

Физическая оптика

Научная статья

УДК 535.412; 532-3

DOI: <https://doi.org/10.18721/JPM.18411>

ОСОБЕННОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ ГОЛОГРАФИЧЕСКИХ СТРУКТУР, ЗАПИСАННЫХ В КОНТРНАПРАВЛЕННОЙ ОПТИЧЕСКОЙ СХЕМЕ НА ФОТОЭМУЛЬСИИ, ПОДВЕРГНУТОЙ УФ-ОБЛУЧЕНИЮ

С. Н. Гуляев¹ , Н. М. Ганжерли², Д. А. Ильюшина¹, И. А. Маурер²

¹ Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия;

² Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия
 Gulyaev@rphf.spbstu.ru

Аннотация. В статье представлено экспериментальное доказательство возможности реализовать рельефно-фазовую запись голографической информации с помощью оптической схемы регистрации во встречных пучках. Ранее это было сделано только для позитивных фоторезистов, имеющих чувствительность на три порядка ниже, чем у галоидосеребряной фотоэмульсии, обладающей над ними и другими преимуществами. Экспериментально показано, что ключевыми операциями фотохимической обработки галоидосеребряных фотоэмульсий являются коротковолновое УФ-облучение фотопластинок ртутной лампой ($\lambda < 250$ нм) и их последующее кратковременное (10 с) травление в ледяной уксусной кислоте. Проанализированы механизмы формирования поверхностного рельефа в разных диапазонах регистрируемых пространственных частот и показаны существенные позитивные отличия свойств рельефно-фазовых структур на галоидосеребряных фотоэмульсиях от аналогов, записанных на фоторезисте.

Ключевые слова: контрнаправленная схема, дифракционная эффективность, галоидосеребряная фотоэмульсия, голографическая решетка, коротковолновое УФ-излучение, поверхностный рельеф

Для цитирования: Гуляев С. Н., Ганжерли Н. М., Ильюшина Д. А., Маурер И. А. Особенности формирования голографических структур, записанных в контрнаправленной оптической схеме на фотоэмульсии, подвергнутой УФ-облучению // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2025. Т. 18. № 4. С. 151–166. DOI: <https://doi.org/10.18721/JPM.18411>

Статья открытого доступа, распространяемая по лицензии CC BY-NC 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>)

Original article

DOI: <https://doi.org/10.18721/JPM.18411>

FORMATION FEATURES OF HOLOGRAPHIC STRUCTURES RECORDED IN A COUNTER-DIRECTIONAL OPTICAL SCHEME ON THE PHOTOEMULSION EXPOSED TO SHORT-WAVE UV RADIATION

S. N. Gulyaev¹ , N. M. Ganzherli², D. A. Ilyushina¹, I. A. Maurer²

¹ Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russia;

² Ioffe Institute, St. Petersburg, Russia

 Gulyaev@rphf.spbstu.ru

Abstract. The article presents an experimental proof that it is possible to implement relief-phase recording of holographic information using an optical registration scheme in counter-propagating beams. Previously, this was done only for positive photoresists having a sensitivity three orders of magnitude lower than that of silver-halide photographic emulsion with other advantages. It has been experimentally shown that the key operations of photochemical processing of silver halide photographic emulsions are short-wavelength UV irradiation of photographic plates with a mercury lamp ($\lambda < 250$ nm) and their subsequent short-term (10 s) etching in glacial acetic acid. The mechanisms of surface relief formation in different ranges of recorded spatial frequencies were analyzed, and significant positive differences in the properties of relief-phase structures on silver halide photographic emulsions were shown compared to their counterparts recorded on photoresist.

Keywords: counter-directional scheme, diffraction efficiency, silver halide photoemulsion, holographic grating, surface relief

For citation: Gulyaev S. N., Ganzherli N. M., Ilyushina D. A., Maurer I. A., Formation features of holographic structures recorded in a counter-directional optical scheme on the photoemulsion exposed to short-wave UV radiation, St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics. 18 (4) (2025) 151–166. DOI: <https://doi.org/10.18721/JPM.18411>

This is an open access article under the CC BY-NC 4.0 license (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>)

Введение

Голографическая схема записи во встречных пучках (контрнаправленная схема) была предложена Ю. Н. Денисюком в 1962 году [1]. Такая схема регистрации голограмм широко используется в изобразительной голографии для получения трехмерных изображений реальных объектов. Голографические структуры, полученные этим методом, являются отражающими и, в случае плоских объектного и опорного пучков, представляют собой набор параллельных плоскостей (штрихов), связанных с вариациями показателя преломления внутри светочувствительной среды (рис. 1, *a*).

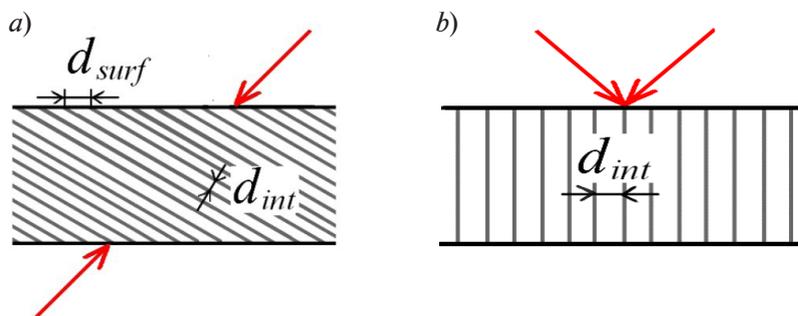


Рис. 1. Оптические схемы регистрации трехмерных изображений объекта: контрнаправленная (*a*) и схема в сходящихся лазерных пучках (*b*); d_{int} , d_{surf} – периоды внутренней голографической структуры (HS) и HS на ее поверхности, соответственно

Период внутренней голографической структуры d_{int} слабо зависит от углов падения опорного и объектного пучков света на записывающую среду и примерно равен половине длины волны света λ в светочувствительной среде $d_{int} = \lambda/2n_0$ (n_0 – средний показатель преломления светочувствительной среды). Поскольку штрихи внутренней структуры входят на поверхность под косым углом (см. рис. 1, *a*), период голографической структуры на поверхности светочувствительной среды d_{surf} существенно отличается по величине от периода внутренней структуры d_{int} . Например, в контрнаправленной схеме записи на

рис. 2, *a* лазерный пучок (объектный) является обращенным по отношению к падающему (опорному) пучку. В данном случае пространственный период решетки на поверхности можно варьировать в широких пределах за счет изменения наклона штрихов решетки внутри фотоматериала согласно формуле

$$d_{surf} = \lambda / (2 \cos \theta_0). \quad (1)$$

При этом пространственная частота голографической структуры на поверхности составляет $\nu_{surf} = 1/d_{surf}$ и изменяется в диапазоне $0 - 3175 \text{ мм}^{-1}$ (рис. 2, *b*) в зависимости от угла поворота фотопластинки θ_0 , которая помещается перед зеркалом (рис. 2, *a*). График на рис. 2, *b* соответствует случаю, когда при голографической регистрации используется гелий-неоновый лазер с длиной волны $\lambda = 0,63 \text{ мкм}$.

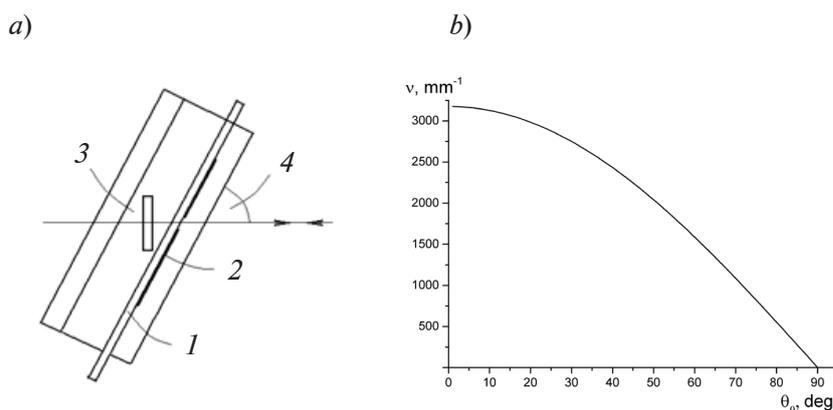


Рис. 2. Возможность варьирования поверхностной пространственной частоты SF ν : *a* – контрнаправленная схема установки; *b* – зависимость этой частоты от угла поворота фотопластинки θ_0 .

1 – фотопластинка; 2 – диафрагма, 3 – зеркало, 4 – угол поворота фотопластинки

В идеализированной голографической структуре, записанной в контрнаправленной схеме (рис. 3, *a*), поверхностный период не может реализоваться, и вся структура является чисто объемной, работающей на отражение. Однако в реальных условиях эксперимента, например, при голографической регистрации в галогидосеребряной фотоэмульсии (*англ.* silver halide photoemulsion (SHP)), искажения внутренней структуры штрихов серебряного (Ag-) изображения у поверхности светочувствительной среды (рис. 3, *b*) могут привести к существованию поверхностной решетки с оптическими свойствами, которые существенно отличаются от дифракционных свойств внутренней объемной решетки. Формирование поверхностной решетки может быть результатом изменения формы штрихов решетки вследствие неоднородности процессов фотохимической обработки по толщине SHP. Дополнительным фактором, способствующим возникновению поверхностной голографической структуры, может быть появление периодического поверхностного рельефа (рис. 3, *c*), что связано с объемом, занимаемым зернами серебра в проявленном фотоматериале, а также с переменной задубленностью (структурированностью) поверхностного слоя желатина [2]. Создать поверхностный рельеф можно и принудительно: путем внешнего избирательного воздействия на желатин светочувствительного слоя, например, коротковолновым ультрафиолетовым излучением [3].

В экспериментальных условиях особенно важно целенаправленно формировать поверхностную структуру в виде рельефа при одновременном устранении поглощающей внутренней решетки, так как это позволяет получать голографические пространственно-периодические структуры с высокой эффективностью и малой угловой селективностью, что востребовано для ряда технологических применений в оптике (рис. 3, *d*). Впервые такая методика была реализована в работе [4], где были использованы тонкие слои позитивного фоторезиста. В таком светочувствительном материале участки, наиболее засвеченные видимым светом, разрушаются в процессе проявления и растворяются в травителе (рис. 4, *a*). Штрихи внутренней решетки, изображенные на рис. 4, *a*, соответствуют

узловым плоскостям с наименьшей интенсивностью при экспонировании фоторезиста когерентным светом аргонового лазера с длиной волны 488 нм. Расстояние h от конца одного из штрихов внутренней структуры, выходящего на поверхность, до ближайшего штриха, находящегося ниже по нормали к поверхности, практически не изменяется при варьировании поверхностной пространственной частоты. Этот параметр определяет максимальную глубину травления h_{etch} . При создании рельефа с пилообразным профилем указанная глубина, составляющая около 0,22 мкм (рис. 4, *b*) после металлизации поверхности, оказывается достаточной для формирования высокоэффективных отражательных решеток с углом блеска, до сих пор широко применяющихся в спектроскопии [5].

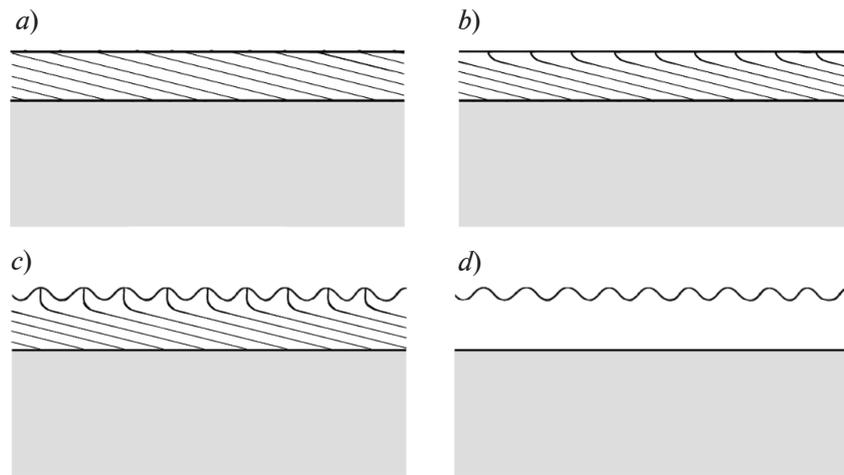


Рис. 3. Формы реализации поверхностной структуры голограммы для галоидосеребряной фотоэмульсии (SHP):

- a* – идеализированная голографическая структура; *b* – искажение внутренней структуры штрихов Ag-изображения у поверхности светочувствительной среды;
- c* – появление периодического поверхностного рельефа;
- d* – голографическая пространственно-периодическая структура с высокой эффективностью и малой угловой селективностью

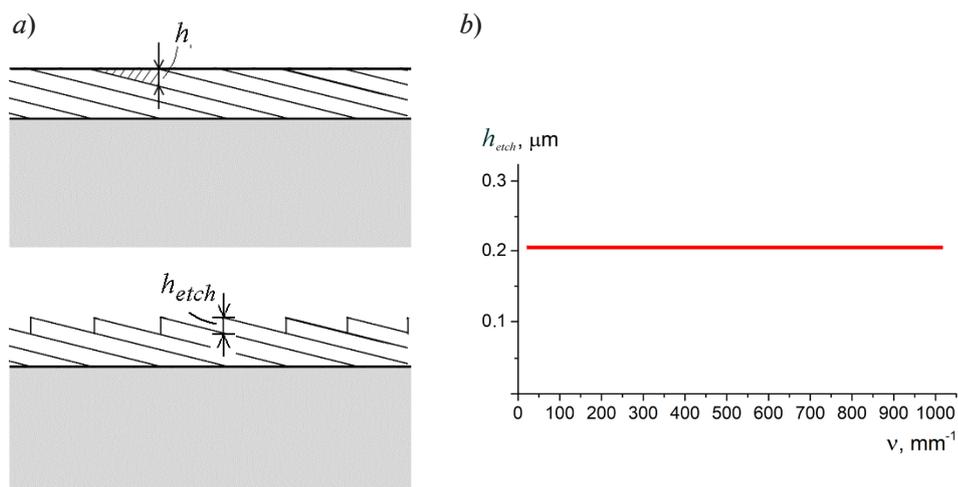


Рис. 4. Влияние травления позитивного фоторезиста на его свойства: *a* – образование рельефно-фазовой поверхностной структуры; *b* – зависимость глубины травления h_{etch} от поверхностной пространственной частоты ν



Цели и задачи исследования

В голографии широко используются желатиносодержащие светочувствительные среды: галоидосеребряная фотоэмульсия и бихромированный желатин. Воздействие УФ-излучения ближнего диапазона ($\lambda = 315 - 400$ нм) позволяет реализовать на этих средах, сочетающихся с бихроматами, разнообразные поверхностные и объемные голографические структуры за счет сшивания желатиновых макромолекул, как было продемонстрировано, например, в работе [6]. По мере уменьшения длины волны квантов ($\lambda \leq 250 - 270$ нм) характер воздействия УФ-излучения меняется на противоположный. Поглощение высокоэнергетичных фотонов вызывает разрыв химических связей в основных цепях макромолекул желатина (фотолиз, фотодеградация) в отсутствие всяких внешних сенсibilizаторов, в том числе и бихроматов. Для желатиносодержащих светочувствительных сред в режиме записи в сходящихся пучках (см. рис. 1, *b*) были разработаны методы формирования поверхностного рельефа, использующие воздействие коротковолнового УФ-излучения на желатин и последующее травление его участков, подвергшихся наибольшему фотолизу [7].

Главными технологическими стадиями фотохимической обработки, ответственными за процессы формирования поверхностного рельефа, являются следующие этапы.

На первом этапе после экспонирования фотопластинки обычное фотографическое проявление и фиксирование создают первичную голографическую структуру в виде черно-белого Ag-изображения интерференционных полос.

Второй этап связан с избирательным дублированием фотоэмульсионного слоя преимущественно в местах наибольшей плотности Ag-изображения за счет дубящего отбеливания фотопластинок в отбеливателях, содержащих бихроматы. Последующее фиксирование в растворе тиосульфата натрия $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ позволяет полностью удалить Ag-изображение из фотоэмульсионного слоя. Таким образом, в результате второго главного этапа фотохимической обработки создается голографическая структура, в которой степень задубленности желатина периодически изменяется в соответствии с зарегистрированной интерференционной картиной. Такая структура является эффективным модулятором воздействия коротковолнового УФ-излучения на желатин при облучении фотопластин ртутно-кварцевой лампой. Более задубленные (упрочненные, сшитые) участки в большей степени сопротивляются разрушающему действию высокоэнергетичных квантов УФ-излучения с длиной волны менее 250 нм из-за большого количества поперечных связей между макромолекулами желатина. Поэтому соседние, менее задубленные участки с разрушенными фрагментированными макромолекулами желатина, на третьем (главном) этапе обработки легко растворяются в подходящем растворителе, например, в воде или ледяной уксусной кислоте CH_3COOH [7]. Таким образом, при травлении можно получить глубокий рельеф с горбами, совпадающими с наиболее упрочненными (задубленными) участками, и сформировать высокоэффективную рельефно-фазовую голографическую структуру, работающую на пропускание.

В отличие от фоторезистов, обработка которых после экспонирования когерентным светом ограничивается только травлением с минимальным набуханием слоя, фотохимическая обработка SHP включает два первых главных этапа, в течение которых фотослой погружается в водные растворы и поэтому испытывает очень сильное набухание.

На третьем (главном) этапе обработки фотоэмульсии применяются, однако, методы [7], позволяющие свести степень набухания желатинового слоя к минимуму. Для этого, во-первых, используют в качестве травителя ледяную уксусную кислоту вместо воды, и, во-вторых, снижают время травления до 10 с. Поэтому описанный выше метод обработки SHP [7] в какой-то мере подобен методам обработки позитивных фоторезистов [8]. С другой стороны, светочувствительность SHP превышает светочувствительность фоторезистов почти в тысячу раз, что предопределяет удобство применения этих фотоматериалов в голографии.

В связи с вышеизложенным возник интерес к изучению возможности использовать SHP для регистрации рельефно-фазовых голографических структур не только для схемы записи в сходящихся пучках, но и для контрнаправленной схемы. Предварительные результаты таких исследований представлены в наших работах [9, 10].

Методика экспериментальных исследований

Для регистрации голографических решеток была использована оптическая схема, описанная выше (см. рис. 2, *a*), в которой отраженный от зеркала лазерный пучок (объектный) является обращенным по отношению к падающему пучку (опорному), а пространственная частота решетки устанавливается регулировкой угла поворота фотопластинки θ_0 , в соответствии с графиком на рис. 2, *b*. В экспериментах в основном использовались фотопластинки ПФГ-01, а в некоторых случаях – фотоматериал ПФГ-03М, имеющий меньший контраст первичного серебряного изображения.

Таблица 1

Голографический процесс регистрации рельефно-фазовых решеток по контраправленной схеме

Этап технологии	Производимая операция	Методическое средство
I. Экспонирование фотопластинок лазерным излучением	Образование латентного Ag-изображения интерференционных полос (косых плоскостей пучностей внутри SHP)	Фотоматериал ПФГ-01 (ПФГ-03М), He-Ne лазер (10 мВт)
II. Проявление фотопластинок (4 мин)	Образование первичной голографической структуры в виде Ag-изображения интерференционных полос	Контрастный проявитель D-19 Kodak
III. Фиксирование	Удаление галоидов серебра из фотослоя	Фиксаж на основе $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$
IV. Сушка	Обезвоживание SHP	Воздушная среда
V. Дубящее отбеливание	Избирательное дубление желатина в местах наибольшей плотности Ag-изображения (создание поперечных связей между макромолекулами с помощью ионов Cr^{3+})	Отбеливатель типа R-10 с бихроматом аммония $(\text{NH}_4)_2\text{Cr}_2\text{O}_7$
VI. Фиксирование	Удаление солей серебра из фотослоя	Фиксаж на основе $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$
VII. Осветление	Удаление окрашивающих соединений Cr из SHP-слоя. Завершение процессов задубливания желатина	2%-й раствор Na_2SO_3
VIII. Сушка	Обезвоживание SHP	Воздушная среда
IX. Коротковолновое УФ-облучение образцов (25 мин)	Фотодеградация желатина в наименее задубленных местах фотослоя	Ртутно-кварцевая лампа ДРТ-230 (мощность 230 Вт)
X. Кратковременное травление (10 с)	Вытравливание фотодеградированных участков желатина, образование поверхностной рельефной структуры голограммы	CH_3COOH либо CH_3COOH + изопропанол ($\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$)
XI. Удаление CH_3COOH и сушка	Быстрое прерывание операции травления желатина и удаление остаточных реагентов с поверхности фотослоя	Ванны изопропанола ($\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$) + сушка в воздушной струе

В табл. 1 представлены основные стадии голографического процесса, где приведены полная фотохимическая обработка образцов, суть проводимых операций и методические средства их осуществления.

Таким образом, общей задачей фотохимической обработки фотопластинок была инициация поверхностной решетки с одновременным уничтожением внутренней голографической структуры. Основным исследуемым параметром эксперимента служила дифракционная эффективность (DE) голографических решеток, определяемая как отношение интенсивности пучка, дифрагированного в плюс-первый порядок к интенсивности падающего пучка для решетки, работающей на пропускание, при оптимальном значении



угла падения. Длина волны считывающего излучения так же, как и при регистрации, составляла 0,63 мкм.

Величина DE могла измеряться после IV (DE первичной амплитудной голографической структуры), VIII (DE рельефно-фазовой голограммы после избирательного дублирования и удаления солей серебра из желатинового слоя) и XI (DE указанной голограммы после УФ-облучения и травления) этапов обработки (см. табл. 1). Также у образцов с первичными амплитудными голографическими структурами измеряли оптическую плотность (она определяется как десятичный логарифм отношения интенсивности света, прошедшего через образец, к интенсивности падающего пучка).

Для измерения интенсивности лазерного излучения использовалась микросхема ОРТ-101 (Texas Instruments). Профили поверхностных рельефов голографических решеток исследовались на микроинтерферометре Линника МИИ-4. Высота (глубина) поверхностного рельефа h определялась как перепад между горбами и впадинами. С помощью фотографий, сделанных в дальней зоне, и измерений DE в разных порядках дифракции изучались дифракционные спектры образцов.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Дифракционная эффективность голографических структур и параметры регистрации. Измерение DE образцов голографических решеток на разных поверхностных пространственных частотах ν выявило особенности поведения светочувствительной среды, подвергнутой сложной многоступенчатой обработке. На рис. 5 представлены зависимости достигнутых величин DE голографических решеток от времени экспонирования t фотопластинок лазерным светом для широкого диапазона пространственных частот: 36 – 730 мм^{-1} . Измерения DE производились на разных этапах фотохимической обработки, указанных в предыдущем разделе.

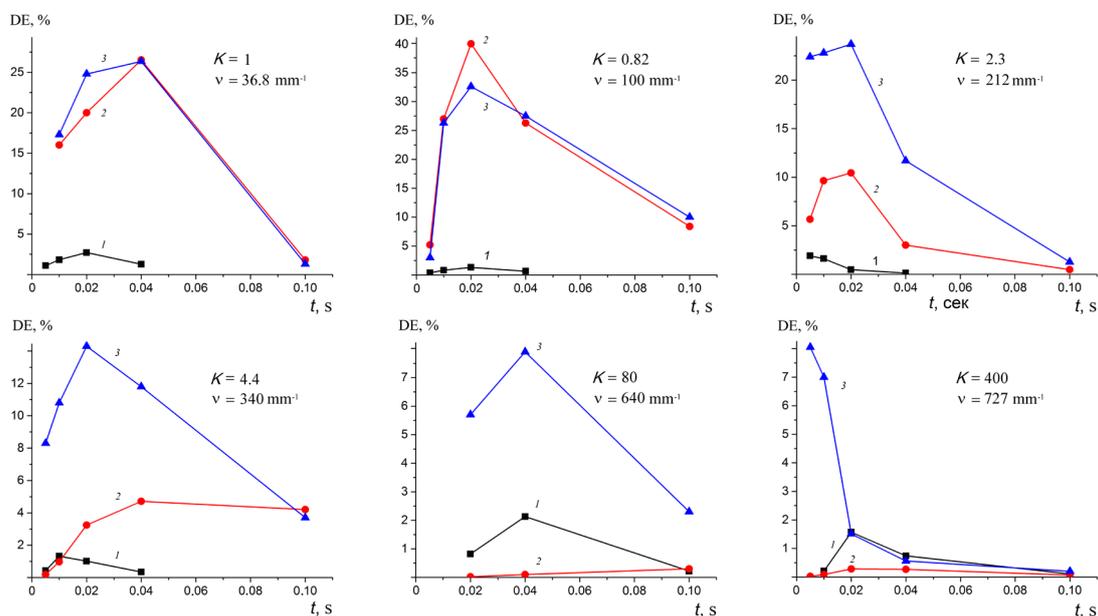


Рис. 5. Зависимости DE от времени экспонирования t лазерным излучением образцов голографических решеток в порядке возрастания поверхностных пространственных частот на разных этапах обработки фотопластинок ПФГ-01 (см. табл. 1):

1 – DE первичной амплитудной голограммы после IV этапа; 2 – DE рельефно-фазовой голограммы после VIII этапа (удаления внутренней структуры); 3 – DE рельефно-фазовой голограммы после полной обработки (XI этап)

Как видно на рис. 5, максимальная DE у первичных амплитудных голографических структур равна примерно 2% (кривые 1). Таким образом, реализация поверхностной структуры проявляется уже на стадии формирования Ag-изображения после этапов проявления и фиксирования. Максимальная DE в данном случае практически не зависит от пространственной частоты, поскольку фотоматериал ПФГ-01 обладает в отношении регистрации амплитудного Ag-изображения высокой разрешающей способностью, превышающей величину 1000 мм^{-1} .

В отношении максимальной DE рельефно-фазовых голограмм, измеренной до (кривые 2) и после (кривые 3) УФ-облучения образцов от ртутной лампы и травления, можно отметить следующее:

1) максимальные значения DE рельефно-фазовых голограмм, подвергавшихся полной процедуре обработки, соответствуют средним значениям оптической плотности первичных амплитудных структур, лежащим в пределах около $D = 0,6 - 1,5$;

2) в области сравнительно низких пространственных частот ($\nu < 100 \text{ мм}^{-1}$) максимальные значения DE образцов, не подвергавшихся и подвергавшихся УФ-облучению и последующему травлению в ледяной уксусной кислоте, практически совпадают;

3) по мере роста пространственной частоты, в области $\nu > 100 \text{ мм}^{-1}$, быстро возрастает разница между максимальными значениями DE для зависимостей 2 и 3 на рис. 5. В то же время величина DE для необлученных образцов стремится к нулю ($DE_{\text{max}} \leq 0,2 \%$ при $\nu > 727 \text{ мм}^{-1}$), DE_{max} образцов, подвергнутых УФ-облучению и протравленных в ледяной уксусной кислоте, стремится к значению $DE_{\text{max}} \approx 8 \%$;

4) последнее обстоятельство может быть охарактеризовано с помощью коэффициента усиления дифракционной эффективности K , который равен отношению максимального значения DE после воздействия на фотопластинки УФ-излучения и травления в CH_3COOH к значению DE до применения операций облучения и травления при одном и том же времени экспонирования когерентным излучением t . Значение K для DE_{max} приводится на каждом графике рис. 5;

5) обнаружена особенность, отличающая процедуру обработки зарегистрированных по контрнаправленной схеме решеток от аналогичной процедуры, применяемой для решеток, записанных в сходящихся пучках. Особенность состоит в том, что при регистрации голографических структур на фотоматериале ПФГ-01 по схеме в сходящихся пучках обеспечиваются существенные значения коэффициента усиления $K = 200 - 500$ на пространственной частоте $\nu = 1200 \text{ мм}^{-1}$, если в качестве травителя использовать 50%-й раствор ледяной уксусной кислоты CH_3COOH в изопропанолу $\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$ [9]. В то же время при записи по контрнаправленной схеме на высоких пространственных частотах, превышающих 500 мм^{-1} , более или менее значительные величины DE и K для образцов, прошедших полную обработку, достигаются только при использовании в качестве травителя ледяной уксусной кислоты, не разбавленной изопропанолом. Это обстоятельство отражено в табл. 2, где величины DE_{max} и K представлены как функции от концентрации травящего раствора ледяной уксусной кислоты CH_3COOH в изопропанолу $\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$.

Профили поверхностного рельефа и дифракционные спектры голографических структур. Существенную информацию о характере голографических структур, прошедших полную обработку, включающую УФ-облучение и травление, несут угловые зависимости DE образцов. Так, например, для образца с пространственной частотой около 900 мм^{-1} полуширина угловой зависимости DE составляет приблизительно 40° , что, согласно теории Когельника, соответствует толщине дифрагирующей структуры менее 1 мкм . Эта величина составляет незначительную долю от полной толщины фотоэмульсии ПФГ-01, равной $6 - 7 \text{ мкм}$. С учетом этого обстоятельства, а также ввиду того, что внутренняя структура в значительной степени была нивелирована после операции VI (см. табл. 1), мы были вправе рассматривать полученные структуры как чисто фазовые тонкие рельефные голограммы (это подтвердилось в ходе дальнейших исследований).

С помощью микроинтерферометра Линника МИИ-4 мы способны получать отчетливые профили поверхностного рельефа во всем диапазоне исследуемых пространственных частот. Важно отметить, что абсолютные значения высоты пространственного рельефа h_{max} резко возрастают при уменьшении пространственной частоты ниже 150 мм^{-1} . При этом операции УФ-облучения и травления практически не приводят к увеличению



Таблица 2

Зависимость параметров образцов рельефно-фазовых голографических решеток от технологии обработки фотослоев

ν , мм ⁻¹	Концентрация раствора CH ₃ COOH в изопропанолe C ₃ H ₈ O, %	DE _{max} , %	Значение K
566	25	0,65	3,8
550	50	0,47	6,7
551	50	0,74	2,1
551	50	1,13	2,2
566	100	5,20	403
639	100	7,90	285
727	100	8,05	> 402

Обозначения: ν – регистрируемая пространственная частота; DE_{max} – максимально достигнутая величина дифракционной эффективности, K – коэффициент усиления DE_{max}.

высоты поверхностного рельефа (рис. 6). Таким образом, на низких пространственных частотах рельеф формируется уже в результате водной обработки образцов, и вклад заключительных операций УФ-облучения и травления незначителен.

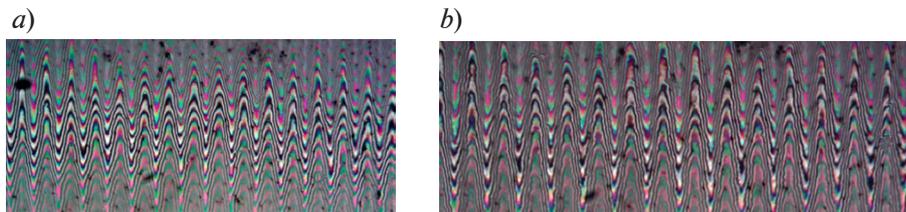


Рис. 6. Вид интерферограмм поверхностного рельефа образца ($\nu = 100$ мм⁻¹): значения высоты пространственного рельефа $h_{max} = 0,87$ мкм (a) и $0,94$ мкм (b) до (a) и после (b) УФ-облучения и травления, т. е. после VIII и XI операций обработки (см. табл. 1)

Большие значения высоты поверхностного рельефа ($h_{max} \approx 1$ мкм), достигнутые на низких пространственных частотах ($\nu \leq 100$ мм⁻¹), сопоставимы со значениями глубины поверхностного рельефа, получаемыми для чисто рельефных голограмм, которые регистрируются в оптической схеме со сходящимися пучками [2, 3]. Это обстоятельство резко отличает результаты, достигнутые для галоидосеребряной фотоэмульсии, от таковых, получаемых для позитивных фоторезистов, у которых h_{max} не превышает $0,22$ мкм [4].

Резкое возрастание глубины поверхностного рельефа при понижении пространственной частоты регистрируемых голографических решеток подтверждается фактом перераспределения световой энергии в дифракционных спектрах (порядках дифракции). При понижении пространственной частоты, в области значений около 212 мм⁻¹ наблюдается выравнивание интенсивностей нулевого и первых порядков дифракции (рис. 7, a).

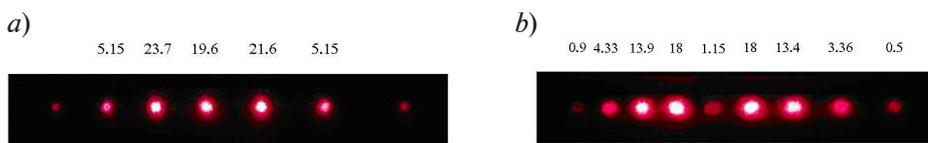


Рис. 7. Фотографии дифракционных спектров образцов при нормальном падении освещающего лазерного пучка для значений пространственных частот $\nu = 212$ мм⁻¹ (a) и 100 мм⁻¹ (b). Числа над световыми пятнами показывают значения DE (в %)

Дальнейшее увеличение глубины поверхностного рельефа на сравнительно низких пространственных частотах значительно снижает долю нерассеянного света (нулевой порядок) и приводит к перекачке световой энергии в высшие порядки дифракции (рис. 7, *b*). Наименьшая доля интенсивности энергии нулевого порядка на пространственной частоте 100 мм^{-1} составляет 1 – 3 %.

Дифракционные спектры для пространственных частот 100 и 212 мм^{-1} (см. рис. 7), а также интерферограммы (см. рис. 6) показывают, что профили поверхностного рельефа в этой области пространственных частот носят симметричный квазисинусоидальный характер. Эксперименты показали, что это обстоятельство справедливо и в области более высоких пространственных частот. В качестве примера на рис. 8 приведена интерферограмма профиля поверхностного рельефа на пространственной частоте $\nu = 550 \text{ мм}^{-1}$ для фотоматериала ПФГ-03М.

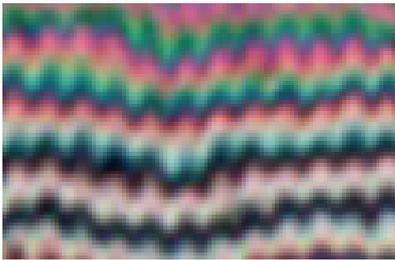


Рис. 8. Интерферограмма профиля рельефа для пространственной частоты $\nu = 550 \text{ мм}^{-1}$ (фотоматериал ПФГ-03М)

Симметризация профиля поверхностного рельефа в широкой области пространственных частот – это характерная черта галодосеребряной фотоэмульсии (ШР), отличающей ее свойства от свойств позитивных фоторезистов, которые используются для формирования асимметричных пилообразных рельефов при голографической регистрации в контрнаправленной схеме. Только при очень низких пространственных частотах, в диапазоне $30 - 40 \text{ мм}^{-1}$, удалось зафиксировать у некоторых образцов асимметричный пилообразный профиль

рельефа (рис. 9, *a*), который приводил к асимметричному распределению интенсивности света в дифракционном спектре (см. рис. 9, *b*).

Квазисинусоидальный характер профиля поверхностного рельефа практически во всей области пространственных частот подтверждается непосредственными вычислениями ДЕ по процедурам теории тонких голограмм в широко известном приближении Рамана – Ната. Например, для сравнительно высокой пространственной частоты 550 мм^{-1} и фотоматериала ПФГ-03М профили поверхностного рельефа можно измерить согласно интерференционной картине на рис. 8. Значения высоты рельефа h для каждой конкретной точки образца заметно разнятся, поэтому вычисление этой величины производилось по результатам восьми измерений для смежных горбов и впадин. Полученное среднее значение глубины рельефа h оказалось равным $0,067 \text{ мкм}$. Согласно теории тонких рельефных голограмм, ДЕ для 1-го порядка дифракции описывается в случае синусоидальной формы рельефа следующей формулой:

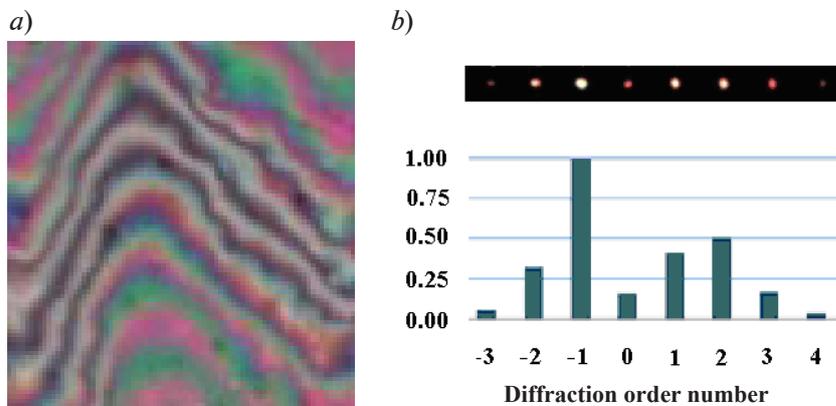


Рис. 9. Пример интерферограммы пилообразного профиля рельефа для низкой пространственной частоты ($\nu = 36,4 \text{ мм}^{-1}$) (*a*), фотография дифракционного спектра с номерами порядков дифракции и распределение относительной интенсивности света по порядкам дифракции (*b*)

$$\eta = J_1^2 \left(\frac{\pi h (n_0 - 1)}{\lambda} \right) \cdot 100\%, \quad (2)$$

где J_1 – функция Бесселя первого рода первого порядка; λ – длина волны лазерного излучения, $\lambda = 0,63$ мкм; h – высота поверхностного рельефа; n_0 – средний показатель преломления желатина, $n_0 = 1,53$.

Для высоты рельефа $h = 0,067$ мкм, DE, вычисленная по формуле (2), должна составлять 0,78%; из этого следует, что полученные экспериментальные значения DE, лежащие в диапазоне 0,70 – 0,74 %, а также соответствующие расчетные значения совпадают с точностью примерно 10 %. Отсюда можно сделать вывод, что дифракция света на образце обусловлена поверхностной рельефной структурой.

Аналогичные результаты были получены для основного фотоматериала ПФГ-01, который использовался в данной работе, и для более низкой пространственной частоты $\nu = 212$ мм⁻¹, когда значения высоты рельефа увеличились более чем в 6 раз, по сравнению с предыдущим случаем. На этот раз значения высоты рельефа h и DE измерялись в трех точках образца: *A*, *B* и *C*, удаленных друг от друга на значительные расстояния (табл. 3).

Анализ данных, приведенных в табл. 3, позволяет заключить, что экспериментально измеренные значения DE хорошо соответствуют теоретическим, вычисленным по формуле (2).

Таблица 3

Сравнение экспериментальных и расчетных значений DE

Точка измерения	h , мкм	Значение DE, %	
		Экспериментальное	Расчетное (см. ф-лу (2))
<i>A</i>	0,42	22,43	19,9 – 23,7
<i>B</i>	0,46	25,21	
<i>C</i>	0,36	17,95	
Среднее значение	0,41	21,86	

Как было отмечено выше, максимальная DE образцов на фотоматериале ПФГ-01, прошедших полную обработку в области высоких пространственных частот (свыше 500 мм⁻¹), стремится к значению около 8% (см. рис. 5). Согласно теории тонких пропускающих голограмм с синусоидальным профилем рельефа, для этого случая имеется возможность рассчитать значение глубины поверхностного рельефа h с помощью формулы (2). При этом получается значение $h \approx 0,22$ мкм, примерно совпадающее с оцененной максимальной глубиной рельефа для контрнаправленной схемы голографической записи при использовании позитивных фоторезистов.

Таким образом, дифракционные свойства голографических структур, описанные в данном разделе, хорошо объясняются в рамках теории тонких голограмм в приближении Рамана – Ната.

Пространственно-частотные характеристики и механизмы формирования поверхностного рельефа

На основе экспериментальных данных были построены пространственно-частотные характеристики, отражающие зависимости максимальной DE до и после УФ-облучения образцов (рис. 10, *a*) от пространственной частоты, а на рис. 10, *b* даны аналогичные зависимости для коэффициента усиления K . В данном случае значения K получаются путем деления значений DE кривой 2 на таковые кривой 1 (см. рис. 10, *a*).

Анализ данных на рис. 10, *a* позволяет отметить существенное различие пространственно-частотных характеристик рельефно-фазовых голографических структур, DE которых была

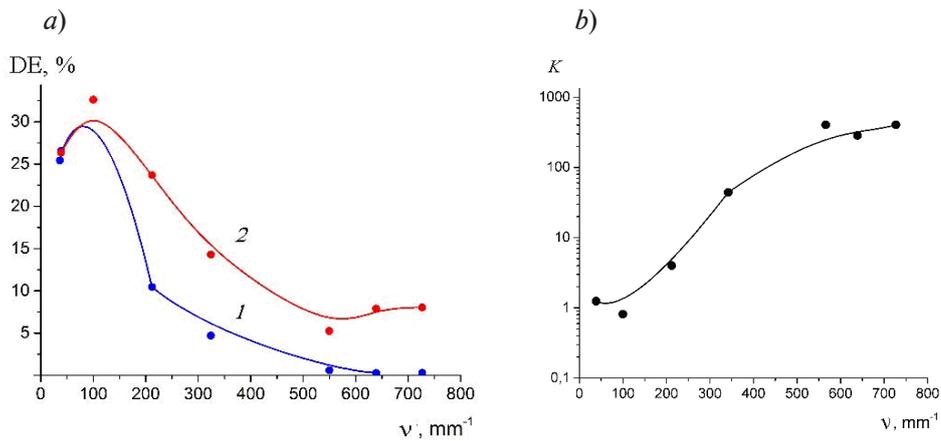


Рис. 10. Зависимости максимальной ДЕ образцов от пространственной частоты ν после VIII (кривая 1) и XI (кривая 2) этапов обработки (см. табл. 1) (а), а также коэффициент усиления K как функция пространственной частоты (б)

измерена на разных стадиях фотохимической обработки. Образцы, не подвергшиеся воздействию УФ-излучения и операции травления, испытывают сильное набухание в водных растворах вследствие водных этапов обработки (см. операции I – VII, табл. 1). Такое набухание в конечном итоге оказывает решающее действие на формирование поверхностного рельефа при сушке (см. операцию VIII в табл. 1).

Для этих образцов единственным механизмом, ответственным за высокие значения ДЕ, и, следовательно, большие глубины поверхностного рельефа на сравнительно низких пространственных частотах ($\nu < 150$ мм⁻¹), следует считать перетягивание объемов набухшего желатина в процессе сушки мокрого коллоида к наиболее задубленным участкам, соответствующим местам наибольшей плотности Ag-изображения в первичной амплитудной голограмме [2]. Механизм формирования поверхностного рельефа, связанный с возникновением сил натяжения в сохнувшем коллоиде, как и в случае записи в сходящихся пучках [3], при использовании контрнаправленной схемы регистрации оказался способным обеспечить большие глубины поверхностного рельефа (около 1 мкм) и максимальную ДЕ, равную 30 – 40%. Этот результат подтверждает предсказания теории тонких голограмм для различных форм поверхностного рельефа на низких пространственных частотах. Описанный механизм характеризуется быстрым спадом пространственно-частотной характеристики на пространственных частотах свыше 100 мм⁻¹, что вызывается действием сил поверхностного натяжения, сглаживающих поверхностный рельеф [11]. Согласно работе [11], силы поверхностного натяжения стремятся минимизировать площадь поверхности тела, поэтому увеличение площади поверхности высушенного фотоэмульсионного слоя при повышении пространственной частоты и постоянной высоте поверхностного рельефа возможно только до достижения некоторой пороговой величины ν_{thr} . При достаточно большом значении пространственной частоты механические напряжения, вводимые поверхностным натяжением, преодолевают силы сцепления между молекулами желатина и способны частично сгладить поверхностный рельеф. Если считать, что при $\nu > \nu_{thr}$ площадь S участка поверхностной голографической структуры остается постоянной, то можно вычислить значение высоты h поверхностного рельефа на заданной пространственной частоте ν из равенства $S(\nu) = S(\nu_{thr})$, или иначе из уравнения

$$\nu \int_0^{\frac{1}{\nu}} \sqrt{1 + \pi^2 h^2 \nu^2 \cos^2 2\pi \nu x} \cdot dx = \text{const}, \quad (3)$$

где x – пространственная координата на поверхности фотослоя, перпендикулярная штрихам решетки.

Рис. 11, а позволяет сравнить экспериментальную пространственно-частотную характеристику (см. кривую 1 на рис. 10, а) с теоретической, рассчитанной на основе положений работы [11]. На первом этапе, с помощью формулы (2) определялась высота рельефа



h для одной из точек на спаде экспериментальной пространственно-частотной характеристики; при этом считалось, что форма профиля поверхностного рельефа – квазисинусоидальная, согласно выкладкам предыдущего раздела. В частности, выбиралась точка, соответствующая пространственной частоте 212 мм^{-1} . Далее, по-прежнему считая форму профиля поверхностного рельефа синусоидальной, мы вычисляли относительную площадь поверхности участка фотоэмульсионного слоя, являющуюся константой (const) в уравнении (3). Далее, если производить вычисления в обратном порядке по краткой схеме $S = \text{const} \rightarrow h \rightarrow J(\dots) \rightarrow \eta$, то можно получить расчетные значения DE для всех пространственных частот. Хорошее совпадение экспериментальной пространственно-частотной характеристики с расчетной (см. рис. 11, *a*) подтверждает гипотезу о формировании рельефа за счет сил, возникающих при сушке мокрого набухшего коллоида – желатина.

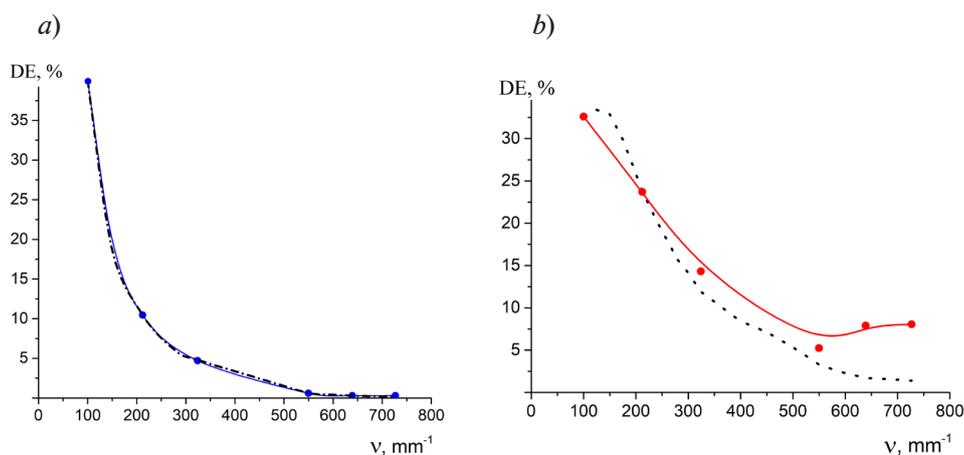


Рис. 11. Экспериментальные (сплошные цветные линии) и теоретические (пунктирные черные линии) пространственно-частотные характеристики DE образцов на разных стадиях: до операций УФ-облучения и травления (*a*), а также после полной обработки, включающей указанные операции (*b*)

После проведения заключительных операций УФ-облучения и травления в ледяной уксусной кислоте, начинает действовать совершенно иной механизм формирования поверхностного рельефа, связанный с вытравливанием фотодegradировавших участков желатина. Прежде всего, это проявляется на зависимости коэффициента усиления K от пространственной частоты (см. рис. 10, *b*). Из этого графика следует, что новый механизм образования рельефа начинает превалировать над прежним на частотах свыше 200 мм^{-1} , достигая значений K порядка нескольких сотен. Преобладание нового механизма связано с тем, что удалось свести к минимуму вредное действие сил поверхностного натяжения, сглаживающее поверхностный рельеф на высоких пространственных частотах. С этой целью были приняты специальные меры, позволившие снизить степень набухания желатина на стадии окончательной обработки (травление), в соответствии с работой [12]. В качестве растворителя была выбрана ледяная уксусная кислота, вызывающая меньшее набухание желатина, чем вода, а время травления было уменьшено до 10 с. Теоретические положения, развитые для описания пространственно-частотной характеристики образцов, не прошедших полную обработку после операций УФ-облучения и травления, становятся неприменимыми (см. рис. 11, *b*), поскольку теоретическая кривая существенно отклоняется от экспериментальной, будучи рассчитана, как и ранее, с помощью уравнения (3) на основе исходной пространственной частоты 212 мм^{-1} . Реальная пространственно-частотная характеристика образцов, прошедших полную обработку, простирается значительно дальше в область высоких пространственных частот.

Заключение

Характерной особенностью голографической структуры, записанной в контрнаправленной оптической схеме, является выход на поверхность штрихов (плоскостей)

внутренней решетки под косым углом. Для фоторезистов это приводит к тому, что глубина травления $h_{etch} \approx 0,21 - 0,22$ мкм (см. рис. 4, *b*) не зависит от регистрируемой пространственной частоты и форма рельефа пилообразна и асимметрична (см. рис. 4, *a*). Если сравнивать галоидосеребряные фотоэмульсии (SHP) с фоторезистами, то можно найти как сходство, так и существенные различия в свойствах голографических структур, записанных в контрнаправленной схеме. Различия состоят как в большой разнице между значениями толщины (SHP – около 7 мкм, а слои фоторезистов – менее 1 мкм), так и в существенно большей подверженности SHP сильному набуханию при обработке.

На низких пространственных частотах в образовании поверхностного рельефа принимает участие значительная часть толщины SHP. Совокупное действие сил натяжения внутри фотоэмульсионного слоя и сил поверхностного натяжения симметризует профиль поверхностного рельефа и позволяет получать большие значения h_{max} (около 1 мкм), которые сопоставимы со значениями h_{max} для рельефно-фазовых голограмм на SHP, регистрируемых в сходящихся пучках [3]. Такая ситуация схематично демонстрируется на рис. 3, *c*, на котором внутренняя косоугольная голографическая структура выпрямляется на поверхности и рельеф приобретает квазисинусоидальный характер. Асимметричный характер рельефа, присущий фоторезистам, для SHP был получен только на некоторых образцах со сверхнизкой пространственной частотой ($\nu < 40$ мм⁻¹) и является скорее исключением, чем правилом. На высоких пространственных частотах ($\nu > 500$ мм⁻¹) высота поверхностного рельефа h , вычисленная через DE, стремится к величине 0,22 мкм, т. е. к значению глубины травления h_{etch} , характерному для фоторезистов. Это обусловлено чисто поверхностным механизмом формирования рельефа, связанного с быстрым поглощением коротковолнового УФ-излучения в желатине и коротким временем травления, когда внутренняя голографическая структура не затронута последними стадиями обработки. Однако и в этом случае, в отличие от фоторезистов, для SHP происходит симметризация поверхностного рельефа, по всей видимости, за счет остаточного набухания желатина.

Таким образом, в работе показано, что включение в процедуру обработки фотопластинок ПФГ-01 операции облучения фотоэмульсии коротковолновым УФ-излучением значительно расширяет область регистрируемых пространственных частот, в которой можно получать значимые величины DE пропускающих голографических решеток. Достигнутые глубины поверхностного рельефа вполне достаточны для создания высокоэффективных рельефно-фазовых голографических структур, работающих на пропускание в области низких пространственных частот. На более высоких пространственных частотах голографические структуры, записанные в контрнаправленной оптической схеме, могут быть эффективно использованы на отражение после металлизации поверхности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Денисюк Ю. Н. Об отображении оптических свойств объекта в волновом поле рассеянно-го им излучения // Доклады Академии наук СССР. 1962. Т. 144. № 6. С. 1275–1278.
2. Smith H. M. Photographic relief images // Journal of the Optical Society of America. 1968. Vol. 58. No. 4. Pp. 533–539.
3. Гуляев С. Н., Ратушный В. П. Свойства рельефно-фазовых голограмм, полученных при обработке фотопластинок коротковолновым ультрафиолетовым излучением и двухступенчатом отбеливании // Оптический журнал. 2003. Т. 70. № 2. С. 45–49.
4. Sheridan N. K. Production of blazed holograms // Applied Physics Letters. 1968. Vol. 12. No. 9. Pp. 316–318.
5. Павлычева Н. К. Дифракционные решетки для спектральных приборов. Обзор // Оптический журнал. 2022. Т. 89. № 3. С. 28–41.
6. Calixto S., Piazza V., Garnica G. Surface profile studies of photoinduced gratings made with DCG films with optional papain development // Gels. 2022. Vol. 8. No. 2. P. 102.
7. Архипов А. В., Ганжерли Н. М., Гуляев С. Н., Маурер И. А. Рельефно-фазовые высоко-частотные голографические решетки на содержащих желатин светочувствительных слоях // Оптический журнал. 2023. Т. 90. № 3. С. 38–47.
8. Моро У. Микролитография. В двух частях. Пер. с англ. М.: Мир, 1990. Часть 1 – 605 с. Часть 2 – 632 с.



9. Gulyaev S. N., Ganzherli N. M., Iyushina D. A., Maurer I. A. Influence of ultraviolet irradiation on the formation of surface holographic structures recorded in a counter-directional recording scheme on photoemulsion layers // Proceedings of 2024 International Conference on Electrical Engineering and Photonics (EExPolytech). October 17–18, 2024. Saint Petersburg, Russia. Pp. 454–456.

10. Ганжерли Н. М., Гуляев С. Н., Ильюшина Д. А., Маурер И. А. Схема записи во встречных пучках для получения рельефно-фазовых голографических решеток, работающих на пропускание // Оптика и спектроскопия. 2024. Т. 132. № 9. С. 908–910.

11. Гуляев С. Н. Формирование поверхностного рельефа голографических структур, полученных при воздействии коротковолнового УФ-излучения на фотоэмульсию // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Основной выпуск. 2008. № 3 (59). С. 105–114.

12. Ганжерли Н. М., Гуляев С. Н., Маурер И. А. Совершенствование технологии изготовления рельефных голографических решеток на бихромированном желатине, облученных коротковолновым УФ-излучением // Оптика и спектроскопия. 2021. Т. 129. № 10. С. 1276–1279.

REFERENCES

1. Denisjuk Yu. N., The manifestation of the optical properties of an object in the wave field of the radiation it scatters, Dokl. Akad. Nauk SSSR. 144 (6) (1962) 1275–1278 (in Russian).

2. Smith H. M., Photographic relief images, J. Opt. Soc. Am. 58 (4) (1968) 533–539.

3. Gulyaev S. N., Ratushnyi V. P., Properties of relief-phase holograms produced by processing photographic plates with short wavelength UV radiation and with two-stage bleaching, J. Opt. Technol. 70 (2) (2003) 105–108.

4. Sheridon N. K., Production of blazed holograms, Appl. Phys. Lett. 12 (9) (1968) 316–318.

5. Pavlycheva N. K., Diffraction gratings for spectral devices (Review), J. Opt. Technol. 89 (3) (2022) 142–150.

6. Calixto S., Piazza V., Garnica G., Surface profile studies of photoinduced gratings made with DCG films with optional papain development, Gels. 8 (2) (2022) 102.

7. Arkhipov A. V., Ganzherli N. M., Gulyaev S. N., Maurer I. A., High-frequency relief-phase holographic gratings on gelatin containing photosensitive media, J. Opt. Technol. 90 (3) (2023) 125–130.

8. Moreau W. M., Positive photoresists, In book: W. M. Moreau, “Semiconductor lithography: Principles, practices and materials” (Part of the book series: “Microdevices (MDPF)”), Springer, New York, USA (1988) 29–34.

9. Gulyaev S. N., Ganzherli N. M., Iyushina D. A., Maurer I. A., Influence of ultraviolet irradiation on the formation of surface holographic structures recorded in a counter-directional recording scheme on photoemulsion layers, Proc. 2024 Int. Conf. on Electrical Engineering and Photonics (EExPolytech), Oct. 17–18, 2024. St. Petersburg, Russia. (2024) 454–456.

10. Ganzherli N. M., Gulyaev S. N., Iyushina D. A., Maurer I. A., Recording scheme in counterbeams for obtaining relief-phase holographic gratings working in transmission, Opt. Spectrosc. 132 (9) (2024) 908–910.

11. Gulyaev S. N., Formation of the surface relief of holographic structures obtained by exposing photoemulsion to short-wave UV radiation, Nauchno-tekhnicheskie vedomosti SPbGPU. (3 (59)) (2008) 105–114 (in Russian).

12. Ganzherli N. M., Gulyaev S. N., Maurer I. A., Improvement of the technology for manufacturing relief holographic gratings on dichromated gelatin irradiated with short-wave UV radiation, Opt. Spectrosc. 130 (13) (2022) 2011–2013.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

ГУЛЯЕВ Сергей Николаевич – кандидат физико-математических наук, ведущий инженер Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия.

195251, Россия, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29

Gulyaev@rphf.spbstu.ru

ORCID: 0000-0003-0549-0961

ГАНЖЕРЛИ Нина Мануиловна – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Физико-технического института имени А. Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия. 194021, Россия, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26
nina.holo@mail.ioffe.ru
ORCID: 0000-0002-2933-2135

ИЛЬЮШИНА Дарина Алексеевна – студентка Института электроники и телекоммуникаций Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия. 195251, Россия, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29
ilyushina.da@edu.spbstu.ru

МАУРЕР Ирина Анатольевна – кандидат технических наук, старший научный сотрудник Физико-технического института имени А. Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия. 194021, Россия, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 26
maureririna@yandex.ru
ORCID: 0000-0001-9385-4221

THE AUTHORS

GULYAEV Sergey N.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia
Gulyaev@rphf.spbstu.ru
ORCID: 0000-0003-0549-0961

GANZHERLI Nina M.
Ioffe Institute of RAS
26 Polytekhnikeskaya St., St. Petersburg, 194021, Russia
nina.holo@mail.ioffe.ru
ORCID: 0000-0002-2933-2135

ILYUSHINA Darina A.
Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University
29 Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russia
ilyushina.da@edu.spbstu.ru

MAURER Irina A.
Ioffe Institute of RAS
26 Polytekhnikeskaya St., St. Petersburg, 194021, Russia
maureririna@yandex.ru
ORCID: 0000-0001-9385-4221

Статья поступила в редакцию 23.05.2025. Одобрена после рецензирования 10.06.2025. Принята 10.06.2025.

Received 23.05.2025. Approved after reviewing 10.06.2025. Accepted 10.06.2025.