

07

© 1991 г.

## ДИНАМИЧЕСКОЕ САМОУСИЛЕНИЕ ФАЗОВЫХ ГОЛОГРАММ, ЗАПИСАННЫХ НА ФОТОПОЛИМЕРНОМ КОМПОЗИТЕ

Э. С. Гюльназаров, Т. Н. Смирнова, Е. А. Тихонов

Исследовано динамическое самоусиление (ДСУ) фазовых объемных пропускающих голограммических решеток на фотополимерном материале ФПК-488 — среде с локальным инерционным откликом накопительного характера. Установлен «абсолютный» и симметричный характер ДСУ на ФПК. Максимально достигнутый коэффициент ДСУ при толщине регистрирующего слоя 20 мкм составляет  $\approx 200$ . На основе уточненной векторной модели дополнительных решеток объяснен ряд наблюдаемых экспериментально закономерностей ДСУ. Показана возможность записи в режиме ДСУ стабильных решеток с дифракционной эффективностью (ДЭ) до 90 %. Показано, что зависимость ДЭ решетки, сформированной при ДСУ, от ДЭ и пространственного периода исходной решетки обусловливается механизмом голограммической записи на ФПК-488. Сделан вывод о перспективности ДСУ для записи голограмм на ФПК ввиду снижения требований к виброустойчивости схемы записи.

### Введение

Для трехмерной голографии различными авторами предложен ряд полимерных регистрирующих материалов и, в частности, фотополимеризующихся композитов (ФПК). В основе голографической записи на ФПК лежит цепная реакция радикальной полимеризации, обеспечивающая фотоиндуцированное изменение показателя преломления и запись фазовых голограмм в реальном времени. Изменение показателя преломления в указанных материалах определяется экспозицией

$$\delta n \sim \int_0^t \sigma(I) Idt,$$

где  $\sigma$  — чувствительность среды, зависящая от интенсивности  $I$  светового пучка, следовательно, ФПК можно отнести к средам с локальным инерционным откликом накопительного характера.

Как известно, процесс голографической записи в средах с локальным инерционным откликом сопровождается динамическим нестационарным взаимодействием между записывающими и восстановленными пучками света, что приводит к различным динамическим эффектам, в частности, динамическому самоусиению (ДСУ) голограмм [1–5]. ДСУ голограмм впервые было предсказано в [1] и подтверждено экспериментально на кристалле  $\text{LiNbO}_3$  [2]. Дальнейшие исследования этого процесса в чистых и легированных кристаллах  $\text{LiNbO}_3$  выполнялись в [3, 4]. Теоретический анализ процесса ДСУ в электрооптических кристаллах представлен в [5].

Суть ДСУ голограмм состоит в том, что при брэгговском считывании голограммы с малой исходной дифракционной эффективностью  $\eta_0$  одним из записывающих пучков наблюдается возрастание ее дифракционной эффективности  $\eta(t)$ . При этом в средах с релаксирующей нелинейностью ДСУ имеет место лишь в нестационарных условиях. При достижении стационарного состояния наблюдается стирание голограммы брэгговским пучком. В средах с нерелаксирующей нелинейностью (подобных ФПК) взаимодействие пучков

существенно нестационарно, в результате чего при ДСУ в среде формируется голограмма, конечная дифракционная эффективность ( $\eta$ ) которой стабилизируется по окончании записи [6]. Поэтому ДСУ в ФПК имеет определенное практическое значение, так как позволяет получать высокоэффективные голограммы даже при наличии некоторых вибраций в схеме записи.

Настоящая работа посвящена изучению особенностей ДСУ элементарных объемных фазовых голограмм на ФПК. Исследования выполнялись для композита ФПК-488 [7], обеспечивающего запись стабильных голограмм за счет синхронно протекающих процессов радикальной полимеризации и взаимодиффузии ингредиентов [8].

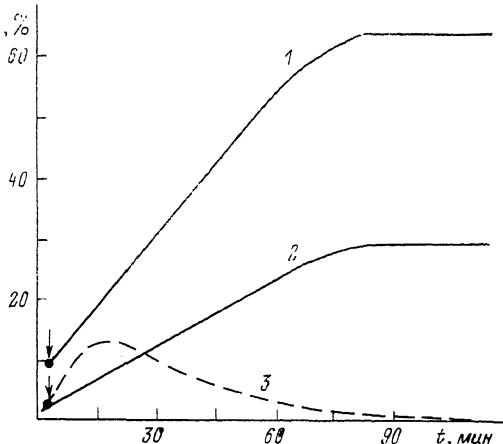
## Результат и их обсуждение

ДСУ элементарных пропускающих голограмм изучалось при брэгговском и небрэгговском считывании в зависимости от  $\eta_0$ . Запись исходной решетки производилась в попутных пучках He—Cd лазера ( $\lambda_s=441.6$  нм) равной интенсивности с  $s$ -поляризацией при симметричном падении на плоскопараллельный слой толщиной 20 мкм. Одновременно с записью осуществлялось недеструктивное считывание решетки пучками He—Ne лазера ( $\lambda_c=632.8$  нм). Измерения выполнялись для решетки с пространственной частотой  $N=1260, 2660$   $\text{мм}^{-1}$ .

На рис. 1 представлены характерные кинетические кривые ДСУ  $\eta=f(t)$ , при  $\eta_0=\text{const}$  (двухлучковая запись в данном случае прерывалась при  $\eta_0=1.7\%$  для  $\lambda_c=632.8$  нм). При облучении решетки одним из записывающих пучков наблюдается монотонный рост  $\eta(t)$  с выходом на стационарное значение. Установление стационарного значения  $\eta_k$  связано с завершением про-

Рис. 1. Кинетические кривые динамического самоусиления (1, 2) и стирания (3) решетки с  $N=1260$   $\text{мм}^{-1}$  брэгговским и небрэгговским записывающими пучками соответственно.

Стрелками указан момент прерывания одного из записывающих пучков;  $\lambda_c$ , нм: 1 — 441.6; 2, 3 — 632.8.



цесса записи. Наблюдалось симметричное ДСУ голограмм для обоих симметричных брэгговских пучков. На рис. 1 показана также зависимость  $\eta(t)$  при небрэгговском считывании голограммы. Характер кинетической кривой в данном случае определяется особенностями механизма записи решеток на ФПК-488 [8], а именно сосуществованием процессов полимеризации и диффузии в изофазных плоскостях голограммы при наложении однородного поля. Дополимеризация ФПК в минимумах амплитуды модуляции показателя преломления  $n_1$  приводит к увеличению глубины превращения полимера в данной области и вытеснению из нее нейтральной компоненты. Полимеризация в максимумах  $n_1$  сопровождается возникновением встречного потока инертной компоненты, направленного в области с минимальной  $n_1$ . Поскольку из-за избытка инертной компоненты в областях с максимальной  $n_1$  скорость полимеризации ниже, чем в областях с минимальной  $n_1$ , то на начальном этапе облучения преобладает первый процесс, что приводит к росту  $\eta$ . Однако в дальнейшем уменьшение скорости полимеризации в областях с  $n_{1\min}$  из-за выхода реакции полимеризации в область автотормозления [9] приводит к преобладанию второго процесса и результирующему уменьшению градиента концентрации инертной компоненты, а следовательно, стиранию решетки. Время стирания зависит от

$N, \text{мм}^{-1}$ ( $\Delta, \text{мкм}$ )	$\lambda_c = 441.6 \text{ нм}$		$\lambda_c = 632.8 \text{ нм}$	
	$\eta_0, \%$	$\gamma = \eta_k/\eta_0$	$\eta_0, \%$	$\gamma = \eta_k/\eta_0$
1260 (0.79)	$37.0 \pm 3.7$	$1.9 \pm 0.3$	$20.0 \pm 2.0$	$2.0 \pm 0.3$
	$2.5 \pm 0.2$	$34.0 \pm 4.8$	$1.0 \pm 0.1$	$48.0 \pm 6.7$
	$1.7 \pm 0.2$	$48.2 \pm 6.7$	$0.7 \pm 0.1$	$68.3 \pm 12.3$
	$0.2 \pm 0.03$	$145.0 \pm 26.1$	$0.06 \pm 0.02$	$180.0 \pm 64.8$
2660 (0.38)	$34.0 \pm 3.4$	$1.4 \pm 0.1$	$20.0 \pm 2.0$	$1.5 \pm 0.1$
	$18.0 \pm 2.0$	$1.9 \pm 0.2$	$10.0 \pm 1.5$	$2.1 \pm 0.2$
	$2.3 \pm 0.2$	$4.3 \pm 0.6$	$1.1 \pm 0.1$	$5.0 \pm 0.7$

величины  $\eta_0$ , возрастая с ее увеличением (при  $\eta_0 \geq 5\%$  полное стирание недостижимо).

При уменьшении  $\eta_0$  исходной решетки характер кинетических кривых ДСУ сохраняется, изменяются конечные значения  $\eta_k$ , коэффициенты ДСУ ( $\gamma = \eta_k/\eta_0$ ) и экспозиция, требуемая для достижения стационарного значения  $\eta_k$ .

В таблице приведены названные параметры для двух  $\lambda_c$  и двух значений  $N$ . Наблюдаются следующие закономерности:  $\eta_k$  уменьшается с уменьшением  $\eta_0$  и увеличением пространственной частоты;  $\gamma$  возрастает с уменьшением  $\eta_0$  и уменьшается с увеличением  $N$ .

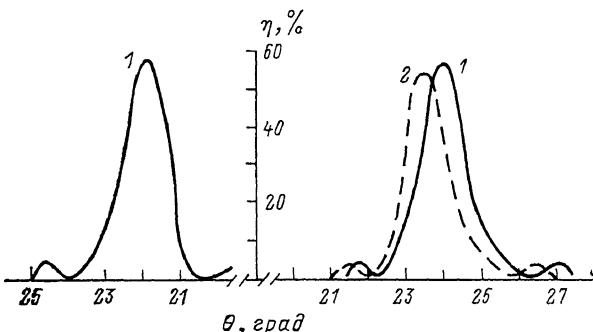


Рис. 2. Кривые угловой селективности решеток с  $N=1260 \text{ мм}^{-1}$ , записанных при ДСУ (1) и в режиме непрерывной записи (2).

Измерение кривых угловой селективности  $\eta(\theta)$  решеток, записанных в режиме ДСУ с одной и с другой стороны от нормали к входной грани решетки (рис. 2), позволило установить, что при ДСУ в среде формируется решетка с фазовыми плоскостями, наклонными по отношению к поверхности. Используя данные рис. 2, угол наклона фазовых плоскостей по отношению к нормали к поверхности  $\alpha$  можно определить по формуле

$$\alpha = \frac{1}{2} \left\{ \arcsin \left( \frac{\sin \beta'}{\bar{n}} \right) - \arcsin \left( \frac{\sin \beta''}{\bar{n}} \right) \right\}, \quad (1)$$

где  $\beta'$  и  $\beta''$  — углы падения считающих пучков по разные стороны от нормали к поверхности решетки, при которых  $\eta$  максимальна;  $\bar{n}$  — средний показатель преломления решетки.

Получены следующие значения: для  $N=1260 \text{ мм}^{-1}$   $\alpha=0.10 \pm 0.04$  при  $\eta_0=19\%$  и  $0.30 \pm 0.12$  при  $\eta_0=0.7\%$ . Для  $N=2660 \text{ мм}^{-1}$   $\alpha=0.15 \pm 0.06$  при  $\eta_0=1.3\%$ .

Некоторые наблюдаемые закономерности ДСУ можно интерпретировать на основе векторной модели дополнительных решеток, развитой в [4]. При записи решетки в среде с откликом в реальном времени в результате дифракции на ней записывающих волн  $R$  и  $S$  в среде образуются две пары коллинеарных волн нулевого и минус первого порядков дифракции  $R_{-1}$ ,  $S_0$  и  $R_0$ ,  $S_{-1}$  (рис. 3). Благодаря интерференции между указанными волнами в среде формируются две дополнительные решетки 2 и 3, смещенные в обе стороны

относительно основной на четверть периода. Все три решетки имеют единаковую пространственную частоту, определяемую углом схождения и длиной волны записывающих пучков. Амплитуды этих решеток пропорциональны

$$2R_0S_0 \cos\left(\frac{4\pi}{\lambda}x \sin \theta\right),$$

$$2R_0R_{-1} \cos\left(\frac{4\pi}{\lambda}x \sin \theta - \frac{\pi}{2} + \Psi\right),$$

$$2S_0S_{-1} \cos\left(\frac{4\pi}{\lambda}x \sin \theta + \frac{\pi}{2} + \Psi\right). \quad (2)$$

Величина  $\Psi$  характеризует сдвиг решетки в динамическом процессе записи при неравенстве интенсивностей записывающих пучков.

Каждую из этих решеток можно представить в виде вектора, модуль которого пропорционален амплитуде решетки, а его положение относительно

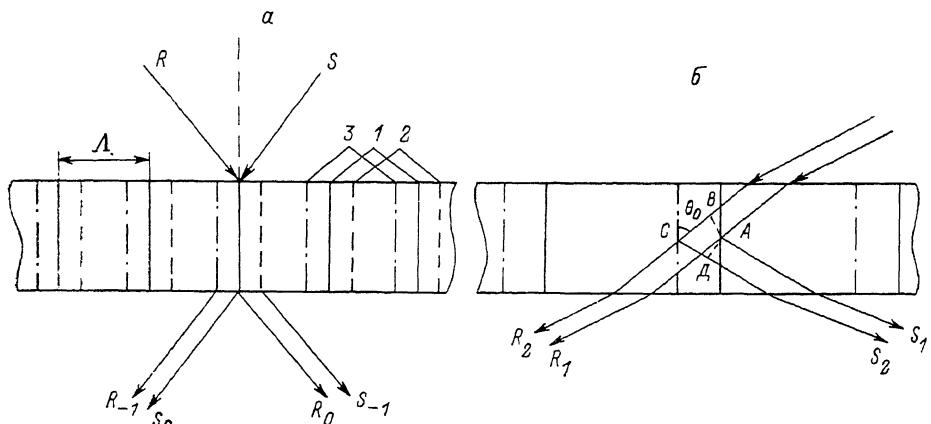


Рис. 3. Формирование основной (1) и дополнительных решеток (2 и 3) при двухпучковой записи в среде с откликом в реальном масштабе времени (а) и дифракция брэгговского пучка на основной (1) и дополнительной (3) решетках (б).

выделенного направления определяет фазу рассматриваемой решетки. Соответствующая векторная диаграмма представлена на рис. 4, а. Вектор  $a$  соответствует основной решетке, записываемой пучками  $R$  и  $S$ , векторы  $b_i$  и  $b_s$  изображают дополнительные решетки, образованные соответственно в результате интерференции  $R_0, R_{-1}$  и  $S_0, S_{-1}$ . На рис. 4, а показан случай, соответствующий равенству интенсивностей пучков  $I_R=I_S$  и  $\Psi=0$ . Очевидно, что в этом случае вектор суммарной решетки равен вектору основной решетки  $a$ . Дополнительные решетки в данном случае компенсируют друг друга. При ДСУ после перекрытия одного из записывающих пучков, например  $R$ , будет продолжаться запись решетки  $b_s$ , в результате чего будут увеличиваться ее амплитуда, соответственно амплитуда суммарной решетки  $c_i$  и ее смещение по фазе  $\phi_i$  относительно основной. Очевидно, что в предельном случае, когда  $b_{si} \gg b_s$  и  $b_{si} \gg a$ , фазовый сдвиг стремится к  $\pi/2$ , т. е. результатирующая решетка совпадает с дополнительной.

Векторная модель позволяет сделать некоторые выводы относительно закономерностей ДСУ на материалах типа ФПК, подтверждаемые экспериментально. Так, коэффициент ДСУ в данном случае можно записать как

$$\gamma = \frac{c_i^2}{a^2} = 1 + \left(\frac{b_i}{a}\right)^2, \quad (3)$$

откуда следует, что 1) при любых малых значениях  $b_i$   $\gamma > 1$ , т. е. имеет место ДСУ голограмм, причем вид  $\gamma$  сохраняется для обоих брэгговских пучков; 2) для фиксированного значения  $b_i$  уменьшение  $a$  приводит к росту  $\gamma$ .

Описывая некоторые особенности ДСУ, рассматриваемая модель, однако, не объясняет наклона решетки, сформировавшейся в среде при ДСУ в случае,

когда запись решетки а осуществляется пучками равной интенсивности и функциональная зависимость  $b_s(t, d)$  и  $a(t, d)$  одинакова. Для объяснения наклона в рамках указанной модели следует учесть дифракцию брэгговского пучка на дополнительной решетке.

На рис. 3, б схематически представлена дифракция пучка на двух решетках (1), записанной пучками  $R$  и  $S$ , и дополнительной (3), смещенной на четверть периода относительно 1.

Как видно из рис. 3, б, разность фаз между дифрагировавшими на этих решетках пучками определяется соотношением

$$\Delta\varphi = (BC + CD) \frac{2\pi}{\lambda'} = \left(2 \frac{\Lambda}{4} \sin \theta_0\right) \frac{2\pi}{\lambda'} = \frac{\pi\Lambda}{\lambda'} \sin \theta_0, \quad (4)$$

где  $\lambda'$  — длина волны света в материале решетки ( $\lambda' = \lambda/\bar{n}$ ).

Используя условие Брэгга, из (4) получаем  $\Delta\varphi = \pi/2$ . При интерференционном сложении волн  $S_1$  и  $S_2$  результирующий вектор ориентирован под некоторым углом  $\delta$ .

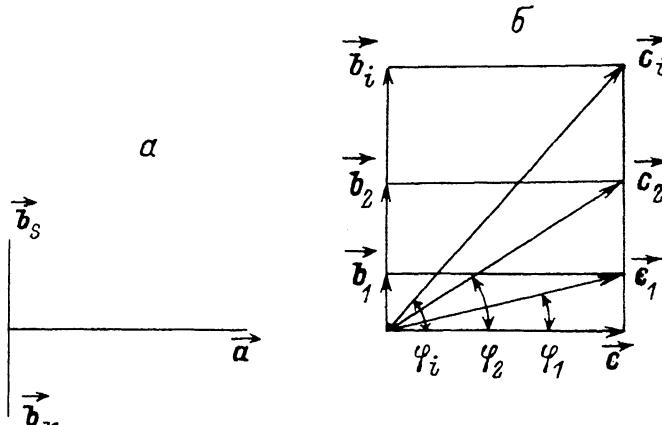


Рис. 4. Векторная диаграмма дополнительных решеток, поясняющая эффект ДСУ.  
а — запись двумя пучками равной интенсивности; б — считывание исходной решетки брэгговским пучком  $S$  (дополнительные решетки  $b_r$  и  $b_s$ , скомпенсировавшие друг друга, не показаны,  $b_i = b_{s1} = b_s$ ).

рым углом  $\delta$ , который и определяет фазу интерференционной картины (поскольку разность фаз между прошедшими волнами  $R_1$  и  $R_2$  равна нулю). По мере прохождения записывающей волны через решетку при ДСУ происходит усиление дифрагировавшего пучка за счет перекачки энергии от прошедшего, соответственно изменяется фаза интерференционной картины в среде. Это приводит к тому, что интерференционные полосы начнут отклоняться от первоначального положения, что проявляется в эквивалентном повороте «штрихов» решетки. Отсюда следует, что чем выше энергообмен между пучками (т. е. чем выше коэффициент ДСУ), тем больше угол наклона «штрихов». Указанная закономерность прослеживается в эксперименте. Как уже указывалось, имеют место увеличение угла наклона фазовых плоскостей решетки с уменьшением  $\eta_0$  (увеличением  $\gamma$ ) и его уменьшение для решеток с более высокой  $N$  при близких значениях  $\eta_0$ .

Описанная выше картина ДСУ имеет много общего с эффектом нестационарной перекачки энергии в среде с локальным инерционным откликом [10], также приводящим к повороту «штрихов» в динамической среде при записи в ней решетки пучками неравной интенсивности. Наклон «штрихов» пропорционален фазовому набегу, т. е. изменению фазы пучка на пути длиной  $\sim d$ , связанному с нелинейностью показателя преломления, и при этом  $\varphi$  может принимать любое значение (быть больше  $\arctg(\Lambda/4d)$ ). Сравнение кривых угловой селективности решеток, записанных двумя пучками равной интенсивности и в режиме ДСУ (рис. 2), показало, что их формы совпадают. Уширение брэгговского пика и отличия  $\min \eta(\theta)$  от нуля не обнаружено, что свидетельствует о незначительном изменении  $n_1$  по толщине решетки [3].

Как указывалось выше, существенное влияние на кинетику ДСУ оказывает

механизм формирования решеток в ФПК-488. Эффективность решетки определяется диффузией химически инертной компоненты в процессе записи из облученных в необлученные области. При экспонировании слоя интерференционным полем, образованным пучками различной интенсивности, что имеет место при ДСУ, наличие однородной составляющей поля тормозит диффузионный перенос инертной компоненты, как и в случае считывания исходной решетки небрэгговским пучком, и уменьшает эффективность формируемой решетки (известное для ряда материалов уменьшение  $\gamma$  с уменьшением видности интерференционной картины). С другой стороны, однородное поле уменьшает  $\gamma_0$  исходной решетки (аналогично случаю 3 на рис. 1), дифракция на которой определяет развитие ДСУ. Указанные процессы приводят к наблюдаемому уменьшению  $\gamma_k$  с уменьшением  $\gamma_0$  и наличию оптимальной  $\gamma_0$  для получения решеток с максимальной  $\gamma_k$  в режиме ДСУ.

Эффективность диффузионного процесса зависит также и от длины диффузионного пробега  $l \sim \Lambda/2$ . Очевидно, что с уменьшением  $\Lambda$  конкуренция диффузионных потоков между изофазными плоскостями решеток 1 и 3 (рис. 3) увеличивается и в связи с этим снижается эффективная разрешающая способность материала по отношению к ДСУ (см. таблицу). Тем не менее использование ДСУ для записи высокоэффективных решеток в некоторых случаях может оказаться предпочтительнее традиционного двух пучкового режима записи, поскольку при ДСУ снижаются требования к виброустойчивости схемы записи. Действительно, параллельное смещение считающего пучка при ДСУ не приводит к изменению фазы и периода интерференционной картины в среде.

## Выводы

1. Для фотополимера ФПК-488 характерен процесс динамического самоусиления голограмм. Максимально достигнутый коэффициент ДСУ при толщине слоя 20 мкм составляет  $\approx 200$ .

2. Характерной особенностью ДСУ в указанном материале является его «абсолютный» характер:  $\gamma(t)$  всегда превышает  $\gamma_0$  и стабилизируется на достигнутом уровне по завершении процесса голографической записи (полимеризации слоя). В случае симметричных условий записи эффект симметричен относительно обоих брэгговских пучков.

3. Величина  $\gamma_k$  решетки, сформированной в результате ДСУ, зависит от начальной дифракционной эффективности  $\gamma_0$  и пространственного периода решетки, уменьшаясь с уменьшением последних. Указанная зависимость обусловливается механизмом формирования голограмм на ФПК-488, а именно особенностями диффузионного массопереноса инертной компоненты.

4. Наклон решетки, сформированной при ДСУ, определяется дифракцией записывающих пучков на смещенной решетке. Указанный процесс становится актуальным при высоких значениях коэффициента ДСУ  $\gamma$ .

## Список литературы

- [1] Staebler D. L., Amodei J. J. // J. Appl. Phys. 1972. Vol. 43. N 3. P. 363—365.
- [2] Gaylord T. K., Rabson T. A., Tittel F. K. et al. // J. Appl. Phys. 1973. Vol. 44. N 2. P. 896—897.
- [3] Марков В. Б., Одудов С. Г., Соскин М. С. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1977. Т. 41. № 4. С. 821—829.
- [4] Шварц К. К. Физ. оптич. записи в диэл. и полупр. Рига: Зинатне, 1986. 232 с.
- [5] Кухтарев Н. В. // УФЖ. 1978. Т. 23. № 12. С. 1948—1953.
- [6] Гюльназаров Э. С., Смирнова Т. Н., Тихонов Е. А. // ЖТФ. 1988. Т. 58. Вып. 12. С. 2405—2407.
- [7] Гюльназаров Э. С., Смирнова Т. Н., Тихонов Е. А. // ЖТФ. 1987. Т. 57. Вып. 5. С. 932—936.
- [8] Гюльназаров Э. С., Смирнова Т. Н., Тихонов Е. А. // О и С. 1989. Т. 67. Вып. 1. С. 175.
- [9] Багдасарьян Х. С. Теория радикальной полимеризации. М.: Наука, 1966. 300 с.
- [10] Винецкий В. Л., Кухтарев Н. В., Одудов С. Г., Соскин М. С. // УФН. 1979. Т. 129. № 1. С. 113—137.