

03;07

## **Высокоэффективное шестиволновое взаимодействие в линейно поглощающих органических жидкостях**

© И.Н. Агишев, А.Л. Толстик

Белорусский государственный университет, Минск, Беларусь

E-mail: [tolstik@bsu.by](mailto:tolstik@bsu.by)

Поступило в Редакцию 15 августа 2008 г.

Определены условия реализации высокоэффективного преобразования световых полей динамическими голограммами с использованием схемы частотно-невырожденного шестиволнового смещения в окрашенных органических жидкостях. Установлен механизм проявления нелинейной оптической восприимчивости пятого порядка в линейно поглощающих жидкостях, связанный с нелинейностью термооптического коэффициента и зависимостью от температуры плотности и теплоемкости растворителя. В этанольном растворе хлорида меди реализована квадратичная запись динамических голограмм с дифракционной эффективностью 20%.

PACS: 42.65.An, 42.65.Hw, 42.20.Pa

Расширение сферы практического использования методов многоволнового смещения в системах преобразования световых полей в реальном времени и оптической обработки информации связано с поиском новых сред и способов достижения высоких значений нелинейной оптической восприимчивости пятого и более высоких порядков. Переход к высшим нелинейностям позволяет существенно расширить возможности интерференционно-голографических методов обработки когерентных изображений и оптических сигналов, включая управление фазовой структурой волнового фронта и частотное преобразование световых полей, пространственную фильтрацию изображений и передачу информации с одних пучков на другие [1–3]. Традиционно в качестве сред, проявляющих нелинейности высших порядков, рассматриваются среды с многофотонным либо насыщаемым поглощением [4–6], однако реализуемая в них эффективность шестиволнового смещения на уровне долей процента существенно ограничивает возможности практических применений.

В настоящей работе впервые для реализации эффективного шестиволнового смещения предложено использовать линейно поглощающие жидкости, которые традиционно рассматриваются как среды с чисто кубической нелинейностью. Определены условия и установлен механизм проявления нелинейности пятого порядка, связанный с нелинейностью термооптического коэффициента и зависимостью от температуры плотности и теплоемкости растворителя. Для учета указанных зависимостей введено понятие эффективного термооптического коэффициента второго порядка, позволившее построить адекватную теоретическую модель.

На возможность записи квадратичных динамических голограмм в чистых органических жидкостях впервые было обращено внимание в работе [7] при реализации шестиволнового взаимодействия в этаноле. Для объяснения предложено учитывать зависимость от температуры термооптических характеристик, которые, по мнению авторов, могут обусловить насыщающийся характер тепловой нелинейности, по аналогии с резонансными средами с насыщающимся поглощением. Однако такое феноменологическое введение эффекта насыщения затрудняет количественное определение параметра нелинейности.

Для описания процесса дифракции на тепловых динамических решетках в условиях линейного поглощения в настоящей работе предлагается использовать разложение функциональной зависимости показателя преломления от температуры в ряд Тейлора по производным различного порядка, а также учитывать зависимость от температуры плотности и теплоемкости используемой органической жидкости. В этом случае тепловое изменение показателя преломления можно представить в виде

$$\Delta n = (\partial n / \partial T) \Delta T + \frac{1}{2} (\partial^2 n / \partial T^2)_{eff} (\Delta T)^2 + \dots, \quad (1)$$

где  $\partial n / \partial T$ ,  $\partial^2 n / \partial T^2$  — термооптические коэффициенты первого и второго порядка,  $\Delta T = kI\tau / C_\rho$  — изменение температуры,  $k$  — коэффициент поглощения,  $I$  — интенсивность,  $\tau$  — длительность импульса,  $C_\rho$  — теплоемкость единицы объема. В выражении (1) введен эффективный термооптический коэффициент второго порядка, учитывающий зависимость теплоемкости и плотности от температуры  $(\partial^2 n / \partial T^2)_{eff} = \partial^2 n / \partial T^2 - (\partial C_\rho / \partial T) (\partial n / \partial T) C_\rho^{-1}$ .

Первое слагаемое выражения (1) описывает кубическую нелинейность (изменение показателя преломления пропорционально интенсивности), в то время как второе слагаемое отвечает квадратичной

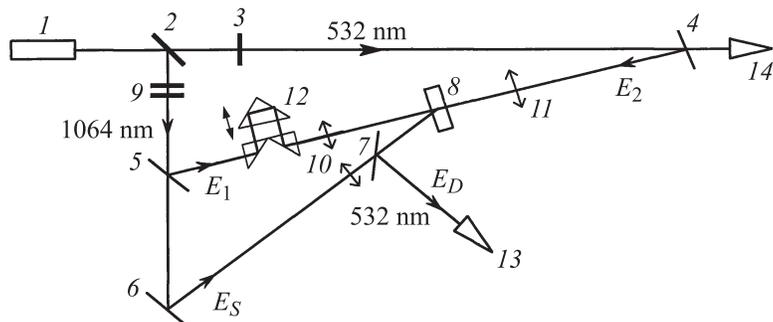


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

зависимости показателя преломления от интенсивности и однозначно связано с нелинейностью пятого порядка и шестиволновым смешением:

$$\chi^{(5)} = \frac{c^2 n_0^3 k^2 \tau^2}{256 \pi^3 C_\rho^2} (\partial^2 n / \partial T^2)_{eff}, \quad (2)$$

где  $n_0$  — начальное значение показателя преломления линейно поглощающей органической жидкости.

Полученные выражения (1), (2) позволяют рассчитать эффективность шестиволнового смешения. Типичная схема взаимодействия представлена на рис. 1. Динамическая голограмма записывалась волнами  $E_1$  и  $E_S$  на основной частоте генерации лазера  $\omega$ , а считывание осуществлялось волной  $E_2$  на удвоенной частоте  $2\omega$ . Условие брэгговской дифракции для шестиволнового смешения выполняется при встречных направлениях распространения опорной  $E_1$  и считывающей  $E_2$  волн (схема обращения волнового фронта с одновременным удвоением частоты световой волны [8,9]). В этом случае дифрагированная волна  $E_D$  определяется нелинейной поляризацией  $P = \chi^{(5)}(E_1 E_S^*)^2 E_2$ , отвечающей квадратичной записи динамических голограмм.

Для теоретического описания невырожденного по частоте шестиволнового смешения используем приближение медленно меняющихся амплитуд, позволяющее записать систему укороченных волновых уравнений для взаимодействующих световых полей [5]:

$$\frac{\partial E_{1,s}}{\partial r} = i \frac{2\pi\omega}{cn_0} (E_{1,s} \chi_0(\omega) + E_{S,1} \chi_{\pm 1}(\omega)), \quad (3)$$

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

где  $\chi_m$  — компоненты разложения нелинейной восприимчивости среды в ряд Фурье по пространственным гармоникам динамической решетки  $\mathbf{K} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_s$ . В приближении малой дифракционной эффективности из уравнения (4) имеем:

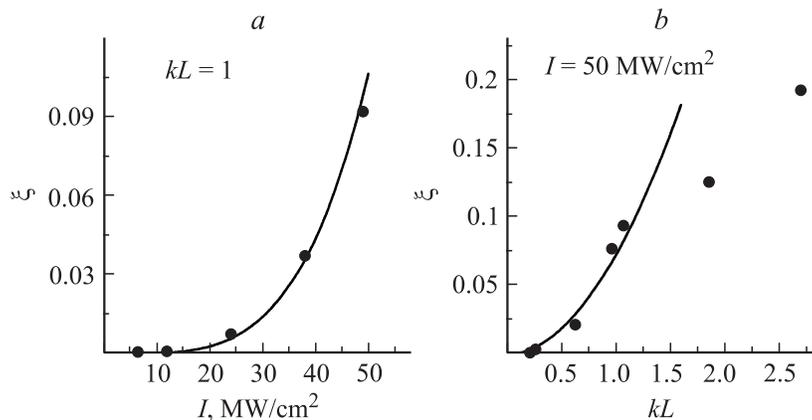
$$\frac{\partial E_D}{\partial r} = -i \frac{4\pi\omega}{cn_0} \chi^{(5)}(E_1 E_S^*)^2 E_2, \quad (5)$$

откуда следует выражение для дифракционной эффективности:

$$\xi = \frac{I_D}{I_2} = \left( \frac{4\pi\omega L}{cn_0} \right)^2 |\chi^{(5)}|^2 (I_1 I_S)^2 \left( \frac{8\pi}{cn_0} \right)^4, \quad (6)$$

где  $L$  — толщина нелинейного слоя.

Экспериментальная схема взаимодействия представлена на рис. 1. В качестве источника излучения использовался лазер 1 на иттрий-алюминиевом гранате, работающий в режиме активной модуляции добротности (длительность импульса  $\tau = 20$  ns). Запись динамической голограммы осуществлялась на основной частоте генерации лазера ( $\lambda = 1064$  nm), а считывание — на частоте второй гармоники ( $\lambda = 532$  nm). Для спектрального разделения пучков использовался спектроделитель 2. Зеркала 5 и 6 и линзы 10 формировали опорную  $E_1$  и сигнальную  $E_S$  волны, записывающие динамическую решетку в нелинейной среде 8 при диаметре пучков  $650 \mu\text{m}$ . Угол между пучками ( $\sim 100$  mrad) обеспечивал практически полное перекрытие волн в кювете толщиной 1 mm. С целью синхронизации времени прихода записывающих голограмму лазерных импульсов использовалась линия задержки 12. Считывающая волна  $E_2$  направлялась навстречу записывающим голограмму волнам с помощью зеркала 4, линза 11 создавала в среде перетяжку диаметром  $350 \mu\text{m}$ . Интенсивности волн изменялись с помощью светофильтров 3 и 9. Для измерения дифракционной эффективности динамической голограммы использовалась регистрирующая система 13 и 14. В эксперименте в качестве нелинейной среды выбран этанольный раствор хлорида меди, характеризующийся высокой тепловой нелинейностью. Его преимущество связано также с высоким поглощением в ближней ИК-области спектра по сравнению с видимым



**Рис. 2.** Зависимость дифракционной эффективности  $\xi$  от интенсивности записывающих голограмму волн  $I_1 = I_S = I$  (a) и оптической толщины среды  $kL$  (b).

диапазоном (коэффициенты поглощения на длинах волн 1064 и 532 nm отличаются более чем на порядок).

На рис. 2 представлены зависимости дифракционной эффективности квадратично записанной динамической голограммы  $\xi = I_D/I_2$  от интенсивности волн и оптической толщины среды. Видно, что, как и следует из формулы (6) при небольших значениях дифракционной эффективности  $\xi$ , она пропорциональна четвертой степени интенсивности записывающих голограмму волн и квадратично зависит от оптической толщины среды (соответствующие параболы приведены на рис. 2 сплошными линиями). Рост дифракционной эффективности начинает насыщаться при ее значениях выше 10%. Максимально достигнутая дифракционная эффективность составила 20%, что на несколько порядков превышает данные известных ранее экспериментальных работ по частотно-невыврожденному шестиволновому смешению при использовании двухфотонного поглощения в полимерах [4], насыщающегося поглощения в растворах органических красителей [5] или чистых органических жидкостей [7].

Адекватность предложенного подхода к описанию невырожденного по частоте шестиволнового смешения в линейно поглощающих жидкостях подтверждена сопоставлением полученных экспериментальных данных с теоретическими расчетами. В частности, результаты эксперимента по формулам (2), (6) позволили оценить эффективный тер-

мооптический коэффициент второго порядка  $(\partial^2 n / \partial T^2)_{eff} \approx 10^{-6} \text{ K}^{-2}$ . В то же время использование формулы Лоренц–Лоренца позволяет найти термооптический коэффициент второго порядка  $\partial^2 n / \partial T^2 \approx -10^{-7} \text{ K}^{-2}$ , а из табличных данных [10] следуют значения теплоемкости единицы объема этанола  $C_\rho = 1.92 \text{ J/K} \cdot \text{cm}^3$ , ее производной  $\partial C_\rho / \partial T \approx 5 \cdot 10^{-3} \text{ J/K}^2 \cdot \text{cm}^3$  и термооптического коэффициента  $\partial n / \partial T = -4 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ . В итоге из известных данных следует оценка эффективного термооптического коэффициента второго порядка  $(\partial^2 n / \partial T^2)_{eff} = \partial^2 n / \partial T^2 - (\partial C_\rho / \partial T)(\partial n / \partial T)C_\rho^{-1}$ , близкая к полученной экспериментально.

Таким образом, в работе продемонстрирована перспективность использования линейно поглощающих окрашенных органических жидкостей для реализации высокоэффективного шестиволнового смешения на нелинейности пятого порядка. Установлено, что определяющий вклад в процесс взаимодействия вносит тепловая нелинейность, обусловленная зависимостью от температуры плотности и теплоемкости растворителя.

## Список литературы

- [1] Merkel K.D., Cole Z., Babbitt W.R. // J. Luminescence. 2000. V. 86. P. 375–382.
- [2] Astinov V., Kubarych K.J., Milne C.J., Miller R.J.D. // Optics Lett. 2000. V. 25. N 11. P. 853–855.
- [3] Ormachea O., Romanov O.G., Tolstik A.L. et al. // Optics Express. 2006. V. 14. N 18. P. 8298–8304.
- [4] Charra F., Nunzi J.-M. // J. Opt. Soc. Am. B. 1991. V. 8. N 3. P. 570–577.
- [5] Rubanov A.S., Tolstik A.L., Karpuk S.M., Ormachea O. // Optics Commun. 2000. V. 181. N 1–3. P. 183–190.
- [6] Chen Y.-F., Beckwitt K., Wise F.W., Aitken B.G., Sanghera J.S., Aggarwal I.D. // J. Opt. Soc. Am. B. 2006. V. 23. N 2. P. 347–352.
- [7] Ормачеа О., Толстик А.Л. // Изв. РАН. Сер. физ. 2007. Т. 71. № 1. С. 131–135.
- [8] Ивахник В.В., Никонов В.И. // Оптика и спектроскопия. 1993. Т. 75. В. 2. С. 385–391.
- [9] Карпук С.М., Рубанов А.С., Толстик А.Л., Чалей А.В. // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20. В. 12. С. 4–8.
- [10] Стабников В.И., Ройтер И.М., Процюк Т.Б. Этиловый спирт. М.: Пищевая промышленность, 1976.