

Пространственно-временные характеристики четырёхволнового преобразователя излучения с учётом поля тяжести Земли, действующего на растворённые в прозрачной жидкости наночастицы

М.В. Савельев¹, А.Д. Ремзов¹

¹ Самарский национальный исследовательский университет имени академика С.П. Королёва, 443086, Россия, г. Самара, Московское шоссе, д. 34

Аннотация

Проведён теоретический анализ динамики пространственного спектра объектной волны при вырожденном четырёхволновом взаимодействии в прозрачном растворе наночастиц в классической схеме со встречными волнами накачки. Показано, что при распространении волн накачки ортогонально силе тяжести в модуле пространственного спектра объектной волны возникает провал, полуширина которого с течением времени немонотонно уменьшается, а с ростом радиуса наночастиц увеличивается в направлении силы тяжести. Существует оптимальное время, за которое полуширина провала в направлении силы тяжести достигает наименьшего значения. Это время монотонно убывает с ростом радиуса наночастиц, а также с уменьшением толщины раствора.

Ключевые слова: четырёхволновой преобразователь излучения, поле тяжести Земли, прозрачный раствор наночастиц.

Цитирование: Савельев, М.В. Пространственно-временные характеристики четырёхволнового преобразователя излучения с учётом поля тяжести Земли, действующего на растворённые в прозрачной жидкости наночастицы / М.В. Савельев, А.Д. Ремзов // Компьютерная оптика. – 2022. – Т. 46, № 4. – С. 547-554. – DOI: 10.18287/2412-6179-CO-1109.

Citation: Savelyev MV, Remzov AD. Spatial and temporal characteristics of a four-wave radiation converter with due regard for Earth's gravity field acting on nanoparticles dissolved in a transparent liquid. Computer Optics 2022; 46(4): 547-554. DOI: 10.18287/2412-6179-CO-1109.

Введение

Многокомпонентные среды, такие как коллоидные растворы наночастиц и наносuspensions, эффективно применяются при реализации различных нелинейно-оптических процессов с использованием широкого диапазона длин волн излучения: от терагерцового до ультрафиолетового [1–9]. При построении четырёхволновых преобразователей излучения (ЧПИ) на основе таких сред и для их дальнейшего применения в задачах нелинейной адаптивной оптики [10], микроскопии (например, одиночных молекул, квантовых точек, клеток и т.д.) [8, 11–14] требуется знание степени соответствия пространственно-временных структур падающей на ЧПИ (сигнальной) волны и объектной волны, волновой фронт которой комплексно сопряжён (обращён) по отношению к фронту сигнальной волны [15].

В работе [16] проведён анализ временной зависимости пространственного спектра объектной волны, образующейся в результате четырёхволнового взаимодействия в прозрачной двухкомпонентной среде, состоящей из жидкости и наночастиц. Рассмотрены случаи вырожденного и квазивырожденного взаимодействия волн, различные схемы их распространения. При этом не учитывалось действие на наночастицы поля тяжести Земли.

В растворах наночастиц энергия хаотичного движения молекул жидкости может быть сопоставима с

энергией частиц в поле тяжести Земли [17–19]. В схеме ЧПИ со встречными волнами накачки, распространяющимися в вертикальной плоскости, учёт потока наночастиц, обусловленного действием на них силы тяжести, приводит к существенной зависимости амплитуды объектной волны на низких пространственных частотах от эффективной массы частиц в жидкости [20]. При повороте схемы ЧПИ на $\pi/2$, т.е. при распространении волн накачки ортогонально силе тяжести, в модуле пространственного спектра объектной волны вместо максимума наблюдается провал, форма которого определяется эффективной массой наночастиц, а значит, и их размером [21].

В настоящей работе исследуется процесс формирования провала в модуле пространственного спектра объектной волны в зависимости от радиуса сферических наночастиц и толщины слоя прозрачной жидкости, в которой они растворены.

1. Модель четырёхволнового взаимодействия

Рассмотрим вырожденное четырёхволновое взаимодействие в классической схеме со встречными волнами накачки, распространяющимися в горизонтальном направлении, параллельном оси Z (рис. 1). Пусть первая волна накачки с амплитудой A_1 и сигнальная волна с амплитудой A_3 падают на левую ($z = 0$), а вторая волна накачки с амплитудой A_2 – на правую грань ($z = \ell$) плоского слоя прозрачного раствора наночастиц.

В приближениях заданного поля по волнам накачки и малого коэффициента преобразования, а также в отсутствие когерентности между второй волной накачки и волнами A_1 и A_3 интенсивность I излучения, взаимодействующего в слое среды, можно записать в виде [21]

$$I = A_1 A_1^* + A_2 A_2^* + A_1 A_3^* + A_1^* A_3, \quad (1)$$

Два последних слагаемых отвечают за интерференцию первой волны накачки и сигнальной волны, что приводит к зависимости интенсивности излучения от пространственных координат. Электрострикционная сила, пропорциональная градиенту интенсивности, сила тяжести наночастиц, а также процесс их диффузии в жидкости изменяют в пространстве концентрацию частиц δC [17, 20–22]. Наличие потока частиц приводит из-за эффекта Дюфура к пространственному изменению температуры раствора δT [16, 20, 22].

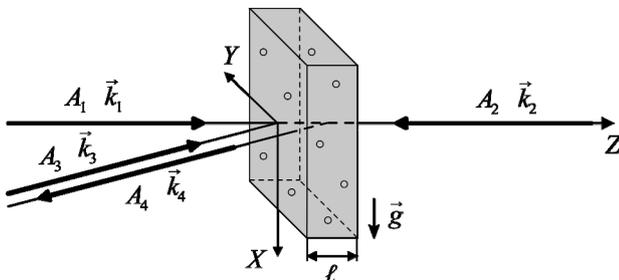


Рис. 1. Схема четырёхволнового взаимодействия

Нестационарные материальные уравнения, описывающие изменения концентрации наночастиц и температуры среды, имеют вид

$$\frac{\partial \delta C}{\partial t} = D_{22} \nabla^2 \delta C - \gamma \nabla^2 I - \frac{D_{22} m}{k_B T_0} (\vec{g}, \nabla \delta C), \quad (2)$$

$$c_p \rho_l \frac{\partial \delta T}{\partial t} = D_{11} \nabla^2 \delta T + D_{12} \nabla^2 \delta C. \quad (3)$$

Здесь D_{22} и D_{11} – коэффициенты диффузии и теплопроводности, γ и D_{12} – коэффициенты, описывающие явление электрострикции и эффект Дюфура, m – эффективная масса одной наночастицы, включающая в себя поправку на силу Архимеда, \vec{g} – ускорение свободного падения, k_B – постоянная Больцмана, T_0 – начальная температура раствора, c_p и ρ_l – удельная теплоёмкость при постоянном давлении и плотность жидкости.

Уравнение диффузии (2) отличается от аналогичного уравнения, представленного в работе [16], наличием последнего слагаемого, обусловленного воздействием на наночастицы поля тяжести Земли.

Нелинейность показателя преломления раствора может быть обусловлена как изменением концентрации δC , так и изменением температуры δT . При малых концентрациях наночастиц, а также при использовании непрерывного излучения либо импульсного излучения большой длительности (более мик-

росекунды) вкладом изменения концентрации в нелинейность показателя преломления можно пренебречь [13, 23–25].

Если волны накачки распространяются строго параллельно оси Z , то в результате дифракции второй волны накачки на фазовой решётке образуется объектная волна с амплитудой A_4 , распространяющаяся в направлении, противоположном направлению распространения сигнальной волны, при этом её волновой фронт обращён по отношению к фронту сигнальной волны.

Амплитуды четырёх взаимодействующих в прозрачном растворе волн удовлетворяют уравнению Гельмгольца вида [21]

$$\left(\nabla^2 + k^2 + \frac{2k^2}{n_l} \frac{dn}{dT} \delta T \right) \sum_{j=1}^4 (A_j + A_j^*) = 0, \quad (4)$$

где $k = 2\pi n_l / \lambda$, n_l – показатель преломления жидкости в отсутствие излучения, λ – длина волны, (dn/dT) – термооптический коэффициент.

Пусть волны накачки являются плоскими, их амплитуды на гранях, зависящие от времени, равны соответственно $A_{10}(t)$ и $A_{20}(t)$. В соответствии с выражением для интенсивности излучения (1) изменения концентрации и температуры можно представить в виде суммы быстро и медленно меняющихся в зависимости от поперечных координат x и y составляющих [20]. Сигнальную и объектную волны заменим их фурье-образами $\tilde{A}_3(\vec{\chi}, z, t)$ и $\tilde{A}_4(\vec{\chi}, z, t)$ в области пространственных частот $\vec{\chi} \{ \chi_x, \chi_y \}$, а быстро меняющиеся составляющие концентрации и температуры – пространственными спектрами соответствующих решёток $\delta \tilde{C}(\vec{\chi}, z, t)$ и $\delta \tilde{T}(\vec{\chi}, z, t)$ [21].

Будем считать, что вектор $\vec{\chi}$ определяет пространственную частоту объектной волны. В параксиальном приближении, т.е. при $|\vec{\chi}| \ll k$, существует интегральная связь временной зависимости пространственного спектра объектной волны на левой грани слоя прозрачной нелинейной среды $\tilde{A}_{40}(\vec{\chi}, t) = \tilde{A}_4(\vec{\chi}, z=0, t)$ с временной зависимостью пространственного спектра температурной решётки вида [20, 21]

$$\tilde{A}_{40}(\vec{\chi}, t) = -i \frac{k}{n_l} \frac{dn}{dT} A_{20}(t) \exp[i\varphi(t)] \times \int_0^{\ell} \delta \tilde{T}(\vec{\chi}, z, t) \exp\left(i \frac{\vec{\chi}^2}{2k} z\right) dz, \quad (5)$$

где $\varphi(t)$ – фазовый набег, обусловленный распространением в прозрачном растворе волн накачки.

При записи выражения (5) учтено, что на правой грани слоя нелинейной среды $z = \ell$ объектная волна отсутствует.

2. Временная зависимость пространственного спектра объектной волны

Для установления соотношения между временными зависимостями пространственных спектров сигнальной и объектной волн воспользуемся материальными уравнениями (2) и (3), которые с учётом сделанных выше приближений переписутся следующим образом

$$\frac{\partial \delta \tilde{C}(\bar{\chi}, z, t)}{\partial t} = D_{22} \left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{f_3(\bar{\chi})}{\ell^2} \right] \delta \tilde{C}(\bar{\chi}, z, t) + \frac{\gamma}{\ell^2} A_{40}(t) \tilde{A}_{30}^*(\bar{\chi}, t) [f_1(\bar{\chi}) - f_2^2(\bar{\chi})] \times \quad (6)$$

$$\times \exp \left[f_2(\bar{\chi}) \frac{z}{\ell} \right],$$

$$c_p \rho_l \frac{\partial \delta \tilde{T}(\bar{\chi}, z, t)}{\partial t} = D_{11} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{f_1(\bar{\chi})}{\ell^2} \right) \delta \tilde{T}(\bar{\chi}, z, t) + D_{12} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{f_1(\bar{\chi})}{\ell^2} \right) \delta \tilde{C}(\bar{\chi}, z, t). \quad (7)$$

Здесь $\tilde{A}_{30}(\bar{\chi}, t) = \tilde{A}_3(\bar{\chi}, z = 0, t)$ – пространственный спектр сигнальной волны в плоскости $z = 0$,

$$f_1(\bar{\chi}) = (\bar{\chi} \ell)^2,$$

$$\begin{aligned} \tilde{A}_{40}(\bar{\chi}, t) = & iGA_{20}(t) \exp[i\varphi(t)] \frac{f_1(\bar{\chi}) - f_2^2(\bar{\chi})}{f_2^3(\bar{\chi})} \sum_{s=1}^{\infty} \left\{ 1 - (-1)^s \exp[-f_2(\bar{\chi})] \right\} \left[1 + \left(\frac{\pi s}{f_2(\bar{\chi})} \right)^2 \right]^{-1} \times \\ & \times \int_0^t \exp \left\{ -\frac{D_{11}}{c_p \rho_l \ell^2} [(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi})](t - \tau) \right\} \left[\int_0^{\tau} A_{10}(\tau') \tilde{A}_{30}^*(\bar{\chi}, \tau') (f_1(\bar{\chi}) [\exp[f_2(\bar{\chi})] - 1]) \times \right. \\ & \times [1 - (-1)^s] \exp \left\{ -\frac{D_{22}}{\ell^2} f_3(\bar{\chi})(\tau - \tau') \right\} - s \sum_{r=1}^{\infty} [(\pi r)^2 + f_1(\bar{\chi})] \left[\frac{1 - (-1)^{s+r}}{s+r} + \frac{1 - (-1)^{s-r}}{s-r} \right] \times \\ & \left. \times \left\{ 1 - (-1)^r \exp[f_2(\bar{\chi})] \right\} \left[1 + \left(\frac{\pi r}{f_2(\bar{\chi})} \right)^2 \right]^{-1} \exp \left\{ -\frac{D_{22}}{\ell^2} [(\pi r)^2 + f_3(\bar{\chi})](\tau - \tau') \right\} \right] d\tau', \end{aligned} \quad (11)$$

где $G = 2k\gamma D_{12}(n_l c_p \rho_l \ell^3)^{-1} (dn/dT)$.

Выражение (11) устанавливает связь между временными зависимостями пространственных спектров волн при четырёхволновом взаимодействии в прозрачном растворе наночастиц в схеме со встречными плоскими волнами накачки. В случае пренебрежимо малого размера частиц, а значит, и их эффективной массы m оно совпадает с аналогичным выражением, полученным без учёта поля тяжести Земли, действующего на наночастицы [16].

3. Результаты численного анализа

Рассмотрим наночастицы в форме сфер. В этом случае эффективная масса одной частицы m может быть представлены следующим образом [27]

$$f_2(\bar{\chi}) = -i(2k\ell)^{-1} f_1(\bar{\chi}),$$

$$f_3(\bar{\chi}) = f_1(\bar{\chi}) - im\ell^2 (k_B T_0)^{-1} (\bar{g}, \bar{\chi}).$$

Систему уравнений (6–7) необходимо дополнить начальными условиями [16]

$$\delta \tilde{C}(\bar{\chi}, z, t = 0) = 0, \quad \delta \tilde{T}(\bar{\chi}, z, t = 0) = 0, \quad (8)$$

а также граничными условиями, вытекающими из условий отсутствия полного потока наночастиц через грани слоя нелинейной среды и неизменности температуры на гранях [21, 26]

$$\frac{\delta \tilde{C}(\bar{\chi}, z, t)}{\partial t} \Big|_{z=0} = \frac{\delta \tilde{C}(\bar{\chi}, z, t)}{\partial t} \Big|_{z=\ell} = 0, \quad (9)$$

$$\delta \tilde{T}(\bar{\chi}, z = 0, t) = \delta \tilde{T}(\bar{\chi}, z = \ell, t) = 0. \quad (10)$$

Решение системы уравнений (6–7) с учётом условий (8–10) позволяет с применением рядов Фурье получить временные зависимости пространственных спектров сначала концентрационной, а затем и температурной решёток.

В результате подстановки временной зависимости пространственного спектра температурной решётки интегральное выражение (5) переписется следующим образом

$$m(a) = \frac{4}{3} \pi (\rho_p - \rho_l) a^3, \quad (12)$$

а коэффициент диффузии D_{22} подчиняется соотношению Стокса–Эйнштейна [28]

$$D_{22}(a) = \frac{k_B T_0}{6\pi\eta a}. \quad (13)$$

Здесь ρ_p – плотность материала наночастиц, a – их радиус, η – вязкость жидкости.

Поскольку в функцию f_3 входит эффективная масса одной наночастицы, то f_3 приобретет второй аргумент a .

Пусть амплитуды волн накачки на гранях неизменны во времени ($A_{1,20}(t) = A_{1,20}$), а сигнальная волна распространяется от непрерывного точечного источ-

ника, расположенного на левой грани слоя нелинейной среды ($\tilde{A}_{30}(\bar{\chi}, t) = \tilde{A}_{30}$). Тогда в результате инте-

грирования по временным переменным выражение (11) примет вид

$$\begin{aligned} \tilde{A}_{40}(\bar{\chi}, t, a) = & iG \frac{c_p \rho_l \ell^4 A_{10} A_{20} \tilde{A}_{30}^*}{D_{11} D_{22}(a)} \exp[i\varphi(t)] \frac{f_1(\bar{\chi}) - f_2^2(\bar{\chi})}{f_2^3(\bar{\chi})} \sum_{s=1}^{\infty} \frac{1 - (-1)^s \exp[-f_2(\bar{\chi})]}{1 + \left(\frac{\pi s}{f_2(\bar{\chi})}\right)^2} \left\{ \frac{f_1(\bar{\chi})}{f_3(\bar{\chi}, a)} \times \right. \\ & \times \left\{ \exp[f_2(\bar{\chi})] - 1 \right\} \left[1 - (-1)^s \right] \left[1 - \exp \left\{ -\frac{D_{11}}{c_p \rho_l \ell^2} [(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi})] t \right\} \right] [(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi})]^{-1} - \\ & - \frac{\exp \left[-\frac{D_{22}(a)}{\ell^2} f_3(\bar{\chi}, a) t \right] - \exp \left\{ -\frac{D_{11}}{c_p \rho_l \ell^2} [(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi})] t \right\}}{(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi}) - \frac{c_p \rho_l}{D_{11}} D_{22}(a) f_3(\bar{\chi}, a)} \left. \right\} - s \sum_{r=1}^{\infty} \frac{(\pi r)^2 + f_1(\bar{\chi})}{(\pi r)^2 + f_3(\bar{\chi}, a)} \times \\ & \times \left[\frac{1 - (-1)^{s+r}}{s+r} + \frac{1 - (-1)^{s-r}}{s-r} \right] \frac{1 - (-1)^r \exp[f_2(\bar{\chi})]}{1 + \left(\frac{\pi r}{f_2(\bar{\chi})}\right)^2} \left[\frac{1 - \exp \left\{ -\frac{D_{11}}{c_p \rho_l \ell^2} t [(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi})] \right\}}{(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi})} \right. \\ & \left. - \frac{\exp \left\{ -\frac{D_{22}(a)}{\ell^2} t [(\pi r)^2 + f_3(\bar{\chi}, a)] \right\} - \exp \left\{ -\frac{D_{11}}{c_p \rho_l \ell^2} t [(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi})] \right\}}{(\pi s)^2 + f_1(\bar{\chi}) - \frac{c_p \rho_l}{D_{11}} D_{22}(a) [(\pi r)^2 + f_3(\bar{\chi}, a)]} \right] \end{aligned} \quad (14)$$

При стремлении времени к бесконечности выражение (14) совпадает с выражением, описывающим пространственный спектр объектной волны при стационарном режиме четырёхволнового взаимодействия [21].

В качестве нелинейной среды рассмотрим водный раствор наночастиц полистирола при начальной температуре $T_0 = 297$ К, в котором реализуется четырёхволновое взаимодействие на длине волны $\lambda = 532$ нм. Параметры жидкости и частиц соответственно равны $c_p = 4,2$ кДж/(кг·К), $\rho_l = 1$ г/см³, $D_{11} = 0,6$ Вт/(м·К), $n_l = 1,33$, $\eta = 1$ мПа·с, $\rho_p = 1,1$ г/см³. Система координат ориентирована таким образом, чтобы ось X была сонаправлена с полем тяжести Земли (рис. 1).

На рис. 2 для фиксированного радиуса наночастиц представлена динамика модуля пространственного спектра объектной волны, нормированного на наибольшее значение, которое достигается при стационарном четырёхволновом взаимодействии ($t \rightarrow \infty$) на высоких пространственных частотах ($|\bar{\chi}| = 0,1k$) и определяется выражением [21]

$$A_{\max}(a) = \left| G \frac{c_p \rho_l \ell^4 A_{10} A_{20} \tilde{A}_{30}^*}{2D_{11} D_{22}(a)} \right|. \quad (15)$$

Здесь и далее точность расчёта пространственных спектров объектной волны определялась из условия,

чтобы на пространственной частоте $|\bar{\chi}| = 0,1k$ относительное отклонение модуля амплитуды объектной волны от величины A_{\max} не превышало 0,1%. При этом максимальное значение индексов суммирования s и r в выражении (14) равнялось 140.

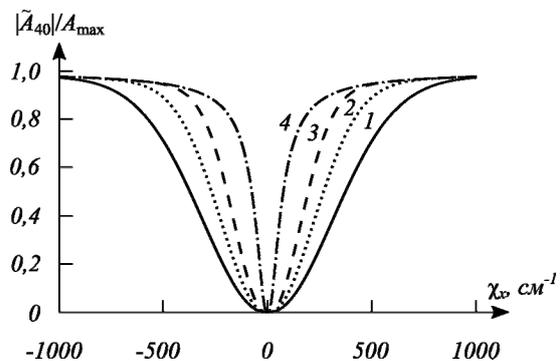


Рис. 2. Динамика нормированного модуля пространственного спектра объектной волны при $\chi_y = 0$ см⁻¹, $\ell = 1$ мм, $a = 200$ нм, $t = 5 \cdot 10^2$ (1), 10^3 (2), $2 \cdot 10^3$ (3) с, $t \rightarrow \infty$ (4)

Как видно из рис. 2, в модуле амплитуды объектной волны на низких пространственных частотах существует провал, причём величина $|\tilde{A}_{40}|$ на частоте $|\bar{\chi}| = 0$ стремится к нулю, что свидетельствует о фильтрации ЧПИ высоких пространственных частот сигнальной волны [29].

Возникновение провала является следствием материальных уравнений (6–7). Анализ показывает, что при выполнении граничных условий (9–10) в фикси-

рованный момент времени в некоторой плоскости z вторые производные пространственных спектров концентрационной и температурной решёток по координате z на низких пространственных частотах $\bar{\chi}$ определяются в основном слагаемым, пропорциональным коэффициенту электрострикции γ и величине $\bar{\chi}^2$. Таким образом, в связи с действием в прозрачном растворе наночастиц электрострикционной силы амплитуда температурной решётки и, как следствие, \tilde{A}_{40} в пределе при $\bar{\chi} \rightarrow 0$ уменьшаются до нуля, что и приводит к образованию в модуле пространственного спектра \tilde{A}_{40} провала.

С течением времени t ширина провала уменьшается, выходя на установившееся значение. Такая динамика пространственной структуры объектной волны является типичной для прозрачных растворов наночастиц и подтверждается, например, иллюстрациями, представленными в работе [16].

Рассмотрим теперь влияние поля тяжести Земли на вид и динамику модуля \tilde{A}_{40} на примере трёх различных радиусов наночастиц (рис. 3). В ранние моменты времени форма провала близка к аксиально симметричной. В случае пренебрежимо малого размера частиц ($a \rightarrow 0$) с течением времени наблюдается уменьшение ширины

провала как в направлении пространственной частоты χ_x , так и в перпендикулярном направлении χ_y .

Учёт поля тяжести Земли, который состоит в зависимости функции f_3 , входящей в выражение (14), от радиуса наночастиц a , приводит к нарушению аксиальной симметрии провала, которое всё сильнее проявляется с течением времени. С увеличением радиуса частиц сходные по виду модули пространственного спектра объектной волны наблюдаются при меньших значениях t .

Наличие зеркального нарушения структуры провала вдоль оси χ_x относительно пространственной частоты $\chi_y = 0 \text{ см}^{-1}$ свидетельствует о том, что знак скалярного произведения $(\bar{g}, \bar{\chi})$ не влияет на вид модуля пространственного спектра объектной волны, а проявляет себя только в его фазе, как это было показано в работе [21] для стационарного режима четырёхволнового взаимодействия.

Заметим, что в рассматриваемом случае, когда ускорение свободного падения коллинеарно пространственной частоте χ_x , изменение с течением времени ширины провала в модуле пространственного спектра объектной волны в направлении χ_y при $\chi_x = 0 \text{ см}^{-1}$ происходит точно так же, как если бы действие на наночастицы поля тяжести Земли не учитывалось.

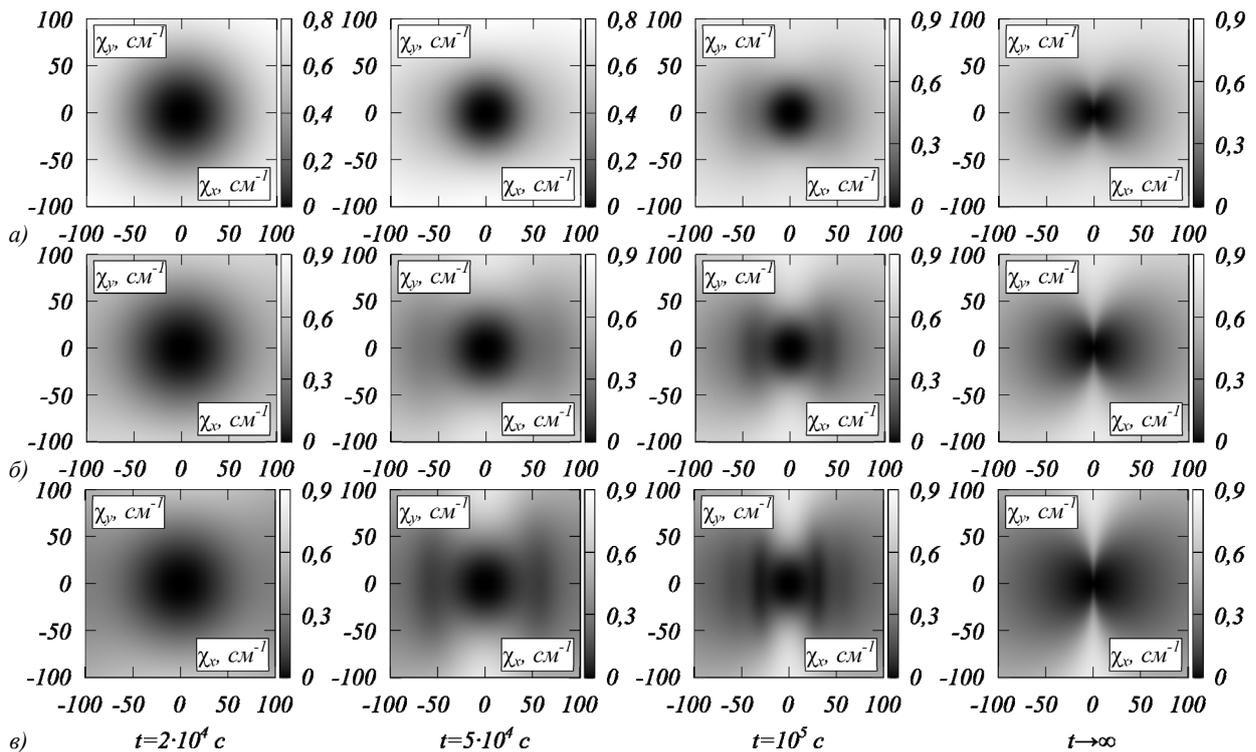


Рис. 3. Динамика нормированных модулей пространственного спектра объектной волны $|\tilde{A}_{40}|/A_{\max}$ при $\ell = 1 \text{ мкм}$, $a = 200$ (а), 250 (б) и 300 нм (в)

Чтобы проанализировать динамику пространственной структуры объектной волны в направлении поля тяжести, введём полуширину провала $\Delta\chi$, которая определяется из решения уравнения вида [16, 21]

$$|\tilde{A}_{40}(\chi_x = \Delta\chi, \chi_y = 0, t, a)| = \frac{1}{2} A_{\max}(a). \quad (16)$$

Поскольку значение полуширины провала определяется для каждого определённого момента време-

ни, а также размера наночастиц, то она сама является функцией этих двух параметров, т.е. $\Delta\chi = \Delta\chi(t, a)$.

На рис. 4 представлено распределение полуширины провала в зависимости от t и a . Как показывает анализ численного решения уравнения (16), при фиксированном радиусе наночастиц с течением времени величина $\Delta\chi$ вначале убывает, достигает наименьшего значения, затем возрастает до максимума и вновь убывает с выходом на установившееся значение.

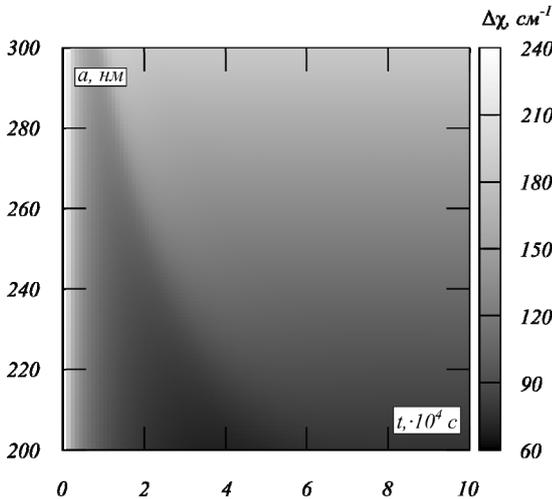


Рис. 4. Зависимость полуширины провала от времени и радиуса наночастиц при $\ell = 1$ мкм

Наличие экстремумов в зависимости полуширины провала от t при фиксированном радиусе a коррелирует с появлением экстремумов в зависимости модуля пространственного спектра объектной волны от χ_x при фиксированной пространственной частоте χ_y , что хорошо видно на рис. 3б в момент $t = 10^5$ с, а на рис. 3в как при $t = 10^5$ с, так и при $t = 5 \cdot 10^4$ с.

В случае, когда зафиксирован момент времени t , величина $\Delta\chi$ с ростом радиуса наночастиц монотонно увеличивается (рис. 4).

Для представленных на рис. 3 и 4 диапазонов времени и радиусов наночастиц на высоких пространственных частотах ($|\vec{\chi}| = 0, 1k$) модуль $|\tilde{A}_{40}|$ незначительно отличается от своего наибольшего значения A_{\max} . Поэтому можно ожидать, что ЧПИ будет осуществлять наилучшую фильтрацию пространственных частот сигнальной волны в те моменты времени, когда провал в модуле $|\tilde{A}_{40}|$ имеет наименьшую ширину. Как мы показали, в направлении χ_y ширина провала минимальна при стационарном режиме четырёхволнового взаимодействия ($t \rightarrow \infty$). В направлении же χ_x существует конечное время t_{opt} , за которое достигается наименьшее значение полуширины провала $\Delta\chi$. Назовём это время оптимальным.

На рис. 5 приведены зависимости оптимального времени от радиуса наночастиц. При фиксированной толщине раствора ℓ с ростом a величина t_{opt} монотонно убывает. Увеличение ℓ приводит к росту скорости изменения t_{opt} в зависимости от a .

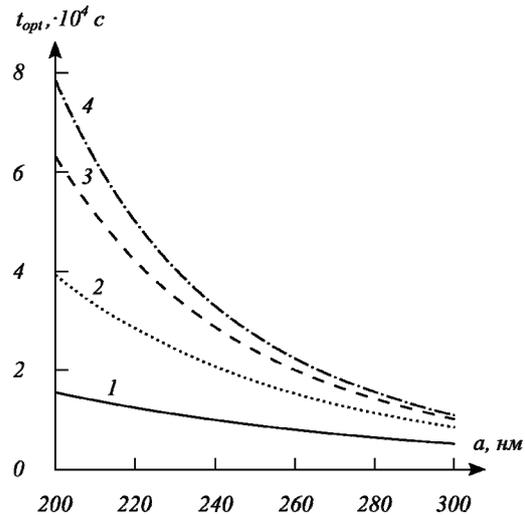


Рис. 5. Зависимость оптимального времени от радиуса наночастиц при $\ell = 0,3$ (1), 1 (2), 3 (3) и 10 мкм (4)

Представленные на рис. 5 кривые в диапазоне радиусов наночастиц от 200 до 300 нм хорошо аппроксимируются формулой

$$t_{opt}(a) = b_1 \exp(-b_2 a). \tag{17}$$

Коэффициенты b_1 и b_2 , входящие в выражение (17), зависят от толщины раствора. Для представленных на рис. 5 значений $\ell = 0,3, 1, 3$ и 10 мкм они равны соответственно $b_1 = 1,396 \cdot 10^5, 8,52 \cdot 10^5, 2,633 \cdot 10^6$ и $4,591 \cdot 10^6$ с, $b_2 = 1,098 \cdot 10^7, 1,544 \cdot 10^7, 1,875 \cdot 10^7$ и $2,048 \cdot 10^7$ м⁻¹.

Из приведённых оценок следует, что, меняя параметры прозрачного раствора, такие как толщина слоя жидкости и радиус находящийся в ней наночастиц, возможно управлять оптимальным временем, за которое достигается наилучшее преобразование ЧПИ пространственных частот сигнальной волны.

Порядки оптимального времени, представленные на рис. 5, могут быть обусловлены прозрачностью раствора и седиментацией в нём наночастиц. Скорость седиментации можно определить с использованием выражения вида [27]

$$v_{sed} = \frac{2a^2(\rho_p - \rho_l)}{9\eta} |\vec{g}|. \tag{18}$$

Для водного раствора наночастиц полистирола радиусом 200 и 300 нм скорость седиментации равна соответственно $v_{sed} = 8,83$ и $19,89$ нм/с. За оптимальное время, которое при толщине раствора $\ell = 10$ мкм составляет $t_{opt} = 7,842 \cdot 10^4$ и $1,092 \cdot 10^4$ с, такие частицы оседут на расстояния 693 и 217 мкм соответственно.

Заключение

Для ЧПИ в прозрачном растворе наночастиц получена аналитическая связь между временной зависимостью пространственного спектра объектной волны и временными зависимостями амплитуд плоских волн накачки, пространственным спектром сигналь-

ной волны. Показано, что учёт поля тяжести Земли, действующего на частицы и ортогонального направлению распространения волн накачки, оказывает существенное влияние на динамику пространственной структуры объектной волны.

Численный анализ проведён для водного раствора сферических наночастиц полистирола. Показано, что с течением времени, с ростом радиуса частиц a нарушается аксиальная симметрия провала, который присутствует в модуле пространственного спектра объектной волны.

Получено распределение полуширины провала $\Delta\chi$, определяемой в направлении поля тяжести, от времени и радиуса наночастиц. Показано, что существует оптимальное время, при котором полуширина $\Delta\chi$ имеет наименьшее значение. Это время в диапазоне a от 200 до 300 нм экспоненциально убывает с ростом радиуса частиц. Увеличение же толщины раствора, наоборот, приводит к увеличению оптимального времени.

References

- [1] Xiang D, Wu J, Rottler J, Gordon R. Threshold for terahertz resonance of nanoparticles in water. *Nano Lett* 2016; 16(6): 3638-3641. DOI: 10.1021/acs.nanolett.6b00770.
- [2] Melik-Gaykazyan EV. Silicon nanoparticles for nonlinear frequency conversion of mid-IR radiation. *J Phys Conf Ser* 2018; 1092: 012086. DOI: 10.1088/1742-6596/1092/1/012086.
- [3] Lin Y-H, Lin G-R. Kelly sideband variation and self four-wave-mixing in femtosecond fiber soliton laser mode-locked by multiple exfoliated graphite nanoparticles. *Laser Phys Lett* 2013; 10(4): 045109. DOI: 10.1088/1612-2011/10/4/045109.
- [4] Lan Y-Z. Excitonic effects on the linear and nonlinear optical properties of solid C60 fullerene, insights from many-body first-principles calculations. *Carbon* 2022; 188: 126-134. DOI: 10.1016/j.carbon.2021.11.038.
- [5] Livashvili AI, Krishtop VV, Vinogradova PV, Karpets YuM, Efremenko VG, Syuy AV, Kuzmichev EN, Igumnov PV. Appearance of solitary wave particle concentration in nanofluids under a light field. *Nanomaterials* 2021; 11(5): 1291. DOI: 10.3390/nano11051291.
- [6] Ivanov VI, Ovseychook OO, Myagotin AV. Holographic method of the nanoparticles diagnostics in a fluid. *IOP Conf Ser Mater Sci Eng* 2019; 510: 012027. DOI: 10.1088/1757-899X/510/1/012027.
- [7] Kosionis S, Paspalakis E. Four-wave mixing in asymmetric double quantum dot molecule-metal nanoparticle assemblies. *Mater Proc* 2021; 4(1): 89. DOI: 10.3390/IOC2020-07843.
- [8] Tsuchiya T, Egami C. Degenerate four-wave mixing in phycoerythrin dye-doped nanoparticles. *Int J Opt* 2021; 2021: 5568693. DOI: 10.1155/2021/5568693.
- [9] Ramya E, Jyothi L, Desai NR. Nonlinear optical properties and cytotoxicity studies of fruit extract synthesized silver and gold nanostructures. *Int J Nanosci* 2021; 20(4): 2150031. DOI: 10.1142/S0219581X21500319.
- [10] Lukin VP. Adaptive optics in the formation of optical beams and images. *Physics-Uspekhi* 2014; 57(6): 556-592. DOI: 10.3367/UFNe.0184.201406b.0599.
- [11] Masia F, Moreels I, Hens Z, Langbein W, Borri P. Four-wave-mixing imaging and carrier dynamics of PbS colloidal quantum dots. *Phys Rev B* 2010; 82(15): 155302. DOI: 10.1103/PhysRevB.82.155302.
- [12] Cong L, Geng Y, Tian Y, Huo Z, Huang D, Liang C, Xu W, Wang Y, Xu S. Plasmon-enhanced four-wave mixing imaging for microdroplet-based single-cell analysis. *Anal Chem* 2020; 92(14): 9459-9464. DOI: 10.1021/acs.analchem.0c00816.
- [13] Giannakopoulou N, Williams JB, Moody PR, Sayers EJ, Magnusson JP, Pope I, Payne L, Alexander C, Jones AT, Langbein W, Watson P, Borri P. Four-wave-mixing spectroscopy reveals non-colocalisation between gold nanoparticles and fluorophore conjugates inside cells. *Nanoscale* 2020; 12(7): 4622-4635. DOI: 10.1039/c9nr08512b.
- [14] Wang J, Zhang X, Deng J, Hu X, Hu Y, Mao J, Ma M, Gao Y, Wei Y, Li F, Wang Z, Liu X, Xu J, Ren L. Simplified near-degenerate four-wave-mixing microscopy. *Molecules* 2021; 26(17): 5178. DOI: 10.3390/molecules26175178.
- [15] Ivakhnik VV, Kapizov DR, Nikonov VI. Quality of wavefront reversal for four-wave interaction in a multi-mode waveguide with thermal nonlinearity. *Computer Optics* 2022; 46(1): 48-55. DOI: 10.18287/2412-6179-CO-1011.
- [16] Ivakhnik VV, Savelyev MV. Transient four-wave mixing in a transparent two-component medium. *Computer Optics* 2018; 42(2): 227-235. DOI: 10.18287/2412-6179-2018-42-2-227-235.
- [17] Khe VK, Ivanov VI. Sedimentation of particles by the light pressure in nanosuspension. *Proc SPIE* 2017; 10466: 104664K. DOI: 10.1117/12.2288774.
- [18] Cherepanov IN. Impurity redistribution in colloid mixtures. *Tech Phys* 2018; 63(12): 1703-1710. DOI: 10.1134/S1063784218120034.
- [19] Croccolo F, Garcia-Fernández L, Bataller H, Vailati A, de Zárate JMO. Propagating modes in a binary liquid mixtures under thermal stress. *Phys Rev E* 2019; 99(1): 012602. DOI: 10.1103/PhysRevE.99.012602.
- [20] Savelyev MV, Ivakhnik VV. Spatial selectivity of the four-wave radiation converter with allowance for gravity acting on nanoparticles dissolved in a transparent liquid. *Radiophys Quantum Electron* 2021; 63(8): 625-633. DOI: 10.1007/s11141-021-10085-9.
- [21] Remzov AD, Savelyev MV. Counterpropagating four-wave mixing in a transparent suspension of nanoparticles in the Earth's gravity field. *Bull Russ Acad Sci Phys* 2021; 85(12): 1415-1419. DOI: 10.3103/S1062873821120261.
- [22] Livashvili AI, Kostina GV, Yakunina MI. Temperature dynamics of a transparent nanoliquid acted on by a periodic light field. *J Opt Technol* 2013; 80(2): 124-126. DOI: 10.1364/JOT.80.000124.
- [23] Arandian A, Karimzadeh R, Faizabadi SY. The effect of laser wavelength and concentration on thermal nonlinear refractive index of graphene suspensions. *Nano* 2015; 10(4): 1550053. DOI: 10.1142/S1793292015500538.
- [24] Afanas'ev AA, Gaida LS, Kurochkin YuA, Novitsky DV, Svistun ACh. Concentration nonlinearity of a suspension of a gradient force in a periodically modulated laser field. *Quantum Electron* 2016; 46(10): 891-894. DOI: 10.1070/QEL16196.
- [25] Gerakis AA, Yeh Y-W, Shneider MN, Mitrani JM, Stratton BC, Raitzes Ye. Four-wave mixing approach to in situ detection of nanoparticles. *Phys Rev Appl* 2018; 9(1): 014031. DOI: 10.1103/PhysRevApplied.9.014031.

- [26] Larsson C, Kumar S. Nonuniformities in miscible two-layer two-component thin liquid films. *Phys Rev Fluids* 2021; 6(3): 034004. DOI: 10.1103/PhysRevFluids.6.034004.
- [27] Voyutskii SS, ed. Course of colloidal chemistry [In Russian]. Moscow: "Khimiya" Publisher; 1975.
- [28] Behera SK, Saha D, Gadige P, Bandyopadhyay R. Effects of polydispersity on the glass transition dynamics of aqueous suspensions of soft spherical colloidal particles. *Phys Rev Mater* 2017; 1(5): 055603. DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.1.055603.
- [29] Ivakhnik VV, Savelyev MV. Influence of the pump wave rotation and divergence on the spatial selectivity of a four-wave radiation converter in a transparent two-component medium. *Computer Optics* 2016; 40(1): 19-25. DOI: 10.18287/2412-6179-2016-40-1-19-25.

Сведения об авторах

Савельев Максим Валерьевич, 1990 года рождения. Кандидат физико-математических наук, доцент кафедры оптики и спектроскопии Самарского национального исследовательского университета имени академика С.П. Королева. Область научных интересов: нелинейная оптика, динамическая голография.
E-mail: belchonokenot@mail.ru.

Ремзов Андрей Дмитриевич, 1998 года рождения. Магистр 2 года обучения кафедры оптики и спектроскопии Самарского национального исследовательского университета имени академика С.П. Королева. Область научных интересов: нелинейная оптика, спектральный анализ наночастиц.
E-mail: remzov1998@mail.ru.

ГРНТИ: 29.33.27

Поступила в редакцию 10 февраля 2022 г. Окончательный вариант – 11 марта 2022 г.

Spatial and temporal characteristics of a four-wave radiation converter with due regard for Earth's gravity field acting on nanoparticles dissolved in a transparent liquid

M.V. Savelyev¹, A.D. Remzov¹

¹ Samara National Research University, 443086, Samara, Russia, Moskovskoye Shosse 34

Abstract

A theoretical analysis of the dynamics of the spatial spectrum of the object wave in a degenerate four-wave mixing in a transparent solution of nanoparticles in the classical scheme with counterpropagating pump waves is carried out. It is shown that when pump waves propagate orthogonally to the gravity force, a dip arises in the modulus of the spatial spectrum of the object wave, with its half-width nonmonotonically decreasing over time and increasing in the direction of gravity force with increasing radius of the nanoparticles. There is an optimal time over which the half-width of the dip in the direction of the gravity force reaches the lowest value. This time decreases monotonically with increasing nanoparticle radius, as well as with a decrease in the solution thickness.

Keywords: four-wave radiation converter, Earth's gravity field, transparent solution of nanoparticles.

Citation: Savelyev MV, Remzov AD. Spatial and temporal characteristics of a four-wave radiation converter with due regard for Earth's gravity field acting on nanoparticles dissolved in a transparent liquid. *Computer Optics* 2022; 46(4): 547-554. DOI: 10.18287/2412-6179-CO-1109.

Authors' information

Maxim Valeryevich Savelyev (b. 1990). Candidate of Physical and Mathematical Sciences, Associate Professor of Optics and Spectroscopy department of Samara National Research University. Research interests: nonlinear optics, dynamic holography E-mail: belchonokenot@mail.ru.

Andrey Dmitrievich Remzov (b. 1998). 2nd year Master of Optics and Spectroscopy department of Samara National Research University. Research interests: nonlinear optics, spectral analysis of nanoparticles. E-mail: remzov1998@mail.ru.

Received February 10, 2022. The final version – March 11, 2022.
