

УДК 535.34

ФОРМИРОВАНИЕ НЕЛИНЕЙНЫХ ДИНАМИЧЕСКИХ ГОЛОГРАММ В ЧИСТЫХ ОРГАНИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЯХ

© 2007 г. О. Ормачеа, А. Л. Толстик

Белорусский государственный университет, Минск

E-mail: ormachea@bsu.by; tolstik@bsu.by

Исследована запись динамических голограмм при многоволновых взаимодействиях в чистых органических жидкостях (этанол, ацетон, диоксан и др.). Показано, что в условиях интенсивного лазерного возбуждения (~ 100 МВт \cdot см $^{-2}$) в ближней ИК-области спектра наряду с кубической нелинейностью включаются нелинейности пятого и более высокого порядка, позволяющие осуществить визуализацию ИК-изображений при использовании различных порядков дифракции.

ВВЕДЕНИЕ

Окрашенные и чистые органические жидкости широко используют в современной лазерной физике в качестве нелинейных сред [1, 2]. Светоиндуцированное изменение оптических свойств нелинейной среды в интерференционном поле взаимодействующих волн приводит к записи динамических дифракционных решеток (голограмм). Их формирование может быть связано как с изменением показателя преломления и коэффициента поглощения при переходе молекул в высокие энергетические состояния, так и с тепловой нелинейностью, обусловленной нагревом среды.

В настоящей работе изложен общий подход к анализу процессов многоволнового взаимодействия световых пучков в чистых органических жидкостях в условиях проявления нелинейностей высших порядков, обусловленных нелинейным характером формирования тепловых динамических решеток.

Обычно запись нелинейных динамических голограмм при многоволновых взаимодействиях реализуют в резонансных средах (растворы красителей, кристаллы с центрами окраски и т.д.), в которых за счет эффекта насыщения поглощения индуцируются нелинейности пятого и более высокого порядков [3]. Нелинейная зависимость светоиндуцированного изменения показателя преломления резонансной среды от интенсивности в этих условиях приводит к искажению профиля штриха голографической решетки, которая перестает быть синусоидальной. Для анализа дифракционных характеристик таких динамических структур используют разложение пространственного распределения нелинейного отклика среды в ряд Фурье по пространственным гармоникам решетки [4]. Рассеяние на различных гармониках решетки определяет дифракцию во второй и более высокие порядки. При выполнении условия объемности ди-

намических голограмм угловая селективность решетки позволяет независимо восстанавливать волны, дифрагированные в различные порядки, изменяя частоту [4] либо направление распространения считывающего пучка [5].

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ РЕАЛИЗАЦИЯ МНОГОВОЛНОВОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В ЧИСТЫХ ОРГАНИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЯХ

Экспериментальное исследование дифракции лазерного излучения на тепловых динамических решетках было проведено в схеме невырожденного по частоте многоволнового взаимодействия (рис. 1). В качестве источника излучения использовали лазер на иттрий-алюминиевом гранате, работающий в режиме активной модуляции добротности (длительность импульса $\tau = 15$ нс). Спектроразделитель 3 и зеркала 8 и 9 формировали попутно распространяющиеся сигнальную E_S и опорную E_1 волны на основной частоте генерации лазера (длина волны $\lambda = 1064$ нм). При интерференции сигнальной и опорной волн в кювете с органической жидкостью 7 осуществлялась запись динамической голограммы. В качестве органической жидкости использовали чистые этанол, ацетон, диоксан, изопропанол, дихлорэтан, имеющие небольшое поглощение в ближней ИК-области спектра (толщина кюветы 3 мм). С помощью зеркала 4 считывающую волну E_2 на удвоенной частоте ($\lambda = 532$ нм) направляли навстречу записывающим голограмму волнам. Зеркало 4 могли перемещать, что позволяло изменять угол считывания. Для измерения энергетической эффективности многоволнового взаимодействия использовали регистрирующую систему 5, 11. Светофильтры 6, 10 использовали для ограничения мощности излучения.

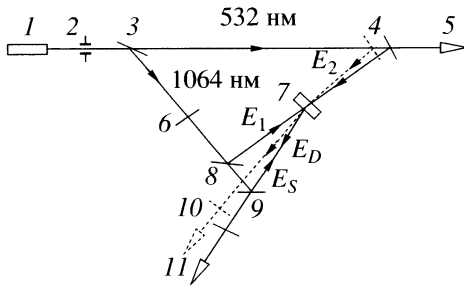


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 – лазер на алюмоиттриевом гранате, 2 – диафрагма, 3 – спектроредельитель, 4, 8, 9 – зеркала, 6, 10 – светофильтры, 5, 11 – система регистрации, 7 – кювета с органической жидкостью.

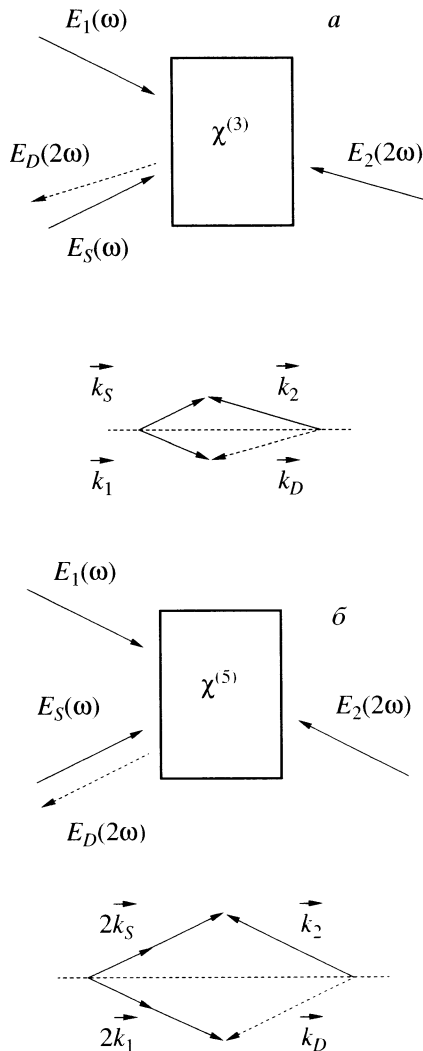


Рис. 2. Схемы невырожденного по частоте четырех- (а), и шестиволнового взаимодействия (б) и соответствующие диаграммы волновых векторов.

Условие фазового синхронизма для многоволнового взаимодействия $\vec{k}_D = M\vec{k}_1 - M\vec{k}_S + \vec{k}_2$ (\vec{k}_i – волновые вектора взаимодействующих волн, M – порядок дифракции) определяет направление распространения считывающей волны [3]. Типичная геометрия взаимодействия представлена на рис. 2. В первом случае (четыреволновое взаимодействие, рис. 2а), реализуется запись динамических голограмм на кубической нелинейности, при которой поляризация, ответственная за генерацию дифрагированной волны E_D с удвоенной частотой 2ω , имеет вид $P(2\omega) \sim \chi^{(3)}E_1(\omega)E_S^*(\omega)E_2(2\omega)$. Соответствующее условие фазового синхронизма $\vec{k}_D = \vec{k}_1 - \vec{k}_S + \vec{k}_2$ определяет, что считывающая волна E_2 должна быть повернута на угол $\beta \approx \alpha/4$ относительно направления распространения опорной волны E_1 (α – угол между записывающими голограмму волнами). При шестиволновом взаимодействии (рис. 2б) нелинейная поляризация имеет вид $P \sim \chi^{(5)}(E_1E_S^*)^2E_2$ и условие фазового синхронизма $\vec{k}_D = 2\vec{k}_1 - 2\vec{k}_S + \vec{k}_2$ реализуется при встречном направлении распространения опорной и считывающей волн ($\beta = 0, 2\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = 0$). В этом случае дифрагированная волна также распространяется навстречу сигнальной волне независимо от геометрии взаимодействия ($\vec{k}_D = -2\vec{k}_S$).

Реализация многоволнового взаимодействия в чистых органических жидкостях объясняется включением тепловой нелинейности вследствие поглощения на длине волны $\lambda = 1064$ нм (коэффициент поглощения $k \leq 0.1$ см⁻¹). Величину теплового изменения показателя преломления при этом можно оценить по известной формуле [6]

$$\Delta n_T = (dn/dT)\Delta T = (dn/dT)kI\tau/C_p, \quad (1)$$

где dn/dT – термооптический коэффициент, I – интенсивность интерференционного поля, τ – длительность импульса, C_p – теплоемкость единицы объема.

Как видно из приведенной формулы, малое значение коэффициента поглощения можно компенсировать увеличением интенсивности записывающих голограмму волн.

Экспериментальные исследования эффективности записи динамических голограмм в различных органических жидкостях при интенсивностях взаимодействующих волн ≤ 300 МВт · см⁻² показали, что во всех рассмотренных средах (этанол, ацетон, диоксан, изопропанол, дихлорэтан) реализуется четырехволновое взаимодействие, обусловленное записью тепловых динамических решеток. Наиболее высокие значения дифракционной эф-

фективности динамической голограммы $\xi = I_D/I_2$ (до 15%) были достигнуты при использовании этанола. Измеренные для него зависимости дифракционной эффективности от интенсивности записывающих голограмму волн ($I_1 = I_S = I$) представлены на рис. 3а. Как и ожидалось, в соответствии с нелинейной поляризацией $P \sim \chi^{(3)} E_1 E_S^* E_2$, увеличение интенсивности приводило к практически квадратичному росту дифракционной эффективности. Подобные результаты были получены и для изопропанола, характеризующегося близкими термооптическими свойствами. В то же время для диоксана значения дифракционной эффективности были ниже в несколько раз, а для ацетона и дихлорэтана – на несколько порядков.

Наиболее интересный момент заключается в реализации шестиволнового взаимодействия (рис. 3б), которое имеет место при включении нелинейности пятого порядка. Подтверждением реализации шестиволнового взаимодействия кроме геометрии взаимодействия служит четвертая степень зависимости дифракционной эффективности от интенсивности записывающих голограмму волн (нелинейная поляризация $P \sim \chi^{(5)} (E_1 E_S^*)^2 E_2$). Шестиволновое взаимодействие наблюдали в этаноле, изопропаноле и диоксане, причем, как и для четырехволнового взаимодействия, значения дифракционной эффективности были близки при использовании этанола и изопропанола и были ниже в несколько раз при использовании диоксана.

Заметим, что ранее, при использовании в качестве нелинейной среды растворов красителей (см., например, [3, 4]), шестиволновое взаимодействие было реализовано за счет эффекта насыщения поглощения. Однако коэффициент поглощения органических жидкостей в условиях эксперимента оставался постоянным. Проявление нелинейностей высших порядков в этом случае можно объяснить зависимостью от температуры таких параметров, входящих в выражение (1), как теплоемкость единицы объема и термооптический коэффициент, которые во всех предыдущих рассмотренных случаях считались постоянными. Полученные в эксперименте значения дифракционной эффективности $\xi \sim 10^{-3} - 10^{-4}$ сопоставимы со значениями, полученными с использованием полиметиновых красителей [7] и на три порядка превышают значения, достигнутые в [8] при шестиволновом взаимодействии в полимерах с использованием резонансного двухфотонного механизма поглощения.

ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ НЕВЫРОЖДЕННОГО МНОГОВОЛНОВОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

Для теоретического описания процесса многоволнового взаимодействия используем известное приближение медленно меняющихся амплитуд,

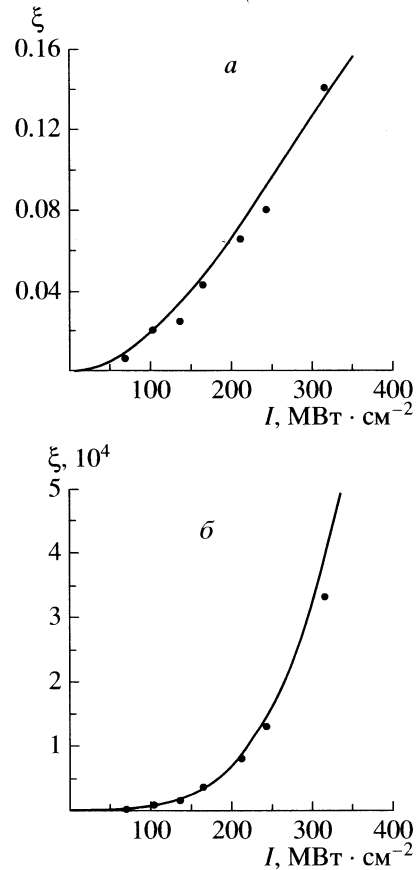


Рис. 3. Зависимость дифракционной эффективности ξ от интенсивности записывающих голограмму волн для четырех- (а), и шестиволнового взаимодействия (б) при интенсивности считывающей волны $I_2 = 12 \text{ МВт} \cdot \text{см}^{-2}$.

позволяющее записать систему укороченных волновых уравнений для взаимодействующих световых полей [3, 4]

$$\frac{\partial E_{1,S}}{\partial r} = i \frac{2\pi\omega}{cn_0} (E_{1,S} \chi_0(\omega) + E_{S,1} \chi_{\pm 1}(\omega)), \quad (2)$$

$$\frac{\partial E_{2,D}}{\partial r} = -i \frac{4\pi\omega}{cn_0} (E_{2,D} \chi_0(2\omega) + E_{D,2} \chi_{\mp M}(2\omega)). \quad (3)$$

Здесь n_0 – начальное значение показателя преломления, χ_m – компоненты разложения нелинейной восприимчивости среды в пространственный ряд Фурье по гармоникам динамической решетки $\vec{K} = \vec{k}_1 - \vec{k}_S$:

$$\chi_m = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \chi_{nl} \exp[-im(\vec{K} \cdot \vec{r})] d(\vec{K} \cdot \vec{r}), \quad (4)$$

где нелинейная восприимчивость $\chi_{nl} = n_0 \Delta n_T / 2\pi$ связана с тепловым изменением показателя преломления (1).

Конкретный вид компонент разложения χ_m определяется термооптическими характеристиками рассматриваемой среды. Учитывая экспериментальную реализацию шестиволнового взаимодействия, можно констатировать, что термооптические характеристики не являются постоянными, а зависят от температуры, приводя к насыщающемуся характеру тепловой нелинейности, которую представим в виде

$$\Delta n_T = \frac{\kappa a_T I}{1 + \alpha I}, \quad (5)$$

где $\kappa = \lambda k/4\pi$ – коэффициент экстинкции, $a_T = \frac{2\omega}{c} \left(\frac{dn}{dT} \right) \tau$, α – параметр нелинейности, определяемый зависимостью термооптических характеристик от температуры.

С учетом выражения (5) компоненты фурье-разложения χ_m (4) можно представить в виде

$$\chi_0 = \frac{n_0 \kappa}{2\pi} \left[i + \frac{a_T}{\alpha} \left(1 - \frac{1}{A} \right) \right], \quad (6)$$

$$\chi_{\pm 1} = \frac{n_0 \kappa}{2\pi} \left[\frac{2a_T \sqrt{I_1 I_S}}{A(1 + A + \alpha(I_1 + I_S))} \right] \times \exp[\pm i(\varphi_1 - \varphi_S)], \quad (7)$$

$$\chi_{\pm 2} = \frac{n_0 \kappa}{2\pi} \left[\frac{-4a_T \alpha I_1 I_S}{A(1 + A + \alpha(I_1 + I_S))^2} \right] \times \exp[\pm i2(\varphi_1 - \varphi_S)]$$

.....

$$\chi_{\pm M} = \frac{n_0 \kappa}{2\pi} \left(-\frac{a_T}{\alpha} \right) \frac{(-2\alpha \sqrt{I_1 I_S})^M}{A(1 + A + \alpha(I_1 + I_S))^M} \times \exp[\pm iM(\varphi_1 - \varphi_S)], \quad (9)$$

где $A = (1 + 2\alpha(I_1 + I_S) + \alpha^2(I_1 - I_S)^2)^{1/2}$.

Из уравнений (3), (9) следует, что при восстановлении динамической голограммы на удвоенной частоте в случае плоских опорной и считывающей волн ($M\varphi_1 + \varphi_2 = \text{const}$) фаза дифрагированной волны $\varphi_D = -\varphi_S$ при дифракции в первый порядок (четырёхволновое взаимодействие) и $\varphi_D = -2\varphi_S$ (дифракция во второй порядок, шестиволновое взаимодействие). В последнем случае волна E_D имеет частоту 2ω и распространяется навстречу сигнальной волне E_S . Удвоенная сопряженная фаза при одновременном удвоении частоты сигнальной волны означает, что обе волны (E_S и E_D) имеют совпадающие поверхности волнового фронта при встречных направлениях распространения (эффект обращения волнового фронта с одновременным удвоением частоты световой волны [7]).

Решение системы дифференциальных уравнений (2), (3) позволяет описать рассмотренную выше экспериментальную ситуацию, при которой реализуется запись динамических голограмм на основной частоте генерации лазера и считывание на частоте второй гармоники. На рис. 3 сплошными линиями приведены зависимости дифракционной эффективности динамических голограмм, сформированных при четырех- (а) и шестиволновом (б) взаимодействии, от интенсивности записывающих голограмму волн. Расчеты выполнены при значении параметра нелинейности $\alpha = 10^{-10} \text{ Вт}^{-1} \cdot \text{см}^2$ и отношении $a_T/\alpha = 1000$, отвечающем экспериментальной ситуации. Теоретические зависимости приведены с поправочными коэффициентами 1/4 для четырехволнового взаимодействия и 2/3 для шестиволнового взаимодействия. Эти коэффициенты учитывают немгновенность и нелокальность процесса тепловыделения и формирования динамических решеток, а также тот факт, что решение системы уравнений (2), (3) дает значение дифракционной эффективности в конце импульса, а в эксперименте измеряли среднюю по всему импульсу дифракционную эффективность.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Отметим, что рассмотренные схемы невырожденного по частоте четырех- и шестиволнового взаимодействия представляют интерес с точки зрения частотного преобразования когерентных изображений, например для визуализации ИК-изображений, а также для преобразования фазы дифрагированной волны. При шестиволновом взаимодействии реализуется обращение волнового фронта ($\varphi_D = -2\varphi_S$) и условие фазового синхронизма $\vec{k}_D = 2\vec{k}_1 - 2\vec{k}_S + \vec{k}_2$ при встречном направлении распространения опорной и считывающей волн $\vec{k}_2 = -2\vec{k}_1$ выполняется автоматически ($\vec{k}_D = -2\vec{k}_S$). При четырехволновом взаимодействии сохранение фазовой модуляции ($\varphi_D = -\varphi_S$) при увеличении частоты ($\omega_D = 2\omega$) означает сглаживание пространственной структуры волнового фронта. При этом условие фазового синхронизма для четырехволнового взаимодействия $\vec{k}_D = \vec{k}_1 - \vec{k}_S + \vec{k}_2$ выполняется для заранее определенного направления распространения плоской сигнальной волны, ограничивая ширину углового спектра восстановленного изображения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Martin G., Hellwarth R.W. // App. Phys. Lett. 1979. V. 34. P. 371.

2. Березинская А.М., Духовный А.М., Стаселько Д.И. // Журн. техн. физики. 1983. Т. 53. С. 499.
3. Толстик А.Л. Многоволновые взаимодействия в растворах сложных органических соединений. Минск: Изд-во БГУ, 2002. 159 с.
4. Rubanov A.S., Tolstik A.L., Karpuk S.M., Ormachea O. // Opt. Commun. 2000. V. 181. P. 183.
5. Ормачеа О., Толстик А.Л. // Изв. РАН. Сер. физ. 2005. Т. 69. № 8. С. 1144.
6. Кабанов В.В., Рубанов А.С., Толстик А.Л. // Квант. электроника. 1988. Т. 15. С. 1681.
7. Карпук С.М., Рубанов А.С., Толстик А.Л. // Квант. электроника. 1997. Т. 24. С. 52.
8. Charra F., Nunzi J.-M. // J. Opt. Soc. Am. B. 1991. V. 8. P. 570.