

# Sebstorganisierte Filamentierung UV-sensitiver Polymere bei partiell-kohärenter Beleuchtung

Ulrich Streppel\*, Dirk Michaelis\*, Andreas Bräuer\*, Richard Kowarschik\*\*

\*Fraunhofer Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik, Jena

\*\*Friedrich-Schiller-Universität, Jena

<mailto:ulrich.streppel@iof.fraunhofer.de>

UV-sensitive Polymere weisen eine nichtlineare Brechungsindexänderung während des Polymerisationsprozesses auf. Es wird gezeigt, dass solche Nichtlinearitäten eine Instabilität der Bestrahlungswelle hervorrufen. Entstehende Filamentstrukturen weisen eine Vorzugsraumfrequenz auf, die von den Kohärenzeigenschaften der Bestrahlungsquelle abhängt.

## 1 Einführung

UV-sensitive Polymere haben sich für viele Anwendungen im Bereich der Mikro- und Wellenleiteroptik insbesondere aufgrund ihrer vielfältigen Verarbeitungsmöglichkeiten etabliert. Die Mikrostrukturierung dieser Materialien mit lithographischen Methoden ist Grundlage für die Erzeugung komplexer Mikrooptiken.

Die zur Aushärtung der Polymere führende Reaktion kann durch UV-Bestrahlung initiiert werden. Dazu wird dem Polymerresist zuvor noch ein Photoinitiator zugesetzt, der unter UV-Bestrahlung in reaktive Bruchstücke zerfällt. Durch Anlagerung dieser Radikale wird die Polymerisation ausgelöst. Im Verlauf dieser Reaktion ändert sich die Dichte des Materials, was in einer Änderung des Brechungsindex resultiert. Diese Änderung folgt einem nichtlinearen Verlauf und wird bestimmt durch die im Polymer deponierte Bestrahlungsenergie (Abb. 1). Bei ausreichend langer Belichtung geht der Brechungsindex in einen Sättigungswert über. Da das Material aushärtet, ist der Prozess irreversibel und besitzt ein „unendliches“ Gedächtnis. Diese besondere Form der Nichtlinearität wird daher als integrierend bezeichnet.

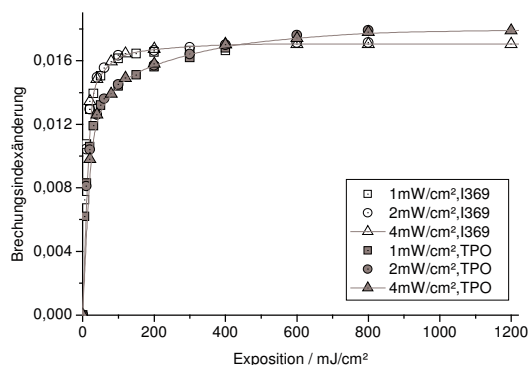


Abb. 1 Brechungsindexhub des Polymers Ormocer 1 für zwei Photoinitiatorarten (I369, TPO) und je drei Bestrahlungsleistungsdichten. Bestrahlung mit  $\lambda=365$  nm.

Bisher unverstanden war, dass die homogene UV-Bestrahlung einer dicken ( $> 50 \mu\text{m}$ ) Polymerresistschicht nicht zu einer homogenen Aushärtung des Materials führt. Abb. 2 zeigt den Querschnitt einer ausgehärteten Schicht eines Ormocer-Polymers [2]. Bei der Belichtung bilden sich wellenleiterartige Strukturen. Der Brechungsindex wird lokal erhöht, so dass die Bestrahlungswelle in diesen selbstgeschriebenen Brechungsindexkanälen offenbar geführt wird. Auch bei längerer Belichtung verschwinden die Inhomogenitäten nicht.

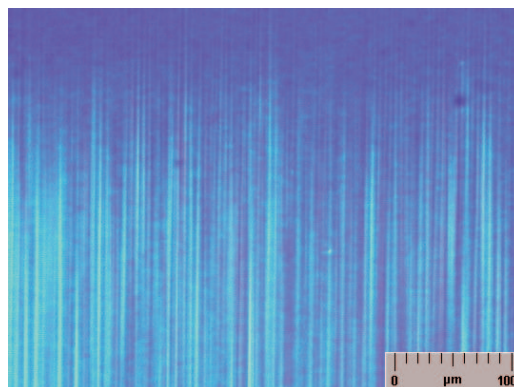


Abb. 2 Querschnitt einer ausgehärteten Ormocer 1 Schicht als Phasenkontrast-Mikroskopaufnahme.

Die Filamentstrukturen weisen offensichtlich eine gewisse Regelmäßigkeit hinsichtlich der entstehenden Raumfrequenzen auf. Daher werden im Folgenden die physikalischen Ursachen durch Analyse der Stabilitätseigenschaften des vorliegenden nichtlinearen Systems untersucht.

## 2 Stabilitätsanalyse

Startpunkt der Analyse bildet die paraxiale Wellengleichung (1), die hier in normierter Form notiert wird [3].

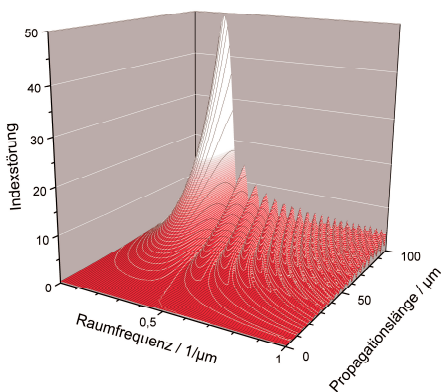
$$\left[ i\partial_z + \frac{1}{2}(\partial_x^2 + \partial_y^2) + N(X, Y, Z, T) \right] U(X, Y, Z, T) = 0 \quad (1)$$

Die Brechungsindexänderung wird durch ein aus der Literatur bekanntes phänomenologisches Modell (2) beschrieben [4]:

$$\partial_T N(X, Y, Z, T) = [1 - N(X, Y, Z, T)] |U(X, Y, Z, T)|^2 \quad (2)$$

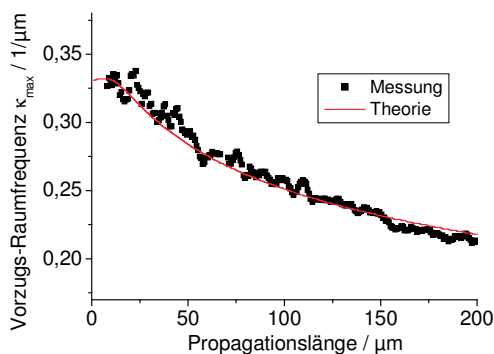
Führt man im Rahmen einer linearen Stabilitätsanalyse kleine Störungen  $\delta U$  und  $\delta N$  der ansonsten homogenen Feld- und Brechungsindexverteilungen ein und löst das System der beiden Differentialgleichungen, so ergeben sich für die Entwicklung der Brechungsindexstörung folgende Resultate:

- Die Amplitude der Indexstörung wird vom Polymersystem verstärkt, sie nimmt mit fortschreitender Propagation zu (Abb. 3). Die besondere Form der sättigenden, integrierenden Nichtlinearität führt zu einer Modulationsinstabilität der Bestrahlungswelle.



**Abb. 3** Brechungsindexstörung als Funktion der Propagationslänge und der Modulationsfrequenz.

- Es bildet sich bei einer Modulationsraumfrequenz  $\kappa_{\max}$  ein Maximum der Indexstörung heraus. Diese Vorzugsraumfrequenz wandert mit fortschreitender Propagation zu kleineren Frequenzen hin. Die Filamentstrukturen werden also größer, was im Experiment in guter Übereinstimmung auch gezeigt werden konnte (Abb. 4).

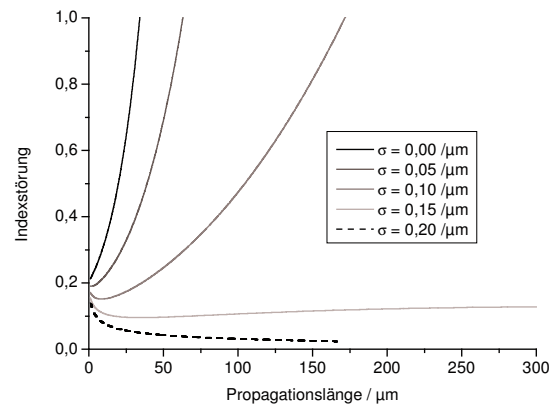


**Abb. 4** Vorzugsraumfrequenz der Filamentstrukturen als Funktion der Propagationslänge.

Wichtig für eine Verbesserung der Homogenisierung der Schichtaushärtung sind die Kohärenzeigenschaften der Bestrahlungsquelle. Diese werden berücksichtigt, indem statt des optischen Feldes  $U$  dessen Korrelation

$$W = \langle U(\mathbf{R}_1, Z, T) U^*(\mathbf{R}_2, Z, T) \rangle \quad (3)$$

betrachtet wird. Als Verteilungsfunktion im Ortsraum wird eine Exponentialfunktion  $W(r) = \exp(-\sigma \cdot r)$  angenommen. Führt man wieder Störungen der Indexverteilung und der Korrelationsfunktion ein, so wird die Brechungsindexstörung nur bei ausreichend hohem Grad räumlicher Kohärenz verstärkt. Verringert man den Kohärenzradius, vergrößert man  $\sigma$ , so sinkt die Wachstumsrate der Störung, bis schließlich ab einem Grenzwert  $\sigma_0$  keine Verstärkung mehr auftritt (Abb. 5).



**Abb. 5** Brechungsindexstörung als Funktion der Propagationslänge für unterschiedliche Kohärenzradien.

Zur Vermeidung von Brechungsindexinhomogenitäten bei der UV-Strukturierung von optischen Polymeren ist die räumliche Kohärenz der Bestrahlungsquelle also so zu wählen, dass die Korrelationsbreite  $\sigma$  die Bedingung  $\sigma > \sigma_0$  erfüllt.

#### Literatur

- [1] U. Streppel, P. Dannberg, C. Wächter, A. Bräuer., R. Kowarschik, „Formation of micro-optical structures by self-writing processes in photosensitive polymers”, *Appl. Opt.* 42 (18) 3570-3579 (2003)
- [2] H. Wolter, W. Glaubitt, K. Rose, „Multifunctional (meth)acrylate alkoxy-silanes – a new type of reactive compounds”, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 271: 719-724 (1992)
- [3] U. Streppel, D. Michaelis, A. Bräuer, „Self-organized filamentation of photoresponsive polymers during UV curing”, *Proc. SPIE* 4991 467-477 (2003)
- [4] A.S. Kewitsch, A. Yariv, „Self-focusing and self-trapping of optical beams upon photopolymerization”, *Opt. Lett.* 21: 24-26 (1996)