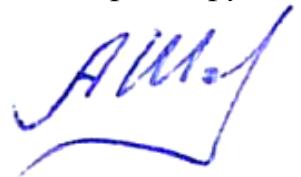


ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ  
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ  
«СИБИРСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»

*На правах рукописи*



Шамшурин Алексей Валерьевич

**УСИЛЕНИЕ СВЕТА В МОЛЕКУЛАХ  
СЕЛЕКТИВНО ПО СОСТОЯНИЯМ  
ОРИЕНТИРОВАННЫХ ВНЕШНИМ ПОЛЕМ**

**1.3.6. Оптика**

Диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
д.ф.-м.н., проф.  
Слабко Виталий Васильевич

Красноярск — 2025

## ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение.....	5
<b>Глава 1.</b> Обзор литературы. Современное состояние исследований, актуальность, перспективы .....	
1.1 Инверсия населенностей .....	12
1.2 Ранние идеи получения усиления света без инверсии населенностей.....	16
1.3 Атомная интерференция (многоуровневые схемы).....	17
1.4 Светоиндуцированный дрейф.....	25
1.5 Селективная по состояниям ориентация молекул внешним полем.....	27
1.6 Выводы к главе 1 .....	28
<b>Глава 2.</b> Модель безынверсного усиления света дихроичными молекулами..... 29	
2.1 Оптические характеристики дихроичной молекулярной среды .....	29
2.2 Усиление в различных средах.....	35
2.2.1 Полярные молекулы.....	35
2.2.2 Неполярные молекулы.....	37
2.3 Аналогия с четырехуровневой системой.....	39
2.4 Математическая модель процесса ориентации молекул на основе решения системы кинетических уравнений .....	40
2.5 Метод экспоненциальной подгонки .....	45
2.6 Постановка математической задачи .....	46
2.7 Алгоритм численного моделирования .....	48
2.7.1 Построение экспоненциальной разностной схемы для дифференциального уравнения первого порядка .....	49
2.7.2 Построение экспоненциальной разностной схемы для диффузионно-конвективного уравнения .....	51
2.7.3 Разностный оператор для кинетического уравнения .....	52
2.8 Построение экспоненциальной разностной схемы.....	55
2.9 Консервативность, аппроксимация и устойчивость разностной схемы.....	59

2.10 Тестовые расчеты и достоверность результатов.	
Иллюстрация сходимости нестационарной задачи к стационарной .....	63
2.11 Выводы к главе 2 .....	66
<b>Глава 3. Исследование установившегося режима ориентации молекул</b>	
во внешнем импульсном поле с учетом переходов между энергетическими	
уровнями.....	68
3.1 Основные уравнения.....	68
3.2 Ориентация полярных молекул .....	69
3.2.1 Влияние отношения времен жизни возбужденного и основного состояния	
и времени ориентационного равновесия на вид статистических функций .....	70
3.2.2 Влияние величины параметров ориентации на значение статистических	
функций распределения и коэффициент усиления.....	72
3.3 Ориентация неполярных молекул .....	76
3.3.1 Влияние величины параметров ориентации на значение функций	
статистического распределения и коэффициент усиления.....	77
3.3.2 Ориентация в лазерном поле.....	79
3.4 Обсуждение результатов главы 3 .....	81
3.5 Выводы и заключение главы 3.....	82
<b>Глава 4. Исследование переходных процессов ориентации молекул</b>	
во внешнем импульсном поле.....	83
4.1 Введение.....	83
4.2 Процессы, происходящие при мгновенном включении	
ориентирующего поля (переходные процессы) .....	84
4.3 Динамика переходных процессов при ориентировании	
полярных молекул .....	87
4.3.1 Случай 1 ( $p_1 < p_2$ , $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ ) .....	88
4.3.2 Случай 2 ( $p_1 > p_2$ , $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ ).....	97
4.3.3 Время коммутации электрического ориентирующего поля.....	100

4.4 Динамика переходных процессов при ориентировании неполярных молекул .....	102
4.4.1 Случай 1 ( $0 < q_1 < q_2$ , $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ ).....	103
4.4.2 Случай 2 ( $q_1 > q_2 > 0$ , $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ ).....	105
4.4.3 Время коммутации лазерного импульсного ориентирующего поля .....	106
4.5 Оценки параметров среды и ориентирующего поля .....	108
4.6 Выводы и заключение главы 4.....	111
Выводы к диссертации.....	113
Список сокращений и условных обозначений .....	115
Благодарности.....	118
Список литературы .....	119

## ВВЕДЕНИЕ

### Актуальность

Одним из выдающихся научных и технических достижений XX века является создание оптических квантовых генераторов — лазеров, открывших новую, перспективную область научно-технических применений, широко используемых теперь в науке и технике. Сегодня лазерная индустрия стала одной из ведущих мировых отраслей наукоемкой промышленности. Степень оснащения лазерным оборудованием является одним из главных критериев оценки уровня индустриализации государства.

Как известно лазер (от англ. *laser*, акроним *light amplification by stimulated emission of radiation* — «усиление света посредством вынужденного излучения»), — это генератор электромагнитного излучения, работающий на принципе квантового усиления. Работа лазера основана на сформулированном Эйнштейном принципе индуцированных светом переходов между основным и возбужденном состояниях. Немаловажным дополнением является также наличие инверсии населенностей, при которой населенность верхнего уровня должна быть больше населенности нижнего. Использование термодинамически неравновесных условий инверсию населенностей удается получить, а, следовательно, и, сформировать среду способную усиливать резонансное переходе излучение.

Тем не менее, большой интерес как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения является вопрос о возможности усиления света в термодинамически равновесной среде. В частности, большое значение может приобрести возможность безинверсного усиления для решения проблемы генерации коротковолнового излучения, где обычные методы, основанные на инверсии населенности, недоступны или труднореализуемы. Кроме того, при усиении без инверсии населенностей возможно создание квантово-электронных устройств способных преобразовывать излучение с низкой степенью упорядоченности (некогерентного) в упорядоченное (когерентное) при соответствующим уменьшении энтропии. От-

метим, что рассмотрению этой проблемы посвящено достаточно большое количество работ, в которых предлагаются различные схемы усиления без инверсии населеностей, обобщенных в обзорных статьях [1, 2], а также в более поздних публикациях (более подробно обзор дан в Главе 1).

В основе этой диссертации лежит оригинальная идея, предложенная ранее в работах А. К. Попова и В. В. Слабко, о возможности усиления света в системе селективно по состояниям ориентированных молекул во внешнем постоянном электрическом или электромагнитном поле. Диссертация направлена на дальнейшее развитие этой концепции.

Суть идеи заключается в том, что при воздействии внешнего ориентирующего поля на систему дихроичных молекул энергия их взаимодействия с полем зависит от состояния молекулы (основное или возбуждённое). Наличие внешнего поля приводит к ориентации молекул в зависимости от их состояния. Это, в свою очередь, вызывает различия в вероятностях переходов с поглощением поляризованного света и индуцированным излучением, и, следовательно, к возможности создания условий для безынверсного усиления света. В работах указанных авторов было получено аналитическое решение для коэффициента усиления в стационарном случае в приближении малости соотношения между временем установления ориентационного равновесия  $\tau_0$  (временем ориентационной релаксации) и временами жизни возбужденного состояния  $\tau_2^{eff}$ . Было показано, что усиление без инверсии возможно, но при достаточно жестком соотношении параметров названных выше, характерном значении пробойного напряжения ориентирующего поля и величины дипольных моментов в основном и возбужденном состоянии. Из этого следует, что выбор объектов для экспериментальной проверки ограничен, и необходимы дополнительные исследования.

В дальнейшем, при численном анализе задачи в работах с участием автора диссертации было показано, что требование малости времени ориентационной релаксации молекул в поле по сравнению со временем жизни возбужденного состояния может быть несколько ослаблено. Однако, возможность получения уси-

ления в стационарном случае в ориентирующих полях ниже пробойных хотя и возможно, но вызывает ряд сомнений при планировании эксперимента. Поэтому важно было проанализировать возможность повышения порогового значения ориентирующего поля в импульсном режиме для молекул, обладающих постоянным дипольным моментом (полярных молекул), а также ориентация в поле импульсного лазерного излучения для неполярных молекул, и выявить особенности поведения коэффициента усиления в зависимости от времени.

Сказанное выше обосновывает **актуальность** рассматриваемой проблемы и **практическую значимость**.

**Объект исследования** — условия для усиления света дихроичными молекулами, ориентированными селективно по состояниям путем наложения внешнего поля.

**Предмет исследования** — усиление света дихроичными молекулами, селективно по состояниям ориентированными во внешнем ориентирующем поле.

**Целью данной работы** является установление условий усиления света в молекулах, селективно по состояниям ориентированных внешним полем в отсутствии инверсии населенностей.

Для достижения поставленной цели были сформулированы следующие **задачи**:

1. Разработать расчетно-теоретическую модель и адекватную ей методику численного исследования взаимодействия двухуровневых дихроичных молекул, селективно по состояниям ориентированных внешним полем, с резонансным (пробным) излучением. При этом предполагается произвольное соотношение времен жизни основного и возбужденного состояний молекул, а также произвольное соотношение времени жизни возбужденного состояния и времени установления ориентационного равновесия, в том числе с учетом нестационарности ориентирующего поля.

2. Исследовать особенности усиления света полярными молекулами, ориентированными селективно по состояниям, путем наложения внешнего импульсного электрического поля.

3. Выявить особенности усиления света неполярными молекулами, ориентированными селективно по состояниям, путем наложения внешнего импульсного лазерного излучения.

### **Методы исследования**

Для решения поставленных задач использовались расчетно-теоретические методы исследования. Процессы ориентации, селективно по состояниям, дихроичных молекул во внешнем поле описываются системой нестационарных кинетических уравнений. Данные уравнения можно отнести к диффузионно-конвективным дифференциальным уравнениям. Численное решение нестационарных уравнений кинетических уравнений проводилось при помощи метода экспоненциальной подгонки.

### **Научная новизна исследования**

1. Получена система кинетических уравнений, описывающая ориентацию молекул под воздействием как стационарного, так и импульсного ориентирующего поля с учетом вероятностей переходов между рабочими уровнями, временем установления ориентационного равновесия, населеностей уровней. Предложен алгоритм численного решения системы нестационарных кинетических уравнений на основе метода экспоненциальной подгонки. Продемонстрирована целесообразность использования этого метода для решения системы нестационарных кинетических уравнений, связывающих функции распределения по ориентациям дихроичных молекул, находящихся в основном и возбужденном состояниях.

2. Выполнены исследования влияния соотношения между временем жизни возбужденного состояния и временем установления ориентационного равновесия на возможность усиления света в системе двухуровневых дихроичных молекул, селективно по состояниям ориентированных внешним полем.

3. Показано, что при включении ориентирующего поля на его переднем фронте в коэффициенте усиления возникает выброс, приводящий к его кратному увеличению по сравнению с квазистационарным случаем. Исследованы характе-

ристики влияния фронта ориентирующего поля на поведение коэффициента усиления. Данна интерпретация этого явления.

### **Практическая значимость и использование результатов работы**

Результаты, полученные в диссертационной работе, могут быть использованы при разработке новых типов лазеров коротковолнового диапазона, однодиапазонных оптических усилителей, усовершенствованных квантовых фотонных приборов. Предложенный высокоэффективный численный алгоритм на основе метода экспоненциальной подгонки для моделирования нестационарных диффузионно-конвективных уравнений "с источником слагаемым" позволяет решать широкий спектр задач в науке и технике, а также в ряде других приложений.

### **Защищаемые положения**

1. Разработанная модель адекватно описывает процессы усиления пробного излучения в системе селективно по состояниям ориентированных внешним полем молекулах, что подтверждается в предельных случаях совпадением с аналитическим решением, консервативностью и устойчивостью использующейся разностной схемы.

2. В случае, когда энергия взаимодействия молекулы с ориентирующим полем в основном состоянии больше, чем в возбужденном увеличение значения ориентирующего поля приводит к существованию усиления даже  $\tau_0/\tau_2^{eff} \leq 1$ . Последнее связано с подавлением вероятности перехода из основного состояния в возбужденное. Данное утверждение справедливо как для полярных, так и неполярных молекул.

3. Наличие резкого выброса коэффициента усиления при включении ориентирующего поля обусловлено переходными процессами ориентации молекул и связано с разностью скоростей ориентации молекул в поле в основном и возбужденном состоянии. При этом величина этого выброса растет с увеличением ориентирующего поля и разностью между энергией взаимодействия молекулы с ори-

ентирующим полем в основном и возбужденном состояниях, а длительность уменьшается. Учет переходных процессов позволяет значительно увеличить усиление (в несколько раз), вплоть до смены поглощения на усиление.

**Личный вклад** заключается в постановке, совместно с научным руководителем, цели и задач исследования, в моделировании процессов ориентации дихроичных молекул во внешнем поле с учетом переходов между уровнями энергии; анализе и интерпретации полученных данных, а также в подготовке научных статей и тезисов докладов, отражающих основные результаты исследования. Разработка методики численного исследования осуществлялась совместно с Игорем Анатольевичем Кузоватовым.

### **Апробация результатов работы**

Основные результаты работы были представлены и обсуждены на XLIX Международной научной студенческой конференции «Студент и научно-технический прогресс»: Физика – Новосибирск: Новосибирский государственный университет, 16–20 апреля 2011 года; Международной конференции «Современные проблемы прикладной математики и механики: теория, эксперимент и практика», посвященной 90-летию со дня рождения академика Н.Н. Яненко. – Новосибирск, 30 мая – 4 июня 2011 года; Международной конференции студентов, аспирантов и молодых учёных «Проспект Свободный – 2016», посвящённой Году образования в Содружестве Независимых Государств – Красноярск: Сибирский федеральный университет, 15-25 апреля 2016 года; XXI Всероссийском семинаре «Моделирование неравновесных систем – 2018» – Красноярск: Институт вычислительного моделирования Сибирского отделения Российской академии наук, 05–07 октября 2018 года; Всероссийской научной конференции с международным участием «Енисейская Фотоника – 2022» – Красноярск: Сибирский федеральный университет, 19–24 сентября 2022 года; XIX Международной молодежной конференции по люминесценции и лазерной физике – Иркутск: Иркутский филиал Института лазерной физики СО РАН, 3–8 июля 2023 года; Всероссийской научной

конференции с международным участием «Енисейская Фотоника – 2024» – Красноярск: Сибирский федеральный университет, 16–20 сентября 2024 года.

### **Публикации**

По теме диссертации опубликовано 5 статей в периодических рецензируемых научных журналах [3–7], из них 3 входят в список ВАК и индексируются в базах данных Web of Science и/или Scopus [3–5], 2 свидетельства о государственной регистрации программы для ЭВМ [8–9] и 7 работ в сборниках тезисов международных и всероссийских конференций [10–16].

### **Объем и структура диссертации**

Работа состоит из введения, четырех разделов, основных выводов и списка литературы. Общий объем диссертационной работы 130 страниц, включая 32 рисунка, 1 таблицу. Список литературы включает 103 наименования.

## ГЛАВА 1

**Обзор литературы. Современное состояние исследований,  
актуальность, перспективы**

В данной главе дан обзор существующих способов получения усиления света в отсутствии традиционной инверсии заселеностей. Формулируются основные задачи и направления исследования по теме диссертации.

### **1.1 Инверсия населенностей**

В основе работы оптического квантового генератора лежат следующие процессы взаимодействия электромагнитной волны с веществом: спонтанное, вынужденное излучение и поглощение. А. Эйнштейн в начале XX столетия [17], исследуя взаимодействие между электромагнитным излучением и группой молекул в замкнутом пространстве, показал, что возбуждённая частица может излучать не только спонтанно, но и под воздействием взаимодействующего с ней кванта внешнего электромагнитного поля.

Процесс перехода с более низкого энергетического уровня  $E_1$  на более высокий  $E_2$  сопровождающийся поглощением фотона с энергией  $\hbar\omega = E_2 - E_1$  называют поглощением. Переход с верхнего уровня  $E_2$  на нижний  $E_1$  под воздействием взаимодействующего с ней кванта внешнего электромагнитного поля, связанный с испусканием фотона с энергией  $\hbar\omega = E_2 - E_1$ , известен как вынужденное (индуцированное) излучение. Кроме того, в отсутствии возбуждающего поля, возможен самопроизвольный переход молекулы с верхнего на нижний уровень с испусканием фотона энергией  $\hbar\omega = E_2 - E_1$  — это спонтанное испускание.

Спонтанное излучение отдельных частиц и даже одной частицы в разные моменты времени не коррелированно. Напротив, кванты индуцированного (вынужденного) излучения, идентичны первичным стимулирующим квантам. Таким образом, вынужденное излучение отличается от спонтанного излучения тем, что имеет малую расходимость пучка, а также когерентность и линейную поляризацию волны. Это может привести к значительному усилению и генерации электромагнитных волн при определённых условиях.

Вероятность индуцированных переходов в единицу времени (скорость поглощения и вынужденного испускания фотона) определяется плотностью энергии внешнего поля в единичном спектральном диапазоне (спектральной плотностью излучения энергии) [17]:

$$W_{12}^{ind} = B_{12} \cdot u, \quad W_{21}^{ind} = B_{21} \cdot u,$$

где  $B_{12}$ ,  $B_{21}$  — коэффициенты Эйнштейна для поглощения и испускания,  $u$  — спектральная плотность излучения, порядок индексов 1 и 2 определяет направление переходов.

Вероятность спонтанного перехода частицы из возбужденного состояния (2) в основное (1) пропорциональна времени и за время  $dt$ , согласно предложению [17], составляет

$$dW_{21}^{sp} = A_{21} dt,$$

где  $A_{21} = W_{21}^{sp}$  — коэффициент Эйнштейна, равный по определению вероятности спонтанного испускания излучения в единицу времени (скорости спонтанного испускания).

Известно, что при прохождении света через резонансную двухуровневую среду содержащую атомы в основном (1) и возбужденном (2) состояниях коэффициент усиления (поглощения) описывается выражением

$$\alpha \equiv (\hbar\omega/c)(N_2 - N_1)B_{12},$$

где  $\omega$  — частота резонансного перехода ( $\hbar\omega = \Delta E$ ,  $\Delta E = E_2 - E_1$ ),  $E_1$ ,  $E_2$  — энергии,  $N_1$ ,  $N_2$  — населенности основного и возбужденного состояний, соответственно,  $B_{12}$  — коэффициент Эйнштейна. При этом если  $\alpha < 0$  — поглощение,  $\alpha > 0$  — усиление света. В условиях термодинамического равновесия населенности уровней описываются распределением Больцмана и, следовательно,  $N_2 < N_1$  что соответствует поглощению света. Естественно, что для создания классического лазера необходимо обратное неравенство, которое получило название инверсии населенности.

Впервые возможность реализации условий создания инверсии населенности продемонстрировали Рудольф Ладенбург и Ханс Копферман в 1928 г, изучая аномальную дисперсию света в газовом разряде (в неоне) [18]. Ими же высказано условие инверсного состояния:  $N_2g_1 > N_1g_2$ , где  $N_1$ ,  $N_2$ ,  $g_1$ ,  $g_2$  — населенность и степень вырождения основного и возбужденного уровней соответственно. Это являлось косвенным экспериментальным подтверждением возможности создания сред с инверсной населенностью и доказывало также и принципиальную возможность вынужденного усиления излучения.

В 1939 г. В.А. Фабрикант в ходе изучения возможности усиления оптического излучения при прохождении его через газовую среду [19] обобщил экспериментальные результаты Ладенбурга и описал случаи преобладания индуцированного излучения над спонтанным. Кроме того, он прямо указал среды, в которых можно создавать инверсную населенность, т. е. среды, которые усиливают, а не поглощают проходящее излучение. Естественно, эти работы положили начало области исследования, которая была названа квантовая электроника и привела к разработке оптических квантовых генераторов (мазеров, лазеров).

Впервые экспериментально была показана возможность квантового усиления в работах советских ученых Н.Г. Басова, А.М. Прохорова и американского ученого Ч. Таунса [20, 21]. Инверсия населенностей возникала в результате пространственного разделения возбужденных (обладающих дипольным моментом) и невозбужденных молекул (не обладающих дипольным моментом)  $\text{NH}_4$  в неоднородном электрическом поле.

В дальнейшем были разработаны различные методы создания инверсии населенностей в термодинамически неравновесных средах, на основе которой были созданы лазеры перекрывающие диапазон от дальнего инфракрасного до ближнего ультрафиолета.

При изучении взаимодействия света с резонансным переходом между энергетическими уровнями считается, что вероятности индуцированного излучения и поглощения равны. Это необходимо для квантового усиления света, требующего создания инверсии населённости уровней. Однако эффективность этих процессов определяется не только населённостью уровней, но и вероятностями индуцированных переходов, а также количеством энергетических состояний, вырожденных по энергии. Инверсия населённости является частным случаем, когда испускание преобладает над поглощением, что приводит к усилению света.

В последнее время активно исследуется возможность усиления и генерации без необходимости инверсии населённостей. Начиная со времени создания первого лазера, возможность безинверсного усиления света вызывает повышенный интерес исследователей и остается актуальной. Отметим, что возможность усиления света без инверсии населенностей имеет принципиальное значение для квантовой электроники, и большое прикладное значение, в частности, связанное с проблемой генерации коротковолнового вакуумного ультрафиолетового, рентгеновского и гамма-излучения. Для этих длин волн время релаксации атома в возбужденном состоянии обратно пропорционально частоте перехода в 3 степени. Кроме того энергия кванта необходимого для накачки рабочего перехода пропорциональна частоте. Поэтому мощность источника накачки должна быть пропорциональна частоте в 4 степени, а значит достижение, и затем поддержание инверсной насе-

лennости становится невыполнимой задачей, требующей большой мощности от накачки [1].

Именно поэтому проблема генерации коротковолнового когерентного излучения без инверсии населенностей находится в центре внимания специалистов, работающих в области квантовой электроники.

Из обзоров работ можно выделить как минимум два основных направления, в которых прослеживается единая идея, положенная в основу усиления без инверсии.

## **1.2 Ранние идеи получения усиления света без инверсии населенностей**

В 1963 году Д. Маркузе одним из первых изложил схему достижения безинверсного усиления для вынужденного излучения (мазера) [22]. Она заключается в использовании эффекта отдачи атома (эффект Мёссбауэра), испускающего фотон с импульсом  $\hbar\omega/c = |p - p'|$  и энергией  $E_2(p) - E_1(p')$ , когда частота сдвига из-за этой отдачи превышает доплеровское уширение. Для выполнения данного условия при комнатной температуре несущая частота должна быть достаточно высокой и попадать в рентгеновский диапазон. В этом случае усиление возможно, когда общая населенность верхнего уровня меньше, чем общая населенность нижнего уровня. Однако стоит подчеркнуть, что требуется инверсия населенностей между начальным  $E_2(p)$  и конечным  $E_1(p')$  состояниями атомов, участвующих в этом процессе. В дальнейшем эта идея была развита в подробной и детальной теоретической работе Х. Холт [23], в которой было показано, что при взаимодействии лазерного излучения с двумя уровнями атома из-за эффектов отдачи может быть усиление, даже когда нет инверсии населенности. Можно отметить цикл работ Л.А. Ривлина [24–26] в которых показана концепция ядерного

гамма-лазера и усиления гамма-излучения в охлажденных ансамблях свободных ядер со скрытой инверсией, обусловленной эффектом Мёссбауэра.

Немного ранее, в 1962 году, С.Г. Раутианом и И.И. Собельманом был предложен другой метод достижения усиления без инверсии [27]. Он состоит в возбуждении двухуровневых атомов сильным резонансным полем, когда соответствующая частота Раби превышает уширение линии. В этом случае усиление слабого пробного поля оказывается вне резонанса, в окрестности частоты Раби. Данный эффект наблюдался в разных диапазонах частот, в том числе в оптическом [28–33]. Теоретическая интерпретация этого метода в терминах многофотонных процессов и инверсии между «одетыми» состояниями была дана Коэном-Таннуджи и Рейно (1977) [34], Найтом и Милонни (1980) [35].

Однако отметим, что приведенные выше системы не являются в строгом смысле слова настоящими лазерными системами. Действительно, в первом случае не истощается верхний рабочий уровень (он может быть полностью пустым), энергия посредством среды передается из одного когерентного поля в другое. Во втором случае имеем дело не с индуцированными переходами, а с когерентным спонтанным излучением осциллирующего дипольного момента. Также, данные схемы подразумевают накачку когерентным внешним полем, резонирующим с тем же атомным переходом, который вызывает усиление. Диапазон возможностей можно расширить при рассмотрении систем с дополнительными уровнями, например трехуровневых атомов.

### 1.3 Атомная интерференция (многоуровневые схемы)

Для достижения усиления без инверсии с учетом дополнительного уровня энергии разработано большое количество схем. Рассмотрим подробнее две такие конфигурации: Л-конфигурацию и конфигурацию континуума. Они различаются

по своей первоначальной настройке, однако позволяют достигать усиления, используя явление, известное как атомная интерференция [36].

Одно из первых упоминаний применения атомной интерференции как механизма для управления вероятностью атомных переходов, принадлежат Т.Я. Поповой и др. [37, 38]. В дальнейшем эти идеи были развиты в теоретических работах О.А. Кочаровской и Я.И. Ханина [39, 40]. При исследовании взаимодействия трехуровневых сред с импульсными когерентными монохроматическими и стационарными полихроматическими полями авторы показали, что атомы могут быть захвачены в состоянии суперпозиции, если трехуровневая среда взаимодействует с серией лазерных импульсов, при условии, что, во-первых, длительность импульса намного короче периода низкочастотного колебания  $2\pi/(\omega_2 - \omega_1)$ , а во-вторых, частота следования импульсов кратна низкочастотным колебаниям. Этот захват приводит к снижению коэффициента поглощения и, при подходящих условиях среды, может привести к достижению порога усиления.

М.О. Скалли и соавторы предложили другую схему безынверсионного усиления [41]. Они показали, что безынверсное усиление может быть результатом интерференции двух путей возбуждения в  $\Lambda$ -схеме, когда низкочастотный переход управляется микроволновым полем и двумя зондовыми полями. Также они продемонстрировали, что их  $\Lambda$ -схему можно "перевернуть" и применить к  $V$ -схеме.

Физический смысл атомной интерференции можно показать на примере  $\Lambda$ -схемы. Рассмотрим трехуровневую среду, в которой два монохроматических поля  $\nu_1$  и  $\nu_2$  связывают верхний (возбужденный) уровень (0) с нижними (основными) уровнями (1) и (2) (рисунок 1.1).

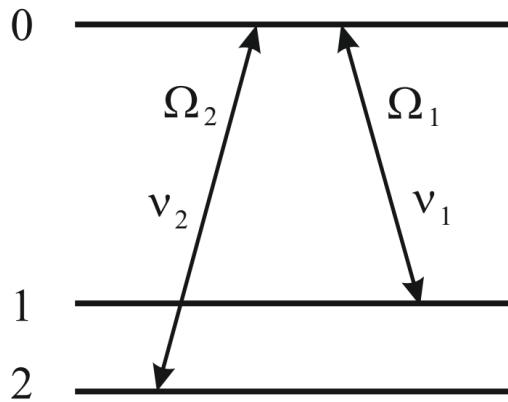


Рисунок 1.1. Взаимодействие трехуровневого атома, имеющего А-конфигурацию переходов, с двумя монохроматическими полями [42]

На рисунке 1.1 представлена трехуровневая А-конфигурация, в которой  $\Omega_1$ ,  $\Omega_2$  – это частота Раби для соответствующего перехода между уровнями энергии (1)–(0) и (2)–(0), а  $\nu_1$ ,  $\nu_2$  соответствуют частоте когерентного лазерного поля, распространяющегося в системе. Переходы возбуждения и релаксации разрешены между всеми уровнями энергии, кроме (1)–(2). Также предполагаем, что А-система замкнута, предотвращая любой обмен массой или энергией из внешней среды.

Когда все атомы находятся в одном из нижних состояний, амплитуда вероятности заселения возбужденного состояния (0) будет зависеть от вкладов от (1) и (2). Они зависят как от природы материала и системы в целом, так и от других факторов. Если эти способствующие факторы правильно выбраны так, чтобы амплитуды вероятностей (1) и (2) были противоположными по знаку, но равными по величине, то атомная интерференция заставит их деструктивно интерферировать [36]. Результирующая амплитуда вероятности переходов в возбужденное состояние обращается в ноль вместе с населенностью состояния (0). Таким образом, атомы будут эффективно захвачены в состояниях нижнего энергетического уровня, а явление атомной интерференции оставит более высокое энергетическое состояние пустым. Эти атомы называются «одетыми» излучением когерентного лазерного поля, которое заставило их интерферировать, давая когерентное пленение населеностей в А-конфигурации [43]. В работе показано, что можно создать

трехуровневую систему, которая не поглощает фотоны или, по крайней мере, ограничивает поглощение.

Теперь рассмотрим атом в состоянии (0) Л-конфигурации. Атом достигает этого состояния либо путем накачки, либо путем внесения в систему извне. Когда в атоме проходит спонтанное излучение, он релаксирует до одного из основных состояний и испускает фотон. Такое излучение можно настроить так, чтобы конструктивно интерферировать и увеличить усиление профиля усиления-потерь, что еще больше нарушит симметрию между ними.

Из начального условия, когда в системе требуются когерентные лазерные поля, сразу становится очевидным, насколько это радикальное изменение по сравнению с традиционной лазерной системой, накачиваемой некогерентным источником.

Впервые экспериментально продемонстрировали атомную интерференцию Г. Альцетта с соавторами в 1976 году, используя ячейку с парами натрия в высокочастотном поле [44]. В работе они смогли непосредственно наблюдать потенциальные переходы в основное состояние и эффективно наблюдали когерентное пленение населенностей. Атомная система, с которой они работали и наблюдали явления когерентности, была фактически трехуровневой. Их основная модификация по сравнению с традиционными системами заключалась в использовании источника лазера на красителе непрерывного действия для накачки ячейки и двух разных частот. Авторы отметили наблюдение «магнитного резонанса» на поверхности ячейки, в которой высокочастотное поле от катушек Гельмгольца совпадает с падающим лазерным лучом, вызывая изменение прозрачности пара. А также увеличение флуоресценции возбужденного состояния, как ключевой признак косвенного наблюдения когерентного пленения населенностей.

В 1978 году, Х.М. Грей с соавторами расширил эту работу по когерентному пленению населенностей в парах натрия с помощью двух непрерывных лазеров на красителях [45]. Использовалась Л-конфигурация, и Грей заметил, что населенность на самом высоком уровне энергии прямо пропорционально флуоресценции, подтверждая предыдущую работу Альцетта. Они указали, что когерентное плене-

ние населенности следует принимать во внимание при оценке эффективности будущих лазерных систем, и поняли, что система создает суперпозицию основных состояний, в которые затем заселяются атомы.

Рассмотрим еще одну трехуровневую систему, в которой вместо создания суперпозиции состояний с более низкой энергией, как например  $\Lambda$ -конфигурация, берется двухуровневая система и встраивается в континуум с третьим квантовым состоянием, расположенным на уровне энергии между верхним и нижним состояниями.

Одними из первых, в 1983 году, В.Г. Архипкин и Ю.И. Геллер [46] предложили концепцию безынверсного усиления в многоуровневых системах, основанную на асимметрии между поглощением и вынужденным излучением при переходах в автоионизационное состояние.

На рисунке 1.2 представлена диаграмма уровней энергии, которая состоит из основного состояния (1) и возбужденного состояния (2) (автоионизационное состояние), включенных в континуум состояний (C).

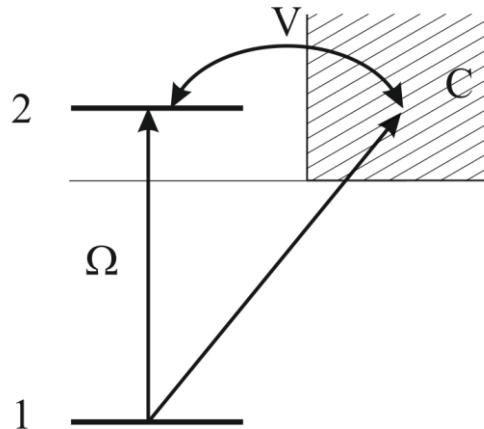


Рисунок 1.2. Двухуровневая система с возбужденным уровнем, встроенным в континуум (т.е. верхний уровень лежит выше нижнего порога ионизации) [2]

Переход (1)–(2) исследуется электромагнитным полем с частотой Раби –  $\Omega$ . Те атомы, которые изначально находятся в состоянии (1), испытывают хорошо известную интерференцию типа Фано в своем профиле поглощения, поскольку

есть два квантовых пути к автоионизационному состоянию: прямой переход (1)–(2) и переход через континуум (1)–(C)–(2). Таким образом, связь между автоионизационным состоянием и континуумом (так называемое конфигурационное взаимодействие, обозначенное буквой  $V$  на рисунке 1.2, создает некоторый минимум Фано в профиле поглощения [47]. Затем, накачав небольшую населенность в возбужденное состояние (2) и настроив пробное поле на минимум Фано, можно получить усиление при переходе (1)–(2) даже без инверсии населенности при этом переходе.

В 1989 году С.Е. Харрис расширил идею до четырехуровневой системы с двумя возбужденными уровнями, распадающимися в один континуум со скоростями релаксации  $\Gamma_2$  и  $\Gamma_3$  [43], показанной на рисунке 1.3.

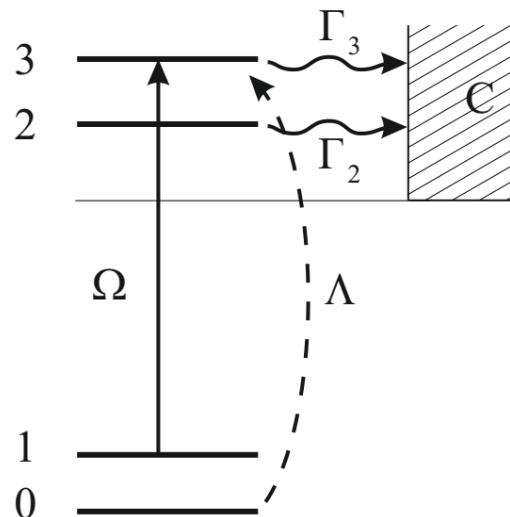


Рисунок 1.3. Четырехуровневая система с двумя возбужденными уровнями, распадающимися в один континуум со скоростями релаксации  $\Gamma_i$  ( $i = 2, 3$ ) [2]

Схема с четырьмя дискретными уровнями энергии состоит из двух основных состояний (0) и (1) и двух возбужденных состояний (2) и (3), которые распадаются на один и тот же континуум, например через эффект Оже или автоионизационный процесс со скоростью релаксации  $\Gamma_2$  и  $\Gamma_3$  соответственно. Атомы, которые изначально находятся в состоянии (1), имеют два разных квантовых пути к континууму: (1)–(2)–(C) и (1)–(3)–(C). Профиль поглощения пробного поля, свя-

зывающего основное состояние (1) с возбужденными состояниями, демонстрирует минимумы типа Фано из-за деструктивной интерференции между амплитудами этих двух квантовых траекторий. Атомы, которые изначально находятся в состоянии (2) или (3), не проявляют такого типа деструктивной интерференции в профиле вынужденного излучения, хотя и проявляют необычные свойства. В предложении Харриса дополнительное состояние (0) использовалось для накачки некоторого количества населения в возбужденные состояния. Он показал что, как и в модели В.Г. Архипкина и Ю.И. Геллера [46], невзаимные профили усиления-потерь могут привести к безынверсному усилению, когда возбужденное состояние заполнено, а пробное поле приложено вблизи минимума Фано.

Вскоре после этого К. Боллер с соавторами [48] наблюдали уменьшение поглощения пробного поля ( $\lambda_p = 337,1$  нм), приложенного между основным состоянием  $5s5p\ ^1P_1$  и автоионизационным состоянием  $4d5d\ ^1D_2$  в Sr, используя слегка модифицированную версию исходного предложения С.Е. Харриса.

В работе [49] Б. Замбон проанализировал поглощение и вынужденное излучение когерентного электромагнитного поля, настроенного близко к автоионизационному состоянию, в формализме индивидуальной атомной эволюции, вместо использования подхода матрицы плотности. Он обнаружил, что вынужденное излучение не преодолевает поглощение, несмотря на наличие квантовой интерференции типа Фано. Также в работе было показано, что усиление такой конфигурации, хоть и может происходить без инверсии населения между задействованными уровнями, в любом случае требует сильного отклонения от условий теплового равновесия. Таким образом, требуется высокая мощность накачки, которая ограничивает применимость этих схем для генерации коротковолнового лазерного излучения.

Из последних исследований в этой области стоит отметить следующие. В работах [50, 51] рассмотрены эффекты оптической прозрачности и нелинейности в квантовых системах, с учетом их взаимодействия с плазмонными наноструктурами. В [51] предлагается метод достижения пространственно-зависимого усиления

ния без инверсии путём воздействия на квантовый излучатель двумя слабыми пробными лучами, имеющими орбитальный угловой момент. Излучатель имеет схему с двойным V-образным уровнем, состоящую из четырёх энергетических уровней в двух взаимосвязанных V-подсистемах, и обладает близко расположенным дублетным верхним энергетическим уровнем. В зависимости от начального состояния система демонстрирует пространственно упорядоченное усиление без инверсии, оптическую прозрачность и усиление света с инверсией населённости, которые зависят от наличия квантовой интерференции при спонтанном излучении дублета. Если расположить излучатель рядом с плазмонной наноструктурой, степень усиления можно контролировать, изменяя расстояние между метаповерхностью и излучателем. Это обеспечивает точный контроль над взаимодействием света и вещества наnanoуровне и может привести к созданию усовершенствованных квантовых фотонных устройств.

В работе [52] продемонстрировано усиление без инверсии, вызванное эффектами когерентности, в доплеровски уширенной вырожденной трехуровневой системе, состоящей из смеси рубидия и водорода, в миниатюрной микронной газовой ячейке. Миниатюризация ячейки приводит к столкновениям атомов со стенками, что, в сочетании с высокой частотой столкновений с буферным газом водорода, позволяет наблюдать усиление в спектрах поглощения. Данный эффект напрямую связан с когерентностью между возбуждёнными состояниями. Помимо фундаментального интереса, наблюдение усиления без инверсии в миниатюрных рубидиевых газовых ячейках имеет важное значение для разработки миниатюрных лазеров без инверсии.

В работах [53, 54] показано, что безынверсная лазерная генерация возникает естественным образом при распространении интенсивных фемтосекундных лазерных импульсов в молекулярном газе. Это обусловлено сочетанием молекулярной ионизации и выравнивания, которые неизбежны в интенсивных световых полях. Авторы на примере эффекта усиления на длине волны 391 нм в молекулах иона азота  $N_2^+$  с возбуждением коротким интенсивным лазерным импульсом

( $I \sim 1 - 2 \cdot 10^{14}$  Вт/см $^2$ ), показали, что для лазерной генерации вращательных квантовых биений не требуются инверсии населенности и когерентности между электронными состояниями иона. Данный эффект может обеспечить безынверсное усиление широкополосного излучения во многих молекулярных газах, открывая возможности для дистанционного зондирования.

## 1.4 Светоиндуцированный дрейф

Остановимся подробнее на явлении светоиндуцированного дрейфа (СИД) газов, открытое в 1979 году Ф.Х. Гельмухановым и А.М. Шалагиным [55–57]. Данное явление относится к ряду эффектов воздействия излучения на поступательное движение частиц газа. Оно проявляется в возникновении макроскопического потока поглощающих атомов через буферный газ под действием световой волны. Очевидно, что это приводит к изменению функций распределения атомов по скоростям в основном и возбужденном состояниях и, следовательно, возможности безынверсного усиления определенных спектральных компонент. Светоиндуцированный дрейф имеет ряд применений для избирательного воздействия света на вещество (например, для разделения изотопов), а также для изучения атомных и молекулярных столкновений.

Физическая природа явления светоиндуцированного дрейфа состоит в следующем. Пусть частота монохроматического излучения  $\omega$  немного отличается от частоты перехода  $\omega_0$  между основным ( $n$ ) и возбужденным ( $m$ ) состояниями атома. При взаимодействии этого излучения с газом, состоящим из поглощающих атомов, распределения скоростей возбужденных  $\rho_m(\vec{v})$  и невозбужденных  $\rho_n(\vec{v})$  атомов становятся асимметричными. Это связано с тем, что излучение, вследствие эффекта Доплера, наиболее эффективно возбуждает атомы, скорости которых удовлетворяют условию  $\Omega = \omega - \omega_0 = \vec{k}\vec{v}$  ( $\vec{k}$  — волновой вектор,  $\vec{v}$  — среднетеп-

ловая скорость). Асимметрия распределения скоростей означает, что в каждом из состояний средняя скорость становится отличной от нуля, а знак асимметрии определяется  $\Omega$ . Следовательно, в возбужденном и невозбужденном состояниях возникают попутные и встречные потоки  $J_m = \int \vec{v} \rho_m(\vec{v}) d\vec{v}$  и  $J_n = \int \vec{v} \rho_n(\vec{v}) d\vec{v}$  относительно волнового вектора  $\vec{k}$ . Однако, поскольку их величины в отсутствие буферного газа равны, сумма этих потоков равна нулю.

При наличии дополнительного нерезонансного буферного газа ситуация кардинально меняется. Поскольку размеры возбужденных и невозбужденных атомов, как правило, различны, то и противодействующие силы (или, другими словами, трение), испытываемые возбужденными и невозбужденными атомами, также различны. Это приводит к разнице значений  $J_m$  и  $J_n$  и, следовательно, к отличию их векторной суммы от нуля. Последнее указывает на появление макроскопического потока поглощающих атомов через буферный газ. Когда давление остается постоянным, буферный газ начинает течь в противоположном направлении. Легко понять, что при положительных отстройках (в синей области резонанса) и большем сечении переноса атомов в возбужденном состоянии, чем в невозбужденном, поток поглощающего газа противоположно направлен относительно вектора световой волны. Таким образом, изменяя знак отстройки, можно изменить направление дрейфа.

В дальнейшем эти идеи были развиты в ряде работ, например [58–60], в которых рассматриваются конкретные схемы светоиндуцированного дрейфа, при параллельном направлении с дрейфом возбуждающего излучения и связанного с ним безынверсного усиления. Стоит выделить работы [61–62] в которых рассматривается эффект безынверсного усиления обусловленный тем, что в «красном» крыле спектральной линии вероятность вынужденного испускания превышает вероятность поглощения, когда однородное уширение перехода из-за взаимодействия частиц с буферным газом существенно превышает естественное (при больших давлениях буферного газа).

## 1.5 Селективная по состояниям ориентация молекул внешним полем

Вообще говоря, возможен другой подход реализации безынверсного усиления, в котором вероятности переходов с испусканием и с поглощением могут быть изменены путем дополнительного воздействия внешних и нерезонансных полей.

В работах А.К. Попова и В.В. Слабко [63–65] была рассмотрена возможность такого воздействия в системе селективно по состояниям ориентированных молекул во внешнем постоянном поле. Под безынверсионным усилением подразумевается отсутствие инверсии населённостей между возбуждёнными и основными состояниями молекул интегрально по степени их ориентации относительно внешнего поля. Полученные результаты основывались на ряде строгих допущений, а возможность практической реализации данной концепции оставалась предметом обсуждения на протяжении многих лет. Например, анализ проводился в предположении, что время ориентации мало по сравнению с временем жизни возбуждённого состояния, и рассматривался случай стационарной ориентации молекул.

В практически реализуемых ситуациях степень ориентации в предпробойных внешних полях оказывалась недостаточной для уверенного наблюдения эффекта. Важно отметить, что взаимодействие оптического излучения с ансамблем молекул, которые находятся в термодинамическом равновесии с излучением накачки и ориентированы внешним полем, было частично исследовано В.В. Лашинским [66]. В своих работах [67–68] он показал, что в термодинамически неравновесной среде с двумя положительными температурами (температура среды и эффективная температура перехода) возможно усиление света, в отличие от традиционных лазерных сред, где используется понятие отрицательной температуры перехода.

## 1.6 Выводы к главе 1

Цитируемые выше работы, оставили ряд вопросов, которые необходимо решить. Для анализа влияния соотношения времени ориентации и времени жизни возбужденного состояния разработана модель на основе кинетических уравнений Больцмана для вычисления функций распределения [6, 3, 8, 10]. Показано, что для уверенной реализации безынвертного усиления в стационарном ориентирующем поле, необходимо в несколько раз увеличить его предельное пробойное значение. Естественно, что необходимо разработать динамическую модель для расчета нестационарных функций распределения молекул по ориентациям в основном и возбужденном состояниях в импульсном ориентирующем поле. Кроме того, необходимо разработать адекватную методику решения системы связанных нестационарных уравнений [7, 9, 11, 12]. Проанализировать влияние переходных процессов на усиление света при различных режимах включения ориентирующего поля [4, 5, 13–16]. Решению этих вопросов посвящена настоящая диссертация.

## ГЛАВА 2

### Модель безынверсного усиления света дихроичными молекулами

В данной главе рассматривается теоретическое обоснование возможности безынверсного усиления света молекулами за счет их селективной ориентации по состояниям путем наложения внешнего поля.

#### 2.1 Оптические характеристики дихроичной молекулярной среды

Рассмотрим молекулярную среду, молекулы которой расположены в буферном газе или жидкости. Молекулы взаимодействуют с пробным (усиливаемым) полем  $\vec{E}$  и ориентирующим полем  $\vec{E}_0$  (ОП).

Вероятность индуцированных переходов в электродипольном приближении определяется проекцией матричного элемента электродипольного перехода  $\vec{d}_{21}$  на направление вектора пробного поля  $\vec{E}$  [63–65, 6]. Здесь и далее мы предполагаем, что пробное поле является слабым и не влияет на населенность уровней.

Направление  $\vec{d}_{21}$ , в молекулярных средах, связано с ориентацией молекулы в пространстве и задается ее симметрией. Поэтому ориентированные молекулы поглощают и испускают свет избирательно по поляризациям. Это явление называется дихроизмом (анизотропия поглощения) и широко применяется, например, при создании пленочных поляризаторов, где поглощающие молекулы ориентированы в полимерной матрице [69].

При воздействии на молекулярную среду внешних полей  $\vec{E}_0$  молекулы ориентируются в направлении, соответствующем минимуму потенциальной энергии их взаимодействия с полем [70, 71]. Направление ориентации определяется как направлением внешнего поля  $\vec{E}_0$ , так и симметрией молекулы. Степень ориента-

ции пропорциональна энергии взаимодействия молекулы с полем  $U$  и обратно пропорциональна энергии теплового движения  $kT$ , оказывающего дезориентирующее влияние. Заметим, степень ориентации внешним полем, зависящая от  $U$ , может различаться для молекул находящихся в основном и в возбужденном состояниях. В этом случае вероятности индуцированных переходов с поглощением и усилением поляризованного света, определяющиеся ориентацией молекул относительно  $\vec{E}_0$ , могут быть также не равны.

Таким образом, появляется возможность создать условия усиления света с определенной поляризацией в отсутствии инверсии населенностей, управляя степенью ориентации в основном и возбужденном состояниях.

Считая статистические веса основного (1) и возбужденного (2) состояний одинаковыми рассмотрим вероятность индуцированных переходов в единицу времени с поглощением и усилением плоскополяризованного монохроматического излучения  $\vec{E}$  молекулой,  $\vec{d}_{21}$  которой составляет угол  $\theta$  с плоскостью поляризации [72]:

$$W_{21}^{ind} = \tilde{B} |E|^2 F(\omega), \quad (2.1)$$

где  $\tilde{B} = \frac{8\pi}{\hbar^2} |d_{21}|^2 \cos^2 \theta$  — не усредненный по ориентациям коэффициент Эйнштейна,  $d_{21}$  — матричный элемент электродипольного момента перехода в системе координат, связанной с молекулой,  $E$  — напряженность электрического поля световой волны,  $F(\omega)$  — частотный форм-фактор,  $\omega$  — частота излучения.

В простейшем случае монохроматического излучения и лоренцевского контура  $F(\omega)$  описывается выражением

$$F(\omega) = \frac{2\gamma_{21}}{(\omega - \omega_{21})^2 + \gamma_{21}^2},$$

где  $\omega_{21}$  и  $\gamma_{21}$  — частота и полуширина перехода между основным (1) и возбужденным (2) состоянием,  $\omega$  — частота излучения.

Если не учитывать смещение частоты  $\omega_{21}$  под действием постоянного электрического поля (эффект Штарка), то поперечное сечение поглощения (излучения) имеет вид [73]:

$$\sigma = N8\pi\hbar\omega \frac{\tilde{B}}{c} F(\omega) = N\sigma_0 \cos^2 \theta \quad (2.2)$$

где  $\sigma_0 = (8\pi)^2 |d_{21}|^2 \omega F(\omega)/c\hbar$  — сечение поглощения-испускания для молекулы,  $\vec{d}_{21}$  которой ориентирован параллельно плоскости поляризации  $\vec{E}$ ,  $N$  — концентрация частиц.

Для ориентированных во внешнем поле  $\vec{E}_0$  молекул и плоскополяризованного пробного излучения  $\vec{E}$  коэффициент усиления  $\alpha > 0$  (поглощения  $\alpha < 0$ ), определяющийся соотношением  $I = I_0 e^{\alpha z}$  (закон Бугера – Ламберта – Бера), будет иметь вид

$$\alpha = N\sigma_0 \int_{\Omega} [n_2 f_2(\Omega, E_0) - n_1 f_1(\Omega, E_0)] \cos^2 \theta d\Omega, \quad (2.3)$$

где  $n_1 = N_1/N$  и  $n_2 = N_2/N$  — относительные населенности основного (1) и возбужденного (2) состояний,  $N_1 + N_2 = N$ ,  $d\Omega$  — элемент телесного угла. Возбуждение молекул может осуществляться любым общепринятым способом, например, используемым для твердотельных лазеров и лазеров на красителях.

Функции  $f_1(\Omega, E_0)$  и  $f_2(\Omega, E_0)$  — нормированные на единицу функции статистического распределения ориентации молекул в основном (1) и возбужденном (2) состояниях, определяющиеся потенциальной энергией их взаимодействий  $U(\Omega, E_0)$  с внешним полем  $E_0$ .

Согласно классической статистике Больцмана для системы, находящейся в термодинамическом равновесии при температуре  $T$ , функции распределения будут иметь вид

$$f_j(\Omega, E_0) = A_j \exp\left[-U_j(\Omega, E_0)/kT\right], \quad (2.4)$$

где  $A_j^{-1} = \int \exp\left[-U_j(\Omega, E_0)/kT\right] d\Omega$  — нормирующий множитель,  $k$  — постоянная Больцмана.

Потенциальную энергию, ориентированных в поле  $\vec{E}_0$ , молекул можно представить разложением, ограничившись квадратичными членами [71]

$$U_j(\Omega, E_0) = -\mu_i^{(j)} E_{0i} - \frac{1}{2} \beta_{ik}^{(j)} E_{0i} E_{0k}, \quad (2.5)$$

где  $\mu_i^{(j)}$  —  $i$ -я составляющая вектора постоянного дипольного момента, а  $\beta_{ik}^{(j)}$  — составляющая тензора электрической поляризуемости молекулы, находящейся в энергетическом состоянии  $(j)$ . Первый член разложения (2.5) описывает ориентацию нецентросимметричных молекул с постоянным дипольным моментом в поле  $E_0$ . Второй член соответствует энергии взаимодействия наведенного полем  $E_0$  дипольного момента, в данном случае оно может быть переменным.

В данной работе будем рассматривать аксиально-симметричные молекулы, помещенные в буферную среду (жидкость, плотный газ) и примем направление как постоянного  $\vec{\mu}$ , так и наведенного дипольного момента, совпадающим с направлением оси симметрии молекулы, которая составляет угол  $\theta_0$  с  $E_0$  (Рисунок 2.1).

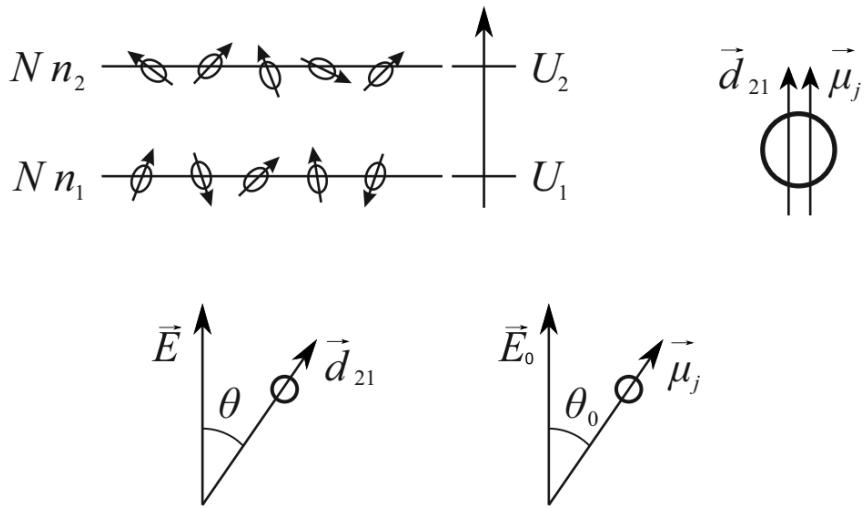


Рисунок 2.1. Модель двухуровневой молекулы в ориентирующем поле

В данном случае задача вычисления коэффициента усиления (2.3) может быть значительно упрощена. В принятых в работах [63–65] допущениях функции распределения принимают больцмановский вид (2.4). Тогда функции распределения (2.4) и потенциальная энергия взаимодействия  $U$  выражаются только через угол  $\theta_0$

$$f_j(\theta_0, E_0) = A_j \exp \left[ p_j \cos \theta_0 \pm q_j \cos^2 \theta_0 \right]. \quad (2.6)$$

Здесь введены безразмерные параметры ориентации электрического диполя и эллипсоида поляризуемости молекулы [71, 74, 75]

$$p_j = \frac{\mu^{(j)} E_0}{kT}, \quad q_j = \frac{(\beta_{33}^{(j)} - \beta_{11}^{(j)})}{2kT} |E_0|^2, \quad (2.7)$$

где,  $\beta_{33}^{(j)}$  и  $\beta_{11}^{(j)}$  — главные значения тензора поляризуемости молекулы, находящиеся в состоянии  $(j)$  вдоль оси симметрии и поперек соответственно. При этом значения  $\beta_{33}^{(j)}$  и  $\beta_{11}^{(j)}$  определяются возможными энергетическими переходами в молекуле под действием поля  $E_0$  с частотой  $\omega_0$ :

$$\beta^{(j)} = \frac{2}{\hbar} \sum_l \frac{\omega_{lj} |d_{lj}|^2}{\omega_{lj}^2 - \omega_0^2} = \frac{e^2}{m_e} \sum_l \frac{F_{lj}}{\omega_{lj}^2 - \omega_0^2}, \quad (2.8)$$

где  $\omega_{lj}$  — частота перехода из состояния  $(j)$  в состояние  $(l)$ ,  $d_{lj}$  — дипольный момент перехода вдоль или поперек оси симметрии молекулы соответственно между соответствующими уровнями,  $F_{lj}$  — соответствующая сила осциллятора,  $m_e$  и  $e$  — масса и заряд электрона.

На самом деле, при учете взаимных переходов между основным и возбужденным состояниями функции распределения будут соответствовать распределению Больцмана только в случае, когда время жизни возбужденного состояния намного больше времени установления ориентационного равновесия. В работах [63–65] именно такое приближение и принято. Данное приближение имеет достаточно ясный физический смысл, который заключается в следующем: для того чтобы функции распределения соответствовала большинством необходимо чтобы молекула перейдя из основного состояния со своей функцией распределения  $f_1(\Omega, E_0)$  в возбужденное «успела» термализоваться и стать функцией распределения  $f_2(\Omega, E_0)$ . В данной диссертации используется подход свободный от принятого допущения. Поэтому, одной из задач настоящей диссертации является выявление особенностей влияния соотношения времени жизни и времени установления ориентационного равновесия на коэффициент усиления. Для того необходимо вычислить функции распределения  $f_1(\Omega, E_0)$  и  $f_2(\Omega, E_0)$  не в виде принятых в работах [63–65] большинством функций, а в виде решения системы кинетических уравнений, рассмотренных в параграфе 2.4.

## 2.2 Усиление в различных средах

### 2.2.1 Полярные молекулы

Рассмотрим усиление среды полярных молекул, помещенных в буферный газ. Два случая ориентации ориентирующего и пробного полей представляют наибольший интерес и являются физически понятными, поскольку в них эффект безынверсного усиления проявляется наиболее ярко. Электрическое ОП  $\vec{E}_0$  направлено вдоль оси  $z$  в обоих случаях.

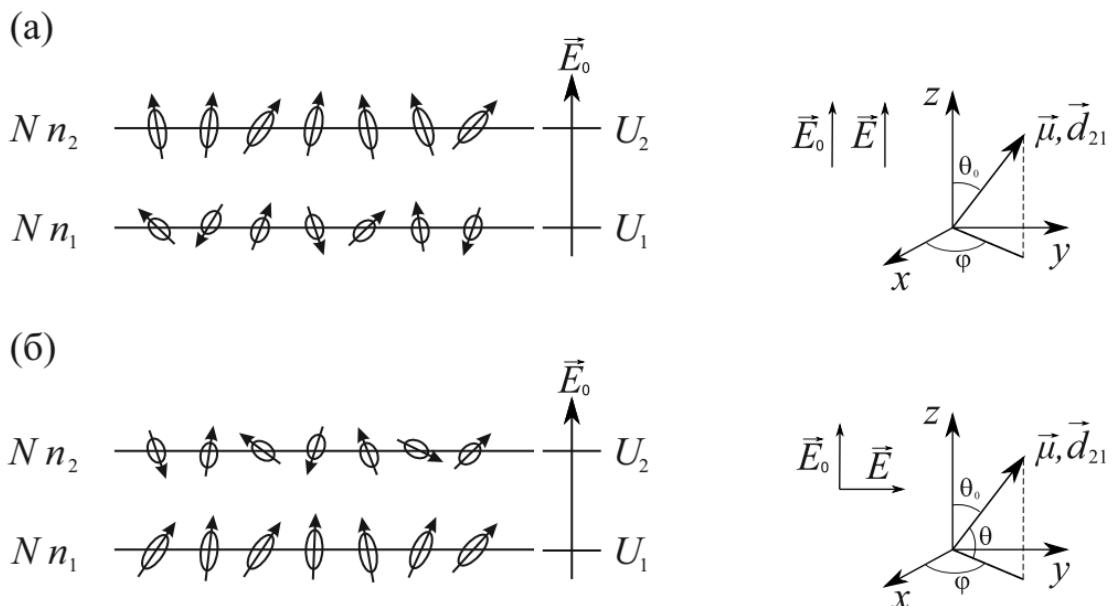


Рисунок 2.2. Случаи взаимного направления ориентирующего  $\vec{E}_0$  и пробного  $\vec{E}$  полей

Если постоянный дипольный момент в возбужденном состоянии больше, чем в основном ( $\mu_1 < \mu_2$ ), то эффект безынверсного усиления наиболее сильно проявляется при параллельном направлении ориентирующего поля  $\vec{E}_0$  и усиливаемого (пробного)  $\vec{E}$  (Рисунок 2.2а). В этом случае  $\theta = \theta_0$  и коэффициент усиления  $\alpha$  согласно (2.3) описывается формулой

$$\alpha = N\sigma_0 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi [n_2 f_2(p_2, \theta_0) - n_1 f_1(p_1, \theta_0)] \cos^2 \theta_0 \sin \theta_0 d\theta_0. \quad (2.9)$$

Таким образом, в этом случае введение ОП приводит к увеличению вероятности перехода с возбужденного состояния в основное, и, следовательно, возрастает усиление пробного поля.

В предельном случае, когда  $\mu_1 = 0$ , все молекулы в состоянии (2) будут ориентированы вдоль поля  $\vec{E}_o$ . Молекулы в состоянии (1) не взаимодействуют с  $\vec{E}_o$  и, следовательно, не ориентируются. Если направить ориентирующее поле  $\vec{E}_o$  параллельно пробному полю  $\vec{E}$ , то число молекул, которые будут эффективно взаимодействовать с усиливающим полем в состоянии (2), увеличится. И это, в свою очередь приведет к усилению излучения.

Во втором случае, если  $\mu_2 < \mu_1$ , молекулы в основном состоянии ориентируются вдоль поля  $\vec{E}_o$  в большей степени, чем молекулы в возбуждённом состоянии, и для подавления поглощения целесообразно ориентировать поле  $\vec{E}_o$  ортогонально  $\vec{E}$  (рисунок 2.2б). В этом случае  $\theta = \frac{\pi}{2} - \theta_0$  и коэффициент усиления  $\alpha$ , усредненный по ориентации молекул, будет иметь вид

$$\alpha = N\sigma_0 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi [n_2 f_2(p_2, \theta_0) - n_1 f_1(p_1, \theta_0)] \sin^3 \theta_0 d\theta_0 \quad (2.10)$$

Таким образом, введение ориентирующего поля приводит, хотя и к уменьшению вероятности перехода с возбужденного в основное состояние, однако это компенсируется уменьшением вероятности перехода с основного состояния в возбужденное, и, усиление без инверсии населенности становится возможно.

В предельном случае, когда  $\mu_2 = 0$ , все молекулы в состоянии (1) будут ориентированы вдоль поля  $\vec{E}_o$ . Молекулы в состоянии (2) не взаимодействуют с

ориентирующим полем и, следовательно, не ориентируются. Направив ориентирующее поле  $\vec{E}_o$  ортогонально пробному  $\vec{E}$ , получим что средняя проекция  $\vec{d}_{21}$  на направление  $\vec{E}$  равна нулю и поле не вызывает переходов с состояния (1) в состояние (2) и, поглощения не происходит. Однако, молекулы в состоянии (2) не взаимодействуют с полем  $\vec{E}_o$ , поэтому их ориентация изотропна, и, следовательно, средняя проекция  $\vec{d}_{21}$  на направление  $\vec{E}$  отлична от нуля. Что, в свою очередь приведет к усилению излучения.

## 2.2.2 Неполярные молекулы

Как было показано выше потенциальная энергия взаимодействия не изотропно поляризующейся молекулы с полем  $\vec{E}_0$ , в отсутствии постоянного дипольного момента, определяется вторым членом разложения в (2.5). При этом поле  $\vec{E}_0$  может быть переменным. Известно, что пробойная напряженность поля излучения на оптических частотах значительно выше, чем постоянного электрического поля. Как будет показано ниже, параметр ориентации  $p_j$  для молекул, которые могут безынверсно усиливать свет в рассматриваемых здесь схемах в постоянном электрическом поле не может быть больше единицы даже при предпробойных значениях  $\vec{E}_0$ .

В то же время параметр ориентации эллипсоида поляризуемости молекулы  $q_j$  в ОП лазерного излучения, величина которого ниже пробойной, может значительно превышать единицу. При этом очевидно, в выражениях (2.5), (2.6) входит усредненное по времени значение энергии взаимодействия.

Также, отличительной особенностью ориентации неполярных молекул по сравнению с полярными является зависимость знака параметра ориентации  $q_j$  как

от строения молекулы, так и от соотношения частот электронных переходов  $\omega_l$  и частоты ориентирующего излучения  $\omega_0$  (2.7), (2.8).

Предполагая, что частота  $\omega_0$  ориентирующего поля  $\vec{E}_0$  лежит вдалеке от частоты перехода, на котором происходит усиление пробного поля  $\vec{E}$  с частотой  $\omega$ , остановимся на двух случаях взаимной ориентации  $\vec{E}_0$  и  $\vec{E}$  в зависимости от соотношения  $q_1$  и  $q_2$ .

Пусть поляризумость возбужденного состояния выше поляризумости основного  $q_2 > q_1$ , тогда оптимальной будет параллельная ориентация ориентирующего и усиливаемого (пробного) полей  $\vec{E} \parallel \vec{E}_0$ . В этом случае коэффициент усиления  $\alpha$  с учетом (2.6) будет иметь вид

$$\alpha = N\sigma_0 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi [n_2 f_2(q_2, \theta_0) - n_1 f_1(q_1, \theta_0)] \cos^2 \theta_0 \sin \theta_0 d\theta_0. \quad (2.11)$$

В обратном случае, когда  $q_1 > q_2$ , оптимальна ортогональная геометрия ориентирующего и пробного полей  $\vec{E} \perp \vec{E}_0$ . При этом коэффициент усиления  $\alpha$  выражается следующим образом

$$\alpha = N\sigma_0 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi [n_2 f_2(q_2, \theta_0) - n_1 f_1(q_1, \theta_0)] \sin^3 \theta_0 d\theta_0. \quad (2.12)$$

В случае использования резонансов в молекуле параметры  $q_1$  и  $q_1$ , согласно (2.7), (2.8), могут иметь разный знак. Этот случай рассмотрен ниже, в параграфе 3.3.2.

## 2.3 Аналогия с четырехуровневой системой

В работах [63–65] в предположении малости времени установления ориентационного равновесия  $\tau_0$  по сравнению с временем жизни возбужденного состояния  $\tau_2^{eff}$  позволило существенно упростить задачу вычисления коэффициента усиления. В этом случае функции распределения молекул по ориентациям в основном и возбужденном состояниях в (2.3) имеют больцмановский вид, так как за время жизни возбужденного состояния молекулы большую часть времени находятся в термализованном состоянии. Потенциальная энергия взаимодействия  $U$  в данном случае выражается только через угол  $\theta_0$ , а вычисление коэффициента усиления сводится к аналитическому решению, выраженному через классические функции Ланжевена.

Соотношение  $\tau_0/\tau_2^{eff}$  действительно имеет большое значение для возможности экспериментальной реализации предложенных идей. Оно зависит от различных факторов, таких как вязкость, температура, агрегатное состояние среды и параметры молекул.

Простейшей моделью для обсуждения роли указанных процессов является четырехуровневая лазерная среда [72] (Рисунок 2.3).

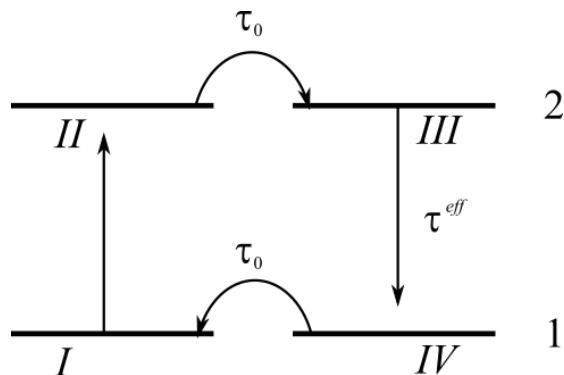


Рисунок 2.3. Эквивалентная схема четырехуровневой лазерной среды

Действительно, при возбуждении молекулы из основного состояния (*I*), находящегося в ориентационном равновесии с окружением и характеризующимися параметрами  $p_1$  и  $q_1$  она переходит в состояние (*II*). Это состояние является уже ориентационно неравновесным, поскольку определяется параметрами  $p_2$  и  $q_2$ . В этом состоянии она слабо взаимодействует с усиливающимся полем и не вносит большого вклада в процесс усиления. За время  $\tau_0$  степень ориентации меняется и она переходит в состояние (*III*), которое является равновесным по соотношению к параметрам  $p_2$ ,  $q_2$  и эффективно взаимодействующим с усиливающим полем.

Индуцированный переход (*III*) → (*I*) переводит молекулу в неравновесное состояние (*IV*), из которого она переходит в равновесное состояние (*I*) за время  $\tau_0$ . Основным требованием работоспособности такой четырехуровневой схемы является требование  $\tau_{III \rightarrow IV}^{eff} = \tau_{II \rightarrow I}^{eff} > \tau_{IV \rightarrow I}^{eff} = \tau_0$  [72]. В работах [64–65] показано, что для эффективной работы рассматриваемого квантового усилителя необходимо, чтобы время жизни возбужденного (верхнего) состояния  $\tau_2^{eff}$  было много больше времени установления ориентационного равновесия во внешнем поле  $\tau_0$ .

## 2.4 Математическая модель процесса ориентации молекул на основе решения системы кинетических уравнений

Очевидно, что принятые допущения существенно ограничивают применимость соотношений полученных в [64–65]. Это указывает на необходимость создания модели, которая позволит определить значения функции распределения в уравнении (2.3).

Данные идеи впоследствии были развиты в наших работах [3, 6], в которых, на основе связанной системы стационарных уравнений для функций распределения  $f_1(\Omega, E_0)$  и  $f_2(\Omega, E_0)$ , численно анализируется влияние на коэффициент уси-

ления  $\alpha$  соотношения между временем жизни возбужденного состояния  $\tau_2^{eff}$  и временем ориентационного равновесия  $\tau_0$ .

Пусть в двухуровневой системе молекулы с уровнями энергии  $U_1$ ,  $U_2$  находятся в термодинамическом равновесии с полем накачки, обеспечивающим относительные населенности уровней  $n_1$ ,  $n_2$ , соответственно, и  $U_1 < U_2$ . В этом случае  $n_1 > n_2$ , инверсия населенностей отсутствует, и времена жизни основного  $\tau_1^{eff}$  и возбужденного  $\tau_2^{eff}$  уровней определяются следующим образом

$$\frac{1}{\tau_1^{eff}} = W_{12}^{ind} + \tilde{W}, \quad \frac{1}{\tau_2^{eff}} = W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}, \quad (2.13)$$

где  $W_{12}^{ind} = W_{21}^{ind}$  — вероятность индуцированных и  $W_{21}^{sp}$  — спонтанного переходов,  $\tilde{W}$  — вероятность перехода из основного в возбужденное состояние через дополнительные уровни под действием накачки, характер которой мы здесь не конкретизируем.

Таким образом, переход с основного уровня энергетического состояния (1) на возбужденное (2) происходит только индуцировано посредством внешней накачки, обратный переход может происходить также спонтанно. На самом деле время жизни основного состояния  $\tau_1^{eff}$  определяется индуцированными переходами, а также внешней накачкой переводящей молекулы из основного состояния в возбужденное через систему промежуточных уровней. В данной работе мы не будем конкретизировать тип накачки.

Заметим, что в данном случае отношение заселенностей уровней определяется следующим выражением

$$\frac{\tau_2^{eff}}{\tau_1^{eff}} = \frac{n_2}{n_1}. \quad (2.14)$$

При наложении на среду внешнего поля напряженности  $E_0$  ориентация молекул описывается функцией распределения по ориентациям  $f_j(\Omega, E_0)$ , которая в общем случае определяется временами жизни  $\tau_1^{eff}$ ,  $\tau_2^{eff}$  и временем ориентационного равновесия  $\tau_0$ , зависящих как от параметров молекул, так и от параметров среды в которую они помещены. В рассматриваемом случае энергия  $U$ , а также функции распределения  $f_1(\Omega, E_0)$  и  $f_2(\Omega, E_0)$ , зависят только от одного угла  $\theta_0$  (угол между осью симметрии молекулы и внешним ориентирующим полем  $\vec{E}_0$ ). Кинетическое уравнение, которое определяет  $f(\Omega, E_0)$  в виде функции от времени —  $t$  и угла —  $\theta_0$ , будет выглядеть следующим образом [73, 76]

$$\frac{w}{kT} \frac{\partial f}{\partial t} = \frac{1}{\sin \theta_0} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left\{ \sin \theta_0 \left[ \frac{\partial f}{\partial \theta_0} + f \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{U}{kT} \right) \right] \right\}, \quad (2.15)$$

где  $w$  — константа, отвечающая за внутреннее трение в среде, состоящей из молекул участвующих в процессе и буферных молекул (растворитель, буферный газ) [71].

В нашей работе, согласно Дебаю, примем, что молекулы хоть и обладают дипольным моментом, но имеют сферическую форму радиуса  $r_0$ , и с момента приложения поля, ориентируются в среде с коэффициентом вязкости  $\eta$  [73]:

$$w = 8\pi r_0^3 \eta. \quad (2.15a)$$

Согласно [73, 77] время установления ориентационного равновесия (время ориентационной релаксации):

$$\tau_0 = \frac{w}{6kT}. \quad (2.156)$$

Пусть молекула находится в ориентирующем поле, в котором энергия взаимодействия с полем, а, следовательно, и функции распределения по ориентациям  $f_1$  и  $f_2$  различны в основном и возбужденном состояниях. Переход из одного состояния в другое (например, из основного (1) в возбужденное (2)) означает, что функция распределения основного состояния, являющаяся термодинамически равновесной, в этом случае определяется как функцией распределения  $f_1$ , так и  $f_2$ , являющейся равновесной для возбужденного состояния. И наоборот, установление равновесного состояния равного  $f_1$  происходит за время ориентационной релаксации  $\tau_0$ , следовательно, в (2.15) следует добавить члены ответственные как за приход в состояние (2), молекул с  $f_1$ , так и уход из этого состояния в состояние (1) молекул с  $f_2$ .

Отметим, что  $\tau_0$  в основном и возбужденном состояниях, а, следовательно, и константа  $w$ , могут быть различны. В этом случае, эффект, связанный с этим различием аналогичен эффекту светоиндуцированного дрейфа [55–57]. Мы предполагаем, что в нашем случае этот эффект может дать результат второго порядка малости по отношению к ориентации молекул во внешнем поле. Кроме того, использование полярных жидкостей в качестве буферных растворителей может также привести к различиям  $\tau_0$ . Названные эффекты непринципиальны в расчетах и легко учитываемы, поэтому в данной работе не рассматривается. В дальнейшем учет может явиться предметом подробного исследования.

В рассматриваемом случае двухуровневой молекулы для учета влияния переходов между уровнями (1) и (2), в соответствии с соотношениями (2.15), можно записать систему нестационарных кинетических уравнений для функций распределения  $f_1$  и  $f_2$  с учетом вероятностей переходов между уровнями:

$$\begin{cases}
\frac{w}{kT} \frac{\partial f_1}{\partial t} - \frac{1}{\sin \theta_0} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \sin \theta_0 \left( \frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} + f_1 \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{U_1(t)}{kT} \right) \right) \right) = \\
= -\frac{w}{kT} \cdot (W_{12}^{ind} + \tilde{W}) \cdot f_1 + \frac{w}{kT} \cdot (W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}) \cdot f_2 \\
\frac{w}{kT} \frac{\partial f_2}{\partial t} - \frac{1}{\sin \theta_0} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \sin \theta_0 \left( \frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} + f_2 \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{U_2(t)}{kT} \right) \right) \right) = \\
= -\frac{w}{kT} \cdot (W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}) \cdot f_2 + \frac{w}{kT} \cdot (W_{12}^{ind} + \tilde{W}) \cdot f_1
\end{cases} \quad (2.16)$$

С учетом (2.13) систему можно записать в виде:

$$\begin{cases}
6\tau_0 \frac{\partial f_1}{\partial t} - \frac{1}{\sin \theta_0} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \sin \theta_0 \left( \frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} + f_1 \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{U_1(t)}{kT} \right) \right) \right) = -\frac{6\tau_0}{\tau_1^{eff}} f_1 + \frac{6\tau_0}{\tau_2^{eff}} f_2 \\
6\tau_0 \frac{\partial f_2}{\partial t} - \frac{1}{\sin \theta_0} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \sin \theta_0 \left( \frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} + f_2 \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{U_2(t)}{kT} \right) \right) \right) = -\frac{6\tau_0}{\tau_2^{eff}} f_2 + \frac{6\tau_0}{\tau_1^{eff}} f_1
\end{cases} \quad (2.17)$$

Дополним систему (2.17) граничными условиями (2.18) и начальными условиями (2.19), а также условием нормировки для функций распределения в начальный момент (2.20):

$$\left. \frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} \right|_{\theta_0=0} = \left. \frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} \right|_{\theta_0=0} = 0, \quad \left. \frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} \right|_{\theta_0=\pi} = \left. \frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} \right|_{\theta_0=\pi} = 0, \quad (2.18)$$

$$f_1(0, E_0) = g_1(\theta_0), \quad f_2(0, E_0) = g_2(\theta_0), \quad (2.19)$$

$$2\pi \int_0^\pi [g_1(\theta_0) + g_2(\theta_0)] \sin \theta_0 d\theta_0 = 1. \quad (2.20)$$

Для численного исследования системы (2.17) – (2.20) применяется оригинальный эффективный вычислительный алгоритм, основанный на методе экспоненциальной подгонки [78,79, 7–9] и реализованный при помощи явной схемы бегущего счета.

## 2.5 Метод экспоненциальной подгонки

Процессы ориентации молекул во внешнем поле, описываются системой нестационарных кинетических уравнений (2.16) – (2.20), данные уравнения можно отнести к диффузионно-конвективным дифференциальным уравнениям. Численное исследование системы кинетических уравнений проведено при помощи метода экспоненциальной подгонки.

Экспоненциальная подгонка — эффективный метод численного исследования диффузионно-конвективных физических процессов. Первой научной публикацией, в которой применялся данный метод, можно назвать статью [80]. В работе А.М. Ильина [78] впервые приводится строгое обоснование метода. Разностная схема экспоненциальной подгонки известна так же, как схема Ильина – Алены – Саусвелла.

Метод экспоненциальной подгонки хорошо зарекомендовал себя при численном исследовании диффузионно-конвективных уравнений с малым параметром при старшей производной. Достаточно полное изложение различных способов применения и путей развития классического варианта метода экспоненциальной подгонки при построении разностных схем приведено в монографии [79]. В настоящее время метод экспоненциальной подгонки применяется наряду с другими методами численного моделирования [81, 82].

Данный метод применим как при численном исследовании быстро протекающих физико-химических процессов [83], как и, например, при моделировании различных неравновесных процессов в МГД-устройствах [84–86]. Использование

метода экспоненциальной подгонки при численном исследовании процессов ориентации, селективно по состояниям, молекул во внешнем поле особенно целесообразно ввиду формы конвективного слагаемого дифференциальных уравнений [7].

В данной работе экспоненциальная подгонка впервые применялась, как при аппроксимации диффузионно-конвективных дифференциальных выражений по пространственной координате, так и при аппроксимации производной по времени, что привело к построению консервативной разностной схемы. Выполнение законов сохранения для нестационарной разностной схемы является существенным фактором при численном моделировании физических процессов. На основе метода экспоненциальной подгонки предложен оригинальный эффективный численный алгоритм численного моделирования задачи [8–9].

## 2.6 Постановка математической задачи

Для решения начально-краевой задачи (2.16) – (2.20) справедливо выполнение в любой момент времени интегральных соотношений.

С целью вывода интегральных соотношений для искомых функций  $f_1(t, \theta_0)$ ,  $f_2(t, \theta_0)$  в качестве первого шага введем функции  $S_1(t)$ ,  $S_2(t)$

$$S_1(t) = \int_0^\pi f_1(t, \theta_0) \sin \theta_0 d\theta_0, \quad S_2(t) = \int_0^\pi f_2(t, \theta_0) \sin \theta_0 d\theta_0. \quad (2.21)$$

Далее проведем интегрирование уравнений системы (2.16), домноженных на  $\sin \theta_0$ , по переменной  $\theta_0$  в пределах от нуля до  $\pi$ ,

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \int_0^\pi f_1 \sin \theta_0 d\theta_0 = - (W_{12}^{ind} + \tilde{W}) \int_0^\pi f_1 \sin \theta_0 d\theta_0 + (W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}) \int_0^\pi f_2 \sin \theta_0 d\theta_0 \\ \frac{d}{dt} \int_0^\pi f_2 \sin \theta_0 d\theta_0 = (W_{12}^{ind} + \tilde{W}) \int_0^\pi f_1 \sin \theta_0 d\theta_0 - (W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}) \int_0^\pi f_2 \sin \theta_0 d\theta_0 \end{cases}.$$

Для определения функций  $S_1(t)$ ,  $S_2(t)$  получим систему обыкновенных дифференциальных уравнений

$$\begin{cases} (S_1(t))' = - (W_{12}^{ind} + \tilde{W}) S_1(t) + (W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}) S_2(t) \\ (S_2(t))' = (W_{12}^{ind} + \tilde{W}) S_1(t) - (W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}) S_2(t) \end{cases}, \quad (2.22)$$

с начальными условиями, которые являются следствием условий (2.19)

$$S_1(0) = \int_0^\pi g_1(\theta_0) \sin \theta_0 d\theta_0, \quad S_2(0) = \int_0^\pi g_2(\theta_0) \sin \theta_0 d\theta_0, \quad (2.23)$$

и условием нормировки в начальный момент времени, являющимся в свою очередь следствием (2.20)

$$S_1(0) + S_2(0) = \frac{1}{2\pi}. \quad (2.24)$$

Система линейных дифференциальных уравнений (2.22) с начальными условиями (2.23) легко решается, для решений системы (2.22) в произвольный момент времени выполняется условие нормировки

$$S_1(t) + S_2(t) = \frac{1}{2\pi}.$$

Запишем в явном виде точные решения  $S_1(t)$ ,  $S_2(t)$  задачи Коши (2.22), (2.23), которые представляют собой интегральные соотношения, справедливые для решений начально-краевой задачи для исходной системы (2.16) – (2.20):

$$S_1(t) = S_1(0) e^{-\left(\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right) + \left(W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}\right)\right)t} + \\ + e^{-\left(\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right) + \left(W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}\right)\right)t} \frac{W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}}{2\pi \left(\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right) + \left(W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}\right)\right)} \left( e^{\left(\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right) + \left(W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}\right)\right)t} - 1 \right), \quad (2.25)$$

$$S_2(t) = S_2(0) e^{-\left(\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right) + \left(W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}\right)\right)t} + \\ + e^{-\left(\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right) + \left(W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}\right)\right)t} \frac{\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right)}{2\pi \left(\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right) + \left(W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}\right)\right)} \left( e^{\left(\left(W_{12}^{ind} + \tilde{W}\right) + \left(W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}\right)\right)t} - 1 \right). \quad (2.26)$$

## 2.7 Алгоритм численного моделирования

Построение разностных схем для численного исследования начально-краевой задачи для системы дифференциальных уравнений будем проводить на равномерных сетках. Правая часть и коэффициенты исследуемых дифференциальных уравнений предполагаются достаточно гладкими, требования к гладкости данных определяются при построении разностной схемы. Разностные схемы, используемые в данной работе, получены при помощи симметризации линейных дифференциальных выражений первого и второго порядков. Далее рассмотрим построение экспоненциальной разностной схемы.

### 2.7.1 Построение экспоненциальной разностной схемы для дифференциального уравнения первого порядка

Рассмотрим задачу Коши для линейного дифференциального уравнения первого порядка:

$$\varepsilon u'(t) + a(t)u(t) = f(t), \quad u(0) = u_0. \quad (2.27)$$

Численное исследование данной задачи будем проводить на равномерной сетке

$$\overline{\Omega}^\tau = \left\{ t_k = k\tau; k = \overline{0, m}; \tau = \frac{T_{\text{exp}}}{m} \right\},$$

где обозначения  $\tau$  и  $m$  используются для обозначения шага и количества интервалов сетки,  $T_{\text{exp}}$  — время проведения вычислительного эксперимента.

Введем вспомогательную функцию

$$A(t) = \int_{t_0}^t a(\xi) d\xi$$

и запишем дифференциальное уравнение в виде

$$\varepsilon \left( u(t) \cdot e^{\frac{A(t)}{\varepsilon}} \right)' = f(t) e^{\frac{A(t)}{\varepsilon}}. \quad (2.28)$$

На основе данной формы записи дифференциального уравнения (2.27) получим разностное соотношение, связывающее значения искомой функции в соседних узлах

$$\varepsilon \frac{u_{k+1} e^{\frac{A(t_{k+1})}{\varepsilon}} - u_k e^{\frac{A(t_k)}{\varepsilon}}}{\tau} = \frac{1}{h} \int_{t_k}^{t_{k+1}} f(t) e^{\frac{A(t)}{\varepsilon}} dt. \quad (2.29)$$

Разностная схема (2.29) имеет множество вариантов, которые отличаются друг от друга аппроксимацией интегралов, содержащих данные исходного дифференциального уравнения (2.27). Достаточно полное изложение доказательства абсолютной устойчивости и обоснование равномерной сходимости по малому параметру разностной схемы (2.29) приведены в обзорной монографии [79]. Ап-

проксимируя интеграл  $\int_{t_k}^{t_{k+1}} a(t) dt$  по формуле трапеций, а интеграл в правой части равенства по формуле левых прямоугольников приедем к явной экспоненциальной разностной схеме первого порядка точности,  $0 \leq k \leq m-1$

$$\frac{u_{k+1} e^{\frac{\bar{a}\tau}{\varepsilon}} - u_k}{\tau} = f_k \frac{e^{\frac{\bar{a}\tau}{\varepsilon}} - 1}{\bar{a}\tau}. \quad (2.30)$$

Здесь  $\bar{a} = \frac{1}{\tau} \int_{t_k}^{t_{k+1}} a(t) dt$ ,  $\bar{a} \approx \frac{a_k + a_{k+1}}{2}$ .

## 2.7.2 Построение экспоненциальной разностной схемы для диффузионно-конвективного уравнения

Рассмотрим одномерное диффузионно-конвекционное уравнение в дивергентной форме:

$$-\left(\varepsilon a(x)u'(x) - b(x)u(x)\right)' = f(x), \quad (2.31)$$

где  $a(x) \geq a_0 \geq 0$  — коэффициент диффузии,  $b(x)$  — коэффициент конвекции, уравнение (2.31) дополним краевыми условиями Дирихле:

$$u(0) = g_1, \quad u(1) = g_2. \quad (2.32)$$

Симметричная форма записи диффузионно-конвекционного уравнения, аналогично предыдущему пункту, позволяет выписать разностную схему на трехточечном шаблоне сетки

$$\overline{\Omega}^h = \left\{ x_i = ih; i = \overline{0, n}; h = \frac{L}{n} \right\},$$

где обозначения  $h$  и  $n$  традиционно используются для обозначения шага и количества интервалов сетки,  $L$  — длина расчетного интервала.

$$\frac{u_i - \exp\left(-\int_{x_i}^{x_{i-1}} \frac{b(\xi)}{\varepsilon a(\xi)} d\xi\right) u_{i-1}}{h^2 \cdot \frac{1}{h} \int_{x_{i-1}}^{x_i} \frac{\exp\left(-\int_{x_i}^x \frac{b(\xi)}{\varepsilon a(\xi)} d\xi\right)}{\varepsilon a(x)} dx} + \frac{u_i - \exp\left(-\int_{x_i}^{x_{i+1}} \frac{b(\xi)}{\varepsilon a(\xi)} d\xi\right) u_{i+1}}{h^2 \cdot \frac{1}{h} \int_{x_i}^{x_{i+1}} \frac{\exp\left(-\int_{x_i}^x \frac{b(\xi)}{\varepsilon a(\xi)} d\xi\right)}{\varepsilon a(x)} dx} = f_i. \quad (2.33)$$

Схема экспоненциальной подгонки (2.33) является монотонной, устойчивой и обладает вторым порядком аппроксимации [78, 79].

### 2.7.3 Разностный оператор для кинетического уравнения

Для применения метода экспоненциальной подгонки при построении эффективного алгоритма численного моделирования запишем диффузионно-конвективный оператор кинетического уравнения Больцмана

$$Lf(\theta_0) \equiv -\frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \sin \theta_0 \left( \frac{\partial f}{\partial \theta_0} + f \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{U}{kT} \right) \right) \right) \quad (2.34)$$

в симметричной форме:

$$Lf(\theta_0) \equiv -\frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{\sin \theta_0}{\exp\left(\frac{U(\theta_0)}{kT}\right)} \cdot \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( f \exp\left(\frac{U(\theta_0)}{kT}\right) \right) \right). \quad (2.35)$$

На основе (2.33) запишем экспоненциальный разностный оператор для аппроксимации оператора (2.34)

$$L^h f^h \equiv g_{i-\frac{1}{2}} \frac{f_i \exp\left(\frac{U(\theta_{0i})}{kT}\right) - f_{i-1} \exp\left(\frac{U(\theta_{0i-1})}{kT}\right)}{h^2} + g_{i+\frac{1}{2}} \frac{f_i \exp\left(\frac{U(\theta_{0i})}{kT}\right) - f_{i+1} \exp\left(\frac{U(\theta_{0i+1})}{kT}\right)}{h^2}, \quad (2.36)$$

где  $i = 1, 2, \dots, n-1$ .

Формулы (2.36) применимы для внутренних узлов сеточной области, граничные условия (2.21) учитываются при построении схемы и приводят к соответствующим граничным разностным соотношениям при значениях  $i = 0$  и  $i = n$ ,

$$\begin{aligned} g_{\frac{1}{2}} \frac{f_0 \exp\left(\frac{U(\theta_{00})}{kT}\right) - f_1 \exp\left(\frac{U(\theta_{01})}{kT}\right)}{h^2} &= 0, \\ g_{\frac{n-1}{2}} \frac{f_n \exp\left(\frac{U(\theta_{0n})}{kT}\right) - f_{n-1} \exp\left(\frac{U(\theta_{0n-1})}{kT}\right)}{h^2} &= 0. \end{aligned} \quad (2.37)$$

Коэффициенты разностной схемы  $g_{i \pm \frac{1}{2}}$  рассчитываются при помощи приближенного вычисления интегралов,

$$g_{i-\frac{1}{2}} = \frac{\int_{\theta_{0i-1}}^{\theta_{0i}} \sin \theta_0 d\theta_0}{\int_{\theta_{0i-1}}^{\theta_{0i}} \exp\left(\frac{U(\theta_0)}{kT}\right) d\theta_0}, \quad g_{i+\frac{1}{2}} = \frac{\int_{\theta_i}^{\theta_{0i+1}} \sin \theta_0 d\theta_0}{\int_{\theta_i}^{\theta_{0i+1}} \exp\left(\frac{U(\theta_0)}{kT}\right) d\theta_0}.$$

Запишем разностный оператор в матричном виде

$$L^h f^h \equiv -A_i f_{i-1} + C_i f_i - B_i f_{i+1}, \quad (2.38)$$

с ненулевыми элементами трехдиагональной матрицы

$$C_i = \left( \frac{\sin \theta_{0i} + \sin \theta_{0i-1}}{\exp\left(\frac{U(\theta_{0i})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U(\theta_{0i-1})}{kT}\right)} + \frac{\sin \theta_{0i} + \sin \theta_{0i+1}}{\exp\left(\frac{U(\theta_{0i})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U(\theta_{0i+1})}{kT}\right)} \right) \times \frac{\exp\left(\frac{U(\theta_{0i})}{kT}\right)}{h^2}, \quad (2.39)$$

$$A_i = \frac{\sin \theta_{0i} + \sin \theta_{0i-1}}{\exp\left(\frac{U(\theta_{0i})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U(\theta_{0i-1})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U(\theta_{0i-1})}{kT}\right)}{h^2}, \quad (2.40)$$

$$B_i = \frac{\sin \theta_{0i} + \sin \theta_{0i+1}}{\exp\left(\frac{U(\theta_{0i})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U(\theta_{0i+1})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U(\theta_{0i+1})}{kT}\right)}{h^2}.$$

Введем обозначения для элементов трехдиагональной матрицы экспоненциально-го разностного оператора  $L_h = \{\dots -A_i C_i -B_i \dots\}$ .

$$L_h = \begin{Bmatrix} C_0 & -B_0 & 0 & \dots & & & & 0 \\ -A_1 & C_1 & -B_1 & 0 & \dots & & & 0 \\ \vdots & & & & & & & \vdots \\ 0 & \dots & -A_{i-1} & C_{i-1} & -B_{i-1} & 0 & \dots & 0 \\ 0 & \dots & 0 & -A_i & C_i & -B_i & 0 & \dots & 0 \\ 0 & \dots & 0 & -A_{i+1} & C_{i+1} & -B_{i+1} & \dots & 0 \\ \vdots & & & & & & & \vdots \\ 0 & & & & & \dots & 0 & -A_n & C_n \end{Bmatrix}. \quad (2.41)$$

Диагональные элементы матрицы положительны, внедиагональные отрицательны, сумма элементов по столбцам равна нулю:

$$C_0 - A_1 = 0, \quad C_i - A_{i+1} - B_{i-1} = 0, \quad i = 1, \dots, n-1, \quad C_n - B_{n-1} = 0.$$

## 2.8 Построение экспоненциальной разностной схемы

Численное исследование начально-краевой задачи (2.16) – (2.20) проведем при помощи метода экспоненциальной подгонки. Приведем систему дифференциальных уравнений (2.16) к удобному для применения экспоненциальной подгонки виду

$$\begin{cases} \sin \theta_0 \cdot \frac{\partial f_1}{\partial t} - \frac{kT}{w} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{\sin \theta_0}{\exp \left( \frac{U_1(\theta_0)}{kT} \right)} \cdot \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( f_1 \cdot \exp \left( \frac{U_1(\theta_0)}{kT} \right) \right) \right) = \\ = -a \sin \theta_0 \cdot f_1 + b \sin \theta_0 \cdot f_2, \\ \sin \theta_0 \cdot \frac{\partial f_2}{\partial t} - \frac{kT}{w} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( \frac{\sin \theta_0}{\exp \left( \frac{U_2(\theta_0)}{kT} \right)} \cdot \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left( f_2 \cdot \exp \left( \frac{U_2(\theta_0)}{kT} \right) \right) \right) = \\ = -b \sin \theta_0 \cdot f_2 + a \sin \theta_0 \cdot f_1, \end{cases} \quad (2.42)$$

где  $a = W_{12}^{ind} + \tilde{W}$  и  $b = W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}$  — краткие вспомогательные обозначения.

В области  $D = [0; T] \times [0; \pi]$  введем равномерную сетку,  $(t_k, \theta_{0i})$  — узлы равномерной сетки,  $t_k = k\tau$ ,  $\theta_{0i} = ih$ , ( $k = 0, 1, \dots, m$ ,  $i = 0, 1, \dots, n$ ),  $\tau$ ,  $h$  — шаги равномерной сетки.

мерной сетки по соответствующим осям,  $m, n$  – количество узлов (рисунок 2.4).

Введем также обозначения  $f_1^h, f_2^h$  для сеточных функций решения.

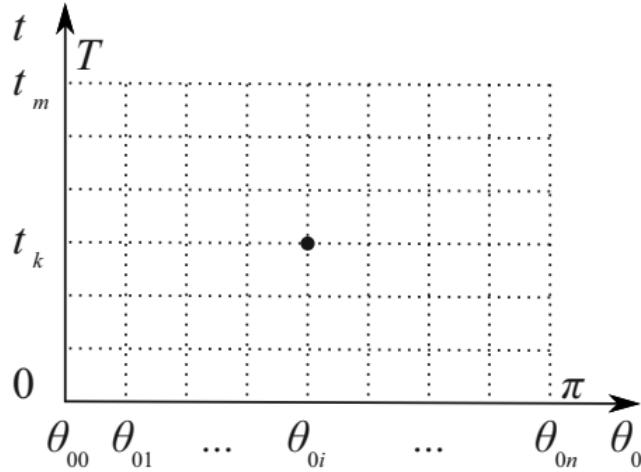


Рисунок 2.4. Равномерная сетка

При численном исследовании процессов, описываемых системой (2.16) – (2.20) возможно применение метода экспоненциальной подгонки не только по пространственной переменной, но и по времени.

Первый шаг построения разностной схемы для численного исследования задачи (2.16) – (2.20) проведем при помощи экспоненциального разностных операторов, построенных на основе (2.38) – (2.40) для каждого из уравнений (2.16).

Запишем разностные операторы экспоненциальной подгонки по пространственной координате во внутренних узлах сетки,  $1 \leq i \leq n-1$ :

$$\begin{aligned}
 L_1^h f_1^h &\equiv \frac{\sin \theta_{0i} + \sin \theta_{0i-1}}{\exp\left(\frac{U_1(\theta_{0i})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U_1(\theta_{0i-1})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U_1(\theta_{0i})}{kT}\right) f_{1i}^k - \exp\left(\frac{U_1(\theta_{0i-1})}{kT}\right) f_{1i-1}^k}{h^2} + \\
 &+ \frac{\sin \theta_{0i} + \sin \theta_{0i+1}}{\exp\left(\frac{U_1(\theta_{0i})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U_1(\theta_{0i+1})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U_1(\theta_{0i})}{kT}\right) f_{1i}^k - \exp\left(\frac{U_1(\theta_{0i+1})}{kT}\right) f_{1i+1}^k}{h^2}, \tag{2.43}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
L_2^h f_2^h &\equiv \frac{\sin \theta_{0i} + \sin \theta_{0i-1}}{\exp\left(\frac{U_2(\theta_{0i})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U_2(\theta_{0i-1})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U_2(\theta_{0i})}{kT}\right) f_{2i}^k - \exp\left(\frac{U_2(\theta_{0i-1})}{kT}\right) f_{2i-1}^k}{h^2} + \\
&+ \frac{\sin \theta_{0i} + \sin \theta_{0i+1}}{\exp\left(\frac{U_2(\theta_{0i})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U_2(\theta_{0i+1})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U_2(\theta_{0i})}{kT}\right) f_{2i}^k - \exp\left(\frac{U_2(\theta_{0i+1})}{kT}\right) f_{2i+1}^k}{h^2}.
\end{aligned} \tag{2.44}$$

В граничных узлах,  $i = 0, i = n$ , для аппроксимации граничных условий (2.18) на основе (2.37) приходим к равенствам

$$\begin{aligned}
&\frac{\sin \theta_{00} + \sin \theta_{01}}{\exp\left(\frac{U_1(\theta_{00})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U_1(\theta_{01})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U_1(\theta_{00})}{kT}\right) f_{10}^k - \exp\left(\frac{U_1(\theta_{01})}{kT}\right) f_{11}^k}{h^2} = 0, \\
&\frac{\sin \theta_{0n} + \sin \theta_{0n-1}}{\exp\left(\frac{U_1(\theta_{0n})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U_1(\theta_{0n-1})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U_1(\theta_{0n})}{kT}\right) f_{1n}^k - \exp\left(\frac{U_1(\theta_{0n-1})}{kT}\right) f_{1n-1}^k}{h^2} = 0,
\end{aligned} \tag{2.45}$$

$$\begin{aligned}
&\frac{\sin \theta_{00} + \sin \theta_{01}}{\exp\left(\frac{U_2(\theta_{00})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U_2(\theta_{01})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U_2(\theta_{00})}{kT}\right) f_{20}^k - \exp\left(\frac{U_2(\theta_{01})}{kT}\right) f_{21}^k}{h^2} = 0, \\
&\frac{\sin \theta_{0n} + \sin \theta_{0n-1}}{\exp\left(\frac{U_2(\theta_{0n})}{kT}\right) + \exp\left(\frac{U_2(\theta_{0n-1})}{kT}\right)} \frac{\exp\left(\frac{U_2(\theta_{0n})}{kT}\right) f_{2n}^k - \exp\left(\frac{U_2(\theta_{0n-1})}{kT}\right) f_{2n-1}^k}{h^2} = 0.
\end{aligned} \tag{2.46}$$

Второй шаг построения разностной схемы для нестационарной системы

$$\begin{cases} \sin \theta_{0i} \frac{\partial f_{1i}}{\partial t} + \frac{kT}{w} L_h f_{1h} = -a \sin \theta_{0i} \cdot f_{1i} + b \sin \theta_{0i} \cdot f_{2i} \\ \sin \theta_{0i} \frac{\partial f_{2i}}{\partial t} + \frac{kT}{w} L_h f_{2h} = -b \sin \theta_{0i} \cdot f_{2i} + a \sin \theta_{0i} \cdot f_{1i} \end{cases}$$

заключается в применении экспоненциальной подгонки по времени. Прибавим  $b \sin \theta_{0i} f_{1i}$  к обеим частям первого уравнения и  $a \sin \theta_{0i} f_{2i}$  к обеим частям второго уравнения. Запишем полученный результат в виде, аналогичному (2.27),

$$\begin{cases} \sin \theta_{0i} \frac{\partial f_{1i}}{\partial t} + (a+b) \sin \theta_{0i} \cdot f_{1i} + \frac{kT}{w} L_h f_{1h} = b \sin \theta_{0i} \cdot (f_{1i} + f_{2i}) \\ \sin \theta_{0i} \frac{\partial f_{2i}}{\partial t} + (a+b) \sin \theta_{0i} \cdot f_{2i} + \frac{kT}{w} L_h f_{2h} = a \sin \theta_{0i} \cdot (f_{1i} + f_{2i}) \end{cases}.$$

Далее на основе (2.30) придем к экспоненциальному по обеим переменным итоговой разностной схеме

$$\begin{cases} \sin \theta_{0i} \frac{f_{1i}^{k+1} e^{(a+b)\tau} - f_{1i}^k}{\tau} + \frac{kT}{w} \frac{e^{(a+b)\tau} - 1}{(a+b)\tau} L_1^h f_1^h = b \frac{e^{(a+b)\tau} - 1}{(a+b)\tau} \sin \theta_{0i} \cdot (f_{1i}^k + f_{2i}^k) \\ \sin \theta_{0i} \frac{f_{2i}^{k+1} e^{(a+b)\tau} - f_{2i}^k}{\tau} + \frac{kT}{w} \frac{e^{(a+b)\tau} - 1}{(a+b)\tau} L_2^h f_2^h = a \frac{e^{(a+b)\tau} - 1}{(a+b)\tau} \sin \theta_{0i} \cdot (f_{1i}^k + f_{2i}^k) \end{cases}. \quad (2.47)$$

Экспоненциальная явная схема бегущего счета реализуется на четырехточечном сеточном шаблоне (рисунок 2.5).

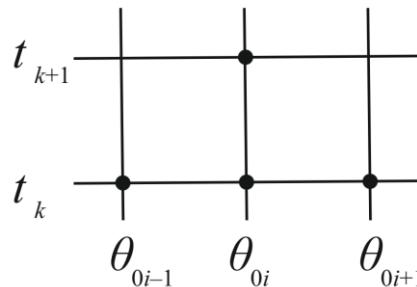


Рисунок 2.5. Четырехточечный сеточный шаблон

Явная экспоненциальная разностная схема (2.47) позволяет на следующем слое по времени вычислить значения численного решения  $f_{1i}^{k+1}$ ,  $f_{2i}^{k+1}$  во внутренних узлах сеточной области. Определение значений искомых функций в граничных узлах,  $f_{10}^{k+1}$ ,  $f_{1n}^{k+1}$ ,  $f_{20}^{k+1}$ ,  $f_{2n}^{k+1}$ , происходит при помощи формул (2.45), (2.46).

## 2.9 Консервативность, аппроксимация и устойчивость разностной схемы

Для обоснования консервативности разностной схемы необходимо установить выполнение разностных аналогов интегральных соотношений (2.25), (2.26), а также справедливость распространения начального условия нормировки данных дифференциальной задачи на любой расчетный момент времени.

Введем разностные аппроксимации  $S_1^h$ ,  $S_2^h$  интегральных функций  $S_1(t)$ ,  $S_2(t)$ , (2.21),

$$S_1^j = \sum_{k=1}^n f_{1k}^j \sin \theta_{0k}, \quad S_2^j = \sum_{k=1}^n f_{2k}^j \sin \theta_{0k}.$$

Первым шагом установим выполнение для разностных решений  $f_1^h$ ,  $f_2^h$  условия нормировки для любого узла по времени. Суммируя все уравнения разностной схемы (2.47), придем к справедливости равенства

$$S_1^{j+1} e^{(a+b)\tau} - S_1^j + S_2^{j+1} e^{(a+b)\tau} - S_2^j = (e^{(a+b)\tau} - 1)(S_1^j + S_2^j),$$

$$S_1^{j+1} e^{(a+b)\tau} + S_2^{j+1} e^{(a+b)\tau} = e^{(a+b)\tau} (S_1^j + S_2^j),$$

тем самым, установим выполнение условия нормировки для любого слоя по времени

$$S_1^{j+1} + S_2^{j+1} = S_1^j + S_2^j = \dots = S_1^0 + S_2^0 = \frac{1}{2\pi}.$$

Для проверки выполнения разностных аналогов интегральных соотношений (2.25), (2.26) суммируем уравнения разностной схемы для каждого состояния отдельно, получим следующие соотношения:

$$S_1^{j+1} e^{(a+b)\tau} - S_1^j = \frac{b(e^{(a+b)\tau} - 1)}{a+b} (S_1^j + S_2^j),$$

$$S_2^{j+1} e^{(a+b)\tau} - S_2^j = \frac{a(e^{(a+b)\tau} - 1)}{a+b} (S_1^j + S_2^j).$$

Выразив  $S_1^{j+1}$  и  $S_2^{j+1}$ , получим выполнение разностных аналогов соотношений (2.25), (2.26) на интегральные функции для соседних узлов повремени:

$$S_1^{j+1} = e^{-(a+b)\tau} S_1^j + e^{-(a+b)\tau} \frac{b(e^{(a+b)\tau} - 1)}{a+b} \frac{1}{2\pi},$$

$$S_2^{j+1} = e^{-(a+b)\tau} S_2^j + e^{-(a+b)\tau} \frac{a(e^{(a+b)\tau} - 1)}{a+b} \frac{1}{2\pi}.$$

Далее приступим к выводу порядка аппроксимации и устойчивости построенной разностной схемы. Запишем экспоненциальную разностную схему в удобном виде

$$\begin{cases} \frac{f_{1i}^{j+1} e^{(\eta_1 + \eta_2)\tau} - f_{1i}^j}{e^{(\eta_1 + \eta_2)\tau} - 1} (\eta_1 + \eta_2) \sin \theta_{0i} - (\eta_1 + \eta_2) f_{1i}^j \sin \theta_{0i} + \frac{kT}{W} L_{1h} f_{1h}^j = \\ = -\eta_1 f_{1i}^j \sin \theta_{0i} + \eta_2 f_{2i}^j \sin \theta_{0i}, \\ \frac{f_{2i}^{j+1} e^{(\eta_1 + \eta_2)\tau} - f_{2i}^j}{e^{(\eta_1 + \eta_2)\tau} - 1} (\eta_1 + \eta_2) \sin \theta_{0i} - (\eta_1 + \eta_2) f_{2i}^j \sin \theta_{0i} + \frac{kT}{W} L_{2h} f_{2h}^j = \\ = -\eta_2 f_{2i}^j \sin \theta_{0i} + \eta_1 f_{1i}^j \sin \theta_{0i}. \end{cases}$$

Раскладывая на точном решении разностные уравнения системы (2.47) по формуле Тейлора, получаем, что первые два слагаемых уравнений разностной схемы (2.47) аппроксимируют производную по времени с погрешностью  $O(\tau)$ .

Порядок аппроксимации разностного экспоненциального оператора (2.38) согласно работам [78, 79] может принимать значения от  $O(h^2)$  в регулярном случае до  $O(h)$  в сингулярном случае. Для определения порядка аппроксимации экспоненциального разностного оператора в данном конкретном случае воспользуемся алгоритмом определения экспериментального порядка аппроксимации на последовательности вложенных сеток.

Тестовые расчеты на последовательности сеток проведем при увеличении количества узлов от 25 до 400. Для различных значений параметров системы, соответствующих физическим постановкам, экспериментальный порядок аппроксимации принимает значения в пределах от 1,68 до 1,84.

Таким образом, можно утверждать, что разностная схема (2.47) аппроксимирует систему дифференциальных уравнений (2.16) в узле  $(x_i, t_j)$  с погрешностью

$$\phi_i^j = O(\tau) + O(h^{1,6})$$

Явная разностная схема (2.47) является условно устойчивой. Для изучения устойчивости запишем разностную схему в каноническом виде

$$\begin{cases} f_{1i}^{j+1} \sin \theta_{0i} = \\ = f_{1i}^j e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau} \sin \theta_{0i} - \frac{kT}{W} \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} L_{1h} f_{1h}^j + \eta_2 \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} \sin \theta_{0i} \cdot (f_{1i}^j + f_{2i}^j), \\ f_{2i}^{j+1} \sin \theta_{0i} = \\ = f_{2i}^j e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau} \sin \theta_{0i} - \frac{kT}{W} \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} L_{2h} f_{2h}^j + \eta_1 \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} \sin \theta_{0i} \cdot (f_{1i}^j + f_{2i}^j). \end{cases} \quad (2.48)$$

Приводя подобные слагаемые при значениях  $f_{1i}^j$ ,  $f_{2i}^j$  в правой части уравнений разностной схемы, используя обозначения (2.41) для элементов матриц, выпишем условия положительности для диагональных элементов матрицы перехода,  $1 \leq i \leq n-1$ ,

$$\begin{cases} e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau} \sin \theta_{0i} - \frac{kT}{W} \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} C_{1i} + \eta_2 \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} \sin \theta_{0i} > 0, \\ e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau} \sin \theta_{0i} - \frac{kT}{W} \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} C_{2i} + \eta_1 \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} \sin \theta_{0i} > 0. \end{cases} \quad (2.49)$$

При соблюдении данных неравенств все ненулевые элементы матрицы перехода являются положительными, что обеспечивает монотонность разностной схемы (2.47). Условия (2.49) выполняются при величине шага по времени порядка квадрата шага по пространственной переменной,  $\tau = O(h^2/2)$ . При решении конкретных физических задач ограничение на величину шага по времени требует обязательного уточнения.

Для исследования устойчивости и сходимости экспоненциальной разностной схемы (2.47) введем погрешности разностного решения  $z_{1h}$  и  $z_{2h}$ , для них справедливы соотношения подобные равенствам (2.48).

$$\begin{cases} z_{1i}^{j+1} \sin \theta_{0i} = \\ = z_{1i}^j e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau} \sin \theta_{0i} - \frac{kT}{W} \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} L_{1h} z_{1h}^j + \eta_2 \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} \sin \theta_{0i} \cdot (z_{1i}^j + z_{2i}^j) + \eta_2 \tau \phi_{1i}^j, \\ z_{2i}^{j+1} \sin \theta_{0i} = \\ = z_{2i}^j e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau} \sin \theta_{0i} - \frac{kT}{W} \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} L_{2h} z_{2h}^j + \eta_1 \frac{1 - e^{-(\eta_1 + \eta_2)\tau}}{(\eta_1 + \eta_2)} \sin \theta_{0i} \cdot (z_{1i}^j + z_{2i}^j) + \eta_1 \tau \phi_{2i}^j. \end{cases}$$

Повторяя рассуждения при выводе равенства (2.48), используя неравенство треугольника и положительность ненулевых элементов матрицы перехода, получим неравенство (2.49) для абсолютных величин погрешностей, из которого следует устойчивость и сходимость экспоненциальной разностной схемы (2.47) в октодрической взвешенной сеточной норме

$$\sum_{i=1}^{n-1} (|z_{1i}^{j+1}| + |z_{2i}^{j+1}|) h \sin \theta_{0i} \leq \sum_{i=1}^{n-1} (|z_{1i}^j| + |z_{2i}^j|) h \sin \theta_{0i} + \tau \sum_{i=1}^{n-1} (\eta_2 |\phi_{1i}^j| + \eta_1 |\phi_{2i}^j|) h.$$

## 2.10 Тестовые расчеты и достоверность результатов.

### Иллюстрация сходимости нестационарной задачи к стационарной

Для иллюстрации работы алгоритма численно исследуем изменение распределения по состояниям полярных молекул под воздействием постоянного электрического поля  $\vec{E}_0$ . В начальный момент распределение равномерное при отсутствии внешнего воздействия.

Селективная ориентация молекул в постоянном поле осуществляется за счет различных значений постоянного дипольного момента в основном и возбужденном состояниях. Согласно параграфу 2.2.1, в случае, когда величина постоянного дипольного момента в основном состоянии  $\vec{\mu}_1$  меньше, чем в возбужденном со-

стоянии  $\vec{\mu}_2$ , направление вектора электродипольного момента перехода  $\vec{d}_{21}$  совпадает с направлением  $\vec{\mu}_1$  и  $\vec{\mu}_2$ , эффект безынверсного усиления наиболее сильно может проявляться при параллельных  $\vec{E}$  и  $\vec{E}_0$ .

Для численного решения нестационарной системы кинетических уравнений (2.16) используется экспоненциальная схема бегущего счета (2.47) со следующими параметрами расчета:  $n = 50$ , шаг сетки по пространственной переменной  $h = 0,02\pi$ , шаг по времени  $\tau = 0,001$ , количество шагов по времени  $m = 10000$ , значение коэффициента  $w/kT$  примем равным единице. Соотношение между величинами  $h$  и  $\tau$  позволяет выполнить условия устойчивости при рассмотренных значениях физических параметров.

Рассмотрим, как с течением времени изменяется распределение по состояниям полярных молекул под воздействием внешнего электрического поля с параметрами ориентации:  $p_1 = 0,5$ ,  $p_2 = 2$ . Характерными величинами, соответствующими этим параметрам ориентации являются (в Дебаях)  $\mu_1 = 0,5\text{Д}$  и  $\mu_2 = 2\text{Д}$ , и соответствующего им напряженности поля  $E_0 = 1,2 \cdot 10^9 \text{ В/м}$  при температуре  $T = 300\text{K}$  (см. выражение (2.7)).

Вычислительный эксперимент проведен при следующем соотношении:  $\tau_0/\tau_1^{eff} = 0,01$ ,  $\tau_0/\tau_2^{eff} = 0,0125$ , что соответствует допущениям, принятым в [63–65].

На рисунке 2.6 изображены нормированные функции статистического распределения ориентаций молекул в основном  $f_1(\theta_0)$  (сплошная кривая (1)) и возбужденном  $f_2(\theta_0)$  (штриховая кривая (2)) состояниях в зависимости от угла  $\theta_0$ . Рисунок 2.6 (а) соответствует начальному моменту времени, рисунок 2.6 (б) соответствует 15 единицам расчетного времени, рисунок 2.6 (в) – 20, рисунок 2.6 (г) – 30 единицам расчетного времени соответственно.

В начальный момент времени (рисунок 2.6 (а)) поле  $\vec{E}_0$  отсутствует и молекулы, находящиеся в основном и возбужденном состояниях, равномерно распределены. С течением времени, после включения поля  $\vec{E}_0$ , характер функций при-

ближается к стационарному. При этом, в возбужденном состоянии наблюдается более высокая скорость изменения функции распределения (рисунки 2.6 (б), (в)). По истечении времени большего, чем время установления ориентационного равновесия  $\tau_0$  и время жизни  $\tau_j^{eff}$ , в абсолютном выражении время расчета по оценкам составляет величину меньшую 1 нс, устанавливаются стационарные функции распределения по ориентациям молекул находящихся в основном и возбужденном состояниях (рисунок 2.6 (г)).

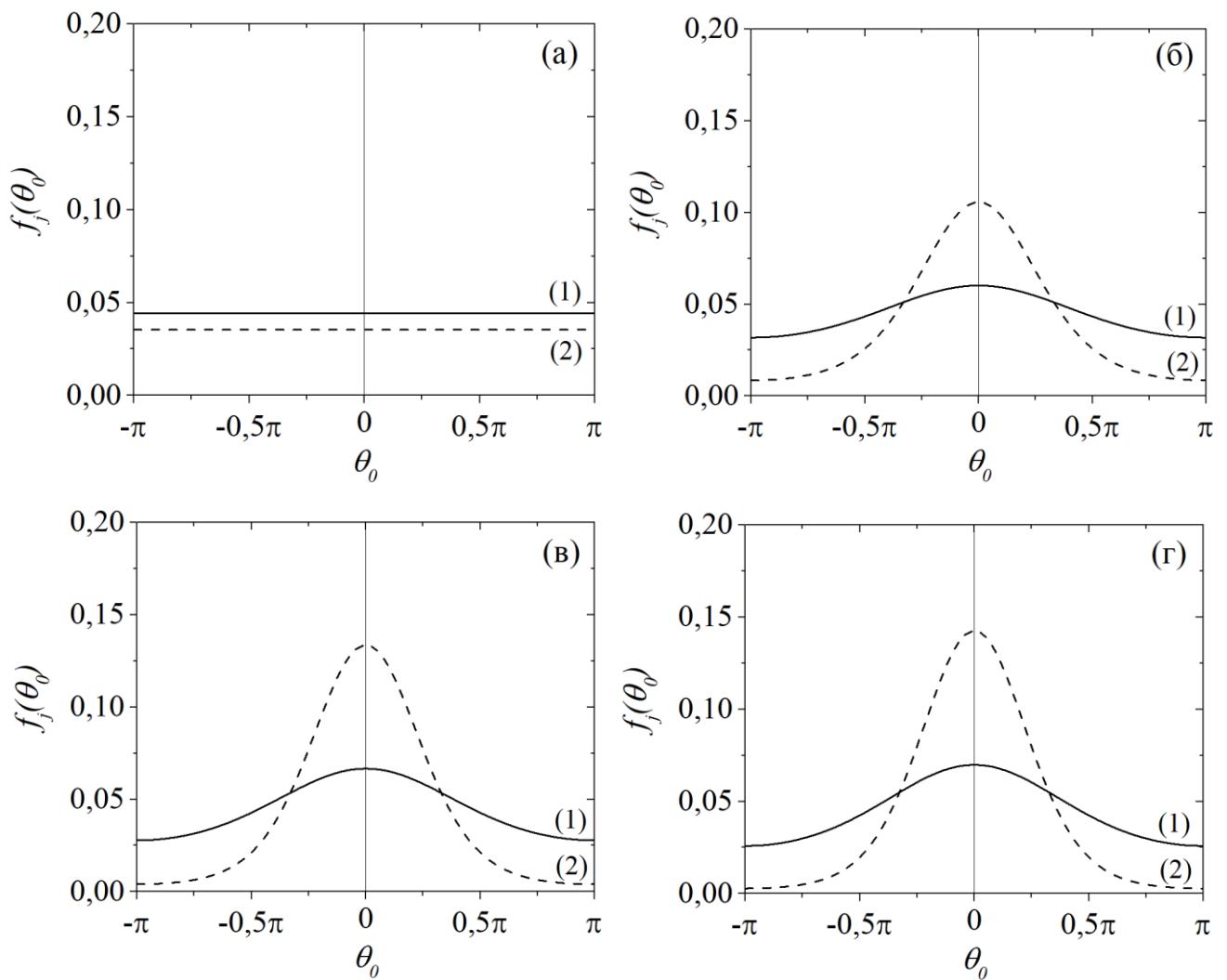


Рисунок 2.6. Нормированные функции статистического распределения  
ориентаций молекул [7]

Результаты тестовых вычислительных экспериментов, при заданных начальных возмущениях распределений ориентаций молекул, показывают, что чис-

ленное решение выходит на асимптотику стационарных распределений полученных в аналитическом виде [63–65].

## 2.11 Выводы к главе 2

Предложенная модель системы кинетических уравнений позволяет учесть влияние всех временных параметров, таких как времена жизни основного и возбужденного состояний  $\tau_j^{eff}$ , время установления ориентационного равновесия  $\tau_0$  на переходные процессы при включении импульсного ориентирующего поля.

Использующаяся система кинетических уравнений, описывающая функции распределения в основном и возбужденном состояниях с учетом переходов между ними верно описывает ориентацию молекул под воздействием как стационарного, так и импульсного ориентирующего поля с учетом вероятностей переходов между рабочими уровнями, времени установления ориентационного равновесия, населенности уровней, параметров ориентации молекулы в основном и возбужденном состояниях, включающих в себя как амплитуду ориентирующего поля, так и значения поляризуемости (постоянного дипольного момента или наведенного ориентирующим полем).

Предложен и обоснован эффективный вычислительный алгоритм для решения нестационарной системы кинетических уравнений, описывающей процессы ориентации молекул в поле с учетом переходов между уровнями, временем установления ориентационного равновесия, определяющимся как температурой среды, так и ее вязкостью, а также энергии взаимодействия молекулы в основном и возбужденном состояниях. Алгоритм основан на методе экспоненциальной подгонки. Для численного решения семейства нестационарных разностных схем выполняется разностный аналог закона сохранения, справедливый для решения исходной задачи.

Консервативность предложенной экспоненциальной разностной схемы обуславливается тем, что экспоненциальная подгонка при построении схемы применяется как по пространственной переменной, так и по времени.

Выполнено тестовое численное моделирование процесса ориентации двухуровневых молекул во внешнем поле. Проведенные численные эксперименты, иллюстрируют режим установления при постоянном внешнем воздействии. Полученные численные результаты полностью отвечают физической интерпретации рассматриваемых процессов.

## ГЛАВА 3

**Исследование установившегося режима ориентации молекул  
во внешнем импульсном поле с учетом переходов  
между энергетическими уровнями**

В данное главе будут рассмотрены случаи, при которых ориентирующее поле хоть и является импульсным, с целью повысить порог пробоя, но, мы не будем останавливаться на длительности и форме импульса, и, следовательно, не будем учитывать переходные процессы. Основной задачей данной главы является исследование влияния соотношения времен жизни основного и возбужденного состояний и времени ориентационного равновесия, для того чтобы прояснить вопрос о границах использования приближения принятого в работах [63–65]. Таким образом, введение импульсного ориентирующего поля будем рассматривать как тривиальный случай повышения порога пробоя.

### **3.1 Основные уравнения**

При исследовании влияния отношения времени ориентационного равновесия и времени жизни возбужденного состояния  $\tau_0/\tau_2^{eff}$  энергия взаимодействия  $U_j$  в (2.17) не зависит от времени, поскольку предполагается, что разность заселенностей также не зависит от времени, тогда производную по времени необходимо прировнять нулю и записать систему уравнений для стационарного случая:

$$\begin{cases} -\frac{1}{\sin \theta_0} \frac{d}{d\theta_0} \left\{ \sin \theta_0 \left[ \frac{df_1}{d\theta_0} + f_1 \frac{d}{d\theta_0} \left( \frac{U_1}{kT} \right) \right] \right\} + \frac{6\tau_o}{\tau_1^{eff}} f_1 - \frac{6\tau_o}{\tau_2^{eff}} f_2 = 0 \\ -\frac{1}{\sin \theta_0} \frac{d}{d\theta_0} \left\{ \sin \theta \left[ \frac{df_2}{d\theta_0} + f_2 \frac{d}{d\theta_0} \left( \frac{U_2}{kT} \right) \right] \right\} + \frac{6\tau_o}{\tau_2^{eff}} f_2 - \frac{6\tau_o}{\tau_1^{eff}} f_1 = 0 \end{cases}. \quad (3.1)$$

А также дополнить систему граничными условиями (3.2) и условием нормировки для функций распределения в начальный момент (3.3).

$$\frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} \Big|_{\theta_0=0} = \frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} \Big|_{\theta_0=0} = 0, \quad \frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} \Big|_{\theta_0=\pi} = \frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} \Big|_{\theta_0=\pi} = 0, \quad (3.2)$$

$$2\pi \int_0^\pi [f_1(\theta_0) + f_2(\theta_0)] \sin \theta_0 d\theta_0 = 1. \quad (3.3)$$

Для иллюстрации, рассмотрим случаи, в которых эффект безынверсного усиления может проявляться наиболее сильно.

### 3.2 Ориентация полярных молекул

Как отмечалось выше, при  $\tau_j^{eff} \gg \tau_0$  за время жизни молекулы в возбужденном состоянии равновесное распределение по ориентациям успевает устанавливаться, и соотношения (2.9), (2.10) и (2.11), (2.12) могут быть выражены через функции Ланжевена, поскольку функции распределения по ориентациям в этих выражениях с хорошей степенью точности аппроксимируются функциями распределения Больцмана. В случае невыполнения этого неравенства характер функций распределения по ориентациям в состоянии 1 и 2 будет определяться комби-

нацией функций распределения в обоих состояниях, которые могут существенно отличаться, например, в виду различия  $\mu_1$  от  $\mu_2$ .

### 3.2.1 Влияние отношения времен жизни возбужденного и основного состояния и времени ориентационного равновесия на вид статистических функций

Рассмотрим влияние соотношения  $\tau_0/\tau_j^{eff}$  на вид функции статистического распределения по ориентации молекул на примере усиления в газе полярных молекул [3]. Для примера примем время жизни в возбужденном состоянии  $\tau_2^{eff}$  равным времени жизни в основном состоянии  $\tau_1^{eff}$  ( $\tau_2^{eff}/\tau_1^{eff} = 1, n_1 = n_2$ ), а постоянный дипольный момент в основном состоянии  $\mu_1$  больше чем в возбужденном  $\mu_2$ .

Расчеты проведены при значениях параметров ориентации  $p_1 = 8, p_2 = 2$ , что соответствует  $\mu_1 = 2\mathcal{D}, \mu_2 = 0,5\mathcal{D}$  и напряженности ОП  $E_0 = 5 \cdot 10^9 \text{ В/м}$  при температуре  $T = 300K$  ( $\mu_1/\mu_2 = 4, \vec{E}_0 \perp \vec{E}$ ).

На рисунке 3.1 представлены нормированные на единицу графики функции статистического распределения ориентаций молекул в основном (1) и возбужденном (2) состояниях в зависимости от угла  $\theta_0$ , выраженного в радианах.

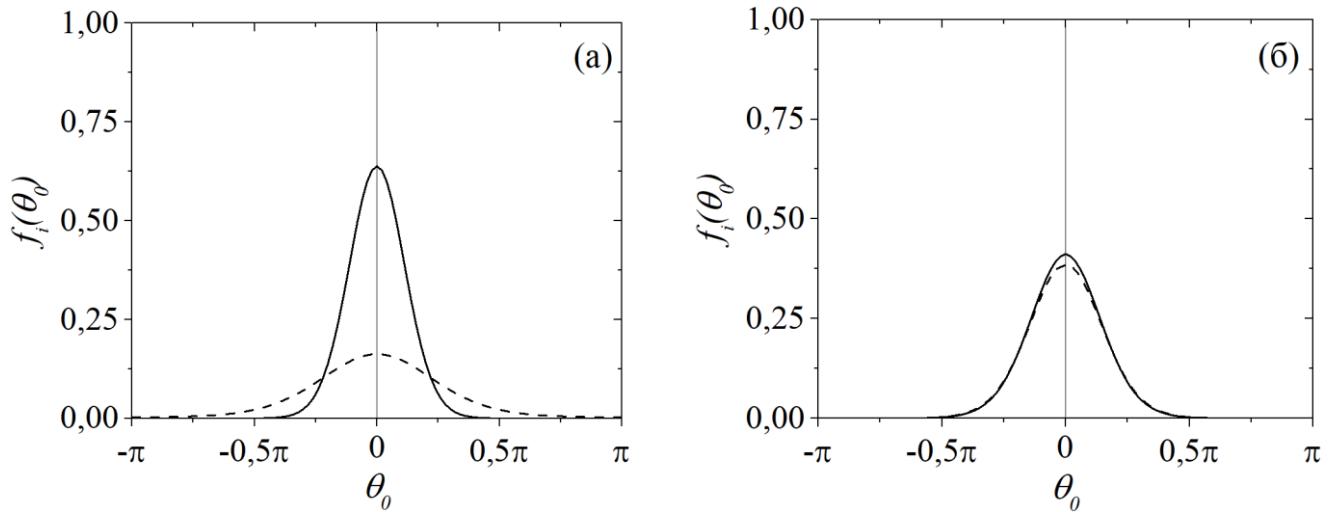


Рисунок 3.1. Нормированное на единицу статистическое распределение ориентации молекул в основном (сплошная линия) и возбужденном (штриховая линия) состояниях

На рисунке 3.1 (а) показан вид функций статистического распределения ориентации молекул в основном (сплошная линия) и возбужденном (штриховая линия) состояниях при  $\tau_0/\tau_1^{eff} = \tau_0/\tau_2^{eff} = 0,01$ , т.е. при значениях времен жизни  $\tau_1^{eff}$  и  $\tau_2^{eff}$  значительно больших времени установления ориентационного равновесия  $\tau_0$ . Как видно из рисунка  $f_1$  и  $f_2$  сильно различаются и соответствуют равновесным функциям распределения Больцмана, принятым в работах [63–65]. Обратная картина продемонстрирована на рисунке 3.1 (б), на котором приведены функции распределения, полученные при  $\tau_0/\tau_1^{eff} = \tau_0/\tau_2^{eff} = 10$ . В данном случае времена установления ориентационного равновесия намного больше времен жизни в основном и возбужденном состояниях. Очевидно, что в этом случае молекула за время жизни на уровне не успевает сориентироваться вдоль ориентирующего поля и функции распределения не являются равновесным, поскольку их вид в состояниях 1 и 2 практически совпадает. Данное утверждение демонстрируем наглядно следующим примером: примем параметр ориентации возбужденного состояния равным нулю ( $p_1 = 8$ ,  $p_2 = 0$ ), что соответствует равновероятной ориентации молекул в возбужденном состоянии (Рисунок 3.2).

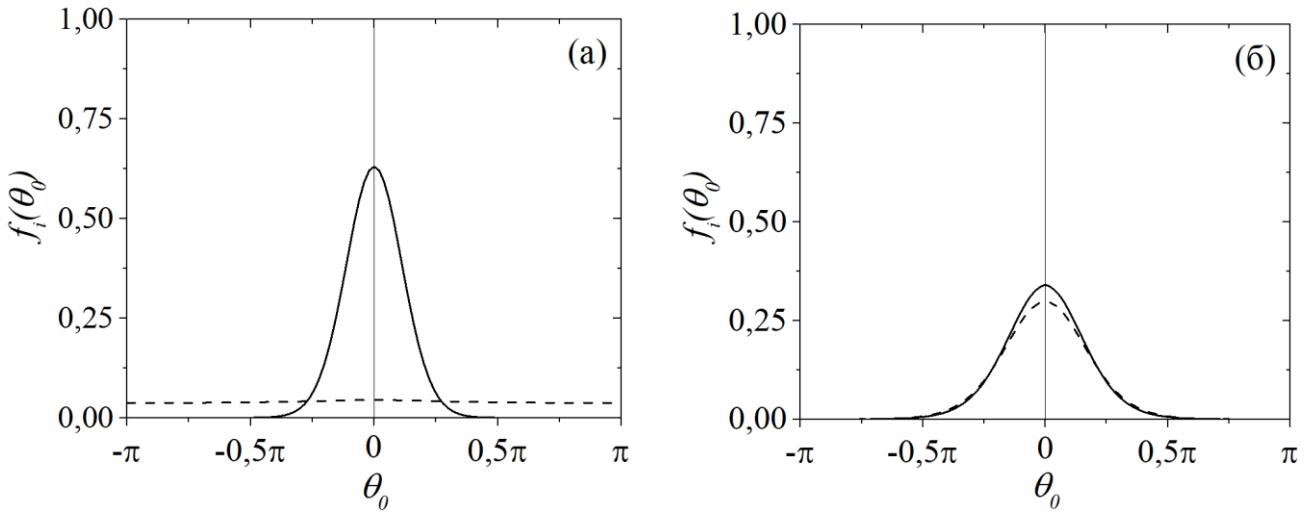


Рисунок 3.2. Нормированное на единицу статистическое распределение ориентации молекул в основном (сплошная линия) и возбужденном (штриховая линия) состояниях

В этом случае, как видно из рисунка 3.2 (а), при значениях  $\tau_0/\tau_1^{eff} = \tau_0/\tau_2^{eff} = 0,01$ , функции  $f_1$  и  $f_2$  также сильно различаются, причем  $f_2$  равновероятна по углу  $\theta_0$ . Если время ориентационного равновесия больше времени жизни в возбужденном состоянии,  $\tau_0/\tau_1^{eff} = \tau_0/\tau_2^{eff} = 10$  (Рисунок 3.2 (б)), вид функций распределения в основном и возбужденном состояниях практически совпадает с видом на рисунке 3.1 (б), поскольку молекула за время жизни на уровне не успевает сориентироваться вдоль ориентирующего поля и функции распределения не являются равновесным.

### 3.2.2 Влияние величины параметров ориентации на значение статистических функций распределения и коэффициент усиления

Рассмотрим влияние соотношения  $\tau_0/\tau_1^{eff}$  и  $\tau_0/\tau_2^{eff}$  на вид зависимости коэффициента усиления  $\alpha$  от параметра ориентации  $p_j$  для случаев, рассмотрен-

ных в параграфе 2.2.1 [3]. Для примера примем время жизни в возбужденном состоянии  $\tau_2^{eff}$  меньше времени жизни в основном состоянии  $\tau_1^{eff}$  ( $\tau_2^{eff}/\tau_1^{eff} = n_2/n_1 = 0,8$ ).

На рисунке 3.3 приведены рассчитанные зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha' = \alpha/N\sigma_0$  от параметра ориентации при различных соотношениях  $\tau_0/\tau_1^{eff}$  и  $\tau_0/\tau_2^{eff}$ .

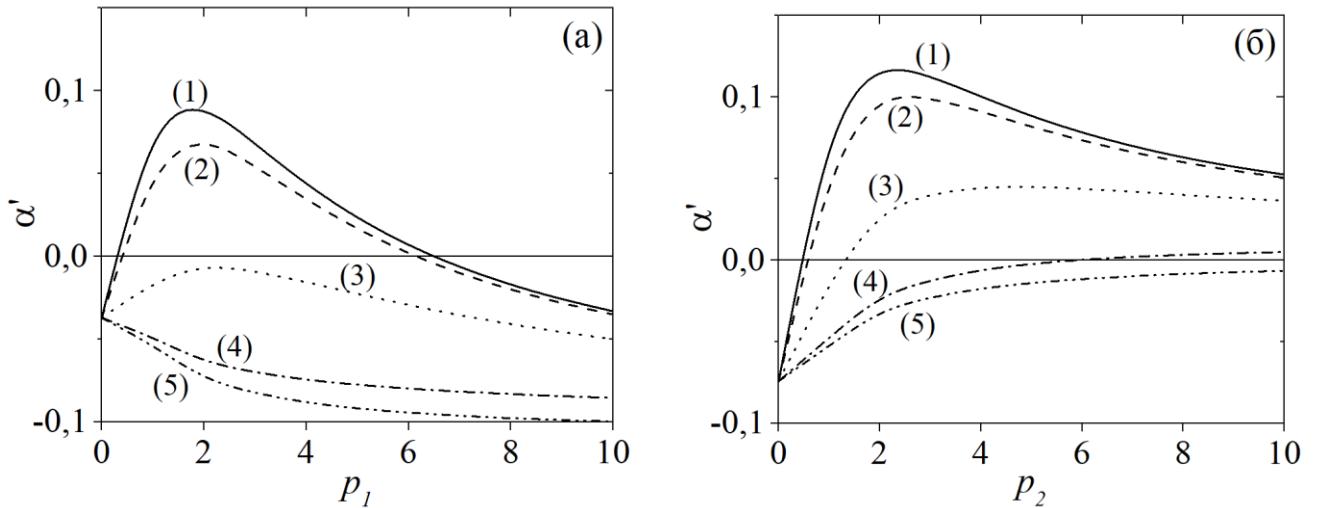


Рисунок 3.3. Зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  от параметра ориентации  $p_j$ , полученные при соотношении (а)  $\mu_2/\mu_1 = 4$  и (б)  $\mu_1/\mu_2 = 4$  при различных значениях  $\tau_0/\tau_2^{eff}$ : (1) — 0,01; (2) — 0,1; (3) — 1,0; (4) — 10,0; (5) — 100,0

Рассмотрим случай, когда постоянный дипольный момент в основном состоянии  $\mu_1$  меньше, чем в возбужденном  $\mu_2$  ( $\mu_2/\mu_1 = 4$ ). Тогда для оптимальное усиление будет наблюдаться при параллельных полях  $E$  и  $E_0$ . На рисунке 3.3 (а) приведены зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  от параметра ориентации возбужденного состояния  $p_1$  при различных значениях соотношения  $\tau_0/\tau_1^{eff}$  и  $\tau_0/\tau_2^{eff}$ . Кривая 1 демонстрирует ситуацию, когда время установления ориентационного равновесия намного меньше времени жизни возбужденного состояния ( $\tau_0/\tau_2^{eff} = 0,01$ ), что соответствует приближению принятому в работах

[63–65] и кривая 1 полностью совпадает с приведенными в этих работах кривыми. Заметим, что граница усиления в данном случае проходит в достаточно узкой области значений параметра ориентации. С увеличением соотношения  $\tau_0/\tau_2^{eff}$  данная граница уменьшается (кривая 2) и уже при значениях  $\tau_0/\tau_2^{eff}$  близких к 1 поглощения наблюдается на всей области значений параметра ориентации (кривые 3–5).

Рассмотрим обратный случай, когда постоянный дипольный момент в основном состоянии  $\mu_1$  больше чем в возбужденном  $\mu_2$  ( $\mu_1/\mu_2 = 4$ ), тогда для подавления поглощения целесообразно ориентировать поле  $E$  ортогонально  $E_0$ . На рисунке 3.3 (б) приведены зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  от параметра ориентации возбужденного состояния  $p_2$  при различных значениях соотношения  $\tau_0/\tau_1^{eff}$  и  $\tau_0/\tau_2^{eff}$ . Как и в предыдущем случае, кривая 1 демонстрирует ситуацию, когда время установления ориентационного равновесия намного меньше времени жизни возбужденного состояния ( $\tau_0/\tau_2^{eff} = 0,01$ ), что соответствует приближению, принятому в работах [63–65] и кривая 1 полностью совпадает с приведенными в этих работах кривыми. Действительно, в этой ситуации в (3.1) можно пренебречь последними двумя членами, и свести систему уравнений к двум независимым уравнениям, решением которых являются равновесные функции Больцмана, что и предполагалось в цитируемых выше работах. Можно заметить, что усиление наблюдается также при условии, когда время жизни возбужденного состояния в 10 раз больше времени ориентационного равновесия (кривая 2) и даже когда эти времена примерно равны (кривая 3) при достаточно малом параметре ориентации ( $p_2 < 2$ ). Кривые 4 и 5 демонстрируют возможность усиления в ситуации, когда время ориентационного равновесия больше времени жизни возбужденного состояния. В данном случае усиление достигается при достаточно больших значениях параметрах ориентации, а значит и величины ориентирующего поля.

Приведенные выше результаты расчетов позволяют утверждать, что функции распределения молекул по ориентациям зависят как от параметра ориентации данного состояния, так и от соотношения  $\tau_0/\tau_j^{eff}$ . Поскольку коэффициент усиления будет тем больше, чем больше отличие между функциями распределения в состояниях (1) и (2), то, для того чтобы компенсировать уменьшение отличия этих функций из-за роста  $\tau_0/\tau_j^{eff}$ , необходимо увеличивать параметр ориентации, т. е. величину ориентирующего поля.

Таким образом, с увеличением соотношения  $\tau_0/\tau_j^{eff}$  важно не столько увеличение вероятности перехода из возбужденного состояния в основное, сколько подавление перехода из основного состояния в возбужденное.

### **Выводы к параграфу 3.2:**

В первом случае ( $p_2 > p_1$ ), усиление возможно в достаточно узкой области величины ориентирующего поля (Рисунок 3.3а), при большой величине ориентирующего поля молекулы в основном и возбужденном состояниях больше ориентированы вдоль поля ( $\theta_0 \rightarrow 0$ ) и вероятности перехода из возбужденного состояния в основное и наоборот становятся одинаковы, что приводит преобладанию поглощения над усилением даже с соотношением  $\tau_0/\tau_j^{eff} \ll 1$ . С дальнейшим увеличением этого соотношения молекулы в возбужденном состоянии не успевают «дожить» до установления ориентационного равновесия в поле и это ведет к исчезновению усиления.

Во втором случае ( $p_1 > p_2$ ), молекулы в основном и возбужденном состояниях ориентированы ортогонально, и увеличение ориентирующего поля ведет к подавлению поглощения ( $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ ) в широкой области (Рисунок 3.3б). Также усиление хотя и уменьшается, но возможно при соотношении  $\tau_0/\tau_j^{eff} \approx 1$ .

### 3.3 Ориентация неполярных молекул

Рассмотрим возможность безынверсного усиления света в среде неполярных молекул, ориентированных селективно по состояниям, путем наложения внешнего лазерного излучения. Данный выбор молекул позволяет значительно увеличить параметр ориентации благодаря большей напряженности предпробойного поля.

Как говорилось в параграфе 2.2.2, отличительной особенностью ориентации неполярных молекул по сравнению с полярными является зависимость знака параметра ориентации  $q_j$  как от строения молекулы, так и от соотношения частот электронных переходов  $\omega_{lj}$  и частоты ориентирующего излучения  $\omega_0$  (2.7), (2.8). Так, для молекул, вытянутых вдоль оси симметрии (с положительной оптической анизотропией),  $\beta_{33}^{(j)} > \beta_{11}^{(j)}$  и параметр  $q_j$  положителен при не слишком больших частотах ориентирующего поля ( $\omega_0 < \omega_{lj}$ ) (Рисунок 3.4 (а)). Для дискообразных молекул (с отрицательной оптической анизотропией)  $\beta_{33}^{(j)} < \beta_{11}^{(j)}$  и параметр  $q_j < 0$  при  $\omega_0 < \omega_{lj}$  (Рисунок 3.4 (б)) [70, 71].

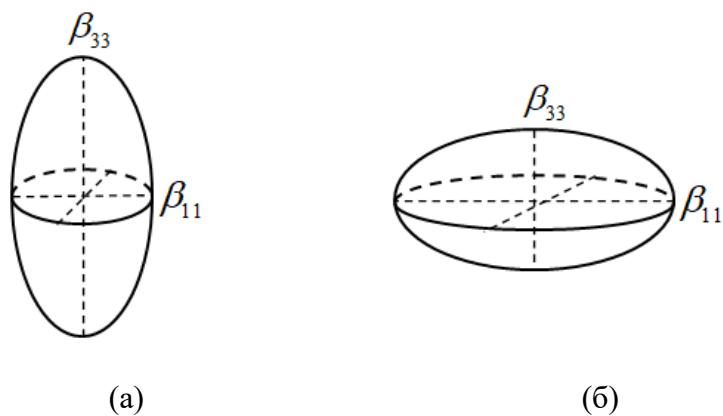


Рисунок 3.4. Модель неполярной молекулы с положительной (а) и отрицательной (б) оптической анизотропией

### 3.3.1 Влияние величины параметров ориентации на значение функций статистического распределения и коэффициент усиления

Рассмотрим влияние отношения времени ориентационного равновесия и времени жизни возбужденного состояния  $\tau_0/\tau_2^{eff}$  на величину коэффициента усиления при различных значениях параметра ориентации [4].

Для молекул с положительной оптической анизотропией, с соотношением параметров ориентации  $q_2 > q_1 > 0$ , при решении системы (3.1) – (3.3) и с учетом (2.11) зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha' = \alpha/N\sigma_0$  от параметра ориентации  $|q_1|$  будут описываться кривыми, приведенными на рисунке 3.5 (а). Для молекул с отрицательной оптической анизотропией, с соотношением  $q_1 < q_2 < 0$ , зависимости коэффициента  $\alpha'$ , с учетом (2.12), от параметра  $|q_2|$  представлены на рисунке 3.5 (б). Как упоминалось выше, оптимальная ориентация ориентирующего и усиливаемого (пробного) полей будет параллельной  $\vec{E} \parallel \vec{E}_0$ . Расчеты проведены при соотношении  $n_2/n_1 = 0,8$ ,  $|q_2|/|q_1| = 4$  (для рисунка 3.5 (а)),  $|q_1|/|q_2| = 4$  (для рисунка 3.5 (б)) и соотношении  $\tau_0/\tau_2^{eff}$  : 0,01 (кривая 1), 0,1 (кривая 2), 1,0 (кривая 3), 10,0 (кривая 4).

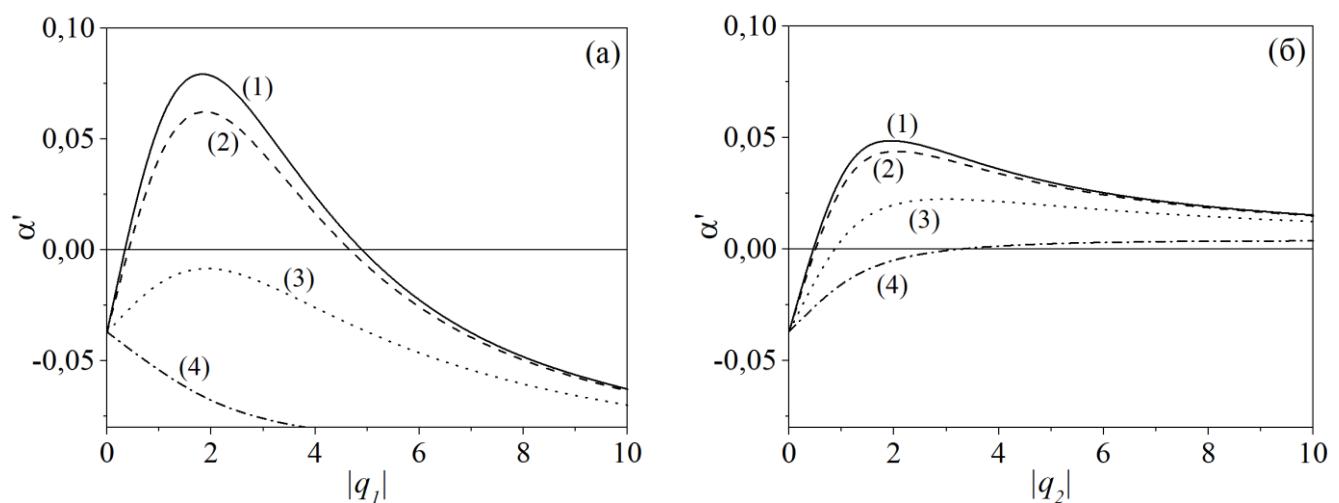


Рисунок 3.5. Зависимости безразмерного коэффициента  $\alpha'$  от параметра ориентации  $|q_j|$  [4]

Как видно из рисунка 3.5 (а), для молекул с положительной оптической анизотропией усиление сменяет поглощение в узкой области в приближении  $\tau_2^{eff} \gg \tau_0$  (кривая 1), описанной в работах [63–65]. Также показано, что при  $\tau_2^{eff} > \tau_0$  (кривая 2) можно добиться эффекта усиления, что не накладывает столь жестких ограничений, как в работах [63–65]. В случае  $\tau_2^{eff} \leq \tau_0$  (кривые 3 и 4) во всей области определения  $q_j$  усиления не происходит. Таким образом, при заданных параметрах область усиления ограничена достаточно узким интервалом значений  $q_j$ . Это связано с тем, что на выбранном интервале значений  $q_j$  функции распределения молекул по ориентации различаются значительно. В то же время дальнейшее увеличение ОП ( $U/kT \gg 1$ ) приводит к тому, что эти различия нивелируются и поглощение начинает преобладать над усилением.

Однако, как видно из рисунка 3.5 (б), для молекул с отрицательной оптической анизотропией усиление сменяет поглощение в широком диапазоне. Действительно, ось симметрии молекулы направлена ортогонально ОП. Качественно пояснить ситуацию можно следующим образом: при больших значениях  $q_j$  все молекулы в основном состоянии оказываются полностью ориентированными так, что проекция электродипольного момента перехода, параллельного оси симметрии, на направление пробного поля  $\vec{E}$  равна нулю. Следовательно, молекулы, находящиеся в основном состоянии, пробное поле не поглощают. В то же время степень ориентации молекул в возбужденном состоянии меньше, чем в основном, поскольку  $|q_1| > |q_2|$ , а функция распределения молекул по ориентациям в основном состоянии более крутая, чем в возбужденном, и в среднем проекция электродипольного момента перехода на направление  $\vec{E}$  не равна нулю, что ведет к его усилению. Это также приводит к тому, что с увеличением  $q_j$  крутизна функции распределения еще больше увеличивается и усиление может достигаться даже при больших параметрах ориентации.

Простейшие оценки показывают, что достижение параметров  $q_j$  величины порядка единицы невозможно в предпробойных как стационарного, так и импульсного (видеоимпульс) полях. Как будет показано ниже, значение параметров  $q_j$  может достигать больших значений при ориентации в лазерном поле.

### 3.3.2 Ориентация в лазерном поле

Наибольший интерес может представлять вариант, при котором знак параметра  $q_j$  различен в основном и в возбужденном состояниях. Это возможно, если выход из резонанса частоты ОП  $\omega_0$  относительно частоты электронного перехода молекулы  $\omega_{lj}$  имеет разный знак в состояниях 1 и 2 (см. выражения (2.7), (2.8)). Действительно, если при возбуждении молекулы в состояние 2 частота перехода между рабочим энергетическим уровнем 2 и любым другим возбужденным уровнем  $j$  удовлетворяет условию  $\omega_{lj} < \omega_0$ , а частоты переходов  $\omega_{lj}$ ,  $\omega_{l2} > \omega_0$ , то  $q_2 < 0 < q_1$  для молекул с положительной оптической анизотропией и  $q_2 > 0 > q_1$  для молекул с отрицательной оптической анизотропией (Рисунок 3.6). В этом случае ОП оказывает ориентирующее влияние на молекулы, находящиеся в одном из рабочих состояний (2 или 1), и дезориентирующее — в другом.

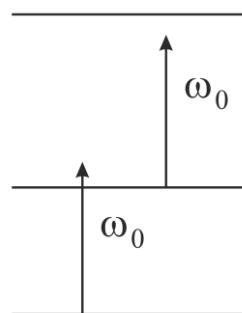


Рисунок 3.6. Распределение уровней

На рисунке 3.7 (а) представлены зависимости безразмерного коэффициента  $\alpha'$  от  $q_1$  для  $q_1 > 0, q_2 < 0, |q_1| = |q_2|$  при  $\vec{E} \perp \vec{E}_0$  (см. выражение (2.12)), на рисунке 3.7 (б) — аналогичные зависимости от  $q_2$  для  $q_1 < 0, q_2 > 0, |q_1| = |q_2|$  при  $\vec{E} \parallel \vec{E}_0$  (см. выражение (2.11)). Расчеты проведены при соотношении  $n_2/n_1 = 0,8$ ,  $0 > q_2 = -q_1$  (для рисунка 3.7 (а)),  $0 > q_1 = -q_2$  (для рисунка 3.7 (б)) и соотношении  $\tau_0/\tau_2^{eff} : 0,01$  (кривая 1),  $1,0$  (кривая 2).

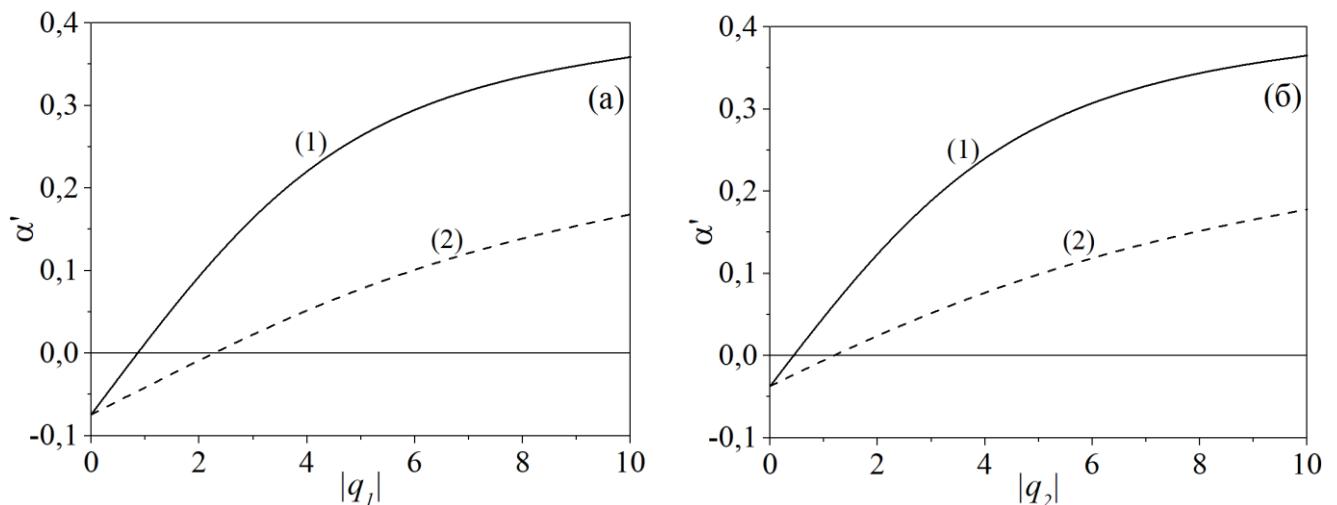


Рисунок 3.7. Зависимости безразмерного коэффициента  $\alpha'$  от параметра ориентации  $|q_j|$  [4]

Как видно из рисунка 3.7, усиления можно добиться в широком диапазоне значений  $q_j$ . Отметим, что изображенные на нем зависимости говорят о влиянии частоты ОП  $\omega_0$  на усиление и указывают на существенное преимущество такой схемы при реализации безынверсного усиления.

Очевидно, что приведенные значения интенсивностей ориентирующего поля, также как и напряженности электрического поля при ориентации электрическим (не лазерным) полем будут значительно больше пробойного. Поэтому считаем целесообразным рассматривать ориентацию молекул только в поле импульсного лазерного излучения, использование которого позволяет получить параметры ориентации  $|q_1|, |q_2| > 1$  в пред пробойном режиме. Эти процессы более подробно будут рассмотрены в главе 4.

### 3.4 Обсуждение результатов главы 3

Обычно время жизни для электродипольных переходов  $\tau_2^{eff}$  составляет величину  $10^{-8} - 10^{-9}$  сек. Время установления ориентационного равновесия  $\tau_0$  может меняться в широких пределах в зависимости от различных параметров, таких как размеры и конфигурация молекул, вязкость буферного газа или растворителя. В таблице 3.1 представлены характерные значения параметров молекул.

Таблица 3.1 – Характерные значения параметров молекул

Тип молекул	$\tau_0$ , сек	$\tau_2^{eff}$ , сек
органические молекулы	$10^{-10} - 10^{-12}$	$10^{-8} - 10^{-9}$
белковые макромолекулы	$10^{-6} - 10^{-8}$	$10^{-8} - 10^{-9}$
большие биомакромолекулы	$10^{-2} - 10^{-4}$	$10^{-8} - 10^{-9}$

Таким образом, для обсуждаемых здесь приложений пригодны молекулы с массой не более  $10^3$  а.е. и длиной порядка  $10$  Å. Для данных соединений постоянный дипольный момент составляет в лучшем случае величину порядка нескольких десятков Д [70, 71, 89].

Поэтому параметр ориентации  $p_j$  в постоянном поле  $E_0$ , величина которого близка к пробойному, вряд ли может превышать значение порядка единицы, даже при использовании в качестве растворителя наиболее электрически стойких соединений [90]. Как отмечено в [63–65], эффект усиления может ощутимо проявляться при значениях параметра ориентации больше единицы. Последнее возможно при ориентации постоянным полем  $E_0$  более крупных молекул, величина дипольного момента которых может быть порядка  $10^2 - 10^3$  Д. Однако время их переориентации  $\tau_0$  будет, скорее всего, больше времени жизни возбужденного состояния.

В неполярных молекулах, как было отмечено выше, достичь значения параметра ориентации порядка единицы в электрических полях с напряженностью ниже пробойной вряд ли удастся, поскольку они являются эффектами второго порядка по соотношению  $E_0/E_{am}$ , где  $E_{am}$  — атомное поле [71]. Таким образом, эффект безынверсного состояния, по-видимому, легче осуществить при ориентации молекул в переменном лазерном поле. Как и будет показано в главе 4.

### 3.5 Выводы и заключение главы 3

1. Условия малости времени ориентации по сравнению с временем жизни  $\tau_0/\tau_j^{eff} \ll 1$  может быть ослаблено до значения  $\tau_0/\tau_j^{eff} \approx 1$  для случая, когда поляризуемость (постоянный дипольный момент или наведенный ориентирующим полем) молекул в основном состоянии больше чем в возбужденном ( $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ ).
2. Заметное усиление может быть достигнуто при параметрах ориентации заметно больше единицы. Это может быть достигнуто при использовании ориентирующего поля  $\vec{E}_0$  в виде импульса порядка  $10^{-8}$  сек., что позволяет увеличить порог пробоя примерно на порядок.
3. Для ориентации неполярных молекул необходимо использовать импульсное лазерное излучение, для которого порог пробоя выше, чем при использовании непрерывного излучения.

## ГЛАВА 4

**Исследование переходных процессов при ориентации молекул  
во внешнем импульсном поле**

В данной главе анализируется динамика ориентации молекул находящихся в основном и возбужденном состояниях и коэффициента усиления при включении ориентирующего поля.

#### 4.1 Введение

Как, было отмечено в предыдущей главе, мы не учитывали импульсный характер ориентирующего поля. Известно [91] что использование импульсного поля длительностью порядка 10 нс в качестве ориентирующего позволяют увеличить порог пробоя. При этом как длительность импульса ориентирующего поля, так и время установления ориентационного равновесия молекул и время жизни возбужденного состояния близки по порядку величины, во всяком случае, для больших молекул. Для малых молекул время  $\tau_0$  составляет величину порядка  $10^{-10} - 10^{-12}$  с, что значительно меньше времени жизни возбужденного состояния ( $\tau_2^{eff} = 10^{-8} - 10^{-9}$  с) для сравнительно хорошо разрешенных электродипольных переходах [89]. Это позволяет использовать полученную в главе 2 систему уравнений и алгоритм их решения без дополнительных оговорок относительно временных масштабов процесса. В данной главе мы будем в дальнейшем предполагать, что  $\tau_{1,2}^{eff}$  значительно больше, чем время установления ориентационного равновесия  $\tau_0$ . Как будет показано ниже, время ориентации в поле может оказаться меньше, чем  $\tau_0$  и зависеть от величины энергии взаимодействия молекулы с ориентирующим полем.

Исследование этих процессов должно базироваться не столько на величине ориентирующего поля (как было выполнено в предыдущей главе), а на временном характере отклика системы ориентирующихся молекул, на временах меньших или соизмеримых с  $\tau_0$ . Очевидно, что эти процессы можно отнести к классу переходных процессов, в которых проявляются особенности усиления (поглощения), при мгновенном включении ОП.

Последнее дает основания ввести понятие скорости ориентации в поле, зависящее как от динамических параметров, определяющихся вязкостью среды, так и от энергии взаимодействия молекулы с полем. Это требует детального исследования влияния процессов, влияющих на временной характер зависимости коэффициента усиления (поглощения), происходящих после включения импульсного ориентирующего поля.

#### **4.2 Процессы, происходящие при мгновенном включении ориентирующего поля (переходные процессы)**

В расчетах, представленных в нашей работе [5], было показано, что введение импульсного поля, во всяком случае, при низких значениях параметров ориентации (ориентирующего поля) носит достаточно тривиальный характер, заключающийся в том, что появилась возможность увеличения поля в более широких пределах, по сравнению со стационарным полем. Однако, возникали некоторые особенности связанные с переходными процессами при включении поля (Рисунок 4.1). На рисунке 4.1(а) расчеты проведены при  $|\vec{\mu}_1| < |\vec{\mu}_2|$ :  $p_1 = 0,25$ ,  $p_2 = 1$  (кривая 1);  $p_1 = 0,5$ ,  $p_2 = 2$  (кривая 2). На рисунке 4.1(б) расчеты проведены при  $|\vec{\mu}_1| > |\vec{\mu}_2|$ :  $p_1 = 1$ ,  $p_2 = 0,25$  (кривая 1);  $p_1 = 2$ ,  $p_2 = 0,25$  (кривая 2).

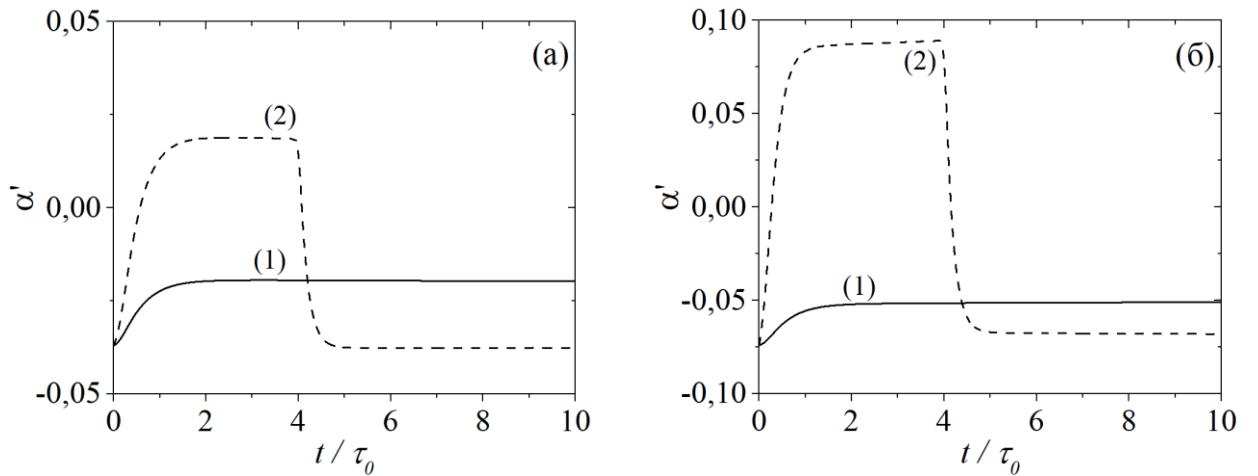


Рисунок 4.1. Влияние величины параметра ориентации на усиление излучения [5]

Из представленных графиков видно, что переход от равновесного состояния ориентации молекул основного и возбужденного состояний при отсутствии поля в равновесное состояние в присутствии поля осуществляется в результате переходного процесса за время порядка  $\tau_0$ . Точно также переход из равновесного состояния в присутствии поля в равновесное состояние в отсутствии поля осуществляется с временем того же порядка  $\tau_0$ , но последнее вызывает определенные сомнения и требует дополнительных исследований. Сравнение рисунков 4.1(а) и 4.1(б) позволяет утверждать, что увеличение ОП возможен переход от поглощения к усилению, который зависит от соотношения величин  $p_1$  и  $p_2$  пропорциональных полю.

При использовании более мелкого масштаба, выяснились некоторые особенности имеющие, на наш взгляд, и нетривиальный характер. Более подробное об этом описано в нашей работе [4], показавшей возможность увеличения коэффициента усиления по сравнению с квазистационарным случаем, при более высоких полях ориентации, достижимых в импульсном режиме.

В работе [4] для исследования нестационарной системы (2.17) при воздействии импульсного лазерного ОП  $\vec{E}_0$  прямоугольной формы проведен следующий вычислительный эксперимент. Как отмечалось выше, при условии, когда поляризуемость возбужденного состояния больше поляризуемости основного ( $q_2 > q_1$ ),

оптимальной будет параллельная ориентация ориентирующего и усиливаемого полей,  $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ . На рисунке 4.2 представлены зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  (см. выражение (2.11)) при воздействии импульсного ОП  $\vec{E}_0$  от времени для молекул, с положительной оптической анизотропией (кривая (1),  $q_2 > q_1 > 0$ ,  $q_1 = 2,0$ ,  $q_2 = 8,0$ ), так и с отрицательной оптической анизотропией (кривая (2),  $q_1 < q_2 < 0$ ,  $q_1 = -8,0$ ,  $q_2 = -2,0$ ). Расчеты проведены при  $n_2/n_1 = 0,8$ ,  $\tau_o/\tau_2^{eff} = 0,01$ .

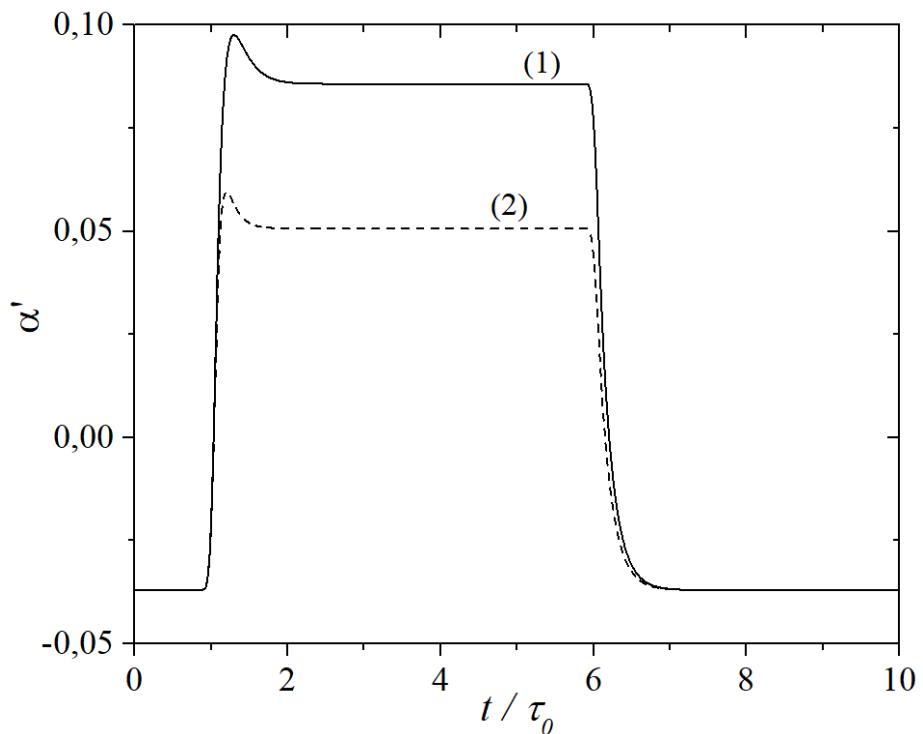


Рисунок 4.2. Влияние параметра ориентации на коэффициент усиления [4]

Как видно из рисунка 4.2, безынверсное усиление существует за время действия импульса и достигается за время порядка времени ориентации, которое оказывается меньшим, чем  $\tau_0$ . Резкий выброс усиления на начальном этапе включения ОП связан с тем, что  $q_2 > q_1$ , и поэтому для молекул в возбужденном состоянии функции распределения по ориентациям достигают квазистационарного состояния быстрее, чем для молекул в основном состоянии. Естественно, что после

того как молекулы основного состояния приобретут квазистационарную функцию распределения по ориентациям, коэффициент усиления стабилизируется.

Очевидно, что наличие резкого выброса соответствует переходным процессам, происходящим при включении ориентирующего поля, и требует дополнительного исследования. По этому, необходимо рассмотреть процесс усиления в еще более мелком масштабе. Для этого, вначале рассмотрим ориентацию полярных молекул при воздействии ориентирующего импульсного поля прямоугольной формы.

### 4.3 Динамика переходных процессов при ориентировании полярных молекул

Как видно из предыдущего параграфа при включении импульсного поля возникают особенности (Рисунок 4.2), выражющиеся в том, что существует резкий выброс коэффициента усиления за время близкое к моменту включения ориентирующего поля. В дальнейшем этот выброс исчезает, и усиление соответствует усилинию в стационарном поле. Очевидно, что эта особенность представляет значительный интерес, поскольку позволяет получить значительно большее усиление во время близкое к началу включения поля и требует дополнительного исследования. При этом необходимо выбрать более мелкую расчетную сетку, по сравнению с квазистационарным случаем. Кроме того необходимо выбрать форму представления результата в раскрывающем физический характер явления виде.

Рассмотрим отдельно случаи взаимного направления векторов  $\vec{E}_0$  и  $\vec{E}$ , согласно параграфу 2.2.1, случай 1:  $p_1 < p_2$ ,  $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ ; случай 2:  $p_1 > p_2$ ,  $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ .

### 4.3.1 Случай 1 ( $p_1 < p_2$ , $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ )

Наиболее удобная форма представления, демонстрирующая динамику ориентации молекул находящихся в основном и возбужденном состояниях и коэффициента усиления, показана на рисунке 4.3.

Рассмотрим взаимодействие импульсного ориентирующего поля  $\vec{E}_0$  с системой полярных молекул, находящихся в буферной среде, дипольный момент которых в возбужденном состоянии больше, чем в основном. Расчеты приведены при значениях параметров ориентации  $p_1 = 2$ ,  $p_2 = 8$ . Согласно параграфу 2.2.1 ориентирующее поле  $\vec{E}_0$  и пробное поле  $\vec{E}$  в данном случае целесообразно направить параллельно. Характерными величинами, соответствующими этим параметрам ориентации, являются (в Дебаях)  $\mu_1 = 0,5\text{Д}$  и  $\mu_2 = 2\text{Д}$ , и соответствующего им напряженности поля  $E_0 = 5 \cdot 10^9 \text{ В/м}$  при температуре  $T = 300\text{K}$  (см. выражение (2.7)). Здесь выбор разности заселенностей аналогичен, принятой в главе 3 ( $n_2/n_1 = 0,8$ ) и соответствует поглощению в отсутствии ориентирующего поля.

На рисунке 4.3 приведена динамика изменения безразмерного коэффициента усиления  $\alpha' = \alpha/N\sigma_0$  (кривая 1), рассчитанного по формуле (2.9), являющаяся разностью между усредненными по ориентациям: динамикой усиления  $F_2(t)$  (кривая 2) (первый член в подынтегральном выражении (2.9)) и динамикой поглощения  $F_1(t)$  (кривая 3) (второй член в подынтегральном выражении (2.9)) соответственно. Для удобства и демонстрации шкала слева соответствует кривой (1), а шкала справа соответствует кривым (2) и (3).

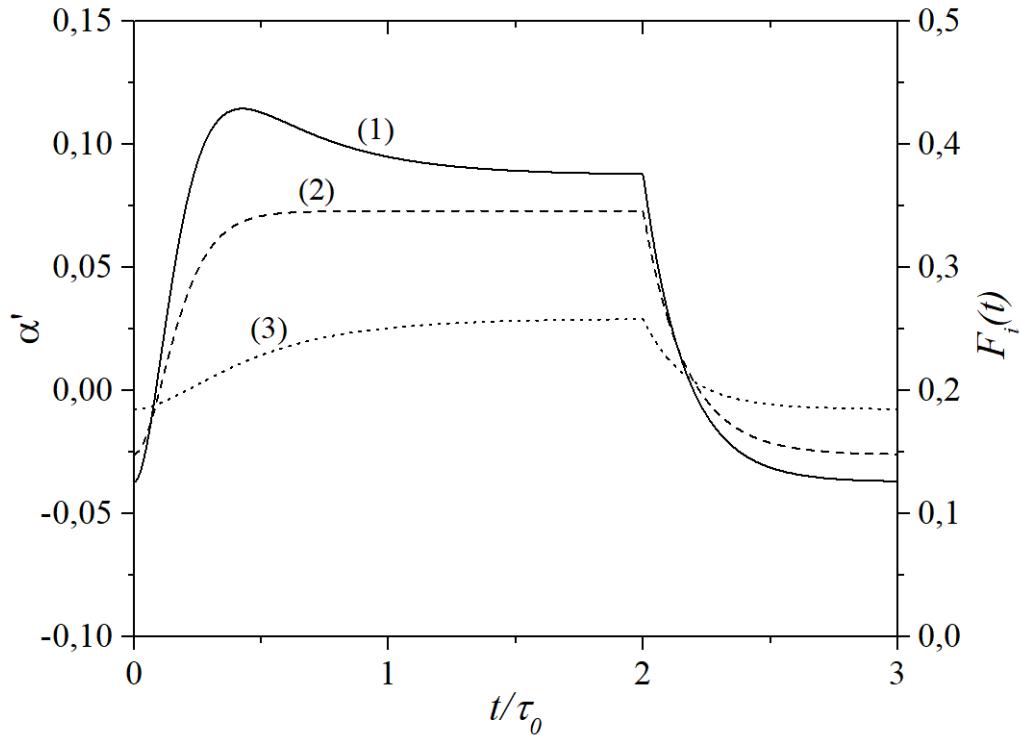


Рисунок 4.3. Временная зависимость безразмерного коэффициента усиления (1), динамика усиления (2) и динамика поглощения (3) полярных молекул при включении импульсного ОП

Из рисунка 4.3 видно, что резкий выброс коэффициента усиления в начале импульса является следствием разных скоростей ориентации молекул в основном и возбужденном состояниях, обусловленных различными энергиями взаимодействия молекулы с ОП. Также очевидно, что скорость ориентации при включении поля значительно выше скорости установления ориентационного равновесия при его отключении.

Таким образом, для корректного использования понятия ориентации в поле необходимо ввести понятие времени ориентации  $\tau_e^{(j)}$  [71] и скорости ориентации в поле  $v_e^{(j)}$  молекулы в  $j$ -го состоянии, исходя из теории размерности, а также физических соображений запишем:

$$\tau_e^{(j)} = \tau_0 \left( \frac{kT}{\Delta U^{(j)}} \right) = \frac{w}{6 \cdot \Delta U^{(j)}}, \quad (4.1)$$

$$v_e^{(j)} = \frac{1}{\tau_e^{(j)}}. \quad (4.2)$$

В формуле (4.1)  $w = 6kT\tau_0$  — константа, отвечающая за внутреннее трение в среде, состоящей из молекул участвующих в процессе и буферных молекул (рассорвитель, буферный газ) (см. (2.15а, 2.15б)) [71],  $U_1^{(j)}$  — потенциальная энергия взаимодействия молекулы с ОП в начальном положении,  $U_2^{(j)}$  — потенциальная энергия взаимодействия молекулы с ОП в конечном положении (см. (2.5)). Таким образом,  $\Delta U^{(j)} = U_2^{(j)} - U_1^{(j)}$  характеризует коммутацию ОП во времени и имеет положительный знак в процессе включении поля и отрицательный знак при выключении. При отрицательном знаке энергии взаимодействия, стоит говорить не об отрицательном времени, а об отрицательной скорости ориентации или о дезориентации.

Действительно,  $\tau_e^{(j)}$  содержит кинетические параметры молекулы, находящиеся в буферной среде и безразмерную энергию взаимодействия молекулы с полем  $\vec{E}_0$ . Обратная величина (4.2) будет характеризовать скорость ориентации.

Необходимо отметить, что выписанная формула (4.1) имеет физический смысл в случае если  $kT$  и  $\Delta U$  одного порядка.

Для описания нестационарных процессов взаимодействия молекулы с ОП разобьем процесс на два участка: включение ОП ( $t/\tau_0 = 0 - 2$ ) и выключение ОП ( $t/\tau_0 = 2 - 3$ ).

При включении ОП функции динамики усиления и поглощения зависят от интегрированных по углу функций распределения в основном и возбужденном состояниях (см. (2.6)). В качестве аппроксимирующей функции предложено использовать  $(1 - e^{-t/\tau_e^{(j)}})$ , характерную для переходных процессов в электрических цепях [92], модифицированную для ненулевых начальных значений:

$$F_{on}^{(j)}(t) = 2\pi \int_0^{\pi} f_j(t, \theta_0, E_0) d\theta_0 \approx \tilde{F}_{on}^{(j)}(t) = K_2^{(j)} - (K_2^{(j)} - K_1^{(j)}) e^{-t/\tau_e^{(j)}}, \quad (4.3)$$

где  $j=1$  — молекулы находящиеся в основном состоянии и отвечающие за динамику поглощения,  $j=2$  — молекулы находящиеся в возбужденном состоянии и

отвечающие за функцию динамики усиления,  $K_1^{(j)} = 2\pi \int_0^{\pi} f_j(t=0, \theta_0, E_0) d\theta_0$  — со-

стояние молекулы до включения ориентирующего поля в стационарном режиме

(начальное состояние),  $K_2^{(j)} = 2\pi \int_0^{\pi} f_j(t=\infty, \theta_0, E_0) d\theta_0$  — состояние молекулы при

включенном ОП в стационарном режиме (конечное состояние).

Таким образом, аппроксимация безразмерного коэффициента усиления при включении ОП будет иметь вид:

$$\tilde{\alpha}'(t) = \tilde{F}_{on}^{(2)}(t) - \tilde{F}_{on}^{(1)}(t)$$

С учетом принятого выше понятия  $\tau_e^{(j)}$  будем сравнивать величину  $F_{on}^{(j)}(t)$  с величиной  $\tilde{F}_{on}^{(j)}(t)$ . Это позволяет выделить время  $\tau_e^{(j)}$  и проанализировать переходной процесс. На рисунке 4.4 сплошными линиями представлены рассчитанные временные зависимости коэффициента усиления (кривая 1), динамики усиления (кривая 2) и поглощения (кривая 3), штриховыми линиями аппроксимированные функцией (4.3) соответственно. Значения коэффициентов при начальном и конечном состоянии молекулы рассчитаны из стационарного случая:  $K_2^{(1)} = 0,25812$ ,  $K_1^{(1)} = 0,18506$ ,  $K_2^{(2)} = 0,34610$ ,  $K_1^{(2)} = 0,14805$ . Значение времени ориентации в поле соответственно:  $\tau_e^{(1)} = 1/2$ ,  $\tau_e^{(2)} = 1/8$ .

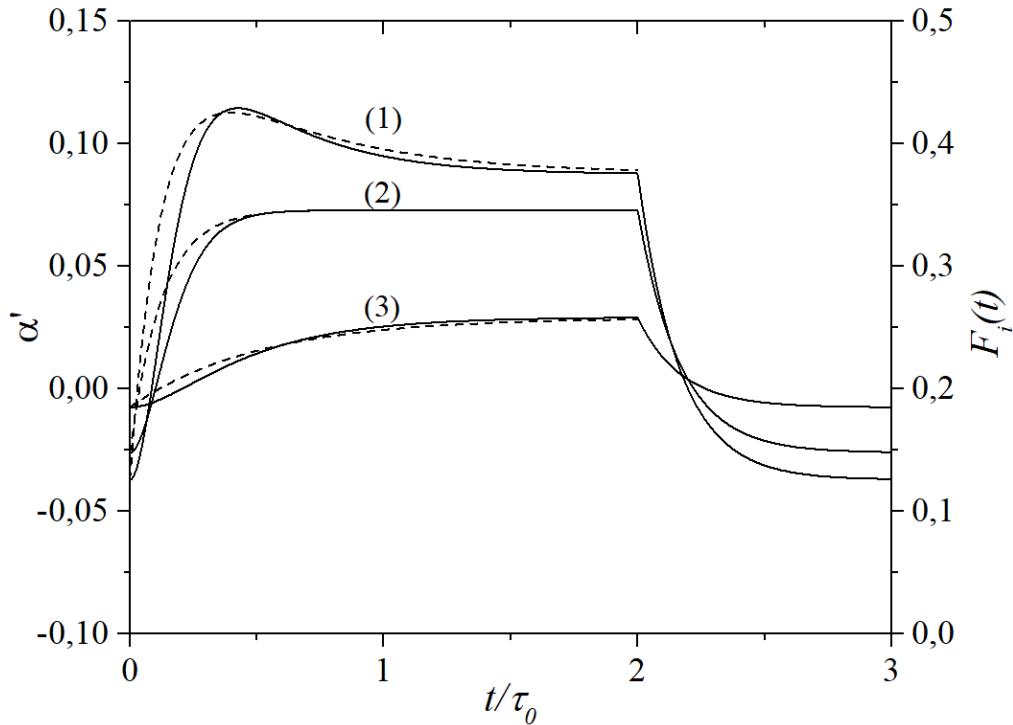


Рисунок 4.4. Временная зависимость рассчитанного безразмерного коэффициента усиления (1), динамика усиления (2), динамика поглощения (3) полярных молекул при включении импульсного ОП (сплошная линия) и аппроксимация формулой (4.3) (пунктирная линия)

Заметим, что отношение времен ориентации в поле составляет  $\tau_e^{(2)}/\tau_e^{(1)} = 0,25$ , это соответствует заданному отношению параметров ориентации  $p_2/p_1 = 4$  (чем больше энергия взаимодействия молекулы с ОП, тем меньше время ориентации).

Как видно из рисунка 4.4 аппроксимация формулой (4.3) на начальном этапе импульса не соответствует результатам, полученным в ходе численного моделирования, что требует более детального изучения. Предложено применить в качестве аппроксимирующей функции логистическое уравнение Ферхюльста-Пирла [93–96], используемое для моделирования процессов, связанных с популяционной динамикой:

$$\tilde{F}_{on}^{(j)}(t) = \frac{K_2^{(j)} \cdot K_1^{(j)}}{K_1^{(j)} + (K_2^{(j)} - K_1^{(j)}) \cdot e^{-t/\tau_e^{(j)}}}. \quad (4.4)$$

На рисунке 4.5 сплошными линиями показаны рассчитанные временные зависимости коэффициента усиления (1), динамики усиления (2) и поглощения (3), штриховыми линиями аппроксимированные функцией (4.4) соответственно. Значения коэффициентов в динамике усиления (кривая 2) и в динамике поглощения (кривая 3) как и при аппроксимации формулой (4.3).

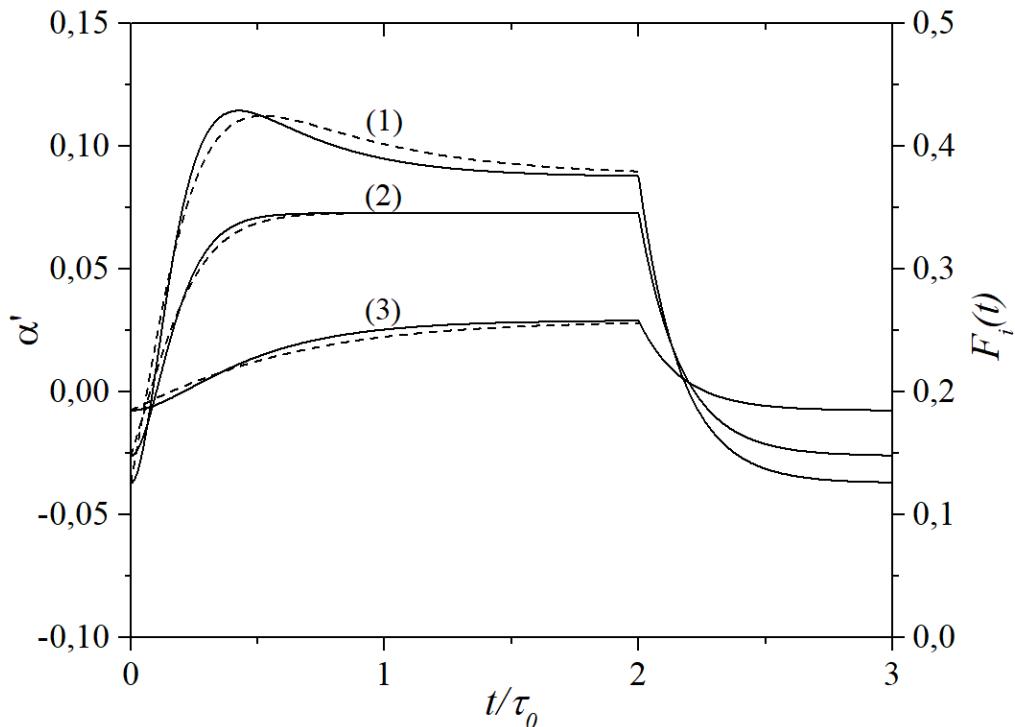


Рисунок 4.5. Временная зависимость рассчитанного безразмерного коэффициента усиления (1), динамика усиления (2), динамика поглощения (3) полярных молекул при включении импульсного ОП (сплошная линия) и аппроксимация формулой (4.4) (пунктирная линия)

Как видно из рисунка 4.5 аппроксимация логистическим уравнением (4.4) показывает в начале импульса более близкий к рассчитанному результат.

Принимая во внимание качественный характер приведенных рисунков можно считать, что обе аппроксимации достаточно хорошо описывают поведение коэффициента усиления от ОП. Таким образом, описание рассчитанных кривых двумя моделями (4.3) и (4.4) показало, что при включении ориентирующего поля в переходном процессе время ориентации в поле действительно зависит от энергии взаимодействия молекулы с ОП.

При выключении ОП функции динамики усиления и поглощения не зависят от поля и, соответственно, принимают вид:

$$\tilde{F}_{off}^{(j)}(t) = K_2^{(j)} - (K_2^{(j)} - K_1^{(j)})e^{-t/\tau_0}, \quad (4.5)$$

где  $K_1^{(j)} = 2\pi \int_0^{\pi} f_j(t = t_{on}, \theta_0, E_0) d\theta_0$  — состояние молекулы до выключения ОП в

стационарном режиме (начальное состояние),  $K_2^{(j)} = 2\pi \int_0^{\pi} f_j(t = \infty, \theta_0, E_0) d\theta_0$  — со-

стояние молекулы при выключенном ОП в стационарном режиме (конечное со-  
стояние).

На рисунке 4.6 продемонстрирована аппроксимация выключения ОП фор-  
мулой (4.5).

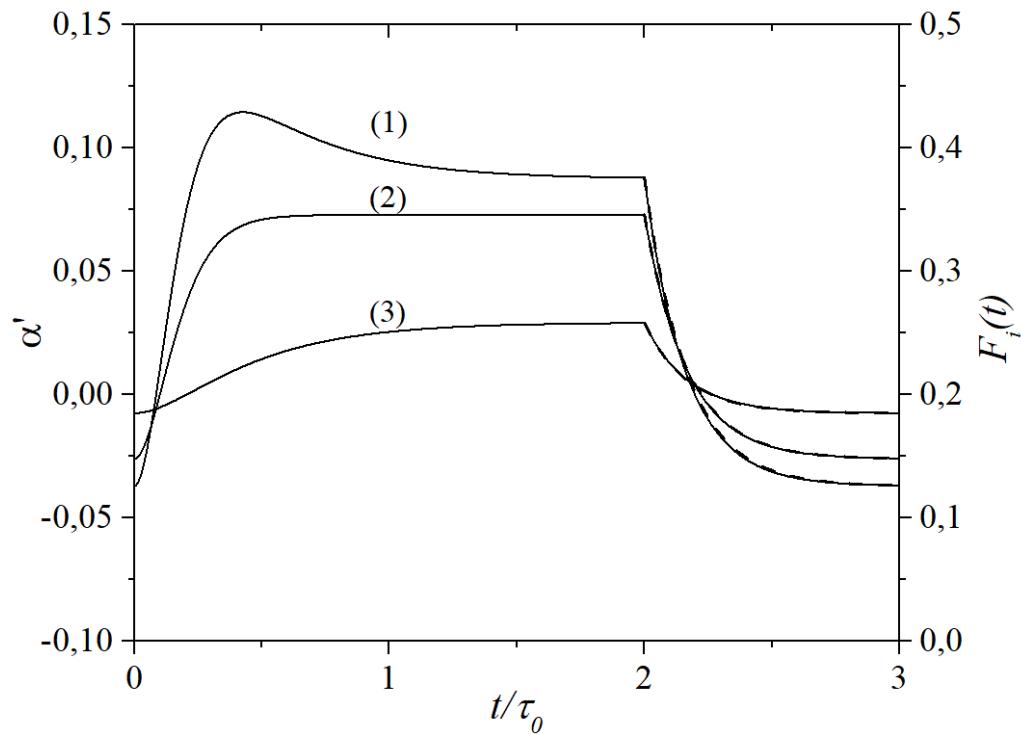


Рисунок 4.6. Временная зависимость безразмерного коэффициента усиления (1), динамика уси-  
ления (2), динамика поглощения (3) полярных молекул при выключении импульсного ОП  
(сплошная линия) и аппроксимация формулой (4.5) (пунктирная линия)

На рисунке 4.6 динамика усиления (кривая 2) и динамика поглощения (кривая 3) построены со следующими значениями коэффициентов:  $K_2^{(2)} = 0,14805$ ,  $K_1^{(2)} = 0,34610$ ,  $K_2^{(1)} = 0,18506$ ,  $K_1^{(1)} = 0,25812$ ,  $\tau_0 = 1/6$  для обоих состояний. Как видно из рисунка процесс выключения ориентирующего поля действительно не зависит от энергии взаимодействия молекулы с ОП и описывается функцией (4.5).

Зависимость  $\tau_e^{(j)}$  от ориентирующего поля, или от энергии взаимодействия молекулы с ОП, хорошо демонстрируется на рисунке 4.7.

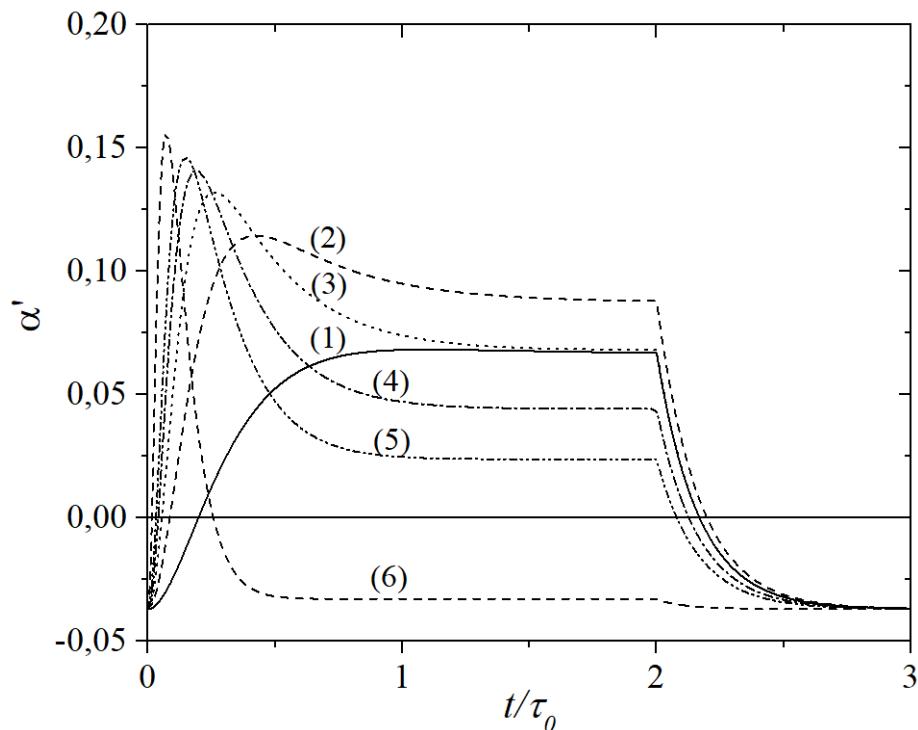


Рисунок 4.7. Временная зависимость безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  при различных значениях параметра ориентации

На рисунке 4.7 приведены зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  от времени  $t$  при следующих параметрах ориентации:  $p_1 = 1$ ,  $p_2 = 4$  (кривая 1);  $p_1 = 2$ ,  $p_2 = 8$  (кривая 2);  $p_1 = 3$ ,  $p_2 = 12$  (кривая 3);  $p_1 = 4$ ,  $p_2 = 16$  (кривая 4);  $p_1 = 5$ ,  $p_2 = 20$  (кривая 5);  $p_1 = 10$ ,  $p_2 = 40$  (кривая 6). Как видно из рисунка 4.7 с увеличением величины энергии взаимодействия с ОП молекулы, находящиеся в возбужденном состоянии и имеющие больший дипольный момент,

ориентируются быстрее. В соответствии с (4.1) с увеличением ориентирующего поля, времени ориентации в поле  $\tau_e^{(j)}$  уменьшается. При этом увеличение ОП ведет к увеличению резкого выброса коэффициента усиления по сравнению со стационарным случаем (Рисунок 3.3а) в связи с увеличением разности скоростей ориентации в поле.

Соответственно, после выключения импульса ОП молекулы приходят в равновесное состояние за время  $\tau_0$ , которое уже не зависит от величины ОП.

На рисунке 4.8 приведены зависимости максимума усиления  $\alpha'_{\max}$  и времени достижения максимального усиления  $t_{\max}$  от величины параметра ориентации основного состояния.

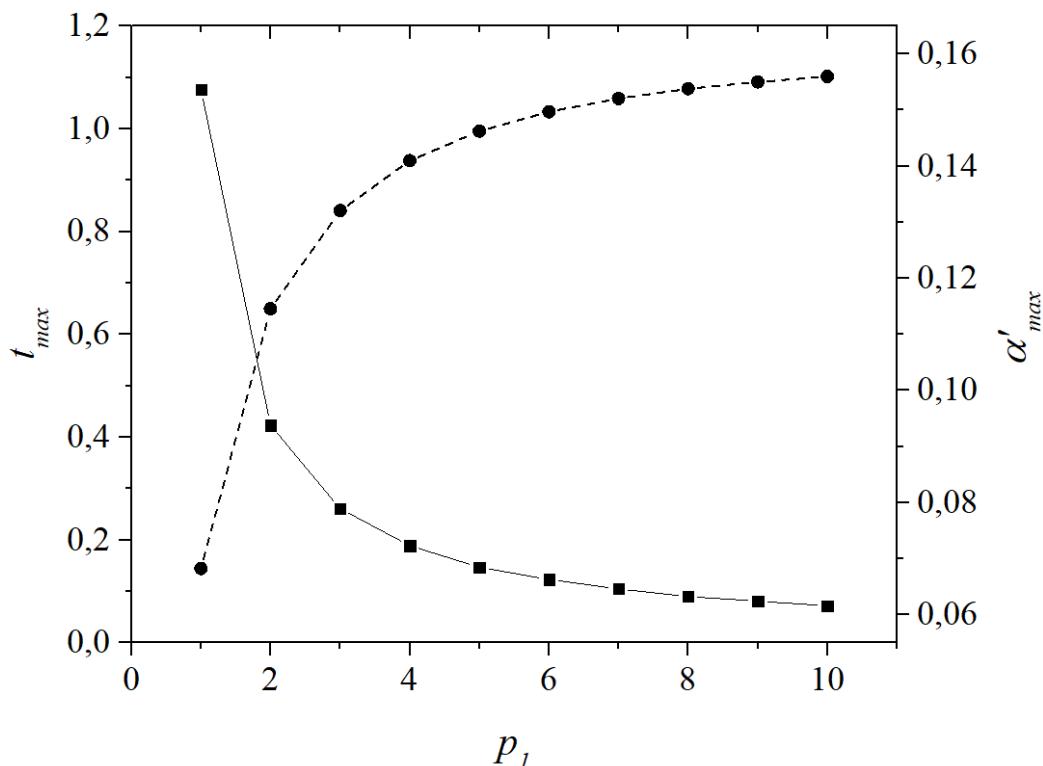


Рисунок 4.8. Зависимость времени достижения максимального усиления  $t_{\max}$  (левая шкала, сплошная линия) и максимума усиления  $\alpha'_{\max}$  (правая шкала, штриховая линия) от величины параметра ориентации  $p_1$

Из рисунков 4.7 и 4.8 видно, что с увеличением ОП время достижения максимального усиления, также как и времененная ширина резкого выброса уменьшаются.

Таким образом, очевидным становится, приведенные в работах [63–65] критерий эффективности усиления света:  $\tau_0 < \tau_2^{eff}$ , в случае переходного режима, необходимо расширить следующим:  $|\tau_e^{(2)} - \tau_e^{(1)}| < \tau_0 < \tau_2^{eff}$ .

#### 4.3.2 Случай 2 ( $p_1 > p_2$ , $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ )

Рассмотрим случай, при котором параметр ориентации в основном состоянии больше чем в возбужденном, тогда ориентирующее поле  $\vec{E}_0$  целесообразно направить ортогонально пробному полю  $\vec{E}$ . В этом случае введение ОП приводит к увеличению степени ориентации основного состояния, по сравнению со степенью ориентации возбужденного состояния. Взаимная ориентация  $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$  приводит к тому, что вероятность перехода с возбужденного состояния в основное (усиление) растет быстрее при увеличении ОП, а вероятность перехода с основного состояния в возбужденное (поглощение) растет медленнее. Последнее означает, что с ростом ОП растет усиление пробного поля, в основном за счет подавления поглощения. При включении ОП скорость ориентации основного состояния растет быстрее, а возбужденного состояния медленнее и поглощение переходит в усиление.

Для демонстрации приведем расчеты при значениях параметров ориентации  $p_1 = 8$ ,  $p_2 = 2$ . На рисунке 4.9 приведена временная динамика безразмерного коэффициента усиления  $\alpha' = \alpha/N\sigma_0$  (кривая 1), рассчитанного по формуле (2.10), являющаяся разностью между динамикой усиления (кривая 2) (первый член в подынтегральном выражении (2.10)) и динамикой поглощения (кривая 3) (второй

член в подынтегральном выражении (2.10)) соответственно. Для удобства и демонстрации левая шкала соответствует кривой (1), а правая шкала соответствует кривым (2) и (3).

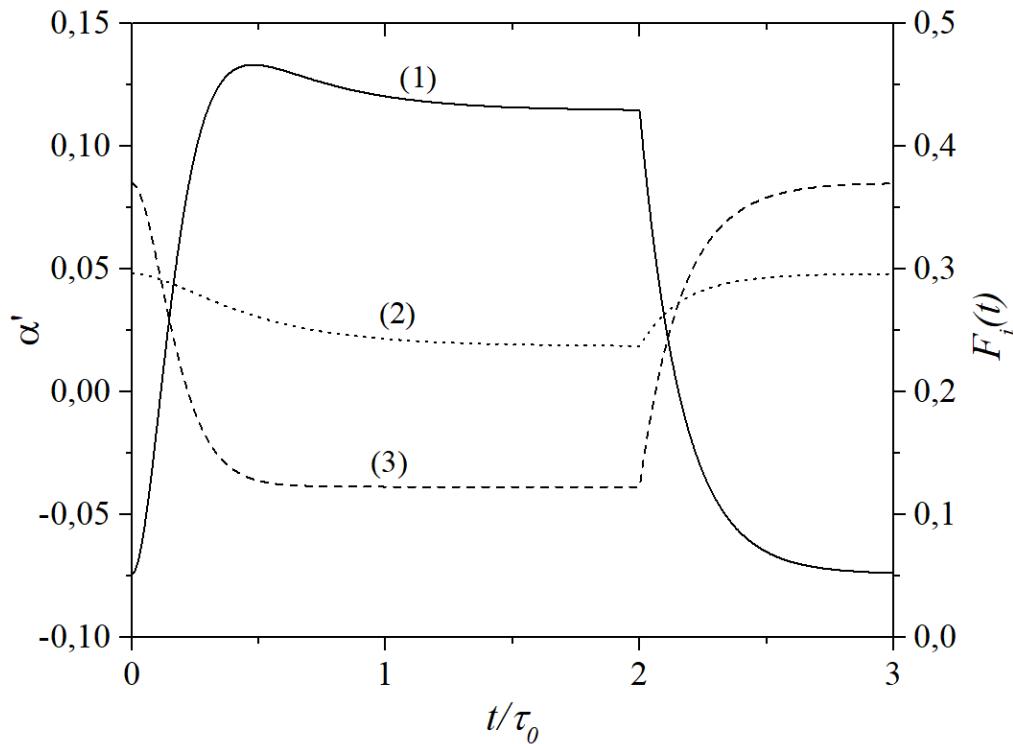


Рисунок 4.9. Временная зависимость безразмерного коэффициента усиления (1), динамика усиления (2) и динамика поглощения (3) полярных молекул при включении импульсного ОП

Как видно из рисунка 4.9 резкий выброс коэффициента усиления в начале импульса, также как и в предыдущем параграфе, является следствием разных скоростей ориентации молекул, обусловленных различными энергиями взаимодействия молекулы с ОП, в основном и возбужденном состояниях. Поглощение подавляется быстрее, чем усиление.

Для оценки времени ориентации в поле  $\tau_e^{(j)}$  и скорости ориентации  $v_e^{(j)}$  здесь можно воспользоваться теми же приближениями, как в предыдущем параграфе.

На рисунке 4.10 продемонстрированы зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  от времени  $t$  при различных значениях параметрах ориентации

ции:  $p_1 = 4$ ,  $p_2 = 1$  (кривая 1);  $p_1 = 8$ ,  $p_2 = 2$  (кривая 2);  $p_1 = 12$ ,  $p_2 = 3$  (кривая 3);  $p_1 = 16$ ,  $p_2 = 4$  (кривая 4);  $p_1 = 20$ ,  $p_2 = 5$  (кривая 5);  $p_1 = 40$ ,  $p_2 = 10$  (кривая 6).

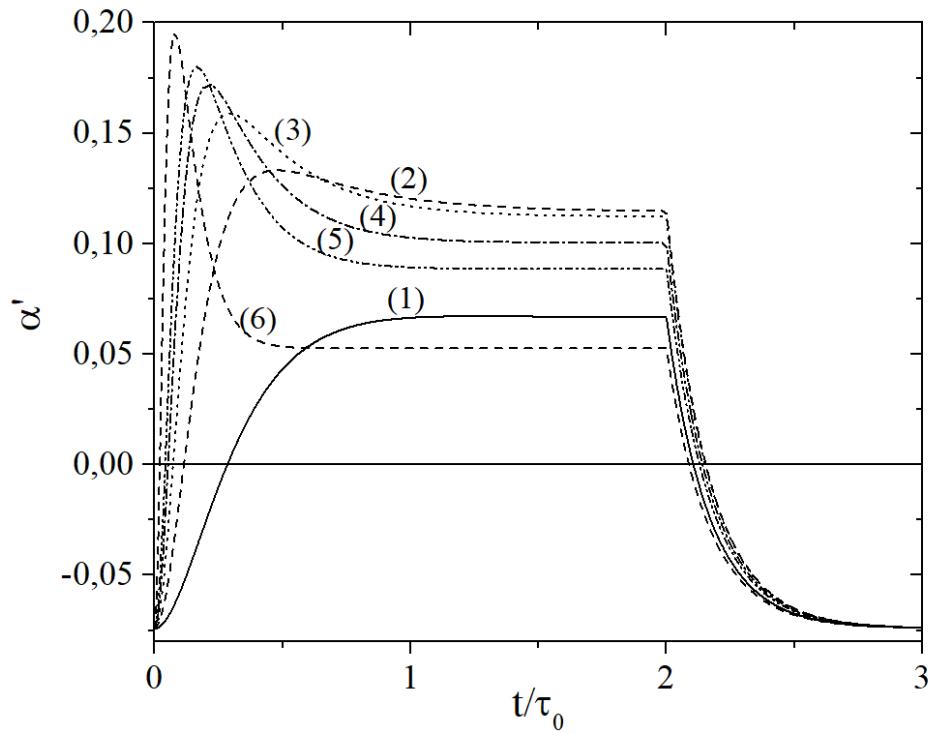


Рисунок 4.10. Временная зависимость безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  при различных значениях параметра ориентации

Как видно из рисунка 4.10 с увеличением величины энергии взаимодействия с ОП молекулы находящиеся в основном состоянии и имеющие больший дипольный момент, ориентируются быстрее. С увеличением ОП время ориентации в поле  $\tau_e^{(j)}$  уменьшается в соответствии с (4.1) и ведет к увеличению резкого выброса коэффициента усиления по сравнению со стационарным случаем (Рисунок 3.3б).

С исключением импульса ОП молекулы приходят в равновесное состояние за время  $\tau_0$ , которое уже не зависит от величины ОП.

На рисунке 4.11 приведены зависимости максимума усиления  $\alpha'_{\max}$  и времени достижения максимального усиления  $t_{\max}$  от величины параметра ориентации возбужденного состояния.

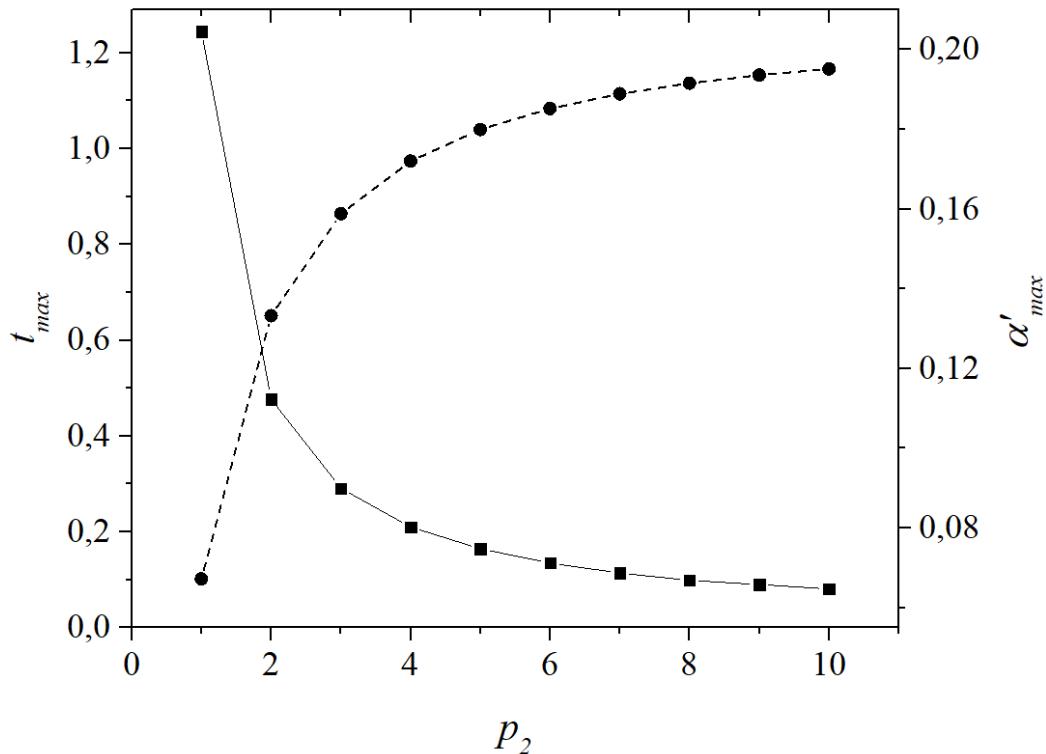


Рисунок 4.11. Зависимость времени достижения максимального усиления  $t_{\max}$  (левая шкала, сплошная линия) и максимума усиления  $\alpha'_{\max}$  (правая шкала, штриховая линия) от величины параметра ориентации  $p_2$

Как видно из рисунков 4.10 и 4.11, с увеличением ОП время достижения максимального усиления, также как и временная ширина резкого выброса уменьшаются.

#### 4.3.3 Время коммутации электрического ориентирующего поля

Как известно, ориентирующее поле включается не мгновенно, поэтому рассмотрим влияние переходных процессов, связанных с ёмкостью и индуктивностью подводящих полей и электродов, в первый момент времени после включения

ОП [92]. Будем полагать, что изменение ОП, обусловленное названными причинами, имеет характерный для таких процессов вид

$$E_0(t) = E_0 \left( 1 - e^{-t/\tau_{imp}} \right), \quad (4.6)$$

где  $E_0(t)$  — ОП зависящее от времени,  $E_0$  — его амплитуда при  $t \rightarrow \infty$ ,  $\tau_{imp}$  — характерное время установления стационарного состояния ОП (время коммутации ОП).

Рассмотрим зависимость безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  от времени  $t$  при значениях параметра ориентации  $p_1 = 2$ ,  $p_2 = 8$  ( $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ ) с различными значениями времени установления стационарного состояния ОП.

На рисунке 4.12 штриховыми линиями (шкала справа) показаны временные зависимости коммутации ОП при различных значениях  $\tau_{imp}$ : (0)  $\tau_{imp} = 0$  (мгновенное включение ОП), (1)  $\tau_{imp} = 0,1$ , (2)  $\tau_{imp} = 0,3$ , (3)  $\tau_{imp} = 0,5$ , (4)  $\tau_{imp} = 0,7$  и сплошными линиями (шкала слева) показаны зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$ : (0'), (1'), (2'), (3'), (4').

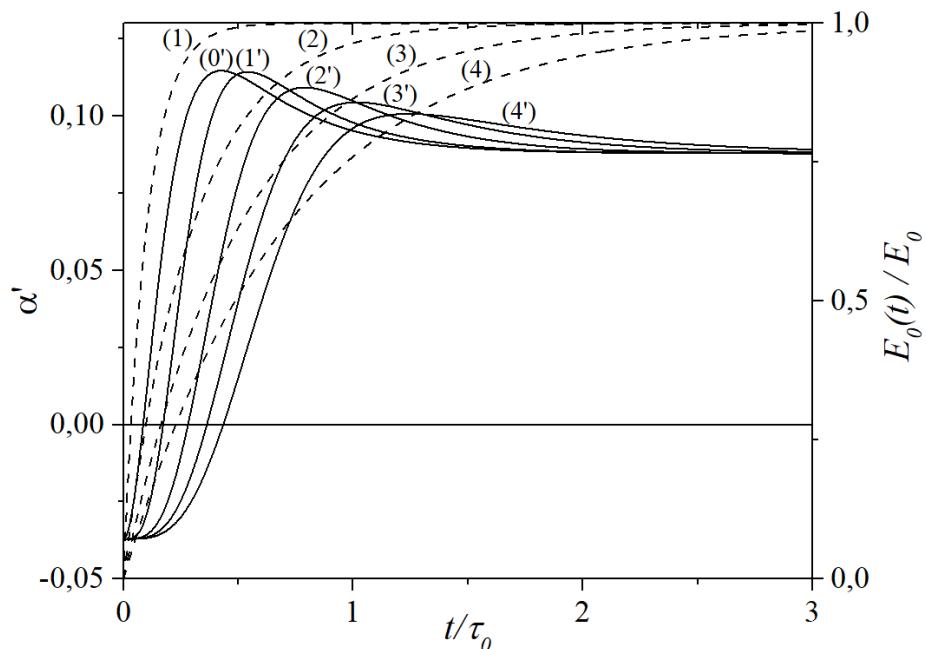


Рисунок 4.12. Зависимость безразмерного коэффициента усиления и временная зависимость ОП от времени при различных значениях  $\tau_{imp}$

Из рисунка 4.12 видно, что с ростом  $\tau_{imp}$ , а, следовательно, времени включения ориентирующего поля, характер зависимости  $\alpha'$  сглаживается и резкий выброс в начале импульса практически исчезает уже при значениях  $\tau_{imp} = 0,7$ . Поэтому скорость коммутации ОП существенным образом влияет на зависимость  $\alpha'$  и чем выше скорость включения, тем более высокого усиления можно добиться. Можно выделить еще один критерий эффективности усиления: необходимо, чтобы время коммутации ОП было меньше времени ориентации в поле или  $\tau_{imp} < \tau_e^{(j)}$ .

### **Выводы к параграфу 4.3:**

Таким образом, очевидным становится, что приведенный в работах [63–65] критерий эффективности усиления света:  $\tau_0 < \tau_2^{eff}$ , в случае переходного режима, необходимо расширить следующим:  $|\tau_e^{(2)} - \tau_e^{(1)}| < \tau_0 < \tau_2^{eff}$ . При этом вывод справедлив, если время коммутации ориентирующего поля меньше чем время ориентации в поле  $\tau_{imp} < \tau_e^{(j)}$ .

Учет переходных процессов позволяет значительно увеличить усиление (в несколько раз), вплоть до смены поглощения на усиление.

## **4.4 Динамика переходных процессов при ориентировании неполярных молекул**

В случае оптической ориентации анизотропия поляризуемости  $(\beta_{33} - \beta_{11})$  составляет величину около  $10^{-23}$  см<sup>3</sup> даже при выходах из резонанса  $\omega_l - \omega_0 \approx \omega_0$ . При нормальных температурах ( $T \sim 300K$ ) параметр оптической ориентации  $q_j$ , определяемый (2.7), (2.8) может достигать значений порядка единицы уже при фокусировке излучения лазера с мощностью около  $10^6$  Вт. Повышение интенсивности ориентирующего поля до предпробойной позволяет в ряде случаев наблю-

дать полную оптическую ориентацию молекул, размеры и вес которых не превышает оговоренных выше значений. Кроме того, величина  $q_j$  может быть значительно увеличена при приближении частоты  $\omega_0$  к частотам оптических переходов.

Рассмотрим возможность безынверсного усиления света в системе неполярных молекул, селективно по состояниям ориентированных во внешнем ориентирующем поле лазерного излучения. Это позволяет значительно увеличить параметр ориентации благодаря большей напряженности предпробойного поля, а также возможностью увеличения параметров ориентации за счет подбора частоты ориентирующего поля относительно резонансных переходов в ориентируемой молекуле.

Как будет показано ниже, при характерных величинах электродипольных моментов переходов молекул значения  $q_j$  могут существенно превышать единицу для ориентирующего поля лазерного излучения  $\vec{E}_0$  при интенсивности, достижение которой вряд ли возможно в непрерывном режиме. Поэтому целесообразно рассмотреть случай импульсной ориентации молекул в ОП лазерного излучения с длительностью, на порядок превышающей  $\tau_0$ .

Для иллюстрации рассмотрим аналогично параграфу 4.3 некоторые случаи взаимного направления векторов  $\vec{E}_0$  и  $\vec{E}$ , согласно параграфу 2.2.2, случай 1:  $0 < q_1 < q_2$ ,  $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ ; случай 2:  $q_1 > q_2 > 0$ ,  $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ .

#### 4.4.1 Случай 1 ( $0 < q_1 < q_2$ , $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ )

Рассмотрим взаимодействие импульсного ориентирующего поля  $\vec{E}_0$  с системой неполярных молекул, находящихся в буферной среде, поляризуемость которых в возбужденном состоянии больше, чем в основном. Продемонстрируем

зависимость времени ориентации в поле  $\tau_e^{(j)}$  от величины ориентирующего поля, или от энергии взаимодействия молекулы с ориентирующим полем. На рисунке 4.13 показана временная зависимость безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  при различных значениях параметров ориентации  $q_1$  и  $q_2$  ( $q_2/q_1 = 4$ ).

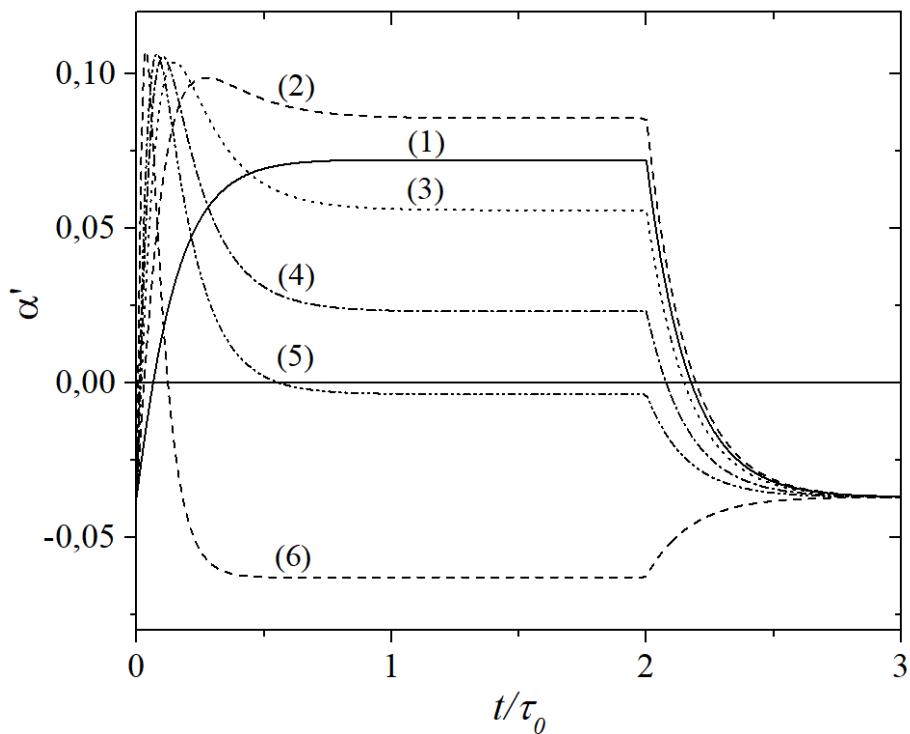


Рисунок 4.13. Временная зависимость безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  при различных значениях параметра ориентации

На рисунке 4.13 приведены зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  от времени  $t$  при следующих параметрах ориентации:  $q_1 = 1$ ,  $q_2 = 4$  (кривая 1);  $q_1 = 2$ ,  $q_2 = 8$  (кривая 2);  $q_1 = 3$ ,  $q_2 = 12$  (кривая 3);  $q_1 = 4$ ,  $q_2 = 16$  (кривая 4);  $q_1 = 5$ ,  $q_2 = 20$  (кривая 5);  $q_1 = 10$ ,  $q_2 = 40$  (кривая 6).

Как видно из рисунка 4.13 с увеличением величины энергии взаимодействия с ОП молекулы находящиеся в возбужденном состоянии и имеющие большую поляризуемость, ориентируются быстрее. Таким образом, в соответствии с (4.1), с увеличением ОП, время ориентации в поле  $\tau_e^{(j)}$  уменьшается и, в связи с увеличе-

нием разности скоростей ориентации в поле, наблюдается резкий выброс коэффициента усиления по сравнению со стационарным случаем (Рисунок 3.5а).

#### 4.4.2 Случай 2 ( $q_1 > q_2 > 0$ , $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ )

Как и в предыдущем параграфе, покажем временную зависимость безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  при различных значениях параметров ориентации  $q_1$  и  $q_2$  ( $q_1/q_2 = 4$ ), которая демонстрирует связь  $\tau_e^{(j)}$  и величину ориентирующего поля (рисунок 4.14).

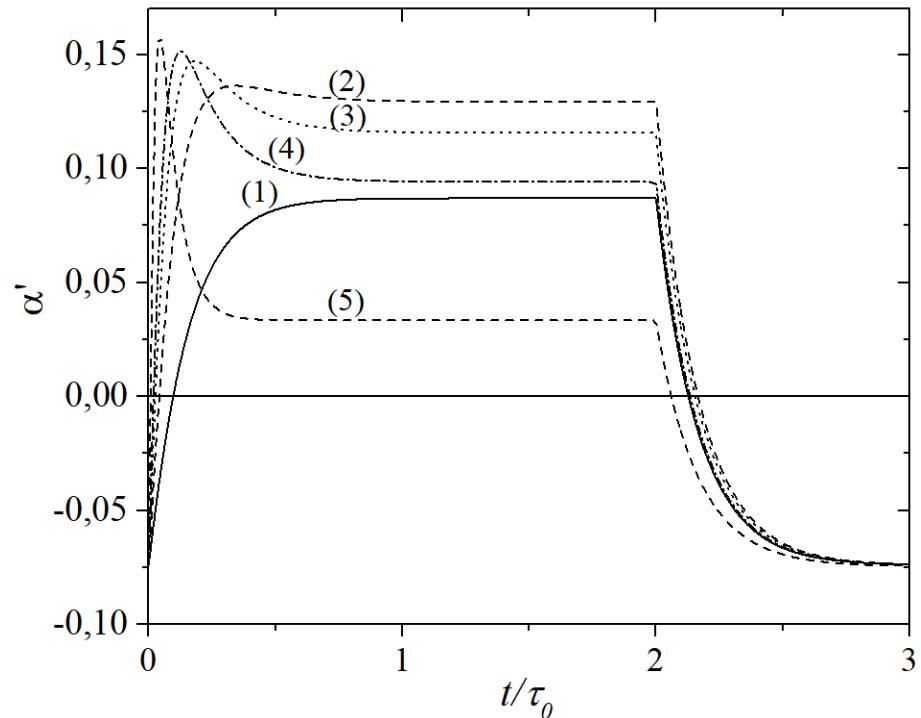


Рисунок 4.14. Зависимость безразмерного коэффициента усиления и временная зависимость ОП от времени при различных значениях параметра ориентации

На рисунке 4.14 приведены зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  от времени  $t$  при следующих параметрах ориентации:  $q_1 = 4$ ,  $q_2 = 1$  (кри-

вая 1);  $q_1 = 8$ ,  $q_2 = 2$  (кривая 2);  $q_1 = 12$ ,  $q_2 = 3$  (кривая 3);  $q_1 = 16$ ,  $q_2 = 4$  (кривая 4);  $q_1 = 40$ ,  $q_2 = 10$  (кривая 5).

Как видно из рисунка 4.14 при включении ОП скорость ориентации основного состояния растет быстрее, а возбужденного состояния медленнее. Резкий выброс коэффициента усиления возникает за счет того, что поглощение подавляется быстрее, чем усиление. В соответствии с (4.1) с увеличением ориентирующего поля времени ориентации в поле  $\tau_e^{(j)}$  уменьшается, что ведет к увеличению резкого выброса коэффициента усиления по сравнению со стационарным случаем (Рисунок 3.5б).

#### 4.4.3 Время коммутации лазерного импульсного ориентирующего поля

Как известно, лазерное импульсное ориентирующее поле включается не мгновенно и имеет определенную длительность, поэтому рассмотрим влияние переходных процессов с учетом длительности импульса. Очевидно, что коммутировать мощные лазерные поля с хорошей крутизной фронта представляет особые трудности, поэтому будут рассматриваться импульсы ориентирующего поля в Гауссовом виде, что характерно для импульсов в режиме синхронизации мод, длительность которых может меняться в широких пределах от нано- до фемтосекунд.

Будем полагать, что изменение ОП, обусловленное названными причинами, имеет характерный для таких процессов вид

$$E_0(t) = E_0 e^{-\left(\frac{t-t_0}{\tau_L}\right)^2}, \quad (4.7)$$

где  $E_0$  — пиковое значение ОП,  $t_0$  — смещение максимума импульса,  $\tau_L$  — характерная длительность импульса. При бегущих с групповой скоростью ориенти-

рующих импульсов, область усиления будет также перемещаться вместе с импульсом ОП. Таким образом, может быть реализован односторонний усилитель.

Проанализируем распространение усиления импульсным ориентирующим полем различной длины. Для примера рассмотрим распространение ОП в среде с параметрами ориентации  $q_1 = 2, q_2 = 8$  (соответственно  $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ ).

На рисунке 4.15 показаны зависимости безразмерного коэффициента усиления  $\alpha'$  (сплошная линия, шкала слева) и форма ориентирующего поля (штриховая линия, шкала справа) от времени при различных значениях  $\tau_L$ : (0) — прямоугольный импульс, (1)  $\tau_L = 0,6$ , (2)  $\tau_L = 0,2$ , (3)  $\tau_L = 0,05$ .

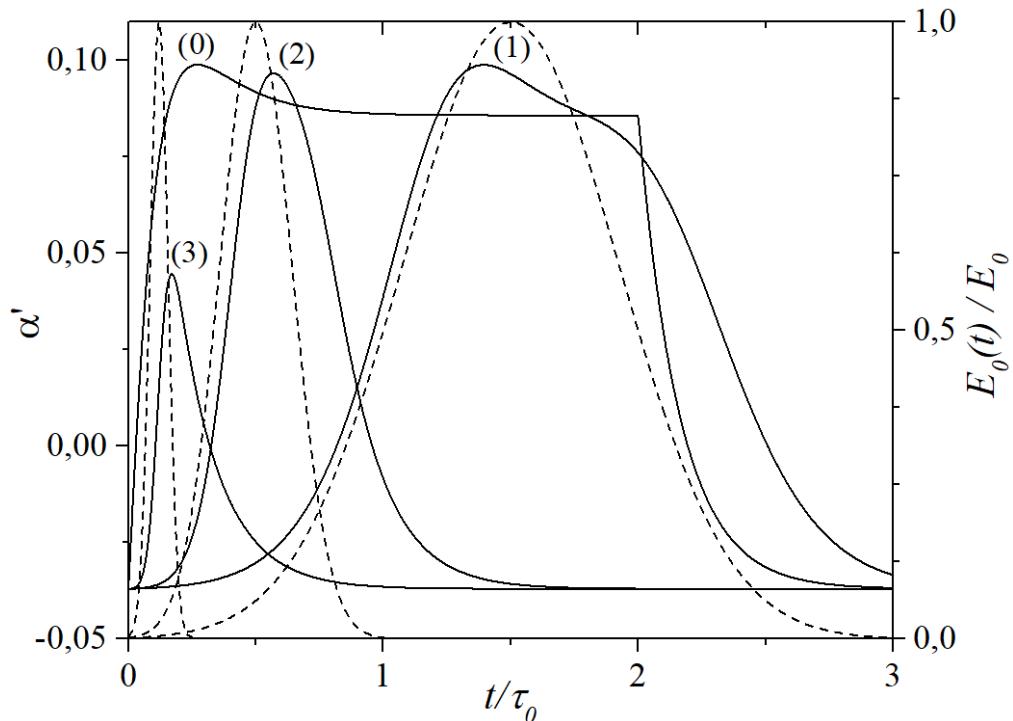


Рисунок 4.15. Временная зависимость коэффициента усиления при различной длительности импульсного ОП

Как видно из рисунка 4.15 при длительности импульса порядка времени ориентации в поле (кривые 1, 2) переходные процессы прошли и усиление стабилизировалось. Уменьшение продолжительности импульса приводит к тому, что

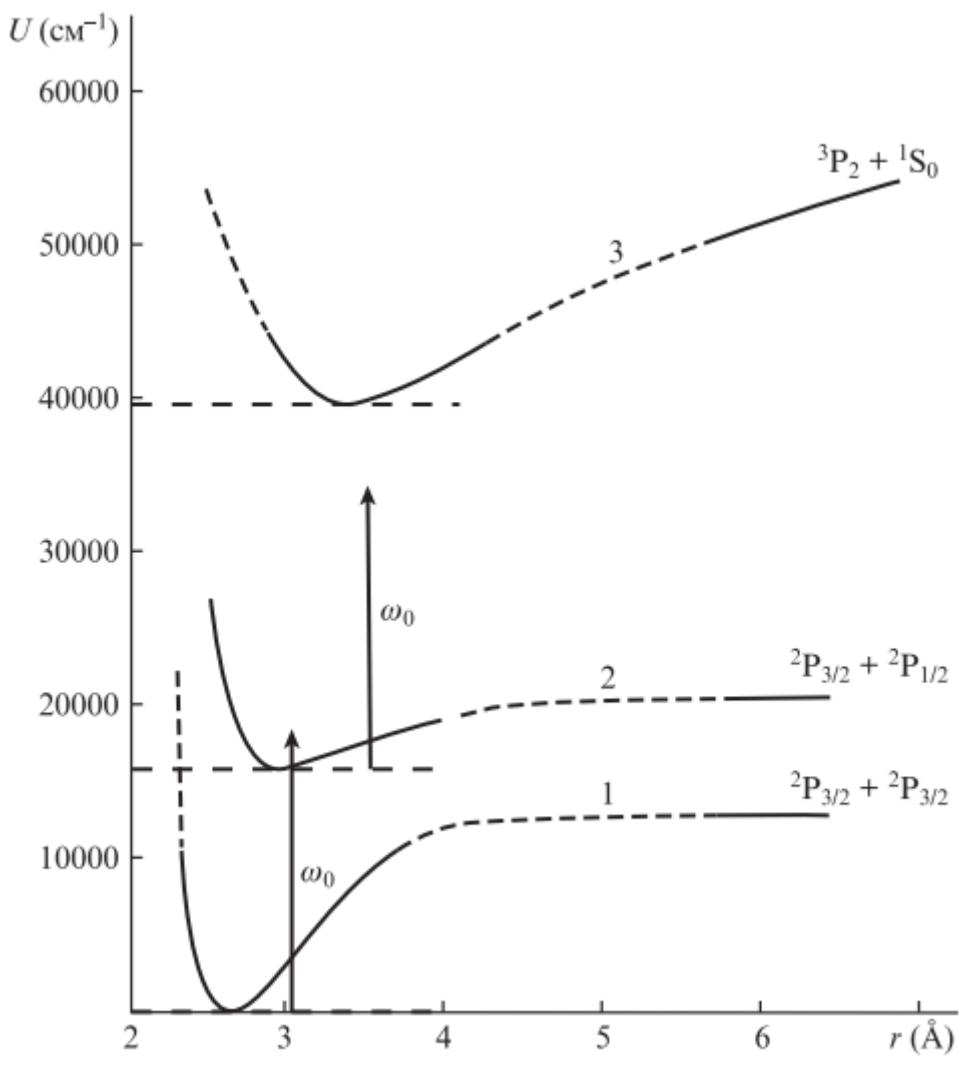
при определённой длительности (кривая 3) усиление не достигает максимального значения.

Таким образом, еще одним из критериев при ориентации в лазерном поле становится длительность импульса должна быть больше времени ориентации в поле:  $\tau_e^{(j)} < \tau_L$ . Или другими словами, помимо амплитуды импульса, определяющей интенсивность ОП, необходимо беспокоиться о том чтобы энергия импульса была достаточной для того чтобы переходные процессы ориентации успели произойти.

#### **4.5 Оценки параметров среды и ориентирующего поля**

Как говорилось в параграфе 3.3.2 наибольший интерес представляет ориентация в поле лазерного излучения частота которого подобрана таким образом, чтобы использовался резонансный выигрыш возможно разного знака для параметров ориентации основного и возбужденного состояний.

Проиллюстрируем данный случай на примере электронного перехода молекулы йода  $I_2$ , достаточно хорошо изученной и имеющей электронные переходы в видимом диапазоне [87, 75]. На рисунке 4.16 приведена схема трех нижних электронных уровней из работы [88].



U – потенциальная энергия, r – межатомное расстояние

Рисунок 4.16. Диаграмма уровней потенциальной энергии для молекулы I<sub>2</sub> [88, 4]

Рассмотрим наиболее удобный для эксперимента вариант, в котором ориентирующее поле имеет одинаковую частоту  $\omega_0$ , равную частоте излучения второй гармоники неодимового лазера с длиной волны  $\lambda = 0,53$  мкм. В этом случае, как видно из рисунка 4.16, частота ориентирующего поля больше частоты резонансного перехода между уровнями (1)–(2) и меньше частоты перехода между уровнями (2)–(3). Это обеспечивает различные знаки параметра ориентации в основном и возбужденном состояниях.

Используя выражение (2.8), можно получить оценку квазирезонансного значения тензора поляризуемости молекулы I<sub>2</sub> в состояниях (1) и (2). При этом

состояние (1) является основным состоянием, а состояние (2) — возбужденным рабочим состоянием. Принимая значения  $F_{ij}$  на переходах (1)–(2) и (2)–(3) одинаковыми и равными 0,5, получим квазирезонансные значения  $\beta_{33}^{(1)} = -3,5 \cdot 10^{-23} \text{ см}^3$ ,  $\beta_{33}^{(2)} = 1,82 \cdot 10^{-23} \text{ см}^3$ , которые на порядок выше нерезонансных. Тогда для параметра ориентации, согласно (2.7), при  $T = 300 \text{ K}$   $q_1 = -I_{01} \cdot 3,54 \cdot 10^{-19}$ ,  $q_2 = I_{02} \cdot 1,84 \cdot 10^{-19}$ , где  $I_{01}$  и  $I_{02}$  — интенсивности ориентирующего поля. Таким образом, для получения параметров ориентации  $|q_1|, |q_2| > 1$  необходимы следующие минимальные интенсивности ориентирующего поля  $I_{01} = 2,82 \cdot 10^{11} \text{ Вт/см}^2$ ,  $I_{02} = 5,43 \cdot 10^{11} \text{ Вт/см}^2$ .

Очевидно, что интенсивность ОП должна быть меньше порога пробоя. Для оценок воспользуемся данными из работ [97–99], в которых представлены сведения о пороге пробоя ряда молекулярных и атомарных газов. При длительности импульса лазерного излучения  $\tau_L = 50 \text{ пс}$  и давлении, близком к атмосферному, пороговая интенсивность пробоя в этих газах составляет  $\sim 10^{14} \text{ Вт/см}^2$ , уменьшаясь пропорционально  $1/\tau_L^{1/2}$ . Тогда при использовании паров  $I_2$  с концентрацией, значительно меньшей чем у буферного газа, можно считать, что интенсивность пробоя смеси при  $\tau_L = 5 \text{ пс}$  близка к  $\sim 10^{13} \text{ Вт/см}^2$ . Это значение более чем на порядок превышает интенсивность ОП, требуемую для эксперимента при использовании как пико-, так и наносекундных импульсов. Отметим, что использование перестраиваемого по частоте ориентирующего излучения позволяет снизить интенсивность поля на 1–2 порядка, но это существенно усложняет требования к экспериментальной установке. В качестве буферного газа рассматривались благородные газы, водород, метан, воздух, можно также предложить  $\text{SF}_6$ , что позволит увеличить пороговую интенсивность в несколько раз [100, 101].

Обсуждаемый вариант проведения эксперимента удобен тем, что позволяет использовать стоксову компоненту вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) ориентирующего поля в качестве накачки перехода (1)–(2). Для того чтобы

частота накачки соответствовала максимуму полосы электронно-колебательного перехода, необходимо обеспечить стоксов сдвиг за счет ВКР примерно на  $1000 - 2000 \text{ см}^{-1}$  [102]. Учитывая достаточно высокую интенсивность ориентирующего поля, ВКР требуемой интенсивности для насыщения перехода (1)–(2) можно получить на ряде сред, что практически обеспечит близкое равенство населенностей,  $n_1 \approx n_2$ . Таким образом, предлагаемый вариант может стать основой для планируемого эксперимента.

#### 4.6 Выводы и заключение главы 4

В заключение отметим: проведенный анализ показывает, что при реальных значениях параметров среды и поля безынверсное усиление может быть достигнуто при ориентации молекул в импульсном поле.

При исследовании переходных процессов при включении импульсного ОП обнаружен резкий выброс усиления в начале импульса при большом ОП, обусловленный различной величиной энергии взаимодействия молекулы с ОП, в основном и возбужденном состояниях. Данная особенность послужила введению понятий времени и скорости ориентации в поле.

Сформулирована иерархия времен установления режимов, при которой переходные процессы позволяют обеспечить эффективность усиления  $|\tau_e^{(2)} - \tau_e^{(1)}| < \tau_0 < \tau_2^{eff}$ . При ориентации электрическим полем время коммутации ориентирующего поля должно быть меньше времени ориентации в поле:  $\tau_{imp} < \tau_e^{(j)}$ . При ориентации в лазерном поле длительность импульса должна быть больше времени ориентации в поле:  $\tau_L > \tau_e^{(j)}$ .

Приведенные расчеты, соображения и оценки позволяют сделать вывод о возможности безынверсного усиления излучения путем селективного по состояниям ориентирования молекул в поле лазерного излучения. Расчеты конкретных

вариантов подтверждают качественные соображения, которые могут быть использованы для прогнозирования ситуаций при различных соотношениях между параметрами  $q_j$ , а также между временами жизни возбужденных состояний и временами ориентации. Подчеркнем, что сделанное в [63–65] жесткое ограничение на выбор молекул,  $\tau_2^{eff} > \tau_0$ , снимается, и это позволяет расширить класс молекул, которые могут быть использованы, в том числе возможно использование белковых макромолекул.

В случае оптической ориентации анизотропия поляризуемости ( $\beta_{33}^{(j)} - \beta_{11}^{(j)}$ ) составляет  $\sim 10^{-24}$  см<sup>3</sup> даже при выходах из резонанса,  $\omega_{li} - \omega_0 \approx \omega_0$ . При нормальных температурах ( $T = 300$  K) параметр оптической ориентации  $q_j$  может достигать  $\sim 1$  при интенсивности ОП ниже пробойной. Особо необходимо выделить то, что величина  $q_j$  может быть значительно увеличена с приближением частоты  $\omega_0$  к частотам оптических переходов, а кроме того, подбором частоты  $\omega_0$  можно реализовать условия, в которых параметры ориентации в основном и возбужденном состояниях имеют разные знаки. Последнее позволяет получить безынверсное усиление при меньших значениях ориентирующего поля и расширяет класс молекулярных соединений, которые можно рассматривать в качестве объектов экспериментальных исследований.

Очевидно, что приведенные выше оценки для паров молекул I<sub>2</sub> могут использоваться при планировании эксперимента, однако вызывает сомнение возможность практического применения лазера такого типа, работающего в видимом диапазоне. Практический интерес может представлять лазер, работающий в вакуумном УФ диапазоне, например водородный лазер [103] либо его аналоги. Действительно, с помощью квазирезонансной ориентации верхнего возбужденного состояния может быть реализована генерация на тех переходах, на которых генерация до сих пор не наблюдалась, либо улучшены условия генерации на уже известных переходах.

## ВЫВОДЫ К ДИССЕРТАЦИИ

В процессе решения задач, поставленных в диссертации, получены следующие основные научные результаты:

1. Получена система уравнений на основе кинетического уравнения Больцмана, описывающая ориентацию молекул под воздействием как стационарного, так и импульсного ориентирующего поля с учетом вероятностей переходов между рабочими уровнями, времени установления ориентационного равновесия, населеностей уровней, параметров ориентации молекулы в основном и возбужденном состояниях, включающих в себя как амплитуду ориентирующего поля, так и значения поляризуемости (постоянного дипольного момента или наведенного ориентирующим полем), длительности ориентирующего импульса и его фронта.
2. Предложен алгоритм численного решения системы нестационарных кинетических уравнений на основе метода экспоненциальной подгонки. Продемонстрирована целесообразность использования этого метода для решения системы нестационарных кинетических уравнений, связывающих функции распределения по ориентациям внешним полем дихроичных молекул, находящихся в основном и возбужденном состояниях.
3. Показано, что жесткое требование, введенное в [63–65],  $\tau_0 \ll \tau_j^{eff}$  может быть ослаблено при условии подавления поглощения за счет преимущественной ориентации молекул в основном состоянии.
4. Предсказано влияние переходных процессов на величину коэффициента усиления (поглощения), обусловленных различной скоростью ориентации молекул в основном и возбужденном состоянии под действием ориентирующего поля.
5. Показано, что коэффициент усиления (поглощения) в ряде случаев может кратно превышать эту величину по сравнению с установившимся режимом.

6. Введено понятие времени ориентации молекулы при мгновенном включении поля. Показано, что время ориентации зависит как от параметров среды, так и от величины ориентирующего поля.

7. Введена аппроксимирующая функция ориентации молекулы в поле, позволяющая описать временное поведение составляющих усиления и поглощения с достаточной степенью точности.

8. Сформулирована иерархия времен установления режимов, при которой переходные процессы позволяют обеспечить эффективность усиления  $|\tau_e^{(2)} - \tau_e^{(1)}| < \tau_0 < \tau_2^{eff}$ . При ориентации электрическим полем время коммутации ориентирующего поля должно быть меньше времени ориентации в поле  $\tau_{imp} < \tau_e^{(j)}$ . При ориентации в лазерном поле длительность импульса должна быть больше времени ориентации в поле:  $\tau_L > \tau_e^{(j)}$ .

## СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ

ОП — ориентирующее поле

$d_{21}$  — матричный элемент электродипольного момента перехода в системе координат, связанной с молекулой

$d\Omega$  — элемент телесного угла

$\vec{E}$  — пробное (усиливаемое) поле

$\vec{E}_0$  — ориентирующее поле

$F(\omega)$  — частотный форм-фактор

$F_{lj}$  — сила осциллятора

$f_j(\Omega, E_0)$  — нормированные на единицу функции статистического распределения ориентации молекул в  $j$ -м состоянии

$F_1(t)$  — динамика поглощения (второй член в подынтегральном выражении (2.3))

$F_2(t)$  — динамика усиления (первый член в подынтегральном выражении (2.3))

$F_{on}^{(j)}(t)$  — динамика усиления (поглощения) при включении ориентирующего поля в  $j$ -м состоянии

$F_{off}^{(j)}(t)$  — динамика усиления (поглощения) при выключении ориентирующего поля в  $j$ -м состоянии

$\tilde{F}_{on}^{(j)}(t)$  — аппроксимация динамики усиления (поглощения) при включении ориентирующего поля в  $j$ -м состоянии

$\tilde{F}_{off}^{(j)}(t)$  — аппроксимация динамики усиления (поглощения) при выключении ориентирующего поля в  $j$ -м состоянии

$j$  — энергетическое состояние молекулы ( $j=1$  — для молекул в основном состоянии,  $j=2$  — для молекул в возбужденном состоянии))

$K_1^{(j)}$  — начальное состояние молекулы в  $j$ -м состоянии

$K_2^{(j)}$  — конечное состояние молекулы в  $j$ -м состоянии

$N$  — концентрация частиц

$n_1, n_2$  — относительные населенности основного (1) и возбужденного (2) состояний

$p_j$  — безразмерный параметр ориентации электрического диполя в  $j$ -м состоянии

$q_j$  — безразмерный параметр ориентации эллипсоида поляризуемости молекулы в  $j$ -м состоянии

$T$  — температура среды

$U_j(\Omega, E_0)$  — потенциальная энергия взаимодействия дихроичной молекулы с ориентирующим полем в  $j$ -м состоянии

$v_e^{(j)}$  — скорость ориентации в поле молекулы в  $j$ -м состоянии

$W_{12}^{ind}, W_{21}^{ind}$  — вероятности индуцированных переходов в единицу времени с поглощением и усилением плоскополяризованного монохроматического излучения

$W_{21}^{sp}$  — вероятность спонтанного перехода

$\tilde{W}$  — вероятность перехода из основного в возбужденное состояние через дополнительные уровни под действием накачки

$w$  — константа, отвечающая за внутреннее трение в среде

$\alpha$  — коэффициент усиления

$\alpha'$  — безразмерный коэффициент усиления

$\tilde{\alpha}'$  — аппроксимация безразмерного коэффициента усиления

$\beta_{33}^{(j)}, \beta_{11}^{(j)}$  — главные значения тензора поляризуемости молекулы, находящиеся в  $j$ -м состоянии вдоль оси симметрии и поперек соответственно

$\gamma_{21}$  — полуширина перехода между основным и возбужденным состоянием

$\theta$  — угол между направлением электродипольного момента перехода и плоскостью поляризации

$\theta_0$  — угол между направлением поляризуемости (дипольного момента) и ориентирующим полем

$\mu_j$  — дипольный момент полярной молекулы в  $j$ -м состоянии

$\sigma$  — поперечное сечение поглощения (излучения)

$\sigma_0$  — сечение поглощения (излучения) для молекулы, электродипольный момент перехода которой, ориентирован параллельно плоскости поляризации

$\tau_1^{eff}$ ,  $\tau_2^{eff}$  — время жизни основного и возбужденного состояния

$\tau_0$  — время установления ориентационного равновесия (время ориентационной релаксации)

$\tau_e^{(j)}$  — время ориентации в поле молекулы в  $j$ -м состоянии

$\tau_{imp}$  — характерное время установления стационарного состояния ориентирующего поля (время коммутации электрического ориентирующего поля)

$\tau_L$  — характерная длительность импульса (при ориентации лазерным полем)

$\varphi$  — азимутальный угол

$\Omega$  — телесный угол

$\omega$  — частота излучения

$\omega_0$  — частота ориентирующего поля

$\omega_{lj}$  — частота перехода из состояния ( $j$ ) в состояние ( $l$ )

**БЛАГОДАРНОСТИ**

Автор выражает благодарность своему научному руководителю Слабко Виталию Васильевичу, за актуальную тему исследования, ценные советы, терпение и мудрое руководство на всех этапах работы, Кузоватову Игорю Анатольевичу за помощь в разработке методики численного исследования.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Mandel, P. Lasing without inversion A useful concept? / P. Mandel // Contemporary Physics. – 1993. – V.34, N.5. – P. 235-246.
2. Mompart, J. Lasing without inversion / J. Mompart, R. Corbalan // J.Opt. B: Quantum Semiclassical Opt. – 2000. – V.2, N.3. – R7.
3. Слабко, В.В. О возможности безынверсного усиления света дихроичными молекулами во внешнем ориентирующем поле/ В.В. Слабко, И.А. Кузоватов, А.В. Шамшурин // Журнал технической физики. – 2012. – Т.82, №2. – С. 57-62.
4. Шамшурин, А.В. О безынверсном усилении света молекулами, селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения / А.В. Шамшурин, И.А. Кузоватов, А.С. Ципотан, В.В. Слабко // Квантовая электроника. – 2018. – Т.48, №11. – С. 1076–1082.
5. Kuzovatov, I.A. Amplification of light by molecules with selectively oriented states in the pulsed electric field / I.A. Kuzovatov, V.V. Slabko, A.V. Shamshurin // Journal of Siberian Federal University. Mathematics & Physics. – 2016. – Т.9, N3. – P. 332-337.
6. Кузоватов, И.А. Влияние времени установления ориентационного равновесия на эффект безынверсного усиления селективно по состояниям ориентированными молекулами / И.А. Кузоватов, В.В. Лашинский, В.В. Слабко, А.В. Шамшурин // Журнал Сибирского федерального университета. Математика и физика. – 2011. – Т.4 №2. – С. 240-248.
7. Кузоватов, И.А. Численное моделирование процесса ориентации двухуровневых молекул во внешнем поле при помощи метода экспоненциальной подгонки / И.А. Кузоватов, А.В. Шамшурин // Сибирский журнал индустриальной математики. – 2012. –Т.15, №3(51). – С. 45-57.
8. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2011614295. Расчет статистического распределения ориентации молекул и коэффициента усиления для стационарного случая при помощи метода экспоненци-

альной подгонки: заявл. 11.04.2011, опубл. 31.05.2011 / И.А. Кузоватов, А.В. Шамшурин.

9. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2012613478. Расчет статистического распределения ориентации молекул и коэффициента усиления в нестационарном случае при помощи метода экспоненциальной подгонки: заявл. 21.02.2012; опубл. 13.04.2012 / И.А. Кузоватов, В.В. Слабко, А.В. Шамшурин.

10. Шамшурин, А.В. Безынверсное усиление света селективно по состояниям ориентированными молекулами / А.В. Шамшурин // Материалы XLIX Международной научной студенческой конференции «Студент и научно-технический прогресс»: Физика, Новосибирск, 16–20 апреля 2011 года – Новосибирск: Новосиб. гос. ун-т, 2011. – С. 139.

11. Слабко, В.В. Безынверсное усиление света селективно по состояниям ориентированными молекулами / И.А. Кузоватов, В.В. Слабко, А.В. Шамшурин // Современные проблемы прикладной математики и механики: теория, эксперимент и практика : Материалы Международной конференции, посвященной 90-летию со дня рождения академика Н.Н. Яненко, Новосибирск, 30 мая – 4 июня 2011 года. – Новосибирск, ИВТ СО РАН, 2011, № гос. регистрации — 0321101160, URL: <http://conf.nsc.ru/niknik-90/ru/reportview/38154> (дата обращения: 04.02.2024).

12. Белоглазова, И.А. Ориентированные дихроичные недипольные молекулы в поле внешнего постоянного излучения / И.А. Белоглазова, А.В. Шамшурин // Проспект Свободный – 2016 : Сборник материалов международной конференции студентов, аспирантов и молодых учёных, посвящённой Году образования в Содружестве Независимых Государств, Красноярск, 15–25 апреля 2016 года. – Красноярск: Сибирский федеральный университет, 2016. – С. 6–10.

13. Шамшурин, А. В. Безынверсное усиление света недипольными молекулами селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения / А. В. Шамшурин, И. А. Кузоватов, В. В. Слабко // Моделирование неравновесных систем – 2018 : Материалы XXI Всероссийского семинара, Красноярск, 05–07 ок-

тября 2018 года / Под редакцией М.Г. Садовского. Ответственный за выпуск М.Ю. Сенашова. – Красноярск: Институт вычислительного моделирования Сибирского отделения Российской академии наук, 2018. – С. 122-128.

14. Шамшурин, А.В. О возможности усиления света селективно по состояниям ориентированными импульсным полем молекулами / А.В. Шамшурин, В.В. Слабко, И.А. Кузоватов // Материалы XIX Международной молодежной конференции по люминесценции и лазерной физике, Иркутск, 03–07 июля 2023 года. – Иркутск: Иркутский государственный университет, 2023. – С. 221-222.

15. Шамшурин, А.В. Безынверсное усиление света недипольными молекулами селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения / А.В. Шамшурин, И.А. Кузоватов, В.В. Слабко // Енисейская фотоника – 2022 : Тезисы докладов всероссийской научной конференции с международным участием, Красноярск, 19–24 сентября 2022 года. В 3 томах. Т.1. – Красноярск: ИФ СО РАН, 2022. – С. 262–263.

16. Шамшурин, А.В. Безынверсное усиление света недипольными молекулами селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения / А.В. Шамшурин, И.А. Кузоватов, В.В. Слабко // Енисейская фотоника – 2024 : Тезисы докладов всероссийской научной конференции с международным участием, Красноярск, 16–20 сентября 2024 года. В 2 томах. Т.1. – Красноярск: ИФ СО РАН, 2024. – С. 273–274.

17. Эйнштейн, А. Собрание научных трудов: в 4 т. / Альберт Эйнштейн; [под ред. С.И. Ларина]. – М. : Наука, 1966. – Т. 3. – С. 386-405.

18. Ладенбург, Р. Дисперсия в электрически возбужденных газах / Р. Ладенбург // Успехи физических наук. – 1934. – Т. 14, Вып. 6. – С. 721–741.

19. Фабрикант, В.А. Некоторые вопросы оптики газового разряда / В.А. Фабрикант // Успехи физических наук. – 1947. – Т. 32. – С. 1–25.

20. Басов, Н.Г. Применение молекулярных пучков для радиоспектроскопического изучения вращательных спектров молекул / Н.Г. Басов, А.М. Прохоров // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 1954. – Т. 27, №4. – С. 431-438.

21. Gordon, J.P. Molecular Microwave Oscillator and New Hyperfine Structure in the Microwave Spectrum of NH<sub>3</sub> / J.P. Gordon, H.J. Zeiger, C.H. Townes // Phys. Rev. – 1954. – V. 95. – P. 282-284.
22. Marcuse, D. Maser Action Without Population Inversion / D. Marcuse // Proceedings of the IEEE. – 1963. – V.51, Iss.5. – P.849-850.
23. Holt, H.K. Gain without population inversion in two-level atoms / H.K. Holt // Physical Review A. – 1977. – V. 16, N. 3. – P. 1136-1140.
24. Ривлин, Л.А. О стимулированном излучении охлажденных ядерных пучков / Л.А. Ривлин // Квантовая электроника. – 1992. – Т.19, №5. – С.513-520.
25. Ривлин, Л.А. «Двухуровневая», стоксова и антистоксова накачки ядерного гамма-лазера с анизотропной скрытой инверсией / Л.А. Ривлин // Квантовая электроника. – 1992. – Т.6, №2. – С.122-126.
26. Ривлин, Л.А. Ядерный гамма-лазер: эволюция идеи / Л.А. Ривлин // Квантовая электроника. – 2007. – Т.37, №8. – С.723-744.
27. Rautian, S.G. Line shape and dispersion in the vicinity of an absorption band, as affected by induced transitions / S. G. Rautian, I. I. Sobel'man // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 1962. – V.41, N.2. – P. 456-464.
28. Wu, F.Y. Observation of Amplification in a Strongly Driven Two-Level Atomic System at Optical Frequencies / F. Y. Wu, S. Ezekiel, M. Ducloy, B.R. Mollow // Physical Review Letters. – 1977. – V.38, N.19. – P. 1077-1080.
29. Grandclement, D. Observation of Continuous-Wave Self-Oscillation Due to Pressure-Induced Two-Wave Mixing in Sodium / D. Grandclement, G.Grynberg, M. Pinard // Physical Review Letters. – 1987. – V.59, N.1. – P. 40-43.
30. Zeilikovich, I.S. Generation in atomic-barium vapors in a resonance light-field / I.S. Zeilikovich, S.A. Pulkin, L.S. Gaida // Оптика и спектроскопия. – 1987. – V.62, N.6. – P. 1401-1402.
31. Zeilikovich, I.S. Susceptibility spectrum and parametric generation in atomic vapors in a resonant light field / I.S. Zeilikovich, S.A. Pul'Kin, L.S. Gaida, V.N. Komar // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 1988. – V.94, N.6. – P. 76-89.

32. Khitrova, G. Gain-Feedback Approach to Optical Instabilities in Sodium Vapor / G. Khitrova, G. F. Valley, H. M. Gibbs // Phys. Rev. Lett. – 1988. – V.60, N.12. – P. 1126-1129.
33. Lezama, A. Radiative emission of driven two-level atoms into the modes of an enclosing optical cavity: The transition from fluorescence to lasing / A. Lezama, Y. Zhu, M. Kanskar, T. W. Mossberg // Phys. Rev. A. – 1990. – V.41. – P. 1576.
34. Cohen-Tannoudji, C. Dressed-atom description of resonance fluorescence and absorption spectra of a multilevel atom in an intense laser beam / C. Cohen-Tannoudji, S. Reynaud // Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics. – 1977. – V.10, N.3. – P. 345-363.
35. Knight, P.L. The Rabi frequency in optical spectra / P.L. Knight, P.W. Milonni // Physics Reports. – 1980. – V.66, N.2. – P.21-107.
36. Dorfman, K.E. Quantum-interference-controlled resonance profiles from lasing without inversion to photodetection / K.E. Dorfman, P.K. Jha, S. Das // Physical Review A. – 2011. – V.84. – P. 053803.
37. Popova, T.Ya. Nonlinear interference effects in emission, absorption, and generation spectra / T.Ya. Popova, A.K. Popov, S.G. Rautian, R.I. Sokovskii // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 1970. – V.30, N.3. – P. 466-472.
38. Popova, T.Ya. Effect of resonance radiative processes on the amplification factor / T.Ya. Popova, A.K. Popov // Journal of Applied Spectroscopy. – 1970. – V.12, Iss. 6. – P. 734–737.
39. Kocharovskaya, O. Population trapping and coherent bleaching of a three-level medium by a periodic train of ultrashort pulses / O. Kocharovskaya, Ya. I. Khanin // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики – 1986. – V. 90, N. 5. – P. 1610-1618.
40. Кочаровская, О.А. Когерентное усиление ультракороткого импульса в трехуровневой среде без инверсии населенностей / О.А. Кочаровская, Я.И. Ханин // Письма в ЖЭТФ. – 1988. – Т.48, Вып.11. – С.581-584.

41. Scully, M.O. Degenerate Quantum-Beat Laser: Lasing without Inversion and Inversion without Lasing / M.O. Scully, S.-Y. Zhu, A. Gavridiles // Phys. Rev. Lett. – 1989. – V.62, N 24. – P.2813-2816.
42. Ficek, Z. Quantum Interference and Coherence: Coherence Effects in Multi-Level Systems / Z. Ficek, S. Swain // Switzerland: Springer Nature Switzerland AG. – 2005. – P.180.
43. Harris, S.E. Lasers without inversion: interference of dressed lifetime-broadened states / S.E. Harris // J. Optics letters. – 1989. – V. 14, N. 24. – P. 1344-1346.
44. Alzetta, G. An experimental method for the observation of r.f. transitions and laser beat resonances in oriented Na vapour / G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, G. Orriols // Il Nuovo Cimento B. – 1976. – V.36, N. 1. – P. 5-20.
45. Gray, H.M. Coherent trapping of atomic populations / H.M. Gray, R.M. Whitley, C.R. Stroud // J. Optics letters. – 1978. – V.3, N.6. – P. 218-220.
46. Arkhipkin, V.G. Radiation amplification without population inversion at transitions to autoionizing states / V.G. Arkhipkin, Yu.I. Heller // J. Physics Letters A. – 1983. – V.98, N.1-2. – P. 12-14.
47. Fano, U. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts / U. Fano // Phys. Rev. – 1961. – V.124, N.6. – P.1866-1878.
48. Boller, K-J. Observation of electromagnetically induced transparency / K-J. Boller, A. Imamoglu, S.E. Harris // Phys. Rev. Lett. – 1991. – V.66, N.20. – P. 2593-2596.
49. Zambon, B. Inversionless gain versus efficient gain: the autoionizing states configuration / B. Zambon // Phys. Rev. A. – 1998. – V.58. – P.690.
50. Hamed, H.R. Spatially Structured Optical Effects in a Four-Level Quantum System Near a Plasmonic Nanostructure / H.R. Hamed, V. Yannopapas, E. Paspalakis // Annalen der Physik. – 2021. – V. 533, N.10. – P.2100117.
51. Hamed, H.R. Spatially patterned light amplification without inversion / H.R. Hamed, V. Yannopapas, E. Paspalakis, J. Ruseckas // Results in Physics. – 2023. – V.54. – P.107135.

52. Talker, E. Inversionless Gain in a Lossy Medium / E. Talker, Y. Barash, N. Mazurski, U. Levy // Phys. Rev. Applied. – 2023. – V.20. – P.014007.
53. Lytova, M.  $N_2^+$  lasing: Gain and absorption in the presence of rotational coherence / M. Lytova, M. Richter, F. Morales, O. Smirnova, M. Ivanov, M. Spanner // Phys. Rev. A. – 2020. – V.102. – P.013111.
54. Richter, M. Rotational quantum beat lasing without inversion/ M. Richter, M. Lytova, F. Morales, S. Haessler, O. Smirnova, M. Spanner, M. Ivanov // Optica. – 2020. – V.7, Iss.6. – Pp. 586-592.
55. Гельмуханов, Ф.Х. Светоиндуцированная диффузия газов / Ф.Х. Гельмуханов, А.М. Шалагин // Письма ЖЭТФ. – 1979. – Т. 29, № 12. – С.773-776.
56. Гельмуханов, Ф.Х. Диффузионное втягивание и выталкивание атомов световым полем / Ф.Х. Гельмуханов, А.М. Шалагин // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 1979. – Т. 77, № 2. – С.461.
57. Gel'mukhanov, F. Kh. Theory of optically induced diffusion of gases / F. Kh. Gel'mukhanov, A. M. Shalagin // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 1980. – Т. 51, № 5. – С.839-846.
58. Марков, Р.В. Инверсия заселенностей на переходах в основное состояние атомов при нерезонансном поглощении лазерного излучения / Р.В. Марков, А.И. Плеханов, А.М. Шалагин // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2001. – Т. 120, № 5(11). – С. 1185-1193.
59. Шалагин, А. М. Соотношение между спектральными плотностями коэффициентов Эйнштейна для поглощения и вынужденного испускания. Физические следствия / А. М. Шалагин // Письма в ЖЭТФ. – 2002. – Т. 75, № 6. – С. 301-305.
60. Пархоменко, А.И. Индуцированное столкновениями усиление излучения двухуровневыми системами без инверсии населенностей / А.И. Пархоменко, А.М. Шалагин // Квантовая электроника. – 2009. – Т. 39, № 12. – С. 1143–1147.
61. Пархоменко, А.И. О возможности безынверсного усиления и генерации излучения двухуровневой системой в "красном" крыле ее спектральной линии при

резонансной диодной накачке / А.И.Пархоменко, А.М. Шалагин // Квантовая электроника. – 2021. – Т. 51, № 10. – С. 915-919.

62. Пархоменко, А.И. Двухуровневый газовый лазер с поперечной диодной накачкой / А.И. Пархоменко, А.М. Шалагин // Квантовая электроника. – 2022. – Т. 52, № 5. – С. 426-436.

63. Попов, А.К. О возможности безынверсного усиления света дихроичными молекулами / А.К. Попов, В.В. Слабко. – Красноярск: Институт физики СО АН СССР, 1986. – 20 с. – (Препринт / Институт физики СО АН СССР ; №410Ф).

64. Popov, A.K. Inversionless amplification by anisotropic molecules / A.K. Popov, V.V. Slabko // Opt. Lett. – 2005. – V. 30, N 13. – P. 1719-1721.

65. Popov, A.K. Optical switching and inversionless amplification controlled by state-dependent alignment of molecules / A.K. Popov, V.V. Slabko // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. – 2005. – V.38, N 11. – P. 1787-1796.

66. Лащинский, В. В. Термодинамические особенности взаимодействия оптического излучения с молекулами, ориентированными во внешнем электромагнитном поле : дис. ... канд. физ.-мат. наук : 01.04.14 / Лащинский Василий Владимирович. – Красноярск, 2003. – 120 с.

67. Лащинский, В.В. Усиление оптического излучения ориентированных внешним полем дихроичными молекулами в отсутствие инверсии заселенностей / В.В. Лащинский, А.К. Попов, В.В. Слабко // Исследовано в России. – 2002. – Т. 158. – С. 1773.

68. Кузоватов, И.А. Моделирование стационарных процессов ориентации молекул во внешнем электромагнитном поле./ И.А. Кузоватов, В.В. Лащинский, В.В. Слабко. // Вестник КГТУ, выпуск 37. Математические методы и моделирование. / Под ред. Б.С. Добронца. – Красноярск: ИПЦ КГТУ, 2005. – С. 43-50.

69. Дихроизм // Физическая энциклопедия / Гл. ред. А. М. Прохоров. – М.: Советская энциклопедия, 1988. – Т. 1. – С. 693–694. – 704 с.

70. Бахшиев, Н.Г. Спектроскопия межмолекулярных взаимодействий / Н.Г. Бахшиев ; АН СССР. Отделение общей физики и астрономии. – Ленинград : Наука. Ленинградское отделение, 1972. – 263 с.

71. Келих, С. Молекулярная нелинейная оптика: Пер. с польск. / С. Келих ; Под ред. И.Л. Фабелинского. – М.: Наука, Главная редакция физико-математической науки, 1981. – 671 с.
72. Карлов, Н.В. Лекции по квантовой электронике / Н.В. Карлов. – Москва : Наука, 1988. – 322 с.
73. Дебай, П. Полярные молекулы: Пер. с нем. / П. Дебай. – М.-Л.: ГТТИ, 1931. – 247 с.
74. Верещагин, А.Н. Характеристики анизотропии поляризуемости молекул / А.Н. Верещагин. – М.: Наука, 1982. – 308 с.
75. Ельяшевич, М.А. Атомная и молекулярная спектроскопия / М.А. Ельяшевич. – М.: Эдиториал УРСС, 2001. – 896 с.
76. Дебай, П. Теория электрических свойств молекул: Пер. с нем. / П. Дебай, Г. Закк. – М.: Глав. ред. общетехнич. лит-ры, 1936. – 144 с.
77. Peterlin, A. Doppelbrechung, insbesondere künstliche Doppelbrechung / A. Peterlin, H.A. Stuart. – Doppelbrechung.-Leipzig : Akad. Verlag-Ges., 1943. – 115 p.
78. Ильин, А. М. Разностная схема для дифференциального уравнения с малым параметром при старшей производной / А. М. Ильин // Математические заметки. – 1969. – Т.6, №2. – С.237–248.
79. Дулан, Э. Равномерные численные методы решения задач с пограничным слоем: Пер. с англ. / Э. Дулан, Дж. Миллер, У. Шилдерс. – М. : Мир, 1983. – 200 с.
80. Allen, D.N. de G. Relaxation method applied to determine the motion, in 2–D, of viscous fluid past a fixed cylinder/ D.N. de G. Allen, R.V. Southwell // Quarterly Journal of Mechanics and Applied Mathematics. – 1955. – V.8. – P. 129-145.
81. Ильин, В.П. Методы конечных разностей и конечных объемов для эллиптических уравнений / В.П. Ильин. – Новосибирск : Изд-во Ин-та математики, 2000. – 345 с.

82. Самарский, А.А. Численные методы решения задач конвекции-диффузии / А.А. Самарский, П.Н. Вабищевич. – Изд. 4-е. – М. : URSS, 2009. – 246 с.
83. Кузоватов, И.А. Численное моделирование физико-химических процессов в слоевом газификаторе / И.А. Кузоватов, А.А. Гроо, С.Г. Степанов // Вычислительные технологии. – 2005. – Т.10, №5. – с. 39-48.
84. Кузоватов, И.А. Анализ влияния эффекта Холла на структуру неравновесного плазменного слоя в канале МГД-генератора / И.А. Кузоватов, Т.А. Милovidова, В.С. Славин // Вычислительные технологии. – 2007. – Т.12, №4. – с. 73-84.
85. Славин, В.С. Применение разностной схемы экспоненциальной подгонки для численного моделирования нестационарных процессов, протекающих в канале линейного МГД-ускорителя / В.С. Славин, И.А. Кузоватов, А.В. Минаков // Вестник СибГАУ. – 2009. – № 1(22), ч.2. – с. 41-46.
86. Кузоватов, И.А. Влияние эффекта Холла на структуру токового слоя в канале линейного МГД-ускорителя. / И.А. Кузоватов, А.В. Минаков // Журнал Сибирского федерального университета. Математика и физика. – 2011. – Т.4. – с. 505-518.
87. Герцберг, Г. Спектры и строение двухатомных молекул: Пер. с англ. / Г. Герцберг ; М. Н. Флерова ; под ред. В. Н. Кондратьева. – М. : Изд-во иностр. лит., 1949. – 413 с.
88. Mathison, L. Electronic States and Potential Energy Diagram of the Iodine Molecule / L. Mathison, A.L.G. Ress // J. Chem. Phys. – 1956. – V.25, Iss.4. – Pp. 753-761.
89. Теренин, А.Н. Фотоника молекул красителей и родственных органических соединений / А.Н. Теренин. – Ленинград : Наука, 1967. – 616 с.
90. Таблицы физических величин. Справочник / Под ред. ак. И.К. Кикоина. – М. : Атомиздат, 1976. – 1008 с.
91. Месяц, Г.А. Импульсная энергетика и электроника / Г.А. Месяц. – М. : Наука, 2004. – 704 с.

92. Бессонов, Л.А. Теоретические основы электротехники. Электрические цепи / Л.А. Бессонов. – 12-е изд., исправ. и доп. – М. : Издательство Юрайт, 2016. – 701 с.
93. Verhulst, P.F. Notice sur la loi que la population poursuit dans son accroissement / P. F. Verhulst // Correspondance mathématique et physique. – 1838. – V.10. – Pp. 113-121.
94. Verhulst, P.F. Recherches mathématiques sur la loi d'accroissement de la population / P.F. Verhulst // Nouveaux Mémoires de l'Académie Royale des Sciences et Belles-Lettres de Bruxelles. – 1845. – V.18. – Pp.14-51.
95. Pearl, R. On the Rate of Growth of the Population of the United States since 1790 and its Mathematical Representation / R. Pearl, L. J. Reed // Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America. – 1920. – V.6, №6. – Pp. 275–288.
96. Моделирование нелинейной динамики глобальных процессов / И.А. Алешковский, А.В. Иванов, И.В. Ильин, А.А. Короновский, Л.М. Страхова, А.Д. Трубецков, Д.И. Трубецков, А.Е. Храмов ; Под. ред. И. В. Ильина, Д. И. Трубецкова. – М. : Издательство Московского университета, 2010. – 412 с.
97. Phuoc, T.X. Laser-induced spark ignition fundamental and applications / T.X. Phuoc // Optics and Lasers in Engineering. – 2006. – V.44, Iss.5. – Pp. 351-397.
98. Ireland, C.L.M. Gas breakdown by single, similar 40 ps-50 ns, 1·06  $\mu$ m laser pulses / C.L.M. Ireland // Journal of Physics D: Applied Physics. – 1974. – V.7, N.16. – L179.
99. Dewhurst, R.J. Comparative data on molecular gas breakdown thresholds in high laser-radiation fields / R.J. Dewhurst //Journal of Physics D: Applied Physics. – 1978. – V.11, N.16. – L191.
100. Бортник, И.М. Физические свойства и электрическая прочность элегаза / И.М. Бортник. – М.: Энергоатомиздат, 1988. – 80 с.
101. Тарасенко, В.Ф. Динамика ионизационных процессов в азоте, воздухе и SF<sub>6</sub> высокого давления при субнаносекундном пробое, инициируемом убегающи-

ми электронами / В. Ф. Тарасенко, Д. В. Белоплотов, М. И. Ломаев // Физика плазмы. – 2015. – Т. 41, № 10. – с. 902–917.

102. Сущинский, М.М. Вынужденное рассеяние света / М.М. Сущинский. – М: Наука, 1985. – 176 с.

103. Антонов, В.С. Водородный лазер вакуумного ультрафиолета в режиме частых повторений импульсов излучения / В.С. Антонов, И.Н. Князев, В.Г. Мовшев // Квантовая электроника. – 1975. – Т.2 №.6. – 1305-1307.