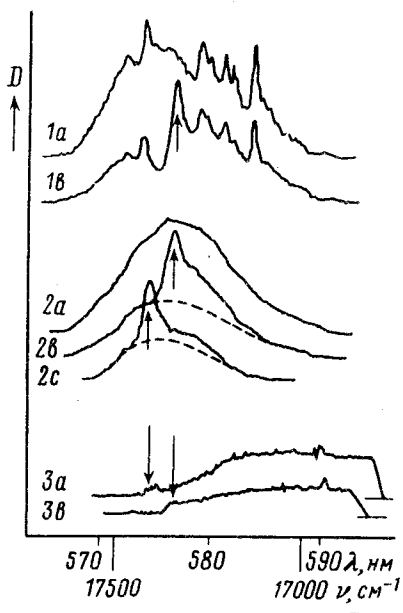


О ФОРМЕ СПЕКТРОВ ВЫНУЖДЕННОГО ВТОРИЧНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ РАСТВОРОВ КРАСИТЕЛЕЙ

Б. С. Непорент, А. Г. Спиро, В. Б. Шилов, Б. Д. Файнберг

Показано, что характер спектров РВКР красителей ("провал-линия"), наблюдаемых на фоне широкой полосы их свертлюминесценции, не связан с молекулярными процессами, а обусловлен особенностями распространения в усиливающей среде любого узкополосного сигнала, расположенного в области наложения полос ее свертлюминесценции и слабого поглощения.

В исследованиях [1 — 3] резонансного комбинационного рассеяния при лазерном возбуждении замороженных и жидких растворов полиметинковых и ксантеновых красителей была установлена особая форма спектров вторичного свечения. На фоне сплошной полосы свертлюминесценции (СЛ) в этих спектрах наблюдаются линии стоксового резонансного вынужденного комбинационного рассеяния, (РВКР) сопровождаемые провалами с высокочастотной стороны (т. е. со стороны малых частот молекулярных колебаний, участвующих в комбинационном рассеянии). Типичный спектр такого рода для раствора родамина-6Г в этаноле показан по нашим данным на рисунке (кривая 1, а) сверху. Возможным причинам появления таких спектров посвящено около двух десятков работ, во многих из которых характерная форма спектров "провал-линия" связывалась с интерференцией состояний, ответственных за переходы, или с влиянием релаксационных процессов, ограничивающих скорость освобождения или заселения этих состояний, или с обращенным комбинационным рассеянием или, наконец, с четырехфотонными параметрическими процессами. В [4] мы показали, что ни одно из рассматриваемых объяснений не может рассматриваться как непротворочивое.



Микрофотограммы спектров. Стрелками указаны положения частот "линий" ν_c узкополосного излучения

В предлагаемом сообщении показано, что своеобразие формы рассматриваемых спектров вторичного свечения является следствием особенностей распространения и усиления в инвертированной сверхлюминесцирующей среде любого независимого узкополосного сигнала, расположенного в области широкого спектра СЛ $S^* \rightarrow S_0$, при условии, что в этой же области существует некоторое небольшое поглощение $S_0 \rightarrow S^*$. В рассмотренных в [1 – 4] системах это условие соблюдается вследствие сильного перекрытия равновесных спектров поглощения и люминесценции.

Обратимся к экспериментальным доказательствам сформулированного положения.

На рисунке (кривая 1, а) показан обсуждаемый спектр вторичного свечения раствора родамина-6G в этаноле, возбужденный мощным ($\Phi_e \approx 10^{25} - 10^{26}$ квант/см² · сек) импульсом удвоенной частоты излучения неодимового лазера ($\nu_e \approx 18800$ см⁻¹). При этой частоте возбуждения линии РВКР, отвечающие частотам молекулярных колебаний $\nu^v = 1067 - 1652$ см⁻¹, накладываются на спектр СЛ раствора. В эксперименте были приняты все меры (см. [5]) для исключения собственной интерференционной структуры спектра сверхлюминесценции. При возбуждении утроенной частотой Nd-лазера ($\nu_e \approx 28200$ см⁻¹) спектр комбинационного рассеяния (РВКР) располагается далеко вне области СЛ, гладкий спектр которой показан на рисунке (кривая 2 а).

Для имитации линии комбинационного рассеяния мы ввели в возбуждающую радиацию $\nu_e \approx 18800$ см⁻¹ дополнительное узкополосное излучение от перестраиваемого лазера на красителе ($\nu_c \approx 17340$ см⁻¹, $\Delta\nu_c \approx 30$ см⁻¹, $\Phi_c \approx 10^{24}$ квант/см² · сек). При этом на спектр сверхлюминесценции накладывается еще и рассеянная "линия" $\nu_c \approx 17340$ см⁻¹, сопровождаемая таким же характерным "провалом", как и окружающие ее линии РВКР (рисунок (кривая 1 в)). Если добавлять узкополосное излуче-

ние ν_c к возбуждающей радиации $\nu_c \approx 28200 \text{ см}^{-1}$, то гладкий спектр СЛ существенно ослабляется (см. рисунок (пунктирные кривые 2 b и 2 c)) и на него накладывается излучение, состоящее из рассеянной узкополосной "линии", резко ограниченной со стороны коротких длин волн и имеющей своеобразное крыло со стороны длинных (см. рисунок (кривые 2 b для $\nu_c \approx 17340 \text{ см}^{-1}$ и 2 c для $\nu_c \approx 17410 \text{ см}^{-1}$). Наконец, на рисунке (кривые 3 a и 3 b) показаны спектры "крыльев", возбуждаемых "линиями" $\nu_c \approx 17340 \text{ см}^{-1}$ или $\nu_c \approx 17410 \text{ см}^{-1}$, полученные без накачки излучениями ν_c . Мощность $\Phi_c \approx 10^{24}$ квант/см²·сек узкополосного излучения достаточна для получения инверсии, хотя и относительно невысокой.

Механизм рассматриваемых явлений сводится к следующему.

Сигналы вторичного излучения (РВКР и СЛ) образуются в результате усиления в инвертированной среде распространяющихся вдоль длины кюветы составляющих флуоресценции и комбинационного рассеяния, зарождающихся независимо друг от друга во всем активном объеме при его возбуждении (поперечно длине кюветы). Наибольшее усиление испытывают сигналы, зародившиеся на краю кюветы, противоположном выходному окну и пробегающие наибольший путь в активной среде, в которой они преобразуются в вынужденные (РВКР и СЛ). Существенно, что согласно [6] распределение инверсии вдоль длины сверхлюминесцирующего раствора имеет острый максимум в середине кюветы и падает до невысоких значений к ее краям. Малой инверсии в области краёв, где в основном формируется вторичное излучение, соответствуют относительно высокие значения коэффициента поглощения раствора. После поглощения сигналы РВКР и СЛ испытывают различные преобразования: сигнал СЛ испускается заново, а каждая линия РВКР, поглощаясь, преобразуется в полосу СЛ, смещенную в красную сторону в соответствии с формой кривой усиления при малой инверсии. Это иллюстрируется кривыми 3 a и 3 b рисунка для двух "линий".

По мере распространения сигналов к центру кюветы при наличии мощной накачки все три сигнала (первичные "линии" и СЛ, а также реэмиттированная СЛ) усиливаются, причем максимумы полос смещаются в синюю сторону соответственно форме спектра усиления при высокой инверсии. Полосы вторичной СЛ приближаются при этом к возбуждающим их линиям. Эта ситуация показана на рисунке кривыми 2 a (спектр СЛ в отсутствие "линий"), 2 b и 2 c (спектр собственно СЛ ослаблен за счет потери части инверсии на усиление "линий", на него наложены линии с красными крыльями, обусловленными вторичной СЛ).

Легко понять после изложенного, что наблюдаемый спектр РВКР + СЛ (кривая 1 a рисунка) состоит из ослабленной сплошной полосы СЛ, на которую наложен ряд линий РВКР с их крыльями. Мысленная экстраполяция в ранних работах краев спектра СЛ к его середине создавала иллюзию сплошного спектра СЛ с провалами.

Литература

- [1] Я.С.Бобович, А.В.Борткевич. Оптика и спектроскопия, **26**, 1060, 1969.
- [2] M.Pfieffer, A.Lau, H.Y.Weigmann, K.Lenz. Opt. Commun., **6**, 284, 1972.
- [3] P.P.Kircheva. Доклады Болг. Акад. Наук, **26**, 27, 1973.
- [4] Б.С.Непорент, А.Г.Спиро, В.Б.Шилов, Г.Н.Антоневич. Тезисы докладов IX Всесоюзной конференции по когерентной и нелинейной оптике, 1978, часть II, стр. 189.
- [5] В.Б.Шилов. Б.С.Непорент, А.Г.Спиро, Г.Н.Антоневич. Оптика и спектроскопия, **44**, 598, 1978.
- [6] G.Dujardin, P.Flamant. Opt. Commun., **24**, 243, 1978.
-