

О безынерсном усилении света молекулами, селективно по состояниям ориентированными в поле лазерного излучения

А.В.Шамшурин, И.А.Кузоватов, А.С.Ципотан, В.В.Слабко

Рассмотрена возможность безынерсного усиления света недипольными молекулами, ориентированными селективно по состояниям, путем наложения внешнего лазерного излучения. Численно проанализированы различные варианты взаимного направления электрических векторов пробного и ориентирующего полей при конкретных соотношениях параметров ориентации основного и возбужденного состояний как в импульсном, так и в стационарном режиме. Показано, что наиболее перспективным является вариант, при котором знаки параметров ориентации основного и возбужденного состояний противоположны. Последнее может быть реализовано при подборе частоты ориентирующего поля.

Ключевые слова: безынерсное усиление света, ориентация, недипольные молекулы, экспоненциальная подгонка.

1. Введение

При анализе взаимодействия света, резонансного перехода между энергетическими уровнями, предполагается равенство вероятностей индуцированно-испущенного и поглощенного излучений, что для реализации квантового усиления света требует создания инверсии населенностей уровней. Инверсия населенности является, вообще говоря, лишь частным случаем, в котором мощность испускания преобладает над поглощением и, следовательно, происходит усиление света. 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 и рентгеновского излучений. Начиная со времени создания первого лазера, возможность безынерсного усиления света вызывает повышенный интерес исследователей и остается актуальной. Достаточно полный обзор публикаций, вышедших до 2000 года и посвященных безынерсному усилению, дан в работе [1]. По данной проблеме опубликовано множество работ, в которых предложены различные конкретные схемы усиления. Обращает на себя внимание группа публикаций, выполненных независимо разными авторами и посвященных подавлению резонансного поглощения за счет интерференции различных поглощающих каналов. Стоит отметить работы А.К.Попова [2, 3], О.А.Кочаровской [4, 5], С.Е.Харриса [6], В.Г.Архипкина [7, 8] и ряда других авторов, например работу [9]. Отметим, что авторы [10] экспериментально подтвердили основную идею, заложенную в перечисленных работах. Кроме того, можно отметить цикл статей Л.А.Ривлина [11–13], в которых сформулирована и обоснована концепция усиления гамма-излучения

в охлажденных ансамблях свободных ядер со скрытой инверсией, обусловленной эффектом Мёссбауэра, а также работы Н.П.Коноплевой и А.М.Тумайкина [14], предлагающих схему безынерсного усиления пробного поля в среде двухуровневых вырожденных атомов в присутствии магнитного поля. В работах [15–17] продемонстрирована возможность безынерсного усиления в трехуровневых системах различного типа.

Возможность безынерсного усиления света в системе молекул, селективно по состояниям ориентированных во внешнем постоянном поле, в приближении малости времени ориентации по сравнению с временем жизни возбужденного состояния была рассмотрена в работах [18, 19]. Было показано, что в постоянном ориентирующем поле (ОП) вряд ли удастся получить достаточную степень ориентации простых молекул, удовлетворяющую названному приближению, из-за низкого значения предпробойного ОП. Эти идеи впоследствии были развиты в работах [20–23], в которых, на основе связанной системы кинетических уравнений Больцмана для основного и возбужденного состояний, рассмотрена возможность безынерсного усиления света в системе дипольных молекул, селективно по состояниям ориентированных во внешнем как постоянном, так и импульсном ОП при произвольном соотношении времен ориентации и жизни возбужденного состояния. Показано, что степень селективной ориентации при импульсном ОП в ряде случаев может быть достаточной для безынерсного усиления.

В настоящей работе рассматривается возможность безынерсного усиления света в системе недипольных молекул, селективно по состояниям ориентированных во внешнем ОП лазерного излучения. Это позволяет значительно увеличить параметр ориентации благодаря большей напряженности предпробойного поля. Кроме того, рассмотрена возможность увеличения селективности по состояниям за счет квазирезонансного ориентирующего воздействия. Проведен численный анализ схем безынерсного усиления при различной взаимной направленности ОП и пробного поля, а также различных значений параметров ориентации основного и возбужденного состояний.

А.В.Шамшурин, И.А.Кузоватов, А.С.Ципотан, В.В.Слабко. Сибирский федеральный университет, Россия, 660041, Красноярск, Свободный просп., 79; e-mail: vslabko49@mail.ru

Поступила в редакцию 29 мая 2018 г., после доработки – 24 июля 2018 г.

2. Модели и методы исследования

При воздействии на молекулярную среду внешних ориентирующих полей E_0 молекулы ориентируются в направлении, соответствующем минимуму потенциальной энергии их взаимодействия с ОП [24, 25]. При этом направление ориентации определяется как направлением внешнего поля E_0 , так и симметрией молекулы. Степень ориентации среды в целом зависит от параметра ориентации, представляющего собой отношение энергии взаимодействия молекулы с полем U к энергии теплового движения kT , оказывающего дезориентирующее влияние. Естественно, что для молекул, находящихся в основном и в возбужденном состояниях, энергия U может быть различной, поэтому степень ориентации внешним ОП возбужденных и не возбужденных молекул может различаться. В этом случае вероятности индуцированных переходов с поглощением и усилением плоскополяризованного пробного поля E_0 могут быть также не равны. Таким образом, управляя степенью ориентации в основном и возбужденном состояниях, можно реализовать условия усиления света с определенной поляризацией в отсутствие инверсии населенностей [18, 19]. В настоящей работе мы рассматриваем селективную по состояниям ориентацию молекул в поле квазирезонансного лазерного излучения.

Потенциальная энергия взаимодействия неизотропно поляризуемой молекулы с электрическим полем E_0 в отсутствие постоянного дипольного момента определяется через компоненты тензора электрической поляризации молекулы, находящейся в j -м энергетическом состоянии (α_{ik}^j) [19, 24],

$$U_j = -\alpha_{ik}^j E_{ik}^* E_{0i} / 2. \quad (1)$$

Рассмотрим аксиально-симметричные молекулы и примем направление электродипольного момента перехода между основным и возбужденным состояниями совпадающим с направлением оси симметрии, которая составляет угол ϑ_0 с электрическим полем E_0 [18–20]. В этом случае функция распределения по ориентациям f_j неизотропно поляризуемой аксиально-симметричной молекулы с электрическим полем зависит только от угла ϑ_0 и, в отсутствие постоянного дипольного момента, определяется выражением

$$f_j(\Theta, E_0) = f_j(\vartheta_0, E_0) = A_j \exp[\pm q_j \cos^2 \vartheta_0]. \quad (2)$$

Здесь $A_j^{-1} = \int \exp[-U_j(\Omega, E_0) / kT] d\Omega$ – нормирующий множитель; T – температура; k – постоянная Больцмана; $d\Omega = \sin \vartheta d\vartheta d\varphi$ – элемент телесного угла; $q_j = (\alpha_{33}^j - \alpha_{11}^j) \times |E_0|^2 / (2kT)$ – безразмерные параметры ориентации эллипсоида поляризуемости молекулы; α_{33}^j и α_{11}^j – главные значения тензора поляризуемости молекулы, находящейся в j -м состоянии вдоль и поперек оси симметрии соответственно. Полагая $\alpha_{33}^j \gg \alpha_{11}^j$, компонента тензора поляризуемости молекулы α_{33}^j , находящейся в j -м электронном состоянии на частоте ОП ω_0 , может определяться выражением [26]

$$\alpha_{33}^j = \frac{e^2}{m} \sum_l \frac{F_{lj}}{\omega_{lj}^2 - \omega_0^2}. \quad (3)$$

Здесь ω_{lj} и F_{lj} – частота и сила осциллятора перехода из состояния j в состояние l ; e – заряд электрона; m – масса электрона.

Отличительной особенностью ориентации недипольных молекул по сравнению с дипольными является зависимость знака параметра ориентации q_j как от строения молекулы, так и от частоты ОП ω_0 . Так, для молекул, вытянутых вдоль оси симметрии (с положительной оптической анизотропией), $\alpha_{33}^j > \alpha_{11}^j$ и параметр q_j положителен при не слишком больших частотах ОП ($\omega_0 < \omega_{lj}$). Для дискообразных молекул (с отрицательной оптической анизотропией) $\alpha_{33}^j < \alpha_{11}^j$ и параметр $q_j < 0$ при $\omega_0 < \omega_{lj}$ [24, 25].

Известно, что пробойная напряженность импульсного ОП излучения на оптических частотах значительно выше, чем постоянного. Как было показано в [20, 21], параметр ориентации для дипольных молекул в рассматриваемых здесь схемах в постоянном ОП не может быть больше единицы даже при предпробойных величинах E_0 . Хотя в импульсных полях величина E_0 может быть увеличена на порядок [27], этого, как правило, недостаточно. В то же время параметр ориентации эллипсоида поляризуемости молекулы в поле импульсного лазерного излучения, величина которого ниже пробойной, может значительно превышать единицу (см. ссылки в работах [18, 19]).

Предполагаем, что частота ОП ω_0 лежит вдали от частоты перехода, на котором происходит усиление пробного поля E с частотой ω . Остановимся на двух случаях взаимной ориентации E_0 и E в зависимости от соотношения между q_1 и q_2 .

Следуя работам [18, 19], показатель усиления (поглощения) $\alpha > 0$ ($\alpha < 0$), определяющийся законом Бугера, для случая ориентированных во внешнем поле E_0 молекул и плоскополяризованного пробного излучения E будет иметь следующий вид:

$$\alpha = N\sigma_0 \int [n_2 f_2(\Omega, E_0) - n_1 f_1(\Omega, E_0)] \cos^2 \vartheta d\Omega. \quad (4)$$

Здесь $\sigma_0 = [(8\pi)^2 / (c\hbar)] \omega |d_{21}|^2 F(\omega)$ – сечение поглощения–испускания молекулы, электродипольный момент перехода которой ориентирован параллельно плоскости поляризации; d_{21} – матричный элемент электродипольного момента перехода в системе координат, связанной с молекулой; $F(\omega)$ – частотный форм-фактор; ω – частота пробного поля; ϑ – угол между направлением электродипольного момента перехода d_{21} и вектором электрического поля E_0 ; N – концентрация частиц; n_1 и n_2 – относительные населенности основного и возбужденного энергетических уровней ($n_1 + n_2 = 1$), обусловленные внешним источником накачки, тип которой здесь не конкретизируется; $d\Omega = \sin \vartheta d\vartheta d\varphi$ – элемент телесного угла; $f_1(\Omega, E_0)$ и $f_2(\Omega, E_0)$ – нормированные на единицу функции статистического распределения ориентации молекул в основном (1) и возбужденном (2) состояниях, определяющиеся энергией их взаимодействий $U(\Omega, E_0)$ с внешним электрическим ОП E_0 .

Пусть поляризуемость возбужденного состояния выше поляризуемости основного, $q_2 > q_1$, тогда оптимальной будет параллельная ориентация ориентирующего и усиливаемого (пробного) полей, $E \parallel E_0$. В этом случае коэффициент α ($\alpha > 0$ – усиление, $\alpha < 0$ – поглощение) будет иметь следующий вид:

$$\alpha = N\sigma_0 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi [n_2 A_2 \exp(q_2 \cos^2 \vartheta) - n_1 A_1 \exp(q_1 \cos^2 \vartheta)] \cos^2 \vartheta \sin \vartheta d\vartheta. \quad (5)$$

В обратном случае, когда $q_1 > q_2$, оптимальна ортогональная геометрия ориентирующего и пробного полей, $E \perp E_0$. При этом коэффициент усиления α выражается следующим образом:

$$\alpha = N\sigma_0 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi [n_2 A_2 \exp(q_2 \cos^2 \vartheta) - n_1 A_1 \exp(q_1 \cos^2 \vartheta)] \sin^3 \vartheta d\vartheta. \tag{6}$$

При наложении на среду ОП напряженности E_0 ориентация молекул описывается функцией распределения по ориентациям $f_j(\Omega, E_0)$, которая в общем случае определяется временами жизни τ_1^{eff} и τ_2^{eff} основного и возбужденного состояний соответственно, а также временем ориентационной релаксации τ_0 , зависящими как от параметров молекул, так и от параметров среды, в которую они помещены. Времена жизни основного и возбужденного состояний определяются следующим образом:

$$\frac{1}{\tau_1^{\text{eff}}} = w_{12}^{\text{ind}}, \quad \frac{1}{\tau_2^{\text{eff}}} = w_{21}^{\text{ind}} + w_{21}^{\text{sp}}, \quad \frac{\tau_2^{\text{eff}}}{\tau_1^{\text{eff}}} = \frac{n_2}{n_1}. \tag{7}$$

Здесь $w_{12}^{\text{ind}} = w_{21}^{\text{ind}}$ – вероятность индуцированных переходов, w_{21}^{sp} – спонтанных.

Используя (5) и (6), авторы работ [18, 19] получили аналитическое выражение для коэффициента усиления α через обобщенные функции Ланжевена второго порядка для стационарного случая в приближении $\tau_2^{\text{eff}} \gg \tau_0$. Естественно, что в оговоренном выше приближении $f_j(\Omega, E_0)$ имеют больцмановский вид, т. к. за время жизни возбужденного состояния молекулы большую часть времени находятся в термализованном состоянии. В нашей работе рассматривается нестационарный режим $E_0(t)$ при произвольном соотношении между τ_0 и τ_2^{eff} . Очевидно, что для такого рассмотрения необходимо использовать более сложную модель, основанную на системе кинетических уравнений.

Для определения функций распределения $f_1(\Omega, E_0)$ и $f_2(\Omega, E_0)$ с целью вычисления коэффициента усиления α , с учетом выражений (5), (6) используем систему нестационарных кинетических уравнений [22, 23]

$$\begin{aligned} 6\tau_0 \frac{\partial f_1}{\partial t} - \frac{1}{\sin \vartheta} \frac{\partial}{\partial \vartheta} \left\{ \sin \vartheta \left[\frac{\partial f_1}{\partial \vartheta} + f_1 \frac{\partial}{\partial \vartheta} \left(\frac{U_1(t)}{kT} \right) \right] \right\} \\ = -\frac{6\tau_0}{\tau_1^{\text{eff}}} f_1 + \frac{6\tau_0}{\tau_2^{\text{eff}}} f_2, \\ 6\tau_0 \frac{\partial f_2}{\partial t} - \frac{1}{\sin \vartheta} \frac{\partial}{\partial \vartheta} \left\{ \sin \vartheta \left[\frac{\partial f_2}{\partial \vartheta} + f_2 \frac{\partial}{\partial \vartheta} \left(\frac{U_2(t)}{kT} \right) \right] \right\} \\ = -\frac{6\tau_0}{\tau_2^{\text{eff}}} f_2 + \frac{6\tau_0}{\tau_1^{\text{eff}}} f_1. \end{aligned} \tag{8}$$

Дополним систему (8) граничными условиями (9) и начальными условиями (10), а также условием нормировки для функций распределения в начальный момент (11):

$$\left. \frac{\partial f_1}{\partial \vartheta} \right|_{\vartheta=0} = \left. \frac{\partial f_2}{\partial \vartheta} \right|_{\vartheta=0} = 0, \quad \left. \frac{\partial f_1}{\partial \vartheta} \right|_{\vartheta=\pi} = \left. \frac{\partial f_2}{\partial \vartheta} \right|_{\vartheta=\pi} = 0, \tag{9}$$

$$f_1(0, E_0) = g_1(\vartheta), \quad f_2(0, E_0) = g_2(\vartheta), \tag{10}$$

$$2\pi \int_0^\pi [g_1(\vartheta) + g_2(\vartheta)] \sin \vartheta d\vartheta = 1. \tag{11}$$

Для численного анализа системы (8)–(11) применяется оригинальный эффективный вычислительный алгоритм, который основан на методе экспоненциальной подгонки [28, 29] и реализован при помощи явной схемы бегущего счета:

$$\begin{aligned} \frac{f_{1i}^{j+1} \exp[(\eta_1 + \eta_2)\tau] - f_{1i}^j}{\exp[(\eta_1 + \eta_2)\tau] - 1} (\eta_1 + \eta_2) \sin \vartheta_i - (\eta_1 + \eta_2) f_{1i}^j \sin \vartheta_i \\ + \frac{kT}{W} L_{1h} f_{1h}^j = -\eta_1 f_{1i}^j \sin \vartheta_i + \eta_2 f_{2i}^j \sin \vartheta_i, \\ \frac{f_{2i}^{j+1} \exp[(\eta_1 + \eta_2)\tau] - f_{2i}^j}{\exp[(\eta_1 + \eta_2)\tau] - 1} (\eta_1 + \eta_2) \sin \vartheta_i - (\eta_1 + \eta_2) f_{2i}^j \sin \vartheta_i \\ + \frac{kT}{W} L_{2h} f_{2h}^j = -\eta_2 f_{2i}^j \sin \vartheta_i + \eta_1 f_{1i}^j \sin \vartheta_i. \end{aligned} \tag{12}$$

Здесь $\eta_1 = 6\tau_0/\tau_1^{\text{eff}}$; $\eta_2 = 6\tau_0/\tau_2^{\text{eff}}$; L_{1h} , L_{2h} – экспоненциальные разностные операторы [22].

При построении экспоненциальной разностной схемы (12) метод экспоненциальной подгонки применялся при аппроксимации дифференциальных выражений как по пространственной переменной, так и по времени. Доказана условная устойчивость и монотонность построенной схемы (12). Условие устойчивости вследствие быстроты протекания физических процессов лазерной генерации не является обременительным.

Для решения исходной системы (8)–(11) справедливо распространение условия нормировки (11) на любой момент времени t :

$$2\pi \int_0^\pi [f_1(t, \vartheta) + f_2(t, \vartheta)] \sin \vartheta d\vartheta = 1. \tag{13}$$

Одним из важнейших аспектов численного моделирования является консервативность применяемых разностных схем. Экспоненциальная разностная схема (12) обладает свойством консервативности, а именно, для численного решения схемы (12) справедливо выполнение разностного аналога условия нормировки (13) для любого расчетного слоя по времени $t = t^j$:

$$\sum_{i=0}^n f_{1i}^j \sin \vartheta_i + \sum_{i=0}^n f_{2i}^j \sin \vartheta_i = \frac{1}{2\pi}.$$

Развернутое изложение и теоретическое обоснование данного вычислительного алгоритма для численного исследования систем кинетических уравнений дано в работе [22].

3. Стационарный случай

Основной целью исследования в стационарном случае является оценка влияния отношения времени ориентационного равновесия и времени жизни возбужденного состояния, $\tau_0/\tau_2^{\text{eff}}$. Энергия взаимодействия U_j в (8) не зависит от времени, и производную по времени необходимо принять равной нулю, а также дополнить систему (8) граничными условиями

$$\left. \frac{\partial f_1}{\partial \vartheta} \right|_{\vartheta=0} = \left. \frac{\partial f_2}{\partial \vartheta} \right|_{\vartheta=0} = 0, \quad \left. \frac{\partial f_1}{\partial \vartheta} \right|_{\vartheta=\pi} = \left. \frac{\partial f_2}{\partial \vartheta} \right|_{\vartheta=\pi} = 0 \quad (14)$$

и условием нормировки для функций распределения в начальный момент [20, 21]

$$2\pi \int_0^\pi [f_1(\vartheta) + f_2(\vartheta)] \sin \vartheta d\vartheta = 1. \quad (15)$$

При решении системы (8), (14), (15) для молекул, вытянутых вдоль оси симметрии, при $q_2 > q_1 > 0$ и с учетом соотношения (5) зависимости безразмерного коэффициента усиления α' ($\alpha' = \alpha/N\sigma_0$) от параметра ориентации $|q_1|$ будут описываться кривыми, приведенными на рис.1.а. Для дискообразных молекул, $q_1 < q_2 < 0$, зависимости коэффициента α' от параметра $|q_2|$ представлены на рис.1.б. При этом, как упоминалось выше, $\mathbf{E} \parallel \mathbf{E}_0$ является оптимальной взаимной ориентацией полей.

Как видно из рис.1.а, для вытянутых вдоль оси симметрии молекул усиление сменяет поглощение в узкой области в приближении $\tau_2^{\text{eff}} \gg \tau_0$ (кривая 1), описанной в работах [18, 19]. Также показано, что даже при $\tau_2^{\text{eff}} > \tau_0$ (кривая 2) можно добиться эффекта усиления, что не накладывает столь жестких ограничений, как в работах [18, 19]. В случае $\tau_2^{\text{eff}} \leq \tau_0$ (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 рис.1.б, для дискообразных молекул усиление сменяет поглощение в широком диапазоне. Действительно, ось симметрии молекулы направлена ортогонально ОП. Качественно пояснить ситуацию можно следующим образом: при больших значениях q_1 все молекулы в основном состоянии оказываются полностью ориентированными так, что проекция электродипольного момента перехода, параллельного оси симметрии, на направление пробного поля \mathbf{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 \mathbf{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.

Аналогичная ситуация наблюдается для $q_1 > q_2 > 0$ и $q_2 < q_1 < 0$ при ортогональной ($\mathbf{E} \perp \mathbf{E}_0$) геометрии ориентирующего и усиливаемого полей.

Наибольший интерес может представлять вариант, при котором знак параметра q_1 различен в основном и в возбужденном состояниях. Это возможно, если выход из

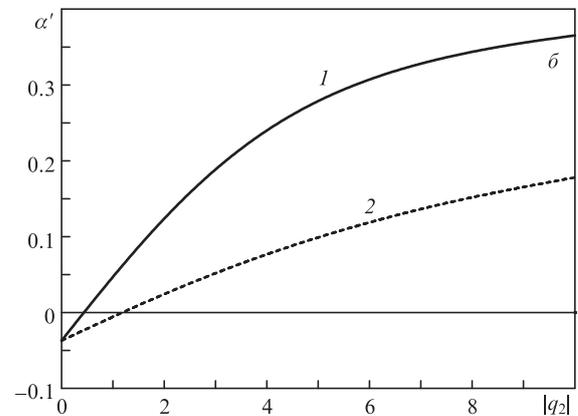
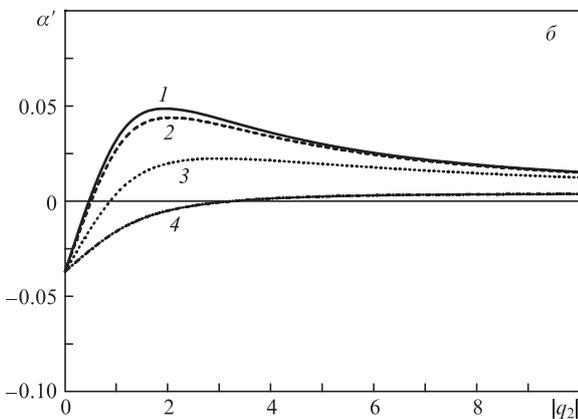
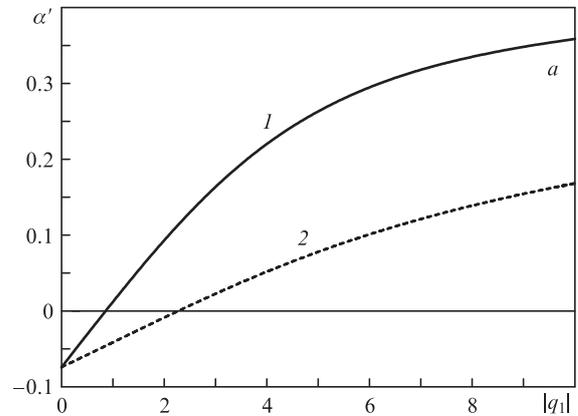
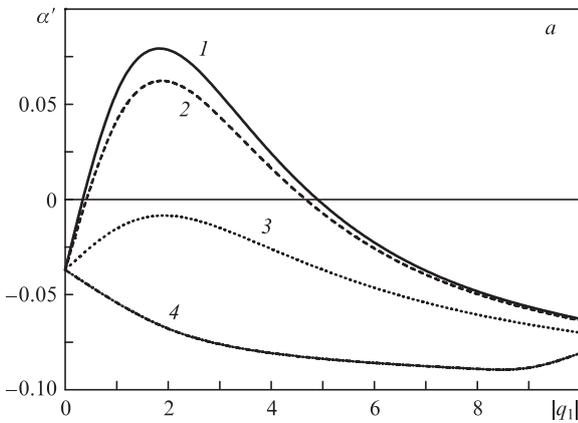


Рис.1. Зависимости безразмерного коэффициента α' от параметра ориентации $|q_j|$, полученные при $\mathbf{E} \parallel \mathbf{E}_0$ для $q_2 > q_1 > 0$, $|q_2|/|q_1| = 4$ (а) и $q_1 < q_2 < 0$, $|q_1|/|q_2| = 4$ (б). Расчеты проведены при $n_2/n_1 = 0.8$ для $\tau_0/\tau_2^{\text{eff}} = 0.01$ (1), 0.1 (2), 1.0 (3) и 10.0 (4).

Рис.2. Зависимости безразмерного коэффициента α' от параметра ориентации $|q_j|$, полученные при $\mathbf{E} \perp \mathbf{E}_0$ для $0 > q_2 = -q_1$ (а) и при $\mathbf{E} \parallel \mathbf{E}_0$ для $0 > q_1 = -q_2$ (б). Расчеты проведены при $n_2/n_1 = 0.8$ для $\tau_0/\tau_2^{\text{eff}} = 0.01$ (1) и 1.0 (2).

резонанса частоты ОП ω_0 относительно электронного перехода молекулы ω_{ij} имеет разный знак в состояниях 1 и 2 (см. выражение (3)). Действительно, если при возбуждении молекулы в состояние 2 частота перехода между рабочим энергетическим уровнем 2 и любым другим возбужденным уровнем j удовлетворяет условию $\omega_{ij} < \omega_0$, а частоты переходов ω_{ij} , $\omega_{12} > \omega_0$, то $q_2 < 0 < q_1$ для вытянутых молекул и $q_2 > 0 > q_1$ для дискообразных. В этом случае ОП оказывает ориентирующее влияние на молекулы, находящиеся в одном из рабочих состояний (2 или 1), и дезориентирующее – в другом.

На рис.2,*a* представлены зависимости безразмерного коэффициента α' от q_1 для $q_1 > 0$, $q_2 < 0$, $|q_1| = |q_2|$ при $E \perp E_0$ (см. выражение (6)), на рис.2,*b* – аналогичные зависимости от q_2 для $q_1 < 0$, $q_2 > 0$, $|q_1| = |q_2|$ при $E \parallel E_0$ (см. выражение (5)).

Как видно из рис.2, усиления можно добиться в широком диапазоне значений q_j . Отметим, что изображенные на нем зависимости говорят о влиянии частоты ОП ω_0 на усиление и указывают на существенное преимущество такой схемы при реализации безынервного усиления.

4. Нестационарный случай

Как будет показано ниже, при характерных величинах электродипольных моментов переходов молекул значения q_j могут существенно превышать единицу для ОП лазерного излучения 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 τ_2^{eff} .

Следующий вычислительный эксперимент проведен для исследования нестационарной системы (8) при воздействии импульсного лазерного ОП E_0 (см. выражение (2)) прямоугольной формы. Как отмечалось выше, при условии, когда поляризуемость возбужденного состояния больше поляризуемости основного ($q_2 > q_1$), оптимальной будет параллельная ориентация ориентирующего и усиливаемого полей, $E \parallel E_0$. На рис.3 представлены зависимости безразмерного коэффициента усиления α' (см. выражение (5)) при воздействии импульсного ОП E_0 от времени для молекул, как вытянутых вдоль оси симметрии ($q_2 > q_1 > 0$, кривая 1), так и дискообразных ($q_1 < q_2 < 0$, кривая 2).

Как видно из рис.3, безынервное усиление достигается за время порядка времени ориентации. Резкий выброс

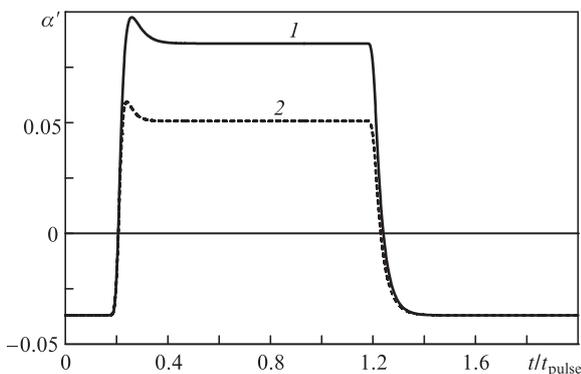


Рис.3. Влияние параметра ориентации на коэффициент усиления при $E \parallel E_0$. Расчеты проведены при $n_2/n_1 = 0.8$, $\tau_0/\tau_2^{\text{eff}} = 0.01$ для $q_2 > q_1 > 0$ ($q_1 = 2.0$, $q_2 = 8.0$) (1) и $q_1 < q_2 < 0$ ($q_1 = -8.0$, $q_2 = -2.0$) (2).

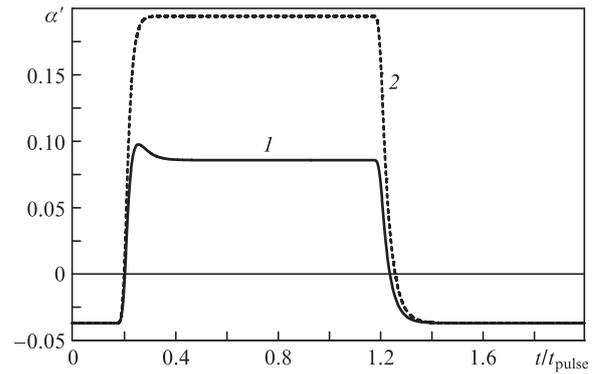


Рис.4. Влияние параметра ориентации на коэффициент усиления при $E \parallel E_0$. Расчеты проведены при $n_2/n_1 = 0.8$, $\tau_0/\tau_2^{\text{eff}} = 0.01$ для $q_2 > q_1 > 0$ ($q_1 = 2.0$, $q_2 = 8.0$) (1) и $q_2 > q_1 = 0$ ($q_1 = 0$, $q_2 = 8.0$) (2).

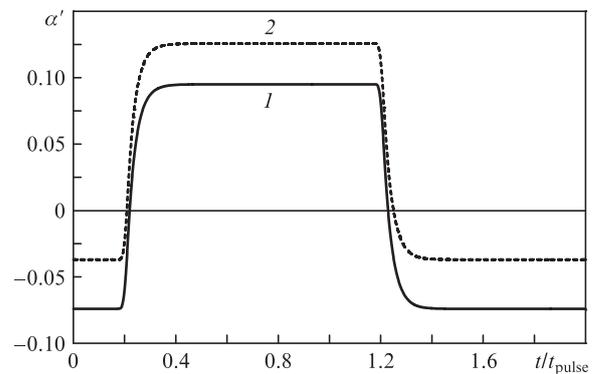


Рис.5. Влияние параметра ориентации на коэффициент усиления. Расчеты проведены при $n_2/n_1 = 0.8$, $\tau_0/\tau_2^{\text{eff}} = 0.01$ для $q_1 = 2.0$, $q_2 = -2.0$, $E \perp E_0$ (1) и $q_1 = -2.0$, $q_2 = 2.0$, $E \parallel E_0$ (2).

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. Это легко проверить, приняв параметр $q_1 = 0$ (рис.4).

На рис.5 продемонстрирована зависимость безразмерного коэффициента усиления α' (см. выражения (5), (6)) при воздействии импульсного ОП E_0 от времени в случае, когда знак параметра q_j различен в основном и в возбужденном состояниях.

Как видно из рис.5, резкий скачок коэффициента усиления в момент включения ОП отсутствует. Это связано с тем, что в данном примере $|q_2| = |q_1|$ и равновесные функции распределения по ориентациям достигаются через одинаковые промежутки времени.

5. Обсуждение результатов и оценки

Приведенное выше рассмотрение позволяет провести оценки условий для реализации безынервного усиления на примере электронного перехода молекулы иода I_2 , достаточно хорошо изученной и имеющей электронные переходы в видимом диапазоне [30, 31]. На рис.6 приведена схема трех нижних электронных уровней из работы [32].

Выражение (3) позволяет оценить значения компонент тензора поляризуемости молекулы, находящейся в

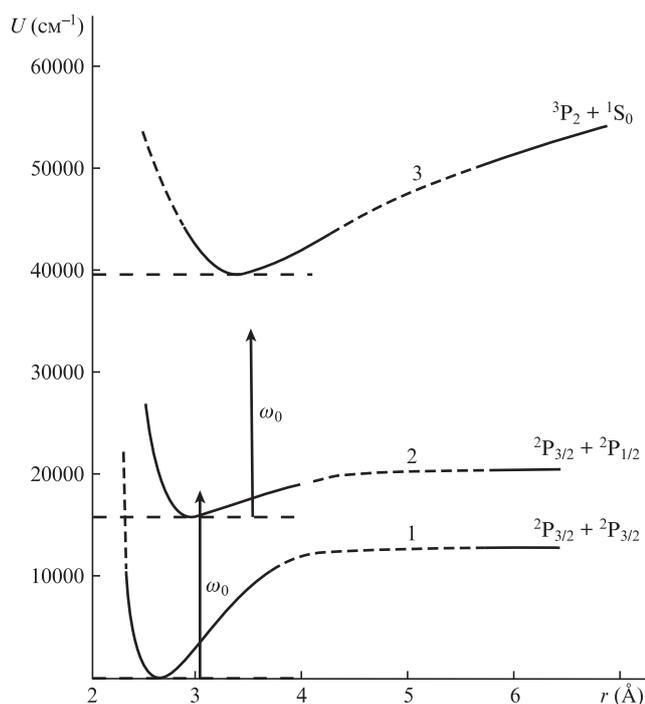


Рис.6. Диаграмма уровней потенциальной энергии для молекулы I_2 [32]; U – потенциальная энергия, r – межатомное расстояние.

состояниях 1 и 2, на которых предполагается провести оценки возможности безынерсного усиления. При этом состояние 1 является основным состоянием, а состояние 2 – возбужденным рабочим состоянием.

Рассмотрим наиболее удобный для эксперимента вариант, в котором ОП имеет одинаковую частоту ω_0 , равную частоте излучения второй гармоники неодимового лазера с длиной волны $\lambda = 0.53$ мкм. В этом случае, как видно из рис.6, частота ОП 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, что дает преимущество для усиления по сравнению со случаем, когда параметры ориентации q_j имеют одинаковый знак (см. рис.2). Характерные значения компонент тензора поляризуемости молекул при большом выходе из резонанса (нерезонансный случай) составляет $\sim 10^{-24}$ см³ [26].

Используя выражение (3), можно получить оценку квазирезонансного значения тензора поляризуемости молекулы I_2 в состояниях 1 и 2. Принимая значения F_{ij} на переходах 1–2 и 2–3 одинаковыми и равными 0.5, получим квазирезонансные значения $\alpha_{33}^{(1)} = -3.50 \times 10^{-23}$ см³, $\alpha_{33}^{(2)} = 1.82 \times 10^{-23}$ см³, которые на порядок выше нерезонансных. Тогда для параметра ориентации, согласно (2), при $T = 300$ К $q_1 = -I_1 \cdot 3.54 \times 10^{-19}$, $q_2 = I_2 \cdot 1.84 \times 10^{-19}$, следовательно, для $|q_1|, |q_2| > 1$ минимальные интенсивности ОП таковы: $I_1 = 2.82 \times 10^{11}$ Вт/см², $I_2 = 5.43 \times 10^{11}$ Вт/см². Очевидно, что интенсивность ОП должна быть меньше порога пробоя. Для оценок воспользуемся работами [33–35], в которых приведены данные о пороге пробоя ряда молекулярных и атомарных газов. Так, при длительности импульса лазерного излучения $\tau_p = 50$ пс и давлении, близком к атмосферному, пороговая интенсивность пробоя в этих газах составляет $\sim 10^{14}$ Вт/см², при этом она уменьшается как $1/\tau_p^{1/2}$. Тогда при использовании паров I_2 с концентрацией, значительно меньшей концентрации буферного

газа, можно полагать, что интенсивность пробоя смеси при $\tau_p = 5$ нс близка к 10^{13} Вт/см². Это более чем на порядок превышает интенсивность ОП, требуемую для эксперимента при использовании как пико-, так и наносекундных импульсов ОП. Отметим, что интенсивность ОП может быть понижена на 1–2 порядка при использовании перестраиваемого по частоте ориентирующего излучения. Естественно, что при этом значительно усложняются требования к экспериментальной установке.

Обсуждаемый вариант проведения эксперимента удобен тем, что позволяет использовать стоксову компоненту вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) ОП 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 см⁻¹ [36]. Учитывая достаточно высокую интенсивность ОП, 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.

6. Заключение

Приведенные расчеты, соображения и оценки позволяют сделать вывод о возможности безынерсного 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 [18, 19] жесткое ограничение на выбор молекул, $\tau_2^{\text{eff}} \gg \tau_0$, снимается, и это позволяет расширить класс молекул, которые могут быть использованы, в том числе возможно использование белковых макромолекул.

В случае оптической ориентации анизотропия поляризуемости ($\alpha_{33}^i - \alpha_{11}^i$) составляет $\sim 10^{-24}$ см³ даже при выходах из резонанса, $\omega_{ij} - \omega_0 \approx \omega_0$. При нормальных температурах ($T \approx 300$ К) параметр оптической ориентации q_j может достигать ~ 1 при интенсивности ОП ниже пробойной. Особо необходимо выделить то, что величина q_j может быть значительно увеличена с приближением частоты ω_0 к частотам оптических переходов, а кроме того, подбором частоты ω_0 можно реализовать условия, в которых параметры ориентации в основном и возбужденном состояниях имеют разные знаки. Последнее позволяет получить безынерсное усиление при меньших значениях ОП и расширяет класс молекулярных соединений, которые можно рассматривать в качестве объектов экспериментальных исследований.

Очевидно, что приведенные выше оценки для паров молекул I_2 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 [37] либо его аналоги. Действительно, с помощью квазирезонансной ориентации верхнего возбужденного состояния может быть реализована генерация на тех переходах, на которых генера-

ция до сих пор не наблюдалась, либо улучшены условия генерации на уже известных переходах.

В.В.Слабко благодарен за поддержку Министерству образования и науки Российской Федерации (грант №3.6341.2017/ВУ).

- Mompart J., Corbalan R. *J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt.*, **2**, R7-R24 (2000).
- Попова Т.Я., Попов А.К., Раутиан С.Г., Феоктистов А.А. *ЖЭТФ*, **57**, 444 (1969) [*Sov. Phys. JETP*, **30** (2), 243 (1970)].
- Попова Т.Я., Попов А.К., Раутиан С.Г., Соколовский Р.И. *ЖЭТФ*, **57**, 850 (1969) [*Sov. Phys. JETP*, **30** (3), 466 (1970)].
- Кочаровская О.А., Ханин Я.И. *Письма в ЖЭТФ*, **48** (11), 581 (1988).
- Kocharovskaya O. *Phys. Rep.*, **219** (3–6), 175 (1992).
- Harris S.E. *Phys. Rev. Lett.*, **62**, 1033 (1989).
- Arkhipkin V.G., Heller Yu.I. *Phys. Lett. A*, **98** (1–2), 12 (1983).
- Архипкин В.Г., Минакова Е.Н. *Квантовая электроника*, **22** (8), 835 (1995) [*Quantum Electron.*, **25** (8), 804 (1995)].
- Bhattacharjee A., Sanyal S., Dastidar K.R. *J. Mol. Spectrosc.*, **232**, 264 (2005).
- Zibrov A.S., Lukin M.D., Nikonov D.E., Hollberg L., Scully M.O., Velichansky V.L., Robinson H.G. *Phys. Rev. Lett.*, **75** (8), 1499 (1995).
- Ривлин Л.А. *Квантовая электроника*, **19** (5), 513 (1992) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **22** (5), 471 (1992)].
- Ривлин Л.А. *Квантовая электроника*, **26** (2), 122 (1999) [*Quantum Electron.*, **29** (2), 122 (1999)].
- Ривлин Л.А. *Квантовая электроника*, **37** (8), 723 (2007) [*Quantum Electron.*, **37** (8), 723 (2007)].
- Коноплева Н.П., Тумайкин А.М. *Квантовая электроника*, **28** (2), 110 (1999) [*Quantum Electron.*, **29** (8), 667 (1999)].
- Kozlov V.V., Rostovtsev Y., Scully M.O. *Phys. Rev. A*, **74** (6), 063829 (2006).
- Kilin S.Ya., Karale K.T., Scully M.O. *Phys. Rev. Lett.*, **100** (17), 173601 (2008).
- Svidzinsky A.A., Yuan L., Scully M.O. *New J. Phys.*, **15**, 053044 (2013).
- Ропов А.К., Slabko V.V. *Opt. Lett.*, **30** (13), 1719 (2005).
- Ропов А.К., Slabko V.V. *J. Phys. B*, **38** (11), 1787 (2005).
- Кузоватов И.А., Лашинский В.В., Слабко В.В., Шамшури А.В. *Журн. СВУ. Сер. Математика и физика*, **4** (2), 240 (2011).
- Слабко В.В., Кузоватов И.А., Шамшури А.В. *ЖТФ*, **82** (2), 57 (2012).
- Кузоватов И.А., Шамшури А.В. *Сиб. журн. индустр. матем.*, **15** (3), 45 (2012).
- Kuzovatov I.A., Slabko V.V., Shamshurin A.V. *J. Sib. FU Mathem. Phys.*, **9** (3), 332 (2016).
- Бахшиев Н.Г. *Спектроскопия межмолекулярных взаимодействий* (Л.: Наука, 1972).
- Келих С. *Молекулярная нелинейная оптика* (М.: Наука, 1981).
- Верещагин А.Н. *Характеристики анизотропии поляризуемости молекул* (М.: Наука, 1982).
- Месяц Г.А. *Импульсная энергетика и электроника* (М.: Наука, 2004).
- Ильин А.М. *Математические заметки*, **6** (2), 237 (1969).
- Дулан Э., Миллер Дж., Шилдерс У. *Равномерные численные методы решения задач с пограничным слоем* (М.: Мир, 1983).
- Герцберг Г. *Спектры и строение двухатомных молекул* (М.: ИИЛ, 1949).
- Ельяшевич М.А. *Атомная и молекулярная спектроскопия* (М.: Эдиториал УРСС, 2001).
- Mathison L., Ress A.L.G. *J. Chem. Phys.*, **25** (4), 753 (1956).
- Phuoc T.X. *Opt. Lasers Eng.*, **44** (5), 351 (2006).
- Ireland C.L.M. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **7** (16), L179 (1974).
- Dewhurst R.J. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **11** (16), L191 (1978).
- Сущинский М.М. *Вынужденное рассеяние света* (М.: Наука, 1985).
- Антонов В.С., Князев И.Н., Мовшев В.Г. *Квантовая электроника*, **2** (6), 1305 (1975) [*Sov. J. Quantum Electron.*, **5** (6), 709 (1975)].