

## ЗАПИСЬ ДИНАМИЧЕСКОЙ ГОЛОГРАММЫ В РАСТВОРЕ КРАСИТЕЛЯ С УЧЕТОМ ДИФФУЗИИ

© 2005 Е.В.Воробьева, В.В. Ивахник, В.И. Никонов

Самарский государственный университет

Проанализирована пространственная селективность динамической голограммы в слое красителя при учете диффузии молекул красителя. Показано, что ширина полосы пространственных частот тонкой голограммы с ростом интенсивности излучения монотонно увеличивается. Ширина полосы пространственных частот объемной голограммы с ростом толщины слоя красителя уменьшается, выходя на предельное значение. Рост интенсивности излучения приводит, как к увеличению отличия предельного значения ширины полосы пространственных частот объемной голограммы от ширины полосы пространственных частот тонкой голограммы в плоскости  $z = 0$ , так и толщины слоя красителя, на котором наблюдается выход дифракционной эффективности голограммы на предельное значение.

### Введение

Растворы красителей явились исторически первыми нелинейными средами, на которых были записаны динамические голограммы [1]. Несмотря на значительное число работ, посвященных исследованию различных аспектов записи динамических голограмм в растворах красителей [2-6], по-прежнему, актуальной является задача установления однозначной связи между пространственными амплитудами объектной и восстановленной волн, исследования влияния на это соответствие параметров раствора красителя, характеристик волн, записывающих голограмму.

При записи динамической голограммы на слой раствора красителя направляются две когерентные волны, в результате интерференции которых возникает пространственное изменение интенсивности излучения. В соответствии с пространственным изменением интенсивности меняются заселенности основного и возбужденного состояний и, соответственно, макроскопические параметры раствора красителя (показатель преломления, коэффициент поглощения). Тепловое движение молекул красителя способствует выравниванию концентраций возбужденных и невозбужденных молекул. Таким образом, диффузия возбужденных и невозбужденных молекул может оказать существенное влияние на характеристики динамической голограм-

мы в растворе красителя [7-9].

В настоящей работе исследуется влияние диффузии на пространственную селективность динамической голограммы в растворе красителя, моделируемом трехуровневой схемой энергетических уровней.

### Запись голограммы

Пусть тонкий слой красителя располагается в плоскости  $z = 0$ . Будем записывать голограмму плоскими волнами, падающими на слой красителя под одинаковыми углами. Тогда распределение интенсивности в зависимости от поперечной координаты  $x$  будет иметь следующий вид

$$I = I_0(1 + f \cdot \cos[Kx + \varphi(t)]). \quad (1)$$

Здесь  $I_0$  и  $\varphi(t)$  – средняя интенсивность и разность фаз волн, записывающих голограмму,  $K$  и  $f$  – пространственная частота и глубина модуляции записываемой интерференционной решетки.

Периодическое изменение интенсивности излучения приводит к периодическому изменению заселенности энергетических уровней красителя. Используя разложение в ряд Фурье, представим заселенности энергетических уровней в виде суммы

$$N_l = \sum_{j=-\infty}^{\infty} N_{lj} \exp(-ijKx). \quad (2)$$

Здесь  $l = 1 \div m$ ,  $m$  – число энергетических уровней.

Рассмотрим запись динамической голограммы в красителе, моделируемой трехуровневой схемой энергетических уровней. Пусть один из уровней является метастабильным. У молекулы красителя метастабильное состояние, как правило, имеет триплетную природу. Кинетические уравнения, описывающие изменение заселенностей основного синглетного ( $N_1$ ), возбужденных синглетного ( $N_2$ ) и триплетного ( $N_3$ ) уровней с учетом диффузии молекул красителя есть [10]

$$\begin{cases} \frac{dN_1}{dt} = -N_1 I \sigma_{12} + N_2 (I \sigma_{21} + \delta_{21}) + \\ \quad + N_3 \delta_{31} + D \nabla^2 N_1, \\ \frac{dN_2}{dt} = N_1 I \sigma_{12} - N_2 (I \sigma_{21} + \delta_{21} + \delta_{23}) + \\ \quad + D \nabla^2 N_2, \\ N = N_1 + N_2 + N_3. \end{cases} \quad (3)$$

Здесь  $\sigma_{ij}$  и  $\delta_{ij}$  – сечения поглощения (испускания) и вероятности безызлучательных переходов между  $i$  и  $j$  энергетическими уровнями,  $D$  – коэффициенты диффузии. При записи (3) считали, что коэффициент диффузии не зависит от энергетического состояния молекулы красителя.

Будем использовать следующие приближения:

- пространственное изменение заселенностей происходит по гармоническому закону ( $N_{l1} \gg N_{l2} \gg \dots$ );

- глубина модуляции заселенностей небольшая ( $N_{l0} \gg N_{l1}$ ).

С учетом сделанных приближений после подстановки (1) и (2) в систему уравнений (3) оно распадается на две системы дифференциальных уравнений: для средних значений заселенностей энергетических уровней

$$\begin{cases} \frac{dN_{10}}{dt} = -N_{10} I_0 \sigma_{12} + N_{20} (I_0 \sigma_{21} + \delta_{21}) + N_{30} \delta_{31}, \\ \frac{dN_{20}}{dt} = N_{10} I_0 \sigma_{12} - N_{20} (I_0 \sigma_{21} + \delta_{21} + \delta_{23}), \\ N = N_{10} + N_{20} + N_{30}, \end{cases} \quad (4)$$

для амплитуд первых гармоник в разложении заселенностей энергетических уровней в ряд

$$\begin{cases} \frac{dN_{11}}{dt} = -N_{11} (I_0 \sigma_{12} + DK^2) + N_{21} (I_0 \sigma_{21} + \delta_{21}) + \\ \quad + N_{31} \delta_{31} + F(t), \\ \frac{dN_{21}}{dt} = N_{11} I_0 \sigma_{12} - N_{21} (I_0 \sigma_{21} + \delta_{21} + \delta_{23} + DK^2) - \\ \quad - F(t), \\ N_{11} + N_{21} + N_{31} = 0. \end{cases} \quad (5)$$

Здесь

$$F(t) = -\frac{1}{2} I_0 f(N_{10} \sigma_{12} - N_{20} \sigma_{21}) \exp\{-i\varphi(t)\}.$$

С учетом начальных условий для средних значений заселенностей энергетических уровней

$N_{10}(t=0) = N$ ,  $N_{20}(t=0) = N_{30}(t=0) = 0$  из (4) для установившегося процесса ( $t \gg 1/|\lambda_{1,2}|$ ) имеем

$$\begin{cases} N_{10} = \frac{N \delta_{31} (I_0 \sigma_{21} + \delta_{21} + \delta_{23})}{I_0 \sigma_{12} \delta_{23} + \delta_{31} [I_0 (\sigma_{12} + \sigma_{21}) + \delta_{21} + \delta_{23}]}, \\ N_{20} = \frac{N \delta_{31} I_0 \sigma_{12}}{I_0 \sigma_{12} \delta_{23} + \delta_{31} [I_0 (\sigma_{12} + \sigma_{21}) + \delta_{21} + \delta_{23}]}. \end{cases} \quad (6)$$

Решая систему уравнений (5) с учетом начальных условий  $N_{11}(t=0) = N_{21}(t=0) = N_{31}(t=0) = 0$  для установившегося процесса, получим следующие выражения для  $N_{11}$  и  $N_{21}$ :

$$\begin{cases} N_{11} = (I_0 \sigma_{21} + \delta_{21} - \delta_{31}) \sum_{j=1}^2 \frac{C_j \exp(\lambda_j t)}{\lambda_j + I_0 \sigma_{12} + \delta_{31} + DK^2}, \\ N_{21} = \sum_{j=1}^2 C_j \exp(\lambda_j t). \end{cases} \quad (7)$$

где

$$C_{1,2} = \pm \frac{\lambda_{2,1} + I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21}) + \delta_{21} + \delta_{23} + DK^2}{\lambda_1 - \lambda_2} \times \left( \sigma_{12} - \frac{(I_0\sigma_{21} + \delta_{21} - \delta_{31})\sigma_{12}}{\lambda_{1,2} + I_0\sigma_{12} + \delta_{31} + DK^2} \right) \times \int_0^t F(t') \exp(-\lambda_{1,2}t') dt',$$

$$\lambda_{1,2} = -\frac{1}{2} [I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21}) + \delta_{21} + \delta_{23} + \delta_{31} + 2DK^2] \pm \sqrt{\frac{1}{4} [I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21}) + \delta_{21} + \delta_{23} - \delta_{31}]^2 - I_0\sigma_{12}\delta_{23}}.$$

### Считывание голограммы

Будем считывать голограмму излучением на длине волны, совпадающей с длиной волны излучения, записывающего голограмму. Пусть интенсивность считывающей волны намного меньше интенсивности волн, записывающих голограмму, тогда распространение считывающей волны не меняет заселенности энергетических состояний красителя.

Для рассматриваемой трехуровневой модели красителя коэффициент поглощения связан с заселенностью основного энергетического уровня соотношением вида

$$\alpha = N_1\sigma_{12} - N_2\sigma_{21} = N_1(\sigma_{12} + \sigma_{21}) - N\sigma_{21}. \quad (8)$$

С учетом (3) коэффициент поглощения красителя можно представить в виде суммы

$$\alpha = \sum_{j=-\infty}^{\infty} \alpha_j \exp(-ijKx). \quad (9)$$

Подставив выражения для заселенностей энергетических уровней (6), (7) в формулу для коэффициента поглощения (8) при  $j = 1$ , получим для установившегося процесса выражение для амплитуды первой гармоники в разложении коэффициента поглощения в ряд:

$$\alpha_1 = \chi_0 \int_0^t \sum_{j=1}^2 B_j \exp[\lambda_j(t-t')] \exp[-i\varphi(t')] dt', \quad (10)$$

где

$$\chi_0 = -\frac{Nf\delta_{31}I_0\sigma_{12}(\delta_{21} + \delta_{23})(\lambda_2 - \lambda_1)^{-1}}{2\{I_0\sigma_{12}\delta_{23} + \delta_{31}[I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21}) + \delta_{21} + \delta_{23}]\}},$$

$$B_{1,2} = \pm (\lambda_{2,1} + I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21}) + \delta_{21} + \delta_{23} + DK^2) \times$$

Если голограмма тонкая, т.е. изменением интенсивностей волн, записывающих голограмму, на ее толщине можно пренебречь, то амплитуда волны, восстановленной с голограммы ( $A_d$ ), с точностью до постоянного множителя определяется амплитудой первой гармоники в разложении коэффициента поглощения в ряд

$$A_b = \alpha_1.$$

Тогда временной отклик тонкой динамической голограммы в растворе красителя, моделируемом трехуровневой схемой энергетических уровней, будет иметь вид:

$$\chi(t-t') = \chi_0 \sum_{j=1}^2 B_j \exp[\lambda_j(t-t')]. \quad (11)$$

Временной отклик тонкой динамической голограммы представляет сумму двух экспоненциальных функций, весовые коэффициенты ( $B_j$ ) и скорость уменьшения во времени ( $\lambda_j$ ) которых зависят от интенсивности, пространственной частоты записываемой интерференционной решетки, параметров красителя.

Проводя рассуждения, аналогичные рассуждениям выше, можно показать, что при записи динамической голограммы в растворе красителя, моделируемом трехуровневой схемой с учетом возбужденных синглетных энергетических уровней [4], вид временного отклика также описывается выражением (11). Меняются выражения для коэффициентов

$\chi_0, B_j, \lambda_j$ :

$$\chi_0 = \frac{fNI_0(I_0\sigma_{21} + \delta_{21})\sigma_{12}\delta_{32}}{2\lambda_{10}\lambda_{20}(\lambda_2 - \lambda_1)},$$

$$\lambda_{10,20} = \lambda_{1,2}(K = 0),$$

$$\lambda_{1,2} = -\frac{[I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21} + \sigma_{23}) + \delta_{21} + \delta_{32} + 2DK^2]}{2} \pm$$

$$\pm \left\{ \frac{[I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21} + \sigma_{23}) + \delta_{21} + \delta_{32}]^2}{4} - \right.$$

$$-I_0 \left[ \sigma_{12} (I_0 \sigma_{23} + \delta_{32}) + \sigma_{21} \delta_{32} \right] - \delta_{21} \delta_{32} \left. \right\}^{\frac{1}{2}},$$

$$B_{1,2} = \pm \left( \sigma_{12} - \frac{(\sigma_{21} - \sigma_{23})(\lambda_{1,2} + I_0 \sigma_{12} + DK^2)}{I_0 \sigma_{21} + \delta_{21}} \right) \times$$

$$\times \left( \delta_{21} - I_0 \sigma_{23} + \frac{(\lambda_{2,1} + I_0 \sigma_{12} + DK^2) \delta_{21}}{I_0 \sigma_{21} + \delta_{21}} \right).$$

При записи стационарной голограммы ( $\varphi(t) = const$ ) из (10) дифракционная эффективность тонкой голограммы ( $h = A_b A_b^*$ ) есть

$$h = \chi_0^2 \left\{ \sum_{j=1}^2 \frac{B_j}{\lambda_j} \right\}^2. \quad (12)$$

Численный анализ (12) для динамической голограммы в красителе с учетом возбужденных синглетного и триплетного энергетических уровней, показывает, что с увеличением пространственной частоты дифракционная эффективность голограммы (ДЭГ) уменьшается.

Для характеристики пространственной селективности голограммы введем понятие ширины полосы пространственных частот ( $\Delta K$ ), в пределах которой ДЭГ отличается от ДЭГ при  $K \rightarrow 0$  не более, чем в  $e$  раз

$$h(K = \Delta K) = \frac{1}{e} h(K \rightarrow 0). \quad (13)$$

На рис. 1 приведен характерный график зависимости ширины полосы пространственных частот, а на рис. 2 характерный график зависимости ДЭГ при “нулевой” пространственной частоте от интенсивности излучения.

С увеличением интенсивности излучения ширина полосы пространственных частот монотонно увеличивается, при этом  $h(K \rightarrow 0)$  вначале возрастает, а затем уменьшается. Существует оптимальное значение интенсивности ( $I_{0,opt}$ ), зависящее от параметров красителя, при котором дифракционная эффективность тонкой голограммы максимальна. Оптимальное значение интенсивности и размер области интенсивности, в пре-

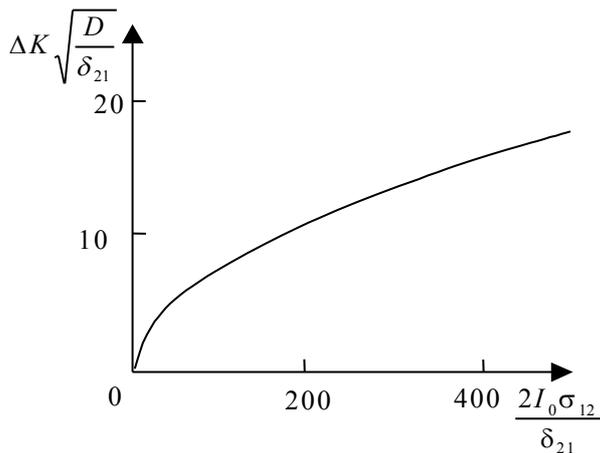


Рис. 1. Зависимость ширины полосы пространственных частот от интенсивности

излучения ( $\frac{\delta_{31}}{\delta_{21}} = 0,01; \frac{\delta_{23}}{\delta_{21}} = 0,1$ )

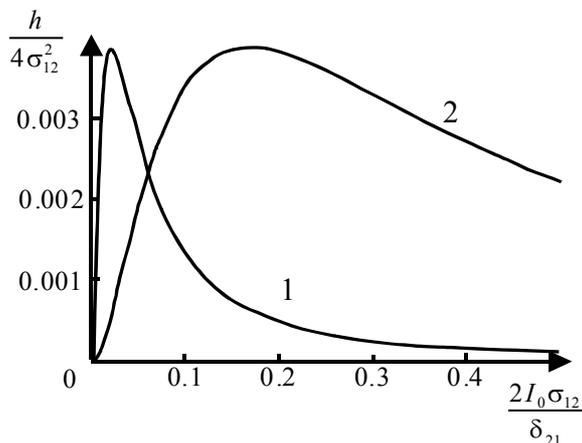


Рис. 2. Зависимость ДЭГ при “нулевой” пространственной частоте от интенсивности

излучения ( $\frac{\delta_{31}}{\delta_{21}} = 0,001; 1 - \frac{\delta_{23}}{\delta_{21}}$ ;

$2 - \frac{\delta_{23}}{\delta_{21}} = 0,01$ )

делах которой интенсивность излучения отличается от  $I_{0,opt}$  в два раза, возрастает с уве-

личением параметров красителя  $\frac{\delta_{31}}{\delta_{21}}$  и  $\frac{\delta_{21}}{\delta_{23}}$ .

При малой интенсивности излучения ( $\sigma_{12} I_0 \ll \delta_{ij}$ ) в зависимости от параметров красителя ширина полосы частот тонкой голограммы расположена в интервале от

$$\Delta K_1 = \sqrt{\frac{\delta_{31}(\sqrt{e}-1)}{D}} \text{ до } \Delta K_2 = \sqrt{\frac{(\delta_{21} + \delta_{23})(\sqrt{e}-1)}{D}}.$$

При большой интенсивности излучения ( $\sigma_{12}I_0 \gg \delta_{ij}$ ) ширина полосы частот в зависимости от  $I_0$  изменяется по закону:

$$\Delta K_\infty = \sqrt{\frac{I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21})(\sqrt{e} - 1)}{D}}$$

### Пространственная селективность объемной голограммы

Рассмотрим запись голограммы в слое красителя, расположенном между плоскостями  $z = 0$  и  $z = L$ . Представим объемную голограмму в виде суммы тонких голограмм. С точностью до постоянного множителя амплитуду волны, восстановленной с тонкой голограммы толщиной  $dz$ , расположенной на расстоянии  $z$  от плоскости  $z = 0$ , можно представить в виде

$$dA_b = g\alpha_1(t, z)dz, \quad (14)$$

где  $g^2 = \frac{I_0(z=L)}{I_0(z=0)}$  – коэффициент, учитывающий ослабление считывающей и восстановленной волн по мере их распространения в растворе красителя. Для нахождения амплитуды волны, восстановленной с объемной голограммы, необходимо когерентно просуммировать амплитуды волн, восстановленных с тонких голограмм,

$$A_b = g \int_0^L \alpha_1(t, z) dz. \quad (15)$$

Для установившегося режима записи голограммы стационарного объекта с учетом выражения (10) амплитуда восстановленной волны есть

$$A_b = g \int_0^L \chi_0(z) \sum_{j=1}^2 \frac{B_j(z)}{\lambda_j(z)} dz. \quad (16)$$

Выражение (16) необходимо дополнить уравнением Бугера – Ламберта – Бера, описывающим изменение интенсивности излучения, записывающего голограмму, по толщине слоя красителя

$$\frac{dI_0}{dz} = - \frac{N\delta_{31}\sigma_{12}(\delta_{21} + \delta_{23})}{I_0\sigma_{12}\delta_{23} + \delta_{31}[I_0(\sigma_{12} + \sigma_{21}) + \delta_{21} + \delta_{23}]} I_0, \quad (17)$$

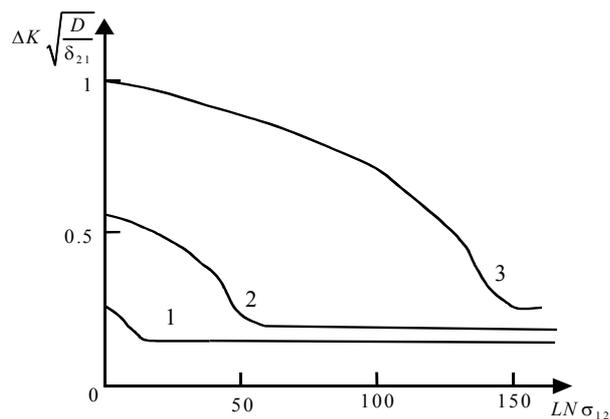


Рис. 3. Зависимость ширины полосы частот от толщины слоя красителя

$$\left( \frac{\delta_{31}}{\delta_{21}} = 0,01; \frac{\delta_{23}}{\delta_{21}} = 10; 1 - \frac{2I_0\sigma_{12}}{\delta_{21}} = 0,2; \right. \\ \left. 2 - \frac{2I_0\sigma_{12}}{\delta_{21}} = 1; 3 - \frac{2I_0\sigma_{12}}{\delta_{21}} = 3 \right).$$

Пространственную селективность объемной голограммы, как и в случае тонкой голограммы, будем описывать шириной полосы частот, определяемой соотношением (13). На рис. 3 приведена характерная зависимость ширины полосы частот от толщины слоя красителя при различных значениях интенсивности излучения на передней грани слоя красителя. С увеличением толщины голограммы ширина полосы частот вначале уменьшается, а затем выходит на некоторое предельное значение.

Пространственная селективность объемной голограммы определяется пространственной селективностью тонких голограмм, из которых состоит объемная голограмма. Максимальный вклад в дифракционную эффективность объемной голограммы дают тонкие голограммы, расположенные в области слоя красителя, в которой выполняется условие  $I_0 \approx I_{0,opt}$ . Именно тонкие голограммы, расположенные в этой области, определяют ширину полосы пространственных частот объемной голограммы.

При  $I_0 < I_{0,opt}$  максимальный вклад в дифракционную эффективность объемной голограммы дают тонкие голограммы, расположенные вблизи плоскости  $z = 0$ . При  $I_0 > I_{0,opt}$  с ростом интенсивности излучения

$I_0$  область слоя красителя, тонкие голограммы которой дают максимальный вклад в дифракционную эффективность объемной голограммы, смещается вглубь слоя. Это объясняет как увеличение отличия предельного значения ширины полосы пространственных частот объемной голограммы от ширины полосы пространственных частот тонкой голограммы в плоскости  $z = 0$ , так и рост толщины слоя красителя, на котором наблюдается выход ДЭГ на предельное значение.

### Заключение

Проведенные исследования показывают, что диффузия молекул красителя оказывает существенное влияние на пространственную селективность динамической голограммы.

Приведем некоторые оценки ширины полосы пространственных частот динамической голограммы в растворе красителя. В качестве раствора красителя воспользуемся раствором эозина К в этаноле, описываемым трехуровневой схемой энергетических уровней с возбужденными синглетным и триплетным уровнями. При расчете временного отклика будем использовать следующие значения вероятностей безызлучательных переходов:  $\delta_{21} = 3,6 \cdot 10^8 \text{ н}^{-1}$ ,  $\delta_{23} = 7,6 \cdot 10^8 \text{ н}^{-1}$ ,

$\delta_{31} = 10^3 \text{ н}^{-1}$  [10-11]. Для тонкой динамической голограммы, используя выражения для дифракционной эффективности, получим, что при оптимальной интенсивности излучения

ширина полосы пространственных частот равна  $\frac{2\sigma_{12}}{\delta_{21}} I_{0,opt} = 8,24 \cdot 10^{-6}$  нормированная ширина

на  $\Delta K \sqrt{\frac{D}{\delta_{21}}} = 0,0019$ . При значении коэффициента диффузии  $D = 10^{-9} \text{ м}^2 / \text{с}$  ширина полосы пространственных частот динамической голограммы принимает значение  $\Delta K = 1,14 \cdot 10^6 \text{ м}^{-1}$ .

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Степанов Б.И., Ивакин Е.В., Рубанов А.С. // ДАН СССР. 1971. Т.196. №3.
2. Ивакин Е.В., Кабанов В.В., Рубанов А.С., Степанов Б.И. // Известия АН СССР. Сер. физическая. 1988. Т. 52. №6.
3. Кабанов В.В., Рубанов А.С., Толстик А.В., Чалей А.В. // ЖПС. 1984. Т.41. №6.
4. Кабанов В.В., Рубанов А.С. // Квантовая электроника. 1982. Т.9. №6.
5. Mases E.I., Wu F.X. // Optics Letts. 1980. V.5. №2.
6. Nikolova M.G., Stoyanova K., Todorov T., Tatanenko V. // Opt. Commun. 1987. V.64. №1.
7. Галушкин М.Г., Серегин А.М., Федоров А.Б., Чебуркин Н.В. // Квантовая электроника. 1983. Т.10. №10.
8. Бельдюгин И.М., Лепешкин А.А., Степанов А.А., Щеглов В.А. // Оптика и спектроскопия. 1987. Т.63. №6.
9. Ивахник В.В., Никонов В.И. // Оптика и спектроскопия. 2003. Т.94. №1.
10. Введение в фотохимию органических соединений / Под ред. Г.О.Беккера. Л.:Химия, 1976.
11. Сизых А.Г., Тараканова Е.А. // Квантовая электроника. 1998. Т.25. №12.

## THE DYNAMIC HOLOGRAM RECORDING IN A DYE SOLUTION WITH ALLOWANCE FOR DIFFUSION

© 2005 E.V. Vorobeva, V.V. Ivakhnik, V.I. Nikonov

Samara State University

Spatial selectivity of a dynamic hologram in a dye solution is analyzed, with allowance made for diffusion of dye molecules. It was shown, that with the growth of the radiation intensity the bandwidth of spatial frequencies of a thin hologram increases monotonously. The bandwidth of spatial frequencies of a volumetric hologram with the growth of the dye thickness decreases, approaching the limiting value. The radiation intensity growth results in both the increasing the difference limiting value of the bandwidth of spatial frequencies of a volumetric hologram from the bandwidth of spatial frequencies of a thin hologram in a plane  $z = 0$ , and the increasing thickness of the dye layer, at which the hologram diffraction efficiency reaches the limiting value.