

Физика

УДК 535.421; 532.783

А. В. ГАЛСТЯН

**ЭВОЛЮЦИЯ И ИССЛЕДОВАНИЕ ТОЛСТЫХ АНИЗОТРОПНЫХ
ГОЛОГРАММ, ЗАПИСАННЫХ В ПОЛИМЕРНО-ДИСПЕРГИРОВАННЫХ
ЖИДКИХ КРИСТАЛАХ**

Теоретически исследована динамика образования анизотропных голограмм и дифракционные свойства полученных решеток. Описаны причины возникновения модуляции в композитной среде фотополимера и жидкого кристалла.

Полимерно-диспергированные жидкие кристаллы (ПДЖК) являются композитными средами, которые обладают управляемой анизотропностью жидкого кристалла, механическими свойствами полимеров и могут использоваться во многих оптических системах и устройствах. Особенно интересны ПДЖК-материалы, основанные на фотополимерах. Они формируются освещением однородных смесей фотомономер-жидкий кристалл (ЖК) светом, который вызывает полимеризацию фотомономера. При этом образуется полимерная матрица, в которой формируются каплеобразные домены ЖК. Если освещать такой раствор интерференционной картиной двух плоских когерентных волн, образуется ПДЖК-материал с модулированным коэффициентом преломления. По мере того, как начинается полимеризация и число молекул мономера уменьшается в освещенных областях, молекулы мономера из темных областей диффундируют в освещенные зоны. Тем временем молекулы ЖК вытесняются из освещенных областей и создается модуляция концентраций полимера и ЖК, что и приводит к модуляции коэффициента преломления и образованию дифракционной решетки. Освещенные области более насыщены полимером, и суммарный коэффициент преломления этих областей близок к коэффициенту преломления полимера, а темные участки насыщены жидким кристаллом, и суммарный коэффициент преломления этих областей обусловлен, главным образом, жидким кристаллом.

Вопросы динамики записи решеток рассматривались в работах [1, 2], а исследование уже записанных ПДЖК-дифракционных решеток – в [3–5].

Данная работа посвящена моделированию процесса записи ПДЖК-голограмм в смеси фотомономер-ЖК и изучению их дифракционных свойств. Приводятся диффузионные уравнения нелокальной полимеризации с учетом диффузии полимера и метод решения этих уравнений. Из полученных пространственных распределений концентраций полимера и ЖК по формуле Лоренца–Лоренца [6] вычислено распределение дизэлектрической проницаемости дифракционной решетки. То же распределение вычислено по более простой, приближенной формуле. Сделано сравнение дифракционных эффективностей для этих двух случаев.

Динамика образования дифракционных решеток. Пусть раствор фотомономера и ЖК освещается периодически модулированным светом с интенсивностью $I(x) = I_0(1 + V \cos(Kx))$, где I_0 – средняя интенсивность, V – глубина модуляции, $K = 2\pi / \Lambda$, Λ – период модуляции. Образование решеток описывается диффузионными уравнениями полимеризации. Пусть $U(x, t)$ – концентрация мономера, $N(x, t)$ – концентрация полимера, а $L(x, t)$ – концентрация жидкого кристалла. Предполагаем, что рост $N(x, t)$ прямо пропорционален $U(x, t)$. Тогда с учетом диффузии полимера уравнение концентрации полимера в рамках модели нелокальной полимеризации примет следующий вид [1]:

$$\frac{\partial N(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[D_p(x, t) \frac{\partial N(x, t)}{\partial x} \right] + \int_{-\infty}^{+\infty} R(x, x') F(x') U(x', t) dx', \quad (1)$$

где $F(x) = F_0(1 + V \cos(Kx))$ является коэффициентом пропорциональности, называемым «локальным порядком полимеризации», $F_0 = kI_0$, где k – постоянная величина, $R(x - x') = \exp(-(x - x')^2 / 2\sigma^2) / \sqrt{2\pi\sigma^2}$ – гауссовская функция, описывающая нелокальность полимеризации, $\sqrt{\sigma}$ – ширина гауссовского распределения, $D_p(x, t)$ – коэффициент диффузии полимера.

Пространственно-временное изменение концентрации мономера задается стандартным уравнением диффузии с дополнительным членом в его правой части, представляющим уменьшение концентрации мономера из-за полимеризации.

$$\frac{\partial U(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[D_m(x, t) \frac{\partial U(x, t)}{\partial x} \right] - \frac{\partial N(x, t)}{\partial t}. \quad (2)$$

Здесь $D_m(x, t)$ – коэффициент диффузии мономера. Пренебрегая диффузионными нелинейностями и учитывая нелокальную полимеризацию, $D_m(x, t)$ и $D_p(x, t)$ можем записать следующим образом:

$$D_{m,p}(x, t) = D_{ma,pa} \exp(-\alpha_{m,p} F_0 t) \cosh \left(\alpha_{m,p} V F_0 t \exp \left(-\frac{K^2 \sigma^2}{2} \right) \right) - \\ - D_{ma,pa} \exp(-\alpha_{m,p} F_0 t) \sinh \left(\alpha_{m,p} V F_0 t \exp \left(-\frac{K^2 \sigma^2}{2} \right) \right) \cos(Kx), \quad (3)$$

где $D_{ma,pa}$ – начальные коэффициенты диффузии мономера и полимера, $\alpha_{m,p}$ – скорости убывания коэффициентов диффузии по мере полимеризации. Так как ЖК не влияет на протекание процесса полимеризации, его концентрация не входит в диффузионное уравнение полимеризации, а распределение концентрации ЖК находим из условия нормировки $U + N + L = 1$.

Уравнения (1), (2) решаются численными методами. Разложим $U(x,t)$ и $N(x,t)$ по координате в ряд Фурье. Учитывая, что полимеризация инициируется косинусоидальным световым полем, и пренебрегая диффузионными нелинейностями, можем утверждать, что $U(x,t)$ и $N(x,t)$ являются периодическими и четными функциями от x -координаты, следовательно, фурье-разложения этих функций содержат только члены с косинусами:

$$U(x,t) = \sum_{i=0}^{\infty} U_i(t) \cos(iKx), \quad N(x,t) = \sum_{i=0}^{\infty} N_i(t) \cos(iKx). \quad (4)$$

Расчеты показывают, что учет гармоник выше второго порядка в разложениях (4) приводит к малым поправкам. Подставляя выражения (3), (4) в (1) и (2) при $i = 0, 1, 2$, получим систему из шести уравнений, которые решаются численными методами. Тем самым получаем пространственное распределение концентраций полимера и мономера. Очевидно, что в конце процесса полимеризации концентрация мономера равна нулю. Пусть N_0 и N_1 – значения первых двух гармоник концентрации полимера после окончания процесса полимеризации. Из условия нормировки можно найти конечное распределение концентрации ЖК: $N_0 + N_1 \cos(Kx) + L_0 + L_1 \cos(Kx) = 1$. Подставляя эти величины в формулу Лоренца–Лоренца [6], находим распределение диэлектрической проницаемости (или коэффициента преломления) в полученной ПДЖК-решетке:

$$\varepsilon_{\parallel,\perp}(x) = \varepsilon_{\parallel,\perp}^0 + \varepsilon_{\parallel,\perp}^1 \cos(Kx), \quad (5)$$

где $\varepsilon_{\parallel,\perp}^0$ – параллельная и перпендикулярная компоненты средней диэлектрической проницаемости, $\varepsilon_{\parallel,\perp}^1$ – параллельная и перпендикулярная компоненты модуляции диэлектрической проницаемости. Таким образом, мы смоделировали образование дифракционной решетки в ПДЖК-материалах и нашли распределение диэлектрической проницаемости в полученной ПДЖК-решетке.

Угловая селективность дифракционной эффективности. Выясним, какова зависимость дифракционной эффективности от угла падения света на толстую анизотропную прозрачную решетку с приведенным выше распределением диэлектрической проницаемости (5).

Рассмотрим ненаклонную прозрачную дифракционную решетку толщиной d и с периодом Λ , с которым был модулирован свет во время записи решетки. Направим ось u вдоль нормали к поверхности решетки.

λ_0 – длина волны пробного падающего света в вакууме, который линейно поляризован либо в плоскости падения (p -волн), либо в перпендикулярной плоскости (s -волн), θ_i – угол падения пучка на решетку (внутри образца). Согласно [3], дифракционная эффективность такой решетки имеет следующий вид:

$$\eta = \frac{\sin^2 \sqrt{\xi^2 + v^2}}{1 + \xi^2/v^2}, \quad (6)$$

где $v = d\sqrt{\chi_i \chi_d}$ – модуляционный параметр, ξ – параметр, описывающий брэгговскую расстройку, χ_i, χ_d – коэффициенты обмена энергиями для падающей и дифрагированной волн соответственно.

$$\xi = \frac{dg_d k_i \Delta}{2 \cos(\varphi_d) k_d}, \quad \chi_{i,d} = \frac{k_0 A}{4n_{i,d} g_{i,d} \cos(\varphi_{i,d})}, \quad (7)$$

где $\Delta = (k_d^2 - k_i^2)/2k_i$, $\vec{k}_{i,d} = \vec{k}_0 n_{i,d}$ – волновые векторы падающей и дифрагированной волн в среде, $n_{i,d}$ – коэффициенты преломления этих волн, $A = \vec{e}_i \hat{\varepsilon}^1 \vec{e}_d = \vec{e}_d \hat{\varepsilon}^1 \vec{e}_i$, \vec{e}_i и \vec{e}_d – единичные векторы электрического поля падающей и дифрагированной волн, $\hat{\varepsilon}^1$ – тензор модуляции диэлектрической проницаемости, который имеет диагональный вид с компонентами $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{||}$, $\varepsilon_{yy} = \varepsilon_{zz} = \varepsilon_{\perp}$, $\varphi_{i,d}$ – углы, составленные вектором Пойнтинга и осью y , $g_{i,d}$ – косинусы углов между векторами Пойнтинга и волновыми векторами падающей и дифрагированной волн.

Для s -волны имеем –

$$g_{i,d} = 1, \quad n_{i,d}^2 = \varepsilon_{\perp}^0, \quad A = \varepsilon_{\perp}^1, \quad (8)$$

а для p -волны –

$$g_{i,d} = \frac{\varepsilon_{||}^0 \sin^2(\theta_{i,d}) + \varepsilon_{\perp}^0 \cos^2(\theta_{i,d})}{\sqrt{(\varepsilon_{||}^0)^2 \sin^2(\theta_{i,d}) + (\varepsilon_{\perp}^0)^2 \cos^2(\theta_{i,d})}}, \quad n_{i,d}^2 = \frac{\varepsilon_{\perp}^0 \varepsilon_{||}^0}{\varepsilon_{||}^0 \sin^2(\theta_{i,d}) + \varepsilon_{\perp}^0 \cos^2(\theta_{i,d})}, \quad (9)$$

$$A = \varepsilon_{\perp}^1 \sin(\varphi_i) \sin(\varphi_d) - \varepsilon_{||}^1 \cos(\varphi_i) \cos(\varphi_d).$$

Численные результаты моделирования и обсуждение результатов. Решив диффузионные уравнения для фурье-компонент концентраций полимера, мономера и жидкого кристалла с начальными условиями $U^0 = 0,7$, $N^0 = 0$, $L^0 = 0,3$ для параметров $I_0 = 10 \text{ мВт/см}^2$, $K = 6,28 \text{ мк}^{-1}$, $V = 0,6$, $\sigma = 0,005 \text{ мк}^2$, $D_{ma} = 0,9 \text{ мк}^2/\text{с}$, $D_{pa} = 0,35 \text{ мк}^2/\text{с}$, $\alpha_m = 2,5$, $\alpha_p = 10$, $k = 0,003 \text{ см}^2/\text{с} \cdot \text{мВт}$, в конце процесса полимеризации получим среднюю концентрацию полимера $N_0 = 0,7$ и модулированную – $N_1 = 0,15$. Фурье-компоненты концентрации ЖК находим из приведенного выше условия нормировки: $L_0 = 0,3$, $L_1 = 0,15$. Концентрация мономера равна нулю, так как

процесс полимеризации завершен. Подставляя эти величины в формулу Лоренца–Лоренца, получаем распределение диэлектрической проницаемости ПДЖК-решетки:

$$\varepsilon_{\parallel}(x) = \varepsilon_{\parallel}^0 + \varepsilon_{\parallel}^1 \cos(Kx) = 2,62 - 0,064 \cos(Kx), \quad (10)$$

$$\varepsilon_{\perp}(x) = \varepsilon_{\perp}^0 + \varepsilon_{\perp}^1 \cos(Kx) = 2,43 + 0,031 \cos(Kx). \quad (11)$$

Эти числовые значения были получены при диэлектрических проницаемостях полимера – $\varepsilon_p = 2,5$, жидкого кристалла – $\varepsilon_{\perp}^{ЖК} = 2,3$, $\varepsilon_{\parallel}^{ЖК} = 2,95$.

В работе [3] сделан расчет угловой зависимости дифракционной эффективности, но вместо формулы Лоренца–Лоренца использована более простая, приближенная формула:

$$\varepsilon_{\parallel,\perp}(x) = \varepsilon_{\parallel,\perp}^{ЖК} (L_0 - L_1 \cos(Kx)) + \varepsilon_p (N_0 + N_1 \cos(Kx)), \quad (12)$$

которая более удобна для численных расчетов. Среднее значение диэлектрической проницаемости ПДЖК-решетки, рассчитанное по приближенной формуле (12) для одних и тех же параметров, отличается от средней диэлектрической проницаемости, рассчитанной по точной формуле Лоренца–Лоренца, на 0,08% для *s*-волны, на 0,33% для *p*-волны. Разница модуляций диэлектрических проницаемостей составляет 2,4% для *s*-волны, 5,5% для *p*-волны. Угловые зависимости дифракционных эффективностей по форме совпадают, а количественно отличаются при $d = 22,4 \text{ мк}$ и $\lambda_0 = 0,628 \text{ мк}$ на 20% для *s*-волны и 30% для *p*-волны. Эта разница становится меньше при малых модуляциях концентраций. Однако в этом случае дифракционная эффективность бывает малой, и такие решетки не интересны.

Таким образом, мы смоделировали динамику записи дифракционных ПДЖК-решеток в растворе ЖК–фотомономер. Из моделирования процесса записи решетки получены распределения концентраций полимера и жидкого кристалла в записанной ПДЖК-решетке. Для полученных распределений концентраций ЖК и полимера вычислено распределение диэлектрических проницаемостей ПДЖК-решетки по формуле Лоренца–Лоренца и по более простой, приближенной формуле. Приведены сравнения полученных распределений диэлектрических проницаемостей и соответствующих дифракционных эффективностей для *s*- и *p*-поляризованных пробных пучков. Оказывается, что дифракционные эффективности, вычисленные по точной и приближенной формулам, качественно совпадают, однако есть количественная разница, и она зависит от поляризации пробного пучка.

Кафедра оптики

Поступила 04.02.2004

ЛИТЕРАТУРА

1. Sheridan J.T., Lawrence J.R. – JOSA A, 2000, v. 17, № 6, p. 1108.
2. Zhao G., Moroulis P. – J. Mod. Opt., 1994, v. 41, № 10, p. 1929.
3. Акопян Р., Галстян А., Галстян Т. – ЖЕТФ (в печати), 2004.

4. Kogelnik H. – Bell Syst. Tech. J., 1969, v. 48, p. 2909.
5. Montemezzani G. and Zgonik M. – Phys. Rev. E., 1997, v. 55, p.1035.
6. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. М.: Наука, 1973, с. 97.

Ա.Վ. ԳԱԼՍՏՅԱՆ

**ՊՈԼԻՄԵՐԱՅԻՆ ԴԻՍՊԵՐՍՎԱԾ ՀԵՂՈՒԿ ԲՅՈՒՐԵՂԱԿԱՆ
ՄԻՋԱՎԱՅՐԵՐՈՒՄ ԳՐԱՑՎԱԾ ՀԱՍՏ ԱԼԻԶՈՏՐՈՊ ՀՈԼՈԳՐԱՄՆԵՐԻ
ԱՌԱՋԱՑՄԱՆ ԴԻՆԱՄԻԿԱՆ ԵՎ ԴՐԱՆՑ ՀԵՏԱԶՈՏՈՒԹՅՈՒՆԸ**

Ամփոփում

Աշխատանքում մոդելավորված է հեղուկ բյուրեղ-ֆոտոմոնոմեր խառնուրդում գրվող ցանցերի առաջացման դինամիկան: Դինամիկայի պրոցեսի մոդելավորումից ստացված են պոլիմերի և հեղուկ բյուրեղի կենցենտրացիաների տարածական բաշխումները: Պոլիմերի և հեղուկ բյուրեղի համար ստացված բաշխվածություններից Լորենցի-Լորենցի և ավելի պարզ մոտավոր բանաձևերով հաշվված են դիէլեկտրիկ թափանցելության բաշխումները: Բերված են այդ դիէլեկտրիկ թափանցելությունների և դրանց համապատասխան դիֆրակցիոն էֆեկտիվությունների համեմատություններ և ընթացած ալիքների համար: Պարզվում է, որ Լորենցի-Լորենցի և մոտավոր բանաձևերով ստացված դիֆրակցիոն էֆեկտիվությունները որակապես համընկնում են, սակայն զոյլություն ունի բանակական տարրերություն, որը կախված է փորձնական ճառագայթի բնուացումից:

A.V. GALSTYAN

POLYMER DISPERSED LIQUID CRYSTAL GRATINGS' EVOLUTION AND INVESTIGATION OF THEIR DIFFRACTION EFFICIENCY

Summary

In this paper evolution of thick anisotropic gratings formation in photo-monomer-liquid crystal mixture is modeled. The polymer and monomer concentrations' distributions are obtained from modeling of grating formation process. Distributions of dielectric permittivities from Lorentz-Lorenz and more simple approximate formulas are obtained. The comparison of received distributions and appropriate diffraction efficiencies for *s*- and *p*-polarized probe beams are done. It appears, that diffraction efficiencies calculated by exact and approximate distributions qualitatively coincide, however there is a quantitative difference and it depends on polarization of the probe beam.