

# О причинах нитевидной неустойчивости процесса самоканализации оптических пучков в фотополимеризующихся композициях

А. Л. Лонин, С. Н. Менсов, Ю. В. Полуштайцев

Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского, 603950 Нижний Новгород, Россия

Поступила в редакцию 11 февраля 2004 г.

После переработки 29 марта 2004 г.

Построена и численно исследована модель образования нитевидных неоднородностей в волноведущих структурах, формируемых при самоканализации оптических пучков в фотополимеризующихся композициях. Определены условия образования однородного волноведущего канала, подтвержденные экспериментальными результатами.

PACS: 42.65.Sf

Возможность самоформирования волноведущих структур в нелинейных нереверсивных средах (таких, как фотополимеризующаяся композиция) отмечалась во многих работах [1–5]. Здесь не уширяющийся полимерный канал создается за счет самоканализации излучения даже для тонких световых пучков, обладающих сильной дифракционной расходимостью. Фотополимеризующаяся композиция (ФПК) представляет собой смесь мономера и фотоинициатора, в которой под действием светового излучения происходит необратимый переход от жидкого мономера к твердому полимеру, сопровождающийся возрастанием плотности среды, а следовательно, и показателя преломления. Поэтому, в отличие от обычных сред с нелинейностью керровского типа, формирующийся световод остается после прекращения облучения. При этом, как показывают результаты экспериментальных исследований, для его создания не требуются значительные мощности света, наоборот, эффект самоканализации излучения наблюдается только для пучков малой интенсивности. Увеличение интенсивности приводит к разрушению волноведущего режима – распаду канала на отдельные нити размером 10...50 мкм [3, 5]. При одинаковой интенсивности излучения неустойчивыми оказываются более широкие пучки.

В данной работе проведено численное моделирование этого явления на примере взаимодействия регулярного гауссова светового пучка с фотополимеризующейся композицией, в которой изначально присутствуют малые неоднородности показателя преломления, обусловленные, например, термодинамическими флуктуациями среды. Определены условия формирования устойчивых режимов самоканализации излучения в ФПК, которые подтверждены экспериментальными результатами.

Численное моделирование проводилось при следующих условиях: экспозиционная характеристика ФПК – зависимость изменения показателя преломления от амплитуды  $E(x, z, t)$  воздействующего излучения аппроксимировалась модифицированной функцией Рэлея [6]:

$$\Delta n(x, z, t) = n(H) - n_0 = \Delta n_{\max} \left[ 1 - \exp \left( - \left( \frac{H(x, z, t)}{H_0} \right)^\gamma \right) \right], \quad (1)$$

где  $\gamma$  и  $H_0$  константы, характеризующие контраст композиции,  $\Delta n_{\max}$  – максимальное изменение показателя преломления,  $n_0$  – показатель преломления мономера,  $H(x, z, t)$  – величина экспозиции, определяемая выражением

$$H(x, z, t) = \int_0^t |E(x, z, \tau)|^2 d\tau. \quad (2)$$

Учитывая значительную инерционность процесса полимеризации, для анализа эволюции комплексной амплитуды поля  $E(x, z, t)$  светового пучка с исходной полушириной по интенсивности  $a$  в ФПК использовалось квазистационарное параболическое уравнение с граничным условием  $E(x, 0, t) = E_0 \cdot \exp(-x^2/2a^2)$ , ( $E_0 = E(0, 0, t)$ ,  $k$  – волновое число), где время входит как параметр [3]. В безразмерных переменных  $x' = x/a$ ,  $z' = z/ka^2$ ,  $t' = tE_0^2/H_0$  оно имеет вид:

$$2i \frac{\partial E'(x', z', t')}{\partial z'} = \Delta_{\perp} E'(x', z', t') + 2V^2 \Delta n'(x', z', t') E'(x', z', t'), \quad (3)$$

где  $E' = E/E_0$ ,  $\Delta n' = \Delta n/\Delta n_{\max}$ ,  $V = ka(\Delta n_{\max}/n_0)^{0.5}$ .

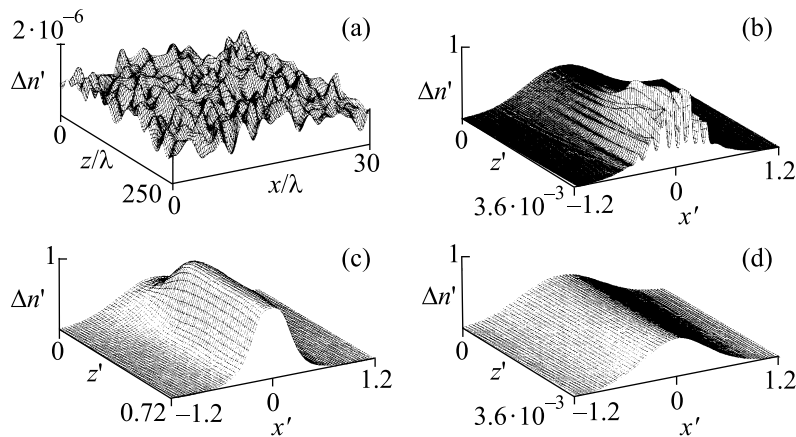


Рис.1. Распределение нелинейной добавки к показателю преломления – начальное (а) и в момент времени  $t' = 0.9$  при  $\gamma = 3$  и значениях параметров:  $a = 100$  мкм,  $\beta = 1.8 \cdot 10^{-2}$  (b);  $a = 7.5$  мкм,  $\beta = 0.26$  (c);  $a = 100$  мкм,  $\beta = 0.26$  (d)

Поскольку на начальном этапе полимеризации среда находится в жидком состоянии, то изменение ее плотности определяется не только влиянием иницирующего излучения – необходимо учитывать и диффузию компонентов композиции из соседних областей. Поэтому для нахождения нелинейной добавки к показателю преломления использовалось не выражение (1), а кинетическое уравнение [7], которое в безразмерном виде выглядит следующим образом:

$$\frac{\partial \Delta n'(x', z', t')}{\partial t'} = f(\Delta n'(x', z', t')) + \beta^2 \frac{\partial^2 \Delta n'(x', z', t')}{\partial x'^2}, \quad (4)$$

где  $f(\Delta n')$  – функция скорости процесса фотополимеризации, а параметр

$$\beta = \sqrt{\frac{t_p}{t_d}} = \frac{1}{a} \sqrt{\frac{DH_0}{E_0^2}} \quad (5)$$

определяет соотношение между характерными временами полимеризации,  $t_p = H_0/E_0^2$ , и диффузии,  $t_d = a^2/D$ ,  $D$  – коэффициент диффузии мономера в системе мономер–полимер. В соответствии с локальной моделью (1)

$$f(\Delta n') = |E'|^2 \gamma (1 - \Delta n') [-\ln(1 - \Delta n')]^{1-1/\gamma}. \quad (6)$$

Результаты численного моделирования показали, что в изначально однородной среде ( $\Delta n(x, z, 0) = \text{const}$ ) учет диффузионных процессов (4) не нарушает режима самоканализации излучения: при  $\beta < 1$ ,  $\gamma > 2$ ,  $\Delta n_{\text{max}} \sim 1.5 \cdot 10^{-2}$  световой пучок формирует не уширяющийся однородный волноведущий канал. Напротив, даже незначительные по амплитуде и предельно мелкомасштабные случайные неоднородности  $\Delta n(x, z, 0)$  (см. рис.1а) могут

существенно изменять структуру создаваемого излучением полимерного трека. Так, при малых значениях параметра  $\beta$ , что свойственно широким пучкам, однородный в начальных сечениях канал приобретает существенную поперечную модуляцию показателя преломления по мере удаления от входной плоскости (см. рис.1b). Характерно, что здесь происходит лавинообразное возрастание флуктуаций показателя преломления на трассе распространения пучка практически до величины самого значения  $\Delta n$ , сопровождаемое значительным увеличением радиуса корреляции неоднородностей. В качестве примера на рис.2а и рис.2b соответственно приведены зависимости амплитуды  $\sigma$  этих неоднородностей и радиуса их корреляции  $\rho$  от времени и продольной координаты при начальных значениях  $\sigma = 10^{-6}$  и  $\rho = 2\pi/k$  для  $a = 100$  мкм,  $\beta = 1.8 \cdot 10^{-2}$  и  $n_0 = 1.5$ ,  $\Delta n_{\text{max}} = 1.5 \cdot 10^{-2}$ . Нетрудно заметить, что в отличие от масштабов неустойчивости сред с керровской нелинейностью [8] в процессе фотополимеризации величина  $\rho$  начинает существенно превосходить волновые масштабы и при заданном контрасте композиции  $\gamma$  определяется только параметром  $\beta$ . Из графика, приведенного на рис.2b видно, что поперечный размер нитевидных неоднородностей практически однороден. Некоторое их обужение по трассе распространения излучения (см. рис.1b и рис.2а) вызвано особенностями самоканализации в них излучения, что характерно и для канала в целом на трассах, превышающих его дифракционную длину (см. рис.1c). Поэтому для оценки величины  $\rho$  можно исключить решение волновой задачи, ограничившись решением уравнения (4) в сечении  $z = 0$ . Соответствующая динамика изменения  $\rho$  для различных значений  $\beta$  представлена на рис.3. Так для ФПК с па-

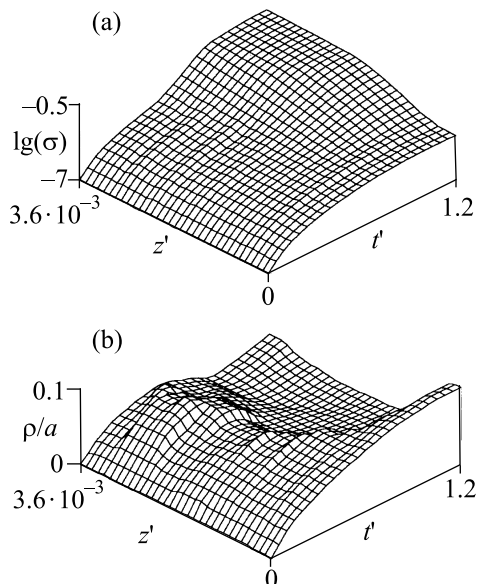


Рис.2. Зависимость амплитуды неоднородностей (а) и их радиуса корреляции (б) от продольной координаты и времени экспозиции

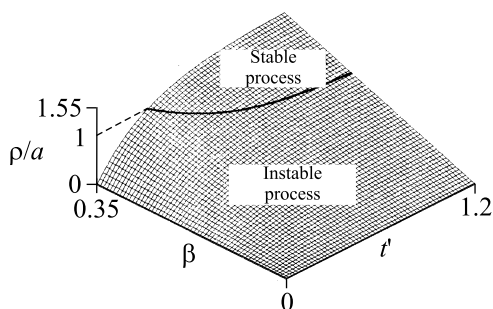


Рис.3. Зависимость радиуса корреляции неоднородностей в начальном сечении от времени и параметра β при γ = 3

раметрами  $H_0 = 30 \text{ мВт} \cdot \text{с/мм}^2$ ,  $D = 5 \cdot 10^{-5} \text{ мм}^2/\text{с}$ ,  $n_0 = 1.5$ ,  $\Delta n_{\text{max}} = 1.5 \cdot 10^{-2}$  при  $E_0^2 = 60 \text{ мВт/мм}^2$  и  $t' = 0.9$ , величина  $\rho \approx 20 \text{ мкм}$  (см. рис.3). Аналогичный результат дает и линеаризованное решение уравнения (4), применяемое для оценки размеров собственных концентрационных неоднородностей, возникающих в вязких средах на этапе ускоренного преобразования их плотности [9]. Тогда, с учетом используемых обозначений

$$\rho \approx \frac{a\beta}{\sqrt{\Delta n_{\text{max}} \langle df/d\Delta n' \rangle_{\Delta n'}}}, \quad (7)$$

где  $\langle df/d\Delta n' \rangle_{\Delta n'}$  – среднее ускорение процесса полимеризации за время экспонирования ФПК.

При больших значениях β, что характерно для узких воздействующих на ФПК пучков, формирует-

ся один волноведущий канал (см. рис.1с). Численные исследования процесса распространения излучения при различных значениях β показали, что критерием такого устойчивого режима самоканализации является не превышение полушириной пучка размера самоформируемых неоднородностей ( $\rho/a > 1$ ), которые при том же значении β возникают в достаточно широких пучках.

Принимая во внимание инвариантную зависимость β от характерных параметров среды и излучения (5), отметим, что устойчивый режим ( $\rho/a > 1$ ) может быть реализован и для широких пучков (см. рис.1d) либо при меньших интенсивностях  $E_0^2$  излучения, либо при больших коэффициентах диффузии D. В то же время самоканализация узкого пучка может быть неустойчивой при увеличении интенсивности света или повышении вязкости композиции.

Таким образом, на графике (рис.3) зависимости ρ/a от параметров β (5) и t', включающих в себя основные характеристики полимеризующейся среды и инициирующего излучения, можно выделить области устойчивого и неустойчивого режимов оптического формирования волноведущего канала из ФПК, разделенных линией уровня ρ/a = 1. Учитывая возрастающую зависимость ρ/a от длительности экспозиции, нетрудно предположить, что большие значения t' всегда приведут к устойчивому режиму самоканализации излучения. Однако в реальной ситуации этому препятствует возрастание вязкости фотополимеризующейся среды.

В рамках линеаризованной модели (7) здесь также можно аналитически определить приближенное условие на параметры среды и излучения, исключающее нитевидную неустойчивость формируемого полимерного канала. Поскольку  $\langle df/d\Delta n' \rangle_{\Delta n'} = f(\Delta n')/\Delta n'$ , полагая  $|E'|^2 = |E'_{\text{max}}|^2 = 1$ , с учетом выражений (1) и (6) имеем

$$\beta \sqrt{\frac{1 - \exp(-t'^\gamma)}{\Delta n_{\text{max}} \gamma (t')^{\gamma-1} \exp(-t'^\gamma)}} \approx \frac{\rho}{a} > 1. \quad (8)$$

Экспериментальное исследование устойчивости режимов самоканализации. Возможность предсказания (см. рис.3) устойчивости режима самоканализации световых пучков в фотополимеризующихся композициях была также исследована экспериментально для процесса взаимодействия излучения He-Не лазера с ФПК на основе ОКМ-2 с хинонным фотoinициатором [10]. Параметры экспозиционной характеристики (1) данной композиции в интервале интенсивностей 5...50 мВт/мм² следующие: γ = 3,  $H_0 = 30 \text{ мВт} \cdot \text{с/мм}^2$ ,  $n_0 = 1.5$ ,  $\Delta n_{\text{max}} = 1.5 \cdot 10^{-2}$ .

Излучение лазера, интенсивность которого регулировалась поляризационным аттенуатором, фокусировалась на торец кюветы с фотополимером. Диаметр входного распределения  $E^2(x, 0, t)$  составлял 100 мкм. Визуализация оптически формируемого полимерного канала осуществлялась с помощью видеокамеры при боковой подсветке инфракрасным светом, не вызывающим модификации среды. Время экспозиции выбиралось из условия постоянства коэффициента диффузии мономера в ходе проведения полимеризации и составляло  $t' = tE_0^2/H_0 = 0.5$ . При этом величина  $D \approx 5 \cdot 10^{-5}$  мм<sup>2</sup>/с. Как следует из графика, приведенного на рис.3, в этом случае критическое ( $\rho/a = 1$ ) значение параметра  $\beta$  равно 0.28. Соответствующее значение интенсивности (см.(5))  $E_0^2 = 8$  мВт/мм<sup>2</sup>.

Результаты эксперимента: при значении интенсивности 50 мВт/мм<sup>2</sup>, что соответствует  $\beta = 0.11$  (см.(5)), наблюдается дробление канала, причем поперечный размер возникающих нитей составляет 20 мкм. Фотография соответствующей полимерной структуры показана на рис.4а. Если интенсивность пучка составляет 5 мВт/мм<sup>2</sup>, то происходит устойчи-

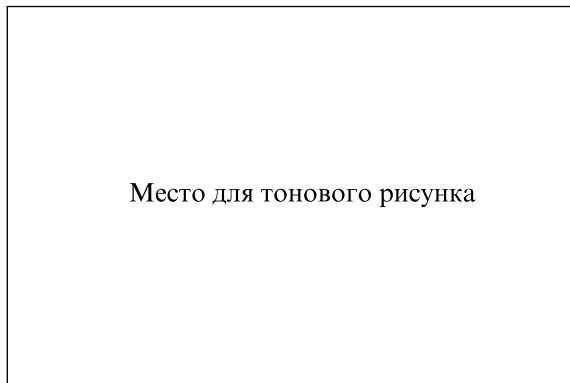


Рис.4. Фотографии полимерных каналов, формируемых в ФПК световыми пучками шириной 100 мкм с интенсивностью 50 мВт/мм<sup>2</sup> (а) и 5 мВт/мм<sup>2</sup> (б)

вая самоканализация с образованием одного волнующего канала, изображение которого представлено на рис.4б ( $\beta = 0.34$ ).

Другой причиной зарождения собственных неоднородностей в такой неустойчивой нелинейной системе могут также быть и неоднородности интенсивности в воздействующем пучке. Однако не трудно заметить, что самосогласованность рассмотренной модели фотополимеризации основана на отображении за счет дифракционных эффектов неоднородностей показателя преломления среды в неоднородности интенсивности светового пучка, и наоборот. Именно такой положительной оптической обратной связью и обусловлено лавинообразное нарастание амплитуды собственных неоднородностей полимерного канала. Поэтому конечный результат не зависит от того, являются ли малые начальные пространственные неоднородности  $n(x, z, 0)$  или  $E^2(x, z, 0)$  первичными.

Работа выполнена при поддержке грантов ведущих научных школ России # 1649.2003.3 (школа Г. А. Абакумова) и # 1641.2003.2 (школа В. А. Зверева и Н. С. Степанова).

1. A. S. Kewitsch and A. Yariv, *Optic Lett.* **21**, 24 (1996).
2. T. M. Monro, L. Poladian, and C. M. de Sterke, *Phys. Rev.* **E57**, 1104 (1998).
3. В. А. Вдовин, А. Л. Лонин, С. Н. Менсов, *ЖТФ* **71**, 67 (2001).
4. M. Kagami, T. Yamashita, and H. Ito, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1079 (2001).
5. K. Dorkenoo, O. Cregut, L. Mager et al., *Opt. Lett.* **27**, 1782 (2002).
6. В. П. Рощупкин, Б. В. Озерковский, З. А. Караптян, *Высокомолекулярные соединения* **A19**, 2239 (1977).
7. Г. Николис, И. Пригожин, *Самоорганизация в неравновесных системах. От диссипативных структур к упорядоченности через флуктуации*, М.: Мир, 1979.
8. М. Б. Виноградова, О. В. Руденко, А. П. Сухоруков, *Теория волн*, М.: Наука, 1979.
9. М. И. Рабинович, А. Б. Езерский, *Динамическая теория формообразования*, М.: "Янус-К", 1998.
10. Г. А. Абакумов, О. Н. Мамышева, В. А. Мураев и др., Патент РФ RU 2138070, 1999г.