

Accésit Premio Justiniano Casas de Investigación en Imagen Óptica, 2007

Comité de Técnicas de la Imagen - SEDOPTICA

## Modelización del comportamiento holográfico de un fotopolímero de polivinilalcohol/acrilamida

### Holographic behavior model of polyvinylalcohol/acrylamide based photopolymer

Sergi Gallego Rico<sup>(S)</sup>

Departamento de Física, Ingeniería de Sistemas y Teoría de la Señal, Escuela Politécnica Superior, Universidad de Alicante, Sant Vicent del Raspeig s/n, 03690, España

Email: Sergi.Gallego@ua.es

S: Miembro de SEDOPTICA /SEDOPTICA member

Recibido / Received: 16 – Jun – 2008. Aceptado / Accepted: 17 – Jul – 2008

#### RESUMEN:

Se presentan diversos modelos y algoritmos para caracterizar el comportamiento de un fotopolímero como material de registro holográfico. Dicha caracterización se realiza principalmente mediante el registro de redes holográficas en el material. Por un lado se estudia la propagación de la luz dentro de las estructuras periódicas almacenadas y por otro la formación del holograma en el material. Para constatar la validez de los modelos propuestos se presentan diversos experimentos realizados con un fotopolímero basado en polivinilalcohol/archilamida.

**Palabras clave:** Holografía, Materiales de registro holográfico

#### ABSTRACT:

In order to characterize the behavior of photopolymers as holographic recording material some models and algorithms are presented. Holographic gratings with different spatial frequencies are recorded to characterize the material. The research has two main goals, the study of the light propagation inside periodic structures recorded in the materials and the modeling of the hologram formation in photopolymers. To check experimentally the models and algorithms proposed we use a polyvinylalcohol/acrylamide based photopolymer.

**Key words:** Holography, Holographic recording materials.

#### REFERENCIAS Y ENLACES

- [1] H. J. Coufal, D. Psaltis, G. T. Sincerbox, Edts., *Holographic Data Storage*, Springer Series in Optical Sciences, Springer-Verlag, Berlin (2000).
- [2] H. Horimai, X. Tan, J. Li “Collinear holography” *Appl. Opt.* **44**, 2575-2579 (2005).
- [3] J. T. Sheridan, F. T. O’Neill, J. V. Kelly, “Holographic data storage: optimized scheduling using the non local polymerization-driven diffusion model”, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 1443-1451 (2004).
- [4] D. A. Waldman, C. J. Butler, D. H Raguin, “CROP holographic storage media for optical data storage at grater than 100 bits/ $\mu\text{m}^2$ ”, *Proc. SPIE* **5216**, 10-25 (2003).
- [5] W. L. Wilson, K. R. Curtis, K. Anderson, M. C. Tackitt, A. J. Hill, M. Pane, C. Stanhope, T. Earhart, W. Loechel, C. Bergman, K. Wolfgang, C. Shuman, G. Hertrich, K. Parris, K. Malang, B. Riley, M. Ayer, “Realization of high performance holographic data storage: The inPhase Technologies demonstration platform”, *Proc. SPIE* **5216**, 178-191 (2003).
- [6] M. Ortuño, S. Gallego, C. Neipp, A. Beléndez, I. Pascual, “Optimization of a 1 mm thick PVA/acrylamide recording material to obtain holographic memories: method of preparation and holographic properties”, *Appl. Phys. B* **76**, 851–857 (2003).

- [7] R. R. Adhami, D. J. Lanteigne, D. A. Gregory, "Photopolymer hologram formation theory", *Microw. Opt. Techn. Lett.* **4**, 106-109 (1991).
- [8] G. Zhao, P. Mouroulis, "Diffusion model of hologram formation in dry photopolymers materials", *J. Mod. Opt.* **41**, 1929-1939 (1994).
- [9] G. Zhao, P. Mouroulis, "Second order grating formation in dry holographic photopolymers", *Opt. Commun.* **15**, 528-532 (1995).
- [10] I. Aubrecht, M. Miler, I. Koudela, "Recording of holographic diffraction gratings in photopolymers: theoretical modelling and real-time monitoring of grating growth", *J. Mod. Opt.* **45**, 1465-1477 (1998).
- [11] J. H. Kwon, H. C. Hwang, K. C. Woo, "Analysis of temporal behaviour of beams diffracted by volume gratings formed in photopolymers", *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 1651-1357 (1999).
- [12] J. T. Sheridan, J. R. Lawrence, "Nonlocal-response diffusion model of holographic recording in photopolymer", *J. Opt. Soc. Am. A* **17**, 1008-1014 (2000).
- [13] J. T. Sheridan, M. Downey, F. T. O'Neill, "Diffusion based model of holographic grating formation in photopolymers: generalized non-local material responses", *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **3**, 477-488 (2001).
- [14] J. R. Lawrence, F. T. O'Neill, J. T. Sheridan, "Adjusted intensity nonlocal diffusion model of photopolymer grating formation", *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 621-629 (2002).
- [15] G. M. Karpov, V. V. Obukhovskiy, T. N. Smirnova, V. V. Lemesko, "Spatial transfer of matter as method of holographic recording in photoformers", *Opt. Commun.* **174**, 391-404 (2000).
- [16] B. L. Booth, "Photopolymer material for holography", *Appl. Opt.* **14**, 593-601 (1975).
- [17] W. K. Smothers, B. M. Monroe, A. M. Weber, D. E. Keys, "Photopolymers for holography", *Proc. SPIE* **1212**, 20-29 (1990).
- [18] K. Curtis, D. Psaltis, "Recording of multiple holograms in photopolymers films", *Appl. Opt.* **31**, 7425-7428 (1992).
- [19] R. T. Ingwall, M. Troll, "The mechanism of hologram formation in DMP-128 photopolymer", *Proc. SPIE* **883**, 94-101 (1988).
- [20] D. A. Walkman, H-Y. S. Li, M. G. Horner, "Volume shrinkage in slant fringe gratings of a cationic ring-opening holographic recording material", *J. Imaging Sci. Techn.* **41**, 497-514 (1997).
- [21] J. M. Moran, I. P. Kaminow, "Properties of holographic gratings photoinduced in polymethyl methacrylate", *Appl. Opt.* **12**, 1964-1970 (1973).
- [22] D. H. Close, A. D. Jacobson, J. D. Margerum, R. G. Brault, F. J. McClung, "Hologram recorded on photopolymer holographic recording material", *Appl. Phys. Lett.* **14**, 159-160 (1969).
- [23] C. García, *Optimización y Comportamiento Holográfico de un Fotopolímero de Polivinilalcohol con Exposición a Láser Continuo y Pulsante*, Tesis Doctoral, Universitat de València (2003).
- [24] M. Ortuño, *Desarrollo de Materiales Fotopoliméricos para su Aplicación en Memorias Holográficas*, Tesis Doctoral, Universitat d'Alacant (2005).
- [25] S. Gallego, *Modelización del Comportamiento Holográfico de un Fotopolímero de Polivinilalcohol / Acrilamida*, Tesis Doctoral, Universitat d'Alacant (2005).
- [26] A. Márquez, C. Neipp, S. Gallego, M. Ortuño, I. Pascual, A. Beléndez, "Holographically edge enhanced image formation system", *Opt. Lett.* **28**, 1510-1512 (2003).
- [27] A. Beléndez, M. Ortuño, S. Gallego, T. Beléndez, C. Neipp, I. Pascual, "Determination of the optical constants and thickness of holographic materials", *Bol. Soc. Esp. Cerámica y Vidrio* **43**, 457-462 (2004).
- [28] C. Neipp, M. L. Álvarez, S. Gallego, M. Ortuño, J. T. Sheridan, I. Pascual, A. Beléndez, "Angular responses of the first diffracted order in overmodulated diffraction grating", *J. Mod. Opt.* **51**, 1149-1162 (2004).
- [29] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, C. García, A. Beléndez, I. Pascual, "Overmodulation effects in volume holograms recorded on photopolymers", *Opt. Commun.* **215**, 263-269 (2003).
- [30] S. Gallego, C. Neipp, M. Ortuño, A. Márquez, I. Pascual, I. A. Beléndez, "Volume holography in photopolymers: Comparison among analytical and rigorous theories", aceptado para su publicación en *J. Holography and Speckle*, número especial en Homenaje al Prof. Y. N. Denisyuk (2008).
- [31] C. Neipp, A. Beléndez, S. Gallego, M. Ortuño, I. Pascual, J. T. Sheridan, "Angular responses of the first and second diffracted orders in transmission diffraction grating recorded on photopolymer material", *Opt. Express* **11**, 1835-1843 (2003).

- [32] S. Gallego, M. Ortuño, I. Pascual, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, “Analysis of second and third diffracted orders in volume diffraction gratings recorded on photopolymers”, *Phys. Scripta* **T118**, 58-60 (2004).
- [33] C. Neipp, J. T. Sheridan, S. Gallego, M. Ortuño, I. Pascual, A. Beléndez, “Effect of a depth attenuated refractive index profile in the angular responses of the efficiency of higher orders in volume gratings recorded in a PVA/Acrylamide photopolymer”, *Opt. Commun.* **233**, 311-322 (2004).
- [34] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, I. Pascual, J. V. Kelly, J. T. Sheridan, “Physical and effective optical thickness of the holographic diffraction gratings recorded in photopolymers” *Opt. Express* **13**, 3543-3557 (2005).
- [35] C. Neipp, M. L. Álvarez, S. Gallego, M. Ortuño, I. Pascual, A. Beléndez “Comparison between a thin matrix decomposition method and the rigorous coupled wave theory applied to volume diffraction gratings” *Optik* **114**, 529-534 (2003).
- [36] C. Neipp, J. T. Sheridan, A. Márquez, S. Gallego, M. Ortuño, A. Beléndez, I. Pascual, “Effects of the glass substrate of the efficiency of different orders that propagate in a transmission sinusoidal diffraction grating” *J. Mod. Opt.* **53**, 1403-1410 (2006).
- [37] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Beléndez, E. Fernández, I. Pascual, “Películas de fotopolímero para la fabricación de memorias holográficas: desviación del perfil sinusoidal en redes almacenadas”, *Opt. Pura Apl.* **40**, 37-41 (2007).
- [38] A. Hernández, C. Neipp, A. Márquez, S. Gallego, A. Beléndez, I. Pascual, “Grating matrix method to describe a volume transmission”, *Opt. Commun.* **266**, 122-128 (2007).
- [39] J. V. Kelly, F. T. O’Neill, C. Neipp, S. Gallego, M. Ortuño, J. T. Sheridan, “Holographic photopolymer materials: non-local polymerisation driven diffusion under non-ideal kinetic conditions”, *J. Opt. Soc. Am. B* **22**, 407-416 (2005).
- [40] J. V. Kelly, M. R. Gleeson, C. Close, F. T. O’Neill, J. T. Sheridan, S. Gallego, C. Neipp, “Temporal analysis of grating formation in photopolymer using the nonlocal polymerization-driven diffusion model”, *Opt. Express* **13**, 6990-7004 (2005).
- [41] J. V. Kelly, M. R. Gleeson, C. Close, F. T. O’Neill, J. T. Sheridan, S. Gallego, C. Neipp, “Temporal response and first order volume changes during grating formation in photopolymers”, *J. Appl. Phys.* **99**, 113105-11312 (2006).
- [42] C. Neipp, A. Beléndez, J. T. Sheridan, J. V. Kelly, F. T. O’Neill, S. Gallego, M. Ortuño, I. Pascual, “Non-local polymerization driven diffusion based model: general dependence of the polymerization rate to the exposure intensity”, *Opt. Express* **11**, 1876-1886 (2003).
- [43] C. Neipp, S. Gallego, M. Ortuño, A. Márquez, M. Álvarez, A. Beléndez, I. Pascual, “First harmonic diffusion based model applied to a PVA/Acrylamida based photopolymer”, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 2052-2060 (2003).
- [44] C. Neipp, S. Gallego, M. Ortuño, A. Márquez, A. Beléndez, I. Pascual, “Characterization of a PVA/acrylamide photopolymer. Influence of a cross-linking monomer in the final characteristics of the hologram”, *Opt. Commun.* **224**, 27-34 (2003).
- [45] S. Gallego, M. Ortuño, A. Márquez, C. Neipp, C. García, A. Beléndez e I. Pascual, “Formación de un holograma en un fotopolímero basado en PVA/Acrilamida”, *Opt. Pura Apl.* **37**, 61-66, (2004).
- [46] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Beléndez, I. Pascual, “Influence of the fringe visibility on the characteristics of holograms recorded in photopolymer material”, *Optik* **114**, 401-406 (2003).
- [47] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, I. Pascual, “Characterization of polyvinyl alcohol-acrylamide holographic memories with a first-harmonic diffusion model”, *Appl. Opt.* **44**, 6205-6210 (2005).
- [48] S. Gallego, C. Neipp, M. Ortuño, A. Márquez, A. Beléndez, I. Pascual, “Diffusion based model to predict the conservation of holographic gratings recorded in PVA/Acrylamide photopolymer”, *Appl. Opt.* **42**, 5839-5845 (2003).
- [49] S. Gallego, M. Ortuño, C. García, C. Neipp, A. Beléndez, I. Pascual, “High-efficiency volume holograms recording on acrylamide and N,N’ methylene-bis-acrylamide photopolymer with pulsed laser”, *J. Mod. Opt.* **52**, 1575-1584 (2005).

- [50] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, C. García, A. Beléndez, I. Pascual, “Temporal evolution of the angular response of a holographic diffraction grating in PVA/acrylamide photopolymer”, *Opt. Express* **11**, 181-190 (2003).
- [51] S. Gallego, C. Neipp, M. Ortuño, A. Beléndez, I. Pascual, “Stabilization of volume gratings recorded in PVA/acrylamide photopolymers with diffraction efficiencies higher than 90%”, *J. Mod. Opt.* **51**, 491-503 (2004).
- [52] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, I. Pascual, J. V. Kelly, J. T. Sheridan, “3-dimensional analysis of holographic photopolymers based memories”, *Opt. Express* **13**, 1939-1947 (2005).
- [53] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Márquez, A. Beléndez, E. Fernández, I. Pascual “3-dimensional characterization of thick grating formation in PVA/AA based photopolymer”, *Opt. Express* **14**, 5121-5128, (2006).
- [54] S. Gallego, C. Neipp, M. Ortuño, A. Beléndez, E. Fernández, I. Pascual, “Analysis of monomer diffusion in depth in photopolymer materials”, *Opt. Commun.* **274**, 43-49 (2007).
- [55] S. Gallego, M. Ortuño, C. Neipp, A. Beléndez, E. Fernández, I. Pascual “Improved maximum uniformity and capacity of multiple holograms recorded in absorbent photopolymers”, *Opt. Express* **15**, 9308-9319 (2007).

## 1. Introducción

Muchos analistas de la realidad coinciden en denominar a la época actual como la era de la información y la globalización. La información, con la mejora de las comunicaciones, ha llegado a millones de hogares donde hace unos años era casi inimaginable intuir su presencia fuera de formatos tradicionales como la prensa escrita, la radio o la televisión. Actualmente se puede constatar la facilidad para acceder con inmediatez a gran cantidad de datos desde casi cualquier lugar del planeta. La posibilidad de consumir y generar tanta información ha creado, a su vez, un problema acuciante: la necesidad de dispositivos capaces de almacenar grandes cantidades de datos. Los fotopolímeros son unos materiales interesantes en aplicaciones de almacenamiento de información como base de las denominadas memorias holográficas [1-3]. Mediante su uso se pueden obtener altos rendimientos en difracción, además su elevado espesor los hace capaces de almacenar grandes densidades de información. Los prototipos comerciales más conocidos de memorias holográficas han sido presentados por las empresas Inphase [4] y Aprilis [5].

Los fotopolímeros son capaces de formar películas de altos espesores con control de los mismos (incluso más de 1 mm de espesor [6]), presentan bajo ruido, buena sensibilidad espectral, altas eficiencias en difracción y un coste económico muy bajo. Por estas razones, en los últimos años se han estudiado intensamente y algunos autores han proporcionado diversos modelos teóricos que estudian el comportamiento de estos materiales [7-15]. Existen numerosas composiciones fotopoliméricas capaces de almacenar hologramas [16-22]. En la Universidad de Alicante se viene

trabajando con éxito en la composición de un fotopolímero depositado en capas sólidas basado en acrilamida (AA) como monómero y polivinilalcohol (PVA) como binder [22], que ha dado lugar a diversas tesis doctorales [23,24]. Dentro de este marco se realizó la Tesis Doctoral titulada “*Modelización del comportamiento holográfico de un fotopolímero de polivinilalcohol / acrilamida*” [25] que ha sido galardonada con el Accésit de la 1ª edición del Premio Justiniano Casas a la Investigación en Imagen Óptica. En esta tesis se amplían los estudios anteriores aportando un cuerpo teórico y experimentos para describir y predecir el comportamiento genérico de los fotopolímeros. De esta manera se puede caracterizar de una forma general los materiales fotopoliméricos para la adecuada obtención de memorias holográficas y otras aplicaciones interesantes como el procesado de imágenes [26].

## 2. Material de registro y dispositivo experimental

La fabricación de la película fotopolimérica tiene un papel fundamental a la hora de estudiar las propiedades del material [24,25]. De este proceso el material de registro se podrá especificar, dentro de sus posibilidades, para la aplicación deseada en cada caso. El fotopolímero utilizado en este trabajo posee espesores diferentes (entre 30 y 200  $\mu\text{m}$ ) y coeficientes de absorción y scattering (menores del 2%). Se utilizan 6 composiciones químicas que proporcionan distintas características al material [25]. Para almacenar redes de difracción (no inclinadas) y caracterizar el fotopolímero se utiliza un montaje holográfico simétrico [25]. También se mide el espesor de las muestras utilizando un método interferométrico [27].

### 3. Resultados y discusión

Los estudios realizados están divididos en tres apartados. En el primero se analiza la propagación de la luz en el material. En el segundo se proponen diversos modelos para estudiar los diferentes aspectos de la formación del holograma en un fotopolímero. En el tercero y último se aplican los modelos propuestos a un material basado en PVA/AA.

#### 3.a. La propagación de la luz en el material

En este apartado se discute el cuerpo teórico necesario para analizar las redes de difracción almacenadas en fotopolímeros. Se comienza con el estudio y comparación de tres teorías electromagnéticas para analizar el campo electromagnético dentro de estructuras periódicas como son la teoría de ondas acopladas de Kogelnik (KOA), la teoría de ondas acopladas (OA) y la teoría rigurosa de ondas acopladas (ROA) [28]. Se compara su grado de validez para las redes almacenadas en fotopolímeros valorando distintas frecuencias espaciales, modulaciones del índice de refracción y los distintos órdenes de difracción [29-30].

De esta comparación se extraen los siguientes logros y resultados:

- El estudio de las redes almacenadas por transmisión en fotopolímeros se puede llevar a cabo con la teoría KOA siempre que las frecuencias espaciales sean superiores a 350 líneas/mm para modulaciones de índice bajas (0.004) o redes con frecuencias espaciales superiores a 500 líneas/mm para modulaciones del índice de refracción elevadas (que para este material serán las superiores a 0.011) (Fig. 1).

- Utilizando como base la teoría KOA se pueden predecir efectos característicos como la sobremodulación del índice de refracción almacenadas experimentalmente en foto-polímeros [29].

- La teoría KOA posee más carencias notables además de no predecir el comportamiento de la luz dentro del material para frecuencias espaciales bajas y modulaciones de índice elevadas. Al considerar dos ondas propagándose en el medio, únicamente predice la existencia de dos órdenes de difracción. El estudio de los órdenes superiores ha de ser realizado con las teorías OA y ROA, cuyas predicciones coinciden para los valores típicos de los fotopolímeros en el estudio de los órdenes 0 y +1, pero no para los órdenes +1 y +3 cuando se miden en el primer ángulo de Bragg. Por lo que en el caso de existir discrepancias entre las dos teorías

es necesario recurrir a la teoría ROA pues en ella no se realizan aproximaciones.

- La no linealidad del material da lugar a una distorsión en el perfil de la red almacenada. Este efecto se manifiesta con la presencia de armónicos superiores en la red almacenada y la existencia de órdenes de difracción superiores (Fig. 2). Gracias a la utilización de la teoría ROA se ha evaluado la importancia de estos armónicos. Como resultado de este estudio se puede afirmar que únicamente el segundo armónico toma valores apreciables y que, en cualquier caso, su valor es siempre menor que 1/6 del valor del primer armónico. De esta manera si se estudia el rendimiento de los órdenes 0 (rendimiento del haz transmitido) o del +1 (primer haz difractado) en el primer ángulo de Bragg pueden despreciarse los órdenes superiores para la aplicación de la teoría ROA [31-32].

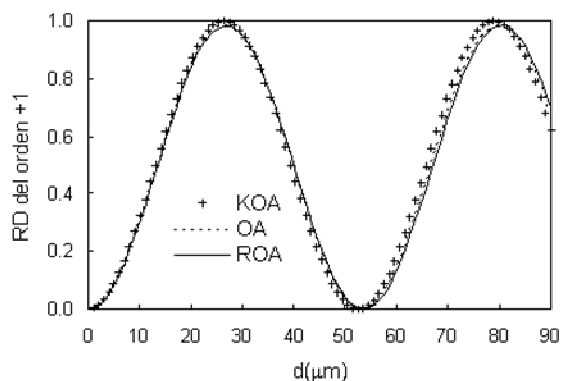


Fig 1. Rendimiento en difracción del orden +1, en el primer ángulo Bragg (de la red determinada) para redes de transmisión con una frecuencia espacial 500 líneas/mm y con una modulación de índice  $n_1 = 0.011$ .

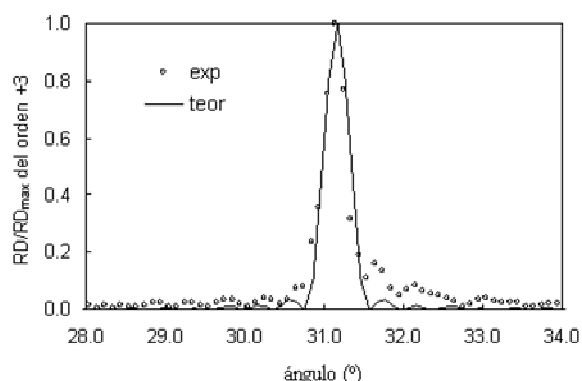


Fig.2.- Rendimiento en difracción del tercer orden para una red almacenada por transmisión en un fotopolímero basado en PVA/AA con una frecuencia espacial de 545 líneas/mm y un espesor de 140  $\mu\text{m}$  medido alrededor del tercer ángulo de Bragg.

Dejando aparte la comparación entre las tres teorías también se ha desarrollado un nuevo algoritmo basado en la teoría ROA para explicar la atenuación del perfil de la red con el espesor que se da en las redes almacenadas en fotopolímeros [33-34]. Analizando las redes almacenadas en fotopolímeros se consiguieron los siguientes resultados:

- La atenuación de la luz con el espesor hace necesario la utilización de nuevos algoritmos para estudiar las redes almacenadas en fotopolímeros. En esta Tesis Doctoral se ha empleado un algoritmo que considera una atenuación exponencial de la modulación de índice con el espesor (ROAP). Con esta teoría se pudo explicar el tránsito de un lóbulo a otro en la respuesta angular de las redes, donde se observa un levantamiento del mínimo del rendimiento en difracción en los diferentes órdenes (Fig. 3).
- La utilización del algoritmo ROAP permite diferenciar entre el espesor físico y el espesor óptico o eficaz de las redes que marca la estrechez de la respuesta angular y, por tanto, la capacidad de multiplexado del material. Con lo que se pudo concluir que, para unas concentraciones de monómero y colorante fijas, existe un valor máximo del espesor óptico independientemente del espesor físico que puede aumentar indefinidamente. Por tanto, para un determinado espesor físico, se han de optimizar las concentraciones del material para obtener espesor óptico determinado, intentando tener también la mejor sensibilidad energética.

Todos estos estudios sobre la propagación de la luz dentro de estructuras periódicas se han ido complementando con algoritmos complementarios cuya validez ha sido también contrastada [35-38].

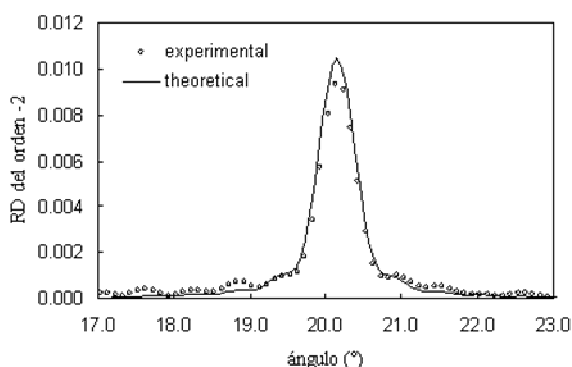


Fig. 3. Rendimiento en difracción del segundo orden medido en el segundo ángulo de Bragg, tanto datos experimentales como teóricos, para una red de 545 líneas/mm y 160  $\mu\text{m}$  de espesor almacenada en fotopolímeros.

### 3.b. Modelos de formación del holograma

Una vez aclarada la manera de estudiar las redes de difracción almacenadas en fotopolímeros se pasó al análisis en sí de cómo se forman dichas redes en el material. Se parte de las ideas propuestas por diversos autores para desarrollar un modelo de formación de la imagen en fotopolímeros que sea lo más general posible. Para ello se analizan con detalle los factores que influyen en dicho proceso, teniendo en cuenta las aportaciones más interesantes de los modelos ya existentes. Todo esto se utiliza para desarrollar un modelo general [39-42] o completo para a continuación proponer un modelo más sencillo y didáctico [43]. De este modo los logros más importantes son los siguientes:

- Se han propuesto dos modelos para la caracterización de la formación del holograma en fotopolímeros. Un primer modelo simplificado donde se ha intentado reducir al mínimo el número de parámetros ajustables y un segundo modelo completo, en el que se ha intentado tener en cuenta todos los parámetros que intervienen en el proceso.
- El modelo simplificado posee la ventaja de obtener soluciones analíticas para la modulación de índice en función del tiempo. Se considera una difusión constante y una polimerización que decrece exponencialmente con el tiempo.

Por último, se ha analizado como afectan los parámetros que rigen la formación del holograma en fotopolímeros, estudiando cuales de ellos son realmente importantes y por tanto es necesario controlar con precisión. Con este análisis cabe destacar los siguientes resultados:

- Se ha determinado la influencia de todos los parámetros que intervienen en la formación del holograma en fotopolímeros (la relación entre la difusión y la polimerización  $R$ , la polimerización  $k_R$  y  $\phi$ , el tiempo de difusión  $\tau_D$ , etc.).
- Es interesante que los valores de  $R$  sean elevados para conseguir modulaciones de índice mayores y una mayor linealidad en el material.
- Para obtener mayores modulaciones de índice se necesitan valores de  $\phi$  bajos. No obstante, si el valor de  $\phi$  es nulo los resultados no son óptimos porque todo monómero de las zonas oscuras polimerizaría antes de llegar a las zonas iluminadas.
- La variación del tiempo de difusión puede cambiar un factor 1000 dependiendo del tipo de fotopolímero, y determina en mayor medida el comportamiento del material. La variación de la constante de polimerización es menor y por lo tanto no tiene una influencia tan decisiva.

- Los índices de refracción que más afectan al rendimiento en difracción final obtenido son el de la matriz o “binder” y el del polímero. Por esta razón, tiene mucha importancia la longitud de las cadenas de fotopolímero, cuya extensión aumenta considerablemente con la inclusión en la composición de monómeros entrecruzantes.
- El índice de refracción del monómero utilizado no altera la modulación de índice final en exceso, pero sí afecta a la pendiente de la curva de rendimiento en difracción en función del tiempo.

### 3.c. La caracterización de la etapa de registro en un fotopolímero basado en PVA/AA

Una vez analizadas las distintas variables con las simulaciones de los modelos teóricos de difusión, se han aplicado a un fotopolímero en particular: Un fotopolímero basado en PVA/AA desarrollado por la Universidad de Alicante que posee como colorante eosina amarillenta. Para caracterizar este material se ha utilizado principalmente el modelo simplificado, pues la inclusión de multitud de parámetros que no pueden ser determinados, en principio, independientemente, hace que los valores obtenidos carezcan de todo significado físico. Se busca la constatación experimental de los resultados teóricos expuestos en el apartado anterior utilizando el fotopolímero basado en PVA/AA presentado en el apartado 2. Se han analizado algunas predicciones teóricas como: la influencia de introducir un monómero entrecruzante [44-45], la diferencia de trabajar con una concentración u otra de trietanolamina (TEA), las causas de la existencia de segundos armónicos en la modulación del índice de refracción [32,37], si la polimerización es directamente proporcional a la intensidad incidente [46], la influencia del espesor [47], el monómero sobrante [48], diferentes tipos de iluminación [49] etc. Además se han constatado experimentalmente las predicciones teóricas. De esta comparación entre modelos y experimentos cabe destacar los siguientes logros:

- Se han caracterizado distintas composiciones y espesores de fotopolímero sin monómero entrecruzante (Fig. 4).
- Se han caracterizado distintas composiciones y espesores de fotopolímero con monómero entrecruzante. Observando que se producía un aumento en la constante de polimerización y en el índice de refracción medio del polímero [44].
- Utilizando monómero entrecruzante se obtienen mejores sensibilidades energéticas y mayores modulaciones del índice de refracción.

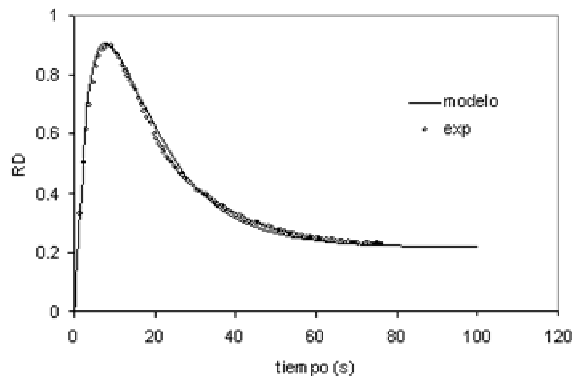


Fig. 4. Rendimiento en difracción ( $RD$ ) en función del tiempo de exposición para una red de  $97 \mu\text{m}$  de espesor grabada en un material con entrecruzante. Datos teóricos proporcionados por el modelo simple (línea continua) y datos experimentales (círculos huecos).

- Una de las características de los hologramas registrados en los fotopolímeros con entrecruzante es su mejor conservación [50].
- La difusión de las cadenas de fotopolímero está fuertemente condicionada por la concentración de TEA que modifica la difusión del polímero en el material.
- La conservación de la información almacenada en fotopolímeros basados en PVA/AA se consigue de una forma óptima utilizando un monómero entrecruzante y exponiendo las redes a luz ambiente, donde se pierde alrededor de un 20% de la modulación de índice alcanzada durante el registro.
- Se ha desarrollado un método para obtener redes de difracción con altos rendimientos estables a la luz. Este método consiste en conseguir redes con rendimientos de difracción máximos a partir de redes sobremoduladas y el cálculo del monómero residual proporcionado por el modelo [51].
- La presencia de los armónicos superiores aumenta cuando aumenta el tiempo de polimerización, esto se ha podido observar con el estudio de curvas saturadas y la utilización de la teoría ROA.
- Se ha puesto de manifiesto la existencia de una frecuencia inferior de corte predicha por el modelo simplificado, confirmando la validez de dicho modelo para redes de baja frecuencia al aumentar el tiempo de difusión en un factor cuatro [46].
- Se ha comprobado la imposibilidad de obtener una estimación adecuada del parámetro  $\gamma$  sometiendo el material a distintas visibilidades de franjas y distintas intensidades (Fig. 5 y 6) [46].

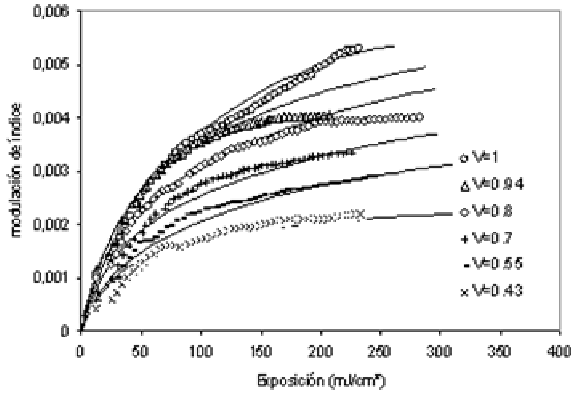


Fig. 5. Modulación del índice de refracción en función de la exposición para redes de frecuencia espacial 1125 líneas/mm grabadas en un material con la composición con monómero entrecruzante. Para distintas visibilidades de franjas ( $V=1, 0.94, 0.8, 0.7, 0.55$  y  $0.43$ ) considerando para las simulaciones teóricas (líneas continuas) el valor de  $\gamma=1$ .

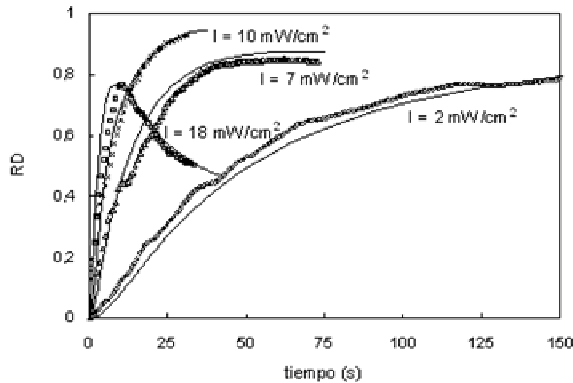


Fig. 6. Rendimiento en difracción (RD) en función del tiempo para redes de frecuencia espacial 1125 líneas/mm grabadas en un material con la composición sin monómero entrecruzante, para distintas intensidades de registro. Datos experimentales (puntos huecos) y ajustes realizados con el modelo simplificado (línea continua).

De la comparación de los resultados obtenidos con los conseguidos por otros autores que han estudiado los fotopolímeros como material de registro holográfico y han intentado abordar la obtención de modelos para describir su comportamiento [25], queda patente la necesidad de abordar la determinación de algunos parámetros de forma directa para mejorar el funcionamiento de los modelos existentes [25].

El modelo general todavía puede ser mejorado si se tiene en cuenta la atenuación de la luz con el espesor tratada en el apartado 3.a [33,34], esto proporciona información sobre la importancia de más fenómenos que tienen lugar en el interior del material como la difusión de monómero en el eje z. Con la utilización de los modelos de difusión tridimensionales se completa la caracterización de la formación del holograma en capas con espesores superiores a 0.5 mm [51-55] y se puede estudiar el comportamiento del material para las siguientes aplicaciones:

- o Fabricación de memorias holográficas.
- o Multiplexado de información (el modelo puede ayudar a elegir el método de multiplexado más eficaz).
- o Fabricación de elementos ópticos holográficos.
- o Utilización del material para aplicaciones de procesado óptico de información.

#### 4. Conclusión

Como consecuencia del trabajo realizado en esta Tesis Doctoral se han desarrollado modelos adecuados y útiles para el estudio de las redes de difracción almacenadas en fotopolímeros y para entender mejor el comportamiento del material durante la etapa de registro. Con su utilización se puede caracterizar con bastante precisión el comportamiento del material. A pesar de ello sería conveniente utilizar técnicas independientes para determinar con exactitud el valor de la polimerización, la difusividad del monómero, el índice de refracción del polímero, las variaciones de espesor y el valor de  $\gamma$ .

#### Agradecimientos

A Cristian Neipp López e Inmaculada Pascual Villalobos, directores de la Tesis Doctoral, por sus consejos, explicaciones y ánimos. A los proyectos MAT2000-1361-C04-04, MAT2004-04881-C02-01 y FIS2005-05881-C02-02 de los Ministerios de Ciencia y Tecnología y de Educación y Ciencia del Estado Español.