УДК 532.783

НЕЛОКАЛЬНАЯ 3D ДИФФУЗИОННАЯ МОДЕЛЬ ЗАПИСИ ТОЛСТЫХ ДИФРАКЦИОННЫХ РЕШЕТОК В ПОЛИМЕРНО-ДИСПЕРГИРОВАННЫХ ЖИДКИХ КРИСТАЛЛАХ

А.Л. АСЛАНЯН, А.В. ГАЛСТЯН, Р.С. АКОПЯН

Ереванский государственный университет, Армения

(Поступила в редакцию 26 марта 2008 г.)

Рассмотрена динамика процесса записи голографических дифракционных решеток в полимерно-диспергированных жидких кристаллах с учетом поглощения. Учтены процессы диффузии молекул не только мономера, но и полимера, а также влияние неоднородности освещения внутри образца за счет поглошения света. Рассмотрена также роль нелокальности отклика процесса полимеризации.

1. Введение

Фотополимерные материалы с примесью молекул жидкого кристалла удобны для оптической записи высокоэффективных дифракционных решеток с управляемыми параметрами и имеют постоянно увеличивающееся применение [1-4]. Одним из основных требований для этого применения является то, что толщина материала должна быть 500 мкм или более [5].

Было предложено много теоретических двумерных моделей для анализа записи дифракционных решеток в тонких слоях, где не учитывалось поглощение света [6-9]. Однако присутствие молекул красителя в растворе приводит к поглощению и интенсивность света вдоль направления распространения уменьшается. Для достаточно толстых решеток такое поглощение существенно и пренебрегать им при теоретическом анализе нельзя. В результате имеющиеся двумерные модели становятся непригодными для толстых голографических решеток.

В работе [10] была предложена трехмерная модель для описания динамики записи голографических решеток в толстых фотополимерных слоях. Для количественного описания поведения смеси в слое образца применялся метод разделения на тонкие подслои. Такое разделение позволяет применять двумерную модель для каждого подслоя в отдельности. Однако в описанной модели [10] не учитывалась диффузия молекул полимера и нелокальность процесса полимеризации. В работе [9] нами было рассмотрено влияние диффузии молекул полимера на качество записываемой дифракционной решетки и обсуждены режимы, при которых она существенна. Например, в ряде случаев, в зависимости от типа полимера, полимеризованные молекулы успевают диффундировать в темные области интерференцион-

ной картины и ухудшают модуляцию концентрации. В результате профиль показателя преломления внутри образца расплывается и качество записанной дифракционной решетки ухудшается. Существенную роль играет также нелокальность процесса полимеризации.

Очевидно, что учет дополнительных процессов, имеющих место в процессе фотополимеризации, позволяет улучшить физическую точность управляемой нелокальной диффузионной модели и тем самым способствовать полному пониманию динамики процесса записи дифракционных решеток.

Целью настоящей работы является развитие диффузионной модели процесса записи толстых дифракционных решеток в полимерно-диспергированных жидких кристаллах (ПДЖК) с учетом нелокальности процесса полимеризации и диффузии полимеризованных молекул.

2. Теория

Рассмотрим процесс записи дифракционной решетки в трехкомпонентной смеси (мономер–краситель–жидкий кристалл). Выберем систему координат следующим образом: пусть ось z направлена вдоль толщины слоя, а оси x и y лежат в поперечной плоскости (рис.1).



Рис.1. Геометрия задачи.

При записи стандартных голограмм кювета освещается интерференционной картиной двух плоских волн, при этом в результате интерференции распределение света в образце является периодическим. С учетом поглощения света распределение интенсивности вдоль направления *z* имеет следующий вид:

$$I(x,z,t) = I_0 \left[1 + V \cos(K_g x) \right] e^{-\alpha(t)z} , \qquad (1)$$

где ось *х* направлена вдоль линии пересечения плоскости падения пучков и ПДЖК пленки, I_0 – средняя интенсивность света (см. рис.1), *V* – глубина модуляции, $K_g = 2\pi/\Lambda$ – волновое число дифракционной решетки, Λ – период модуляции, $\alpha(t)$ – зависящий от времени коэффициент поглощения, начальное значение которого известно, если известны физическая толщина и пропускание образца.

Вследствие просветления красителя в результате участия молекул в цепной реакции, коэффициент поглощения уменьшается пропорционально длительности освещения. Временная зависимость коэффициента поглощения описывается следующим уравнением [10]:

$$d\alpha(t)/dt = -\alpha(t)K_{\alpha}I_0.$$
 (2a)

Здесь K_{lpha} – коэффициент, описывающий скорость расхода красителя. Решение (2а) имеет вид

$$\alpha(t) = \alpha_0 e^{-K_\alpha I_0 t}, \qquad (26)$$

где α_0 – начальное значение коэффициента поглощения. Формула (2б) указывает, что коэффициент поглощения уменьшается пропорционально длительности освещения по экспоненциальному закону.

При формировании дифракционной решетки существенными являются следующие процессы.

- а) Полимеризация и диффузия молекул мономера. Под действием света молекулы мономера полимеризуются. В результате в более освещенных местах интерференционной картины концентрация мономера уменьшается. Из менее освещенных областей молекулы мономера диффундируют в более освещенные области. Благодаря таким диффузионным потокам и создается пространственная модуляция плотности конечного полимера, а значит, и коэффициента преломления.
- б) Нелокальность процесса полимеризации. В диффузионной модели реакция фотополимера на падающий свет обычно считается локальной, то есть процесс полимеризации в данной точке не зависит от значения интенсивности света в соседних точках и в предыдущие моменты времени. Однако, в ряде случаев, в зависимости от механизмов записи и характерных времен, становится необходимым учет нелокальности отклика [8]. Для общности в настоящей работе нами учитывается также пространственная нелокальность отклика.
- в) Диффузия молекул полимера. Немаловажно, что идет также обратный процесс. Полимеризованные молекулы в свою очередь диффундируют из освещенных областей в менее освещенные. Необходимость учета такого обратного процесса в тонких слоях впервые обсуждалась в [9].

Запишем диффузионные уравнения, в которые включены слагаемые, учитывающие указанные процессы. Считая освещение вдоль оси *у* однородным, представим уравнения диффузии молекул мономера и полимера в следующем виде:

$$\frac{\partial U(x,z,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_U \frac{\partial U(x,z,t)}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_U \frac{\partial U(x,z,t)}{\partial z} \right) - \frac{\partial N(x,z,t)}{\partial t}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial N(x,z,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_N \frac{\partial N(x,z,t)}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_N \frac{\partial N(x,z,t)}{\partial z} \right) + \int_{-\infty}^{+\infty} R(x,x') k_R(t) I(x',z,t) U(x',z,t) dx'. \quad (4)$$

Здесь U(x, z, t) – концентрация молекул мономера, N(x, z, t) – концентрация молекул полимера. Временное уменьшение коэффициента полимеризации $k_R(t)$ описывается уравнением

$$dk_R(t)/dt = -k_R(t)\varphi I_0 \tag{5}$$

с начальным условием $k_R(t=0) = k_R$, где φ – скорость убывания коэффициента полимеризации. Первые два члена в правых частях уравнений (3) и (4) описывают диффузионные процессы мономера и полимера, соответственно, а последний член в (4) – процесс полимеризации с учетом пространственной нелокальности. Для радиуса нелокальности в последующих расчетах нами использовано гауссовское распределение

$$R(x-x') = \exp\left(-\frac{(x-x')^2}{2\sigma}\right) / \sqrt{2\pi\sigma} , \qquad (6)$$

где $\sqrt{\sigma}$ описывает длину нелокальности отклика, то есть пространственный масштаб той области, в которой существенно воздействие соседних точек. Молекулы ЖК не влияют на протекание процесса полимеризации и поэтому не включены в диффузионные уравнения, а их концентрацию можно найти из условия нормировки U + N + L = 1. Для упрощения системы уравнений (3) и (4) сделаем следующее замечание: если толщина слоя порядка 1 мм, а период решетки меньше 1 мкм, то, как показывают простые оценки,

$$\partial U(x,z,t)/\partial x \gg \partial U(x,z,t)/\partial z$$
, $\partial N(x,z,t)/\partial x \gg \partial N(x,z,t)/\partial z$.

Это означает, что диффузией молекул мономера и полимера вдоль *z* можно пренебречь. Такое приближение позволяет трехмерные диффузионные уравнения свести к двумерным:

$$\frac{\partial U(x,z,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_U \frac{\partial U(x,z,t)}{\partial x} \right) - \frac{\partial N(x,z,t)}{\partial t}, \tag{7}$$

$$\frac{\partial N(x,z,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_N \frac{\partial N(x,z,t)}{\partial x} \right) + \int_{-\infty}^{+\infty} R(x,x') k_R(t) I(x',z,t) U(x',z,t) dx'.$$
(8)

Учитывая пространственную периодичность освещающего излучения, концентрации мономера U(x, z, t) и полимера N(x, z, t) можно представить в виде ряда Фурье

$$U(x,z,t) = \sum_{i=0}^{\infty} U_i(z,t) \cos(ikx), \qquad N(x,z,t) = \sum_{i=0}^{\infty} N_i(z,t) \cos(ikx)$$

и подставить в уравнения (7) и (8). Оценки показывают, что Фурье-гармоники выше второго порядка приводят к малым поправкам, и следовательно, в Фурье-разложении U(x, z, t) и N(x, z, t) можно оставить первые три члена. Окончательно получим шесть связанных дифференциальных уравнений для $U_0(z,t)$, $U_1(z,t)$, $U_2(z,t)$ и $N_0(z,t)$, $N_1(z,t)$, $N_2(z,t)$. Эта система уравнений позволяет проанализировать основные особенности динамики процесса записи дифракционной решетки.

3. Результаты

Полученная в работе система уравнений нами решена численным методом с помощью программы "Маthematica 6". В качестве примера на рис.2 показан профиль записанной дифракционной решетки в случае локальной модели без учета и с учетом диффузии молекул полимера при одном и том же значении коэффициента поглошения, а на рис.3 – для случая нелокальной модели. Результаты получены для следующих численных значений использованных параметров: v = 0.5; $D_m = 0.02$; $\alpha_m = 0.2$; $K = 0.016 \text{ см}^2/\text{мДж}$; k = 6.28; $I_0 = 5 \text{ мВм/см}^2$; $\phi = 0.006$; $\alpha_0 = 0.006$; $K_{\alpha} = 0.005$. Сравнение этих рисунков позволяет отметить следующие характерные особенности: 1) Учет диффузии молекул полимера существенно ухудшает пространственную модуляцию концентрации дифракционной решетки по толщине образца. Это вполне понятно, так как роль диффузии молекул полимера увеличивается с уменьшением интенсивности света. 2) учет нелокальности, как и следовало ожидать, приводит к равномерному уменьшению глубины модуляции по всему образцу.



Рис.2. Локальная модель без учета (а) и с учетом (б) диффузии молекул полимера. Параметры имеют следующие значения: а) $D_p = 0$; $\alpha_p = 0$, $\sigma = 0$, б) $D_p = 0,003$ мкм²/с; $\alpha_p = 2$, $\sigma = 0$.

(б)



Рис.3. Нелокальная модель без учета (а) и с учетом (б) диффузии молекул полимера. Параметры имеют следующие значения: а) $D_p = 0$, $\alpha_p = 0$, $\sigma = 0,03 \text{ мкм}^2$, б) $D_p = 0,003 \text{ мкм}^2$ /с; $\alpha_p = 5$, $\sigma = 0,03 \text{ мкм}^2$.

4. Заключение

Резюмируя, можно сказать, что описание процесса записи голографических решеток с большой пространственной модуляцией концентраций в слоях с учетом поглощения связано с определенными трудностями. В этом случае простая диффузионная модель процесса полимеризации оказывается недостаточной. Необходимо одновременно учитывать множество существующих факторов. К их числу относятся поглощение света, нелокальность процесса полимеризации, а также влияние диффузионных процессов молекул полимера.

Как показывает наш анализ, учет диффузионных процессов и нелокальности отклика значительно размывает картину и тем самым уменьшает пространственную модуляцию концентраций записываемой решетки, а в перспективе и объем записываемой информации. Поэтому для получения качественных дифракционных решеток в полимерных материалах необходимо выбрать такие компоненты, в которых вклад вышеуказанных процессов будет малым.

ЛИТЕРАТУРА

- K.Okano, A.Shishido, O.Tsutsumi, T.Shiono, T.Ikeda. J. of Nonliniar Optical Physics & Materials, 12, 539 (2003).
- 2. D.Duca, A.V.Sukhov, C.Umeton. Liquid Crystals, 26, 931 (1999).
- 3. R.Sutherland, V. Tondiglia, L.Natarajan. Appl. Phys. Lett., 64, 1074 (1994).
- 4. Y.Zhang, Z. Lu, X. Deng, Y.Liu, Y.Zhao. Optics Communication, 220, 289, (2003).
- 5. S.Gallego, M.Ortuno, C.Neipp, et al. Optics Express, 13, 1939 (2005).
- 6. G.Zhao, P.Mouroulis. J. Mod. Opt., 41, 1929 (1994).
- 7. S.-D.Wu, E.N.Glytsis. J. Opt. Soc. Am. B, 20, 127 (2003).
- 8. J.T.Sheridan, T.O.Neill, J.V.Kelly. J. Opt. Soc. Am., 21, 1443 (2004).
- 9. Р.С.Акопян, А.Л.Асланян, А.В.Галстян. Изв. НАН Армении, Физика, 39, 327 (2004).
- 10. S.Gallego, M.Ortuco, C.Neipp, et al. Optics Express, 13, 3543 (2005).

ՊՈԼԻՄԵՐՆԵՐՈՒՄ ԴԻՍՊԵՐՍՎԱԾ ՀԵՂՈՒԿ ԲՅՈՒՐԵՂԱՅԻՆ ՄԻՋԱՎԱՅՐԵՐՈՒՄ ՀԱՍՏ ԴԻՖՐԱԿՑԻՈՆ ՑԱՆՑԵՐԻ ԳՐՄԱՆ ԵՌԱՉԱՓ ՈՉ ԼՈԿԱԼ ԴԻՖՈՒԶԻՈՆ ՄՈԴԵԼ

Ա.Լ. ԱՍԼԱՆՅԱՆ, Ա.Վ. ԳԱԼՍՏՅԱՆ, Ռ.Ս. ՀԱԿՈԲՅԱՆ

Ուսումնասիրված է պոլիմերներում դիսպերսված հեղուկ բյուրեղային միջավայրերում հոլոգրաֆիական դիֆրակցիոն ցանցերի գրման դինամիկան կլանման առկայությամբ։ Հաշվի են առնված ոչ միայն մոնոմերի, այլ նաև պոլիմերի մոլեկուլների դիֆուզիան, ինչպես նաև կլանման հետևանքով լուսավորման անհամասեռությունը նմուշի երկայնքով։ Քննարկված է նաև պոլիմերացման պրոցեսի ոչ լոկալությունը։

NONLOCAL 3D DIFFUSION MODEL OF WRITING THICK DIFFRACTION GRATINGS IN POLYMER-DISPERSED LIQUID CRYSTALS

A.L. ASLANYAN, A.V. GALSTYAN, R.S. HAKOBYAN

Dynamics of holographic diffraction grating recording process in polymer-dispersed liquid crystals with absorption is considered. Processes of diffusion of molecules not only of a monomer, but also of a polymer, as well as the influence of inhomogeneity of illumination inside the sample due to light absorbtion are considered. The role of nonlocality of polymerization process is taken into account also.