

## О точности решения уравнения переноса в задачах взаимодействия излучения с обратно насыщающимся поглотителем

*В. Ю. Грибков*

*Волгоградский государственный университет*

**Аннотация:** В работе представлен анализ численных моделей, используемых для изучения обратных насыщающихся поглотителей. Построены численные схемы 1-4 порядка точности. Представлено точное решение задачи распространения лазерного излучения через такой поглотитель. Показано, что уже при использовании схем третьего порядка для лазерного импульса с энергией 0,1 Дж численное решение отличается от точного всего на несколько наноджоулей. В результате исследования показано, что увеличение порядка аппроксимации приводит к избыточному увеличению точности расчетов при использовании реалистичных пространственных дискретизаций. В то же время применение таких схем приводит к усложнению алгоритма и дополнительным вычислительным издержкам.

**Ключевые слова:** численные методы, уравнение переноса, аппроксимация, обратное насыщающееся поглощение.

### Введение

Вещества с оптическим ограничением имеют широкое применение в качестве оптических затворов, средств эффективной защиты оптических приборов. Один из эффектов оптического ограничения – эффект обратного насыщающегося поглощения (далее RSA – reverse saturable absorption), который является преобладающим во многих веществах, в том числе крупноразмерных углеродных наноструктурах [1]. Линейный размер таких частиц схож с размерами других наночастиц, например золота [2], и составляет около 20-50 нм. Углеродные наноструктуры имеют широкую область применения [3], в том числе в качестве оптических затворов.

Выбор конкретного метода численного моделирования для исследования различных веществ, где механизм обратного насыщающегося поглощения является преобладающим, остается важной задачей. При выборе конкретного метода численного моделирования ключевую роль играют затраты на его реализацию - объем необходимой оперативной памяти, число

операций на точку и общее время расчета, при условии вычисления решения с заданной точностью.

Распространение излучения в нелинейных средах описывается системой уравнений Максвелла, дополненной материальными уравнениями среды. Эти материальные уравнения могут быть записаны с использованием формализма матрицы плотности [ex., 4]. Но более распространенный подход – формализм скоростных уравнений. Число скоростных уравнений определяется числом энергетических уровней среды, резонансно взаимодействующих с излучением.

Эффект RSA наблюдается в средах, в которых имеется не менее двух резонансно поглощающих энергетических уровней, соответственно минимальный порядок системы скоростных уравнений – третий.

Для определенного класса углеродных наночастиц с учетом соотношений между временами релаксации эта система скоростных уравнений имеет вид [6]:

$$\begin{cases} \frac{dn_1}{dt} = -n_1\sigma_1 I(t) + n_2/\tau_{21} \\ \frac{dn_2}{dt} = n_1\sigma_1 I(t) - n_2\sigma_2 I(t) - n_2/\tau_{21} + n_3/\tau_{32} \\ \frac{dn_3}{dt} = n_2\sigma_2 I(t) - n_3/\tau_{32} \end{cases} \quad (1)$$

Здесь приняты обозначения:  $n_i$  – число частиц в  $i$ -состоянии,  $\sigma_i$  – эффективное сечение поглощения  $i$ -го энергетического уровня;  $\tau_{21}$ ,  $\tau_{32}$  – времена релаксации из первого возбужденного состояния в основное и из второго возбужденного в первое возбужденное состояние соответственно.

Из системы уравнений Максвелла для случая некогерентного взаимодействия импульса света со средой получается уравнение для интенсивности излучения, распространяющегося в среде [13]

$$\frac{\partial I(x,t)}{\partial t} + c \frac{\partial I(x,t)}{\partial x} = -c\alpha I(x,t), \quad (2)$$

которое представляет собой неоднородное уравнение переноса с постоянным коэффициентом.

Т.о., система уравнений (1,2) описывает распространение импульса света в нелинейно поглощающей среде.

Уравнение (2) использовалось для изучения свойств поликарбонатов [7], для изучения прохождения лазерных импульсов через затворы на основе фуллерен-содержащих сред [8] и в многих других работах.

Для упрощения, уравнение (2) нередко сводится к виду

$$\frac{dI(x)}{dx} = -\alpha(t)I(x) \quad (3)$$

где  $\alpha(t)$  – нелинейный коэффициент поглощения. Для трехуровневой среды

$$\alpha(t) = \sigma_1 n_1(t) + \sigma_2 n_2(t). \quad (4)$$

Такой подход использовался для изучения прохождения лазерных импульсов через родамин Б [9], фуллерен  $C_{60}$  [10], соединения на основе порфиринов [11] и многие другие вещества.

Еще более упрощенным является подход, используемый, как правило, при обработке экспериментальных данных [12], в котором интенсивность прошедшего излучения находится по формуле

$$I^*_{out}(t) = I_{in}(t) * T(t, I), \quad (5)$$

где  $T = \exp\{-(\sigma_1 n_1 + \sigma_2 n_2) * d\}$ ,  $d$  – толщина среды. Населенности энергетических уровней  $n_1$  и  $n_2$  находятся путем численного решения системы уравнений (1).

Т.о., распространение импульса света в нелинейно поглощающей среде может быть описано системами уравнений (1,2), (1,3) или (1,5). Наименее упрощенной, а следовательно, наиболее точной, является система уравнений (1,2). Однако точность полученных решений в значительной мере определяется точностью численных методов, которые используются для решения той или иной системы уравнений.

Проанализируем влияние точности численных методов на решение системы уравнений (1,2). Для этого сравним решения, полученные путем численного решения с точными (аналитическими) решениями.

### Построение точного решения

Система уравнений (1) аналитического решения не имеет, но может быть упрощена.

Если время релаксации первого возбужденного состояния много больше длительности импульса  $t_1 \ll \tau_{21}$ , т.е.

$$\tau_{21} \rightarrow \infty \Rightarrow n_2 / \tau_{21} \rightarrow 0$$

и если можно пренебречь заселенностью второго возбужденного состояния, что легко достижимо при малых энергиях, когда населенность первого возбужденного состояния, откуда и происходит переход, мала, то система уравнений (1) сводится к виду

$$\begin{cases} \frac{dn_1}{dt} = -n_1 \sigma_1 I(t) \\ \frac{dn_2}{dt} = n_1 \sigma_1 I(t) \end{cases} \quad (6)$$

Такой случай в реальности соответствует, например, прохождению лазерных импульсов малой интенсивности через кристалл александрита. Система уравнений (6) может быть решена аналитически.

Распределение интенсивности на границе среды зададим в виде:

$$I(t) = A_0 * \exp\left(\frac{(t-t_0)^2}{2q^2}\right), \quad (7)$$

где  $A_0$  - пиковая интенсивность,  $q$  - параметр, характеризующий длительность импульса. Начальные условия

$$\begin{cases} n_1(0) = N \\ n_2(0) = 0 \end{cases}$$

Где  $N$  – общее число частиц в среде.

Число частиц в первом возбужденном состоянии  $n_2$  найдем из второго уравнения системы (6)

$$n_2(t_x) = NA_0 \sigma_1 \int_0^{t_x} \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{2q^2}\right) dt = NA_0 \sigma_1 0,5 \left( \operatorname{erf}\left(\frac{(t_x-t_0)}{\sqrt{2}q}\right) + 1 \right) \quad (8)$$

$n_2(t_x)$  – число частиц в первом возбужденном состоянии в слое среды  $\Delta x$ .

Число частиц в основном состоянии  $n_1(t_x) = N - n_2(t_x)$ .

Энергия импульса, при которой разность населенностей основного и первого возбужденного состояний уменьшается в  $e$  раз, называется энергией насыщения  $E^*$  [13], измеряется в числе фотонов упавших на единицу площади и равна

$$E^* = (2\sigma_1)^{-1} \quad (9)$$

Типичные значения  $\sigma_1$  лежат в диапазоне от  $10^{-20}$   $\text{см}^2$  для органических красителей до  $10^{-16}$   $\text{см}^2$  для крупноразмерных наночастиц. Возьмем среднее значение  $10^{-18}$   $\text{см}^2$ , что соответствует, например, сечению поглощения основного состояния фуллерена  $C_{60}$  [4]. Тогда энергия насыщения, при переходе к джоулям,  $E^* = 0,094$  Дж. Для гауссовского импульса длительностью  $t_l = 50$  нс (длительность на полувысоте) и длиной волны излучения 1,064 мкм это соответствует пиковой интенсивности  $1,75 \cdot 10^6$  Вт/ $\text{см}^2$ . Для случая, когда энергия падающего гауссовского импульса равна энергии насыщения  $E^*$ , было получено точное решение уравнения (6) для интенсивности прошедшего импульса.

На рис. 1 демонстрируется точное решение системы уравнений (6) - изменение населенности основного и первого возбужденного состояний, а также формы падающего и прошедшего импульсов. Черная линия - населенность основного состояния, красная – первого возбужденного, синяя – распределение интенсивности падающего импульса, зеленая – прошедшего.

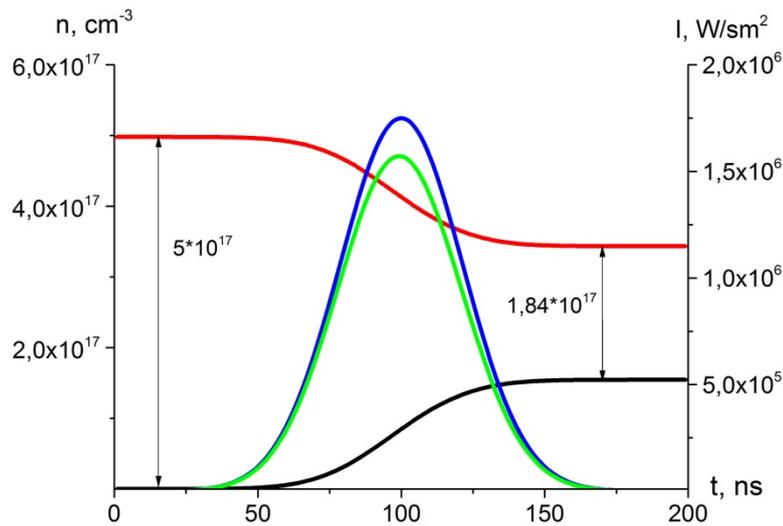


Рис.1. - Населенности и формы импульсов при длительности  $t_1=50$  нс и пиковой интенсивности  $I_0 = 1,75 * 10^6 \frac{\text{Вт}}{\text{см}^2}$  падающего импульса. Красная линия – число частиц в основном состоянии, черная – число частиц в первом возбужденном состоянии, Синяя – распределение интенсивности падающего импульса, зеленая – распределение интенсивности прошедшего импульса.

Таким образом, можно сравнить результаты численного решения уравнений (2) и (3) с точным решением.

### Результаты и обсуждение

На практике, эффект RSA наблюдается в средах, имеющих малую толщину (толщина среды меньше или много меньше пространственной протяженности импульса излучения). Импульс длительностью 10 нс имеет пространственную протяженность  $\sim 3$  м, а толщина среды редко превышает единицы сантиметров и обычно составляет несколько миллиметров. Это означает, что сеточная функция  $I(t_i)$  вычисляется всего лишь на нескольких пространственных слоях. Число слоев варьировалось от 2 до 40.

Для осуществления возможности сравнения решений уравнений (2) и (3) зададим граничное условие уравнения (3) как множество точек, формирующих огибающую – форму импульса.

$$I(x = 0, t) = \{I_t\} \quad (10)$$

В данной работе начальное распределение интенсивности задавалось 10000 точек. Это распределение совпадает с начальными условиями для уравнения переноса (2).

Решение уравнения (3) ищется последовательно для каждой интенсивности  $I_t$  множества, при этом в качестве населенностей, входящих в уравнения (2) и (3), используются результаты точного решения для населенностей (6).

Таким образом, мы сравниваем решение и уравнения(2), и уравнения (3) с точным решением.

Погрешность аппроксимации  $U$  вычислялась как средняя по модулю разность между точным  $I_{t\ out}^*$  и численным решением  $I_t$

$$U = \frac{1}{n} \sum_t^n \frac{|I_t - I_{t\ out}^*|}{I_{t\ out}^*} \quad (10)$$

Таблица № 1

Погрешности аппроксимации сравнения решений уравнений (2)и (3) с точным решением

| Число слоев | Уравнение 3 |         |         |          | Уравнение 2 |         |         |          |
|-------------|-------------|---------|---------|----------|-------------|---------|---------|----------|
|             | 1 порядок   | 2       | 3       | 4        | 1           | 2       | 3       | 4        |
| 2           | 5.02E-3     | 1.39E-4 | 3.04E-6 | 5.49E-8  | 5.02E-3     | 1.55E-4 | -       | -        |
| 4           | 1.6E-3      | 1.7E-5  | 1.39E-7 | 9.39E-10 | 1.6E-3      | 1.71E-5 | 1.4E-7  | 1.04E-9  |
| 6           | 1.06E-3     | 7.47E-6 | 4.08E-8 | 1.83E-10 | 1.06E-3     | 7.5E-6  | 4.12E-8 | 1.97E-10 |

---

---

|    |         |         |          |          |         |         |          |          |
|----|---------|---------|----------|----------|---------|---------|----------|----------|
| 10 | 6.32E-4 | 2.67E-6 | 8.76E-9  | 2.36E-11 | 6.37E-4 | 2.68E-6 | 8.9E-9   | 2.39E-11 |
| 20 | 3.15E-4 | 6.65E-7 | 1.09E-9  | 1.47E-12 | 3.24E-4 | 6.67E-7 | 1.11E-9  | 1.5E-12  |
| 40 | 1.57E-4 | 1.66E-7 | 1.35E-10 | 9.15E-14 | 1.61E-4 | 1.66E-7 | 1.37E-10 | 1.01E-13 |

В таблице приведены погрешности аппроксимации для метода Эйлера 1-го порядка, метода Эйлера с пересчетом 2-го порядка, метода Рунге-Кутты 3-го и 4-го порядка точности по результатам расчетов на различных сетках для уравнения (3). А также погрешности аппроксимации для схемы «правый угол» 1-го порядка, схемы Ларса-Вендроффа 2-го порядка, схемы Русанова 3-го порядка [14] и схемы 4-го порядка точности из работы [14] по результатам расчетов на различных сетках для уравнения переноса (2).

Как можно увидеть из таблицы уже при использовании схем третьего порядка для лазерного импульса в 0,1 Дж численное решение отличается от точного всего на несколько наноджоулей. При этом принципиальной разницы в точности между уравнениями (2) и (3) не наблюдается, хотя (2) и точнее (3) на 1-2 процента. Таким образом, при исследовании эффекта RSA в крупноразмерных углеродных частицах, веществах где эффект наблюдается лишь при энергиях <1 Дж, использование методов 3-4 порядка может быть излишне, особенно при использовании достаточно малого шага.

### Заключение

Было проведено сравнение с точным решением результата численного расчета уравнения переноса и закона Бугера для интенсивности, реализованного различными методами.

Показано, что уже при использовании схем третьего порядка для лазерного импульса в 0,1 Дж численное решение отличается от точного всего на несколько наноджоулей. Таким образом, при исследовании эффекта RSA в крупноразмерных углеродных частицах, веществах где эффект наблюдается лишь при энергиях <1Дж, использование методов третьего и четвертого порядка может быть излишне, особенно при использовании достаточно малого шага.

### Литература

1. Belousova I. M., Danilov O. B., Sidorov A. I. Nonlinear-optical laser-radiation limiters // Journal of Optical Technology. 2009. V. 76. № 4. pp. 223-233.
2. Черкасова С. О., Будник А. П., Солдатов А. В. Влияние диэлектрических свойств среды на оптические свойства заключенных в ней наночастиц золота // Инженерный вестник Дона. 2017. №4. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n4y2017/4579.
3. Кудрявцев П. Г., Фиговский О. Л. Нанокompозитные органоминеральные гибридные материалы // Инженерный вестник Дона. 2014. № 2. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n2y2014/2476.
4. Sun Y. P. et al. Optical limiting and pulse reshaping of picosecond pulse trains by fullerene C60 // Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena. 2009. V. 174. №1-3. pp. 125-130.
5. Li C. et al. Dynamic and steady-state behaviors of reverse saturable absorption in metallophthalocyanine // Physical Review A. 1994. V. 49. №2. pp. 1149-1157.
6. Gribkov V. Y., Zatrudina R. S. The shortening of the laser pulses in a medium with reverse saturable absorption //Saratov Fall Meeting 2015: Third International Symposium on Optics and Biophotonics and Seventh Finnish-



Russian Photonics and Laser Symposium (PALS). – International Society for Optics and Photonics, 2016. V. 9917. pp. 99173F.

7. Tong R. et al. Reverse saturable absorption and optical limiting performance of fullerene-functionalized polycarbonates in femtosecond time scale // *Physica B: Condensed Matter*. 2005. V. 366. №1-4. pp. 192-199

8. Belousova I. M. et al. Femtosecond optical switches based on fullerene-containing media: Numerical simulation // *Optics and Spectroscopy*. 2007. V. 102. №5. pp. 760-764.

9. Srinivas N. K. M. N., Rao S. V., Rao D. N. Saturable and reverse saturable absorption of Rhodamine B in methanol and water // *JOSA B*. 2003. V. 20. №12. pp. 2470-2479.

10. Wei T. H. et al. Studies of nonlinear absorption and refraction in C60/toluene solution // *Chemical Physics Letters*. 2000. V. 318. №1-3. pp. 53-57.

11. Barbosa Neto N. M. et al. Reverse saturable absorption in 5, 10, 15, 20-Tetra (4-pyridyl)-21H, 23H-porphyrin with ruthenium outlying complexes // *Journal of the Brazilian Chemical Society*. 2006. V. 17. №7. pp. 1377-1782.

12. Correa D. S. et al. Reverse saturable absorption in chlorophyll A solutions // *Applied Physics B*. 2002. V. 74. №6. pp. 559-561.

13. Крюков П. Г., Летохов В. С. Распространение импульса света в резонансно усиливающей (поглощающей) среде // *Успехи физических наук*. 1969. Т. 99. №10. С. 169-227.

14. Куликовский А.Г., Погорелов Н. В., Семенов А. Ю. Математические вопросы численного решения гиперболических систем уравнений. - М.: Физматлит, 2001. 608 с.

15. Балакин В. Б. О методах типа Рунге-Кутта для газовой динамики // *Журнал вычислительной математики и математической физики*. 1970. Т. 10. №6. С. 1512-1519.

## References

1. Belousova I. M., Danilov O. B., Sidorov A. I. Journal of Optical Technology. 2009. Vol. 76. № 4. pp. 223-233.
  2. Cherkasova S. O., Budnik A. P., Soldatov A. V. Inženernyj vestnik Dona (Rus), 2017. Vol. 47. № 4 (47). URL: [ivdon.ru/ru/magazine/archive/n4y2017/4579](http://ivdon.ru/ru/magazine/archive/n4y2017/4579).
  3. Kudryavcev P. G., Figovskij O. L. Inženernyj vestnik Dona (Rus), 2014. Vol. 29. № 2. URL: <http://ivdon.ru/ru/magazine/archive/n2y2014/2476>.
  4. Sun Y. P. et al. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena. 2009. Vol. 174. № 1-3. pp. 125-130.
  5. Li C. et al. Physical Review A. 1994. Vol. 49. № 2. pp. 1149-1157.
  6. Gribkov V. Y., Zatrudina R. S. Saratov Fall Meeting 2015: Third International Symposium on Optics and Biophotonics and Seventh Finnish-Russian Photonics and Laser Symposium (PALS). International Society for Optics and Photonics, 2016. Vol. 9917. pp. 99173F.
  7. Tong R. et al. Physica B: Condensed Matter. 2005. Vol. 366. №1-4. pp. 192-199.
  8. Belousova I. M. et al. Optics and Spectroscopy. 2007. Vol. 102. №5. pp. 760-764.
  9. Srinivas N. K. M. N., Rao S. V., Rao D. N. JOSA B. 2003. Vol. 20. №12. pp. 2470-2479.
  10. Wei T. H. et al. Chemical Physics Letters. 2000. Vol. 318. №1-3. pp. 53-57.
  11. Barbosa Neto N. M. et al. Journal of the Brazilian Chemical Society. 2006. Vol. 17. №7. pp. 1377-1782.
  12. Correa D. S. et al. Applied Physics B. 2002. Vol. 74. № 6. pp. 559-561.
-



13. Kryukov P. G., Letohov V. S. Uspekhi fizicheskikh nauk. 1969. Vol. 99. №10. pp. 169-227.

14. Kulikovskij A.G., Pogorelov N. V., Semenov A. YU. Matematicheskie voprosy chislennogo resheniya giperbolicheskikh sistem uravnenij. [Mathematical problems of numerical solution of hyperbolic systems of equations] M.: Fizmatlit, 2001. 608 p. ISBN 5-9221-0194-3.

15. Balakin V. B. Zhurnal vychislitel'noj matematiki i matematicheskoy fiziki. 1970. Vol. 10. № 6. pp. 1512-1519.