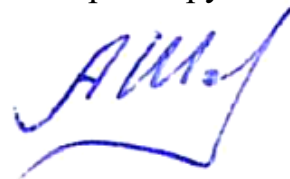


На правах рукописи



Шамшурин Алексей Валерьевич

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

1.3.6. Оптика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Красноярск – 2025

Работа выполнена в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Сибирский федеральный университет» (ФГАОУ ВО «Сибирский федеральный университет»)

Научный руководитель:

Слабко Виталий Васильевич

доктор физико-математических наук, профессор, ФГАОУ ВО «Сибирский федеральный университет», профессор базовой кафедры фотоники и лазерных технологий

Официальные оппоненты: Зилов Сергей Анатольевич

доктор физико-математических наук, доцент, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт лазерной физики Сибирского отделения Российской академии наук, заведующий лабораторией фотофизики конденсированных сред, ИФ ИЛФ СО РАН

Пичугин Константин Николаевич

кандидат физико-математических наук, Федеральное государственное бюджетное научное учреждение «Федеральный исследовательский центр «Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук», старший научный сотрудник лаборатории теории нелинейных процессов, ИФ СО РАН

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Сибирский государственный университет науки и технологий имени академика М.Ф. Решетнева»

Защита состоится «10» октября 2025 г. в 16.00 на заседании диссертационного совета **24.1.228.02** Федерального государственного бюджетного научного учреждения «Федеральный исследовательский центр «Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук», по адресу: 660036, г. Красноярск, Академгородок, 50/38.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Института физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук - обособленное подразделение ФИЦ КНЦ СО РАН и на официальном сайте <http://kirensky.ru/ru/councils/dis/>.

Автореферат разослан «__» июля 2025 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета,
д-р физ.-мат. наук, ст. науч. сотр.



Втюрин
Александр
Николаевич

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность

Работа лазера основана на сформулированном Эйнштейном принципе индуцированных светом переходов между возбужденным и основным состояниями. Немаловажным дополнением является также наличие инверсии населенностей, при которой населенность верхнего уровня должна быть больше населенности нижнего. При этом очевидно, что в термодинамически равновесных условиях взаимодействие излучения с атомно-молекулярной средой последнее невыполнимо. Однако использование термодинамически неравновесных условий позволяет получить инверсию населенностей, а следовательно, сформировать среду, способную усиливать резонансное переходу излучение. Тем не менее, большой интерес как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения представляет вопрос о возможности усиления света в термодинамически равновесной среде. В частности, большое значение может иметь возможность безинверсного усиления для решения проблемы генерации коротковолнового излучения, где обычные методы, основанные на инверсии населенности, недоступны или труднореализуемы. Кроме того, при усилении без инверсии населенностей возможно создание квантово-электронного устройства, способного преобразовывать излучение с низкой степенью упорядоченности (некогерентного) в упорядоченное (когерентное) при соответствующем уменьшении энтропии. Отмечено, что рассмотрению этой проблемы посвящено достаточно большое количество работ, в которых предлагаются различные схемы усиления без инверсии населенностей, обобщенных в обзорных статьях [1, 2], а также в более поздних публикациях. Сказанное выше в достаточной мере обосновывает **актуальность** проведенных исследований и их **практическую значимость**.

В основе данной диссертации лежит оригинальная идея, предложенная ранее в работах А. К. Попова и В. В. Слабко [3–5], о возможности усиления света в системе селективно ориентированных по состояниям двухуровневых дихроичных молекул во внешнем постоянном электрическом или электромагнитном поле. В работах указанных авторов было получено аналитическое решение для коэффициента усиления в стационарном случае в приближении малости соотношения между временем установления ориентационного равновесия τ_0 (временем ориентационной релаксации) и временем жизни возбужденного состояния τ_2^{eff} . Было показано, что усиление без инверсии возможно, но при достаточно жестком соотношении параметров, указанных выше, характерном значении пробойного напряжения ориентирующего поля и величинах

дипольных моментов в основном и возбужденном состояниях. Диссертация направлена на дальнейшее развитие этой концепции.

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 кинетических уравнений проводилось с использованием 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, населенностей 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 характеристики влияния фронта ориентирующего поля на поведение коэффициента усиления. Дана интерпретация этого явления.

Практическая значимость и использование результатов работы

Результаты, полученные в диссертационной работе, могут быть использованы при разработке новых типов лазеров коротковолнового диапазона, однонаправленных 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.

Научные положения, выносимые на защиту

1. Разработанная модель адекватно описывает процессы усиления пробного излучения в системе селективно по состояниям ориентированных внешним полем молекул, 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 ориентирующим 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 соискателя 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 «Перспективны – 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 [A1–A5], из них 3 входят в список ВАК и индексируются в базах данных Web of Science и/или Scopus [A2, A4, A5], 2 свидетельства о государственной регистрации программы для ЭВМ [A6, A7] и 7 работ в сборниках тезисов международных и всероссийских конференций [A8–A14].

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.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении представлена общая характеристика работы, обоснована актуальность выбранной темы диссертационного исследования, сформулированы цели и задачи, отражена научная новизна и практическая значимость полученных результатов, приведены научные положения, выносимые на защиту, личный вклад соискателя, а также апробация работы и структура диссертации.

Первая глава посвящена обзору существующих способов получения усиления света в отсутствие традиционной инверсии населенностей. Выделены основные направления, в которых прослеживается единая идея, положенная в основу усиления без инверсии. Сформулированы основные задачи и пути исследования по теме диссертации.

Во второй главе рассматривается теоретическое обоснование возможности безынверсного усиления света молекулами за счет их селективной ориентации по состояниям посредством наложения внешнего поля.

Рассматривается молекулярная среда аксиально-симметричных двухуровневых дихроичных молекул, расположенных в буферном газе или жидкости. Молекулы взаимодействуют с пробным (усиливаемым) полем \vec{E} и ориентирующим полем \vec{E}_0 .

Вероятность индуцированных переходов в электродипольном приближении определяется проекцией матричного элемента электродипольного момента перехода \vec{d}_{21} на направление вектора \vec{E} . Направление электродипольного перехода \vec{d}_{21} в молекулярных средах задается симметрией молекулы и связано с ее ориентацией в пространстве. Таким образом, ориентированные молекулы поглощают и испускают свет избирательно по поляризациям.

При воздействии на молекулярную среду \vec{E}_0 молекулы ориентируются в направлении, соответствующем минимуму потенциальной энергии их взаимодействия с полем $U(\Omega, E_0)$. Согласно [6], потенциальную энергию взаимодействия дихроичной молекулы с ориентирующим полем можно записать следующим образом:

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

где $\mu_i^{(j)}$ — i -я составляющая вектора постоянного дипольного момента, а $\beta_{ik}^{(j)}$ — составляющая тензора электрической поляризуемости молекулы, находящейся в j -м состоянии ($j=1$ — для молекул в основном состоянии, $j=2$ — для молекул в возбужденном состоянии). Первый член разложения (1) описывает

ориентацию нецентросимметричных молекул с постоянным дипольным моментом в поле E_0 (полярные молекулы). Второй член соответствует энергии взаимодействия наведённого полем E_0 дипольного момента, в данном случае оно может быть переменным (неполярные молекулы).

Выражение для поперечного сечения поглощения пробного излучения, распространяющегося через среду пробного электромагнитного поля \vec{E} , имеет вид:

$$\sigma = N 8 \pi \hbar \omega \frac{\tilde{B}}{c} F(\omega) = N \sigma_0 \cos^2 \theta,$$

где $\sigma_0 = ((8\pi)^2 / c \hbar) \omega |d_{21}|^2 F(\omega)$ — сечение поглощения-испускания для молекулы, \vec{d}_{21} которой ориентирован параллельно плоскости поляризации \vec{E} , \tilde{B} — неусредненный по ориентациям коэффициент Эйнштейна, $F(\omega)$ — частотный форм-фактор, ω — частота излучения, N — концентрация частиц, θ — угол между \vec{d}_{21} и \vec{E} .

Коэффициент усиления такой среды $\alpha > 0$ (поглощения $\alpha < 0$) определяется соотношением $I = I_0 \exp(\alpha z)$ (закон Бугера – Ламберта – Бера) и имеет вид:

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

Здесь $n_j = N_j / N$, N_j — населенности j -го состояния, обусловленные внешним источником накачки, тип которого здесь не конкретизируется, $f_j(\Omega, E_0)$ — нормированные на единицу функции статистического распределения ориентации молекул в j -м состоянии, $d\Omega = \sin \theta_0 d\theta_0 d\varphi$ — элемент телесного угла, θ_0 — угол между $\vec{\mu}_j$ и \vec{E}_0 .

Пусть, как и в [3–5], направление \vec{d}_{21} совпадает с направлением поляризуемости (постоянного дипольного момента для полярных молекул $\vec{\mu}_j$). Угол между направлениями \vec{d}_{21} и \vec{E} обозначен θ , а угол между направлениями $\vec{\mu}_j$ и \vec{E}_0 обозначен θ_0 . Тогда, для случая, если поляризуемость возбужденного состояния молекулы больше, чем основного ($\mu_2 > \mu_1$), очевидно оптимальным для усиления света является взаимное направление $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ (см. рис. 1а) и $\theta = \theta_0$. В обратном случае, когда поляризуемость основного состояния больше, чем возбужденного ($\mu_1 > \mu_2$), оптимальным будет $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ (см. рис. 1б) и $\theta = \pi/2 - \theta_0$.

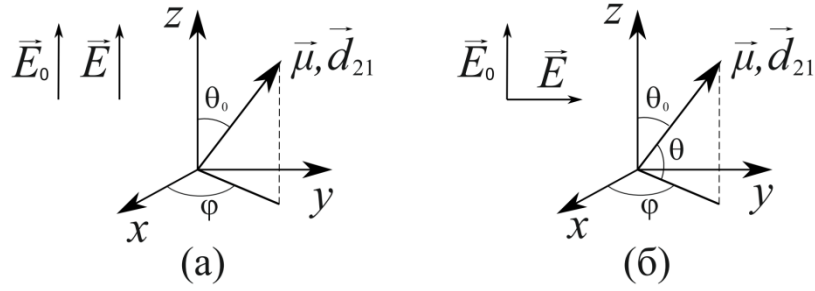


Рис. 1. Случаи взаимного направления ориентирующего \vec{E}_0 и пробного \vec{E} полей

Степень ориентации пропорциональна энергии взаимодействия молекулы с полем $U_j(\Omega, E_0)$ и обратно пропорциональна энергии теплового движения kT (k — постоянная Больцмана, T — температура), оказывающей дезориентирующее влияние. Таким образом, степень ориентации может различаться для молекул в основном и в возбужденном состояниях.

В работе введены безразмерные параметры ориентации электрического диполя (для полярных молекул) и эллипсоида поляризуемости молекулы (для неполярных молекул) [6]

$$p_j = \frac{\mu^{(j)} E_0}{kT}, \quad q_j = \frac{(\beta_{33}^{(j)} - \beta_{11}^{(j)})}{2kT} |E_0|^2, \quad (3)$$

где $\beta_{33}^{(j)}$ и $\beta_{11}^{(j)}$ — главные значения тензора поляризуемости молекулы, находящейся 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 ω_0 :

$$\beta^{(j)} = \frac{2}{\hbar} \sum_l \frac{\omega_{lj} |d_{lj}|^2}{\omega_{lj}^2 - \omega_0^2} = \frac{e^2}{m_e} \sum_l \frac{F_{lj}}{\omega_{lj}^2 - \omega_0^2}, \quad (4)$$

где ω_{lj} — частота перехода из состояния (j) в состояние (l) , d_{lj} — электродипольный 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.

В случае, если такая молекулярная среда состоит из полярных аксиально-симметричных молекул (обладающих постоянным дипольным моментом) целесообразно использовать электрическое ориентирующее поле \vec{E}_0 , и коэффициент усиления будет иметь вид:

- если $p_1 < p_2$:

$$\alpha = N\sigma_0 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi [n_2 f_2(p_2, \theta_0) - n_1 f_1(p_1, \theta_0)] \cos^2 \theta_0 \sin \theta_0 d\theta_0; \quad (5)$$

- если $p_2 < p_1$:

$$\alpha = N\sigma_0 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi [n_2 f_2(p_2, \theta_0) - n_1 f_1(p_1, \theta_0)] \sin^3 \theta_0 d\theta_0. \quad (6)$$

Для неполярных молекул выражения для вычисления коэффициента усиления аналогичны (5), (6). Отличительной особенностью ориентации неполярных молекул по сравнению с полярными является зависимость знака безразмерного параметра ориентации q_j как от строения молекулы, так и от соотношения частот ω_{ij} и ω_0 (см. (3), (4)).

В работах [3–5] функции распределения по ориентациям имели Больцмановский вид. Это ограничение применимо в приближении малости соотношения между временем установления ориентационного равновесия τ_0 и временем жизни возбужденного состояния τ_2^{eff} . В работах указанных авторов получено аналитическое решение для коэффициента усиления в стационарном случае. Это указывает на необходимость разработки модели, которая позволит определить значения функций распределения в уравнении (2).

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, где $n_1 + n_2 = 1$, и $U_1 < U_2$. В этом случае $n_1 > n_2$, инверсия населенностей отсутствует, и времена жизни основного τ_1^{eff} и возбужденного τ_2^{eff} уровней определяются следующим образом:

$$\frac{1}{\tau_1^{eff}} = W_{12}^{ind} + \tilde{W}, \quad \frac{1}{\tau_2^{eff}} = W_{21}^{ind} + W_{21}^{sp}, \quad \frac{\tau_2^{eff}}{\tau_1^{eff}} = \frac{n_2}{n_1}, \quad (7)$$

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 здесь не конкретизируется.

Для определения функций распределения f_1 и f_2 с учетом вероятностей переходов между уровнями введена, обоснована и используется система нестационарных кинетических уравнений:

$$\begin{cases} 6\tau_0 \frac{\partial f_1}{\partial t} - \frac{1}{\sin \theta_0} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left(\sin \theta_0 \left(\frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} + f_1 \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left(\frac{U_1(t)}{kT} \right) \right) \right) = -\frac{6\tau_0}{\tau_1^{eff}} f_1 + \frac{6\tau_0}{\tau_2^{eff}} f_2 \\ 6\tau_0 \frac{\partial f_2}{\partial t} - \frac{1}{\sin \theta_0} \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left(\sin \theta_0 \left(\frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} + f_2 \frac{\partial}{\partial \theta_0} \left(\frac{U_2(t)}{kT} \right) \right) \right) = -\frac{6\tau_0}{\tau_2^{eff}} f_2 + \frac{6\tau_0}{\tau_1^{eff}} f_1 \end{cases}, \quad (8)$$

где $\tau_0 = w/6kT$ — время установления ориентационного равновесия, w — константа, отвечающая за внутреннее трение в среде, состоящей из молекул участвующих в процессе и буферных молекул (растворитель, буферный газ) [6].

Система уравнений (8) дополнена граничными условиями (9), начальными условиями (10) и условием нормировки для функций распределения в начальный момент времени (11):

$$\left. \frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} \right|_{\theta_0=0} = \left. \frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} \right|_{\theta_0=0} = 0, \quad \left. \frac{\partial f_1}{\partial \theta_0} \right|_{\theta_0=\pi} = \left. \frac{\partial f_2}{\partial \theta_0} \right|_{\theta_0=\pi} = 0, \quad (9)$$

$$f_1(0, E_0) = g_1(\theta_0), \quad f_2(0, E_0) = g_2(\theta_0), \quad (10)$$

$$2\pi \int_0^\pi [g_1(\theta_0) + g_2(\theta_0)] \sin \theta_0 d\theta_0 = 1. \quad (11)$$

Уравнения системы (8) – (11) относятся к диффузионно-конвективным дифференциальным уравнениям. Для численного исследования данной системы в диссертации применяется оригинальный эффективный вычислительный алгоритм, основанный на методе экспоненциальной подгонки [7, 8, АЗ, А6, А7, А9].

Метод экспоненциальной подгонки является эффективным подходом численного решения краевых задач для диффузионно-конвективных уравнений. При построении экспоненциальной разностной схемы данный метод применяется как для аппроксимации диффузионно-конвективных дифференциальных выражений, так и для производной по времени, что приводит к построению консервативной разностной схемы. Подробное изложение и теоретическое обоснование предложенного метода моделирования данных процессов изложено в [АЗ].

Третья глава посвящена исследованию установившегося режима ориентации молекул во внешнем импульсном поле с учетом переходов между энергетическими уровнями. Рассмотрены случаи, при которых ориентирующее поле хоть и является импульсным, с целью повысить порог пробоя, но не учитываются переходные процессы. Основной задачей данной главы является исследование влияния соотношения времен жизни основного и возбужденного состояний и времени установления ориентационного равновесия, для того чтобы

прояснить вопрос о границах использования приближения принятого в работах [3–5].

В работе приняты следующие характерные величины. Значения параметров ориентации $p_1 = 2$, $p_2 = 8$ соответствуют полярным молекулам с дипольными моментами в основном состоянии $\mu_1 = 0,5D$ и в возбужденном состоянии $\mu_2 = 2D$, и напряженностью ориентирующего поля $E_0 = 5 \cdot 10^9$ В/м при температуре $T = 300K$ (см. (3)). Увеличение ориентирующего поля, соответствует увеличению параметра ориентации пропорционально. Также в расчетах используется следующее соотношение населенностей уровней $n_2/n_1 = \tau_2^{eff}/\tau_1^{eff} = 0,8$. Согласно [9, 10] время жизни возбужденного состояния для сравнительно хорошо разрешенных электродипольных переходов составляет $\tau_2^{eff} = 10^{-8} - 10^{-9} c$. Время установления ориентационного равновесия τ_0 зависит как от параметров буферной среды (жидкость, газ), так и от размеров и конфигурации молекул. Например, для малых органических молекул может составлять величину порядка $10^{-10} - 10^{-12} c$, для белковых макромолекул $10^{-6} - 10^{-8} c$ [9, 10].

В работе рассмотрена возможность усиления света в среде полярных молекул, ориентированных селективно по состояниям, путем наложения внешнего электрического поля. На рисунке 2 показано влияние соотношения τ_0/τ_2^{eff} на зависимость безразмерного коэффициента усиления $\alpha' = \alpha/N\sigma_0$ от параметра ориентации p_j . Расчеты проведены при соотношениях $\mu_2/\mu_1 = 4$, $\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$ (рис. 2а) и $\mu_1/\mu_2 = 4$, $\vec{E}_0 \perp \vec{E}$ (рис. 2б).

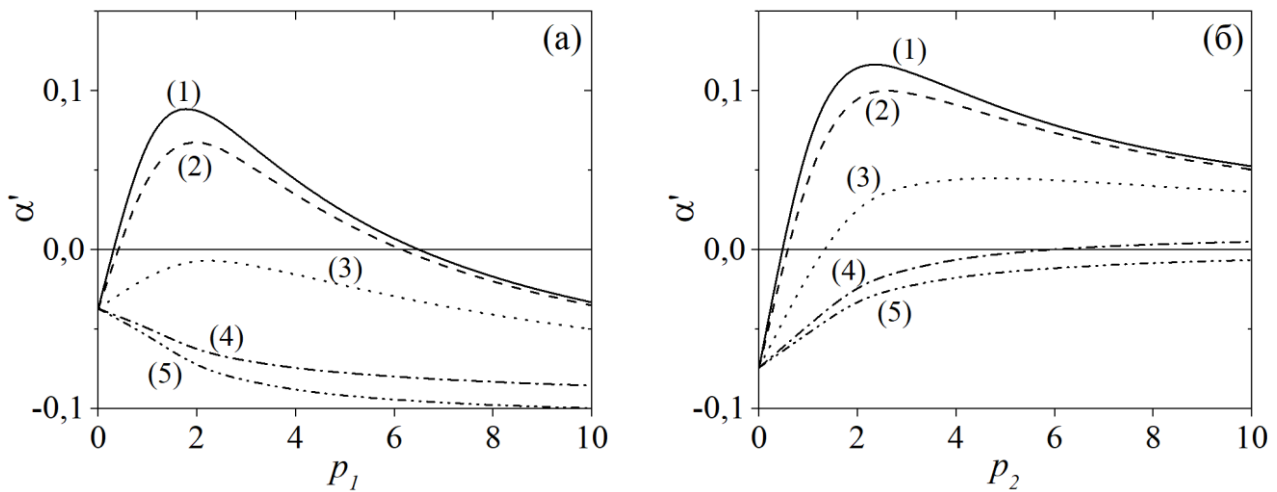


Рис. 2. Зависимости α' от параметра ориентации p_j , полученные при соотношении (а) $\mu_2/\mu_1 = 4$ и (б) $\mu_1/\mu_2 = 4$ при различных значениях τ_0/τ_2^{eff} : (1) — 0,01; (2) — 0,1; (3) — 1,0; (4) — 10,0; (5) — 100,0

В обоих случаях кривая 1 демонстрирует ситуацию, когда время установления ориентационного равновесия значительно меньше времени жизни возбужденного состояния ($\tau_0/\tau_2^{eff} = 0,01$), что соответствует приближению, принятому в работах [3–5], и полностью совпадает с аналитическими кривыми, приведенными в этих работах. Усиление наблюдается также при условии, когда время ориентационного равновесия в 10 раз меньше времени жизни возбужденного состояния (кривая 2). Отмечено, что в первом случае (рис. 2а) граница усиления проходит в достаточно узком диапазоне значений параметра ориентации. Поскольку в этом случае при больших значениях параметра ориентации молекулы в основном и возбужденном состояниях сильнее ориентированы вдоль поля и вероятности перехода из возбужденного состояния в основное и обратно становятся одинаковыми, что приводит к преобладанию поглощения над усилением. Во втором случае (рис. 2б) усиление достигается при достаточно больших значениях параметра ориентации, и, следовательно, величины ориентирующего поля. Отмечено, что во втором случае усиление, хотя и уменьшается, остается возможным при соотношении $\tau_0/\tau_j^{eff} \approx 1$. Это обусловлено тем, что с увеличением соотношения τ_0/τ_j^{eff} важно не столько увеличение вероятности перехода из возбужденного состояния в основное, сколько подавление перехода из основного состояния в возбужденное. [A1, A2, A8, A10]

Рассмотрена возможность усиления света в среде неполярных молекул, селективно ориентированных по состояниям с помощью наложения внешнего лазерного излучения. Выбор таких молекул позволяет существенно увеличить параметр ориентации благодаря более высокой напряженности предпробойного поля. Выполненные в работе исследования показывают аналогичные результаты [A5]. Очевидно, что приведенные в работе значения интенсивностей ориентирующего поля, как и напряженности электрического поля при ориентации электрическим (не лазерным) полем значительно превышают пробойные. Отмечено, что целесообразно рассматривать ориентацию молекул в поле импульсного лазерного излучения, использование которого позволяет получить параметры ориентации $|q_1|, |q_2| > 1$ в предпробойном режиме.

В четвертой главе анализируются переходные процессы, происходящие при включении ориентирующего поля.

Рассмотрен процесс усиления пробного поля на примере полярных молекул, находящихся в буферной среде, при воздействии ориентирующего импульсного поля прямоугольной формы. Предполагается, что время установления ориентационного равновесия много меньше времени жизни возбужденного

состояния ($\tau_0/\tau_2^{eff} = 0,01$). На рисунке 3 представлено взаимодействие импульсного поля \vec{E}_0 с системой полярных молекул, дипольный момент которых в возбужденном состоянии больше, чем в основном $\mu_2 > \mu_1$ (рис. 3а) и в случае, когда дипольный момент в основном состоянии больше, чем в возбужденном $\mu_1 > \mu_2$ (рис. 3б). Расчеты проведены при $\mu_2/\mu_1 = 4$, $\vec{E} \parallel \vec{E}_0$ (рис. 3а), $\mu_1/\mu_2 = 4$, $\vec{E} \perp \vec{E}_0$ (рис. 3б) при различных значениях напряженности ориентирующего поля (параметра ориентации).

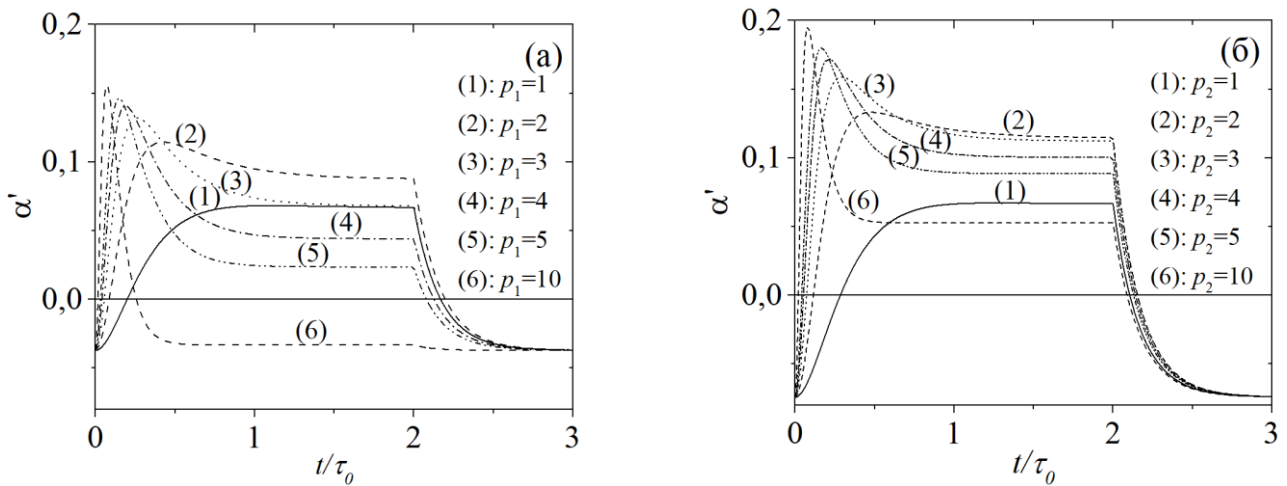


Рис. 3. Зависимости α' от времени t , полученные при соотношении (а) $\mu_2/\mu_1 = 4$ и (б) $\mu_1/\mu_2 = 4$ при различных значениях p_j : (а) (1) — $p_1 = 1$, $p_2 = 4$; (2) — $p_1 = 2$, $p_2 = 8$; (3) — $p_1 = 3$, $p_2 = 12$; (4) — $p_1 = 4$, $p_2 = 16$; (5) — $p_1 = 5$, $p_2 = 20$; (6) — $p_1 = 10$, $p_2 = 40$; (а) (1) — $p_1 = 4$, $p_2 = 1$; (2) — $p_1 = 8$, $p_2 = 2$; (3) — $p_1 = 12$, $p_2 = 3$; (4) — $p_1 = 16$, $p_2 = 4$; (5) — $p_1 = 20$, $p_2 = 5$; (6) — $p_1 = 40$, $p_2 = 10$

Отмечено, что при низких значениях параметров ориентации (ориентирующего поля) (кривая 1) изменение усиления носит достаточно тривиальный характер [A4]. При увеличении амплитуды импульсного \vec{E}_0 (кривые 2–6) наблюдается резкий выброс коэффициента усиления за время, близкое к моменту включения ориентирующего поля [A5, A12–A14]. В дальнейшем этот выброс исчезает, и усиление соответствует значению в стационарном поле (см. рис. 2).

На рисунке 4 приведена динамика изменения коэффициента усиления α' (кривая 1), являющегося разностью между усредненными по ориентациям — динамикой усиления $F_2(t)$ (кривая 2) (первый член в подынтегральном выражении (2)) и динамикой поглощения $F_1(t)$ (кривая 3) (второй член в подынтегральном выражении (2)) соответственно. Для удобства и демонстрации шкала

слева соответствует кривой 1, а шкала справа соответствует кривым 2 и 3. Расчеты соответствуют $p_1 = 2$, $p_2 = 8$ (рис. 4а) и $p_1 = 8$, $p_2 = 2$ (рис. 4б).

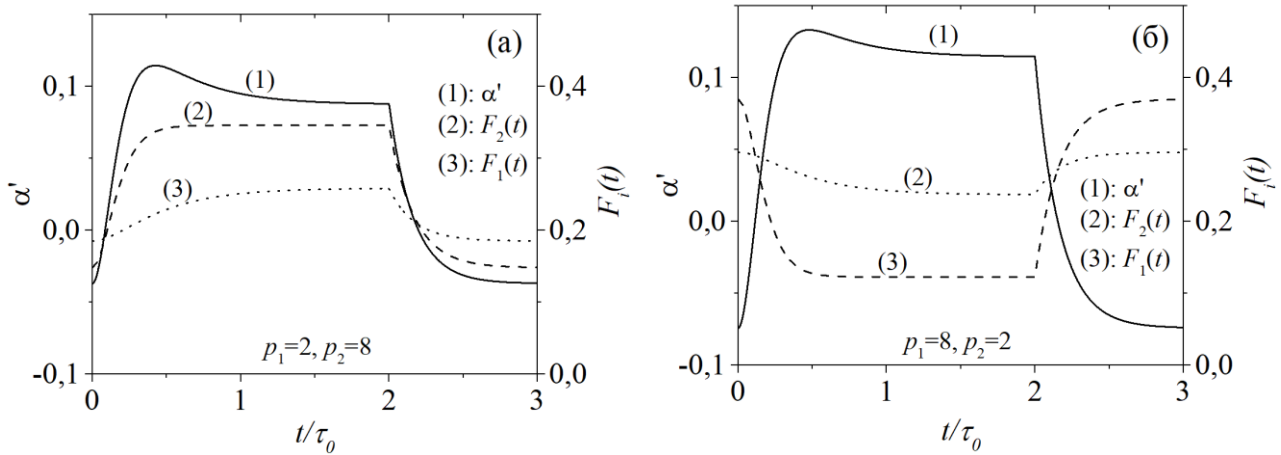


Рис. 4. Динамика изменения α' (кривая 1), динамика усиления $F_2(t)$ (кривая 2), динамика поглощения $F_1(t)$ (кривая 3), полученные при соотношении (а) $p_1 = 2$, $p_2 = 8$ и (б) $p_1 = 8$, $p_2 = 2$

Из рисунка 4 видно, что резкий выброс коэффициента усиления в начале импульса является следствием разных скоростей ориентации молекул в основном и возбужденном состоянии, обусловленных различными энергиями взаимодействия молекулы с ориентирующим полем. Скорость ориентации при включении поля значительно выше скорости установления ориентационного равновесия при его отключении. В работе введены понятия времени ориентации τ_e и скорости ориентации в поле v_e :

$$\tau_e^{(j)} = \tau_0 \left(\frac{kT}{\Delta U^{(j)}} \right) = \frac{w}{6 \cdot \Delta U^{(j)}}, \quad v_e^{(j)} = \frac{1}{\tau_e^{(j)}}. \quad (12)$$

Здесь $\Delta U^{(j)} = U_2^{(j)} - U_1^{(j)}$ характеризует коммутацию ориентирующего поля во времени, и имеет положительный знак в процессе включения поля и отрицательный знак при выключении, где $U_1^{(j)}$ — потенциальная энергия взаимодействия молекулы с ориентирующим полем в начальном положении, а $U_2^{(j)}$ — потенциальная энергия взаимодействия молекулы с ориентирующим полем в конечном положении.

Для описания нестационарных процессов взаимодействия молекулы при включении ориентирующего поля в диссертации воспользовались двумя моделями:

- аппроксимирующая функция $(1 - e^{-t/\tau_e})$, характерная для переходных процессов в электрических цепях:

$$\tilde{F}_{on}^{(j)}(t) = K_2^{(j)} - (K_2^{(j)} - K_1^{(j)})e^{-t/\tau_e^{(j)}}; \quad (13)$$

- логистическое уравнение Ферхюльста-Пирла (Verhulst-Pearl), используемое для моделирования процессов, связанных с популяционной динамикой:

$$\tilde{F}_{on}^{(j)}(t) = \frac{K_2^{(j)} \cdot K_1^{(j)}}{K_1^{(j)} + (K_2^{(j)} - K_1^{(j)}) \cdot e^{-t/\tau_e^{(j)}}}. \quad (14)$$

Здесь $K_1^{(j)} = \int_{\Omega} f_j(t=0, \Omega, E_0) d\Omega$ — состояние молекулы до включения ориентирующего поля в стационарном режиме (начальное состояние), $K_2^{(j)} = \int_{\Omega} f_j(t=\infty, \Omega, E_0) d\Omega$ — состояние молекулы при включенном ориентирующем поле в стационарном режиме (конечное состояние).

Обе модели удовлетворительно описывают временную зависимость коэффициента усиления. Таким образом, при включении ориентирующего поля в переходном процессе время ориентации в поле действительно зависит от энергии взаимодействия молекулы с ориентирующим полем. Также показано, что с выключением импульса ориентирующего поля молекулы приходят в равновесное состояние за время τ_0 , которое уже не зависит от величины поля.

Показано, что критерий эффективности усиления света $\tau_0 < \tau_2^{eff}$, в случае переходного режима, необходимо расширить следующим: $|\tau_e^{(2)} - \tau_e^{(1)}| < \tau_0 < \tau_2^{eff}$. Учет переходных процессов позволяет значительно увеличить усиление (в несколько раз), вплоть до смены поглощения на усиление.

Поскольку ориентирующее поле включается не мгновенно, в связи с переходными процессами, связанными с коммутацией электрического ориентирующего поля (ёмкостью и индуктивностью подводящих полей и электродов) в диссертации рассмотрено влияние переходных процессов в первый момент времени после включения ориентирующего поля. Пусть форма импульса при включении имеет следующий вид:

$$E_0(t) = E_0(1 - e^{-t/\tau_{imp}}), \quad (15)$$

где E_0 — пиковое значение ориентирующего поля, τ_{imp} — характерное время установления стационарного состояния ориентирующего поля (время коммутации).

Показано, что с ростом τ_{imp} , а, следовательно, временем включения ориентирующего поля, характер изменения коэффициента усиления сглаживается, и резкий выброс в начале импульса смягчается. Таким образом, критерий

эффективности усиления света справедлив, если время коммутации ориентирующего поля меньше, чем время ориентации в поле $\tau_{imp} < \tau_e^{(j)}$.

Рассмотрены переходные процессы при усилении света в системе неполярных молекул, ориентированных селективно по состояниям во внешнем поле лазерного излучения. Выбор лазерного поля в качестве ориентирующего позволяет значительно увеличить параметр ориентации благодаря большей интенсивности предпробойного поля, а также возможности увеличения параметров ориентации за счет подбора частоты ориентирующего поля относительно резонансных переходов в ориентируемой молекуле. Это возможно, если выход из резонанса частоты ориентирующего поля ω_0 относительно частоты электронного перехода молекулы ω_j имеет разный знак в основном и возбужденном состояниях (см. (3), (4)) следовательно, параметры ориентации в этих состояниях q_j будут иметь разный знак [A5]. В этом случае поле оказывает ориентирующее влияние на молекулы, находящиеся в одном из рабочих состояний (возбужденное или основное), и дезориентирующее — в другом.

Лазерное импульсное ориентирующее поле включается не мгновенно и имеет определенную длительность, поэтому рассмотрено влияние переходных процессов с учетом длительности импульса. Коммутация мощных лазерных полей с высокой крутизной фронта связана с особыми трудностями, поэтому в работе рассмотрены импульсы ориентирующего поля в форме Гаусса, что характерно для импульсов в режиме синхронизации мод, длительность которых может меняться в широких пределах от нано- до фемтосекунд:

$$E_0(t) = E_0 e^{-\left(\frac{t-t_0}{\tau_L}\right)^2}, \quad (16)$$

где E_0 — пиковое значение ориентирующего поля, t_0 — смещение максимума импульса, τ_L — характерная длительность импульса.

На рисунке 5 представлены зависимости безразмерного коэффициента усиления α' (сплошная линия, шкала слева) и форма ориентирующего поля (штриховая линия, шкала справа) от времени при различных значениях τ_L : (0) — прямоугольный импульс; (1) — $\tau_L = 0,6$; (2) — $\tau_L = 0,2$; (3) — $\tau_L = 0,05$. Расчеты приведены для среды с параметрами ориентации $q_1 = 2$, $q_2 = 8$ ($\vec{E}_0 \parallel \vec{E}$).

Показано, что при длительности импульса сравнимой с временем ориентации в поле переходные процессы успевают пройти и усиление стабилизируется. Уменьшение продолжительности импульса приводит к тому, что при определённой длительности усиление не достигает максимального значения.

Таким образом, еще одним критерием при ориентации в лазерном поле становится — длительность

импульса должна быть больше времени ориентации в поле: $\tau_L > \tau_e^{(j)}$. Или другими словами, помимо амплитуды импульса, определяющей интенсивность ориентирующего поля, необходимо позаботиться о том, чтобы энергия импульса была достаточной для завершения переходных процессов ориентации.

В диссертации представлены оценки предполагаемого эксперимента на примере ориентации молекулы йода (I_2) в поле лазерного излучения [A5]. Показано, что при использовании паров I_2 с концентрацией, значительно меньшей, чем концентрация буферного газа, интенсивность пробоя смеси при $\tau_L = 5$ пс порядка 10^{13} Вт/см², что на порядок ниже интенсивности требуемого ориентирующего поля для достижения положительного коэффициента усиления. В качестве буферного газа предложены благородные газы, водород, метан, воздух, а также SF_6 , что позволит увеличить пороговую интенсивность в несколько раз.

В заключение приведены 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, населенностей 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.

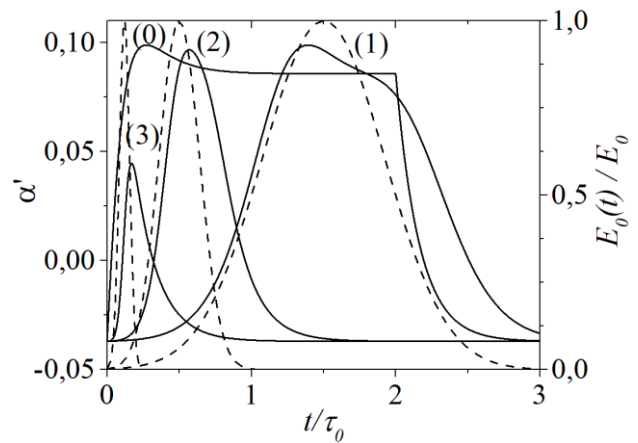


Рис. 5. Временная зависимость коэффициента усиления при различной длительности импульсного ориентирующего поля

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 [3–5], $\tau_0 \ll \tau_j^{eff}$ 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 состояниях 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: $\tau_L > \tau_e^{(j)}$.

ПУБЛИКАЦИИ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

А1. Кузоватов, И.А. Влияние времени установления ориентационного равновесия на эффект безынерсного усиления селективно по состояниям ориентированными молекулами / И.А. Кузоватов, В.В. Лацинский, В.В. Слабко, А.В. Шамшуринов // Журнал Сибирского федерального университета. Серия: Математика и физика. – 2011. – Т. 4, № 2. – С. 240-248.

А2. Слабко, В.В. О возможности безынерсного усиления света дихроичными молекулами во внешнем ориентирующем поле / В.В. Слабко, И.А. Кузоватов, А.В. Шамшуринов // Журнал технической физики. – 2012. – Т. 82, № 2. – С. 57-62.

А3. Кузоватов, И.А. Численное моделирование процесса ориентации двухуровневых молекул во внешнем поле при помощи метода экспоненциальной подгонки / И.А. Кузоватов, А.В. Шамшуринов // Сибирский журнал индустриальной математики. – 2012. – Т. 15, № 3 (51). – С. 45-57.

А4. Kuzovатов, I.A. Amplification of light by molecules with selectively oriented states in the pulsed electric field / I.A. Kuzovатов, V.V. Slabko, A.V. Shamshurin // Journal of Siberian Federal University. Mathematics & Physics. – 2016. – Т. 9, № 3. – С. 332-337.

А5. Шамшуринов, А.В. О безынерсном усилении света молекулами, селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения / А.В. Шамшуринов И.А. Кузоватов, А.С. Ципотан, В.В. Слабко // Квантовая электроника. – 2018. – Т. 48, № 11. – С. 1076-1082.

А6. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2011614295. Расчет статистического распределения ориентации молекул и коэффициента усиления для стационарного случая при помощи метода экспоненциальной подгонки: заявл. 11.04.2011, опублик. 31.05.2011 / И.А. Кузоватов, А.В. Шамшуринов.

А7. 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; опублик. 13.04.2012 / И.А. Кузоватов, В.В. Слабко, А.В. Шамшуринов.

А8. Шамшуринов, А.В. Безынерсное усиление света селективно по состояниям ориентированными молекулами / А.В. Шамшуринов // 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.

А9. Слабко, В.В. Безынерсионное усиление света селективно по состояниям ориентированными молекулами / И.А. Кузоватов, В.В. Слабко, А.В. Шамшури // 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).

А10. Белоглазова, И.А. Ориентированные диричные недипольные молекулы в поле внешнего постоянного излучения / И.А. Белоглазова, А.В. Шамшури // 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.

А11. Шамшури, А. В. Безынерсионное усиление света недипольными молекулами селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения / А. В. Шамшури, И. А. Кузоватов, В. В. Слабко // Моделирование неравновесных систем – 2018 : Материалы XXI Всероссийского семинара, Красноярск, 05–07 октября 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.

А12. Шамшури, А.В. Безынерсионное усиление света недипольными молекулами селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения / А.В. Шамшури, 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.

А13. Шамшури, А.В. О возможности усиления света селективно по состояниям ориентированными импульсным полем молекулами / А.В. Шамшури, 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.

А14. Шамшури́н, А.В. Безы́нверсное уси́ление света недипольными молекулами селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения / А.В. Шамшури́н, 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.

СПИСОК ЦИТИРУЕМОЙ 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. Попов А.К. О возможности безы́нверсного уси́ления 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).
4. Popov, A.K. Inversionless amplification by anisotropic molecules / A.K. Popov, V.V. Slabko // Opt. Lett. – 2005. – V. 30, N 13. – P. 1719-1721.
5. 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.
6. 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.
7. 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.
8. Дулан, Э. Равномерные численные методы решения задач с пограничным слоем: Пер. с англ. / Э. Дулан, Дж. Миллер, У. Шилдерс. – М. : Мир, 1983. – 200 с.
9. Бахшиев, Н.Г. Спектроскопия межмолекулярных взаимодействий / Н.Г. Бахшиев ; АН СССР. Отделение общей физики и астрономии. – Ленинград : Наука. Ленинградское отделение, 1972. – 263 с.
10. Теренин, А.Н. Фотоника молекул красителей и родственных органических соединений / А.Н. Теренин. – Ленинград : Наука, 1967. – 616 с.

Подписано в печать 25.06.2025. Печать плоская. Формат 60x84/16
Бумага офсетная. Усл. печ. л. 1,43. Тираж 100 экз. Заказ 24673.

Отпечатано Библиотечно-издательским комплексом
Сибирского федерального университета
660041, г. Красноярск, пр. Свободный, 82а
Тел.: (391) 206-26-16; <https://bik.sfu-kras.ru>
E-mail: publishing_house@sfu-kras.ru