Письма в ЖЭТФ, том 116, вып. 2, с. 67 – 73 © 2022 г. 25 июля

О предельной длине усиления флуоресценции при лазерной накачке случайно-неоднородных сред

Д. А. Зимняков[+*1)], С. С. Волчков[+], Л. А. Кочкуров[+], А. Ф. Дорогов[+]

[+]Саратовский государственный технический университет им. Ю. А. Гагарина, 410054 Саратов, Россия

[*]Институт проблем точной механики и управления РАН, 410028 Саратов, Россия

Поступила в редакцию 13 мая 2022 г.
После переработки 25 мая 2022 г.
Принята к публикации 27 мая 2022 г.

Представлены результаты исследований эффекта насыщения спектрального качества флуоресцентного отклика случайно-неоднородных сред при внешней лазерной накачке с интенсивностями выше порога стохастической лазерной генерации в среде. Установлено, что насыщение спектрального качества флуоресценции обусловлено убыванием длины усиления флуоресценции в среде до предельного значения, определяемого средним размером ассоциируемых с лазерными спеклами локальных эмиттеров флуоресценции и фактором радиационного обмена между эмиттерами.

DOI: 10.31857/S1234567822140014, EDN: ixpebm

В 1967 году В. С. Летохов рассмотрел эффект генерации излучения в случайно-неоднородных средах с отрицательным резонансным поглощением [1]. Продолжительное время эта работа оставалась невостребованной, однако 1990-х гг. начался бум в исследованиях безрезонаторных лазерных систем на основе случайно-неоднородных сред [2–18]. Наблюдаемое в подобных средах сужение спектра флуоресценции имеет в зависимости от интенсивности внешней накачки I_p пороговый характер и интерпретируется как переход от режима спонтанной флуоресценции к стохастической лазерной генерации (*random lasing*, в дальнейшем СЛГ). Помимо порогового характера зависимости полуширины спектра флуоресценции от I_p, характерной особенностью СЛГ является практическое отсутствие влияния I_p на полуширину спектра эмиссии в запороговом режиме. Кроме того, предельные значения фактора спектрального качества флуоресценции $Q_{sp} = \Delta\lambda_{f,\max}/\Delta\lambda_{f,\min}$ для различных систем на основе комбинаций рассеивающих сред с флуорофорами имеют достаточно близкие значения в интервале от ≈ 5 до ≈ 10 [2, 4, 14, 15, 18] ($\Delta\lambda_{f,\max}, \Delta\lambda_{f,\min}$ – полуширины спектров в спонтанном режиме и при значениях I_p, существенно превышающих порог СЛГ, условно определяемый при $Q_{sp} = 2$). Механизм насыщения Q_{sp} и близости насыщенных значений Q_{sp} для различных систем неочевиден, несмотря на значительное число работ, посвященных различным аспектам СЛГ.

Обычно при описании распространения лазерного света и флуоресцентного излучения в случайно-неоднородных средах применяется диффузионное приближение [7, 8, 13], не позволяющее учесть эффект стохастической интерференции парциальных составляющих светового поля накачки. Как правило, в экспериментах по возбуждению СЛГ длина когерентности накачки существенно превышает характерный масштаб распространения излучения в среде. В результате имеет место спекл-модуляция поля накачки, оказывающая влияние на пространственное распределение локальных значений плотности энергии лазерного излучения и флуоресцентного отклика в накачиваемом объеме. В [18] рассмотрено влияние спекл-модуляции накачки, приводящей к возникновению в среде во время действия импульса накачки стохастического ансамбля локальных эмиттеров, ассоциируемых с лазерными спеклами. В сильно рассеивающих средах, характеризуемых диффузионным режимом распространения лазерного излучения, средний размер лазерных спеклов $\langle d\rangle \le \lambda_p$, где λ_p – длина волны накачки. Критерий $\langle d\rangle \le \lambda_p$ согласуется с проведенной в [18] оценкой характерного размера локальных эмиттеров на основе сопоставления типичных значений фактора Парселла [19] и параметра $\bar{\lambda}_f/\Delta\lambda_{f,\min}$ для флуоресцирующих случайно-неоднородных сред при высоких уровнях I_p. В [18] показано, что к числу ключевых факторов, определяющих флуоресцентный отклик среды в зависимости от I_p, является усредненное по

1)e-mail: zimnykov@mail.ru

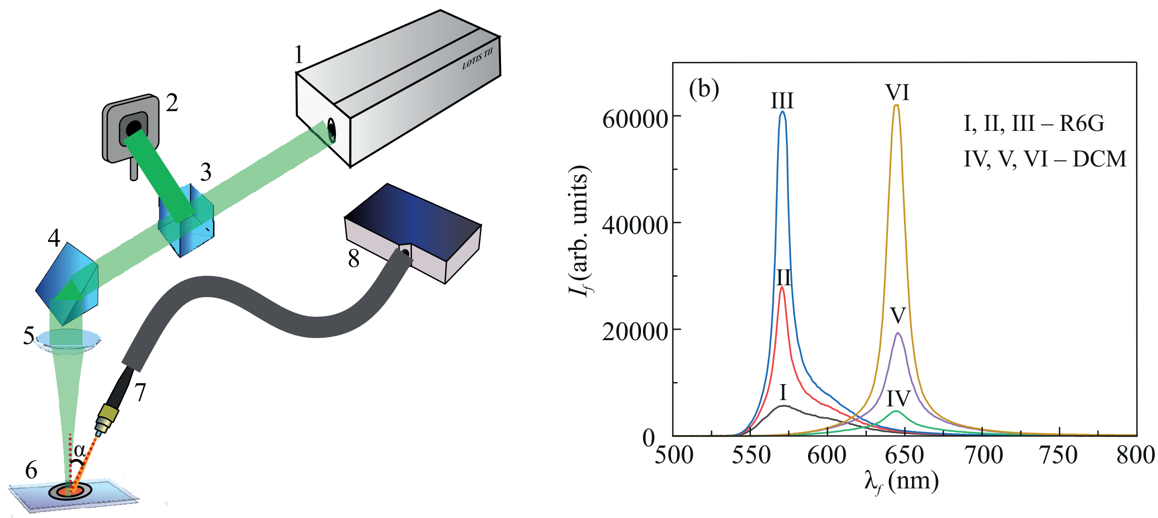

Рис. 1a. (Цветной онлайн) (a) – Схема экспериментальной установки: *1* – лазер; *2* – измеритель энергии лазерного излучения; *3* – светоделитель; *4* – поворотная призма; *5* – собирающая линза (фокусное расстояние $F = 150$ мм); *6* – контейнер с образцом; *7* – волоконно-оптический патчкорд ($\alpha \approx 20°$); *8* – спектрометр. (b) – Спектры флуоресценции исследуемых слоев TiO_2, насыщенных раствором R6G (I, II, III) и DCM (IV, V, VI) при возбуждении на 532 нм; I – $I_p = 1.0{\cdot}10^6$ Вт/см^2; II – $I_p = 2.6{\cdot}10^7$ Вт/см^2; III – $I_p = 3.9{\cdot}10^7$ Вт/см^2; IV – $I_p = 2.2{\cdot}10^7$ Вт/см^2; V – $I_p = 1.0{\cdot}10^8$ Вт/см^2; VI – $I_p = 1.8 \cdot 10^8$ Вт/см^2

ансамблю сечение радиационных потерь локальных эмиттеров.

Целью работы явилась интерпретация общего для систем "рассеивающая среда-флуорофор" эффекта насыщения фактора спектрального качества на основе моделирования предельных состояний ансамблей локальных эмиттеров флуоресценции при больших I_p и сопоставления результатов моделирования с экспериментальными данными.

Экспериментальные исследования влияния I_p на Q_{sp} проводились по традиционной схеме исследования СЛГ (рис. 1a; см., например, [2, 15, 18]). Накачка образцов осуществлялась сфокусированным лазерным пучком (лазер Lotis TII LS-2145 (1), $\lambda_p = 532$ нм, длительность импульса $\tau_i = 10$ нс, частота повторения импульсов 10 Гц, энергия импульсов E_p – от 0.02 до 20 мДж). Контроль энергии импульсов накачки осуществлялся с помощью светоделителя (3) и измерителя энергии лазерного излучения Gentec Maestro (2). Перед началом измерений была проведена предварительная калибровка с целью установления соответствия между показаниями измерителя (2) и значениями энергии импульсов в зоне воздействия. Флуоресцентный отклик регистрировался с помощью волоконно-оптического патчкорда ((7), Ocean Optics P200-5-UV-VIS), входной торец которого располагался на расстоянии ≈ 50 мм от зоны воздействия. Выходной торец патчкорда был подключен к спектрометру Ocean Optics QE65000 (8). Регистрация спектров флуоресценции была синхронизирована с накачкой, производимой пакетами из 5 лазерных импульсов (с целью исключения фотодеградации образцов, имеющей место при длительных воздействиях), и осуществлялась с временем накопления спектрометра, равным 500 мс.

В качестве образцов использовались слои плотноупакованных полидисперсных наночастиц анатаза (продукт # 637254 от Sigma Aldrich Inc., средний диаметр не более 25 нм), насыщенные растворами лазерных красителей (родамин 6Ж (R6G) и 4-дицианометилен-2-метил-6-[4-(ди-метиламино)-стирил]-4H-пиран (DCM)) в этаноле. Толщина слоев составляла $\approx (0.94 \pm 0.04)$ мм; объемная доля частиц в слоях, определенная с помощью масс-волюмометрических измерений, составляла $\approx (0.22 \pm \pm\, 0.02)$. Слои находились в цилиндрических контейнерах с внутренним диаметром 20 мм и высотой 1.5 мм, расположенных на стеклянных подложках. Перед началом экспериментов были проведены измерения транспортных длин l^* [20] распространения излучения в слоях для длин волн $\lambda_p = 532$ нм (накачка), $\bar{\lambda}_{f,R6G} \approx 597$ нм и $\bar{\lambda}_{f,DCM} \approx 675$ нм (средние длины волн флуоресценции), а также длин поглощения $l_a = (\mu_a)^{-1}$ излучения накачки растворами красителей. Значения $l^*_{532} \approx (2.50 \pm 0.20)$ мкм, $l^*_{597} \approx (2.85 \pm 0.20)$ мкм и $l^*_{675} \approx (3.20 \pm 0.25)$ мкм были определены на основе измерений коэффициентов диффузного пропускания слоев по методике, описанной в [18]. Значения длины поглощения l_a на 532 нм определялись путем измерений коллимированного пропускания растворов красителей с различной молярной концентрацией в кюветах различной толщины. Исходя из полученных данных, были выбраны молярные концентрации, обеспечивающие близкие значения l_a для исследуемых образцов. Соответственно, они составили $c_{R6G} \approx 3.4 \cdot 10^{-3}$ М и $c_{DCM} \approx 6.1 \cdot 10^{-2}$ М, что обеспечивало значения $l_{a,DCM} \approx (45.0 \pm 4.0)$ мкм и $l_{a,R6G} \approx (53.0 \pm 5.0)$ мкм для $\lambda_p = 532$ нм.

Исходя из более высокого порога СЛГ для DCM-насыщенных образцов, они располагались вблизи плоскости перетяжки сфокусированного пучка; при этом диаметр зоны воздействия, предварительно оцененный путем поперечного сканирования зоны воздействия без образца ножом Фуко с одновременным измерением энергии прошедшего излучения, составил $d_p \approx 100$ мкм. R6G-насыщенные образцы, характеризуемые значительно меньшим порогом, располагались в сходящемся пучке вне зоны перетяжки; при этом $d_p \approx 1000$ мкм. Интенсивность накачки определялась на основе измерений энергии лазерных импульсов как $I_p \approx 4E_p/\pi d_p^2 \tau_i$. В ходе экспериментов после каждого цикла воздействия из 5 импульсов образцы сдвигались в поперечном направлении на величину, превышающую d_p (с целью дополнительной минимизации влияния фотодеградации). На рисунке 1b выборочно представлены спектры флуоресценции образцов при различных уровнях накачки; интенсивность флуоресценции выражена в показаниях спектрометра. Соответствующий накачке пик на 532 нм исключен.

На рисунке 2 представлены восстановленные из спектров флуоресценции зависимости Q_{sp} от I_p для исследуемых образцов, используемые для сопоставления с данными моделирования. Маркеры соответствуют значениям Q_{sp}, усредненным по группам из 5 спектров, каждый из которых получен при фиксированной E_p при различных положениях образцов в поперечной плоскости.

В [18] предложена кинетическая модель формирования усредненного по спектру флуоресцентного отклика $\langle I_f(t) \rangle_\lambda$ для ассоциируемого с лазерным спеклом локального эмиттера в накачиваемой случайно-неоднородной среде:

$$\frac{df}{dt} = \frac{\sigma_a}{h\nu_p} I_p(t)\{1-f\} - \frac{\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda f + \\ + \frac{\langle \sigma_{sa} \rangle_\lambda}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda \{1-f\} - \delta f, \qquad (1)$$

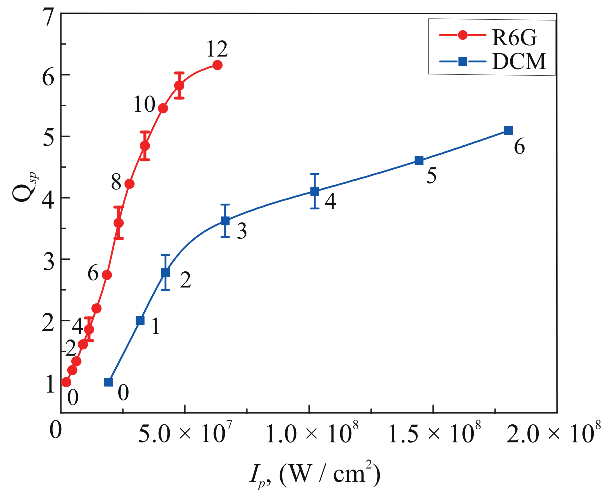

Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости фактора спектрального качества флуоресценции от интенсивности накачки для исследуемых образцов. Красная кривая – R6G-насыщенный слой; синяя кривая – DCM-насыщенный слой. Выборочно показанные доверительные интервалы соответствуют уровню значимости 0.9

$$\frac{d\langle I_f(t) \rangle_\lambda}{dt} = \left\{ \frac{\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda f + \delta f - \right. \\ - \frac{\langle \sigma_{sa} \rangle_\lambda}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda \{1-f\} - \\ \left. - \frac{\sigma_{rad}}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda \right\} n_0 \langle h\nu_f \rangle_\lambda \upsilon, \qquad (2)$$

где σ_a – сечение поглощения молекулы флуорофора, $h\nu_p$ – энергия кванта накачки, f – населенность возбужденного состояния молекул флуорофора, $\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda$, $\langle h\nu_f \rangle_\lambda$, $\langle \sigma_{sa} \rangle_\lambda$ – усредненные по спектру сечение индуцированного излучения молекул флуорофора, энергия кванта и сечение самопоглощения флуоресценции, δ – скорость спонтанной релаксации возбужденного состояния молекул флуорофора, σ_{rad} – сечение радиационных потерь локального эмиттера, n_0 – концентрация молекул флуорофора в среде, υ – скорость света в среде. Рассмотренная в [18] феноменологическая модель радиационных потерь для единичного локального эмиттера сферической формы основана на следующих предположениях: в произвольно выбранный момент времени находящиеся в объеме эмиттера кванты флуоресценции распределены в объеме эмиттера диаметром $\langle d \rangle$ с объемной плотностью $\tilde{N}_f$; плотность квантов вне эмиттера равна 0; направления распространения квантов в эмиттере равномерно распределены в телесном угле 4π; распространение квантов на расстояниях, существенно меньших l^*, является баллистическим. Скорость изменения $\tilde{N}_f$ вследствие излучения части квантов из эмиттера определяется отношением потока квантов через границу эмиттера к его объему V_{em}: $(d\tilde{N}_f/dt)_{\text{rad}} = -3\tilde{N}_f \upsilon/2\langle d\rangle$. Рассматривая вклад $(d\tilde{N}_f/dt)_{\text{rad}}$ в кинетику изменения $\langle I_f\rangle_\lambda$, можно получить следующее выражение для сечения радиационных потерь единичного локального эмиттера без учета притока квантов из других эмиттеров (оценка сечения радиационных потерь сверху) [18]: $\sigma_{rad}^{\max} = 3/2n_0\langle d\rangle$. Приток квантов из других эмиттеров приводит к существенному уменьшению σ_{rad} в сравнении с $\sigma_{\text{rad}}^{\max}$, что может быть учтено введением фактора радиационного обмена $0 < K \ll 1$ [21]: $\langle\sigma_{\text{rad}}\rangle = K/n_0\langle d\rangle$.

Качественный анализ представленных в литературе спектров поглощения и флуоресценции различных лазерных красителей (в том числе R6G и DCM) позволяет предположить, что вклад самопоглощения ($\langle\sigma_{sa}\rangle_\lambda$) в кинетику формирования флуоресцентного отклика мал по сравнению с процессами возбуждения центров флуоресценции (σ_a), спонтанного (δ) и вынужденного ($\langle\sigma_{st}\rangle_\lambda$) излучения. Оценка модельных параметров для исследуемых образцов производилась на основе результатов измерений l_a и литературных данных о кинетике затухания спонтанной флуоресценции для R6G и DCM [22, 23]; значения $\langle\sigma_{st}\rangle_\lambda$ вычислялись по полученным спектрам флуоресценции с использованием подхода, описанного в [18]. В результате получены следующие значения: $\sigma_{a,DCM} \approx (6.0 \pm 0.5) \cdot 10^{-18}$ см^2, $\sigma_{a,R6G} \approx$ $\approx (9.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-17}$ см^2, $\langle\sigma_{st}\rangle_{\lambda,R6G} \approx (2.8 \pm 0.3) \times$ $\times 10^{-16}$ см^2, $\langle\sigma_{st}\rangle_{\lambda,DCM} \approx (1.1\pm0.1)\cdot10^{-15}$ см^2, $\delta_{R6G} \approx$ $\approx (2.6\pm0.2)\cdot10^8$ с, $\delta_{DCM} \approx (1.0\pm0.1)\cdot10^9$ с. Отметим значительно меньшую эффективность накачки возбужденного состояния и существенно большие скорости спонтанной и индуцированной излучательной рекомбинации для молекул DCM в сравнении с молекулами R6G.

Численное моделирование флуоресцентного отклика R6G- и DCM-насыщенных слоев при накачке прямоугольными импульсами лазерного излучения с длительностью 10 нс показывает, что при $I_p \geq 1 \times$ $\times 10^6$ Вт/см^2 характерные времена выхода флуоресцентного отклика в стационарное состояние ($df/dt =$ $= 0$, $d\langle I_f(t)\rangle_\lambda/dt = 0$) существенно меньше длительности импульса накачки. Соответственно, система (1), (2) при пренебрежимо малом самопоглощении флуоресценции сводится к системе двух уравнений:

$$\langle I_f\rangle_\lambda = \frac{\delta f\langle h\nu_f\rangle_\lambda}{\langle\sigma_{\text{rad}}\rangle - \langle\sigma_{st}\rangle_\lambda f},$$
$$\langle I_f\rangle_\lambda = \left(\frac{\sigma_a}{h\nu_p} I_p\{1-f\} - \delta f\right)\frac{\langle h\nu_f\rangle_\lambda}{\langle\sigma_{st}\rangle_\lambda f}. \tag{3}$$

Анализ системы (3) показывает, что с ростом амплитуды импульса накачки I_p населенность f стремится к предельному значению $f_{\text{ext}} = \langle\sigma_{\text{rad}}\rangle/\langle\sigma_{st}\rangle_\lambda$. Исходя из значительно большей величины $\langle\sigma_{st}\rangle_\lambda$ в случае DCM, следует ожидать существенно меньшее предельное значение f_{ext} для DCM-насыщенного слоя в сравнении с R6G-насыщенным слоем.

Приводящий к сужению спектра эффект усиления флуоресценции может быть рассмотрен на основе анализа вероятностей реализации последовательностей актов индуцированного излучения квантов флуоресценции при их распространении в накачиваемой среде. Обсуждаемая модель усиления флуоресценции иллюстрируется рис. 3. Исходя из предполо-

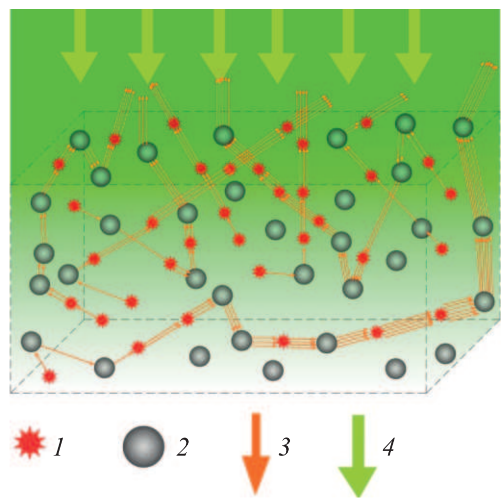

Рис. 3. (Цветной онлайн) Отображение рассматриваемой вероятностной модели усиления флуоресценции в накачиваемой случайно-неоднородной среде; *1* – возбужденные молекулы флуорофора; *2* – рассеиватели (наночастицы анатаза); *3* – флуоресценция; *4* – накачка

жения о статистической независимости актов индуцированного излучения при распространении пакета квантов, плотность условной вероятности регистрации пакета из $n+1$ квантов, соответствующих длине волны λ_f может быть представлена как:

$$\tilde{p}_{n+1}(\lambda_f) = p_{sp}(\lambda_f)p_{st}^n(\lambda_f), \tag{4}$$

где $p_{sp}(\lambda_f)$ и $p_{st}(\lambda_f)$ – плотности безусловных вероятностей спонтанного и индуцированного излучения квантов. Для пакета квантов, распространившегося в среде на расстояние s, число актов индуцированного излучения может быть оценено как $n \approx s/l_{st}$, где $l_{st} \approx (\sigma_{st}n_0 f)^{-1}$ – характерная длина усиления флуоресценции. Плотность безусловной вероятности обнаружения пакета $n+1$ квантов для длины волны λ_f среди аналогичных пакетов, соответствующих другим длинам волн, может быть получена из условия нормировки:

$$p_{n+1}(\lambda_f) = \frac{\tilde{p}_{n+1}(\lambda_f)}{\int\limits_0^\infty \tilde{p}_{n+1}(\lambda_f)d\lambda_f}. \quad (5)$$

Плотности вероятности единичных актов $p_{sp}(\lambda_f)$ и $p_{st}(\lambda_f)$ могут быть выражены через спектральную плотность спонтанной флуоресценции $S_{sp}(\lambda_f) = S(\lambda_f, I_p \to 0)$:

$$p_{sp}(\lambda_f) = \frac{(S_{sp}(\lambda_f)/(hc/\lambda_f))}{\int\limits_0^\infty (S_{sp}(\lambda_f)/(hc/\lambda_f))d\lambda_f} = \frac{\lambda_f S_{sp}(\lambda_f)}{\int\limits_0^\infty \lambda_f S_{sp}(\lambda_f)d\lambda_f},$$

$$p_{sp}(\lambda_f) \approx \Psi p_{st}(\lambda_f). \quad (6)$$

Здесь введен коэффициент пропорциональности Ψ между значениями плотности вероятности актов спонтанной и индуцированной эмиссии; в результате нормировки (5) этот коэффициент исключается из рассмотрения. Таким образом,

$$p_{n+1}(\lambda) = \frac{\left\{\lambda S_{sp}(\lambda) \Big/ \int\limits_0^\infty \lambda S_{sp}(\lambda)d\lambda\right\}^{n+1}}{\int\limits_0^\infty \left\{\lambda' S_{sp}(\lambda') \Big/ \int\limits_0^\infty \lambda S_{sp}(\lambda)d\lambda\right\}^{n+1} d\lambda'} =$$

$$= \frac{\{\lambda S_{sp}(\lambda)\}^{n+1}}{\int\limits_0^\infty \{\lambda' S_{sp}(\lambda')\}^{n+1} d\lambda'}. \quad (7)$$

Вклад пакетов, состоящих из $n+1$ квантов, в нормированную спектральную плотность флуоресцентного отклика на длине волны λ_f может быть представлен как

$$\tilde{S}_{n+1}(\lambda) = \frac{S_{n+1}(\lambda)}{\int\limits_0^\infty S_{n+1}(\lambda)d\lambda} = \left(\frac{1}{\lambda}\right) \cdot p_{n+1}(\lambda) =$$

$$= \left(\frac{1}{\lambda}\right) \cdot \frac{\{\lambda S_{sp}(\lambda)\}^{n+1}}{\int\limits_0^\infty \{\lambda' S_{sp}(\lambda')\}^{n+1} d\lambda'}. \quad (8)$$

Нормированная спектральная плотность флуоресцентного отклика может быть представлена как:

$$\tilde{S}(\lambda) = \sum_{n=0}^{\infty} \tilde{S}_{n+1}(\lambda) p_s(n+1), \qquad \sum_{n=0}^{\infty} p_s(n) = 1. \quad (9)$$

Здесь $p_s(n)$ – вероятность обнаружения пакетов из n квантов в регистрируемом отклике. Переходя от дискретного описания статистики парциальных составляющих флуоресцентного поля в среде к непрерывному (см., например, [24]) и вводя в рассмотрение функцию плотности вероятности путей парциальных составляющих флуоресцентного отклика $\rho(s)$, преобразуем (9) к следующей форме:

$$\tilde{S}(\lambda) = \int\limits_0^\infty \tilde{S}_{s/l_{st}+1}(\lambda)\rho(s)ds; \qquad \int\limits_0^\infty \rho(s)ds = 1, \quad (10)$$

где индекс $s/l_{st} + 1 \leftrightarrow n + 1$ принимает нецелые значения.

С использованием (8) и (10) было проведено моделирование влияния l^* и l_{st} на Q_{sp} для исследуемых образцов. Перенос излучения накачки и флуоресценции в слоях моделировался с использованием метода Монте-Карло; применялся алгоритм моделирования, аналогичный описанному в [24]. На первом этапе воспроизводились пространственные распределения плотности потока энергии накачки и концентрации возбужденных молекул флуорофоров в слоях в стационарном режиме. Характер рассеяния в слоях полагался изотропным. При моделировании учитывалась геометрия накачки слоев; в качестве параметров моделируемых систем использовались $l_{a,DCM}$, $l_{a,R6G}$ для $\lambda_p = 532$ нм, а значения транспортной длины l^* являлись варьируемым параметром. Полное число генерируемых элементарных источников флуоресценции (возбужденных молекул) принималось равным 10^7.

На втором этапе для полученных распределений элементарных источников флуоресценции моделировались случайные блуждания квантов флуоресценции в слоях и генерировались выборочные функции плотности вероятности $\rho(s)$ для различных l^*. Для полученных функций $\rho(s)$ в соответствии с (8), (10) для различных значений l_{st} рассчитывались нормированные спектры флуоресценции $\tilde{S}(\lambda)$ и значения Q_{sp}.

На рисунке 4 приведены цветовые карты модельных Q_{sp}-состояний флуоресцирующих слоев в координатах (l^*, l_{st}), на которых также представлены линии эволюции исследуемых образцов при возрастании I_p, восстановленные по эмпирическим зависимостям рис. 2. При отображении линий значения l^* полагались не зависящими от I_p, поскольку $l^* \ll \ll l_{a,DCM}, l_{a,R6G}$, а возрастание I_p должно приводить к росту l_a. Пунктирные линии соответствуют $Q_{sp} = 2$ (порогу СЛГ).

Ключевым результатом является близость предельных значений l_{st} для DCM-и R6G-насыщенных слоев, соответствующих сгущениям отображающих точек на линиях эволюции. Несмотря на существенные различия эмиссионных свойств флуорофоров и ожидаемых предельных значений $f_{\text{ext}} = \langle\sigma_{\text{rad}}\rangle/\langle\sigma_{st}\rangle_\lambda$, близость предельных величин

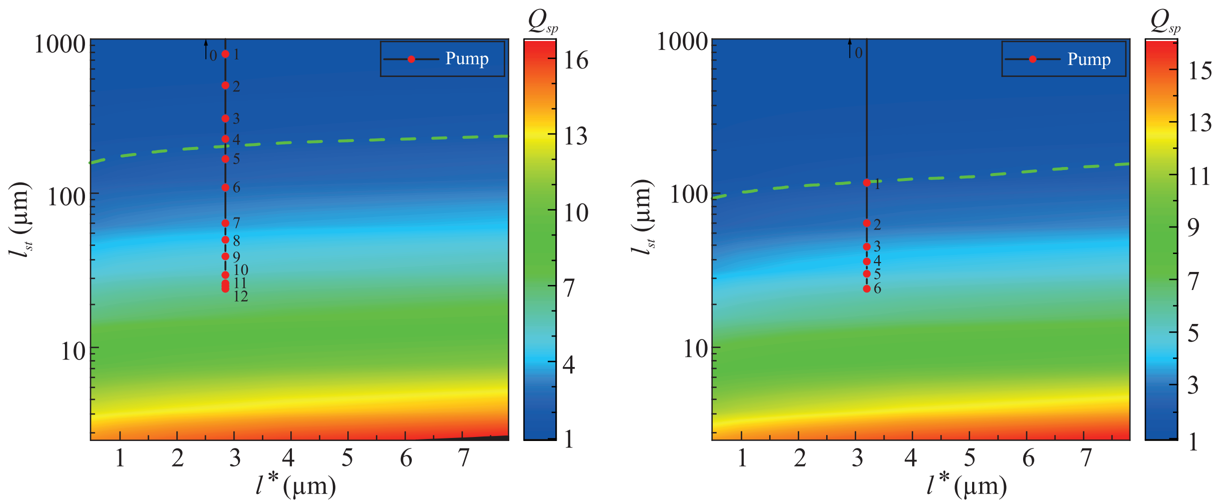

Рис. 4. (Цветной онлайн) Карты моделируемых Q_{sp}-состояний накачиваемых случайно-неоднородных слоев и эволюционные линии, соответствующие исследованным образцам при различных уровнях накачки (нумерация отображающих точек на эволюционных линиях соответствует рис. 2). (a) – R6G-насыщенный слой; (b) – DCM-насыщенный слой

$l_{st,DCM} \approx l_{st,R6G} \approx 24$ мкм обусловлена тем, что по мере приближения к предельному состоянию систем с ростом I_p длина усиления $l_{st} \to \langle d \rangle / K$ становится зависимой только от характерного размера ассоциируемых со спеклами локальных эмиттеров и фактора радиационного обмена между ними (т.е. от структурных свойств спекл-поля, модулирующего излучение накачки). Отметим, что значение $\langle d \rangle$ может быть оценено как средний размер спеклов в сильно рассеивающей среде: $\langle d \rangle \propto \lambda_p / n_r \Omega$, где Ω – ширина углового спектра плотности потока излучения [25], n_r – эффективный показатель преломления среды. Учитывая близкий к изотропному характер углового спектра плотности потока излучения для исследуемых образцов и принимая во внимание, что n_r для исследуемых слоев составляет приблизительно $1.5 \div 1.6$ [18], получим приближенную оценку $\langle d \rangle$ для $\lambda_p = 532$ нм как $\approx (0.07 \div 0.10)$ мкм. Фактор радиационного обмена K может быть приближенно оценен как $0.002 \div 0.004$ [21]. Таким образом, подобные весьма приближенные оценки предельной длины усиления находятся в интервале от ≈ 17 мкм до ≈ 50 мкм и удовлетворительно согласуются с результатами проведенного анализа.

Таким образом, в работе рассмотрены ранее не исследованные особенности перехода в предельное состояние спектрального качества флуоресцентного отклика случайно-неоднородных сред при росте уровня лазерной накачки. Путем сопоставления экспериментальных данных и результатов моделирования установлено, что переход обусловлен достижением насыщенного состояния по населенности возбужденного состояния молекул флуорофора в среде. Это приводит к уменьшению характерной длины усиления флуоресценции в среде до предельного значения, не зависящего от свойств флуорофора, а определяемого средним размером локальных эмиттеров, ассоциируемых со спеклами поля накачки, и фактором радиационного обмена между эмиттерами.

Данная работа поддержана грантом Российского научного фонда # 22-29-00612.

1. В. С. Летохов, ЖЭТФ **53**(4), 1442 (1967) [V. S. Letokhov, Sov. Phys. JETP **26**(4), 835 (1968)].
2. N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, and E. Sauvain, Nature **368**(6470), 436 (1994).
3. D. S. Wiersma and A. Lagendijk, Phys. Rev. E **54**(4), 4256 (1996).
4. K. Totsuka, G. van Soest, T. Ito, A. Lagendijk, and M. Tomita, J. Appl. Phys. **87**(11), 7623 (2000).
5. G. van Soest, M. Tomita, and A. Lagendijk, Opt. Lett. **24**(5), 306 (1999).
6. H. Cao, J. Y. Xu, D. Z. Zhang, S.-H. Chan, S. T. Ho, E. W. Seelig, S. Liu, and R. P. H. Chang, Phys. Rev. Lett. **84**(24), 5584 (2000).
7. G. van Soest, F. J. Poelwijk, R. Sprik, and A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett. **86**(8), 1522 (2001).
8. G. van Soest and A. Lagendijk, Phys. Rev. E **65**(4), 047601 (2002).
9. X. H. Wu, A. Yamilov, H. Noh, H. Cao, E. W. Seelig, and R. P. H. Chang, J. Opt. Soc. Am. B **21**(1), 159 (2004).
10. M. A. Noginov, J. Novak, D. Grigsby, G. Zhu, and M. Bahoura, Opt. Express **13**(22), 8829 (2005).
11. K. L. van der Molen, A. P. Mosk, and A. Lagendijk, Opt. Commun. **278**(1), 110 (2007).

12. D. S. Wiersma, Nat. Phys. **4**(5), 359 (2008).
13. S. García-Revilla, J. Fernández, M. A. Illarramendi, B. García-Ramiro, R. Balda, H. Cui, M. Zayat, and D. Levy, Opt. Express **16**(16), 12251 (2008).
14. R. G. S. El-Dardiry, A. P. Mosk, and A. Lagendijk, Opt. Lett. **35**(18), 3063 (2010).
15. R. G. S. El-Dardiry and A. Lagendijk, Appl. Phys. Lett. **98**(16), 161106 (2011).
16. F. Luan, B. Gua, A. S. L. Gomes, K. T. Yong, S. Wen, and P. N. Prasad, Nano Today **10**(2), 168 (2015).
17. G. Weng, J. Tian, S. Chen, J. Xue, J. Yan, X. Hu, S. Chen, Z. Zhu, and J. Chua, Nanoscale **11**(22), 10636 (2019).
18. D. A. Zimnyakov, S. S. Volchkov, L. A. Kochkurov, V. I. Kochubey, A. G. Melnikov, and G. V. Melnikov, Opt. Express **29**(2), 2309 (2021).
19. E. M. Purcell, Phys. Rev. **69**(11–12), 681 (1946).
20. A. Ishimaru, *Wave propagation and scattering in random media*, Academic press, N.Y. (1978).
21. D. A. Zimnyakov, S. S. Volchkov, L. A. Kochkurov, A. F. Dorogov, A. S. Tokarev, A. A. Nikiforov, and N. S. Markova, Izvestiya of Sarat. Univ. Physics **21**(2), 145 (2021).
22. A. Penzkofer and Y. Lu, Chem. Phys. **103**(2–3), 399 (1986).
23. M. Meyer, J. C. Mialocq, and M. Rougee, Chem. Phys. Lett. **150**(5), 484 (1988).
24. D. A. Zimnyakov, S. A. Yuvchenko, M. V. Pavlova, and M. V. Alonova, Opt. Express, **25**(13), 13953 (2017).
25. А. П. Иванов, И. Л. Кацев, Квантовая электроника **35**(7), 670 (2005) [A. P. Ivanov and I. L. Katsev, Quantum Electron. **35**(7), 670 (2005)].