

Концентрационная нелинейность суспензии прозрачных микросфер под действием градиентной силы в поле периодически модулированного лазерного излучения

А.А.Афанасьев, Л.С.Гайда, Ю.А.Курочкин, Д.В.Новицкий, А.Ч.Свистун

На основе одномерного уравнения Смолуховского развита теория концентрационной нелинейности суспензии прозрачных микросфер под действием градиентной силы в интерференционном поле лазерного излучения. Из численного решения системы рекуррентных уравнений, следующей из уравнения Смолуховского при разложении концентрации $N(z, t)$ микросфер в гармонический ряд, определена зависимость времени формирования концентрационной нелинейности от интенсивности действующего излучения. В диффузионном пределе получено выражение для оптического коэффициента Керра, который для водной суспензии латексных микросфер радиусом 1.17 мкм с концентрацией $6.5 \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$ оказался равным $8.5 \times 10^{-10} \text{ см}^2/\text{Вт}$. Рассмотрена дифракция пробной волны на светоиндуцированной концентрационной решетке – как метод исследования нелинейного концентрационного отклика искусственно созданной высокоэффективной нелинейной среды для лазерного излучения большой длительности.

Ключевые слова: уравнение Смолуховского, прозрачная микросфера, концентрационная нелинейность, диффузионный предел, оптический коэффициент Керра, дифракция.

1. Введение

В настоящей работе на основе уравнения Смолуховского [1, 2] развита теория концентрационной нелинейности суспензии прозрачных микросфер под действием градиентной силы в интерференционном поле лазерного излучения. Несмотря на то что каждый из компонентов суспензии (микросферы и жидкость) не проявляет нелинейности, такая искусственно созданная гетерогенная среда является высокоэффективным широкополосным нелинейным материалом для непрерывного лазерного излучения [3, 4]. При экспериментальном исследовании четырехволнового смешения (ЧВС) излучения аргонового лазера ($\lambda = 5145 \text{ \AA}$) в суспензии латексных микросфер радиусом $R = 1.17 \text{ мкм}$ с концентрацией $N_0 = 6.5 \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$ измеренный оптический коэффициент Керра n_2 оказался равным $3.6 \times 10^{-9} \text{ см}^2/\text{Вт}$ [3], что в 10^5 раз больше, чем в сероуглероде. При этом времена формирования (t_f) и распада (t_d) ответственных за ЧВС концентрационных решеток составили: $t_f = 320 \text{ мс}$ (при мощности накачки $\sim 100 \text{ мВт}$) и $t_d = 200 \text{ мс}$. Большое время установления нелинейности соответствует общей закономерности для нелинейных сред – линейному возрастанию времени установления с увеличением n_2 (см., напр., [5]). Исследования ЧВС и вынужденного концентрационного рассеяния в суспензии прозрачных микросфер были проведены в работах [2, 4] и [6, 7] соответственно.

А.А.Афанасьев, Ю.А.Курочкин, Д.В.Новицкий. Институт физики им. Б.И.Степанова НАНБ, Белоруссия, 220072 Минск, просп. Независимости, 68; e-mail: dvnovitsky@gmail.com
Л.С.Гайда, А.Ч.Свистун. Гродненский государственный университет им. Янки Купалы, Белоруссия, 230023 Гродно, ул. Ожешко 22; e-mail: gls@grsu.by, laser777@gmail.com

Поступила в редакцию 10 августа 2016 г., после доработки – 17 сентября 2016 г.

2. Основные соотношения

2.1. Постановка задачи

Будем рассматривать концентрационную нелинейность суспензии прозрачных микросфер под действием градиентной силы F_V в поле двух когерентных волн равной амплитуды, сходящихся под углом 2Θ на границе кюветы с суспензией (рис.1). При этом интенсивность излучения в кювете

$$I(z, t) = I_0(t) \left[1 + \cos\left(2\pi \frac{z}{\Lambda}\right) \right], \quad (1)$$

где $\Lambda = \pi/(k \sin \Theta)$ – период модуляции; k – волновое число. Импульс излучения с интенсивностью $I_0(t)$ представляет собой прямоугольник и имеет длительность τ_p :

$$I_0(t) = I_0 [Y(t) - Y(t - \tau_p)], \quad (2)$$

где $Y(t)$ – единичная функция Хэвисайда; $I_0 = \text{const}$; $t \geq 0$.

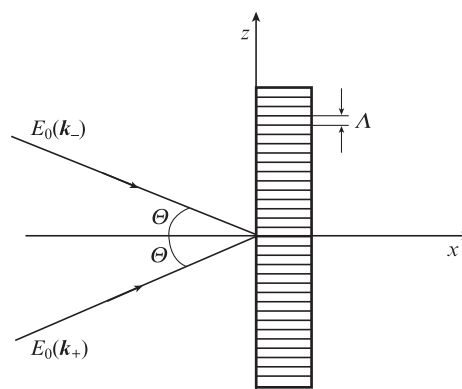


Рис.1. Схема возбуждения концентрационной решетки.

Для описания эволюции концентрации $N(z, t)$ микро-сфер воспользуемся одномерным уравнением Смолуховского [8]

$$\frac{\partial N}{\partial t} = D_0 \left[\frac{\partial^2 N}{\partial z^2} - \frac{1}{k_B T} \left(N \frac{\partial F_V}{\partial z} + F_V \frac{\partial N}{\partial z} \right) \right], \quad (3)$$

где $D_0 = k_B T / (6\pi\eta R)$ – коэффициент диффузии микросфер в жидкости с вязкостью η при температуре T ; k_B – постоянная Больцмана. В приближении Рэлея–Ганса [9] с учетом неоднородности излучения (1) в объеме микросферы $V = 4\pi R^3/3$ градиентная сила в (3) определяется выражением [4, 10]

$$F_V = 2\pi \frac{n}{c} \alpha I(t) \frac{1}{V} \int_V \nabla \cos(2\pi \frac{z}{\Lambda}) dV, \quad (4)$$

где

$$\alpha = R^3 \frac{\bar{m}^2 - 1}{\bar{m}^2 + 2} \quad (5)$$

– поляризуемость микросферы; $\bar{m} = n_0/n$ – отношение показателей преломления материала микросферы (n_0) и жидкости (n) на длине волны λ излучения (в дальнейшем для определенности полагаем $\alpha > 0$).

2.2. Исследование особенностей градиентной силы

Выполнив интегрирование в (4), найдем

$$F_V = -4\pi^2 \frac{n}{c} \frac{\alpha}{\Lambda} I(t) U(\Omega) \sin(2\pi \frac{z}{\Lambda}) \equiv -F_0 \sin(2\pi \frac{z}{\Lambda}), \quad (6)$$

где

$$U(\Omega) = 3\sqrt{\frac{\pi}{2}} \Omega^{-3/2} J_{3/2}(\Omega) \quad (7)$$

– функция, учитывающая неоднородность излучения в объеме микросферы; $J_{3/2}(\Omega)$ – функция Бесселя; $\Omega = 2\pi R/\Lambda(\Theta)$.

На рис.2 приведены угловые зависимости функции $U(\Theta)$ при различных радиусах микросферы R . Видно, что учет неоднородности интенсивности излучения в объеме микросферы с увеличением отношения $R/\Lambda(\Theta)$ приводит к уменьшению амплитуды градиентной силы F_0 ($\Theta = \pi/2$ соответствует встречному распространению волн, т.е. минимальному периоду модуляции $\Lambda = \pi/k$). Поскольку

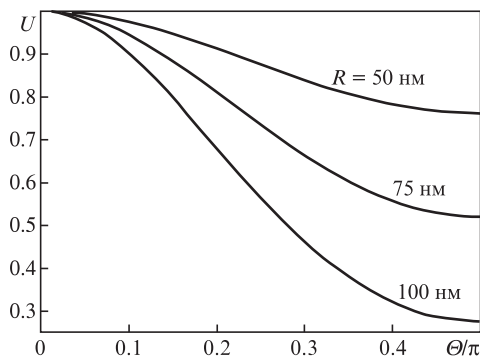


Рис.2. Угловые зависимости функции $U(\Theta)$ при различных значениях R .

функция $U(\Omega) \sim J_{3/2}(\Omega)$ является знакопеременной, то при определенных значениях Ω зависимость $F_0(\Omega)$ меняет знак, и соответственно микросферы с $\alpha > 0$ могут локализовываться в узлах интерференционной картины поля. При $\Omega = \Omega_i$ (где Ω_i – корни функции Бесселя, $i = 1, 2, 3 \dots$) независимо от положения микросферы действующая на нее градиентная сила $F_0(\Omega) = 0$. Так называемый эффект нулевой силы [4, 6] обусловлен одинаковым воздействием ее составляющих на соответствующие элементы объема микросферы в области перекрытия ею двух соседних максимумов (пучностей) интерференционной картины поля. В частности, для первого корня функции Бесселя $J_{3/2}(\Omega_1 = 4.493)$ эффект нулевой силы достигается при $R/\Lambda(\Theta) = 0.3576$. В области $\Omega_1 < \Omega < \Omega_2$ амплитуда $F_0 < 0$ и, следовательно, микросфера будет вести себя подобно частице с $\alpha < 0$. Оценки показывают, что условие проявления эффекта нулевой силы в используемом здесь приближении Рэлея–Ганса может быть реализовано при $|\bar{m} - 1| \ll 1$ [4].

Используя известное [11] соотношение

$$J_{3/2}(\Omega) = \sqrt{\frac{2}{\pi\Omega}} \left(\frac{\sin \Omega}{\Omega} - \cos \Omega \right), \quad (8)$$

можно показать, что при $\Omega \ll 1$ с учетом первой не исчезающей поправки

$$U(\Omega) \approx 1 - \frac{\Omega^2}{10}. \quad (9)$$

Очевидно, что влиянием неоднородности излучения в объеме микросферы можно пренебречь только при $R/\Lambda \ll 1$.

2.3. Анализ уравнения Смолуховского

Введя переменную $\xi = 2\pi z/\Lambda$, уравнение (3) для функции $\bar{N}(\xi, t) = N(\xi, t)/N_0$ можно записать в виде

$$\frac{\partial \bar{N}}{\partial t} = \left(\frac{2\pi}{\Lambda} \right)^2 D_0 \frac{\partial^2 \bar{N}}{\partial \xi^2} + \frac{F_0}{3\Lambda R \eta} \left(\bar{N} \cos \xi + \frac{\partial \bar{N}}{\partial \xi} \sin \xi \right). \quad (10)$$

Будем искать решение уравнения (10) в виде разложения

$$\bar{N}(\xi, t) = \sum_{\kappa=-\infty}^{\infty} \bar{N}_{\kappa}(t) \exp(i\kappa\xi), \quad (11)$$

в котором выполняется условие эрмитовости $\bar{N}_{\kappa} = \bar{N}_{-\kappa}^*$. С помощью (11) уравнение (10) сводится к бесконечной системе обыкновенных рекуррентных уравнений вида

$$\frac{d\bar{N}_{\kappa}}{dt} = -\frac{\bar{N}_{\kappa}}{t_{\kappa}} + \kappa \frac{F_0}{6\Lambda R \eta} (\bar{N}_{\kappa-1} - \bar{N}_{\kappa+1}) \quad (12)$$

с начальными условиями $\bar{N}_0(t=0) = 1$ и $\bar{N}_{\kappa \neq 0}(t=0) = 0$, где $t_{\kappa} = 3\Lambda^2 R \eta / (2\pi\kappa^2 k_B T)$ – время диффузионного распада κ -й гармоники. Очевидно, что в (12) нечетные гармоники связаны с четными, а четные – с нечетными. При этом вследствие действительности их амплитуд $\bar{N}_{\kappa}(t)$ достаточно ограничиться рассмотрением неотрицательных значений κ ($\kappa = 1, 2, 3 \dots$).

С учетом (11) решение уравнения (3) определяется соотношением

$$N(z, t) = N_0 \left[1 + 2 \sum_{\kappa=1}^{\infty} \bar{N}_{\kappa}(t) \cos\left(2\pi\kappa \frac{z}{\Lambda}\right) \right]. \quad (13)$$

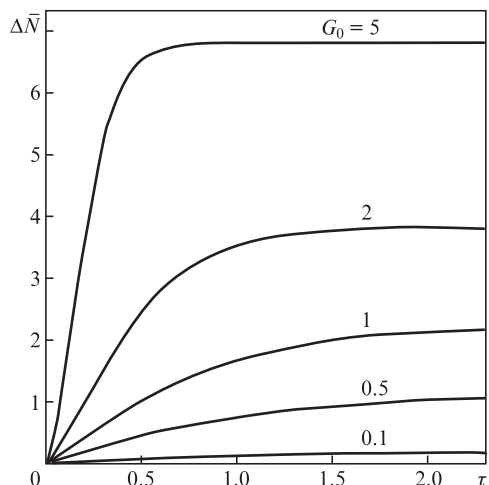


Рис.3. Временные зависимости концентрационного отклика при $\Lambda = \pi/k$ и различных значениях G_0 .

Для численного решения систему (12) удобно записать в виде

$$\frac{d\bar{N}_\kappa}{d\tau} = -\kappa^2 \bar{N}_\kappa + \kappa G_0 (\bar{N}_{\kappa-1} - \bar{N}_{\kappa+1}), \quad (14)$$

где $G_0 = F_0 \Lambda / (4\pi k_B T)$; $\tau = t/t_1$; $\kappa = 1, 2, 3 \dots$. Заметим, что поскольку при $\Omega \ll 1$ амплитуда $F_0 \sim 1/\Lambda$, то в этом случае коэффициент G_0 не зависит от Λ .

В установившемся режиме (при $\tau \gg 1$) из (14) следует система алгебраических уравнений

$$\bar{N}_\kappa = \frac{G_0}{\kappa} (\bar{N}_{\kappa-1} - \bar{N}_{\kappa+1}). \quad (15)$$

Очевидно, что в стационарном случае с ростом κ амплитуды гармоник убывают с одновременным ослаблением их связи с соседними амплитудами. При $G_0 < 1$ из (13) и (15) можно получить

$$N(z) \approx N_0 \left[1 + 2 \sum_{\kappa=1}^{\infty} \frac{G_0^\kappa}{\kappa!} \cos\left(2\pi\kappa \frac{z}{\Lambda}\right) \right]. \quad (16)$$

На рис.3 приведены результаты численного решения системы (14) для максимального концентрационного отклика

$$\Delta \bar{N}(\tau) = 2 \sum_{\kappa=1}^{\infty} \bar{N}_\kappa(\tau)$$

(в пучностях интенсивности, при $\cos(2\pi\kappa z/\Lambda) = 1$) в зависимости от коэффициента G_0 при $\Lambda(\Theta = \pi/2) = \pi/k$. Из численных решений (см. рис.3) с использованием экспоненциальной аппроксимации

$$\Delta \bar{N}(\tau) = \Delta \bar{N}_0 [1 - \exp(-t/t_f)] \quad (17)$$

можно получить изображенную на рис.4 зависимость времени t_f от коэффициента $G_0 \sim I_0$.

Из рис.4 видно, что с ростом интенсивности I_0 время t_f уменьшается, а соответственно при уменьшении I_0 время $t_f \rightarrow t_1$. Уменьшение t_f с ростом I_0 наблюдалось при экспериментальном исследовании ЧВС в водной суспензии латексных микросфер авторами работы [3].

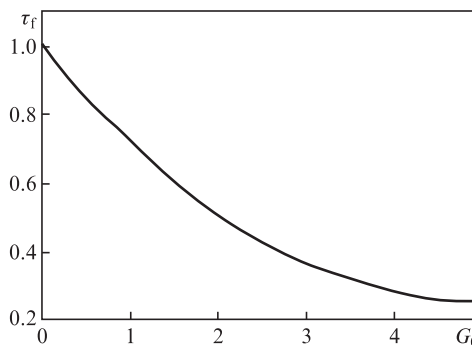


Рис.4. Зависимость нормированного времени $\tau_f = t_f/t_1$ от коэффициента G_0 .

2.4. Диффузионный предел

В диффузионном пределе $G_0 \ll 1$ [2,4], когда можно учитывать только одну гармонику, $\bar{N}_1(t)$, из (14) находим

$$\bar{N}_1(t) = G_0 [1 - \exp(-t/t_0)], \quad (18)$$

где $t_0 = t_f = t_1$.

В этом случае (13) принимает вид

$$N(z, t) = N_0 \left\{ 1 + 2G_0 [1 - \exp(-t/t_0)] \cos\left(2\pi \frac{z}{\Lambda}\right) \right\}. \quad (19)$$

Оценки показывают, что в водной суспензии латексных микросфер с $R \approx 10^{-5}$ см формула (19) справедлива при $I_0 < 10^2$ Вт/см². После «выключения» излучения процесс релаксации основной решетки описывается выражением

$$\bar{N}_1(t) = 2G_0 [1 - \exp(-\tau_p/t_0)] \exp[-(t - \tau_p)/t_0] \text{ при } t \geq \tau_p, \quad (20)$$

3. Дифракция Рамана–Ната на основной концентрационной решетке

С учетом (19) и выражения для поляризации дифрагирующей слабой волны $E_c \exp[i(k_c r - \omega t)]$

$$P_c = [\epsilon_0 + \alpha N(z, t)] E_c [-i(\omega t - k_c r)] \quad (21)$$

для амплитуды E_c можно получить уравнение

$$\cos \Theta_c \frac{\partial E_c}{\partial x} = i \frac{\omega}{c} n_2^0 [1 - \exp(-t/t_0)] I_0 \cos\left(2\pi \frac{z}{\Lambda}\right) E_c, \quad (22)$$

где ϵ_0 – диэлектрическая проницаемость жидкости; Θ_c – угол между вектором k_c и нормалью к слою суспензии;

$$n_2^0 = (2\pi\alpha)^2 N_0 \frac{U(\Omega)}{ck_B T} \quad (23)$$

– оптический коэффициент Керра, который в общем случае зависит не только от параметров суспензии (α, N_0, T), но и от периода модуляции Λ излучения. Заметим, что при $U(\Omega) \approx 1$ независимо от знака α коэффициент $n_2^0 > 0$ и определяется только параметрами суспензии, аналогично средам с кубической нелинейностью. Для латексных микросфер в воде при комнатной температуре и излучения аргонового лазера с $\lambda_0 = 5145$ Å в условиях эксперимента [3] ($N_0 = 6.5 \times 10^{10}$ см⁻³, $n_0 = 1.59$, $n = 1.33$, $R = 1.17 \times$

10^{-5} см, $k_B T = 4.05 \times 10^{-14}$ эрг) из (23) при $U(\Omega) \approx 1$ находим $n_2^0 = 8.5 \times 10^{10}$ см²/Вт, что в 2.8×10^4 раз больше, чем n_2^0 в сероуглероде ($n_2^0(\text{CS}_2) = 3 \times 10^{-14}$ см²/Вт [5]). Экспериментально измеренное значение n_2^0 при исследовании концентрационного ЧВС составило 3.6×10^{-9} см²/В [3]. Такое различие в значениях коэффициента Керра n_2^0 связано, вероятно, с использованием в настоящей работе плосковолнового приближения. Для указанных выше параметров при $\Lambda = \pi/k$ и $\eta = 10^{-2}$ пуаз $t_1 = 0.5 \times 10^{-3}$ с.

Из решения уравнения (22)

$$E_c(L) = E_c(0)\exp[i\delta(t)\cos(2\pi z/L)] \quad (24)$$

с использованием известного соотношения

$$\exp[i\delta \sin(2\pi z/L)] = \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_m(\delta) \exp(im2\pi z/L)$$

для эффективности дифракции m -го порядка находим (см., напр., [12])

$$\eta_m = J_m^2(\delta), \quad (25)$$

где $\delta(t) = (n_2^0 \omega/c)[1 - \exp(-t/t_0)]I_0(t)L/\cos \Theta_c$; L – толщина слоя суспензии.

При этом направления на дифракционные максимумы будут определяться уравнением решетки [5]

$$\cos \Theta_m = m \frac{\lambda}{\Lambda} + \cos \Theta_c, \quad (26)$$

где $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$. Заметим, что из тождества

$$\sum_{m=0}^{\infty} J_m^2 = 1$$

следует закон сохранения энергии для дифрагирующей волны. По эффективности дифракции η_m возможно экспериментальное измерение времени формирования и распада t_0 концентрационной решетки в зависимости от периода Λ и оптического коэффициента Керра n_2^0 . В случае больших интенсивностей I_0 (при $G_0 \geq 1$) можно также измерять зависимость времени установления нелинейности от периода модуляции Λ и интенсивности действующего излучения.

4. Заключение

Развита теория концентрационной нелинейности суспензии прозрачных микросфер под действием градиентной силы F_V в поле периодически модулированного лазерного излучения. Исследована градиентная сила с учетом неоднородности излучения в объеме микросферы. Определены условия наблюдения эффекта нулевой силы, в

условиях которого, независимо от положения микросферы, действующая на нее сила равна нулю: $F_V = 0$.

На основе одномерного уравнения Смолуховского, представленного в виде суперпозиции гармоник концентрации микросфер с кратными периодами, проведен анализ кинетики концентрационной нелинейности суспензии. Полученная система нестационарных рекуррентных уравнений решена численными методами. В результате определена зависимость времени установления концентрационной нелинейности t_f от интенсивности действующего излучения. Уменьшение t_f с ростом интенсивности связано с увеличением скорости движения $v \sim F_V$ микросфер ($t_f \sim \Lambda/v$). Показано, что в диффузионном пределе время t_f совпадает с диффузионным временем распада концентрационной нелинейности, $t_f = t_0$. В этом приближении получено выражение для оптического коэффициента Керра $n_2^0 \sim \alpha^2 N_0 U(\Omega)/(k_B T)$, из которого следует, что при $\Omega = 2\pi R/\Lambda \ll 1$, независимо от знака поляризуемости α , коэффициент $n_2^0 > 0$. Показано, что для параметров суспензии, используемой для исследования ЧВС [3], $n_2^0 = 8.5 \times 10^{-10}$ см²/Вт, что в 3×10^{-4} раз больше, чем n_2^0 в сероуглероде. Соответственно суспензия прозрачных микросфер – искусственно созданная гетерогенная среда, каждый из компонентов которой в отдельности не проявляет нелинейно-оптических свойств, может служить перспективным широкополосным нелинейным материалом для низкоинтенсивного лазерного излучения большой длительности.

Для изучения кинетики концентрационной нелинейности приведены выражения для эффективностей дифракции произвольных порядков слабой волны на решетке концентрации микросфер, индуцированной периодически модулированным излучением.

Авторы признательны А.Н.Рубинову за обсуждение полученных результатов и замечания при подготовке статьи.

1. Ахиезер А.И., Пелетминский С.В. *Методы статистической физики* (М.: Наука, 1977).
2. Rogovin D., Sari S.O. *Phys. Rev. A*, **31**, 2375 (1985).
3. Smith P.W., Ashkin A., Tomlinson W.J. *Opt. Lett.*, **6**, 284 (1981).
4. Афанасьев А.А., Рубинов А.Н., Михневич С.Ю., Ермолаев И.Е. *ЖЭТФ*, **128**, 451 (2005).
5. Ахманов С.А., Никитин С.Ю. *Физическая оптика* (М.: Изд-во МГУ, 1998).
6. Афанасьев А.А., Рубинов А.Н., Михневич С.Ю., Ермолаев И.Е. *Оптика и спектроскопия*, **102**, 116 (2007).
7. Бурханов И.С., Кривохижа С.В., Чайков Л.Л. *Квантовая электроника*, **46**, 548 (2016).
8. Rubinov A.N., Katarkevich V.M., Afanas'ev A.A., Efendiev T.Sh. *Opt. Commun.*, **224**, 97 (2003).
9. Ван де Хюлст Г. *Рассеяние света малыми частицами* (М.: ИЛ, 1961).
10. Zemánek P., Jonáš A., Liška M. *J. Opt. Soc. Am. A*, **19**, 1025 (2002).
11. Анго А. *Математика для электро- и радиоинженеров* (М.: Наука, 1965).
12. Микаэлян А.Л. *Оптические методы в информатике* (М.: Наука, 1990).