

Экспериментальное исследование рефлексов высоких порядков от объёмных отражательных голографических решёток

Е.Ф.Пен

С помощью голографической установки с призмным вводом излучения в регистрирующий слой фотополимерного материала получены образцы объёмных отражательных решёток с широким диапазоном периодов. Экспериментально зарегистрированы рефлексы высоких порядков от этих решёток. Обсуждается зависимость характеристик наблюдаемых рефлексов от параметров решёток и условий их записи, а также сравниваются экспериментальные и расчётные значения длин волн рефлексов.

Ключевые слова: объёмные голограммы, брэгговская дифракция, отражательные решётки, фотополимеры.

1. Введение

Физико-химические механизмы формирования голографических решёток в фотополимерных материалах (ФПМ) исследуются уже давно и с разных точек зрения [1–4]. Признано, что основополагающими являются процессы диффузии мономера и фотополимеризации. Вместе с тем многие аспекты данного вопроса, важные на практике, остаются малоизученными. В частности, в публикациях [5–7] обсуждаются условия появления высших порядков брэгговской дифракции от объёмных голографических пропускающих решёток. Данный факт объясняется тем, что профиль периодического распределения показателя преломления в этих решётках на конечной стадии их формирования существенно отличается от синусоидального, присущего картине засветки фотополимера, в силу нелинейной зависимости массы образующегося полимера от интенсивности засветки, большого различия скоростей диффузии мономера и фотополимеризации, а также насыщения изменения показателя преломления с ростом энергии засветки.

Экспериментальные исследования в этой области с одной стороны проверяют теоретические предположения, а с другой – предоставляют данные, уточняющие детали исследуемых процессов. В [5–8] на основании измерений дифракционной эффективности (ДЭ) таких решёток в широком диапазоне угла восстановления установлено, что ДЭ решёток высоких порядков возрастает, если скорость диффузии мономера меньше скорости полимеризации, а также при увеличении интенсивности засветки и в случае решёток с периодом менее 1500 лин./мм. В [5, 6] получены оценки модуляции показателя преломления основной решётки, её второй гармоники и их отношения, составляющего 4:1 и выше.

Е.Ф.Пен. Институт автоматизации и электрометрии СО РАН, 630090 Россия, Новосибирск, просп. Акад. Коптюга, 1; Новосибирский государственный технический университет, Россия, 630073 Новосибирск, просп. К.Маркса, 20; e-mail:pen@iae.nsk.su

Поступила в редакцию 20 февраля 2018 г.

В статье [8], посвященной в основном использованию второго порядка дифракции от объёмных пропускающих решёток в фотополимерах Bayfol HX (Bayer Material Science AG, Германия) для создания планарных световодов, получены модельные и экспериментальные данные о том, что ДЭ первого порядка дифракции значительно уменьшается, а высоких порядков, наоборот, существенно возрастает при интенсивности и энергии засветки свыше 10 мВт/см² и 100 мДж/см² соответственно.

Отметим, что проведённое авторами [8] моделирование профиля распределения показателя преломления в отражательных решётках с периодом ~4500 лин./мм в этих материалах показывает отсутствие отклонения от синусоидальной картины, однако этот вывод экспериментально не подтверждён.

Вместе с тем известны работы, в которых не только допускается возможность существования высоких порядков дифракции от объёмных отражательных голографических решёток [9], но и осуществлено их наблюдение в работе [10], что объясняется влиянием перемодуляции показателя преломления в галоидо-серебряных эмульсиях типа ВВ640. К сожалению, авторам этих работ не удалось продемонстрировать присутствие этих гармоник на едином спектре пропускания исследуемых решёток. Очевидно, что это связано со сложностью подобных экспериментов, поскольку необходимо зарегистрировать значительно удалённые друг от друга рефлекс (отражение света) в спектральном диапазоне 250–1500 нм с высоким разрешением. В работе [10] эту проблему обошли путём искусственного увеличения периода решётки с помощью технологии набухания желатины в воде (swelling).

Цель настоящей работы – экспериментальное исследование рефлексов высоких порядков от объёмных отражательных голографических решёток в ФПМ, включая их изготовление, а также измерение дифракционных и спектральных характеристик. Эти сведения могут быть полезны как в плане уточнения механизмов формирования голограмм в фотополимерных материалах, так и при их использовании в спектральных фильтрах, дисплеях, защитных голограммах и др.

2. Теоретические аспекты

Высокие порядки брэгговской дифракции от объемных голографических решёток возникают вследствие того, что профиль результирующего распределения показателя преломления в этих решётках существенно отличается от синусоидального и имеет следующий вид [5]:

$$n(x) = n_0 + \sum_{i=1}^{\infty} n_i \cos\left(\frac{2i\pi x}{\Lambda}\right), \quad (1)$$

где x – пространственная координата вдоль вектора решётки; $i = 1, 2, 3, \dots$; $\Lambda = \lambda_0 / (2n_0 \cos\theta_1)$ – период основной решётки; λ_0, n_0, θ_1 – длина волны лазерного излучения (в воздухе), используемого при записи решёток, среднее значение показателя преломления регистрирующей среды и угол Брэгга в этой среде соответственно. В частности, n_1, n_2 и n_3 – амплитуды модуляции показателя преломления фотополимера, соответствующие основной решётке, её второй и третьей гармоникам.

Если на объёмную решётку толщиной T направить пучок белого света по нормали к её поверхности, то, согласно теории [11], в спектре прошедшего света вследствие брэгговского отражения должны появиться провалы, контуры которых имеют центральные длины волн $\lambda_i^f = 2n_0\Lambda_i = 2n_0\Lambda i$.

Рассуждая аналогично [5], где приведены выражения для ДЭ объёмной пропускающей решетки и её второй гармоники, основанные на теории связанных волн [11], можно предположить, что для объёмной отражающей решетки и её гармоник справедливы следующие формулы:

$$\eta_i^f = \tanh^2 \frac{\pi n_i T}{2n_0 \Lambda_i}, \quad (2)$$

где η_i^f – ДЭ соответствующей решётки.

Зная экспериментально полученные значения η_i^f , можно определить n_i , а также их отношения, в частности

$$n_1 = \frac{2\Lambda n_0 \tanh^{-1}(\sqrt{\eta_1^f})}{\pi T},$$

$$\frac{n_1}{n_2} = 2 \frac{\tanh^{-1}(\sqrt{\eta_1^f})}{\tanh^{-1}(\sqrt{\eta_2^f})}, \quad \frac{n_1}{n_3} = 3 \frac{\tanh^{-1}(\sqrt{\eta_1^f})}{\tanh^{-1}(\sqrt{\eta_3^f})}. \quad (3)$$

При исследовании спектральных характеристик основной решётки и её гармоник следует учитывать, что среднее значение показателя преломления регистрирующей среды n_0 увеличивается по мере роста энергии засветки и затем насыщается. Увеличение n_0 сопровождается уменьшением объёма ФПМ (главным образом, толщины слоя) и известно как усадка [12]. Существенным также является влияние дисперсии показателя преломления ФПМ, вследствие чего значения n_0 для рефлексов в длинноволновой и коротковолновой областях спектра будут различными. Особенности этих процессов применительно к теме исследования рассмотрены ниже.

3. Экспериментальные исследования

3.1. Установка записи объёмных отражательных решёток

Объёмные отражательные решётки обычно формируют путём интерференции двух противоположно направ-

ленных лазерных пучков, при этом период решёток зависит от длины волны используемого излучения, показателя преломления регистрирующей среды, угла схождения указанных пучков (обычно от 60° до 180° , в воздухе) и может составлять 0.16 – 0.26 мкм для фотополимерных материалов с $n_0 \sim 1.5$ и лазерного излучения с длинами волн от 473 до 633 нм. В [13] получены объёмные отражательные решётки с периодом 0.24 мкм за счет использования излучения с длиной волны 514 нм и схемы записи на основе двух прямоугольных оптических призм для ввода излучения в ФПМ и обеспечения угла схождения записывающих пучков 90° (в среде). Нами разработана установка с элементами заимствования из [13], но схема значительно упрощена и содержит лишь одну такую призму.

Её оптическая схема (показан поперечный разрез) изображена на рис.1. С помощью ряда оптических элементов (на рисунке не представлены) формируется s -поляризованный коллимированный пучок света, называемый опорным; он направляется по нормали на узкую боковую грань оптической призмы, изготовленной из стекла марки К8, с основанием в виде равнобедренного прямоугольного треугольника. Этот пучок распространяется последовательно через призму и плёнку ФПМ с адгезивными свойствами, приклеенную одной поверхностью к широкой боковой грани призмы, а другой – к верхней поверхности прозрачной подложки (из пластика или стекла), и полностью отражается от нижней поверхности указанной подложки, граничащей с воздухом (поскольку в данном случае угол его падения на подложку составляет 45° и превышает критический угол полного внутреннего отражения, равный 41.3° для материала подложки с показателем преломления ~ 1.5). Отраженный пучок, по существу являющийся предметным, необходимый для образования голограммы, сохраняет s -поляризацию и интерферирует с опорным пучком, в результате чего в ФПМ регистрируется объёмная отражательная голографическая решётка.

Для расширения диапазона периодов исследуемых решёток нами, помимо вышеуказанной призмы, использовалась также дисперсионная призма из стекла с показателем преломления 1.515 и углом при вершине 67° , при этом угол падения опорного пучка на боковую грань этой призмы подбирался таким, чтобы в среде ФПМ он был близок к 65° . В этом случае расчётные длины волн брэгговского отражения (рефлексов) основной решётки, её второй и третьей гармоник должны составлять $\sim 1500, 750$ и

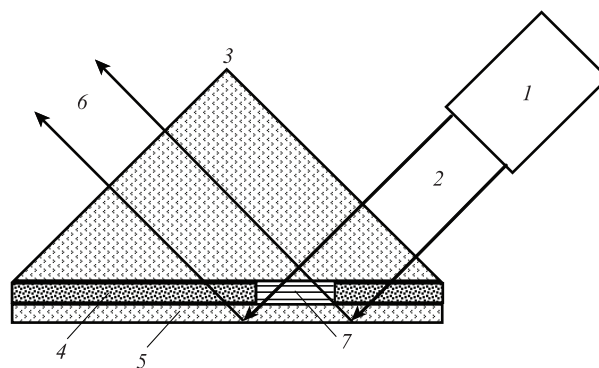


Рис.1. Схема установки записи объёмных отражательных решёток: 1 – лазер; 2 – коллимированный пучок света; 3 – оптическая призма; 4 – фотополимерный материал; 5 – оптическая подложка; 6 – отражённый (предметный) пучок, необходимый для образования объёмной отражательной голографической решётки 7.

500 нм, что представляет интерес для устройств оптической связи, спектральных фильтров и дисплеев.

Измерение спектральных характеристик исследуемых решеток проводилось с помощью спектрометра SHIMADZU UV/VIS 2501 PC с двойным монохроматором (Shimadzu Corporation, Япония) и оптического анализатора спектров Yokogawa AQ6370 (Yokogawa, Япония), работающих в диапазонах 190–1100 нм и 600–1700 нм соответственно с разрешением 0.1 нм.

Величина ДЭ объемных отражательных решеток оценивалась спектроскопическим методом [14] по формуле

$$\eta^r = (1 - Tr_r/Tr_0) \times 100\%, \quad (4)$$

где Tr_r – коэффициент пропускания голограммы в области наименьших значений контура спектрального провала, вызванного отражением света; Tr_0 – коэффициент пропускания вне данной области (вблизи основания данного контура).

3.2. Обсуждение результатов экспериментов

Было изготовлено несколько образцов объемных отражательных решеток: № 1а, № 1б – с применением He–Ne-лазера (длина волны излучения 632.8 нм), № 2 – с использованием DPSS-лазера (532 нм) (во всех этих случаях использовалась оптическая призма с основанием в виде равнобедренного прямоугольного треугольника) и № 3 – с помощью He–Ne-лазера и вышеупомянутой спектроскопической призмы. Выбор параметров решеток обусловлен задачей регистрации рефлексов основной решетки и её гармоник в широкой (300 – 1500 нм) области спектра. В экспериментах использован цветной фотополимер BAYFOL HX TP из линейки продуктов компании Bayer MaterialScience AG [4].

В случае He–Ne-лазера для решеток № 1а и № 3 интенсивность опорного пучка составляла 15 мВт/см², энергия записи – 250 мДж/см², для решетки № 1б – 3 мВт/см², энергия записи та же, для DPSS-лазера (решетка № 2) – 6 мВт/см² и 150 мДж/см². Мощность лазерного излучения измерялась прибором VEGA с фотоэлектрическим датчиком (ORHIR, Израиль). После записи образцы ФПМ с решетками отделялись от призм и подвергались засветке УФ излучением в соответствии с [4] для обесцвечивания остаточного красителя фотополимера, затем на решетки по нормали к их поверхностям направлялся пучок зондирующего белого света, а прошедший свет регистрировался указанными выше спектральными приборами.

Отметим, что паразитные переотражения устранялись при угле падения опорного пучка на призму с прямоугольным треугольником в основании, фактически равным ~46°, а с учётом показателей преломления стекла призмы (~1.515) и фотополимера (~1.5) угол распространения опорного пучка в ФПМ можно было оценить примерно в 46.3°. Это обстоятельство учтено ниже при расчёте длины волны рефлексов основной решетки и её гармоник.

На рис.2 представлен спектр пропускания объемной отражательной решетки № 1а, изготовленной с помощью He–Ne-лазера и вышеописанной установки. Хорошо видны узкие провалы, обусловленные брэгговским отражением света, причём наряду с отражением (рефлексом), соответствующим основной решетке, присутствуют рефлексы, принадлежащие её второй и третьей гармоникам.

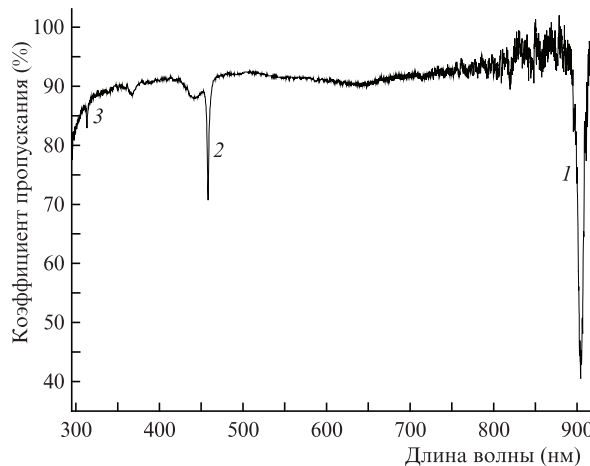


Рис.2. Спектр пропускания объемной отражательной решетки № 1а: 1 – рефлекс основной решетки; 2 и 3 – рефлексы второй и третьей гармоник.

новлено, что длина волны рефлекса основной решетки $\lambda_1^r \sim 904$ нм, ширина контура $\Delta\lambda_1^r \sim 8$ нм (по уровню 50% от его глубины), вычисленная по формуле (4) ДЭ η_1^r составляет ~50%; для второй гармоники $\lambda_2^r \sim 457$ нм, $\Delta\lambda_2^r \sim 4$ нм и $\eta_2^r \sim 17\%$; для третьей – $\lambda_3^r \sim 313$ нм, $\Delta\lambda_3^r \sim 1$ нм и $\eta_3^r \sim 3\%$. Отметим, что погрешности измерений длин волн рефлексов составили не более ± 0.1 нм, а дифракционной эффективности – не более $\pm 1\%$. Согласно формуле (3) найдено, что $n_1 \sim 0.005$, $n_1/n_2 \sim 4$, $n_1/n_3 \sim 15$, т. е. доля второй гармоники в спектре отраженного света существенна, а третьей – мала.

На рис.3 представлен спектр пропускания объемной отражательной решетки № 1б. В отличие от рис.2, здесь $\lambda_1^r \sim 902$ нм, ДЭ основной решетки η_1^r больше и составляет ~66%; для второй гармоники $\lambda_2^r \sim 456$ нм, $\eta_2^r \sim 7\%$; рефлекс третьей гармоники отсутствует либо неразличим на фоне шумов измерений.

Таким образом, теоретическое предположение [8] о том, что с уменьшением интенсивности засветки (при сохранении её энергии) ДЭ высоких порядков падает, экспериментально подтверждается.

Спектр пропускания решетки № 2, изготовленной на этой же установке, но с помощью DPSS-лазера (532 нм), показан на рис.4. Видно, что длина волны рефлекса основной решетки $\lambda_1^r \sim 754$ нм, ширина контура (по уровню 50% от его глубины) $\Delta\lambda_1^r \sim 6$ нм, вычисленная по форму-

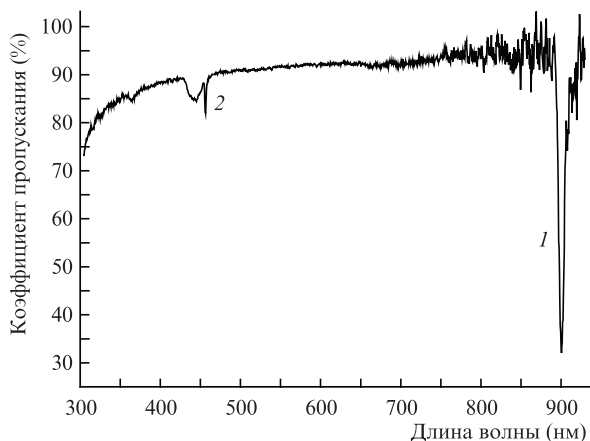


Рис.3. Спектр пропускания объемной отражательной решетки № 1б: 1 – рефлекс основной решетки; 2 – рефлекс второй гармоники.

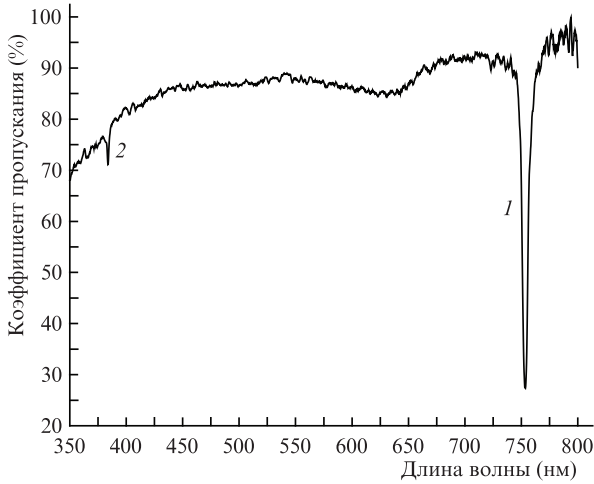


Рис.4. Спектр пропускания объёмной отражательной решётки № 2: 1 – рефлекс основной решётки; 2 – рефлекс второй гармоники.

ле (4) ДЭ $\eta_1^r \sim 70\%$; для второй гармоники $\lambda_2^r \sim 384$ нм, $\Delta\lambda_2^r \sim 2$ нм и $\eta_2^r \sim 6\%$. В данном случае доля второй гармоники в спектре отраженного света незначительна. Рефлекс третьей гармоники с ожидаемой длиной волны отражения $\lambda_3^r \sim 255$ нм (т.е. в области УФ, где поглощение ФПМ значительное) зарегистрировать не удалось.

На рис.5 представлен спектр пропускания объёмной отражательной решётки №3, сформированной с помощью He–Ne-лазера и упомянутой ранее спектроскопической призмы. Он представляет собой сшивку двух спектров одной и той же решётки, полученных на разных спектральных приборах: экспериментальные точки спектра, зарегистрированного на анализаторе спектров Yokogawa AQ6370 обозначены светлыми кружками, а точки спектра, полученного с помощью спектрофотометра SHIMADZU UV/VIS 2501 PC, – тёмными. Сшивка оказалась возможной благодаря тому, что рефлексы второй гармоники исследуемой решётки на обоих спектрах совпали, это хорошо видно на увеличенном изображении фрагмента спектра.

После обработки данных найдено, что длина волны рефлекса основной решётки $\lambda_1^r \sim 1462$ нм, ширина конту-

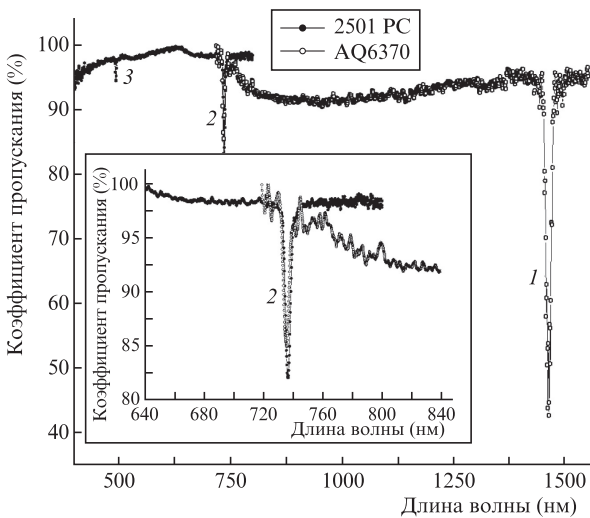


Рис.5. Спектр пропускания объёмной отражательной решётки № 3: 1 – рефлекс основной решётки; 2 и 3 – рефлексы второй и третьей гармоник.

ра (по уровню 50% от его глубины) $\Delta\lambda_1^r \sim 12$ нм, вычисленная по формуле (4) ДЭ $\eta_1^r \sim 53\%$; для второй гармоники $\lambda_2^r \sim 736$ нм, $\Delta\lambda_2^r \sim 4$ нм и $\eta_2^r \sim 15\%$; для третьей – $\lambda_3^r \sim 495$ нм, $\Delta\lambda_3^r \sim 1$ нм и $\eta_3^r \sim 3\%$. Тогда, в соответствии с формулой (3), $n_1/n_2 \sim 4.5$, $n_1/n_3 \sim 16$, т.е. доля второй гармоники в спектре отраженного света достаточно заметна, а третьей – незначительна.

Отметим, что экспериментальные значения длин волн рефлексов λ^r всех исследованных решёток отличаются от расчётных (теоретических) $\tilde{\lambda}^r$, которые могут быть найдены по формулам, приведённым в [15].

Эти отличия обусловлены, во-первых, изменениями условий брэгговской дифракции, связывающих период объёмной отражательной решётки Λ , показатель преломления n и длину волны рефлекса соотношением [11]

$$\tilde{\lambda}^r = \Lambda 2n. \tag{5}$$

Такие изменения возникают в процессе записи решёток и постобработки ФПМ из-за так называемой эффективной усадки фотополимера S_{eff} [15, 16], учитывающей как уменьшение его толщины T (геометрическая усадка), так и увеличение среднего значения n . Геометрическая усадка $\Delta T/T$, достигающая 0.01 – 0.02 [15, 17], приводит к пропорциональному уменьшению периода решётки и, следовательно, к сдвигу рефлекса в коротковолновую область спектра, а увеличение показателя преломления фотополимера $\Delta n/n$, составляющее 0.005 – 0.01 [7, 17], – наоборот, вызывает сдвиг рефлекса в длинноволновую область.

Отметим, что отношения $\lambda^r/\tilde{\lambda}^r$ для рефлексов основной решётки и её гармоник должны быть одинаковыми, поскольку независимо от периода решётки справедливо выражение

$$\frac{\lambda^r}{\tilde{\lambda}^r} = S_{\text{eff}} = \left(1 + \frac{\Delta n}{n}\right)\left(1 - \frac{\Delta T}{T}\right). \tag{6}$$

Вместе с тем расчёты показывают, что при длине волны $\lambda = 633$ нм и показателе преломления ФПМ $n = 1.5$ период основной решётки № 1a равен 305.4 нм, длина волны её рефлекса $\tilde{\lambda}_1^r = 916$ нм, а второй и третьей гармоник – 458 и 305 нм. В таком случае соотношения экспериментальных и расчётных значений указанных рефлексов оказываются неодинаковыми и равными 0.9869, 0.9978 и 1.0262 соответственно.

Для устранения этой нестыковки обратим внимание на то, что, согласно формуле (5), расчёт длины волны рефлекса решётки должен проводиться с учётом дисперсии показателя преломления ФПМ $n(\lambda)$, т.е. его зависимости от длины волны наблюдения. Необходимые нам данные для фотополимеров Bayer MaterialScience приведены в работе [17], из которой следует (с экстраполяцией), что в интервале длин волн 900 – 300 нм среднее значение показателя преломления меняется от 1.490 до 1.545 и заметно отличается от ранее принятого нами постоянного значения $n = 1.5$. Необходимое уточнение дало новые расчётные значения для решётки № 1a: $\tilde{\lambda}_1^r = 910$ нм, $\tilde{\lambda}_2^r = 460$ нм и $\tilde{\lambda}_3^r = 315$ нм; с этими значениями экспериментальные данные соотносятся как 0.9934, 0.9935 и 0.9936.

Таким образом, найдено адекватное объяснение отличию экспериментальных и расчётных значений длин волн рефлексов решётки № 1a, заключающееся в учёте как эффективной усадки ФПМ, так и дисперсии его показателя

преломления. Для остальных вышеуказанных решёток можно провести аналогичный анализ.

4. Заключение

С помощью установки с призмным вводом излучения в регистрирующий слой фотополимерного материала получены образцы объёмных отражательных решёток с диапазоном периодов 2000 – 4000 лин./мм.

Экспериментально зарегистрированы рефлексы основных решёток, а также их вторых и третьих гармоник. В частности, для решётки с основным рефлексом на длине волны 904 нм зарегистрированы гармоники на длинах волн 457 и 313 нм, их ДЭ составили соответственно $\eta_1^r \sim 50\%$, $\eta_2^r \sim 17\%$, $\eta_3^r \sim 3\%$.

Для исследованных нами фотополимеров наличие рефлексов высоких порядков слабо зависит от периода отражательных решёток, основную роль играют, вероятно, соотношение скоростей диффузии мономера и полимеризации, а также насыщение фотоиндуцированного изменения показателя преломления ФПМ при больших значениях интенсивности и энергии засветки. Подтверждено теоретическое предположение о том, что с увеличением интенсивности засветки ДЭ высоких порядков возрастает. Вместе с тем ясно, что данный вопрос требует более глубоких исследований, взаимосвязанных с конкретным составом ФПМ.

Сопоставление экспериментальных и расчётных значений длин волн рефлексов необходимо проводить с учётом как эффективной усадки ФПМ, так и дисперсии его показателя преломления.

Полученные результаты могут быть использованы для уточнения механизмов формирования голограмм в фотополимерных материалах, а также при их практиче-

ском применении в спектральных приборах, голографических оптических элементах, дисплеях и т. п.

Работа выполнена с использованием оборудования Центра коллективного пользования «Высокоразрешающая спектроскопия газов и конденсированных сред» ИАиЭ СО РАН, Новосибирск.

Автор выражает благодарность С.М.Микерину и В.С.Терентьеву за помощь в проведении измерений спектральных характеристик голографических решёток, а также компании Bayer MaterialScience AG (Германия) за предоставленные образцы фотополимерных материалов.

1. Zhao G., Mouroulis P. *J. Modern Opt.*, **41**, 1929 (1994).
2. Piazzolla S., Jenkins B. *Opt. Lett.*, **21**, 1075 (1996).
3. Lawrence J.R., O'Neill F.T., Sheridan J.T. *Optik*, **112**, 449 (2001).
4. Friedrich-Karl Bruder, Francois Deuber, Thomas Fäcke, et al. *Proc. SPIE*, **7619**, 761901-1 (2010).
5. Zhao G., Mouroulis P. *Opt. Commun.*, **115**, 528 (1995).
6. Neipp C. Beléndez A., Gallego S., Ortuño M., et al. *Opt. Express*, **11**, 1835 (2003).
7. Massenot S., Kaiser J.-L., Chevallier R., Renotte Y. *Appl. Opt.*, **43**, 5489 (2004).
8. Friedrich-Karl Bruder, Thomas Fäcke, Rainer Hagen, et al. *Proc. SPIE*, **9508**, 95080G-1 (2015).
9. Lumeau Julien, Glebov Leonid B. *Appl. Opt.*, **52**, 3993 (2013).
10. Mas-Abellán P., Madrigal R., Fimia A. *Proc. SPIE*, **10233**, 1023303-1 (2015).
11. Kogelnik H. *Bell Syst. Techn. J.*, **48**, 2909 (1969).
12. Gallo J. T., Verber C. M. *Appl. Opt.*, **33**, 6797 (1994).
13. Defosse Y., Carre C., Lougnot D.J. *Pure Appl. Opt.*, **2**, 437 (1993).
14. Smothers W.K., Monroe B.M., Weber A.M., Keys D.E. *Proc. SPIE*, **1212**, 20 (1990).
15. Пен Е.Ф., Зарубин И.А., Шелковников В.В., Васильев Е.В. *Автометрия*, **52** (1), 60 (2016)
16. Stevenson Sylvia H., Steijn Kirk W. *Proc. SPIE*, **2405**, 88 (1995).
17. Friedrich-Karl Bruder, Hyungseok Bang, Thomas Fäcke, et al. *Proc. SPIE*, **9771**, 977103-1 (2016).