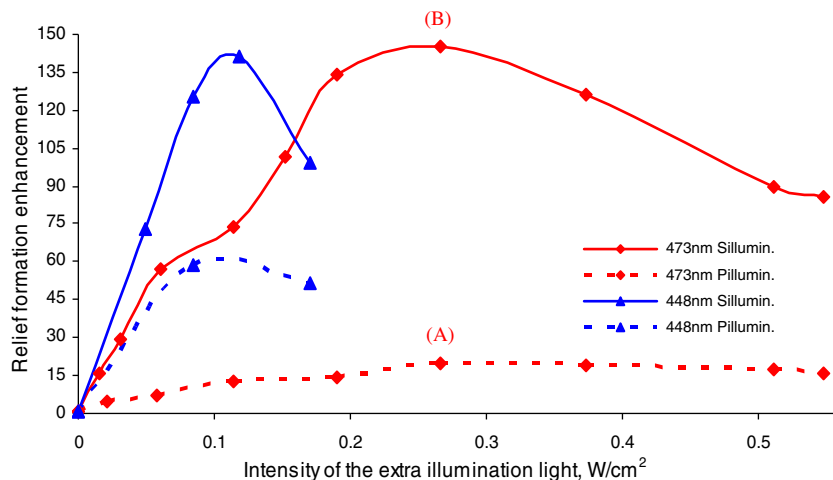


Fig. 2. Surface relief formation enhancement during holographic recording versus intensity of the extra illumination laser light (dots: experimental data) in the case of extra illumination at different wavelengths and polarization states of incoherent laser light (if $I_{\text{extra}} = 0$ the relief formation enhancement equals one). Recording was performed by p & p -polarized light on As_2S_3 sample by Verdi-6 532 nm (p -polarized) wavelength laser light where $I_1 = I_2 = 0.19 \text{ Wcm}^{-2}$ and period $\Lambda = 1 \mu\text{m}$.

other (e.g. 10°) we say that the light has a 10° polarization state; if this angle is 90°, there is s or vertical polarization of the light.

3. Results and discussion

Fig. 2 shows dependence of the recording efficiency on its parameters, i.e. the efficiency of surface relief formation versus intensity of the incoherent light (softening by extra illumination) during holographic recording. Other recording parameters (recording light, its intensity and polarization state (532 nm, 0.2 Wcm⁻² and p-polarization)) are constant.

First of all, from Fig. 2, we can see that the surface relief formation efficiency changes a lot by increasing extra illumination intensity. We can describe each curve in the linear part of these curves (up to 0.1 Wcm⁻² for 448 nm extra illumination light and up to 0.2 Wcm⁻² for 473 nm light) by its slope: for 473 nm p-polarized extra illumination it is about 75 W⁻¹ cm², for 473 nm s-polarized – 675 W⁻¹ cm², for 448 nm p- and s-polarized – 64 and 1300 W⁻¹ cm². Here we can easily calculate our gains of the setup parameters compared to the same setup, but without extra illumination during holographic recording. For example, by using 448 nm s-polarized 0.08 Wcm⁻² wavelength light for extra illumination during experiment, relief formation enhancement increases (proportional to η_R) from one to about hundred (1300 W⁻¹ cm⁻² multiplied by 0.08 Wcm⁻²).

All these curves somewhere reaches their maximum, i.e. for every wavelength light what is used for extra illumination exist recording conditions for the best performance. By changing extra illumination wavelength light, maximum performance illumination intensity also varies. As we can see from Fig. 2, by changing extra illumination wavelength λ from 448 nm to 473 nm the best performance is reached when $I_{473nm} = 0.26$ Wcm⁻², which is different from 448 nm case ($I_{448nm} = 0.11$ Wcm⁻²). This can be explained by the fact that 473 nm is closer to absorption edge of the sample, i.e. for the same effect we need to illuminate it by the light of higher intensity.

Here (Fig. 2, recording by p&p-polarized light) we see that the recording efficiency depends not only from the extra illumination wavelength light and its intensity but also from its polarization state. In case of all extra illumination wavelengths (448 nm and 473 nm) the best performance is reached by its s-polarization state. In fact, we can initiate constant coefficient a_0 bigger then one which would show how much s-polarized light improves performance compared to p-polarized light (the intensity is not important). For example, we need just change the extra 473 nm p-polarized illumination light to s-polarized and we get seven times better result (in case of 448 nm light – about two times). Here we very well can see anisotropic impact to the sample of the linearly polarized light, like the polarization-dependent deflection of As₂S₃ flakes in [7].

Table 1 summarizes the data not only of p&p-polarized recording light but also of all other polarization combinations. Here it is important to pay attention to the recording polarization state and the extra illumination polarization state for the maximum performance. As it is shown, the best recording performance without any extra illumination is reached by opposite circularly and 45&-45 (i.e. 45° and 135°) degree polarized light. Note that in the last case angle between recording beams is equal to 90° and interference of the light vanishes. In other words, light intensity distribution I_{sum} is equal to squared module of the electric field vector: $I_{sum} = |\vec{E}_{sum}|^2 = \sum_{i,j} \vec{E}_i \cdot \vec{E}_j \exp[-i(\vec{k}_i - \vec{k}_j)\vec{r}]$ (phase of the beams chosen to be zero). In 45&-45° setup $\vec{E}_i \cdot \vec{E}_j = 0$ for $i \neq j$ and $\vec{E}_i \cdot \vec{E}_j = |\vec{E}_i \text{ or } j|$ for $i = j$, therefore $I_{sum} = I_{45^\circ} + I_{-45^\circ}$ and light intensity will be uniformly distributed, without unexposed places on the sample which do not participate in the surface relief

Table 1

Surface relief formation efficiency during holographic recording ($\Delta\eta_R/\Delta t$) versus polarization state of extra illumination (473 nm 0.26 Wcm⁻² incoherent laser light) and recording laser light. The recording performed on As₂S₃ sample by Verdi-6 532 nm (p-polarized) laser light ($I_1 = I_2 = 0.25$ Wcm⁻², $\lambda = 1$ μm).

Extra illumination polarization	Recording polarization	$\Delta\eta_R/\Delta t$ (10 ⁻⁷ /sec)	Relief formation enhancement
s	p&p	91	260
p		13.7	39
–		0.35	1
s	s&s	0.22	2.2
p		19	190
–		0.1	1
s	s&p	0.17	4.3
p		0.035	0.88
–		0.04	1
s	45&45	23	32
p		0.2	0.28
–		0.72	1
s	45&-45	102	2.3
p		90.4	2
–		44	1
45		98	2.2
s	L&R	58	0.64
p		62	0.69
–		90	1
s	L&L	57	100
p	or	0.25	0.44
–	R&R	0.57	1

formation process. The gradient of the recording light interference is equal to zero and surface relief forms the electric field which periodically changes from horizontal, left circular, vertical to right circular polarization [10] with the same period λ . These facts about the intensity distribution and electric field explain very well why in these cases (also for oppositely circular-polarized recording light) it is possible to reach outstanding grating efficiency without extra illumination during recording process.

However, when we start to use extra illumination the situation changes. First, we can see that in the case of p&p recording polarization an extra s-polarized illumination is needed for the best performance, but in s&s case p-polarized illumination, i.e. in each of the cases cross-polarized extra illumination is required for equal linear recording polarization states. In these cases the enhancement of relief formation changes from 1 (extra illumination was not used) to ~200. In case of 45&45° polarized recording beam setup – the best results are reached by extra s-polarized illumination where the relief formation enhancement grows up to 30.

The situation is different when cross-polarized recording beams are used for holographic recording. For -45 and 45° polarized recording beams all polarization states of the extra illumination gives the same results for the best performance, i.e. it is not important what kind of light polarization is been used for extra illumination, we will get the same relief formation enhancement. If recording beams have s&p-polarized, it is possible to get only four times better results by using s-polarized extra illumination.

In the case of circularly-polarized recording light, extra illumination gives an excellent result if both recording beams are polarized in the same direction and the extra illumination light is in s-polarization state (enhancement of relief formation is changing from 1 to 100). If both recording beams are oppositely circular-polarized, the extra illumination only reduces the efficiency of the surface relief formation.

Fig. 3 shows the surface morphology AFM images induced by holographic recording. By (O) the surface of the amorphous chalcogenide As₂S₃ film before holographic recording is indicated, and by (A and B) – the same surface after recording at extra illumination by p- and s-polarized light. Exact (A) and (B) places (maximum performance setup) are shown in Fig. 2, and its surface relief

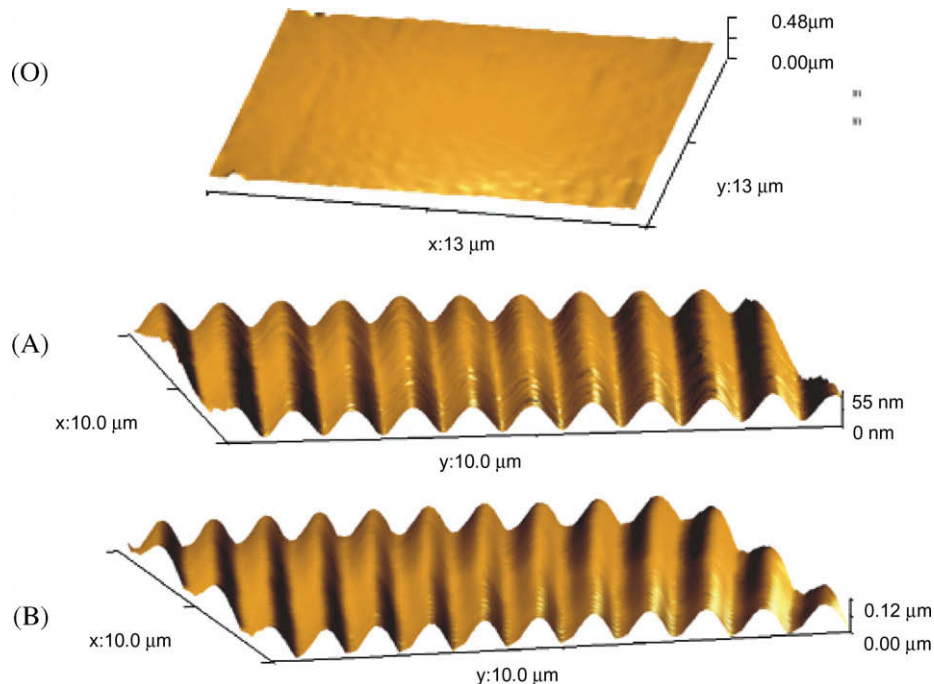


Fig. 3. AFM surface pictures of exposed (A and B) and unexposed (O) parts of the sample. (A) and (B) Parts were extra illuminated in real time by *p*-polarized and *s*-polarized 473 nm wavelength light (for A and B see also Figs. 2 and 4). The recording was performed on As_2S_3 sample by Verdi-6 532 nm (*p*-polarized) laser light ($I_1 = I_2 = 0.19 \text{ Wcm}^{-2}$, $I_{\text{extra}} = 0.26 \text{ Wcm}^{-2}$ and $\lambda = 1 \mu\text{m}$).

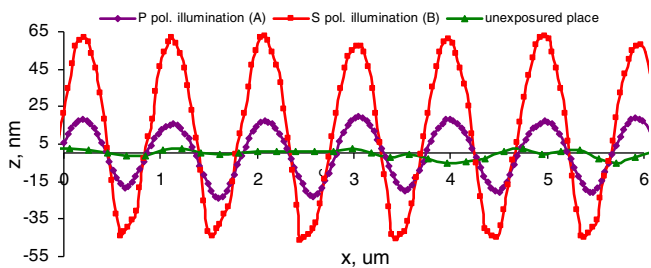


Fig. 4. Surface relief profile after recording at 532 nm wavelength *p*-polarized light ($I_1 = I_2 = 0.19 \text{ Wcm}^{-2}$) in the case of extra illumination by 473 nm 0.26 Wcm^{-2} wavelength *s*-polarized (line that represents relief which the largest amplitude changes) and *p*-polarized (line that represents relief which the middle amplitude changes) light and its comparison with unexposed spot of the sample; (dots: experimental data).

profile – in Fig. 4. As it was expected from Fig. 2, where the relief formation enhancement for *s*-polarized extra illumination is about 10 times bigger than it is for *p*-polarized, the surface relief is expressed much stronger in the case of *s*-polarized extra illumination.

4. Conclusion

The main conclusion that can be drawn from the results of work is as follows. It is possible to raise the efficiency of holographic

recording by extra illumination of the sample by incoherent laser light during the recording process. In some cases even more than hundred times better recording efficiency can be reached. It is possible to obtain much stronger diffraction than without extra illumination, or, alternatively, much less time is needed to reach the same diffraction efficiency as without extra illumination. Produced surface relief is very stable at the room temperature and together with real time surface relief depth control by controlling diffraction efficiency measurements that can find practical application in optics (holography, lithography, anti reflection coatings, sun batteries...), electronics (micro and nano matrix structures), nanotechnology (*top-down* approaches) and in more other sectors.

References

- [1] M.L. Trunov et al., J. Phys. Chem. Solids 68 (2007) 1062.
- [2] A. Kikineshi, V. Palyok, M. Shpiyak, I.A. Szabo, D.L. Beke, J. Optoelectron. Adv. Mater. 2 (1) (2000) 95.
- [3] A. Csik, M. Malyovanik, J. Dorogovics, A. Kikineshi, D.L. Beke, I.A. Szabo, G. Langer, J. Optoelectron. Adv. Mater. 3 (1) (2001) 33.
- [4] S. Kokenyesi et al., J. Non-Cryst. Solids 353 (2007) 1470.
- [5] B. Bellini et al., J. Phys.: Condens. Matter 18 (2006) 1817.
- [6] A. Kikineshi et al., J. Optoelectron. Adv. Mater. 2 (1) (2000) 95.
- [7] K. Tanaka, N. Terakado, A. Saitoh, J. Optoelectron. Adv. Mater. 10 (1) (2008) 124.
- [8] A. Saliminia et al., Phys. Rev. Lett. 85 (19) (2000) 4112.
- [9] M.L. Trunov, JETP Lett. 86 (5) (2007) 365.
- [10] K.E. Asatryan, T. Galstian, R. Vallee, Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 087401.
- [11] A. Kikineshi et al., J. Non-Cryst. Solids 326–327 (2003) 484.

The synthesis of different variants of azo-polyurethane polymers for optical recording

A. GERBREDERS*, J. ALEKSEJEVA, U. GERTNERS, J. TETERIS
Institute of Solid State Physics, University of Latvia

The method of synthesis of photosensitive polyurethanes polymers on glycerine, toluenediisocyanate and Disperse Red 1 base was described. Two types of polymers with different amount of Disperse Red 1 fragments in macromolecules were compared. Films of the polymers were obtained from solutions in organic solvents on glass substrate. The dry film thickness was in the range of 3,5 – 4.5 μm . The transmission spectrums of the films were studied. Possibility of formation of side product in the process of synthesis was observed. The photobirefringence measurements of polymers films were performed. Surface relief grating (SRG) formation was observed during polarization holographic recording process. A profile of SRG was studied by AFM.

(Received June 2, 2011; accepted November 23, 2011)

Keywords: Disperse Red 1, Photosensitive polymers, Photosensitive polyurethanes, Polarisation grating, Photoinduced birefringence

1. Introduction

The last time many photosensitive polymers (PP) for different optical devices were synthesized and described [1-6]. The advantage of photosensitive polymer films (PPF) in comparison with another composition (for example, inorganic) based on two features: relative simplicity of coating on the substrate and wide possibilities for chemical modification of materials. The simplicity of coating of PP on the substrate reached by using of spin-coating or applicator methods, but the possibilities for chemical modification – by adding of different chemical groups in macromolecules. Also formation of composite films is possible on PP base.

However, the price of such polymers on the market is relatively high. The reasons of that are multiphase synthesis, subsequent cleaning and separation of products.

One of the perspective directions of PP evolution we consider synthesis of polyurethanes (PUR) photosensitive materials. The interaction between $-\text{OH}$ and $-\text{NCO}$ groups take place at low temperature (lower $100\text{ }^{\circ}\text{C}$), this reactions are good investigated [7] and there are many catalysts for PUR synthesis.

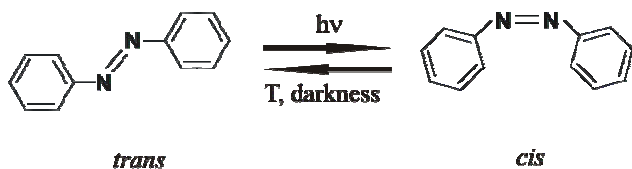


Fig. 1. Isomerization mechanism of azochromophores.

Synthesis and studies of optical properties of some photosensitive polyurethanes were described in the publications [6, 8, 9, 10]. The photosensitivity of this polymers based on presence of azochromophores parts in macromolecules. Photoisomerisation mechanism of

azochromophores is showed in Fig. 1. Described polymers by structure can divide on two types:

1. Group $\text{N}=\text{N}$ is the part of main macromolecule chain (Fig. 2a).

2. Group $\text{N}=\text{N}$ is the part of side chain (fig. 2b).

For polymer synthesis in the first case azocompounds with two or more $-\text{OH}$ groups in different sides rather $\text{N}=\text{N}$ bond were used [8,9]. In the second case, the photosensitive PUR formation from diazodiols with two $-\text{OH}$ groups in the one side rather $\text{N}=\text{N}$ was described [6, 10].

In this publication we describing another mechanism: for main chain formation we use glycerol as polyol, but $\text{N}=\text{N}$ groups incorporated in macromolecule through diisocyanate. Such scheme gives th possibility to use azocompound with only $-\text{OH}$ group in molecule, for example – Disperse Red 1 (DR1).

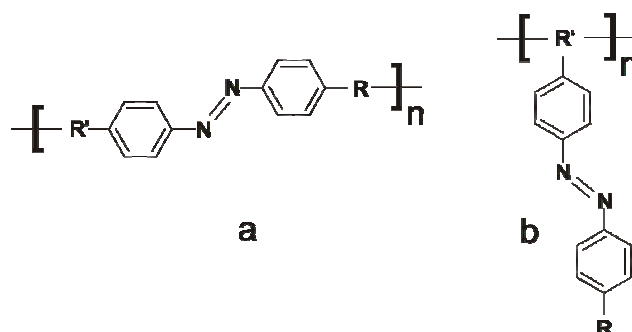


Fig. 2. Two types of azo-polymers structures.

2. Experimental

Disperse Red 1 (DR1) delivered by Fluka (CAS 2872-52-8); N,N-dimethylformamide pure (DMF) (CAS 68-12-

2); 2,4- and 2,6-toluene diisocyanate (TDI) in the ratio 67 : 33, purity $\geq 99,5\%$ and glycerol pure (CAS 56-81-5) were used as raw materials. N,N-dimethylformamide and glycerol were dried directly before synthesis.

2.1 The polymer G-DR266 synthesis

- TDI-DR semiproduct preparation.

116 g 1,3 % (wt) filtered solution of DR1 in DMF through dropping funnel was added in flask with magnetic stirrer, where preliminarily was loaded 2,2 g of TDI. The DR-1 solution was added not fast 5 hours at temperature

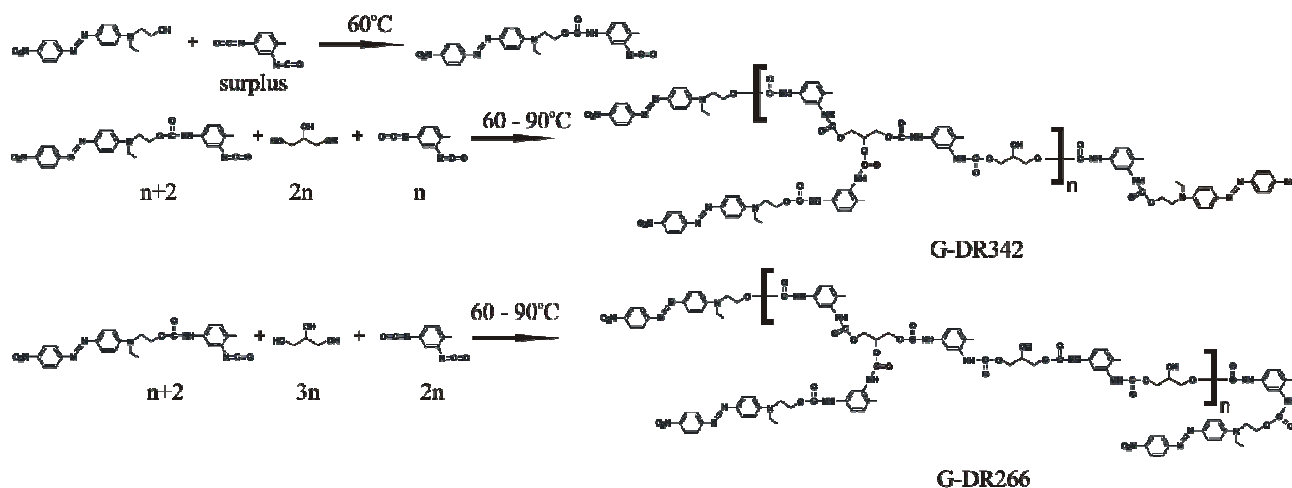


Fig. 3. Reactions of polymers G-DR342 and G-DR266 synthesis.

2.2 The polymer G-DR342 synthesis

- TDI-DR semiproduct preparation.

131.5 g 1,3 % (wt) filtered solution of DR1 in DMF through dropping funnel was added in flask with magnetic stirrer, where preliminarily was loaded 2.45 g of TDI. The DR-1 solution was added not fast 5 hours at temperature 333 K. After adding, the mixture was exposed at 363 K during 2 h.

- The polymer G-DR342 solution preparation.

0,84 g of glycerol was loaded in flask with magnetic stirrer and was dissolved in 5,00 g of DMF. 133.9 g of the TDI-DR solution during 3 h through dropping funnel was added in reaction flask with the glycerol solution at 333 K. After that, the reacting mixture was heated up to 363 K, and the vacuum evaporation of DMF was performed while the non-volatile components of polymer solution were $50\pm 5\%$ (wt).

2.3 Polyurethane and DR1-TDI-DR1 composite solution preparation

- The polymer G-TDI solution preparation.

10 g of glycerol was loaded in flask with magnetic stirrer and was dissolved in 23 g of DMF. 20 g of the 62 %

333 K. After adding, the mixture was exposed at 363 K during 2 h.

- The polymer G-DR266 solution preparation.

0,55 g of glycerol was loaded in flask with magnetic stirrer and was dissolved in 5,00 g of DMF. 58 g of the TDI-DR solution and 0.3 g of TDI during 3 h through dropping funnel was added in reaction flask with the glycerol solution at 333 K. After that, the reacting mixture was heated up to 363 K, and the vacuum evaporation of DMF was performed while the non-volatile components of polymer solution were $50\pm 5\%$ (wt).

(wt) TDI solution in DMF during 3 h through dropping funnel was added in reaction flask with the glycerol solution at 333 K. After that, the reacting mixture was heated up to 363 K during 5 h. The content of non-volatile components of polymer solution was 70,7 % (wt).

- DR1-TDI-DR1 synthesis and composite solution preparation.

9.8 g 1,4 % (wt) filtered solution of DR1 in DMF and 0.15 g TDI were loaded in a flask with magnetic stirrer, the mixture heated up to 363 K during 5 h. After that the vacuum evaporation of DMF was performed while the non-volatile components of solution were $50\pm 5\%$.

- 0.16570,7 % (wt) filtered solution of G-TDI was added in the flask and mixed during 1 h.

2.4 Fabrication of the polymer films

Fabrication of films from the polymer solutions were performed by company BYK Gardner GmbH applicator, the thickness of liquid layer was 30 μm . A glass plates were used as substrate. The films were dried in oven at temperature 423 K during 10 min and after that 8 h in dark place at room temperature. The thickness of dry films was $3.75\pm 0.25\ \mu\text{m}$, determined by the Veeco Dektak 150 surface profiler.

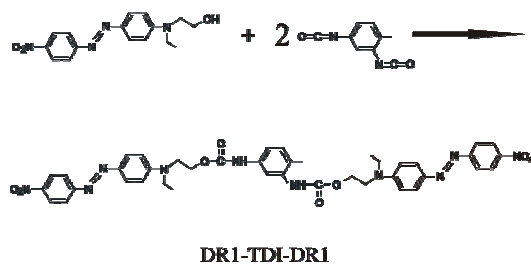


Fig. 4. Reaction of DR1-TDI-DR1 formation.

2.5 Photobirefringence measurements and holographic record

Photobirefringence measurements have been performed in both G-DR266 and G-DR342 polymers and composite films. Detailed procedure and scheme were described in [11]. As pump laser Verdi-6 with 532 nm wavelength was used. As probe laser was used 634 nm diode laser with intensity $I=0.4 \text{ mJ/cm}^2$. Refraction index changes Δn were calculated by formula:

$$\Delta n(t) = \frac{\lambda}{\pi d} \arcsin \left(\sqrt{\frac{I(t)}{I_0}} \right) \quad (1)$$

For holographic recording Verdi-6 laser with wavelength $\lambda_1=532\text{nm}$ was used. Experimental set-up was shown in [11]. Holographic recording was performed with orthogonally circularly polarized two beams – L-R/R-L (left-right/right-left). An angle between recording beam and normal was $15,4^\circ$, thus, grating with period $\Lambda=1.0 \mu\text{m}$ was recorded according to interference maxima condition.

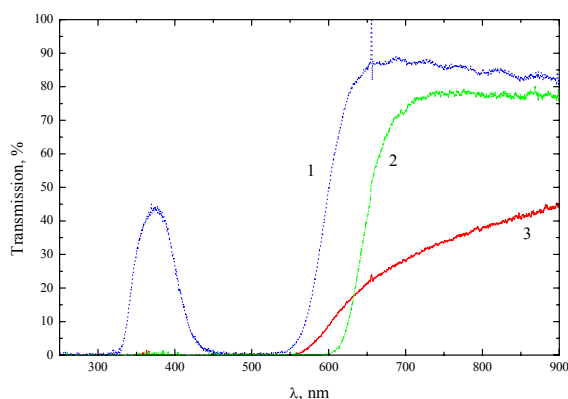


Fig. 5. Transmission spectra of the films: (1) G-DR266; (2) G-DR342; (3) Composite, containing DR1-TDI-DR1.

Diode laser with $\lambda=632.8 \text{ nm}$ and $\lambda=650 \text{ nm}$ was used as reading beam. ± 1 diffraction maximums were measured in transmission mode with photodiodes which were connected to PC. After recording, the surface relief of the samples was analyzed by Atomic Force Microscope (AFM).

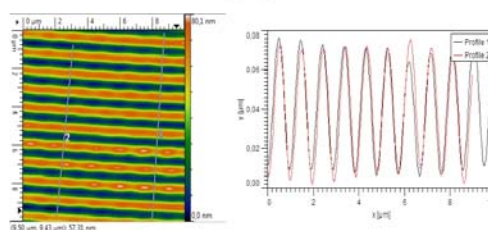
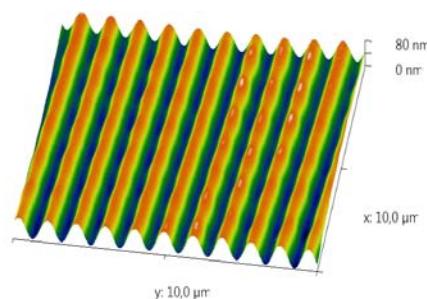
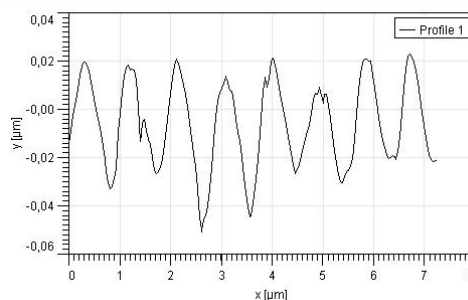
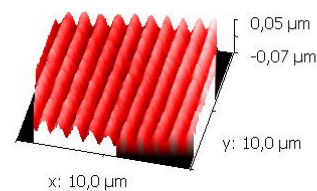


Fig. 6. Surface relief of polymers films after holographic record. Polymer G-DR342 (each recording beam $P=0.7 \text{ W/cm}^2$, left picture) and G-DR266 (each recording beam $P=0.5 \text{ W/cm}^2$, right picture).

3. Results and discussion

The additional complication for polymer synthesis on DR1 base gives the fact of low solubility the azocompound in anhydrous DMF. We could reach only 1.5 % (wt) in our experiments. So the first part of polymer synthesis is gone in low concentration environment. The macromolecules form very slowly, that is why solvent vacuum evaporation was used. Besides, DMF has high value of surface energy and the low-viscosity solutions on it base very bad wet the glass surface.

The reactions and prospective structures the synthesized polymers are showed in figure 3. Theoretically it is possible formation of dendroid structure of the macromolecules, but because of low activity of secondary $-\text{OH}$ group of glycerol we assumed that is improbable. As can see, the difference between the

polymers is amount of DR1 fragments in macromolecules, i.e. conditionally – quantity N=N bonds in polymers.

In the first phase of synthesis it is possible formation of collateral product as showed in figure 4. We tried to estimate how the compound DR1-TDI-DR1 can influence in optical properties of the polymer films. For this task we specially synthesised glycerol – TDI polymer and mixed it with DR1-TDI-DR1 as described in paragraph 2.3. The amount DR1 fragments amount in the composite is the same it amount in the polymer G-DR342 – 34.2 %.

Fig. 5 shows the transmission spectra of the polymers G-DR266 and G-DR342 films and the spectra of the composite G-TDI + DR1-TDI-DR1 film. It is visible that the presence of DR1-TDI-DR1 in polyurethane polymer increase optical scattering of the film. The reason of the scattering probable is thermodynamic incompatibility of composite components. As the spectra of the polymer G-DR266 and G-DR342 films have low value of scattering, we assumed that the amount of DR1-TDI-DR1 in the polymers is insignificant.

We measured the photobirefringence of polymer G-DR266 and G-DR342 films. The curves and more detailed description presented in [11] but here we show only dn values under 532 nm laser-light illumination: for polymer G-DR266 film dn is 0.083, but for G-DR342 dn=0.066. The dependence dn of the polymers on concentration of N=N bonds probable will be the theme of further studies. The dn value of composite film (DR1-TDI-DR1 in polyurethane polymer) is 0.035.

The holographic record by method of polarization holography [12] was performed in the polymer films by laser 532 nm. Fig. 6 shows AFM images of grating surface. The intensity of each recording beam were 0.5 W/cm² for G-DR266 polymer film and 0.7 W/cm² for G-DR342. The grating relief depth in the first case (G-DR266) was 40-50 nm, and in the second case (G-DR342) was approximately 70 nm. More detailed data about diffraction efficiency presented in [11].

4. Conclusions

The synthesised polymers G-DR266 and G-DR342 can be used as media for holographic record. The photobirefringence of the polymers give possibility to record relief diffraction grating by polarization holographic method. The depth of the gratings relief reached 70 nm in the G-DR266 and 40-50 nm in the G-DR342 film.

Presented in the work the two-stage synthesis method can be used for producing the same polymers with different amount of DR1 fragment in the macromolecules below 35 %. The possibility to obtain the polymers with more high concentration of DR1 fragment in molecules can be the next studies theme.

Theoretically, another polyol or oligomers with free –OH groups can be used except of glycerin. However, in this case the reactivity of the –OH groups must be note for gel formation avoiding.

References

- [1] A. S. Matharu, S. Jeeva, P. S. Ramanujam. *Chem. Soc. Rev.* **36**, 1868 (2007).
- [2] L. Nedelchev, L. Nikolova, A. Matharu, P. S. Ramanujam. *Appl. Phys. B* **75**, 671 (2002).
- [3] L. Nedelchev, A. S. Matharu, S. Hvilsted, P. S. Ramanujam. *Appl. Opt.* **42**, 5918 (2003).
- [4] R. H. Berg, S. Hvilsted, P. S. Ramanujam. *Nature* **383**, 505 (1996).
- [5] A. Archut and etc., *Chem. Eur. J.* **4**, 699 (1998).
- [6] L. Dalton, and etc., *Ind. Eng. Chem. Res.* **38**, 81999.
- [7] J. Saunders, K. Frish. *Polyurethanes. Chemistry and Technology. Part 1.* Imprint, New York, NY: Interscience, 1964.
- [8] Yiliang Wu, Almeria Natansohn, and Paul Rochon, *Macromolecules* **37**, 6090 (2004).
- [9] Q. Li and etc., *J. Phys. Chem. B* **111**, 508 (2007).
- [10] Z. Li and etc., *J. Phys. Chem. B* **113**, 14943 (2009).
- [11] J. Aleksejeva, A. Gerbreders, M. Reinfelds, J. Teteris, *J. Optoelectron. Adv. Mater.* Vol. 13(6), *InPrint*.
- [12] L. Nikolava, P. S. Ramanujam. *Polarization holography.* Cambridge University Press, 239, 2009.

*Corresponding author: andrejmah@gmail.com

Light intensity and its polarization relation to the photo-induced mass movement in thin layers of chalcogenide vitreous semiconductors

U. GERTNERS*, J. TETERIS

Institute of Solid State Physics, University of Latvia, 8 Kengaraga Street, LV1063 Riga, Latvia

This work is devoted to the topical issue— photo-induced formation of surface relief gratings (SRG) in thin layers of chalcogenide vitreous semiconductors (ChVS). This direct surface-relief formation during light illumination phenomenon is being discussed with special attention focused on the polarization and intensity of the corresponding light. Holographic recording setup and illumination through adjustable optical slit are used and theoretical model for light interference pattern has been built. We have showed that the efficiency of the surface relief formation strongly depends not only on the writing beam properties but also on the assisting beam. Also SRG formation and mass transfer processes which are based on the photo-induced plasticity on As_2S_3 are discussed in this paper.

(Received June 2, 2011; accepted November 23, 2011)

Keywords: Amorphous chalcogenide films, Holographic recording, Electric field, Surface relief, Polarization

1. Introduction

Photo-lithography is one of the most common methods from all types of lithography for surface-relief structure patterning. Light induced changes of the chemical properties in a resist material enable a selective removal of regions on a thin film or on the bulk of the illuminated material by developing and etching (*e.g.* [1]). Comparatively recently a number of materials have been studied for direct surface-relief formation during the exposure process [2-5]. The physical interpretation of this incompletely understood phenomenon of light and matter interaction is interesting for many researchers in the field of soft materials like ChVS [6-9] and azo-polymers [7, 10-12]. There is a wide range of techniques used for an interpretation of the anisotropic surface-relief modulation process: some of them based on the intensity of light [*e.g.* 12], others on the direction of the electric field oscillations [*e.g.* 6]. Since the intensity of light is proportional to the squared module of the electric field, the light field experiments follow from the electric field induced anisotropic surface-relief modulation experiments but not vice versa. Thus it is necessary to discuss this anisotropic surface-relief modulation process from the point of view of the electric field.

Focused Gaussian beam experiments [*e.g.* 10] where the anisotropic mass transfer process depends on the direction of polarization are doubtful – there is a continuous mass transfer during illumination thus the adjusted focus moves into or out of the matter and the results (as shown in the [13]) can be interpreted incorrectly. The same applies to experiments where the focus is adjusted incorrectly from the beginning (distance from the surface comparable to wavelength of the writing

beam). Therefore, it is necessary to use other experimental methods for a more precise investigation.

In the last few years researchers have been studying different kinds of anisotropic light induced deformations in the light sensitive materials. Under a uniformly distributed light illumination anisotropic *T* or *X* shaped scratch deformations show that only particularly oriented scratches tend to change their shape. These deformations change differently in different materials: chalcogenides show deformations in the direction parallel to the electric field vector [14] and azo-polymers – orthogonal to the electric field vector [15]. The same occurs in the experiments (shown by Tanaka [9] in chalcogenides) where uniformly illuminated free-from-substrate flakes tend to curl upwards only in the direction parallel to the electric field vector. This phenomenon can be explained by the anisotropic fluidity in the particular direction which is induced by the polarized light. The release of the tension forces in that direction leads to the flake curling in the perpendicular direction.

A new kind of investigation and interpretation of anisotropic light induced, polarization dependent deformations in ChVS are discussed in this paper. To fully understand this mass transfer process a theoretical model of the light interference is obtained. For these experiments a holographic recording setup and its modified version (one beam illumination through optical slit) are used.

2. Experimental

Amorphous As_2S_3 films were obtained by thermal evaporation in vacuum of $\sim 5 \cdot 10^{-6}$ Torr onto glass substrates. The thickness of the film was controlled in a

real time by a 650nm diode laser and it was from 1 to 7 μ m.

One of the most common methods to investigate the surface relief grating (SRG) formation is direct holographic recording technique, thus high light gradient can be obtained maintaining constant interference pattern in the z-direction.

Recently ([2] in 2010) a huge SRG formation dependency from chosen light polarization and other factors was shown. For example, outstanding SRG occurs only in particular combinations of the writing beams properties: unusual polarization combinations (*i.e.*, orthogonal: -45 and 45 degree, left/right handed circular: LC and RC) gives the best impact on the SRG formation efficiency, *i.e.*, on a ratio of the produced surface-relief versus the time. Therefore it is necessary to discuss polarization dependent interference of the two coherent beams theoretically and compare its impact on the SRG formation. That will be discussed in this paper.

Other group of experiments that will be discussed in this paper contains one unfocused beam writing system (see scheme in Fig.1.). This recording system allows producing of each individual grating from the gratings made by direct holographic recording system. One beam exposure through the slit as close as possible to the surface of a sample reduces the diffraction scattering effect and enables to investigate SRG formations dependency on light intensity and its polarization to the individually separated grating. To better understand the involved physics and increase the recording efficiency (like in [2]) extra illumination, *i.e.*, incoherent assisting beam was also used in this recording system. For the writing beam a 532nm Nd:YAG Coherent Verdi 8W laser and for the assisting beam other incoherent 532nm diode laser were used.

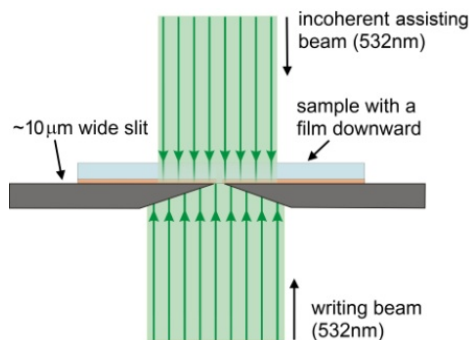


Fig.1. Holographic recording simulator, *i.e.*, one unfocused beam illumination through adjustable optical slit enabling to produce individual grating

3. Results and discussion

According to [2] it is possible to arrange various polarization combinations by impact on direct SRG formation quality quantitatively through reflection diffraction efficiency (η_R) which means: the worst for s:p (writing beams are with s and p polarization), poor for p:p, s:s, 45°:45°, LC:LC and the best for 45°:-45°, LC:RC

setup. An interesting thing (as to [2]) is that there were no polarization combinations which could give an impact on the SRG formation as 'good' ones, in other words, no middle quality recording was possible. For future investigations this polarization-driven relief modulation phenomenon should be discussed theoretically.

The scheme for those theoretical experiments is chosen the same as it was for the direct holographic SRG recording experiments discussed above. Therefore, the Bragg equation defines the angle 2α between the corresponding k-vectors for 1 μ m interference period Λ by using a bandgap 532nm light:

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2 \sin \alpha} \quad (1)$$

By taking solution for a scalar wave equation in a homogeneous medium:

$$w = A \cdot \cos(k \cdot s - \omega \cdot t) \quad (2)$$

where A —amplitude; k —wave number; s —one dimensional coordinate; ω —angular frequency; t —time, it is possible to define a vertical polarized wave that propagates along y-axes:

$$\vec{w} = \{0, s, w\} \quad (3)$$

or horizontal polarized wave that propagates along y-axes:

$$\vec{w} = \{w, s, 0\} \quad (4)$$

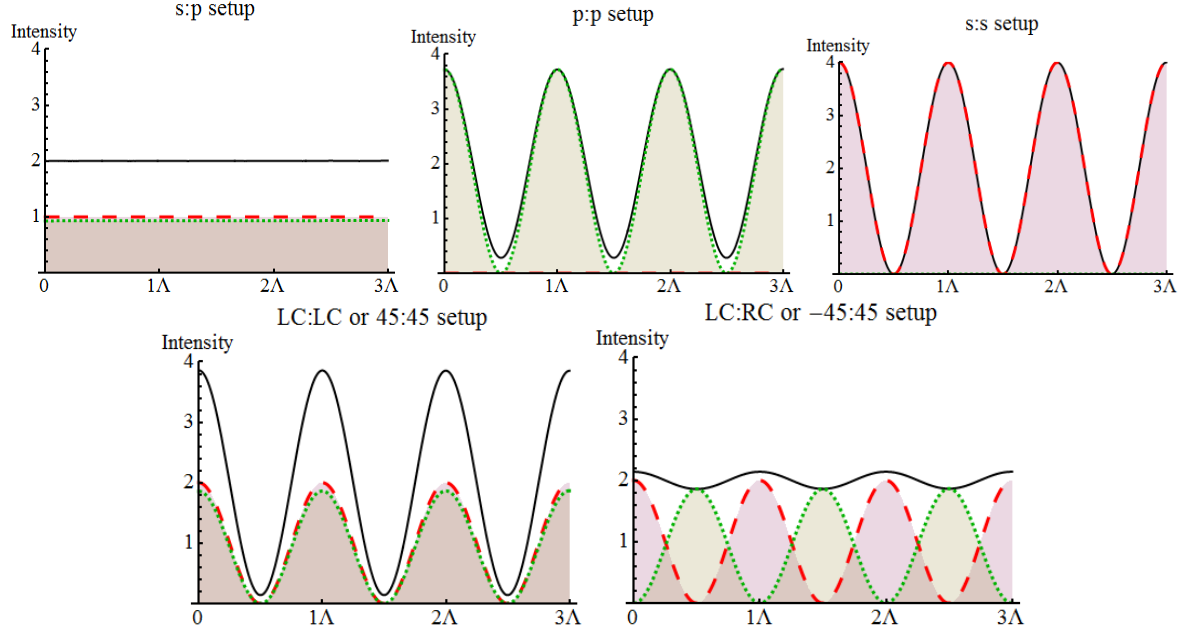
Together with the coordinate transformation matrix and a data visualization program (*e.g.* Wolfram Mathematica) it is possible to build a theoretical model of the polarization dependent interference.

Visualized polarization dependent light intensity distribution of two coherent beams interference is shown in Fig.2a. We can see that the strong light gradient which is present in most of the polarization combinations (*i.e.*, s:s, p:p, 45°:45° and LC:LC setup) is not the main factor in obtaining SRG. So, why is the recording efficiency and therefore the direct recording possibilities in s:p case the worst although in a similar case where the intensity is also uniformly distributed (45°:-45°, LC:RC in Fig. 2 (a)) the recording efficiency is excellent? The answer is in the polarization distribution. Since intensity of a light is proportional to a squared module of the electric field, instead of uniformly distributed intensity the direction of the electric field vector may vary. It is shown in Fig.2a. where two of the intensity distribution components are highlighted: dotted and dashed curves with corresponding masks under them correspond to the intensity from the polarization directions parallel (p-direction) and perpendicular (s-direction) to the plane of incidence respectively. Note that there is also the third component of intensity distribution, which is with radial direction (orthogonal to the s and p direction) but it is comparatively small and not pointed out. Besides theoretical polarization distribution of the two coherent beams interference versus polarization combinations of the interfering beams are shown in Fig. 2b. There we can see not only absolute values of the intensities of different phase shifts $\Delta\varphi$ ($-\pi$; $-\pi/2$; 0; $\pi/2$ and π) but also corresponding polarization

distribution for all combinations of the interfered light polarizations.

Now if we compare the previously arranged polarization combinations by impact on direct SRG formation quality with theoretically calculated polarization components of the intensity distribution in Fig.2a., it is

clearly visible that for the best direct recording possibilities ($45^\circ:-45^\circ$ or LC:RC setup) instead of high intensity gradient electric field gradients– s and p components with are a half-cycle out of phase is needed.



(a)

Polarization of the beams			Sum of the electric fields in x-y plane				
first (l=1)	second (l=2)	$\Delta\varphi$: x:	$-\pi$	$-\pi/2$	0	$+\pi/2$	$+\pi$
s	s	$-\Lambda/2$	n/a	\uparrow	\updownarrow	\updownarrow	n/a
		I:	0.00	2.00	4.00	2.00	0.00
p	p		•	\leftrightarrow	\leftrightarrow	\leftrightarrow	•
		I:	0.28	2.00	3.72	2.00	0.28
s	p		\swarrow	\circ	\swarrow	\circ	\swarrow
		I:	2.00	2.00	2.00	2.00	2.00
+45	-45		\leftrightarrow	\circ	\updownarrow	\circ	\leftrightarrow
		I:	1.86	2.00	2.14	2.00	1.86
-45	-45		•	\swarrow	\swarrow	\swarrow	•
		I:	0.14	2.00	3.84	2.00	0.14
RC	RC		•	\circ	\circ	\circ	•
		I:	0.14	2.00	3.86	2.00	0.14
RC	LC		\leftrightarrow	\swarrow	\updownarrow	\swarrow	\leftrightarrow
		I:	1.86	2.00	2.14	2.00	1.86

(b)

Fig.2. (a) Theoretical light intensity distributions (solid curves) for two coherent beams interference (a:b symbols denote a polarization combination for the writing beams), dashed and dotted curves corresponds to the s and p polarization components of the intensity respectively; intensity of the interfered light $I_1=I_2=1$ unit, Λ - period, angle between corresponding k-vectors $\alpha=30.86^\circ$ (i.e., $\Lambda=1\mu\text{m}$, $\lambda=532\text{nm}$); (b) Theoretical polarization distribution at the two coherent beams interference versus polarization combinations of the interfering beams; period $\Lambda=1\mu\text{m}$ and intensity of the interfered light $I_1=I_2=1$ unit, angle between corresponding k-vectors $\alpha=30.86^\circ$

In case of just one s or p component electric field gradient (s:s or p:p setup) or when both the components are in phase ($45^\circ:45^\circ$ or LC:LC setup) or without gradient (s:p setup) it is possible to obtain rather poor SRG

structures. These facts lead to some conclusions: s and p polarized light gradients with a half-cycle out of phase help each other to form a SRG, i.e., on both of the periodic gradients the matter interacts differently. That is the reason

why intensity distributions where both the components are in phase (LC:LC or 45°:45° setup) or without one of the components (with periodic unexposed areas like it is for s:s or p:p setup) do not give outstanding results for the direct SRG recording.

Experiments show that for some polarization combinations of the writing beams it is possible to dramatically increase the recording efficiency by optional illumination during direct SRG formation process [2]. Extra incoherent light does not interfere with the light from the writing beams and therefore it just raises the total light intensity distribution. The idea of this process is as follows: by using extra illumination to make intensity distribution as it is for 45°:45° or LC:RC setup with a half-cycle out of phase for s and p intensity components, therefore to make recording efficiency as good as it is for the above mentioned setups. And as expected, extra illumination with polarization orthogonal to the polarization of the interfered light gives the best SRG formation enhancing effects. For example, p:p polarization setup previously arranged as 'poor' one combination for formation of the SRG, now with extra s polarized light illumination is as good as it is for 45°:45° or LC:RC polarization setup with or without extra illumination. In fact, extra illumination for 45°:45° or LC:RC setup just decreases SRG formation efficiency [2]. This fact again leads to different influence on the mass movement process by s and p polarized light gradients respectively.

Due to the mass transfer, direct SRG formation experiments are possible in soft materials where light can transfer the mass to some particular places. Since the period of the holographically produced SRG is always sinusoid-like, how can it be that the geometry of the produced SRG by using p:p or s:s recording setup is the same as it is for the polarization combinations which give impact on the sample as it is for p:p and s:s setup recording simultaneously with a half-cycle out of phase distribution (as in Fig.2b. for 45°:45 or LC:RC setup)? Thus there are just two mass transfer versions possible: the mass moves parallel to the intensity gradient and in a different direction according to polarization of the intensity gradient. Therefore the best SRG were obtained with 45°:45° or LC:RC holographic setup— s and p intensity components (Fig.2a.) which are a half-cycle out of the phase, 'help' each other to form a ditch and a hill at the same time. To investigate this polarization dependent influence on the mass transfer process a new kind of recording system is needed where we can link the coordinate system of the substrate with one of the AFM measurements. Due to the periodicity all the obtained surface-relief structures on an AFM will look the same no matter what kind of mass transfer processes were participating. By modifying the holographic recording setup of the two beams for more precise experiments a recording setup for individual SRG period was made

(Fig.1.). Using one beam illumination through the optical slit enables to determine the impact of individual electric field gradient on the mass transfer process. Therefore by illuminating a sample through ~10µm wide slit by light with polarization parallel (s-direction) or perpendicular (p-direction) to the slit will enable to investigate polarization dependency of light gradient impact on the matter. Unfortunately these experiments did not show any considerable mass transfer thus an incoherent assisting beam with the same wavelength (532nm) was used.

The results (Fig.3.) confirm that for writing beams with different polarization the transfer of the mass process is different— for s polarization (s/p setup: polarization of the writing beam is along the slit) the mass has been transported away from the illuminated area thus forming a ditch, but for p polarization (p/s setup) vice versa— the mass has been transported into the illuminated area thus forming a hill. Note that orthogonally polarized assisting beams were used for both these cases thus making the recording environment more like it is for LC:LC or 45°:45° holographic recording setup (symbols a/b denote polarization for light that is going through the slit and polarization for extra illumination respectively). For the assisting beam with polarization in the same direction as for the writing beam (p/p setup in Fig.3.) the obtained gratings also formed a hill (like for p/s setup) but with more than 20 times weaker amplitude than the corresponding p/s setup. The amplitude of the gratings obtained by illumination through the slit is strongly linear with the time of the exposure (Fig.3.) but as follows from the slope coefficients formation of hills instead of ditches is slightly effective.

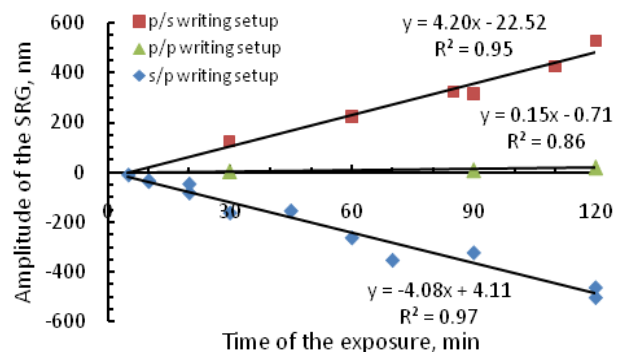


Fig. 3. Amplitude of the SRG versus time of the exposure for different polarization combinations of the writing and assisting beams (a/b symbols denote polarization for the writing and the assisting beams respectively) for optical slit experiments, intensity of the writing beam equals to 4.24W/cm² and for the assisting beam 0.37W/cm², recording performed on a 3.3µm thick As₂S₃ film.

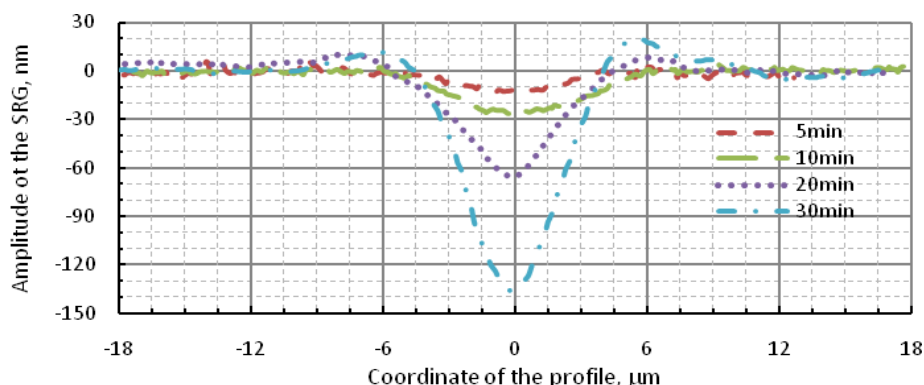


Fig. 4. Amplitude of the SRG obtained by AFM versus time of the exposure (5, 10, 20 and 30 minutes) for $4.24\text{W}/\text{cm}^2$ writing and $0.37\text{W}/\text{cm}^2$ assisting beam, recording performed on a $3.3\mu\text{m}$ thick As_2S_3 film, the electric field vectors of the writing and the assisting beams are parallel and perpendicular to the optical slit, i.e., s/p setup respectively

Comparing the profiles of the gratings obtained by the s/p setup for different exposure time (5, 10, 20 and 30 minutes in Fig.4.) it is clearly seen that the mass transfer in this case starts from the middle of the slit. For illumination more than 20 minutes (20, 30, etc) due to active mass transfer small hills were formed along the ditch thus forming a M-shaped profile. This fact confirms the theory that a long impact of the polarized light gradient on a photo-resist acts as a mass transfer in a specific direction.

4. Conclusions

The main conclusion that can be drawn from the results is that the mass transfer process for ChVS depends on the polarization of the light. It depends on the relation between the polarization and the electric field gradient of the writing beam: if the directions from both of them match, the mass will be transported into the electric field gradient those forming a hill, otherwise (both the directions will be orthogonal) forming a ditch. By using incoherent assisting beam (best results for cross-polarized assisting beam) it is possible to rise the efficiency of the mass transfer during the writing process.

A direct SRG recording technique is a comparatively new solution for lithography and as shown in this article, provides new experimental techniques for better understanding of the interaction between light and matter. The obtained gratings are very stable at room temperature, so this method can replace some of the chemical etching techniques and find practical application in the applied physics.

Acknowledgements

This work has been supported by the European Social Fund within the project «Support for Doctoral Studies at University of Latvia».

References

- [1] C. Vass, K. Osvay, *Opt. Express* **14**(18), 8354 (2006).
- [2] U. Gertners, J. Teteris *Opt. Mat.* **32**, 807 (2010).
- [3] Z. Guo, S. Qu, L. Ran, S. Lui, *Appl. Surf. Sci.* **253**, 8581 (2007).
- [4] C. Florea, J. S. Sanghera, L. B. Shaw, V. Q. Nguyen, I. D. Aggarwal, *Mat. Lett.* **61**, 1271 (2007).
- [5] V. Palyok, I. A. Szabo, D. L. Beke, A. Kikineshi, *Appl. Phys A* **74**, 683 (2002).
- [6] A. Saliminia, T. V. Galstian, A. Villeneuve, *Phys. Rev. Lett.* **85**(19), 4112 (2000).
- [7] V. M. Kryshenik, M. L. Trunov, V. P. Ivanitsky, *J. Optoelectron. Adv. Mater.* **9**(7), 1949 (2007).
- [8] K. E. Asatryan, T. Galstian, R. Vallee, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 087401 (2005).
- [9] K. Tanaka, N. Terakado, A. Saitoh, *J. Optoelectron. Adv. Mater.* **10**(1), 124 (2008).
- [10] S. Bian, L. Li, J. Kumar, D. Y. Kim, J. Williams, S. K. Tripathy, *Appl. Phys. Lett.* **73**(13), 1817 (1998).
- [11] B. Bellini, J. Ackermann, H. Klein, Ch. Grave, Ph. Dumas, V. Safarov, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, 1817 (2006).
- [12] C. Cojocariu, P. Rochon, *Pure Appl. Chem.* **76**(7–8), 1479 (2004).
- [13] H. Ishitobi, M. Tanabe, Z. Sekkat, S. Kawata, *Opt. Express* **15**(2), 652 (2007).
- [14] M. L. Trunov, V. S. Bilanich, S. N. Dub, *J. Non-Cryst. Solids* **353**, 1904 (2007).
- [15] P. Karageorgiev, D. Neher, B. Schulz, B. Stiller, U. Pietsch, M. Giersig, L. Brehmer, *Nat. Mater.* **4**, 699 (2005).

*Corresponding author: gertners@gmail.com

Photo-induced Mass Transfer in Chalcogenides

U Gertners¹, J Teteris

Institute of Solid State Physics, 8 Kengaraga Str., Riga, LV-1063, Latvia

E-mail: gertners@gmail.com

Abstract. This work is devoted to the topical issue – photo-induced formation of surface relief gratings (SRG) in thin layers of chalcogenide vitreous semiconductors (ChVS) without following complicated chemical processing. Holographic recording technique is one of the advanced methods for direct surface relief patterning in light sensitive materials. Because of the high light and electric field gradient it is possible to obtain surface structures directly in time with illumination. This incompletely explored process which is based on the photo-induced plasticity has been discussed in this paper from the side of a light intensity and its electric field on As_2S_3 and other ChVS.

1. Introduction

Photolithography is one of the most common methods from all types of lithography for surface-relief structure patterning. Light induced changes of the chemical properties in a resist material enable a selective removal of regions on a thin film or on the bulk of the illuminated material by developing and etching [e.g.1]. Comparatively recently a number of materials have been studied for direct surface-relief formation during the exposure process [2-7]. The physical interpretation of this incompletely understood phenomenon of light and matter interaction is interesting for many researchers in the field of soft materials like ChVS [8-11] and azo-polymers [9, 12-15]. There is a wide range of techniques used for an interpretation of the anisotropic surface-relief modulation process: some of them based on the intensity of light [e.g. 14], others on the direction of the electric field oscillations [e.g. 8]. Since the intensity of light is proportional to the squared module of the electric field (*i.e.* $I \propto |\vec{E}|^2$), the information is lost. Thus it is necessary to discuss this anisotropic surface-relief modulation process from the side of the electric field.

Focused Gaussian beam experiments [e.g. 12] where the anisotropic mass transfer process depends on the direction of polarization are doubtful – there is a continuous mass movement during illumination –

¹ Corresponding author. Tel.: +371 2 875 1557
E-mail address: gertners@gmail.com (Ugis Gertners)

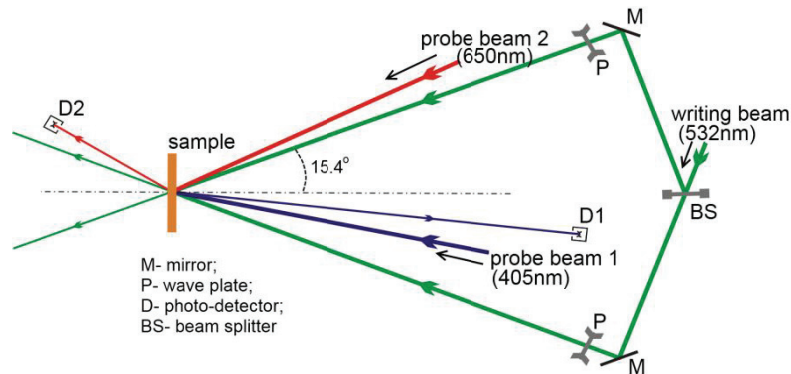


Figure 1. Experimental setup of photo-induced surface-relief grating (SRG) formation; recording was performed by Nd:YAG *Verdi6* 532nm laser

the adjusted focus moves into or out of the matter and thus the results can be interpreted incorrectly [16]. The same applies for experiments where the focus is adjusted incorrectly from the beginning (distance from the surface comparable to λ). Therefore, it is necessary to use other experimental methods for a more precise investigation.

In the last few years researchers have been studying different kinds of anisotropic light induced deformations in the light sensitive materials. Under a uniformly distributed light illumination anisotropic *T* or *X* shaped scratch deformations show that only particular scratches tend to change their shape. These deformations change differently in different materials: chalcogenides show deformations in the direction parallel to the electric field vector [17] and azo-polymers- orthogonal to the electric field vector [18]. The same occurs in the experiments (shown by Tanaka [11] in chalcogenides) where uniformly illuminated free-from-substrate flakes tend to curl upwards only in the direction parallel to the electric field vector. This phenomenon can be explained by the anisotropic fluidity in the particular direction which is induced by the polarized light. The release of the tension forces at that way leads to the flake to curl in the perpendicular direction.

In this paper a new kind of investigation and interpretation of anisotropic light induced, polarization dependent deformations in ChVS are shown. For these experiments a holographic recording setup is used. Holography lies between focused and uniformly distributed light illumination – periodic light distribution with high light gradient can be obtained maintaining constant interference pattern in the *z*-direction. Therefore this opens a new field of research about the anisotropic light induced mass transfer in soft materials.

2. Experimental

Amorphous As_2S_3 films were obtained by thermal evaporation in vacuum of $\sim 5 \cdot 10^{-6}$ Torr onto the glass substrates. The thickness of the film was controlled in a real time by a diode laser and it was from 0.5 to 10 μm .

Surface-relief grating (SRG) formation experiments were performed using a holographic recording system (see scheme in figure 1.) where Nd:YAG *Verdi6* 532nm wavelength laser beam was used. For a better understanding of the involved physics and an increased recording efficiency (like in [2]) an extra illumination was used for this recording setup.

Diffraction efficiency (DE or η) was controlled in real time by measuring 1st order intensity of the reflected and transmitted probe beams (probe beam 1 and 2 in figure 1.). Absorption and refractive

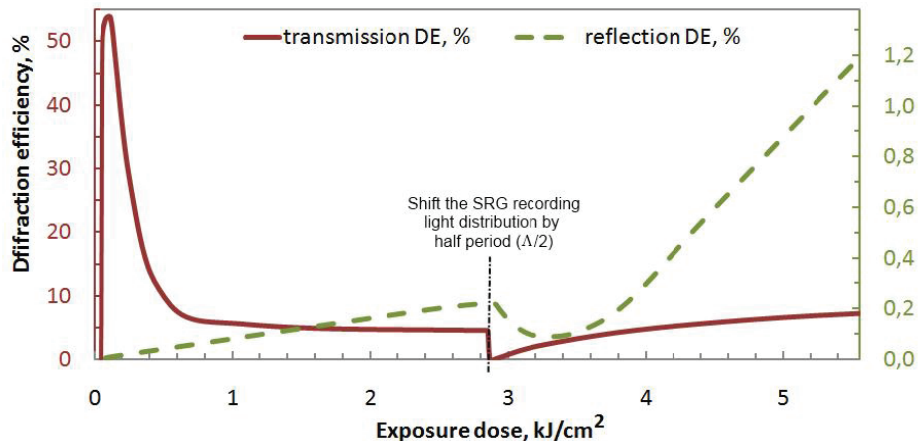


Figure 2. Diffraction efficiency (η_T values on the left side ordinate axis, η_R - on the right side) changes during SRG recording process by two p-polarized beams with $1\mu\text{m}$ period of interference pattern, recording kinetic after shift of light distribution by half period (after dashed vertical line)

index changes in the volume were controlled by transmission DE η_T from the probe beam 2 and changes in the surface-relief modulation were controlled by reflection DE η_R from the probe beam 1 respectively. The volume gratings also affect reflection DE, however their contribution is insignificant [19] and will not be discussed here.

The phase shift experiments were performed by rotating the half-wave plate by 90 degrees for one of the recording beams, therefore the polarization for that beam remained the same but the phase shifted by $\pi/2$ and thus the interference pattern shifted by a half period – $\Lambda/2$.

The diffraction efficiency provides only an indirect information about the produced SRG. Direct measurements of the surface-relief profile were obtained by atomic force microscope (AFM).

3. Results and discussion

In the typical SRG recording process (shown in figure 2.) diffraction efficiency changes with time (up to dashed vertical line) for amorphous chalcogenide semiconductor films. As the absorption and refractive index photo-induced changes in resist material are comparatively fast, transmission DE η_T (solid curve) reaches maximum (~55% DE) very quickly. Due to overexposure the contrast of the volume grating decreases – η_T starts to decrease. At that time the reflection DE η_R (dashed curve) starts to increase linearly, which is an evidence of the surface-relief formation (stage 1 of the SRG erasing experiment at figure 3.). This recording process is reversible. By shifting interference pattern by half its period (in figure 2., after dashed vertical line), reflection DE starts to decrease until it reaches the minimum – which corresponds to SRG erasing (stage 2 of the SRG erasing experiment). Afterwards DE starts to increase once more, at this point a new SRG formation restarts (stage 3 of the SRG erasing experiment). After a long exposure (in this case more than $1\text{kJ}/\text{cm}^2$) SRG makes major contribution to the transmission DE, thus if there will be SRG – η_T will always be greater than zero.

To make this erasing process more obvious AFM measurements of the SRG at the different erasing experiment stages were obtained (figure 3.). As expected, the SRG obtained before shift of the interference pattern and after shift of the interference pattern at the new SRG formation stage are with more than twice bigger amplitude than it is at the erasing stage.

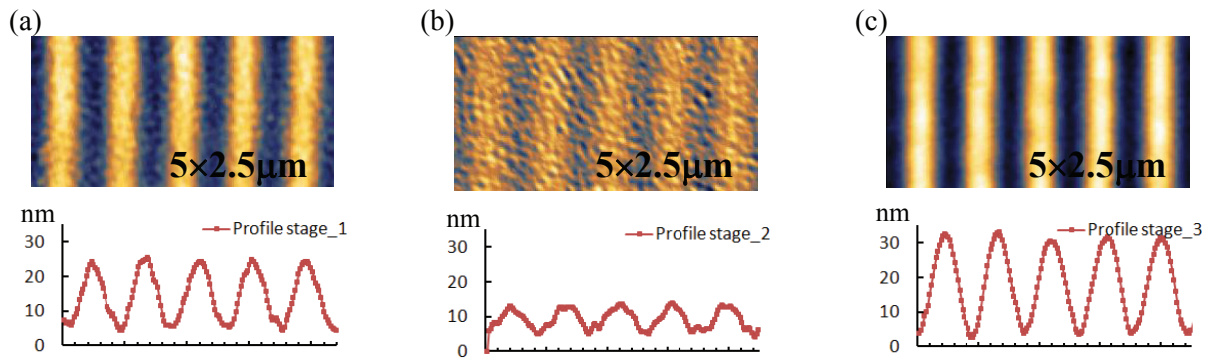


Figure 3. Atomic force microscope measurements of the SRG at different erasing experiment stages: (a) stage 1: before shift of the interference pattern, (b) stage 2: after shift of the interference pattern at the reflection diffraction efficiency minimum and (c) stage 3: after shift of the interference pattern at the new SRG formation stage

This process is repeatable many times and indicates that the produced SRG is product of the local light induced mass transfer. Similar results for ChVS erasing of a SRG have been obtained by a uniformly distributed light illumination or thermal erasing method [20] but this new method is more trivial to realize and control in the laboratory. This and other similar experiments will open new frontiers for interaction of light and matter process investigation what is based on light induced mass transfer and not on volume or density changes.

Other kinds of experiments are based on direct SRG recoding process enhancing by a third extra incoherent laser light illumination. This one does not interfere with the light from writing beams, therefore just lift up total light intensity distribution and helps to form SRG.

Experiments show that there is possible to dramatically increase recording efficiency and for some cases enhancement of the relief formation (changes of the η_R slope coefficient) are more than 150 times [2]. In these experiments for extra illumination were used wavelengths (448 and 473nm) other than recording ones. For more precisely experiments in this paper were discussed results for extra illumination light at the same wavelength as it is for recording light.

These experiments are shown in figure 4.: direct SRG formation enhancement during holographic recording versus extra illumination, its intensity and polarization. As in [2], for experiments were used 532nm p-polarized laser light but for extra illumination- a incoherent 532nm laser. Interference period and intensity for each beam were held the same, *i.e.* $1\mu\text{m}$ and $0.19\text{W}/\text{cm}^2$. As expected, cross polarized extra illumination (figure 4., dotted curve) enhances direct SRG formation- in the best case even 40 times ($\sim 1\text{W}/\text{cm}^2$ for extra illumination). That is far away from the best cases obtained earlier for enhancement of the direct SRG formation (around 150 times [2]). This can be explained by the fact that 532nm is closer to the absorption edge of the ChVS thus 532nm light gives weaker impact on SRG formation. Extra illumination by the same polarization (figure 4., dashed curve) does not show any enhancing effects of the SRG formation. It is a new way that proves anisotropic impact on a sample by polarized light illumination. Similar results have been obtained by much smaller and constant ($0.11\text{W}/\text{cm}^2$) extra illumination but varying intensity of p-polarized recording beams (figure 6.). There also enhancement maximum was observed.

Transmission DE results (probe beam 2 from figure 1.) for these experiments are shown in figure 5. where maximal obtained DE values are pointed out. In the case of p and p polarization recording with

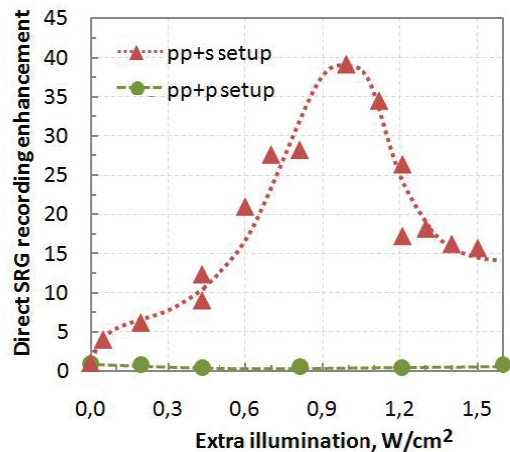


Figure 4. Direct SRG formation enhancement, *i.e.*, changes of the η_R slope coefficient versus intensity of the extra illumination by 532nm laser light (dots: experimental data); recording by two ($I_1=I_2=0.19\text{W}/\text{cm}^2$) 532nm p-polarized beam interference on As_2S_3 sample

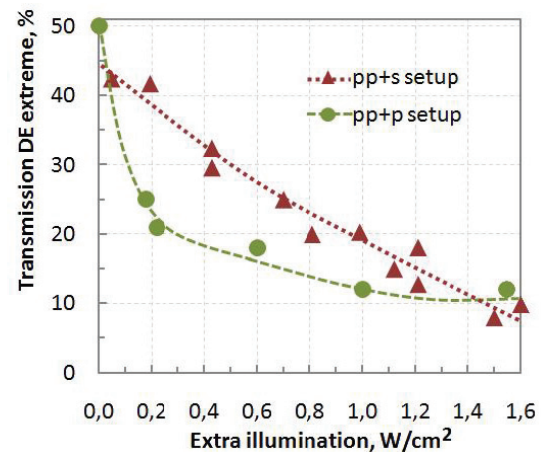


Figure 5. Maximum value of transmission DE η_T versus intensity of the extra illumination by 532nm laser light (dots: experimental data); recording by two ($I_1=I_2=0.19\text{W}/\text{cm}^2$) 532nm p-polarized beam interference on As_2S_3 sample

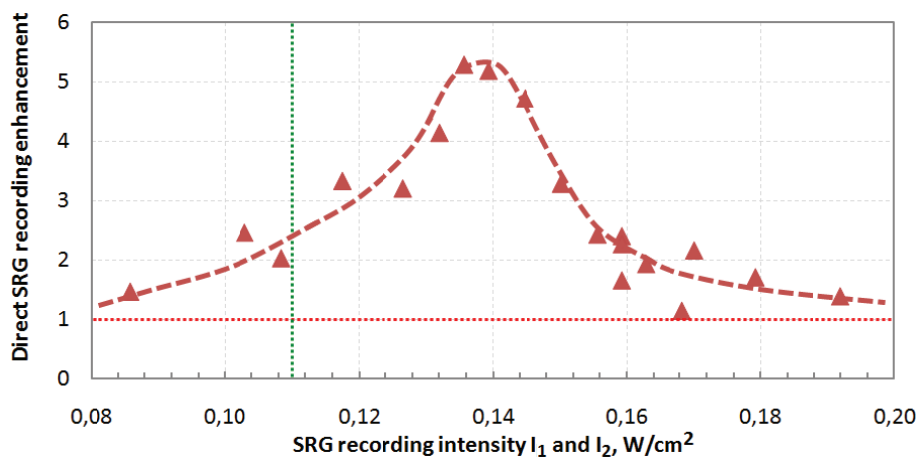


Figure 6. Direct SRG formation enhancement, *i.e.*, changes of the η_R slope coefficient versus its recording p-polarized light intensity I_1 and I_2 (dots: experimental data) on As_2S_3 sample; extra illuminated by $0.11\text{W}/\text{cm}^2$ 532nm s-polarized beam (vertical dotted line)

s-polarized extra illumination (figure 5., pp+s curve), these values tend to linearly decrease with extra illumination intensity. For the pp+p case these values are decreasing non-linearly. This is the other way how to look at anisotropic light and matter interaction. As expected, this decreasing came from the fact that extra illumination disturbs absorption and refractive index contrast thus can not form as high quality volume gratings as without extra illumination.

4. Conclusion

It is possible to raise the efficiency of the direct SRG recording with extra illumination by incoherent laser light. This process is anisotropic and occurs only by particular combinations of used light polarization. Direct SRG recording technique is comparatively new solution for lithography and as shown in this article, provides new experimental techniques to better understand the involved physics of light and matter interaction. Produced SRG is very stable at a room temperature, so this method can replace some of the chemical etching techniques and find practical application in the physics.

Acknowledgements

This work has been supported by the European Social Fund within the project «Support for Doctoral Studies at University of Latvia».

5. References

- [1] Vass C, Osvay K 2006 *Opt. Express* **14(18)** 8354
- [2] Gertners U, Teteris J 2010 *Opt. Mat.* **32** 807–810
- [3] Guo Z, Qu S, Ran L, Lui S 2007 *Appl. Surf. Sci.* **253** 8581–83
- [4] Florea C, Sanghera J S, Shaw L B, Nguyen V Q, Aggarwal I D 2007 *Mat. Lett.* **61** 1271–73
- [5] De Vicante F S, Siu Li M, Messaddeq 2004 *J. Non-Cryst. Solids* **348** 245–249
- [6] Palyok V, Szabo I A, Beke D L, Kikineshi A 2002 *Appl. Phys. A* **74** 683–687
- [7] Palyok V, Mishak A, Szabo I, Beke D L, Kikineshi A 1999 *Appl. Phys. A* **68** 489–492
- [8] Saliminia A, Galstian T V, Villeneuve A 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85(19)** 4112–15
- [9] Kryshenik V M, Trunov M L, Ivanitsky V P 2007 *J. of Optoelectron. Adv. Mater.* **9(7)** 1949–64
- [10] Asatryan K E, Galstian T, Vallee R 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 087401
- [11] Tanaka K, Terakado N, Saitoh A 2008 *J. of Optoelectron. Adv. Mater.* 10(1) 124–130
- [12] Bian S, Li L, Kumar J, Kim D Y, Williams J, Tripathy S K 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73(13)** 1817–19
- [13] Bellini B, Ackermann J, Klein H, Grave Ch, Dumas Ph, Safarov V 2006 *J. Phys. Condens. Matter* **18** 1817-35
- [14] Cojocariu C, Rochon P 2004 *Pure Appl. Chem.* **76(7–8)** 1479–97
- [15] Fiorini C, Prudhomme N, Veyrac G, Maurin I, Raimond P, Nunzi J M 2000 *Synth. Met.* 115 121–125
- [16] Ishitobi H, Tanabe M, Sekkat Z, Kawata S 2007 *Opt. Express* **15(2)** 652
- [17] Trunov M L, Bilanich V S, Dub S N 2007 *J. Non-Cryst. Solids* 353 1904–09
- [18] Karageorgiev P, Neher D, Schulz B, Stiller B, Pietsch U, Giersig M, Brehmer L 2005 *Nat. Mater.* **4** 699–703
- [19] Kikineshi A, Palyok V, Shpiyak M, Szabo I A, Beke D L 2000 *J. of Optoelectron. Adv. Mater.* **2(1)**, 95
- [20] Palyok V, Szabo I A, Beke D I, Kikineshi A 2002 *Appl. Phys. A* **74** 683–689

Photoinduced mass transfer in amorphous As₂S₃ films

Janis Teteris*, Ugis Gertners, and Mara Reinfelds

Institute of Solid State Physics, University of Latvia, Kengaraga St. 8, Riga 1063, Latvia

Received 3 October 2010, accepted 4 February 2011

Published online 1 June 2011

Keywords amorphous As₂S₃ films, mass transfer, surface relief grating

* Corresponding author: e-mail tetersi@latnet.lv, Phone: +00 371 294 145 53, Fax: +00 371 671 327 78

The surface relief grating formation in amorphous As₂S₃ films strongly depends on the polarization state of recording beams. The surface relief grating formation efficiency of *s-s* and *p-p* recording beam combination can be essentially enhanced by additional illumination with or-

thogonal polarization. It is shown that the direction of mass transport on the film surface is determined by the direction of light electric vector.

© 2011 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim

1 Introduction In 1976, Chomat *et al.* [1] showed that a thin film of an amorphous As₂Se₃ subjected to a low-intensity modulated red light interference pattern is significantly altered: a relief hologram is formed on the surface of the film. A similar phenomenon for thin layers of azobenzene-containing polymers was observed by Rochon *et al.* [2] in 1995: a flat film can reach a corrugation whose amplitude may be up to fifty per cent of the initial thickness. This suggests that the material moieties are put in light-induced lateral transfer regarding the propagation direction of exciting light. The most commonly used method to induce mass motion is holographic recording with which a sinusoidal modulated intensity pattern can be obtained at the submicron scale. Recently, it has been demonstrated that surface relief structures can be formed also by a tiny focused light spot [3], in the case of contact mask application [4] and even with optical near-field [5]. Recorded surface patterns can be erased by homogenous illumination or heating above glass transition temperature of recording media. The surface relief grating (SRG) direct formation by two coherent laser beam interference have been observed in several disordered materials: in amorphous inorganic (As-S, As-Se chalcogenides [1, 4, 6], Sb-P-O oxide-containing glass [7]) and organic (azobenzene-containing organic polymers [2, 8], acrylamide photopolymers [9], azocellulose [10]) compounds.

It was observed that the formation of SRG on the azobenzene containing polymer and chalcogenide semiconductor films strongly depends on the polarization state of the recording beams [6, 11–13]. The two *s*-polarized recording

beams produce the largest light intensity modulation in interference pattern. But this configuration only produces a SRG with very low diffraction efficiency and small surface modulation. Under the *s-p* polarization recording conditions, the two writing beams possess orthogonal polarization and the resultant electric vector of light on the film surface has the largest variation but the light intensity is uniform over the entire exposed area. This purely polarization recording condition also produces very small surface modulation. The largest SR modulation was obtained under +45°, -45° and RCP: LCP recording conditions. This indicates that the existence of both light intensity and resultant electric field variations are essential to the formation of SRG on amorphous chalcogenide and azobenzene polymer films.

In 2001 Jager *et al.* [14] showed that an efficiency of SRG formation on azobenzene polymer films can be essentially enhanced by an assisting light with an orthogonal polarization to *s-s* holographic recording light. This process can be explained by “photo softening” the medium through enhancing the *trans-cis-trans* isomerization cycling [10]. Similar enhancement of SRG formation by assisting light was observed also in amorphous chalcogenide As₂S₃ and AsSe₄ films [13, 15, 16].

The main goal of this paper is to report the dependence of surface relief grating formation efficiency in amorphous As₂S₃ films on recording parameters such as polarization state of recording beams and incoherent assisting light.

2 Experimental Thin films of amorphous As_2S_3 with different thickness (4.5–6.5 μm) were prepared by thermal deposition on glass substrates at room temperature. The pressure during deposition was around 10^{-6} Torr and the rate of evaporation was ~ 20 nm/s.

The surface relief (SR) formation experiments were performed using both a holographic recording system (Fig. 1a) and an illumination of amorphous films through optical slit (Fig. 1b). After splitting by a beam splitter two 532 nm recording beams I_1 and I_2 of equal intensity interfere on the film surface. The two interfering beams independently pass through half or quarter wave plate W_p to provide a control over the polarization state of the writing beams. Interfering beams with p - p , s - s , s - p , L - L , L - R or 45° - 135° polarization combinations were used for SR grating recording. The formation of bulk phase and SR gratings is monitored in real time by diffracting a low power red (640 nm) and blue (405 nm) probe beams (Pb_2 and Pb_1), respectively, from the spot where the two recording beams interfere. The +1 order diffracted beam from the grating in the transmission and reflection mode is detected and recorded by photodiodes PD_2 and PD_1 , respectively. The diffraction efficiency (DE) is defined as the intensity ratio of the first-order diffraction of the probe beam to the incident one. An additional illumination of grating performed during the holographic recording by an assisting beam (Ab) of p - or s -polarization incoherent to the recording beams comes from another laser operating at 448 nm or 473 nm. The SR grating recording efficiency is

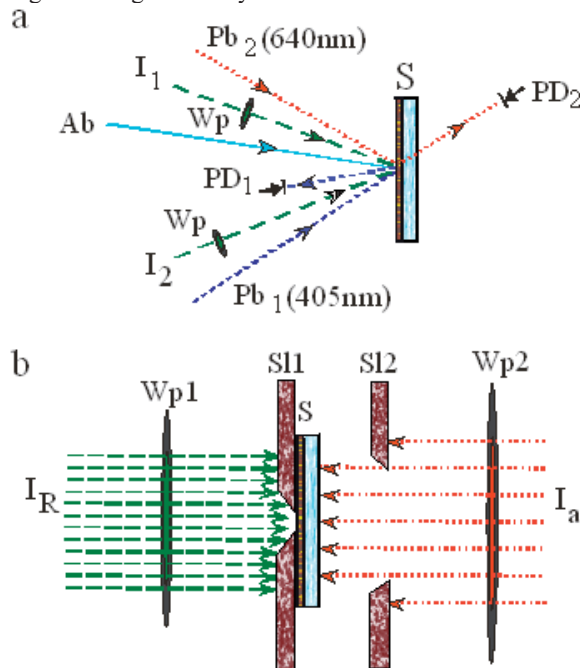


Figure 1 Experimental setup for formation of surface relief structures by holographic recording (a) and illumination through optical slit (b).

defined as a tangent of the slope angle α for the linear part of reflection DE (405 nm) growing curve (see Fig. 2). Since the diffraction efficiency of SRG is proportional to its height, we can see the SRG formation efficiency through the change of DE. The enhancement of SR formation by additional illumination with assisting light beam (Ab) is defined as a ratio of SR formation efficiency with assisting light to that without assisting light.

The scheme for SR formation on the amorphous films by illumination through optical slit is shown in Fig. 1b. The sample (S) has been illuminated from the film side with a single recording light beam I_R (532 nm) through a slit $S11$ with a width of 10 μm . From the opposite side the film was illuminated through the substrate by assisting light beam I_a (532 nm) coming from another laser, i.e. incoherent to beam I_R . The intensities of the beams were $I_R = 0.5$ W/cm^2 and $I_a = 0.43$ W/cm^2 . The wave plates $Wp1$ and $Wp2$ were used for the combination of polarization states of the beams. The As_2S_3 samples with 4.5 μm thickness were exposed 180 min. at room temperature.

The photo-induced surface relief of the films was measured by an atomic force microscope (AFM).

3 Experimental results Figure 2 shows the dependence of the DE in transmission (curves 1, 3, 5) and reflection (curves 2, 4, 6) mode on exposure dose by holographic recording two p -linear (curves 3–6) and orthogonal circular (curves 1, 2) polarized beams in amorphous As_2S_3 film with a thickness of 6.5 μm . The transmission DE measured by red 640 nm laser line characterizes the bulk grating formation due to the photo-induced refractive index changes. The reflection DE measured by blue 405 nm laser characterizes the SRG formation. The formation of SRG on amorphous As_2S_3 films is strongly dependent on the po-

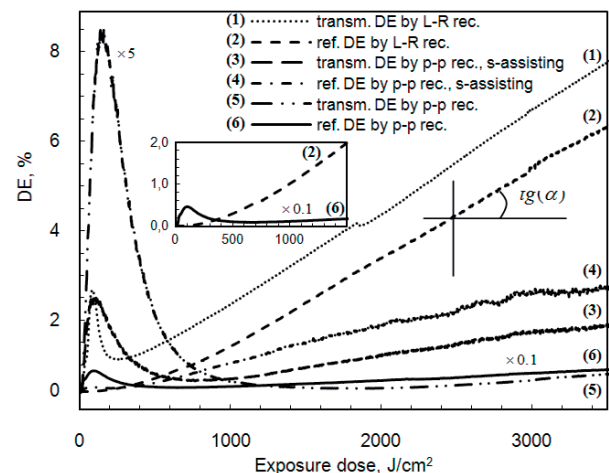


Figure 2 The diffraction efficiency as a function of the exposure dose for grating with a period of 1 μm recorded in amorphous As_2S_3 film with p - p (curves 3–6) and L - R (curves 1 and 2). The inset shows the initial stage of the grating formation. The intensity of recording beams $I_1 = I_2 = 0.25$ W/cm^2 , grating period 1 μm .

larization state of the writing beams. The SRG recording efficiencies under different polarization state of writing beams are summarized in Table 1.

4 Discussion

4.1 Holographic recording of SRG

It is known that the efficiency of SRG formation in amorphous chalcogenide and organic azobenzene polymer films essentially depends on the polarization state of the holographic recording beams [6, 11-13]. The curves 2 and 6 in Fig. 2 show the dependence of reflection DE on exposure dose for *L-R* and *p-p* recording, respectively. A large difference in SRG recording efficiencies has been observed.

The dependence of SRG recording efficiency on polarization state combinations of recording beams and contrast of interference patterns at the sample surface during holographic recording are summarized in Table 1. The contrast of interference pattern (*K*) in amorphous As₂S₃ film for a period of 1 μm was calculated according to [17] using a value of refractive index of 2.6 at recording wavelength of 532 nm.

Under the intensity modulated holographic recording conditions, the two parallel linear (*s-s* and *p-p*) and circular (*R-R* or *L-L*) polarized beams produce the largest light intensity modulation, when the contrast of an interference pattern is equal to ~1. However, there is no spatial modulation in the direction of the resultant electric vector of light. These configurations only produce a very low DE and small SR modulation. Under the polarization modulated holographic recording, the two orthogonal linear (*s-p* and *+45°: -45°*) and circular (*R-L*) polarized beams produce the largest variation in the resultant electric field direction on the film surface but the light intensity is uniform over the entire exposed area (*K*≈0). Very small DE and SR modulation were obtained for *s-p* recording configuration. For this configuration there is no component of resultant electric

Table 1 Dependence of SRG recording efficiency on polarization and contrast of interference patterns at the sample surface during holographic recording using a variety of polarized recording beam combinations.

Recording polarization	Electric field in xy plane					Contrast of interf. pattern	SRG recording eff., a.u.
	$+\pi$	$+\sqrt{2}$	0	$-\sqrt{2}$	$-\pi$		
<i>s:s</i> x: \updownarrow	\bullet	\updownarrow	\updownarrow	\updownarrow	\bullet	1	0.1
<i>p:p</i> \leftrightarrow	\bullet	\leftrightarrow	\leftrightarrow	\leftrightarrow	\bullet	0.98	0.35
<i>s:p</i> \updownarrow	\updownarrow	\circ	\updownarrow	\circ	\updownarrow	0	0.04
<i>+45°: -45°</i> \nearrow	\leftrightarrow	\circ	\updownarrow	\circ	\leftrightarrow	0	44
<i>RCP:RCP</i> \circ	\circ	\circ	\circ	\circ	\circ	0.99	0.6
<i>RCP:LCP</i> \circ	\leftrightarrow	\updownarrow	\updownarrow	\updownarrow	\leftrightarrow	0.01	90

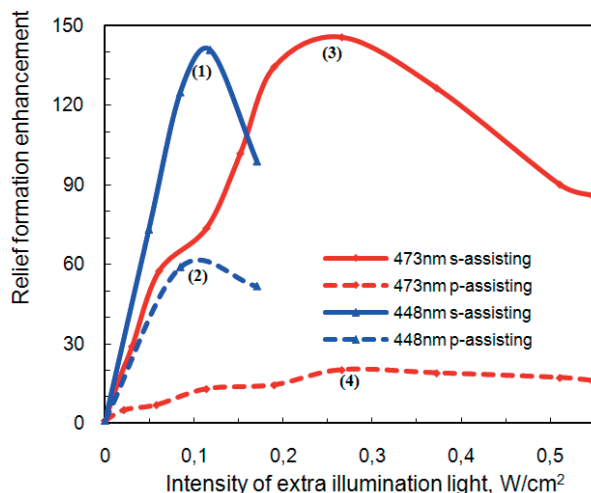


Figure 3 The dependence of SR formation enhancement as a function of the intensity and polarization of assisting light at additional illumination by 448 nm (curves 1 and 2) and 473 nm (curves 3 and 4) light during holographic recording with *p-p* polarized 532 nm laser beams. Recording with $I_1 = I_2 = 0.19 \text{ W/cm}^2$, grating period $\Lambda = 1 \mu\text{m}$.

vector of light along the grating vector direction. The largest DE and SRG modulation were obtained for orthogonal linear (*+45°: -45°*) and circular (*R-L*) polarized beam configuration. For these configurations there are components of resultant electric vector of light parallel and perpendicular to the grating vector direction. This indicates that the resultant electric field and its direction variation are essential to the formation of SR gratings on the amorphous chalcogenide films.

4.2 Enhancement of SRG holographic recording by assisting light

Figure 2 illustrates that the SRG formation efficiency at *p-p* polarization combination of holographic recording beams can be essentially enhanced by an additional illumination with orthogonal polarization (see curves 4 and 6). The enhancement efficiency strongly depends on the wavelength, intensity and polarization direction of an assisting light (see Fig.3). The results on the studies of the dependence of SRG formation efficiency and enhancement by assisting light on the polarization state combinations of recording and assisting beams are summarized in Table 2. We can see that even in *s-s* polarized writing conditions, a significant SR grating formation enhancement can be achieved if an incoherent assisting beam with orthogonal (*p*) polarization is used. It is believed that the assisting beam causes a softening of the dark places of the grating significantly enhances the SR formation efficiency [10]. An effective enhancement by an additional illumination has been observed for all intensity modulated holographic recording conditions, the two paral-

Table 2 Dependence of SRG formation efficiency and enhancement by assisting light on polarization state combinations of recording (532 nm, $I_1=I_2=0.25$ W/cm²) and assisting (473 nm, $I_a=0.26$ W/cm²) light.

Polarization of assisting light	Recording polarization	SRG formation efficiency, a.u.	SRG formation enhancement
s	p:p	91	260
p		13.7	39
-		0.35	1
s	s:s	0.22	2.2
p		19	190
-		0.1	1
s	s:p	0.17	4.3
p		0.035	0.88
-		0.04	1
s	+45°:-45°	102	2.3
p		90.4	2
-		44	1
s	L:R	58	0.64
p		62	0.69
-		90	1
s	L:L	57	100
p	or	0.25	0.44
-	R:R	0.57	1

lel linear (*s-s* and *p-p*) and circular (*R-R* or *L-L*) polarized beams producing the largest light intensity modulation, when the contrast of an interference pattern is equal to ~1. However, a difference of an enhancement between *s-* and *p-*polarized assisting beams suggests the idea that the material photo-induced softening in the dark places of the grating is not the only reason for this phenomenon. Actually, the additional illumination of *s-s* or *p-p* holographic recording combination with orthogonal assisting beam creates the electric field distribution in the interference pattern that is similar with the *L-R* and +45° : -45° recording situation without the assisting light when the largest SRG formation is observed. It means that the assisting light with an orthogonal orientation regarding the *s-s* or *p-p* recording beams stimulate the SRG formation process.

4.3 SR relief formation by illumination through optical slit In order to study the influence of polarization state of the recording and assisting beams on SR formation direction and efficiency we performed experiments with an illumination of amorphous As₂S₃ film through optical slit. The scheme is shown in Fig.1b. The sample (S) was illuminated from the film side with a single recording light beam I_R (532 nm) through a slit S11 with a width of 10 μm. From the opposite side the film was illuminated through the substrate by assisting light beam I_a (532 nm) coming from another laser, i.e. incoherent to beam I_R . The intensi-

ties of the beams were $I_R=0.5$ W/cm² and $I_a=0.43$ W/cm². The wave plates Wp1 and Wp2 were used for the combination of polarization states of the beams. After illumination the SR of the samples was studied by AFM.

The single beam experiments with the writing beam polarization parallel to the optical slit are similar to the holographic recording of SRG with *s:s* polarization, and the single beam experiments with the writing beam polarization perpendicular to the optical slit are similar to the *p-p* holographic recording.

The illumination of the samples was performed with *s-*, *p-* and circular polarized recording beam (I_R) in combination with *s-*, *p-* and circular polarized assisting beam (I_a). The results of the experiments are summarized in Table 3. In case of single beam illumination without assisting light very small expansion (+10 nm) was obtained for *s-* and *p-*polarization, but with circular light excitation no changes in surface relief were observed. The largest SR changes are observed for *s-* and *p-* polarized recording beams assisted with orthogonal *p-* and *s-* polarized additional illumination, respectively (Fig. 4 and Table 3). It is seen that the direction of the photo-induced matter transport in both cases is with opposite sign. From the Table 3 it follows that *s-* polarized recording beam creates a contraction of the film or a formation of dip but *p-*polarized recording beam creates an expansion of the film or a formation of hill. These results are in agreement with a conclusion obtained by Trunov [15] that the direction of the material displacement for *p-p* holographic recording with *s-* assisting light (scheme *p-p:+s*) is in phase and for scheme *s-s:+p* out of phase to the maxima in the light interference pattern. In case of recording beam with circular polarization the direction of matter motion is determined by polarization of an assisting beam.

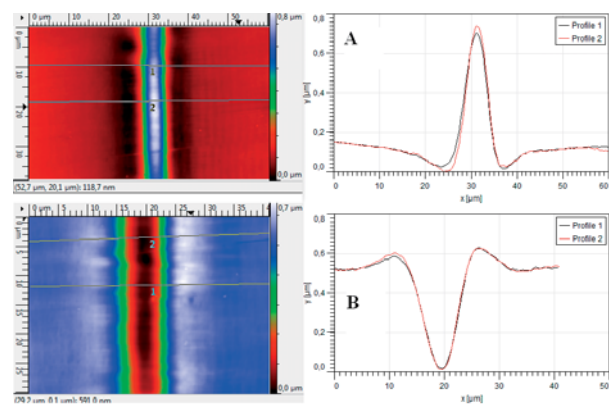


Figure 4 AFM measurements of SR structures on As₂S₃ film illuminated through optical slit. A – *p-*polarized recording beam (E vector perpendicular to slit) and *s-*polarized assisting beam (E vector parallel to slit); B – *s-*polarized recording beam and *p-*polarized assisting beam.

Table 3 Dependence of SR formation direction and value for amorphous As₂S₃ films illuminated through optical slit on variety of polarization state combinations of recording (E_R) and assisting (E_A) beams. (+) denotes expansion or formation of hill; (-) denotes contraction or formation of dip. (*s*) – electric vector of light is parallel to slit, (*p*) – electric vector of light is perpendicular to slit, LCP and RCP – left and right circular polarized light.

E _R	E _A	<i>s</i>	<i>p</i>	LCP or RCP	Without assisting light
<i>s</i>	<i>s</i>	-380 nm	-500 nm	-370 nm	+10 nm
<i>p</i>	<i>p</i>	+610 nm	+190 nm	+250 nm	+10 nm
LCP or RCP	LCP or RCP	+190 nm	-210 nm	-20 nm	0

5 Conclusions We have shown that the surface relief grating formation in amorphous As₂S₃ films strongly depends on the polarization state of recording beams. The surface relief grating formation efficiency of *s-s* and *p-p* recording beam combination can be essentially enhanced by additional illumination with orthogonal polarization.

Acknowledgements The financial support from the Latvian Science Council is gratefully acknowledged.

References

[1] H. Chomat, D. Ležal, I. Gregora, and I. Srb, *J. Non-Cryst. Solids* **20**, 427 (1976).

[2] P. Rochon, E. Batalla, and A. Natansohn, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 136 (1995).
 [3] H. Hisakuni and K. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 2925 (1994).
 [4] S. Kokenyesi, I. Ivan, V. Takats, J. Palinkas, S. Biri, and I. A. Szabo, *J. Non-Cryst. Solids* **353**, 1470 (2007).
 [5] T. Fukuda, K. Sumaru, T. Kimura, H. Matsuda, Y. Narita, T. Inoue, and F. Sato, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, L900 (2001).
 [6] K. E. Asatryan, T. Galstian, and R. Vallee, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 087401 (2005).
 [7] F. S. De Vicente, M. Siu Li, and Y. Messaddeq, *J. Non-Cryst. Solids* **348**, 245 (2004).
 [8] B. Bellini, J. Ackermann, H. Klein, Ch. Graves, Ph. Dumas, and V. Safarov, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, S1817 (2006).
 [9] K. Pavani, I. Naydenova, S. Martin, and V. Toal, *J. Opt. A, Pure Appl. Opt.* **9**, 43 (2007).
 [10] K. Yang, S. Yang, and J. Kumar, *Phys. Rev. B* **73**, 165204 (2006).
 [11] V. M. Kryshenik, M. L. Trunov, and V. P. Ivanitsky, *J. Optoelectron. Adv. Mater.* **9**, 1949 (2007).
 [12] X. L. Jiang, L. Li, J. Kumar, D.Y. Kim, V. Shivshankar, and S.K. Tripathy, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2618 (1996).
 [13] U. Gertners and J. Teteris, *J. Optoelectron. Adv. Mater.* **11**, 1963 (2009).
 [14] C. Jäger, T. Bieringer, and S. J. Zilker, *Appl. Opt.* **40**, 1776 (2001).
 [15] M. L. Trunov, P. M. Lytvyn, and O. M. Dyachyn's'ka, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 031905 (2010).
 [16] U. Gertners and J. Teteris, *Opt. Mater.* **32**, 807 (2010).
 [17] L. Z. Cai and X. L. Yang, *Opt. Laser Technol.* **34**, 671 (2002).

The impact of light polarization on the direct relief forming processes in As_2S_3 thin films

U Gertners¹, J Teteris

Institute of Solid State Physics, 8 Kengaraga Str., Riga, LV-1063, Latvia

E-mail: gertners@gmail.com

Abstract. In this report direct a photo-induced formation of surface relief gratings (SRG) in thin layers of arsenic sulfide (As_2S_3) are shown. This anisotropic light-induced mass transfer phenomenon has been discussed with the special attention focused on the polarization and intensity of the corresponding light. The experimental setup for the SRG recording is straight-forward consisting of $\sim 10\mu\text{m}$ optical slit through which an unfocused beam of light is projected on the surface of sample. The verified sets of experimental parameters (light intensity, polarization and slit opening) were chosen. Additionally the evolution of surface relief in dependence from the recording time and polarization has been investigated in detail. The processes of SRG formation and mass transfer which are based on the photo-induced plasticity in As_2S_3 have been discussed.

1. Introduction

Holographic recording is a perspective method for obtaining high quality diffraction gratings amongst other applications. The possibility of direct surface patterning without the necessity of development and etching is even more appealing thus the effects of surface forming processes in holographic recording are of vital importance.

Non-contact mass transfer is known for a few decades now – it can be found in optical particle traps and optical tweezers (first reported in 1970 by A.Ashkin [1]). The idea behind this is the movement of individual particles with light intensity gradient. One might think that somewhat similar processes apply to holographic recordings (first reported in 1975 by Chomat *et al* [2]) but further investigations are required. The look in this direction has been thrown and there are works showing relief forming in dependence of focused light, polarization and so forth [*e.g.*, 3, 4]. The results on influence of light polarization though are quite inconclusive (as shown in the [5]) and require further investigation.

From earlier works it is known that an effective materials for obtaining direct surface formation are vitreous chalcogenides – As_2S_3 in particular is attractive because of sample preparation simplicity and its optical properties. This well known group of materials has been studied for many years and various results have been obtained but less attention has been paid to the significance of light polarization. Thus the aim of this work was to investigate the influence of light polarization on mass transfer processes in As_2S_3 thin films.

¹ To whom any correspondence should be addressed

2. Experimental

Amorphous As_2S_3 films on glass with thickness of 0.5-4.0 μm were obtained by thermal evaporation. A single beam recording setup (shown in Fig. 1.) was utilized to obtain surface modulation in the As_2S_3

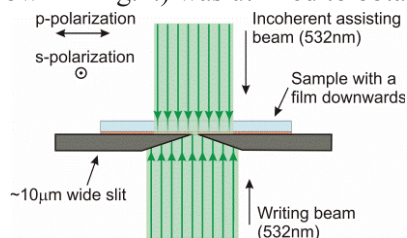


Figure 1. Experimental setup (top view) for formation of surface-relief structures by illumination through an optical slit

samples, which were illuminated by homogenized 532 nm laser light through 10 μm wide optical slit. An optional assisting incoherent 532 nm laser source was used for softening purposes of As_2S_3 film thus improving the recording efficiency. Polarization of recording and assisting beams was varied by halfwave and quarterwave plates. The obtained surface relief was mapped by atomic force microscopy (AFM) using *Veeco CPH*.

3. Results

When recording by using a holographic setup it is difficult to understand the mass transfer processes because of the periodicity of the surface relief – it is hard to define the point of origin and analyze the mass transfer direction. To avoid this limitation a simplified single beam recording setup was introduced. The main object of which was a narrow optical slit. Through this slit a sample was exposed by a uniformly distributed and unfocused monochromatic light with a particular polarization. The resulting intensity distribution then is well defined and the formed surface relief thus has to be symmetric which allows introducing well defined coordinate system.

The first obtained recordings independently from the polarization were insignificant (few nm in height) and could be attributed to photo-induced expansion effect [6]. As previous experiments with direct holographic recordings showed that relief forming efficiency can be significantly improved by additional incoherent assisting beam [7], the same approach was utilized for further experiments. It has been determined that the polarization of the optional assisting beam causes isotropic or anisotropic softening which in conjunction with polarization of the recording beam might show some peculiarities. In Fig.2. the summary of obtained results has been presented as table. Certain cells are carrying a value n/a – this means that with such polarization configuration the obtained relief is insignificant (few nm) and basically represents smooth surface. The remaining cells which do carry values different from zero are represented by AFM images and profile height distributions.

As can be seen from combinations that produced an observable surface relief modification, the mass transfer can manifest in different ways. If the polarization of recording beam coincides with the direction of optical slit (defined as s-polarization), then independently from the polarization of the assisting beam (in the 1st row: CP- circular, p- perpendicular to the slit or 45 degree) a mass transfer away from the recording region can be observed – formation of a groove. The efficiency of recording or the depth of groove changes from the best case, when the polarization of assisting beam is perpendicular to that of the recording beam, then follows the 45 degree and finally CP polarization. The same applies when the polarization of recording beam is perpendicular to the slit (the 2nd row in Fig.2.), only in this case mass transfer is directed towards recording region – formation of a ridge.

The polarization of recording beam is not the only factor, which determines the direction of mass transfer. Independently from the polarization of recording beam, consistent formation of a ridge, when

the assisting illumination is s-polarized (1st column in Fig.2.) or formation of a groove, when assisting illumination has p-polarization (2nd column in Fig.2.), can be observed.

Therefore all recording combinations are symmetrically aligned in respect to the main diagonal of the table. This observation means that the polarization of both – recording as well as assisting beam

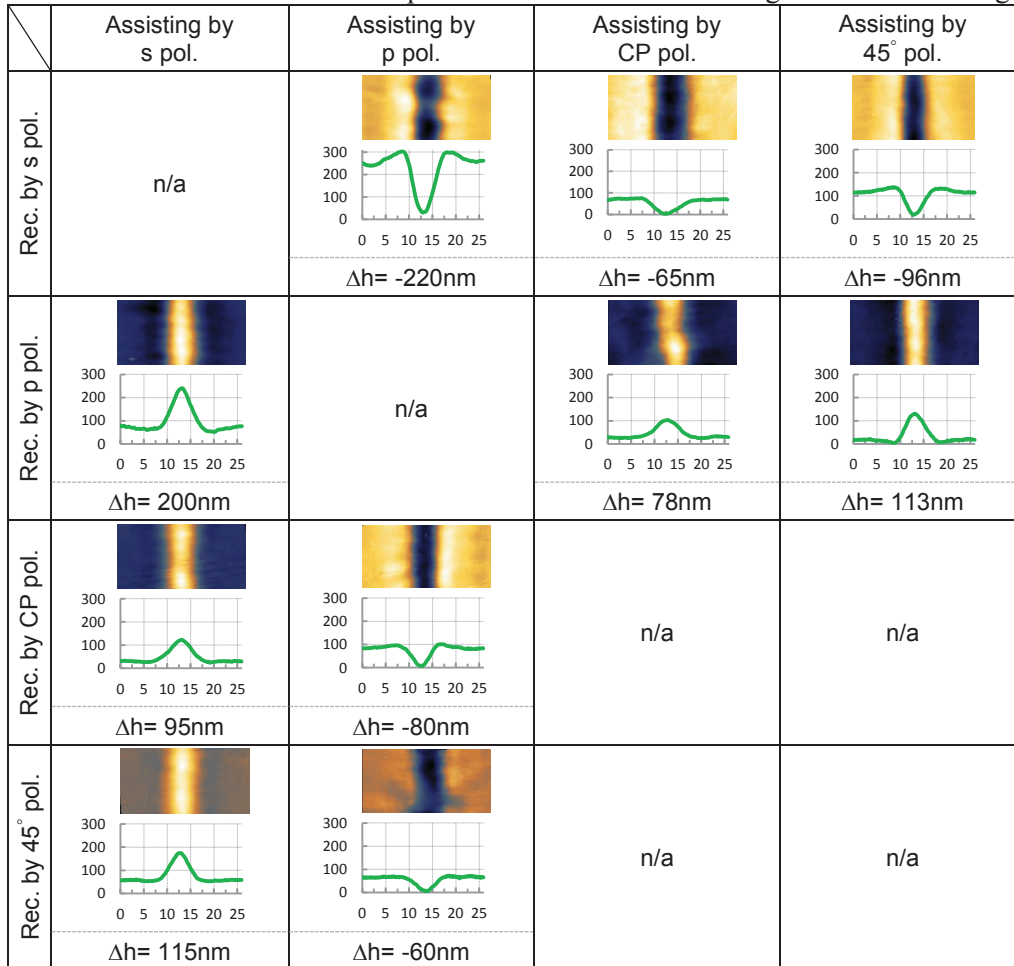


Figure 2. The correlation between polarization and light-induced mass transfer processes in 2.1 μm thin layer of As₂S₃ sample for different polarization combinations of the writing and assisting beams (1000 mW/cm² and 1500 mW/cm² for 1 h respectively) in optical slit experiments. The inset contains the 2D 26×13μm AFM topography pictures and its profiles in the 25μm×300nm frame

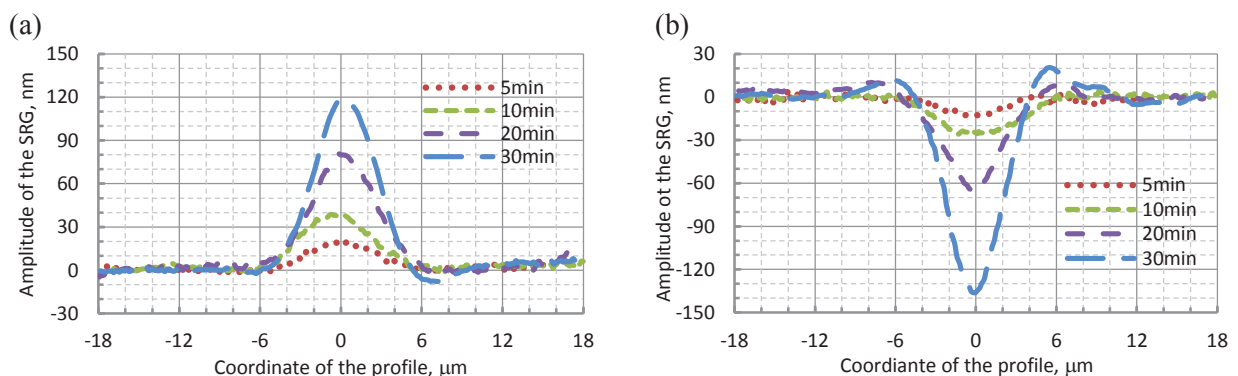


Figure 3. The time evolution of SRG profiles extracted from the AFM measurements. Recording performed on the As_2S_3 sample with a: (a) p/s and (b) s/p setup. The energy densities for the writing and assisting beam were $4.24\text{W}/\text{cm}^2$ and $0.37\text{W}/\text{cm}^2$ respectively, Corresponding exposure lengths: 5, 10, 20 and 30 minutes

play a significant role in the process of mass transfer. As can be seen the most effective mass transfer occurs when s-p polarization combinations between recording and assisting illumination beams are implemented. Thus the time dependent evolution of direct SRG formation for those cases is shown in Figure 3. As mentioned above, in the case of different polarization of the writing beams the direction of mass transfer is opposite. For the s polarization (s/p setup: polarization of the writing beam is parallel to the slit) the mass is transported away from the illuminated area thus forming a groove, but for the p polarization (p/s setup) this process is inverted – the mass is transported into the illuminated area, forming a ridge. Note that the assisting beams were polarized orthogonally to the writing. The symbol a/b denotes the possible combinations of polarization, a – for the recording beam and b – for the assisting beam. It is clearly seen that for the both recording setups (p/s and s/p) the mass transfer starts from the middle of $10\ \mu\text{m}$ optical slit used in these experiments. For the short time exposure (in this case up to 10 min) A- or V-shaped profiles appear. If the recording time exceeds 10 minutes an active mass squeezing takes place and the profiles are changing to W- or M- shaped.

The behaviour of mass transfer and thus the resulting recording could be related to interaction between the polar photo-induced defects and the polarized electric field of recording and assisting illumination. Depending on the configuration of the resulting electric field, mass transfer can be directed both ways – towards or away from the electric field intensity gradient.

4. Conclusion

It has been shown that the formation of surface relief grating in amorphous As_2S_3 films closely depends on the superposition of electric field of recording and assisting beams. The recording efficiency in an arbitrary recording setup using linearly polarized light can be significantly improved by introducing additional incoherent orthogonally polarized assisting illumination.

A direct recording technique of SRG is a comparatively new solution for lithography and, as shown in this article, provides new experimental techniques for better understanding of the interaction between the light and matter. The obtained gratings are very stable at room temperature, so this method can replace some of the chemical etching techniques and find a practical application in the applied physics.

5. Acknowledgments

This work has been supported by the European Social Fund within the project «Support for Doctoral Studies at University of Latvia».

References

- [1] Ashkin A 1970 *Phys. Rev. Lett.* **24**(4) 156–159
- [2] Chomat M, Lezal D, Gregora I, Srb I 1976 *J. Non-Cryst. Solids* **20**(3) 427–437
- [3] Tanaka K, Terakado N, Saitoh A 2008 *J. of Optoelectron. Adv. Mater* **10**(1) 124–130
- [4] Kryshenik V M, Trunov M L, Ivanitsky V P 2007 *J. of Optoelectron. Adv. Mater* **9**(7) 1949–1964
- [5] Ishitobi H, Tanabe M, Sekkat Z, Kawata S 2007 *Opt. Express* **15**(2) 652
- [6] Hamanaka H, Tanaka K, Matsuda A, Iizima S 1976 *Solid State Commun.* **19** 499–501
- [7] Gertners U, Teteris J 2010 *Opt. Mat.* **32**(8) 807–810

10th International Conference on Solid State Chemistry, Pardubice, Czech Republic

Optical field-induced mass transport in soft materials

J. Teteris^{*}, M. Reinfelds, J. Aleksejeva, U. Gertners

Institute of Solid State Physics, University of Latvia, 8 Kengaraga Str., Riga, LV-1063, Latvia

Abstract

The dependence of the surface relief formation in amorphous chalcogenide (As_2S_3 and As-S-Se) and Disperse Red 1 dye grafted polyurethane polymer films on the polarization state of holographic recording light beams was studied. It is shown that the direction of lateral mass transport on the film surface is determined by the direction of light electric vector and photoinduced anisotropy in the film. We propose a photoinduced dielectrophoretic model to explain the photoinduced mass transport in amorphous films. Model is based on the photoinduced softening of the matrix, formation of defects with enhanced or decreased polarizability, and their drift under the electrical field gradient of light.

© 2013 The Authors. Published by Elsevier B.V.

Selection and/or peer-review under responsibility of the Organisation of the 10th International Conference on Solid State Chemistry.

Keywords: surface relief gratings; holographic recording; amorphous chalcogenide films; azo-dye polymers

1. Introduction

The interaction of light with matter has extreme scientific and technological importance. The properties and the application of “soft materials” including organic and inorganic polymers are based on weak but nevertheless long-range interactions among the molecular or supramolecular constituents [1]. These interactions lead to the formation of static and frequently also dynamic structures and changes of physical and chemical properties that can be changed by light. Photoinduced structural changes in soft materials play the key role in advanced technologies: chalcogenide thin films are used as storage media of information (audio/videodisks); organic and inorganic photoresists and related materials necessary to produce advanced electronics hardware. Photoinduced alignment of molecules in azo-containing polymers causes an appearance of optical birefringence – the basic condition for polarization holographic recording materials. Recently it has been shown that under influence of linear polarized light a lateral transfer of matter is possible allowing to realize “one step” surface patterning.

^{*} Corresponding author. Tel.: +371 29414553.

E-mail address: teteris@latnet.lv

Chomat *et al* [2] already in 1976 showed that a thin film of an amorphous As_2Se_3 subjected to an intensity modulated red light interference pattern was significantly altered: a relief hologram was formed on the surface of the film. Almost twenty years later a similar phenomenon for thin layers of azobenzene-containing polymers was observed by Rochon *et al* [3] and Kim *et al* [4]. A flat film can reach a corrugation whose amplitude may be up to fifty per cent of the initial thickness. This suggests that the material moieties are put in light-induced lateral transfer regarding the propagation direction of exciting light. The most commonly used method to induce mass motion is holographic recording with which a sinusoidal modulated intensity pattern can be obtained at the submicron scale. Recently, it has been demonstrated that surface relief structures can be formed also by a focused light spot [5] and illumination performed via a metal microgrid placed on the sample [6]. The surface patterns can be erased by homogeneous illumination or heating above glass transition temperature of recording media. The surface relief grating (SRG) direct formation by two coherent laser beam interference has been observed in different disordered materials: in amorphous inorganic (As-S, As-Se) chalcogenides [2,6,7], Sb-P-O oxide-containing glass [8]) and organic (azobenzene-containing organic polymers [3,4,9], acrylamide photopolymers [10], azocellulose [11], organic molecular glasses [12]) compounds.

The efficiency of SRG formation on the azobenzene containing polymer and chalcogenide semiconductor films strongly depends on the polarization state of the recording beams [7,13-15]. The two *s*-polarized recording beams produce the largest light intensity modulation in interference pattern. But this configuration only produces a SRG with very low diffraction efficiency and small surface modulation. Under the *s-p* polarization recording conditions, the two writing beams possesses orthogonal polarization and the resultant electric vector of light on the film surface has the largest variation but the light intensity is uniform over the entire exposed area. This purely polarization recording condition also produces very small surface modulation. The largest surface relief (SR) modulation was obtained under $+45^\circ$:- 45° (linearly orthogonal polarization with a direction 45° regarding the plane of recording scheme) and RCP:LCP (right and left circular polarization of beams) recording conditions. This indicates that the existence of both light intensity and resultant electric field variations are essential to the formation of SRG on amorphous chalcogenide and azobenzene polymer films.

A number of models have been proposed to explain the origin of the driving force responsible for SRG formation in the azo-polymers under the light illumination on the molecular level, including mean-field theory [16], permittivity gradient theory [17], gradient electric force model [18] and other. There is still not general agreement on the origin of the driving force for this process and no mechanism yet proposed accounts for all experimental observations.

The main goal of this paper is to explore the dependence of surface relief grating formation efficiency in amorphous As_2S_3 and azobenzene containing polymer films on recording parameters such as polarization state of recording beams and incoherent assisting light as well as to establish the spatial phase relationship between the surface features and the light intensity distribution.

2. Experimental details

Thin films of amorphous As_2S_3 were prepared by thermal deposition on glass substrates at room temperature. The pressure during deposition was around 10^{-6} Torr and the rate of evaporation was ~ 20 nm/s. A series of polyurethane polymers containing chemically bonded azobenzene dye DR1 was synthesized [19]. The solution of polymer was cast on glass substrate and dried.

The surface relief (SR) formation experiments were performed using both a holographic recording system described in [20] and an illumination of amorphous films through optical slit (Fig.1). An additional illumination of grating performed during the holographic recording by an incoherent assisting beam (I_A) of *p*- or *s*-polarization regarding the recording beams comes from another laser. The SR grating recording

efficiency was defined as a tangent of the slope angle α for the linear part of reflection diffraction efficiency (DE) growing curve [20].

The scheme for SR formation on the amorphous films by illumination through optical slit is shown in Fig.1. The sample (S) has been illuminated from the film side with a single recording light beam I_R (532 nm) through a slit with a width of $\sim 10 \mu\text{m}$. From the opposite side the film was illuminated through the substrate by assisting light beam I_A (532 nm) coming from another laser, i.e. incoherent to beam I_R . The intensities of the beams were $I_R = 0.5 \text{ W/cm}^2$ and $I_A = 0.43 \text{ W/cm}^2$. The wave plates WP_1 and WP_2 were used for the combination of polarization states of the beams. The As_2S_3 and polyurethane samples with thickness $4.5 \mu\text{m}$ and $3.75 \mu\text{m}$, respectively, were exposed 180 min. at room temperature. The optical transmittance of As_2S_3 sample in photodarkened state for 532 nm light was about 5%.

The photo-induced surface relief of the films was measured by an atomic force microscope (AFM).

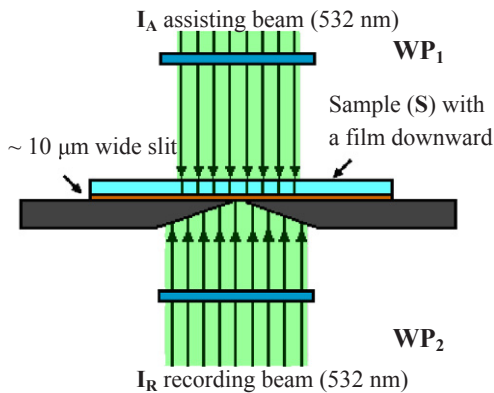


Fig. 1. Experimental setup for formation of surface relief structures by illumination through optical slit.































3. Experimental results and discussion

3.1. Holographic recording of SRG.

It is known that the efficiency of SRG formation in amorphous chalcogenide and organic azobenzene polymer films essentially depends on the polarization state of the holographic recording beams [7,13-15]. A large difference in SRG recording efficiencies has been observed. The dependence of SRG recording efficiency on polarization state combinations of recording beams and contrast of interference patterns at the sample surface during holographic recording are summarized in Table 1. The contrast of interference pattern (K) in amorphous As_2S_3 film for a period of $1 \mu\text{m}$ was calculated according to [21] using a value of refractive index of 2.6 at recording wavelength of 532 nm.

Under the intensity modulated holographic recording conditions, the two parallel linear (s - s and p - p) polarized beams produce the largest light intensity modulation, when the contrast of an interference pattern is equal to ~ 1 . However, there is no spatial modulation in the direction of the resultant electric vector of light. These configurations only produce a very low DE and small SR modulation. Under the polarization modulated holographic recording, the two orthogonal linear (s - p and $+45^\circ$: -45°) and circular (RCP:LCP) polarized beams produce the largest variation in the resultant electric field direction on the film surface but the light intensity is uniform over the entire exposed area ($K \approx 0$). Very small DE and SR modulations were obtained for s - p recording configuration. The largest DE and SRG modulation were

Table 1. Dependence of SRG recording efficiency on amorphous As_2S_3 film with (column $I_A=260$) and without (column $I_A=0$) assisting illumination on polarization and contrast of interference patterns at the sample surface during holographic recording ($\lambda=532$ nm, $I_1=I_2=250$ mW/cm², $\Lambda=1$ μm) using a variety of polarized recording beam combinations (x -axis coincides with the direction of grating vector). Assisting illumination was performed by 473 nm light with intensity $I_A=260$ mW/cm²; polarization state (S or P) of an assisting beam is shown in cells.

Polarization of recording beams x :	Resulting electric field vector pattern (x - y plane)					Contrast of interf. pattern κ	SRG recording efficiency, a.u.	
	$+\Lambda/2$	$+\Lambda/4$	0	$-\Lambda/4$	$-\Lambda/2$		$I_A=0$	$I_A=260$
S:S 						1	0.1	19 P
P:P 						0.98	0.35	91 S
S:P 						0	0.04	-
+45°:-45° 						0	44	88 P
RC:LC 						0.01	90	60 P

obtained for orthogonal linear (+45°:-45°) and circular (RCP:LCP) polarized beam configuration. For these configurations there are components of resultant electric vector of light parallel and perpendicular to the grating vector direction. This indicates that the resultant electric field and its direction variation are essential to the formation of SR gratings on the amorphous chalcogenide films.

3.2. Enhancement of SRG holographic recording by assisting light.

In 2001 Jager et al [22] showed that an efficiency of SRG formation on azobenzene polymer films can be essentially enhanced by an assisting light with an orthogonal polarization to $s:s$ holographic recording light. This process was explained by “photo softening” the medium through enhancing the *trans-cis-trans* isomerization cycling. Similar enhancement of SRG formation by assisting light was observed also in amorphous chalcogenide As_2S_3 and AsSe_4 films [15, 23].

The enhancement efficiency strongly depends on the wavelength, intensity and polarization direction of an assisting light [20]. The results on dependence studies of SRG formation efficiency and enhancement in As-S film by 473 nm assisting light on the polarization state combinations of recording and assisting beams are summarized in Table 1. We can see that even in $s:s$ polarized writing conditions, a significant SR grating formation enhancement can be achieved if an incoherent assisting beam with orthogonal (p) polarization is used. An effective enhancement by an additional illumination has been observed for intensity modulated holographic recording conditions ($s:s$ and $p:p$). However, a difference of an enhancement between s - and p - polarized assisting beams suggests the idea that the material photo-induced softening in the dark places of the grating is not the only reason for this phenomenon. Actually, the additional illumination of $s:s$ or $p:p$ holographic recording combination with orthogonal assisting beam creates the electric field distribution in the interference pattern that is similar with the LCP:RCP and +45°:-45° recording situation without the assisting light when the largest SRG formation can be obtained.

3.3. SR relief formation by illumination through optical slit.

The phase relationship between the exciting light field and the resulting surface deformation is crucial in understanding the mechanism of SRG formation. Early investigations on azopolymer films showed that the light and surface relief are 180° out of phase [17]. It means that light intensity maxima correspond to valleys in the surface relief. In other words, material is moved out of the light intensity maxima into the dark regions.

In order to estimate the influence of polarization state of the recording beams on SR formation direction and efficiency we performed experiments with an illumination of amorphous As_2S_3 and azo-benzene containing films through optical slit. The experimental scheme is shown in Fig.1. After illumination the SR of the samples was studied by AFM.

Actually these experiments simulate the recording of single line grating enabling to evaluate the dependence of photoinduced mass transport direction on the polarization state of recording light. The single beam experiments with the writing beam (I_R) polarized parallel to the optical slit are similar to the holographic recording of SRG with $s:s$ polarization, and the single beam experiments with the writing beam polarization perpendicular to the optical slit are similar to the $p:p$ holographic recording.

The illumination of the samples through slit performed with s -, p - recording beam (I_R) in combination with p -, s - polarized assisting beam (I_A) simulates the SRG formation with $+45^\circ$: -45° and RCP:LCP laser beams combination at holographic recording. In case of single beam illumination without assisting light very small SR changes (~ 10 nm) were obtained for s - and p - polarization recording. The largest SR changes in amorphous As_2S_3 films are observed for s - and p - polarized recording beam assisted with orthogonal p - and s - polarized additional illumination, respectively (Fig.2a). It is seen that the direction of the photo-induced matter transport in both cases is with opposite sign. Consequently, s -polarized recording beam assisted with p -polarized light creates a contraction of the film or a formation of valley but p -polarized recording beam assisted with s -polarized light creates an expansion of the film or a formation of hill. These results are consistent with a conclusion obtained by Trunov [23] that the direction

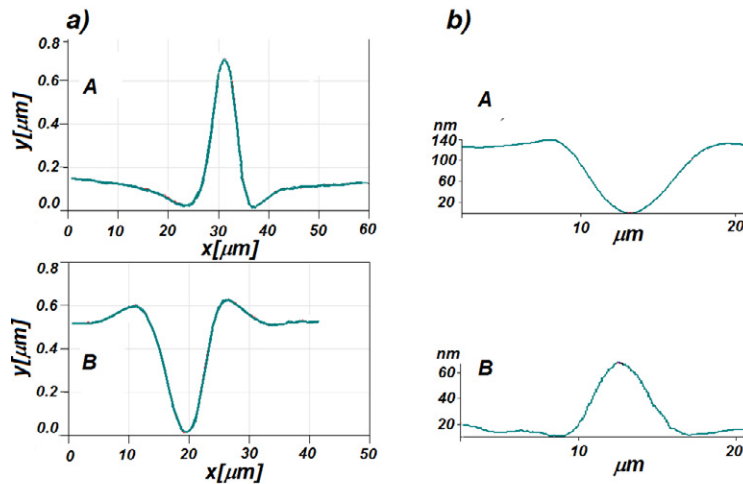


Fig. 2. AFM measurements of SR profile on As_2S_3 (a) and polyurethane (b) films illuminated through optical slit. A – p -polarized recording beam (E vector perpendicular to slit) and s -polarized assisting beam (E vector parallel to slit); B – s -polarized recording beam and p -polarized assisting beam.

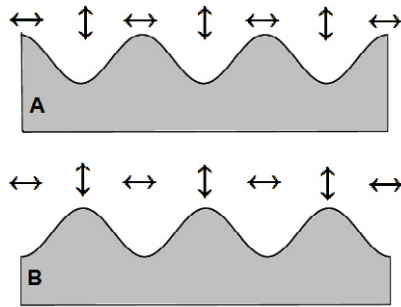


Fig. 3. The position of the surface relief grating regarding an interference pattern using $+45^{\circ}:-45^{\circ}$ or LCP:RCP polarization combinations for recording: A) for As_2S_3 film; B) for DR1 dye grafted polyurethane polymer film.

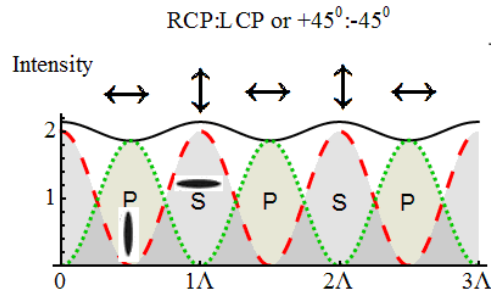


Fig. 4. *s*- and *p*- polarized light components in space-varying polarization pattern on sample for $+45^{\circ}:-45^{\circ}$ or LCP:RCP recording. An orientation of azo-dye molecules due to photoinduced anisotropy is shown for *s*- and *p*- components of light electric field.

of the material displacement in amorphous chalcogenide thin films for *p:p* holographic recording with *s*-assisting light (scheme *p:p*:*s*) is in phase and for scheme *s:s*:*p* out of phase to the maxima in the light interference pattern.

The similar experiments were performed on DR1 grafted polyurethane films. Fig.2b shows that in this case the direction of the photoinduced matter transport is opposite to that obtained with As_2S_3 films. The surface deformation goes down when the recording beam polarization is perpendicular to the slit and goes up when the recording beam polarization is parallel to the slit. Consequently, the photoinduced mass transport process depends not only on the polarization direction but also on the properties of material.

The interference of two orthogonal, circularly (LCP:RCP) or $+45^{\circ}:-45^{\circ}$ linearly polarized beams causes a space-varying polarization pattern on sample (Fig.3 and Fig.4). That space-varying polarization is linear changing periodically along the *x* direction. The peak of the SRG is formed at the position of *p*-polarization state for As_2S_3 films (Fig.3A) and *s*-polarization state for azobenzene polymer films (Fig.3B) in the polarization modulated pattern. This fact is crucial to evaluate the direction of the driving force for SRG formation. Since the SRG is formed by molecular migration, we can consider that the force drives the migration from *s*-polarization state toward the position of *p*-polarization state in case of As_2S_3 films and in the opposite direction for azobenzene polymer films.

3.4. Photoinduced dielectrophoretic model of SRG formation.

We propose a photoinduced dielectrophoretic model to explain the photoinduced mass transport in amorphous films. Model is based on the photoinduced softening of the matrix, formation of defects with enhanced or decreased polarizability, and their drift under the electrical field gradient of light.

It is known that molecules and nano particles can be manipulated in fluidic systems using dielectrophoretic (DEP) forces [24]. A DEP force is generated when a neutral molecule or particle is suspended in a non-uniform electric field. This electric field induces electrical charges within the particle to establish a dipole. If a non-uniform electric field is applied, the ends of the dipole experience unequal Coulombic forces, which result in a total non-zero, imposed force. If the particle is less polarizable than the suspending medium, it is repelled from the regions of higher electric field and the motion is called negative dielectrophoresis, while the opposite case is referred to as positive dielectrophoresis.

An interference pattern on sample surface at $+45^{\circ}:-45^{\circ}$ or LCP:RCP polarization recording can be expressed as a sum of two linearly polarized light components (see Fig.4): with electric vector parallel to

grating vector (P) and with electric vector perpendicular to grating vector (S). For both components the electric field gradient vector is parallel to grating vector. Due to polarization modulation linear polarized light in azo dye containing polymers causes an arrangement of the photo active molecules (see Fig.4). As a result their polarizability regarding the light electric field gradient direction has been increased by S-electric field component and decreased by P-electric field component. Due to the dielectrophoretic forces azo-polymer material is moved out of the P-polarized light component region into S-polarized regions.

4. Conclusions

We have shown that the surface relief grating formation in amorphous As_2S_3 and azobenzene grafted polyurethane films strongly depends on the polarization state of recording beams. The surface relief grating formation efficiency of *s-s* and *p-p* recording beam combination can be essentially enhanced by additional illumination with orthogonal polarization. It is shown that the peak of the SRG is formed at the position of p-polarization state for As_2S_3 films and at s-polarization state for azobenzene polymer films in the polarization modulation pattern. The photoinduced dielectrophoretic model to explain the photoinduced mass transport in amorphous films has been proposed. Model is based on the photoinduced softening of the matrix, formation of defects with enhanced or decreased polarizability, and their drift under the electrical field gradient of light.

Acknowledgements

This work has been supported by the European Development Fund within the project Nr. 2010/0270/2DP/2.1.1.1.0/10/APIA/VIAA/002

References

- [1] Kleman M, Lavrentovich OD. *Soft Matter Physics: An Introduction*. Springer; 2003.
- [2] Chomat H, Ležal D, Gregora I, Srb I. Relief holograms in thin films of amorphous As_2Se_3 under high light exposure. *J Non-Cryst Sol* 1976;**20**:427-37.
- [3] Rochon P, Batalla E and Natansohn A. Optically induced surface gratings on azoaromatic polymer films. *Appl Phys Lett* 1995;**66**:136-8.
- [4] Kim DY, Li L, Tripathy SK, Kumar J. Laser-induced holographic surface relief gratings on nonlinear optical polymer films. *Appl Phys Lett* 1995;**66**:1166-8.
- [5] Hisakuni H, Tanaka K. Giant photoexpansion in As_2S_3 glass. *Appl Phys Lett* 1994;**65**:2925-7.
- [6] Kokenyesi S, Ivan I, Takats V, Palinkas J, Biri S, Szabo IA. Formation of surface structures on amorphous chalcogenide films. *J Non-Cryst Sol* 2000;**353**:1470-3.
- [7] Asatryan KE, Galstian T, Vallee R. Optical polarization driven giant relief modulation in amorphous chalcogenide glasses. *Phys Rev Lett* 2005;**94**:087401-(1-4).
- [8] De Vicente FS, Siu Li M, Messaddeq Y. Holographic recording in $[Sb(PO_3)_3]_n-Sb_2O_3$ glassy films by photoinduced volume and refraction index changes. *J Non-Cryst Sol* 2004;**348**:245-9.
- [9] Bellini B, Ackermann J, Klein H, Graves Ch, Dumas Ph, Safarov V. Light-induced molecular motion of azobenzene-containing molecules: a random-walk model. *J Phys:Cond Matter* 2006;**18**:S1817-35.
- [10] Pavani K, Naydenova I, Martin S, Toal V. Photoinduced surface relief studies in an acrylamide-based photopolymer. *J Opt A: Pure Appl Opt* 2007;**9**:43-8.

- [11] Yang K, Yang S, Kumar J. Formation mechanism of surface relief structures on amorphous azopolymer films. *Phys Rev B* 2006;**73**:165204-(1-11).
- [12] Audorff H, Walker R, Kador L, Schmidt HW. Holographic studies of azobenzene-containing low-molecular-weight organic glasses. *Proc.SPIE* 2009;**7233**:72330O-(1-12).
- [13] Kryshenik VM, Trunov ML, Ivanitsky VP. Vectorial response under photo-excitation in amorphous chalcogenides and azobenzene polymer films: a comparison. *J Optoelectron Adv Mater* 2007;**9**:1949-64.
- [14] Jiang XL, Li L, Kumar J, Kim DY, Shivshankar V, Tripathy SK. Polarization dependent recordings of surface relief gratings on azobenzene containing polymer films. *Appl Phys Lett* 1996;**68**:2618-20.
- [15] Gertners U, Teteris J. Surface relief formation in amorphous chalcogenide thin films during holographic recording. *Opt Mat* 2010;**32**:807-10.
- [16] Pederson TG, Johansen PM, Holme NC, Ramanujam PS. Mean-field theory of photoinduced formation of surface reliefs in side-chain azobenzene polymers. *Phys Rev Lett* 1998;**80**:89-92.
- [17] Yager KG, Barret CJ. All-optical patterning of azo polymer films. *Current Opinion Sol St Mat Sc* 2001;**5**:487-94.
- [18] Kumar J, Li L, Jiang X, Kim D, Lee T, Tripathy S. Gradient force: The mechanism for surface relief grating formation in azobenzene functionalized polymers. *Appl Phys Lett* 1998;**72**:2096-8.
- [19] Aleksejeva J, Gerbreder A, Gertners U, Reinfelde M, Teteris J. Polarization holographic recording in Disperse Red1 doped polyurethane polymer film. *IOP Conf Series Mat Sc Eng* 2011;**23**:012006-(1-4).
- [20] Teteris J, Aleksejeva J, Gertners U. Photoinduced mass transport in soft materials. *IOP Conf Series: Mat Sc Eng* 2011;**23**:012002-(1-6).
- [21] Cai LZ, Yang XL. Interference of circularly polarized light: contrast and application in fabrication of three-dimensional periodic microstructures. *Optics&Laser Techn* 2002;**34**:671-4.
- [22] Jäger C, Bieringer T, Zilker SJ. Bicolor surface reliefs in azobenzene side-chain polymers. *Appl Opt* 2001;**40**:1776-8.
- [23] Trunov ML, Lytvyn PM, Dyachyn'ska OM. Alternating matter motion in photoinduced mass transport driven and enhanced by light polarization in amorphous chalcogenide films. *Appl Phys Lett* 2010;**97**:031905-(1-3).
- [24] Wells GG, Sampara N, Kriezis EE, Fyson J, Brown CV. Diffraction grating with suppressed zero order fabricated using dielectric forces. *Opt.Lett.* 2011;**36**:4404-6.

Optical-field induced volume- and surface-relief formation phenomenon in thin films of vitreous chalcogenide semiconductors

Ugis Gertners*^a, Zanda Gertnere^b, Elina Potanina^a, Janis Teteris^a

^aUniversity of Latvia, Institute of Solid State Physics, 8 Kengaraga street, Riga, LV-1063, Latvia

^bUniversity of Latvia, Institute of Chemical Physics, 19 Raina Blvd., Riga LV-1586, Latvia

ABSTRACT

In this report the study of direct recording of the surface relief gratings on amorphous chalcogenide thin (2.5-5 μ m) films is presented by three different recording setups. Recording was performed on As₂S₃ by 532nm wavelength laser light. Additionally the evolution of surface relief in dependence from the recording time and polarization has been investigated in detail. The mechanism of the direct recording of surface relief on amorphous chalcogenide films based on the photo-induced plasticity has been discussed.

Keywords: polarization, electric field, AFM, chalcogenide thin films

1. INTRODUCTION

The optical recording in photo-resist is based on photo-induced structural transformations which lead to changes in the optical parameters of the material^{1,2}. These changes in a resist material enable a selective removal of regions on a thin film or in the bulk of the illuminated resist by developing and etching. This chemical process is rather complicated requiring various developing solutions (etchants) for different resist materials. Obviously this can turn out to be a bothersome process lowering the overall efficiency of the surface-relief element production process (increased processing time and costs). The demand for lower cost surface-relief elements (grating-based resonators or filters for waveguides, diffractometers, spectrometers, etc) is one of the main driving forces for the investigation of direct light-induced relief formation. This phenomenon was pioneered by the Chomat's *et al* in 1976 on the surface of thin amorphous chalcogenide As₂Se₃ films³. Nowadays the most common techniques for fabricating and investigating these surface-relief gratings involve an interferometric or holographic exposure by laser with the wavelength near to the band gap of the material.

For the last few years researchers have been studying different kinds of light induced deformations in light sensitive materials. The direct surface-relief formation during the holographic recording process⁴⁻⁶ confirms the polarization dependent mass transport. There is a wide range of techniques used for an interpretation and investigation of this polarization-driven mass transport. Number of models has been proposed to explain the origin of the driving force on the molecular level responsible for the surface-relief grating (SRG) formation under the light illumination, these include mean-field theory⁷, permittivity gradient theory⁸, gradient electric force model⁹ and others. Still there is no general agreement on the origin of the driving force for this process and no mechanism yet proposed accounts for all experimental observations.

The interpretation of surface-relief forming processes in the situation of lens based setup^{10,11} is not fully thorough. In this case during the illumination a continuous mass transfer occurs, thus the adjusted focus continuously moves into or out of the matter, which might cause an incorrectly interpretable results (as shown in the [12]). To minimize the error caused by the intensity gradient in the normal direction (the consequence of focused light) the light has to be uniformly distributed in the normal direction of initial surface. There is a group of experiments where it has been achieved: the application of contact mask^{13,14}, anisotropic deformation of free standing flakes or multiple cracks on the thin film caused by the uniform illumination¹⁵ and coherent beam interference experiments^{2,16}. In all the previously mentioned cases it was observed that the formation of surface reliefs is substantially affected by the polarization state of recording beam(s) (a detailed dependency for a holographic recording can be found in [2]). Therefore, there is a reason to believe this is a photo-induced birefringence related process which is being investigated in chalcogenide vitreous semiconductors¹⁷ as well as in various types of polymers¹⁸⁻²⁰.

*gertners@gmail.com; cfi.lu.lv/eng

The main goal of this research is to explore the light induced, polarization dependent deformations in amorphous As_2S_3 and to establish the spatial phase relationship between the surface features and the light intensity distribution. The mass transport dependence on the polarization of light has been investigated using three different direct recording setups.

2. EXPERIMENTAL

Thin films of amorphous As_2S_3 with different thickness ($2.5 - 5.0\mu m$) were prepared by thermal sputtering on glass substrates. The pressure during deposition was around 10^{-6} Torr, the rate of deposition was ~ 20 nm/s and thickness of the films was controlled in a real time by a 650nm diode laser.

The surface relief (SR) formation experiments were performed using three different direct recording setups: holographic, one individual grating and one beam recording setup. The photo-induced surface relief of the films was measured by an atomic force microscope (AFM).

2.1. Direct holographic recording setup

A beam splitter is used to split 532 nm coherent beam into two beams with equal intensities I_1 and I_2 , after which at an angle of 30.8 degrees they interfere on the surface of the film, producing an interference pattern with $1\mu m$ period (Figure 1a.). The two interfering beams independently pass through half wave plate WP to provide a control over the polarization state

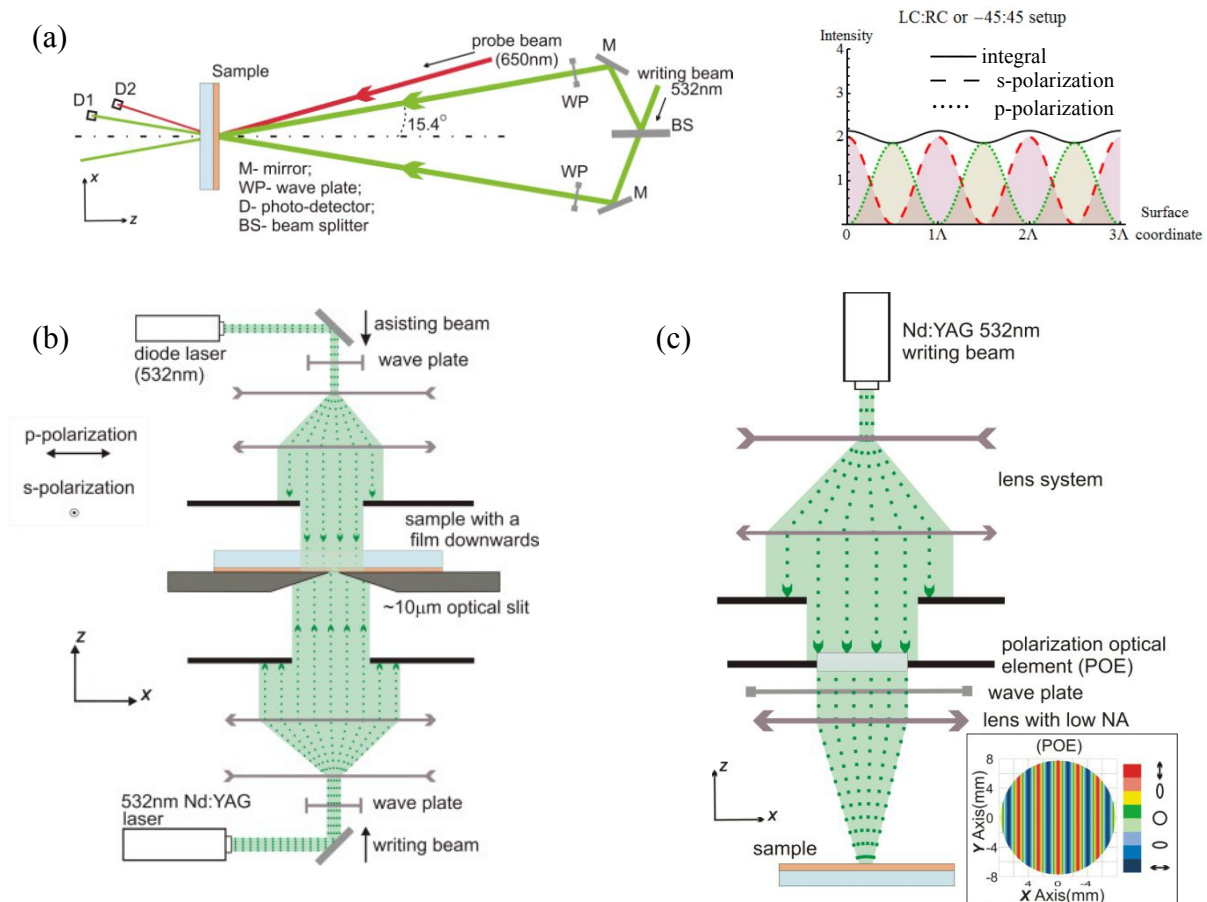


Figure 1. (a) holographic recording setup with false-color plot of a calculation showing polarization distribution for a 45 and -45 degree or circular - anti-circular polarization setup for 1 micron period, (b) one individual grating recording setup with optional incoherent assisting beam and (c) one beam recording setup with false-color plot of a calculation showing polarization distribution for a linearly polarized writing beam passing through the polarization sensitive optical element (P-OE)

of the writing beams. In this case interfering beams with -45 and 45 degrees (*i.e.* 135 and 45 degree) polarization were used for SRG recording. One of the beams after passing through the sample is registered by a photo-diode D_1 . The formation of bulk phase and SR gratings is monitored in real time by diffracting a low power red (650 nm) probe beam from the spot where the two recording beams interfere. The first order diffracted beam from the grating in the transmission mode is detected and registered by a photo-diode D_2 . The diffraction efficiency (DE) and transmission (T) are defined as the intensity ratio of beams registered by D_2 and D_1 to the incident ones, respectively.

2.2. Direct single grating recording setup

When recording by using a holographic setup it is difficult to understand the mass transfer processes because of the periodicity of the surface relief. It is hard to define the point of origin and analyze the mass transfer direction. To avoid this limitation a single beam recording setup was introduced. The main object of which was a narrow $\sim 10\mu\text{m}$ width optical slit (Figure 1b.). Through this slit a sample was exposed by a uniformly distributed and unfocused monochromatic light with a particular polarization. This recording system allows producing of each individual grating from the gratings made by direct holographic recording system and enables to investigate SRG formations dependency on light intensity and its polarization to the individually separated grating.

As previous holographic recording experiments with linearly polarized beam showed that the relief forming efficiency can be significantly improved by additional incoherent assisting beam⁴, the same approach was utilized for this setup. Therefore for the writing beam a 532nm Nd:YAG *Coherent Verdi 8W* laser and for the assisting beam other incoherent 532nm diode laser were used. The wave plates WP were used for the combination of polarization states of the beams. The As_2S_3 samples with 2.1 μm thickness were exposed 60 min at a room temperature.

2.3. Single-beam recording setup with polarization-sensitive optical element

Other group of experiments that will be discussed in this paper contains a single-beam recording system with polarization-sensitive optical element (P-OE, scheme in Figure 1c.). This optical element converts linearly polarized light from a monochromatic source to a beam of light with spatially varying polarization. False-color plot of calculation showing polarization distribution for a linearly polarized source beam passing through the optical element is shown in Figure 1c. These periodic structures are with period $\sim 2\text{mm}$ thus to investigate light-matter interaction a lens system was used to focus the image on the surface of sample. For the writing beam a 532nm Nd:YAG *Coherent Verdi 8W* laser was used.

3. RESULTS

3.1. Direct holographic recording

If we consider various combinations of polarization in the case of holographic recording it has been determined that the highest possible modulation of direct SRG recording can be achieved only in two cases – using -45:45 degree and circular:anti-circular (RC:LC) polarization⁴. Both of these combinations stand out in the theoretical interference pattern calculations (shown in Figure 1a). The contrast in these cases is very close to zero – almost uniform intensity distribution, but the electric field distribution contains s and p components which are in opposite phases and the contrast for each component is 1. Since in monolayers of amorphous chalcogenides (and other certain photo-resist materials) this direct-recording process is reversible¹⁶, there is only one possibility for the lateral mass transfer: the mass moves parallel to the intensity gradient and in an opposite direction with respect to the polarization of the electric field gradient.

It can be verified experimentally with this holographic recording setup by changing polarization of the probe beam from p- to s-polarization and/or vice versa for the same experiment. The dotted and dashed curves in Figure 2 show the dependence of transmission DE on p- and s- probe beam polarization state, respectively. At the start-up phase where the transmission drops, the formation of bulk phase gratings is monitored: the transmission curve clearly saturates and the peak in the diffraction efficiency of p-polarization probe beam appears (inset in Figure 2a). For the s-polarized probe beam no maximum in DE was observed at this point, which can be explained by the photo-induced birefringence Δn . In covalent chalcogenide glasses the birefringence is negative, *i.e.*, $\Delta n = n_{\parallel} - n_{\perp} < 0$ ²¹, where n_{\parallel} and n_{\perp} are the refractive indices parallel and perpendicular to the electric field of excitation light, respectively. Therefore, before holographic recording refractive index for the As_2S_3 film is constant. At the first recording seconds periodic refractive index starts to form a bulk phase grating (see simplified model in Figure 2b), thus (by taking into account that $\Delta n < 0$) for the s-polarized (1) and p-polarized (2) probe beam:

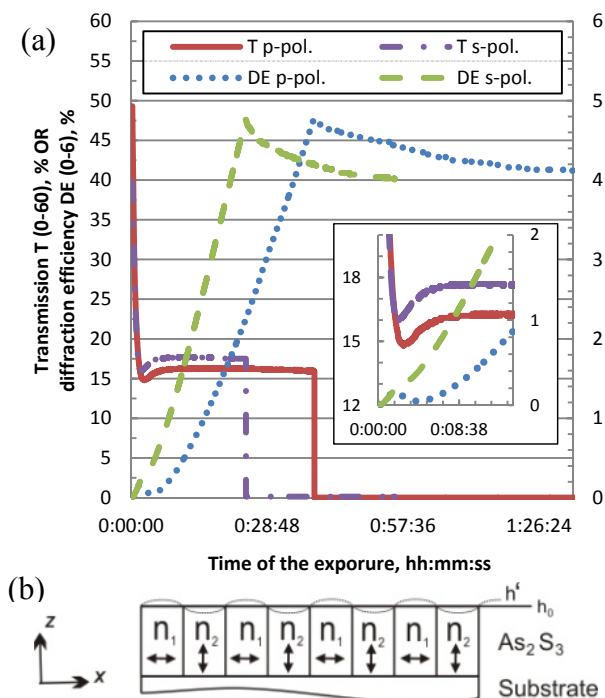


Figure 2. (a) Transmission of the writing beam (solid and dashed-dotted curves) and diffraction efficiency from the probe beam (dotted and dashed curves) of a two holographic recording experiments (-45 and 45 degree setup) shows dependency from the probe beam polarization state; (b) simplified SRG formation model

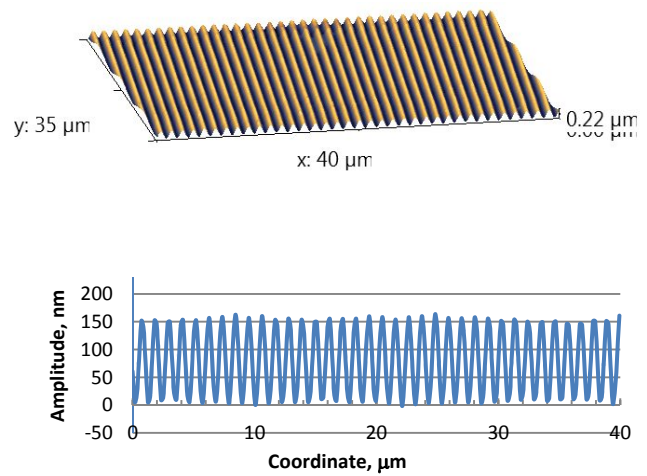


Figure 3. Typical high quality large area diffraction gratings and its profile made by direct holographic recording setup

$$n_1 \cdot h_0 > n_2 \cdot h_0 \tag{1}$$

$$n_1 \cdot h_0 < n_2 \cdot h_0 \tag{2}$$

where h_0 thickness of the As_2S_3 film. This difference between $n_1 h_0$ and $n_2 h_0$ grows and DE increases for both of them until surface-relief formation takes place. Then for the s-polarized (3) and p-polarized (4) probe beam:

$$n_1 \cdot h_1' > n_2 \cdot h_2' \tag{3}$$

$$n_1 \cdot h_1' < n_2 \cdot h_2' \tag{4}$$

where h_1' thickness of the As_2S_3 film during SRG formation. Subsequently h_1' increases and h_2' decreases or vice versa. As mentioned above, at the start-up phase for the p-polarized probe beam a maximum in DE appears whereas for the s-polarized beam- not. It can be only explained by the fact that h_1' increases and h_2' decreases during the direct holographic recording. Therefore for the s- polarized probe beam where n_1, h_1' are increasing and n_2, h_2' are decreasing, the DE curve rises continuously. Other sequence of events is for the p- polarized probe beam where n_2, h_1' are increasing and n_1, h_2' are decreasing during recording. At the beginning formation of bulk phase gratings occurs, which causes the growth of DE. Afterwards newly formed surface-relief starts to erase DE thus a maximum appears. Following is a steady increase of DE because $\Delta h_1'$ takes over Δn_1 , which is true for both polarizations.

To investigate the behavior of newly produced surface-relief gratings, relaxation of the DE for the p- and s-polarized probe beam was monitored: when DE reached $\sim 4.6\%$ (dotted and dashed curves in Figure 2a) the writing laser was switched off and after that the DE of both polarizations relaxed to $\sim 4\%$. As can be seen in Figure 3 it is possible to obtain large area and high quality gratings which are very stable at a room temperature.

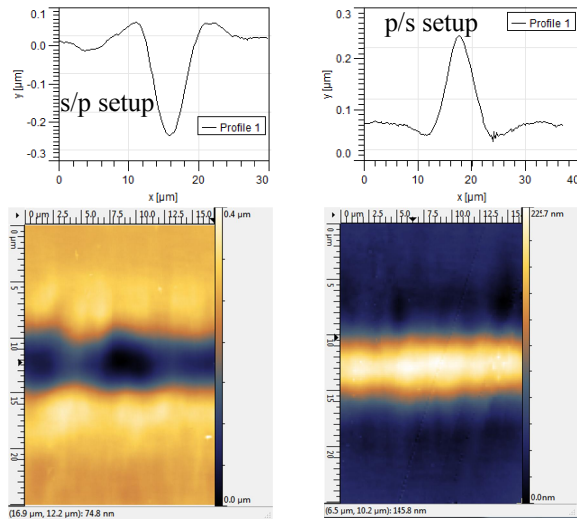


Figure 4. Surface-relief 2D topography and its profile (obtained by AFM) of an optical slit experiments showing different mass transfer directions with respect to the writing and assisting beams polarization with respect to the writing and assisting beams polarization state (mentioned as a writing-polarization/assisting-polarization)

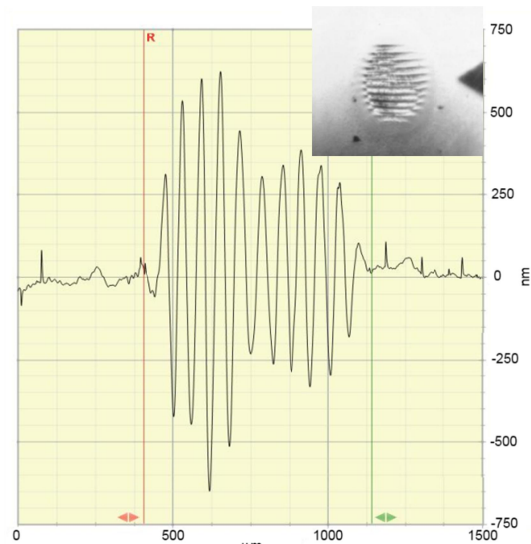


Figure 5. Profilometer profile and 2D picture of a focused one beam experiment (scheme in Figure 1c.)

3.2. Direct single grating recording

Previously viewed holographic recording only indirectly explains the mass transfer processes during recording. In order to verify the influence of polarization state of the recording beams on SR formation we performed experiments with an illumination of amorphous As_2S_3 films through optical slit (scheme is shown in Figure 1b), afterwards the formed SR of the samples was studied by AFM. Actually these experiments simulate the recording of single line grating enabling to evaluate the dependence of photo-induced mass transport direction on the polarization state of recording light. The single beam experiments with the writing beam polarized parallel to the optical slit are similar to the holographic recording of SRG with s:s polarization, and the single beam experiments with the writing beam polarization perpendicular to the optical slit are similar to the p:p holographic recording.

The first obtained recordings independently from the polarization were insignificant (few nm in height). As previous experiments with direct holographic recordings showed that relief forming efficiency can be significantly improved by additional incoherent assisting beam⁴, the same approach was utilized for further experiments. The illumination of the samples through slit performed with s- or p-polarized recording beam in combination with orthogonally polarized assisting beam simulates the SRG formation with $+45^\circ$:- 45° or RC:LC polarized beams at holographic recording. It is seen (Figure 4) that the direction of the photo-induced matter transport in both cases is with opposite sign. Consequently, s-polarized recording beam assisted with p-polarized light (s/p setup) creates a contraction of the film or a formation of valley but p-polarized recording beam assisted with s-polarized light (p/s setup) creates an expansion of the film or a formation of a hill. These results are consistent with a conclusion obtained in the 3.1. section.

3.3. Single-beam recording setup with polarization-sensitive optical element

As it turns out it is possible to obtain periodic polarization distribution (as it is for the -45° : 45° holographic setup) from a single laser beam- just by using a polarization-sensitive optical element which converts linearly polarized light from a monochromatic source to a polarization that varies spatially. The gratings obtained with this particular optical element are with period ~ 2 mm at 532nm thus to observe measurable results a lens system (scheme in Figure 1c) was used. Due to this focusing option it is very difficult to estimate the direction of mass movement versus the polarization, therefore we just establish the fact of mass transfer. As shown in Figure 5 this SRG recording technique works well- periodic surface-relief structures with 55 μ m period and 500nm amplitude was obtained. This once more confirms that the mass transfer can manifest in different ways. This direct SRG recording technique is very promising due to its simplicity, stability and lack of requirement for expensive coherent laser.

3.4. Photo-induced dielectrophoretic model of SRG formation

We propose a photo-induced dielectrophoretic model to explain the photo-induced mass transport in amorphous films. Model is based on the photo-induced softening of the matrix, formation of defects with enhanced or decreased polarizability and their drift under the electrical field gradient of light. It is known that molecules and nano particles can be manipulated in fluidic systems using dielectrophoretic (DEP) forces²². A DEP force is generated when a neutral molecule or particle is suspended in a non-uniform electric field. This electric field induces electrical charges within the particle to establish a dipole. If a non-uniform electric field is applied, the ends of the dipole experience unequal Coulombic forces, which result in a total non-zero imposed force. If the particle is less polarizable than the suspending medium, it is repelled from the regions of higher electric field and the motion is called negative dielectrophoresis while the opposite case is referred to as positive dielectrophoresis.

An interference pattern on the surface of sample at $+45^\circ$:- 45° or LC:RC polarization recording can be expressed as a sum of two linearly polarized light components (see Figure 1a) with electric vector parallel to the grating vector and with electric vector perpendicular to the grating vector. For both components the electric field gradient vector is parallel to grating vector. Due to polarization modulation linear polarized light in amorphous films causes an arrangement of polar photo-induced defects. As a result their polarizability regarding the light electric field gradient direction has been increased by p-electric field component and decreased by s-electric field component. Due to the dielectrophoretic forces material is moved out of the s-polarized light component region into p-polarized regions.

4. CONCLUSION

We have investigated that the light-induced mass transfer process for amorphous As_2S_3 strongly depends on the polarization of the light. The behavior of mass transfer and thus the resulting recording could be related to interaction between the polar photo-induced defects and the polarized electric field of recording beam. It has been shown that the mass transfer can be directed both ways – towards or away from the electric field intensity gradient. Since the SRG is formed by molecular migration, we can confirm that the force drives the migration from s-polarization state toward the position of p-polarization state in case of As_2S_3 films. The recording efficiency in an arbitrary recording setup using linearly polarized light can be significantly improved by introducing additional incoherent orthogonally polarized assisting illumination.

A direct recording technique of SRG is a comparatively new solution for lithography and, as shown in this article, provides new experimental techniques for better understanding of the interaction between the light and matter. The obtained gratings are very stable at room temperature, so these methods can replace some of the chemical etching techniques and find a practical application in the applied physics.

ACKNOWLEDGEMENTS

This work has been supported by the European Social Fund within the project «Support for Doctoral Studies at University of Latvia».

REFERENCES

- [1] Tanaka, K. and Shimakawa, K., [Amorphous Chalcogenide Semiconductors and Related Materials], Springer, New York (2011).
- [2] Kryshenik, V.M., Trunov, M.L., Ivanitsky, V.P., “Vectorial response under photo-excitation in amorphous chalcogenides and azobenzene polymer films: a comparison,” *J. Optoelectron Adv. Mater.*, 9(7), 1949 (2007).
- [3] Chomat, M., Lezal, D., Gregora, I., Srb, I., “Relief holograms in thin films of amorphous As_2Se_3 under high laser exposures,” *J. Non-Cryst Solids* 20, 427–437 (1976).
- [4] Gertners, U., Teteris, J., “Surface relief formation in amorphous chalcogenide thin films during holographic recording,” *Opt. Mat.*, 32, 807–810 (2010).
- [5] Florea, C., Sanghera, J. S., Shaw, L. B., Nguyen, V. Q., Aggarwal, I. D., “Surface relief gratings in AsSe glass fabricated under 800-nm laser exposure,” *Mat. Lett.*, 61, 1271–1273 (2007).
- [6] Guo, Z., Qu, S., Ran, L., Lui, S., “Modulation grating achieved by two interfered femtosecond laser pulses on the surface of the silica glass,” *Appl. Surf. Sci.* 253, 8581–8583 (2007).

- [7] Pedersen, T. G., Johansen, P. M., Holme, N. C., Ramanujam, P. S., "Mean-Field Theory of Photoinduced Formation of Surface Reliefs in Side-Chain Azobenzene Polymers," *Phys. Rev. Lett.*, 80, 89–92 (1998)
- [8] Yager, K. G., Barret, C. J., "All-optical patterning of azo polymer films," *Cur. Opinion Sol. St. Mat. Sc.*, 5, 487–494 (2001).
- [9] Kumar, J., Li, L., Jiang, X., Kim, D., Lee, T., Tripathy, S., "Gradient force: The mechanism for surface relief grating formation in azobenzene functionalized polymers," *Appl. Phys. Lett.*, 72, 2096 (1998).
- [10] Hisakuni, H., Tanaka, K., "Giant photoexpansion in As₂S₃ glass," *Appl. Phys. Lett.*, 65, 2925 (1994).
- [11] Bian, S., Li, L., Kumar, J., Kim, D. Y., Williams, J., Tripathy, S. K., "Single laser beam-induced surface deformation on azobenzene polymer films," *Appl. Phys. Lett.*, 73(13), 1817–1819 (1998).
- [12] Ishitobi, H., Tanabe, M., Sekkat, Z., Kawata, S., "The anisotropic nanomovement of azo-polymers," *Opt. Express* 15(2), 652–659 (2007).
- [13] Gertners, U., Teteris, J., "Light intensity and its polarization relation to the photoinduced mass movement in thin layers of chalcogenide vitreous semiconductors," *J. Optoelectron. Adv. Mater.*, 13 (11-12), 1462–1466 (2011).
- [14] Kokenyesi, S., Ivan, I., Takats, V., Palinkas, J., Biri, S., Szabo, I. A., "Formation of surface structures on amorphous chalcogenide films," *J. Non-Cryst. Solids* 353, 1470–1473 (2007).
- [15] Tanaka, K., Terakado, N., Saitoh, A., "Photoinduced anisotropic deformations in covalent chalcogenide glasses," *J. Optoelectron. Adv. Mater.*, 10(1), 124–130 (2008).
- [16] Gertners, U., Teteris, J., "Photo-induced Mass Transfer in Chalcogenides," *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, 23, 012007 (2011).
- [17] Saliminia, A., Galstian, T. V., Villeneuve, A., "Optical Field-Induced Mass Transport in As₂S₃ Chalcogenide Glasses," *Phys. Rev. Lett.*, 85(19), 4112–4115 (2000).
- [18] Cojocariu, C., Rochon, P., "Light-induced motions in azobenzene containing polymers," *Pure Appl. Chem.*, 76(7-8), 1479–1497 (2004).
- [19] Yang, J., Zhang, J., Liu, J., Wang, P., Ma, H., Ming, H., Li, Z., Zhang, Q., "Holographic grating recording in azobenzene polymer films," *Opt. Mat.*, 27, 527–532 (2004).
- [20] Mohajerani, E., Nataj, N. H., "Studying the temperature dependence of the laser induced birefringence in azo dye doped polymer films," *Opt. Mat.*, 29, 1408–1415 (2007).
- [21] Zhdanov, V. G., Malinovsky, V. K., "Photoinduced birefringence and dichroism in As₂S₃ films," *Sov. Tech. Phys. Lett.*, 3, 387–388 (1977).
- [22] Wells, G. G., Sampara, N., Kriezis, E. E., Fyson, J., Brown, C. V., "Diffraction grating with suppressed zero order fabricated using dielectric forces," *Opt. Lett.*, 36, 4404–4406 (2011).

10th International Conference Solid State Chemistry, Pardubice, Czech Republic

Photo-induced Mass Transport in Thin Films of Amorphous As₂S₃

Ugis Gertners* Janis Teteris

Institute of Solid State Physics, 8 Kengaraga Str., LV1063, Latvia

Abstract

In this report direct photo-induced formation of surface relief gratings (SRG) in thin layers of arsenic sulfide (As₂S₃) are shown. This anisotropic light-induced mass transfer phenomenon has been discussed with the special attention focused on the polarization and intensity of the corresponding light. The experimental setup for the SRG recording is straight-forward consisting of ~10μm optical slit through which an unfocused beam of light is projected on the surface of sample. The evolution of surface relief in dependence from the recording time and polarization has been investigated in detail. The processes of SRG formation and mass transfer which are based on the photo-induced plasticity have discussed.

© 2013 The Authors. Published by Elsevier B.V.

Selection and/or peer-review under responsibility of the Organisation of the 10th International Conference on Solid State Chemistry.

Keywords: Amorphous chalcogenide films; AFM; Electric field; Surface relief; Polarization

1. Introduction

Due to the wide range of light induced anisotropic changes of chemical properties, fluidity, viscosity, absorption and refraction (birefringence) [e.g., 1, 2] amorphous chalcogenides are very attractive for a multiple patterning. These changes in a resist material enable a selective removal of regions on a thin film or in the bulk of the illuminated resist by developing and etching. This chemical process is rather complicated requiring various developing solutions (etchants) for different resist materials. Obviously this

* Corresponding author. Tel.: +371 28751557

E-mail address: gertners@gmail.com.

can turn out to be a bothersome process lowering the overall efficiency of the surface-relief element production process (increased processing time and costs). The demand of lower cost surface-relief elements (grating-based resonators or filters for waveguides, diffractometers, spectrometers, etc) is one of the main driving forces for the investigation of direct light-induced relief formation on the surface of thin amorphous chalcogenide As_2S_3 films, which was pioneered by the Chomat's et al in 1976 [3]. In fact due to the constant advancements in the field of lasers and related optics the interest about the interaction of light and matter is growing exponentially. The most common techniques for fabricating and investigating these surface-relief gratings involve an interferometric or holographic exposure by laser with the wavelength near to the band gap of the material.

In the last few years researchers have been studying different kinds of light induced deformations in the light sensitive materials. The direct surface-relief formation during the holographic recording process [4-6] confirms the polarization dependent mass transfer. There are a wide range of techniques used for an interpretation and investigation of this polarization-driven mass transfer. The interpretation of surface-relief forming processes in the situation of lens based setup [e.g., 7, 8] is not fully thorough. In this case during the illumination a continuous mass transfer occurs, thus the adjusted focus continuously moves into or out of the matter, which might cause an incorrectly interpretable results (as shown in the [9]). To minimize the error caused by the intensity gradient in the normal direction (the consequence of focused light) the light has to be uniformly distributed in the normal direction of initial surface. There is a group of experiments where it has been achieved: the application of contact mask [10, 11], anisotropic deformation of free standing flakes or multiple cracks on the thin film caused by the uniform illumination [12] and coherent beam interference experiments [e.g., 2, 13]. In all the previously mentioned cases it was observed that the formation of surface reliefs is substantially affected by the polarization state of recording beam(s) (a detailed dependency for a holographic recording can be found in [2]). Therefore, there is a reason to believe this is a photoinduced birefringence related process which is being investigated in chalcogenide vitreous semiconductors [14] as well as in various types of polymers [15-17].

Holographically the largest possible modulation of SRG can be obtained by orthogonal -45:45 degree or circular:anti-circular polarization of the recording beams [4]. In contrast, more trivial recording conditions (p and p, p and s, s and s setups) produce a very low diffraction efficiency and small surface modulation. In the latter cases the recording efficiency can be improved by introducing an optional incoherent assisting light with a specific polarization [4]. If the right conditions are met the diffraction efficiency is more or less similar for all recording beam geometries (excluding s:p setup). Thus it is relevant to investigate this anisotropic light-induced mass transfer in finer details for a better understanding of involved physics and improvements in the production technology of optical elements.

In this paper a new kind of approach of anisotropic light induced, polarization dependent deformations in amorphous As_2S_3 is shown. In order to minimize misleading interpretations this approach excludes focused light or periodic light patterns (as it is used for holographic recording). The mass transfer dependence on the intensity and polarization of light has been investigated using a simple setup of optical slit illuminated by uniform field of light.

2. Experimental

Amorphous chalcogenide As_2S_3 films on glass with thickness of 0.5-4.0 μm were obtained by thermal evaporation and the thickness of the film was controlled in a real time by a 650nm diode laser. A single beam recording setup (shown in Fig.1.) was utilized to obtain surface modulation in the As_2S_3 samples, which were illuminated by homogenized 532 nm laser light through 10 μm wide optical slit. An optional incoherent assisting 532 nm laser source was used for softening purposes of the film thus improving the

recording efficiency. Polarization of recording and assisting beams was varied by half-wave and quarter-wave plates. The obtained surface relief was mapped by atomic force microscopy (AFM) using Veeco CPII.

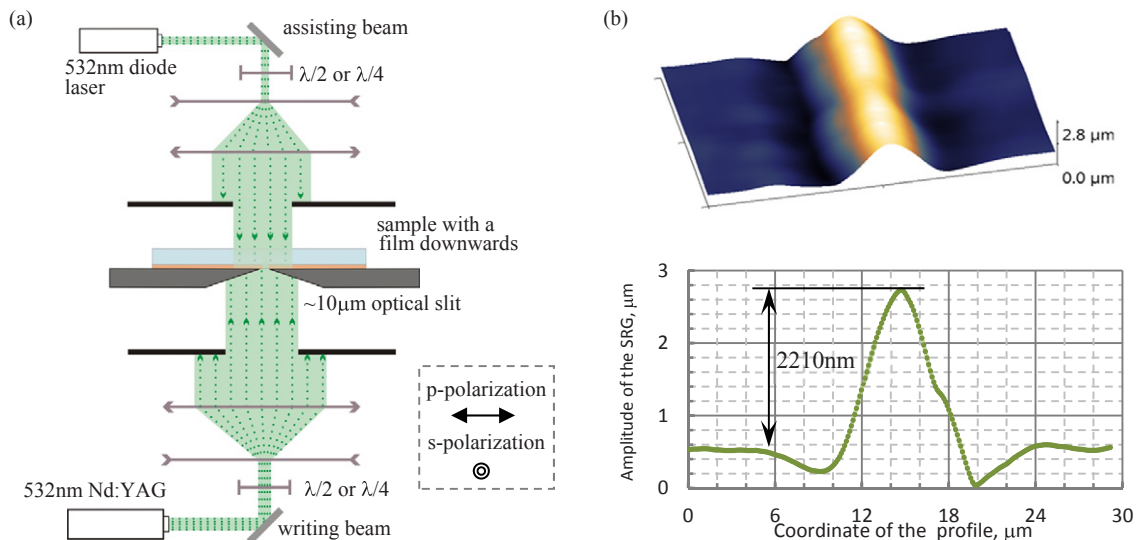


Fig. 1. (a) experimental setup for formation of surface-relief structures by illumination through an adjustable optical slit; (b) 3D AFM topography picture and its profile of the $3.3\mu\text{m}$ thick As_2S_3 sample obtained by p-polarized $3\text{W}/\text{cm}^2$ illumination through optical slit and with incoherent s-polarized $1.5\text{W}/\text{cm}^2$ assisting beam (p/s setup), the length of exposure was 5h.

3. Results

If we consider various combinations of polarization in the case of holographic recording it has been determined [4] that the highest possible modulation of SRG can be achieved only in two cases – -45 and 45 degree or anti circular RCP and LCP setup. Both of these combinations stand out in the theoretical interference pattern calculations [10], their contrast is very close to zero (the intensity distribution is almost uniform). In contrary, the electric field distribution in these cases contains s and p components which are in opposite phases and the contrast for each component is 1. Since in monolayers of amorphous chalcogenides (and other certain photo-resist materials) this process is reversible [13], there is only one possibility for the lateral mass transfer: the mass moves parallel to the intensity gradient and in a opposite direction with respect to the polarization of electric field gradient. To investigate the mass transfer in these directions, a single unfocused beam recording system has been used. Unfortunately these experiments did not show any considerable mass transfer for any polarization and intensity thus an optical incoherent assisting beam with the same wavelength (532nm) was used (see recording setup in Fig. 1a.) to simulate the holographic recording conditions as it is in the case of -45 and 45 degree or RCP and LCP polarization setup.

The cross-profiles of SRGs obtained in the optical slit experiments with an assisting beam are shown in Fig.1b. Due to the mass transfer a huge ridge ($\Delta d/d=67\%$ from the initial surface and 83% total deformation) has been obtained by the p/s setup (polarization of the writing and assisting beam are perpendicular and parallel to the slit respectively). Our opinion is that it is possible to obtain even greater

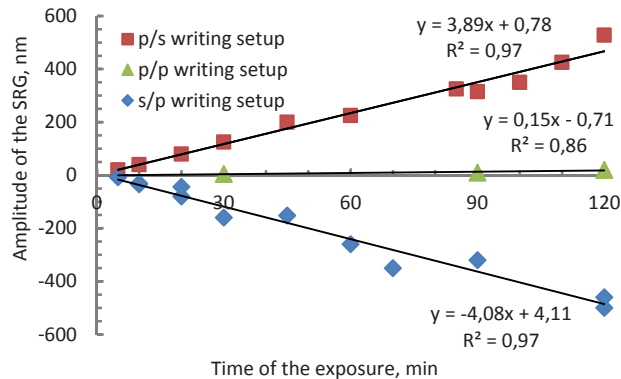


Fig. 2. Amplitude of the SRG versus time of the exposure for different polarization combinations of the writing and assisting beams (a/b symbols denote polarization for the writing and the assisting beams respectively) in optical slit experiments, intensity of the writing and assisting beam kept constant at $4.24\text{W}/\text{cm}^2$ and $0.37\text{W}/\text{cm}^2$ respectively

relief by longer exposure or by varying the intensity of writing and assisting beams. Therefore a major restriction for the growth of the SRG is only the thickness of photo-resist film. The minimum positions of the obtained profile (Fig.1b., 9 and 20 μm) correspond to the location of slit edges, *i.e.*, positions of high electric field gradient. It appears that in these regions the mass transfer is the most active, resulting in the formation of W-shaped profile. Thus the active region for the mass transfer was $\sim 19\mu\text{m}$ (Fig.1b., from 5 to 24 μm) therefore there were at least 4.5 μm thick regions on both sides of the slit which were illuminated only by the assisting beam but, nevertheless, they had an impact on the process of relief formation.

To identify the influence of outside factors on the surface-relief formation, experiments with various exposure times and a wide range of intensities for the writing and assisting beam has been conducted. The time dependent formation of ridges and grooves for the $10\mu\text{m}$ wide slit are shown in Fig.2. where the experimental points are the surface profile amplitudes (from the initial surface). As can be seen, in the case of different polarization of the writing beams the direction of mass transfer is opposite. For the s polarization (s/p setup: polarization of the writing beam is parallel to the slit) the mass is transported away from the illuminated area thus forming a groove, but for the p polarization (p/s setup) this process is inverted – the mass is transported into the illuminated area thus forming a ridge. Note that the assisting beams were polarized orthogonally to the writing beams making the recording conditions similar to those for RCP and LCP or -45° and 45° holographic recording setup. The symbol a/b denotes the possible combinations of polarization, a – for the recording beam and b – for the assisting beam.

It can be seen that the formation of ridges as well as grooves in Fig.2. are strongly linear thus the data are approximated with linear trend lines. As the slope coefficients show, the gain of this surface-relief formation by orthogonally polarized assisting beam is $\pm 4\text{nm}/\text{min}$ (“+” for p/s and “-” for s/p setup). After a 5h exposure the amplitude will reach 1200 nm which is a half of the amplitude obtained by 3 and $1.5\text{W}/\text{cm}^2$ for the writing and assisting beams respectively ($7.4\text{nm}/\text{min}$, Fig.1b). Therefore, additional experiments are required to determine the optimal recording parameters for the best efficiency of direct

surface-relief formation for this setup. When the polarization of the recording and assisting beams coincide (e.g., p/p setup in Fig.2.), the obtained grating was with more than 25 times lower amplitude. Similar results have been obtained by s/s setup forming shallow grooves (not depicted in this work). Thus the direction of mass transfer is restricted only by the polarization of the writing beam. The relief

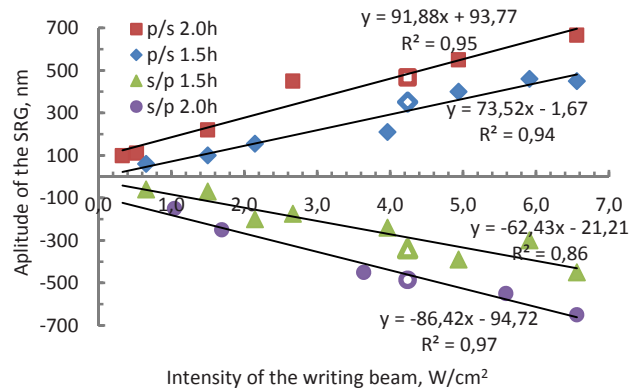


Fig.3. Amplitude of the SRG versus intensity of the writing beam for different polarization combinations of the writing and assisting beams and exposure lengths (1.5 and 2.0h) in optical slit experiments, The intensity of assisting beam kept constant at $0.37\text{W}/\text{cm}^2$

formation can be substantially enhanced by an assisting beam with a specific polarization. Note that the relief obtained without assisting beam was unnoticeable for all recording parameters and exposure lengths, thus in order to investigate SRG obtained only with a single writing beam, more sensitive experiments and AFM measurements are necessary.

The obtained amplitudes of SRG's made in optical slit experiments versus intensity of the writing beam is shown in Fig.3. The intensity of assisting beam was held the same as in the experiments depicted in Fig.2.: $0.37\text{W}/\text{cm}^2$ but for the intensity of writing beam was changed from 0.3 up to $6.6\text{W}/\text{cm}^2$. Despite the wide changes in the intensity of the writing beam, for all combinations of the recording setup and time of exposure the formation of surface-relief is strongly linear. The blank points which were calculated from the Fig.2. trend line equations fit well in the results for a particular recording setup. Therefore, if there is a negative thermal affect in the process of surface-relief formation, it probably manifests only at higher radiation densities. By comparing the slope coefficients for this case it can be seen that the formation of ridges is slightly more effective than the formation of grooves.

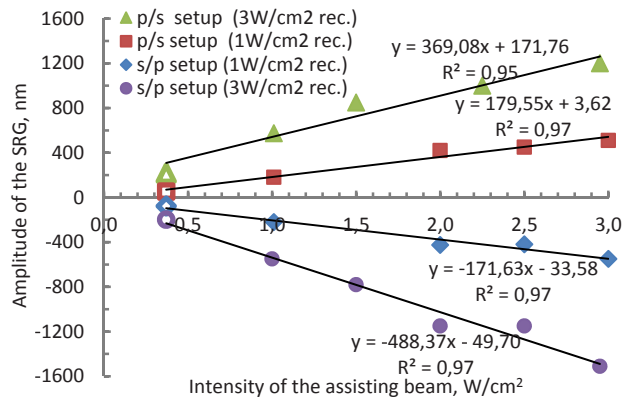


Fig.4. Amplitude of the SRG versus intensity of the assisting beam for different polarization combinations of the writing and assisting beams in optical slit experiments. The intensity of the writing beam kept at 1 and 3W/cm², the time of exposure 1.5h

In the previously reviewed experiments the intensity of the assisting beam was held constant and comparatively low, *i.e.*, 0.37W/cm². The amplitude obtained in the optical slit experiments with the assisting beam intensity varied from 0.37 up to 3W/cm² is shown in Fig.4. The intensity of the writing beam was 1 or 3W/cm² and the exposure were kept at 1.5 h. In this case the formation of surface-relief is also strongly linear for a wide range of assisting beam intensities. The blank points have been calculated from the trend line equations of Fig.3., they fit well in the extended trend lines of the corresponding recording setups. By adjusting the intensity of assisting beam it is possible to obtain comparatively greater surface-relief structures. When the intensity of writing and assisting beams are kept at 3W/cm² after a 1.5h long exposure it is possible to obtain roughly 1.3 micron structures. Therefore the intensity of assisting beam is not meaningless for the direct surface-relief structure patterning.

4. Conclusion

We have investigated that the light-induced mass transfer process for amorphous As₂S₃ strongly depends on the polarization of the light. The behavior of mass transfer and thus the resulting recording could be related to interaction between the polar photo-induced defects and the polarized electric field of recording and assisting illumination. It has been shown that the formation of surface relief grating in amorphous As₂S₃ films closely depends on the superposition of electric field of recording and assisting beams, thus the mass transfer can be directed both ways – towards or away from the electric field intensity gradient. The recording efficiency in an arbitrary recording setup using linearly polarized light can be significantly improved by introducing additional incoherent orthogonally polarized assisting illumination.

A direct recording technique of SRG is a comparatively new solution for lithography and, as shown in this article, provides new experimental techniques for better understanding of the interaction between the light and matter. The obtained gratings are very stable at room temperature, so this method can replace some of the chemical etching techniques and find a practical application in the applied physics.

Acknowledgements

This work has been supported by the European Regional Development Fund within the project Nr. 2010/0270/2DP/2.1.1.1.0/10/APIA/VIAA/002

References

- [1] Tanaka K, Shimakawa K. *Amorphous Chalcogenide Semiconductors and Related Materials*, New York: Springer; 2011.
- [2] Kryshenik VM, Trunov ML, Ivanitsky VP. Vectorial response under photo-excitation in amorphous chalcogenides and azobenzene polymer films: a comparison. *J Optoelectron Adv Mater* 2007; **9(7)**: 1949–1964.
- [3] Chomat M, Lezal D, Gregora I, Srb I. Relief holograms in thin films of amorphous As₂Se₃ under high laser exposures. *J Non-Cryst Solids* 1976; **20**: 427–437.
- [4] Gertners U, Teteris J. Surface relief formation in amorphous chalcogenide thin films during holographic recording. *Opt Mat* 2010; **32**: 807–810.
- [5] Florea C, Sanghera JS, Shaw LB, Nguyen VQ, Aggarwal ID. Surface relief gratings in AsSe glass fabricated under 800-nm laser exposure. *Mat Lett* 2007; **61**: 1271–1273.
- [6] Guo Z, Qu S, Ran L, Lui S. Modulation grating achieved by two interfered femtosecond laser pulses on the surface of the silica glass. *Appl Surf Sci* 2007; **253**: 8581–8583.
- [7] Hisakuni H, Tanaka K. Giant photoexpansion in As₂S₃ glass. *Appl Phys Lett* 1994; **65**: 2925.
- [8] Bian S, Li L, Kumar J, Kim DY, Williams J, Tripathy SK. Single laser beam-induced surface deformation on azobenzene polymer films. *Appl Phys Lett* 1998; **73(13)**: 1817–1819.
- [9] Ishitobi H, Tanabe M, Sekkat Z, Kawata S. The anisotropic nanomovement of azo-polymers. *Opt Express* 2007; **15(2)**: 652–659.
- [10] Gertners U, Teteris J. Light intensity and its polarization relation to the photoinduced mass movement in thin layers of chalcogenide vitreous semiconductors. *J Optoelectron Adv Mater* 2011; **13(11-12)**: 1462–1466.
- [11] Kokenyesi S, Ivan I, Takats V, Palinkas J, Biri S, Szabo IA. Formation of surface structures on amorphous chalcogenide films. *J Non-Cryst Solids* 2007; **353**: 1470–1473.
- [12] Tanaka K, Terakado N, Saitoh A. Photoinduced anisotropic deformations in covalent chalcogenide glasses. *J Optoelectron Adv Mater* 2008; **10(1)**: 124–130.
- [13] Gertners U, Teteris J. Photo-induced Mass Transfer in Chalcogenides. *IOP Conf Ser: Mater Sci Eng* 2011; **23**: 012007.
- [14] Saliminia A, Galstian TV, Villeneuve A. Optical Field-Induced Mass Transport in As₂S₃ Chalcogenide Glasses. *Phys Rev Lett* 2000; **85(19)**: 4112–4115.
- [15] Cojocariu C, Rochon P. Light-induced motions in azobenzenecontaining polymers. *Pure Appl Chem* 2004; **76(7-8)**: 1479–1497.
- [16] Yang J, Zhang J, Liu J, Wang P, Ma H, Ming H, Li Z, Zhang Q. Holographic grating recording in azobenzene polymer films. *Opt Mat* 2004; **27**: 527–532.
- [17] Mohajerani E, Nataj NH. Studying the temperature dependence of the laser induced birefringence in azo dye doped polymer films. *Opt Mat* 2007; **29**: 1408–1415.