

Вырожденное взаимодействие двух световых волн на динамической решетке в коллоидных растворах с наночастицами Fe_3O_4

Е.Ю.Агеев, Р.В.Литвинов, Н.Д.Хатьков, Л.В.Загребин, С.С.Шестов

В приближении Максвелла–Гарнетта рассмотрены пространственно неоднородные возмущения диэлектрической проницаемости коллоидного раствора со сферическими наночастицами в качестве дисперсной фазы, обусловленные действием на них градиентной силы света. Показано, что вырожденное по частоте смешение двух световых волн в такой среде вызывает формирование пространственной решетки наночастиц и связанной с ней динамической решетки диэлектрической проницаемости коллоидного раствора. Получены соотношения для комплексной постоянной связи между световыми волнами, взаимодействующими на этой решетке. Выполнен анализ попутного и встречного двухволнового взаимодействия в коллоидных растворах с наночастицами, поглощающими свет. Показано, что коэффициент двухволнового усиления при взаимодействии на длине волны 640 нм в коллоидных растворах на основе различных дисперсионных сред и наночастиц Fe_3O_4 достигает $\sim 10 \text{ см}^{-1}$.

Ключевые слова: оптическая нелинейность, коллоиды, наночастицы.

1. Введение

Оптическая нелинейность коллоидных растворов, приготовленных из различных дисперсионных сред и твердых наночастиц в качестве дисперсной фазы, проявляется в нелинейной, в том числе немонотонной [1–4], зависимости пропускания среды от интенсивности излучения, само- и дефокусировке лазерных пучков [3], вырожденном обращении волнового фронта светового пучка [5], формировании пространственных оптических солитонов [6, 7].

В работе [1] нелинейное ограничение пропускания и просветления коллоидов на основе вакуумного масла VM-4 и наночастиц широкозонных полупроводников и изоляторов (TiO_2 , Al_2O_3 , MgO , BaO и др.), исследованное на длинах волн 532 и 1060 нм, связывается с фотопроводимостью тонкой поверхностной оболочки, которая изменяет эффективный показатель преломления и коэффициент экстинкции коллоида. Оптическая нелинейность коллоидов на основе масла VM-4 и иммерсионного кедрового масла с наночастицами Al_2O_3 была обнаружена в работе [3] на длинах волн 633 и 532 нм. Она проявлялась в осциллирующей зависимости пропускания среды от интенсивности падающего света и в светоиндуцированных осесимметричных изменениях интенсивности лазерного пучка, в том числе в таких хорошо известных эффектах как самофокусировка и дефокусировка [8–10]. Авторы работы [3] связывают нелинейные возмущения показателя преломления среды с фотопроводимостью тонкого

поверхностного слоя наночастицы (аналогично работе [1]) и указывают на возможность дополнительного вклада в нелинейный отклик температурной нелинейности дисперсионной среды и эффекта пространственного размерного квантования.

В работе [2] методом z -сканирования на длине волны 532 нм (импульсный Nd:YAG-лазер, длительность импульса $\tau_p = 25$ нс) исследована нелинейность третьего порядка коллоидных растворов серебра, полученных методом лазерной абляции в воде и этаноле. Показано, что долговременная (десять часов) эволюция коллоида, обусловленная процессами агрегации и седиментации, приводит к смене наведенного поглощения света наведенным просветлением, что связывается с образованием окисной оболочки наночастиц. Нелинейный оптический отклик коллоида на основе воды и наночастиц серебра диаметром $d_p = 10 - 30$ нм на световые импульсы Nd:YAG-лазера длительностью $\tau_p = 80$ пс был исследован в недавней работе [4]. Здесь по результатам z -сканирования были определены нелинейные возмущения показателя преломления и коэффициента поглощения среды до восьмого порядка включительно. Коэффициент Керра коллоида n_2 , измеренный при факторе заполнения (относительном объеме) $f = 1.47 \times 10^{-4}$, составил $-31 \times 10^{-19} \text{ м}^2/\text{Вт}$. Авторы работы [4] связывают нелинейные возмущения показателя преломления и коэффициента поглощения среды на частоте световой волны с нелинейностью отклика входящих в раствор материальных сред на сильное световое поле вдали от резонансных линий поглощения [10]. Однако нелинейная зависимость возмущений показателя преломления от фактора f , продемонстрированная в [4], свидетельствует о наличии дополнительного механизма нелинейности, который может быть связан с градиентной силой сфокусированного лазерного пучка, действующей на наночастицы [11–14].

Модель оптической нелинейности коллоидов на основе воды с наночастицами полистирола или нанопузырь-

Е.Ю.Агеев, Р.В.Литвинов, Н.Д.Хатьков. Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Россия, 634050 Томск, просп. Ленина, 40; e-mail: litvinovrv@rzi.tusur.ru
Л.В.Загребин, С.С.Шестов. ООО «Центр информационно-клеточной медицины», Россия, 105005 Москва, Денисовский пер., 26/1

Поступила в редакцию 17 июня 2008 г., после доработки – 2 сентября 2008 г.

ками воздуха, связанная с действием на наночастицы градиентной силы света [11–15], использована в работах [6, 7] при анализе пространственных оптических солитонов. Действие градиентной силы приводит к неоднородному распределению наночастиц по объему коллоида и, как следствие, к формированию пространственно неоднородных возмущений его диэлектрической проницаемости [16, 17] и к локальной неоднородности светорассеяния [18–20].

Отметим, что в работах [6, 7] рассматриваются стационарные пространственные световые солитоны, формирующиеся в коллоиде с наночастицами при высокой интенсивности света (~ 10 ГВт/м²), достижимой при использовании достаточно коротких лазерных импульсов. Возможность установления стационарного значения нелинейного отклика коллоида за время τ_p обусловлена перемещением наночастицы под действием градиентной силы света на расстояние $L = \tau_p v$ порядка апертуры сильно сфокусированного светового пучка w_0 . Здесь $v = qP \times d_p / (3\pi c \eta w_0^2)$ – скорость перемещения частицы [11]; q – доля отраженного от частицы света; P – мощность излучения; c – скорость света; η – вязкость жидкости. Так, при $P = 0.14$ ГВт, $\tau_p = 6$ нс, $q = 0.1$, $\eta = 1$ мПа·с (дисперсионная среда – вода), $d_p = 50$ нм, $w_0 = 10$ мкм величина $L = 15$ мкм. В случае вырожденного по частоте смещения двух и более световых пучков в коллоиде параметром, характеризующим сильную неоднородность интенсивности света, является пространственный период интерференционной картины Λ ($\Lambda \ll w_0$), на котором распределена мощность излучения $\sim P\Lambda/w_0$. При $w_0 = 50$ мкм, $\Lambda = 5$ мкм перемещение L частицы под действием градиентной силы света, созданной интерференционной световой картиной, составляет 6 мкм. Таким образом, оптическая нелинейность коллоидов с наночастицами, в основе которой лежит действие на частицы градиентной силы света, дает возможность реализовывать разнообразие нелинейно-оптические эффекты.

В настоящей работе выполнен анализ стационарного вырожденного двухволнового взаимодействия световых волн на динамической голографической решетке, сформированной в коллоидном растворе с наночастицами в качестве дисперсной фазы.

2. Модель

Рассмотрим распространение монохроматического светового поля с частотой ω в коллоидном растворе со сферическими наночастицами в качестве дисперсной фазы. Будем считать, что диаметр наночастиц d_p значительно меньше длины световой волны λ и толщины скин-слоя материала наночастиц. Это позволяет использовать при анализе взаимодействия света со средой дипольное приближение, в рамках которого относительная диэлектрическая проницаемость ϵ_c коллоида в отсутствие стационарных электрического и магнитного полей может быть описана формулой Максвелла – Гарнетта [12–16]

$$\epsilon_c = \epsilon_b + 3NV_p \frac{\epsilon_b(\epsilon_p - \epsilon_b)}{\epsilon_b + 2\epsilon_b - NV_p(\epsilon_p - \epsilon_b)}, \quad (1)$$

где ϵ_b и ϵ_p – относительные диэлектрические проницаемости дисперсионной среды и дисперсной фазы на частоте световой волны соответственно; N и $V_p = \pi d_p^3/6$ – концентрация и объем частиц соответственно. Произведение

NV_p равно относительному объему наночастиц, или фактору заполнения f . Для коллоидов справедливо неравенство $f \ll 1$, что позволяет в общем случае поглощающих свет дисперсионных сред с нелинейными оптическими свойствами пренебречь вкладом в диэлектрическую проницаемость коллоида ϵ_c малых поправок $|\Delta\epsilon_b| \ll |\epsilon_b|$ and $|\Delta\epsilon_p| \ll |\epsilon_p|$ к диэлектрическим проницаемостям его компонентов ϵ_b и ϵ_p , входящих во второе слагаемое в правой части формулы (1). Ниже рассмотрим коллоиды с не поглощающими свет дисперсионными средами с линейными в оптическом диапазоне длин волн свойствами. Тогда соотношение для ϵ_c может быть преобразовано к виду

$$\epsilon_c = n_b^2 + 3NV_p n_b^2 \frac{\epsilon'_p - i\epsilon''_p - n_b^2}{\epsilon'_p - i\epsilon''_p + 2n_b^2}, \quad (2)$$

где n_b – показатель преломления дисперсионной среды; ϵ'_p and ϵ''_p – вещественная и мнимая части относительной диэлектрической проницаемости дисперсионной фазы соответственно.

Со стороны светового поля на наночастицы действует градиентная сила \mathbf{F} [10–15], которая для монохроматического светового поля, распространяющегося в немагнитной среде может быть представлена в виде

$$\mathbf{F} = \frac{\alpha}{2} \nabla(\mathbf{E}\mathbf{E}^*), \quad (3)$$

где $\nabla = (\partial/\partial x)\mathbf{e}_x + (\partial/\partial y)\mathbf{e}_y + (\partial/\partial z)\mathbf{e}_z$; \mathbf{e}_x , \mathbf{e}_y and \mathbf{e}_z – орты системы координат; \mathbf{E} – вектор электрической напряженности светового поля. Поляризация сферической частицы α на частоте светового поля может быть описана соотношением [18–20]

$$\alpha = 3V_p \epsilon_0 n_b^2 \frac{\epsilon'_p - i\epsilon''_p - n_b^2}{\epsilon'_p - i\epsilon''_p + 2n_b^2}, \quad (4)$$

где ϵ_0 – фундаментальная электрическая постоянная.

Так же как и в работах [6, 7], посвященных анализу пространственных солитонов в коллоидах с наночастицами, рассмотрим стационарный режим самовоздействия светового поля в коллоиде. В этом случае ток наночастиц \mathbf{j} , появляющийся под действием градиентной силы \mathbf{F} , удовлетворяет уравнению [21, 22]

$$\nabla \mathbf{j} = \nabla(\mu N \mathbf{F} - D \nabla N) = 0, \quad (5)$$

где μ – подвижность частиц, связанная с коэффициентом диффузии D соотношением Эйнштейна $D = k_B T \mu$ (k_B – постоянная Больцмана; T – абсолютная температура).

Следствием индуцированных светом локальных изменений концентрации наночастиц N в коллоиде является формирование пространственно неоднородного возмущения его диэлектрической проницаемости (см. (2)), которое оказывает обратное влияние на световое поле. Еще один механизм, влияющий на световое поле в коллоиде связан с рассеянием Рэля на наночастицах [18–20]. Локальные потери энергии светового поля за счет такого рассеяния могут быть описаны с помощью коэффициента $\alpha_{sc} = N\sigma_{sc}$ (σ_{sc} – эффективное сечение рассеяния) [19], который в рассматриваемом случае может быть представлен в виде

$$\alpha_{sc} = \frac{2}{3} N \pi^5 n_b^4 \frac{d_p^6}{\lambda^4} \frac{(\epsilon'_p - n_b^2)^2 + \epsilon_p''^2}{(\epsilon'_p + 2n_b^2)^2 + \epsilon_p''^2}. \quad (6)$$

В общем случае нагрев коллоида за счет поглощения света наночастицами и дисперсионной средой приводит к тому, что температурная нелинейность среды влияет на световое поле [3, 10, 23]. Однако оценки, выполненные в работе [23] при исследовании оптической нелинейности гидрозоль с серебряными наночастицами, показывают что тепловой механизм не вносит заметного вклада в нелинейный отклик среды на воздействие световых импульсов с интенсивностью 8 ГВт/см² и длительностью 15 нс. Поэтому дальнейшее рассмотрение выполнено в пренебрежении тепловой составляющей нелинейного отклика.

Уравнение Гельмгольца для электрической напряженности светового поля E

$$\nabla^2 E + (k^2 \epsilon_c - i \alpha_{sc} n_b k) E = 0 \quad (7)$$

(k – волновое число) совместно с соотношениями (2)–(6) составляет задачу стационарного динамического рассеяния света в коллоидном растворе с наночастицами с учетом поглощения и рассеяния ими светового поля.

3. Смещение волн на динамической решетке

Рассмотрим вырожденное смещение в коллоиде полей

$$E_R = R \exp[i(\omega t - k_R r)], \quad E_S = S \exp[i(\omega t - k_S r)] \quad (8)$$

опорного и сигнального световых пучков соответственно для геометрии «на пропускание» (рис.1,а) и «на отражение» (рис.1,б). Следуя работам [6, 7], будем считать, что коллоид находится в резервуаре с размерами, значительно превышающими апертуру световых пучков. Тогда на больших расстояниях от оси пучка ток наночастиц отсутствует ($j(x, z \rightarrow \pm\infty) = 0$), а их концентрация равна исходной концентрации наночастиц в растворе N_0 в отсутствие засветки. Для этих условий из уравнений (3) и (5) можно найти функциональную связь между концентрацией N и вектором электрической напряженности светового поля E :

$$N = N_0 \exp\left(\frac{\alpha}{4k_B T} \mathbf{E} \mathbf{E}^*\right) \approx N_0 \left(1 + \frac{\alpha}{4k_B T} \mathbf{E} \mathbf{E}^*\right). \quad (9)$$

При интенсивности света ~ 1 ГВт/м² и показателе преломления коллоида, близкого к показателю преломле-

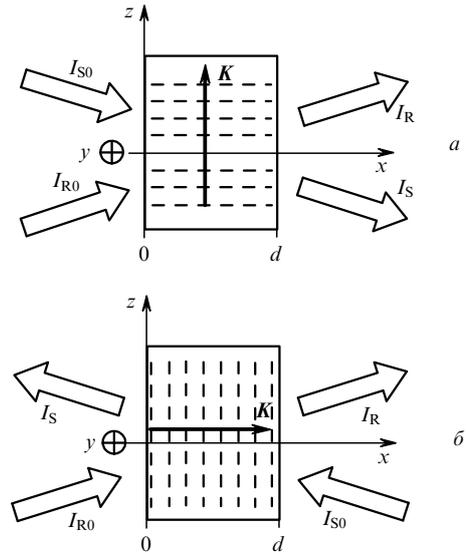


Рис.1. «Попутная» (а) и «встречная» (б) схемы смешения двух световых волн в нелинейной среде ($K = k_R - k_S$).

E_S в среде формируется пространственная решетка наночастиц с концентрацией

$$N \approx N_0 + \left[\frac{\alpha N_0 \mathbf{S} \mathbf{R}^*}{4k_B T} \exp(\mathbf{K} r) + \text{c. c.} \right], \quad (10)$$

где $K = k_R - k_S$. Эта решетка наводит пространственно неоднородные возмущения диэлектрической проницаемости коллоида и светорассеяния (см. (2), (6) и (7)), что приводит к изменениям амплитуд световых волн E_R and E_S вдоль длины взаимодействия, медленным по сравнению с их изменениями на длине волны. Используя метод медленно меняющихся амплитуд для решения уравнения Гельмгольца (7), можно получить в параксиальном приближении уравнения для связанных волн в виде

$$\frac{dS}{dx} = \mp i \frac{H}{2} (\mathbf{S} \mathbf{R}^*) \mathbf{R}, \quad \frac{dR}{dx} = -i \frac{H^*}{2} (\mathbf{S}^* \mathbf{R}) \mathbf{S}, \quad (11)$$

где в первом уравнении знак «–» отвечает попутному взаимодействию (рис.1,а), а знак «+» – встречному (рис.1,б). В уравнениях (11) введена постоянная связи

$$H = H'_f - H'_{sc} - i(H''_f + H''_{sc}) = H' - iH'', \quad (12)$$

в которой выделены вклады во взаимодействие градиентной силы света и светорассеяния соответственно:

$$H'_f = \frac{\pi^3 \epsilon_0 N_0 d_p^6}{16k_B T \lambda} \frac{[(n_b^2 - \epsilon'_p)(\epsilon'_p + 2n_b^2) - \epsilon_p''(\epsilon'_p + 3n_b^2)] [(n_b^2 - \epsilon'_p)(\epsilon'_p + 2n_b^2) - \epsilon_p''(\epsilon'_p - 3n_b^2)]}{[(\epsilon'_p + 2n_b^2)^2 + \epsilon_p''^2]^2} n_b^3, \quad (13)$$

ния воды $n_b = 1.33$, квадрат электрической напряженности светового поля $J = \mathbf{E} \mathbf{E}^*$ составляет $\sim 10^{11}$ В²/м². При концентрации наночастиц $\sim 10^{20}$ м⁻³ с диаметром ~ 100 нм показатель экспоненты в формуле (9) много меньше единицы, что позволяет ограничиться линейным членом при разложении экспоненты в ряд Тейлора.

Под действием суммарного светового поля $E = E_R +$

$$H'_{sc} = \frac{\pi^6 \epsilon_0 N_0 d_p^9}{8k_B T \lambda^4} \frac{(n_b^2 - \epsilon'_p)^2 + \epsilon_p''^2}{[(\epsilon'_p + 2n_b^2)^2 + \epsilon_p''^2]^2} n_b^8 \epsilon_p'', \quad (14)$$

$$H''_f = \frac{3\pi^3 \epsilon_0 N_0 d_p^6}{8k_B T \lambda} \frac{(\epsilon'_p - n_b^2)(\epsilon'_p + 2n_b^2) + \epsilon_p''^2}{[(\epsilon'_p + 2n_b^2)^2 + \epsilon_p''^2]^2} n_b^5 \epsilon_p'', \quad (15)$$

$$H''_{sc} = \frac{\pi^6 \epsilon_0 N_0 d_p^9}{24 k_B T \lambda^4} \times \frac{[(\epsilon'_p - n_b^2)^2 + \epsilon''_p{}^2][(\epsilon'_p - n_b^2)(\epsilon'_p + 2n_b^2) + \epsilon''_p{}^2]}{[(\epsilon'_p + 2n_b^2)^2 + \epsilon''_p{}^2]^2} n_b^6. \quad (16)$$

Уравнения для связанных волн (11) имеют очевидные первые интегралы

$$J_{0,\Delta} = |\mathbf{R}|^2 \pm |\mathbf{S}|^2 = J_R \pm J_S, \quad (17)$$

соответствующие фундаментальному закону сохранения энергии при ее перераспределении между световыми волнами, взаимодействующими на динамической голографической решетке. В формуле (17) знаки «+» и «-» перед J_S отвечают случаям попутного (J_0) и встречного (J_Δ) взаимодействий соответственно.

Следует отметить, что и вещественная компонента H' постоянной связи, отвечающая за изменение фаз световых волн, и ее мнимая компонента H'' , отвечающая за энергообмен между волнами [24–27], определяются вкладами обоих физических механизмов (градиентного и светорассеяния), обуславливающих двухволновое взаимодействие в коллоидах с наночастицами (см. (12)–(16)). При этом проводимость наночастиц ($\epsilon''_p = \sigma_p / (\omega \epsilon_0)$) на частоте световой волны оказывает влияние на все четыре компоненты постоянной связи. Для коллоидов с непроводящими наночастицами ($\epsilon''_p = 0$) вклад в вещественную компоненту постоянной H дает только градиентная сила света, а вклад в ее мнимую компоненту – только светорассеяние.

4. Энергообмен при попутном двухволновом взаимодействии

Рассмотрим особенности энергообмена при попутном двухволновом взаимодействии в коллоиде с наночастицами при линейной поляризации световых волн, ортогональной плоскости их распространения, т. е. направленной вдоль оси y (см. рис.1,а). Подобная геометрия взаимодействия в различных нелинейных средах, отличных от коллоидов с наночастицами, рассматривалась в работах [24–28]. Из уравнений (11) следует, что коллоиды с наночастицами относятся к типу сред с пространственно неоднородным возмущением диэлектрической проницаемости $\Delta\epsilon$, пропорциональным амплитуде световой решетки ($\Delta\epsilon \propto SR^*$) [25]. Взаимодействие в средах с $\Delta\epsilon$, пропорциональным коэффициенту модуляции световой решетки ($\Delta\epsilon \propto 2SR^*/J_0$), рассматривалось в работах [26, 27]. Вследствие инвариантности величины J_0 при попутном взаимодействии (см. (11) и (17)) уравнения для связанных волн (11), записанные для рассматриваемой геометрии, имеют решения, совпадающие по своей структуре с решениями, полученными в работах [25–28]. В этих работах показано, что эффективность энергообмена между волнами удобно описывать с помощью коэффициента двухволнового усиления

$$\Gamma = \frac{1}{d} \ln \frac{J_{Sd} J_{R0}}{J_{S0} J_{Rd}},$$

где $J_{R0} = |\mathbf{R}_0|^2$; $J_{S0} = |\mathbf{S}_0|^2$; $J_{Rd} = |\mathbf{R}_d|^2$; $J_{Sd} = |\mathbf{S}_d|^2$; $\mathbf{S}_0, \mathbf{R}_0$ – амплитуды электрической напряженности световых волн на границе $x = 0$; $\mathbf{S}_d, \mathbf{R}_d$ – амплитуды волн на границе

$x = d$. В рассматриваемом случае двухволнового взаимодействия в коллоидах

$$\Gamma = H'' J_0 = H''_f J_0 + H''_{sc} J_0 = \Gamma_f + \Gamma_{sc}, \quad (18)$$

где Γ_f и Γ_{sc} описывают вклады в общий энергообмен градиентной силы света и светорассеяния.

Из формул (15) и (16) следует, что для заданных параметров коллоида n_b, ϵ'_p and ϵ''_p направление перекачки энергии от одной световой волны к другой, определяемое знаком коэффициента Γ , не зависит от соотношения между интенсивностями пучков. Энергообмен является однонаправленным, так же как и при скалярном двухволновом взаимодействии в фоторефрактивных кристаллах [26–28]. Соотношение между вкладами градиентной силы света и светорассеяния в общий энергообмен между волнами сильно зависит от диаметра наночастиц. При диаметре наночастиц d_{fs} , удовлетворяющем соотношению

$$d_{fs} = \frac{\lambda}{\pi} \left\{ \frac{9\epsilon''_p}{n_b[(n_b^2 - \epsilon'_p)^2 + \epsilon''_p{}^2]} \right\}^{1/3}, \quad (19)$$

эти вклады равны. При условии $d_p < d_{fs}$ доминирует вклад градиентной силы, а при $d_p > d_{fs}$ – вклад светорассеяния.

Следует отметить, что при заданной комплексной диэлектрической проницаемости материала наночастиц (ϵ'_p и ϵ''_p) существует возможность подбора дисперсионной среды с показателем преломления n_{b0} , в которой отсутствует энергообмен при двухволновом взаимодействии ($\Gamma = 0$). Для наночастиц из другого материала с показателем преломления n_b коэффициент Γ будет положительным (отрицательным), если $n_b > n_{b0}^2$ ($n_b < n_{b0}^2$). Сказанное иллюстрируется зависимостями коэффициента двухволнового усиления Γ и его составляющих Γ_f и Γ_{sc} от показателя преломления n_b на длине волны $\lambda = 640$ нм, рассчитанными для коллоидов с наночастицами магнетита (Fe_3O_4) и представленными на рис.2. При расчетах использовались следующие параметры: $J_0 = 10^{11}$ В²/м², $\beta = J_{R0}/J_{S0} = 1000$, $N_0 = 0.45 \times 10^{20}$ м⁻³, $d_p = 70$ нм ($f \approx 8.1 \times 10^{-3}$), вещественная часть диэлектрической проницаемости Fe_3O_4 $\epsilon'_p = 2.42^2$, взятая из справочного ресурса

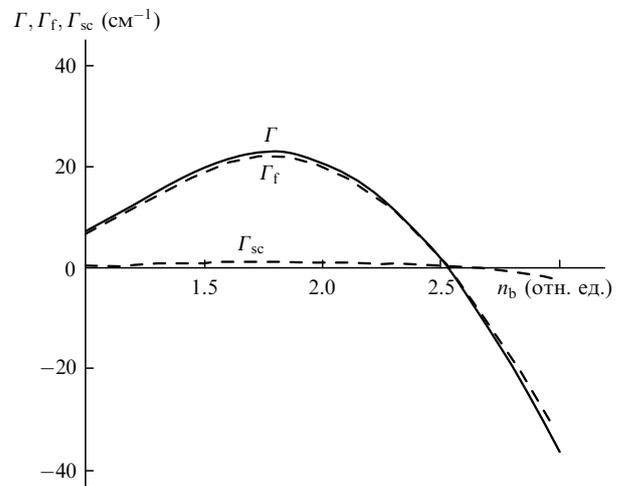


Рис.2. Зависимости коэффициента двухволнового усиления Γ и его составляющих Γ_f и Γ_{sc} от показателя преломления n_b , рассчитанные для коллоидов с наночастицами Fe_3O_4 .

са [29], и ее мнимая часть $\varepsilon_p'' = 3.083$, найденная из данных о спектре отражательной способности света, взятых из этого же ресурса.

Для коллоидов на основе воды ($n_b = 1.33$) и наночастиц Fe_3O_4 диаметр наночастиц d_{fs} , при котором вклады градиентной силы света и светорассеяния в коэффициент двухволнового усиления равны (см. (19)), составляет 189 нм. Поэтому при условиях двухволнового взаимодействия в коллоиде с наночастицами Fe_3O_4 , отвечающих рис.2, вклад светорассеяния в общий энергообмен между волнами мал по сравнению с градиентным вкладом ($\Gamma_{sc} \ll \Gamma_f$). В области положительных значений $\Gamma(n_b)$ существует локальный максимум. С ростом показателя преломления n_b вклад светорассеяния в коэффициент двухволнового усиления растет быстрее вклада градиентной силы света (ср. (15) и (16)). При $n_b \sim 4$ эти вклады оказываются сравнимыми. При дальнейшем росте показателя преломления n_b вклад светорассеяния в энергообмен становится доминирующим.

5. Энергообмен при встречном взаимодействии

Рассмотрим встречное двухволновое взаимодействие в коллоиде с наночастицами при линейной поляризации световых волн, ортогональной плоскости их распространения, т. е. направленной вдоль оси y (см. рис.1,б). В отличие от попутного двухволнового взаимодействия, при котором сохраняется суммарная величина J_0 , при встречном взаимодействии сохраняется разность J_Δ (см. (11) и (17)). Поэтому рассмотренные в работе [28] уравнения для связанных волн в случае встречного двухволнового взаимодействия в средах с пространственно неоднородными возмущениями $\Delta\varepsilon \propto 2SR^*/J_0$ имеют решения, отличные от решений уравнений для связанных волн, описывающих взаимодействие в средах с возмущениями $\Delta\varepsilon \propto SR^*$. Отметим, что в работе [30] указывалось на неинвариантность суммарной интенсивности ($J_0 \neq const$) при встречном взаимодействии, не позволяющую получить решение векторных уравнений для связанных волн в замкнутой форме.

Решение уравнений (11) для рассматриваемого случая встречного взаимодействия может быть получено аналогично решению уравнений для связанных волн в случае попутного взаимодействия, найденному в [25–28]. Следуя этим работам, из уравнений (11) можно получить нелинейные уравнения относительно величин $J_R = |R|^2$ и $J_S = |S|^2$. Интегрирование этих уравнений с помощью инварианта J_Δ (см. (17)) позволяет получить следующие соотношения:

$$J_S(x) = \frac{J_\Delta}{(J_\Delta J_{Sd}^{-1} + 1) \exp[H'' J_\Delta (x - d)] - 1}, \quad (20)$$

$$J_R(x) = \frac{J_\Delta}{(J_\Delta J_{R0}^{-1} - 1) \exp(-H'' J_\Delta x) + 1}.$$

Инвариант J_Δ может быть определен при численном решении уравнения

$$\frac{J_{R0} - J_\Delta J_{Sd} + J_\Delta}{J_{R0} J_{Sd}} = \exp(H'' J_\Delta d), \quad (21)$$

которое получается при наложении граничных условий $J_R(0) = J_{R0}$ и $J_S(d) = J_{Sd}$ на соотношения (20).

Уравнение (21) позволяет ввести для встречного взаимодействия коэффициент

$$\Gamma_1 = \frac{1}{d} \ln \frac{J_{Rd} J_{S0}}{J_{R0} J_{Sd}} = H'' J_\Delta, \quad (22)$$

аналогичный коэффициенту двухволнового усиления для попутного взаимодействия, введенному в работах [25–28] (см. (18)).

Введенный с помощью соотношения (22) коэффициент Γ_1 для встречного взаимодействия отличается от коэффициента двухволнового усиления

$$\Gamma_2 = \frac{1}{d} \ln \left(\frac{J_{S0} J_{R0}}{J_{Sd} J_{Rd}} \right),$$

введенного в работе [28] для этого типа взаимодействия в фоторефрактивных кристаллах. Эти кристаллы относятся к средам с неоднородным возмущением диэлектрической проницаемости $\Delta\varepsilon \propto 2SR^*/J_0$. Для таких сред коэффициент Γ_2 пропорционален коэффициенту связи из уравнений для связанных волн. Для сред с $\Delta\varepsilon \propto SR^*/J_0$, к которым относятся рассматриваемые коллоиды, коэффициент Γ_2 имеет более сложную функциональную зависимость от H'' , чем коэффициент, определяемый выражением (22).

Отметим, что при попутном взаимодействии коэффициент Γ не зависит от длины взаимодействия d (см. (18)). При встречном взаимодействии коэффициент Γ_1 является функцией d вследствие зависимости инварианта J_Δ от толщины голограммы (см. (21) и (22)). При малой длине взаимодействия ($d \rightarrow 0$) интенсивности световых волн практически не меняются и коэффициент Γ_1 максимален и приблизительно равен $H''(J_{R0} - J_{Sd})$. При этом в случае $\beta = J_{R0}/J_{Sd} \gg 1$ реализуется режим экспоненциального усиления слабой световой волны на длине взаимодействия: $J_{S0} \approx J_{Sd} \exp(H'' J_{R0} d)$. Если длина взаимодействия велика, то реализуется инверсия величин: $J_{R0} \approx J_{S0}$ и $J_{Rd} \approx J_{Sd}$. Тогда $J_\Delta \approx 0$ ($\Gamma_1 \approx 0$), что соответствует насыщению с ростом d энергообмена между волнами. На рис.3 представлены зависимости коэффициента двухволнового усиления Γ_1 и величин J_{S0} , J_{Rd} от толщины d на $\lambda = 640$ нм, рассчитанные для коллоидов с наночастицами Fe_3O_4 и иллюстрирующие рассмотренные выше особен-

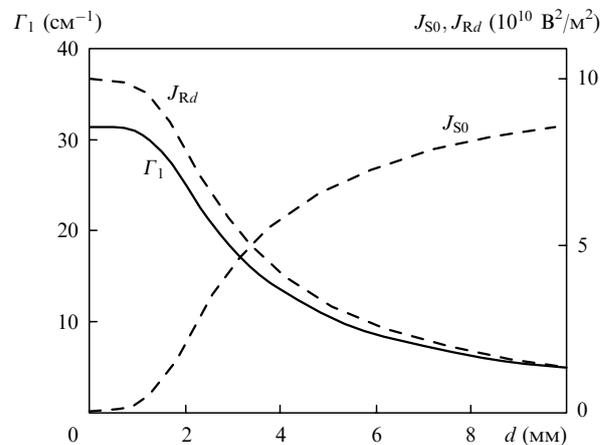


Рис.3. Зависимости коэффициента двухволнового усиления Γ_1 и величин J_{S0} и J_{Rd} от толщины голограммы d , сформированной в коллоидах на основе воды ($n_b = 1.33$) и наночастиц Fe_3O_4 .

ности энергообмена при встречном взаимодействии. При расчетах использовались концентрация наночастиц $N_0 = 10^{20} \text{ м}^{-3}$ и показатель преломления дисперсионной среды, равный показателю преломления воды $n_b = 1.33$. Остальные параметры были такими же, как и при расчете кривых на рис.2.

6. Амплитуда динамической решетки при различных типах взаимодействия

Взаимодействие двух световых волн в коллоидах с проводящими наночастицами приводит к формированию динамической решетки диэлектрической проницаемости $\Delta\epsilon = (\Delta\epsilon_1/2) \exp(i\mathbf{K}\mathbf{r}) + \text{компл. сопр.}$. В случае попутного взаимодействия, рассмотренного в разд.4, и в пренебрежении малым вкладом светорассеяния во взаимодействие амплитуда решетки $\Delta\epsilon_{1t}$, сформированной в коллоиде с наночастицами, может быть представлена в виде

$$\Delta\epsilon_{1t} = \frac{GJ_0 \exp\{i[\phi_{S0} - \phi_{R0} - \phi_\delta - (H'_f J_0 x/2)]\}}{[\beta^{-1} \exp(H''_f J_0 x) + \beta \exp(-H''_f J_0 x) + 2]^{1/2}}, \quad (23)$$

где ϕ_{S0} и ϕ_{R0} – начальные фазы сигнальной и опорной волн на границе $x = 0$ соответственно и введены обозначения

$$G = \frac{\epsilon_0 \pi^2 d^6 n_b^4 N_0 (\epsilon'_p{}^2 - n_b^2)^2 + \epsilon''_p{}^2}{16k_B T (\epsilon'_p{}^2 + 2n_b^2)^2 + \epsilon''_p{}^2}, \quad (24)$$

$$\phi_\delta = 2 \arctan \left[\frac{3n_b^2 \epsilon''_p}{(\epsilon'_p + 2n_b^2)(\epsilon'_p - n_b^2) + \epsilon''_p^2} \right]. \quad (25)$$

Амплитуда решетки $\Delta\epsilon_{1r}$, сформированной в коллоиде с наночастицами, для случая встречного взаимодействия, рассмотренного в разд.5, в пренебрежении светорассеянием может быть получена в виде

$$\Delta\epsilon_{1r} = \frac{GJ_\Delta \exp\{i[\phi_{Sd} - \phi_{R0} - \phi_\delta + \Delta\phi(x)]\}}{\{[1 + (J_\Delta/J_{Sd})] \exp[H''_f J_\Delta(x - d)] + [1 - (J_\Delta/J_{R0})] \exp(-H''_f J_\Delta x) - 2\}^{1/2}}, \quad (26)$$

где набег фазы за счет взаимодействия

$$\Delta\phi(x) = \frac{H'_f}{2H''_f} \times \ln \left\{ \frac{\exp[H''_f J_\Delta(x - d)](J_\Delta + J_{Sd}) - J_{Sd}}{\exp(-H''_f J_\Delta x)(J_\Delta - J_{R0}) + J_{R0}} \right\} + \frac{H'_f J_\Delta d}{2}. \quad (27)$$

Для попутного взаимодействия характерным является линейный по продольной координате x набег фазы ϕ решетки $\Delta\epsilon$ (см. (23)), пропорциональный действительной части постоянной связи H'_f (см. (13)). Для встречного взаимодействия зависимость фазы ϕ решетки от x является нелинейной (см. (26) и (27)) и определяется как действительной (H'_f), так и мнимой (H''_f) (см. (15)) частями постоянной связи. На рис.4,а показаны рассчитанные зависимости фазы решеток ϕ от x , сформированных в

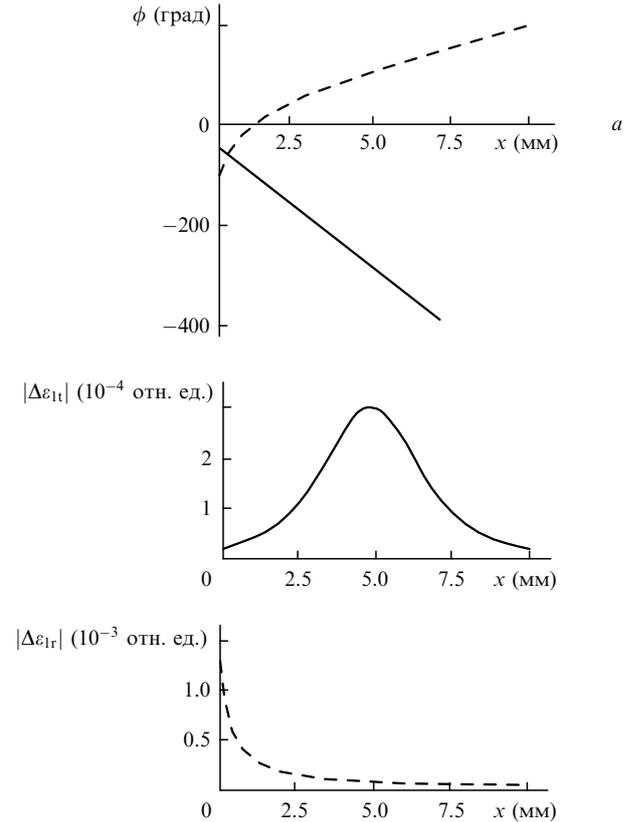


Рис.4. Зависимости фазы ϕ (а) и амплитуд $|\Delta\epsilon_{1t}|$ (б) и $|\Delta\epsilon_{1r}|$ (в) решеток диэлектрической проницаемости толщиной $d = 10$ мм, сформированных в коллоиде на основе воды и наночастиц Fe_3O_4 при попутном (сплошные кривые) и встречном (штриховые кривые) двухволновых взаимодействиях.

коллоидах с наночастицами магнетита Fe_3O_4 на длине волны 640 нм при попутном и встречном взаимодействиях. При расчетах использовались концентрации наночастиц $N_0 = 0.45 \times 10^{20} \text{ м}^{-3}$ (для попутного взаимодействия) и 10^{20} м^{-3} (для встречного). В обоих случаях показатель преломления дисперсионной среды $n_b = 1.33$,

толщина голограмм $d = 10$ мм и фазы световых волн $\phi_{Sd} = \phi_{S0} = \phi_{R0} = 0$. Остальные параметры были такими же, как и при расчете кривых на рис.2 и 3. Отметим, что при попутном взаимодействии линейный набег фазы решетки приводит к наклону ее изолиний относительно продольной оси x , что соответствует поперечному (вдоль оси z) смещению решетки $\Delta\epsilon$ относительно исходной интерференционной световой картины с периодом Λ на величину $\Delta z(x) = \Lambda[(H'_f J_0 x/2) + \phi_\delta]/(2\pi)$. При встречном взаимодействии нелинейный набег фазы решетки приводит к непрерывному смещению голограммы вдоль оси x относительно исходной интерференционной картины.

Пространственные зависимости амплитуд решеток диэлектрической проницаемости $\Delta\epsilon_{1t,1r}$ в коллоидах с наночастицами Fe_3O_4 , отвечающие зависимостям $\phi(x)$ на рис.4,а, представлены на рис.4,б и в для попутного и встречного взаимодействий соответственно. При попутном взаимодействии максимум $|\Delta\epsilon_{1t}(x)|$ достигается в

точке x_{\max} , в которой величины J_S и J_R равны, а абсолютные значения их градиентов dJ_S/dx и dJ_R/dx максимальны [25]. При встречном взаимодействии максимум $|\Delta\epsilon_{1r}(x)|$ достигается на границе голограммы $x = 0$, на которой J_S и J_R максимальны.

Из рис.2 и формулы (18) следует, что в случае двухволнового взаимодействия в коллоиде на основе дисперсионной среды с показателем преломления $n_{b0} = 2.52$ и наночастиц Fe_3O_4 мнимая часть постоянной связи $H'' \approx H_f'' = 0$. Поэтому энергообмен между световыми волнами отсутствует и динамические решетки, сформированные в коллоиде, имеют не зависящие от координаты x абсолютные значения амплитуд $|\Delta\epsilon_{1t, 1r}| = \text{const}$ (см. (23) и (26)). При встречном взаимодействии в случае выполнения условия $H'' \approx H_f'' = 0$ набег фазы по x является линейным в отличие от случая $H_f'' \neq 0$ (см. (27)).

7. Заключение

Таким образом, смещение двух монохроматических световых волн в коллоидном растворе с наночастицами приводит к формированию динамической решетки диэлектрической проницаемости среды и взаимодействию волн на ней. Причиной возникновения оптической нелинейности, обуславливающей такое взаимодействие, является механическое действие градиентной силы света на наночастицы, формирующее пространственно неоднородное распределение наночастиц в коллоиде, что, в свою очередь, приводит к неоднородным возмущениям диэлектрической проницаемости среды и неоднородному светорассеянию, оказывающим обратное влияние на световое поле.

В общем случае решетка диэлектрической проницаемости, сформированная при двухволновом взаимодействии в коллоиде со сферическими наночастицами, содержит локальную и нелокальную компоненты. Формирование нелокальной компоненты обусловлено поглощением и рассеянием света наночастицами. Взаимодействие двух световых волн на нелокальной компоненте динамической решетки в коллоиде с наночастицами магнетита Fe_3O_4 приводит к эффективному энергообмену между ними. При диаметре наночастиц, не превышающем 10 нм, основной вклад в такое взаимодействие дает градиентный механизм оптической нелинейности.

Направление перекачки энергии от одной волны к другой не зависит от отношения интенсивностей световых волн и при заданной диэлектрической проницаемости наночастиц определяется показателем преломления дисперсионной среды n_b . Существует возможность подбора дисперсионной среды с показателем преломления n_{b0} , при котором энергообмен между световыми волнами отсутствует. Такой показатель преломления близок к показателю преломления наночастиц. Направление пе-

рекачки энергии при двухволновом взаимодействии в коллоиде с дисперсионной средой с $n_b > n_{b0}$ противоположно направлению энергообмена при взаимодействии в коллоиде с дисперсионной средой с $n_b < n_{b0}$.

В случае двухволнового взаимодействия в коллоиде с непроводящими частицами нелокальная компонента динамической решетки пренебрежимо мала, энергообмен между волнами отсутствует, а взаимодействие на локальной компоненте приводит только к изменению фаз световых волн.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 08-02-99025-р_офи).

1. Михеева О.П., Сидоров А.И. *ЖТФ*, **74**, 77 (2004).
2. Караванский В.А., Симакин А.В., Красовский В.И., Иванченко П.В. *Квантовая электроника*, **34**, 644 (2004).
3. Кульчин Ю.Н., Щербаков А.В., Дзюба В.П., Вознесенский С.С., Микаелян Г.Т. *Квантовая электроника*, **38**, 154 (2008).
4. Falcão-Filho E.L., de Araújo Cid B., Rodrigues J.J. Jr. *J. Opt. Soc. Am. B*, **24**, 2948 (2007).
5. López-Mariscal C., Gutiérrez-Vega J., McGloin D., Dholakia K. *Opt. Express*, **15**, 6330 (2007).
6. Matuszewski M., Krolikowski W., Kivshar Y.S. *Opt. Express*, **16**, 1371 (2008).
7. El-Gaiaui R., Christodoulides D.N., Rotschild C., Segev M. *Opt. Express*, **15**, 10207 (2007).
8. Пилипецкий Н.Ф., Рустамов А.Р. *Письма в ЖЭТФ*, **2**, 88 (1965).
9. Захаров В.Е., Шабат А.Б. *ЖЭТФ*, **61**, 119 (1971).
10. Шен И.Р. *Принципы нелинейной оптики* (М.: Наука, 1989).
11. Ashkin A. *Phys. Rev. Lett.*, **24**, 156 (1970).
12. Ashkin A., Dziedzic J.M. *Appl. Phys. Lett.*, **19**, 283 (1971).
13. Gordon J.P. *Phys. Rev. A*, **8**, 14 (1973).
14. Burns M.M., Fournier J.-M., Golovchenko J.A. *Phys. Rev. Lett.*, **63**, 1233 (1989).
15. Тамм И.Е. *Основы теории электричества* (М.: Наука, 1989).
16. Garnett J.M.C. *Philos. Trans. R. Soc. London*, **203**, 385 (1904).
17. Garnett J.M.C. *Philos. Trans. R. Soc. London*, **205**, 237 (1906).
18. Mishchenko M.I., Travis L.D., Lacis A.A. *Scattering, Absorption and Emission of Light by Small Particles* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2004).
19. Борен К., Хафмен Д. *Поглощение и рассеяние света малыми частицами* (М.: Мир, 1986).
20. Ван де Хюлст Г. *Рассеяние света малыми частицами* (М.: ИЛ, 1961).
21. Лойцянский Л.Г. *Механика жидкости и газа* (М.: Наука, 1987).
22. Лайтфут Э. *Явления переноса в живых системах* (М.: Мир, 1977).
23. Карпов С.В., Кодиров М.К., Ряснянский А.И., Слабко В.В. *Квантовая электроника*, **31**, 904 (2001).
24. Чабан А.А. *ЖЭТФ*, **57**, 1388 (1969).
25. Стаселько Д.И., Сидорович В.Г. *ЖТФ*, **44**, 580 (1974).
26. Винецкий В.Л., Кухтарев Н.В., Марков В.Б., Одулов С.Г., Соскин М.С. *Изв. АН СССР. Сер. физич.*, **41**, 812 (1977).
27. Винецкий В.Л., Кухтарев Н.В., Одулов С.Г., Соскин М.С. *УФН*, **129**, 113 (1979).
28. Винецкий В.Л., Кухтарев Н.В. *Квантовая электроника*, **5**, 405 (1978).
29. <http://www.webmineral.com/data/Magnetite.shtml>.
30. Yeh P. *J. Opt. Soc. Am. B*, **4**, 1382 (1987).

E. Yu. Ageyev, R.V. Litvinov, N.D. Hatkov, L. V. Zagrebin, S. S. Shestov. \ \ Degenerate interaction of two light waves by dynamic grating in colloids with nanoparticles of Fe_3O_4 \ \ The spatial not uniform perturbations of permittivity of the colloid due to the action of the electrostriction force of light on the spherical nanoparticles, which are disperse phase, is considered within the Maxwell-Garnett approach. It is shown the frequency degenerate mixing of two light waves in such medium leads to the formation of the nanoparticles spatial grating and related dynamic grating of the permittivity colloid. The relations for the complex coupling constant between the light waves interacting on this grating is derived. The analysis of the passing and counter two-wave interaction in the colloid with nanoparticles absorbing light is completed. It is shown the two-wave coupling gain at the interaction on the light wavelength 640 nm in the colloids on the base of various dispersion mediums and nanoparticles of the magnetite Fe_3O_4 has the order of 10 cm^{-1} . \ \ keywords: optical nonlinearity , colloids, nanoparticles