

*На правах рукописи*

Кибиткин Павел Павлович

**ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ  
НАНО- И ФЕМТОСЕКУНДНОЙ ДЛИТЕЛЬНОСТИ  
С ОРГАНИЧЕСКИМИ КРАСИТЕЛЯМИ В ЖИДКОКАПЕЛЬНОЙ  
ФОРМЕ**

01.04.05 – Оптика

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Томск – 2005

Работа выполнена в Томском государственном университете и Сибирском физико-техническом институте имени академика В.Д. Кузнецова, г. Томск.

Научный руководитель: кандидат физико-математических наук  
Землянов Ал. А.

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук  
Погодаев В.А.

кандидат физико-математических наук  
Соснин Э.А.

Ведущая организация: Институт мониторинга климатических и  
экологических систем СО РАН.

Защита состоится «09» июня 2005 г. в 14 час. 30 мин. на заседании диссертационного совета Д 212.267.04 при Томском государственном университете (634050, г. Томск, пр. Ленина 36), ауд. 119.

С диссертацией можно ознакомиться в Научной библиотеке Томского государственного университета.

Автореферат разослан «6» мая 2005.

Ученый секретарь  
диссертационного совета

/Б. Н. Пойзнер/

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

**Актуальность темы.** Создание в середине восьмидесятых годов XX века фемтосекундных лазерных генераторов [1, 2] стимулировало формирование ряда новых направлений современной физики и технологии, успешное развитие которых требует всестороннего изучения особенностей взаимодействия фемтосекундного излучения с веществом, в частности, многофотонного взаимодействия с веществом в виде мелкодисперсной фракции.

Реализация высокоинформативных каналов оптической связи в атмосфере ставит задачу изучения многофотонного взаимодействия фемтосекундного излучения с дисперсными средами, составляющими атмосферный аэрозоль, поскольку из-за короткого времени воздействия излучения и его высокой интенсивности ( $10^{10} \div 10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup> и более) существует большая вероятность проявления в атмосфере именно многофотонных процессов. Совершенствование методов лидарного флуоресцентного зондирования аэрозольных образований органического происхождения с использованием лазеров фемтосекундных импульсов требует изучения особенностей процессов люминесценции аэрозолей с органическими молекулами при фемтосекундном возбуждении [3]. Развитие методов фемтосекундного лазерного управления физико-химическими процессами [4] и рождение на их основе реальных технологий требует исследования селективного многофотонного поглощения фемтосекундного излучения молекулами вещества, в ряде случаев находящегося в дисперсной форме. Совершенствование систем передачи и обработки оптической информации с целью повышения быстродействия и компактности оптических элементов делает актуальными исследования взаимодействия излучения фемтосекундной длительности с такими объектами как микроволокна и диэлектрические резонаторы микронных размеров [5]. Впечатляющие достижения последних лет в области создания сверхнизкопороговых лазерных микроизлучателей на основе сферических микрорезонаторов с фрактальными наноструктурами из благородных металлов [6] делают актуальными дальнейшие работы по изучению возможностей создания быстродействующих преобразователей частоты, в том числе и на основе многофотонных процессов.

Следует особо подчеркнуть, что вышеупомянутые объекты воздействия фемтосекундного излучения – дисперсные среды – сами по себе являются специфическими физическими объектами. Специфика их состоит в том, что сферические частицы являются высокодобротными микрорезонаторами, в которых реализуются морфологические резонансы или моды шепчущей галереи [5]. Это приводит к резкому увеличению в их объеме интенсивностей воздействующих оптических полей и, как следствие, появлению своеобразных особенностей протекания в них нелинейно-оптических процессов, из которых можно выделить факт значительного понижения энергетических порогов таких процессов, как оптический пробой в результате многофотонной ионизации, лазерная генерация при многофотонном поглощении и пр. Несмотря на то, что исследования оптических процессов в сферических частицах и каплях ведутся интенсивно уже в течение четверти века, изучению многофотонного взаимодействия лазерного излучения фемтосекундной длительности с такими объектами посвящено относительно малое количество работ, что было связано с малодоступностью соответствующей аппаратуры.

Таким образом, задача исследования многофотонных оптических процессов в сферических частицах при фемтосекундном возбуждении представляется весьма **актуальной**. Имеющиеся даже на сегодняшний день экспериментальные данные дают относительно скудные и разрозненные представления об особенностях многофотонных процессов и люминесценции в аэрозолях и каплях с органическими молекулами. Недостаток количественных экспериментальных данных затрудняет построение моделей взаимодействия фемтосекундного излучения с аэрозолями и каплями.

### **Цель и задачи исследований.**

**Цель** диссертационной работы: экспериментальное исследование люминесценции красителей в жидкокапельной форме при возбуждении лазерными импульсами нано- и фемтосекундной длительности.

Для реализации поставленной **цели** решались следующие **задачи**:

1. Экспериментальное изучение основных закономерностей вынужденной люминесценции (ВЛ) красителей в жидкокапельной форме при однофотонном поглощении наносекундных лазерных импульсов.

2. Экспериментальное исследование вынужденной люминесценции и возникающих нелинейно-оптических эффектов при двухфотонном поглощении ИК-излучения наносекундной длительности в каплях с красителем.

3. Экспериментальные исследования взаимодействия высокоинтенсивных (до  $10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup>) лазерных импульсов фемтосекундной длительности в жидкокапельной форме.

**На защиту выносятся следующие положения:**

1. Пространственные и энергетические характеристики вынужденной люминесценции в зоне шепчущей галереи в миллиметровой (радиуса  $r = 1 \pm 0,1$  мм) капле с раствором красителя Родамин 6Ж при облучении сфокусированными лазерными импульсами ( $\lambda = 1,06$  и  $0,53$  мкм,  $\tau \approx 10$  нс, диаметр пучка  $d = 100$  мкм) определяются зоной возбуждения капли.

2. Вынужденная люминесценция в зоне шепчущей галереи миллиметровых ( $r = 1 \pm 0,1$  мм) капель с раствором красителя Родамин 6Ж в этаноле при двухфотонном возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами ( $\lambda = 0,8$  мкм,  $\tau \approx 80$  фс) происходит при повышенной концентрации красителя (концентрация  $\sim 10^{-2}$  моль/л) и в диапазоне энергии фемтосекундных импульсов накачки  $1,5 \div 10$  мДж.

3. Уменьшение величины акустического сигнала от облучаемых фемтосекундными лазерными импульсами ( $\lambda = 0,8$  мкм,  $\tau \approx 80$  фс) миллиметровых капель ( $r = 1 \pm 0,1$  мм) с раствором красителя Родамин 6Ж в этаноле при увеличении концентрации красителя с  $10^{-3}$  моль/л до  $10^{-2}$  моль/л происходит совместно с развитием в капле вынужденной люминесценции.

4. Динамика спектрально-энергетической картины вынужденной люминесценции в миллиметровых каплях ( $r = 1 \pm 0,1$  мм) раствора красителя Родамин 6Ж в этаноле (концентрация  $\sim 10^{-2}$  моль/л) при облучении фемтосекундными импульсами ( $\lambda = 0,8$  мкм,  $\tau \approx 80$  фс,  $E = 10 \div 16$  мДж) состоит в трансформации двухгорбового спектра в узкополосный спектральный пик в районе максимума линии люминесценции Родамина 6Ж.

**Достоверность** результатов диссертационной работы обеспечивается их непротиворечивостью современным представлениям об основных физических процессах, хорошим согласием с результатами работ других авторов [7, 8] в случае близких совпадений условий экспериментов, а также воспроизводимостью полученных результатов. Результаты, касающиеся

наблюдения двухфотонно возбужденной люминесценции в миллиметровых каплях с красителем были независимо повторены и подтверждены другими авторами [9].

Часть результатов (наблюдение лазерной генерации на МШГ и её характеристик при разном соотношении размеров лазерного пучка и диаметра капли при однофотонном возбуждении лазерными импульсами наносекундной длительности) была воспроизведена автором в Институте прикладной Физики РАН (г. Нижний Новгород).

**Научная новизна** работы заключается в следующем:

1. В 1998 г. обнаружен коротковолновый сдвиг (9 нм) максимума спектра спонтанной люминесценции в капле раствора Р6Ж в дибутилфталате относительно максимума спектра люминесценции того же раствора в кювете при плотности мощности лазерных импульсов ( $\lambda = 0,53$  мкм) наносекундной длительности  $310 \text{ МВт/см}^2$  [1\*]<sup>К</sup>.
2. В 1999 г. осуществлена и исследована вынужденной люминесценции в подвешенных каплях с раствором Р6Ж при двухфотонном поглощении лазерного ИК-излучения ( $\lambda = 1,06$  мкм) наносекундной длительности [5\*].
3. В 2000 г. экспериментально показано, что энергетические пороги возбуждения вынужденной люминесценции в каплях Р6Ж при двухфотонном поглощении наносекундных лазерных импульсов ( $\lambda = 1,06$  мкм) определяются зоной возбуждения капли [10\*].
4. В 2004 г. получена вынужденная люминесценция в миллиметровых каплях с красителем при двухфотонном поглощении лазерного излучения фемтосекундной длительности ( $\lambda = 0,8$  мкм,  $\tau \approx 80$  фс) [15\*].
5. В 2004 г. получено аномальное уменьшение величины акустического сигнала при увеличении концентрации поглощающих и люминесцирующих молекул Р6Ж в миллиметровых каплях [15\*].

**Научная и практическая значимость работы.**

Результаты работы могут служить методической базой при изучении вопросов, связанных с люминесценцией органических молекул в сильных и нестационарных оптических полях, при разработке режимов оптимального функционирования нового класса оптических преобразователей на

---

<sup>К</sup> символом \* отмечены ссылки на список публикаций Кибиткина П.П.

базе микро- и наночастиц, при разработке методов фемтосекундного флуоресцентного зондирования аэрозольных образований органической природы. Проведенное в работе всестороннее изучение оптических свойств подвешенной люминесцирующей капли с органическими молекулами дает основание использовать такие объекты для исследования поведения вещества в жидкой фазе в условиях интенсивного ( $\sim 10^{10} \div 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup>) фемтосекундного возбуждения, т.е. в условиях образования суперконтинуума, оптического пробоя и других нежелательных нелинейно-оптических эффектов в стенках лабораторных кювет. Установленная в работе частичная тождественность физических процессов, происходящих в миллиметровой капле и в жидких аэрозольных частицах, дает возможность использовать подвешенные капли для моделирования процессов люминесценции в аэрозоле с органическими молекулами при условии, что размеры энергетических неоднородностей в сечении лазерного пучка больше размеров капли.

#### **Апробация диссертации.**

Основные результаты работы докладывались на XXVI-th General Assembly of URSI, Toronto, Canada, 1999; III International Conference of Atomic and Molecular Pulsed Lasers, Tomsk, Russia, 1999; International Conference "Laser 99", Quebec, Canada, 1999; 6-ом Международном симпозиуме "Оптика атмосферы и океана", Томск, ИОА СО РАН, 1999; XXXVIII Международной научной студенческой конференции, Новосибирск, 2000; 5-th Russian-Chinese Symposium on Laser Physics and Technologies, Tomsk, Russia, 2000; VIII Международном симпозиуме "Оптика атмосферы и океана", Томск, 2000; IX International Scientific and Practical Conference of students, Post-graduates and Young Scientists "Modern techniques and technologies", Tomsk, 2003; Региональной конференция студентов, аспирантов и молодых ученых Владивосток, 2004; 7-th Russian- Chinese Symposium on Laser Physics and Technologies, Tomsk, Russia, 2004; I Всероссийской конференции «Физика и химия высокоэнергетических систем», Томск, Россия, 2005.

#### **Публикации**

По теме диссертации опубликовано 3 статьи в отечественных и зарубежном журналах, 1 статья в тематическом сборнике SPIE, 10 в сборниках трудов конференций.

### **Структура и объем работы.**

Диссертация состоит из Введения, 3 глав, заключения и списка литературы, содержащего 111 наименований. Общий объем диссертации 107 страниц, включая 45 рисунков.

### **СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

**Во введении** обоснована актуальность темы, сформулирована цель работы, изложены новые научные результаты и положения, выносимые на защиту.

**Первая глава** носит обзорный характер. В ней даются представления о структуре оптического поля в диэлектрических сферах. Приводится интерпретация особенностей структуры оптических полей на основе приближения геометрической оптики. Изложено описание резонансных явлений в сферической частице, являющихся важной предпосылкой появления нелинейных эффектов. Обсуждаются специфические особенности протекания нелинейных оптических эффектов в сферических частицах в сравнении со сплошной средой. На основании обзора проведенных к настоящему времени работ приводится качественное описание процессов вынужденного рассеяния и вынужденной люминесценции в сферических частицах. Во всех экспериментах по исследованию упомянутых эффектов в микронных частицах наблюдаются аномально низкие пороги их возникновения по сравнению со сплошной средой, а также характерная пиковая структура спектра вынужденного излучения, определяющаяся размерами частицы. Это открывает широкие перспективы для создания на базе сферических частиц высокоэффективных микроизлучателей и преобразователей частоты оптического излучения.

Основным физическим фактором возникновения этих особенностей являются способность сферических частиц фокусировать в своем объеме падающее излучение и наличие в ней собственных высокодобротных резонансных мод. Это приводит к созданию локальных оптических полей, интенсивность которых может на порядки величины превышать интенсивность падающего поля [5]. В сделанном автором обзоре отмечается, что, хотя лазерная генерация одиночных сферических частиц с красителем получена в середине 80-х годов XX века [11], основное внимание в работах



по этой тематике посвящено изучению спектральных свойств возникающей генерации на модах шепчущей галереи (МШГ) частицы и практически не изучаются энергетические и пространственные характеристики свечения капли. В то же время, к началу работы над диссертацией в литературе шла оживленная дискуссия по поводу наблюдающегося в экспериментах аномально высокого роста интенсивности люминесценции красителей при увеличении интенсивности накачки. В [8] аномальное поведение излучающих центров связывается с изменением вероятности спонтанного излучения, в [12] – с возрастанием квантового выхода люминесценции, в [13] – с механизмом коллективного взаимодействия излучающих молекул в сильном лазерном поле.

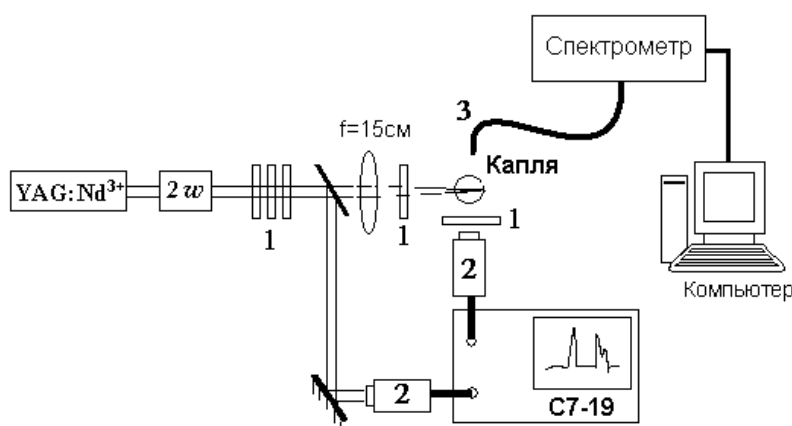
Вышесказанное ставит задачу более широкого изучения особенностей излучения молекул красителя в сферических частицах при интенсивных накачках.

**Вторая глава** посвящена описанию и анализу результатов выполненных автором экспериментов по исследованию спектрально-энергетических, временных и пространственных характеристик свечения капель и аэрозоля с красителем при однофотонном поглощении лазерных импульсов наносекундной длительности.

Цель исследований, описанных во второй главе, состояла в установлении основных количественных закономерностей протекания люминесценции в каплях и аэрозоле с органическими молекулами красителя с тем, чтобы отработать и обеспечить методическую базу для исследования особенностей люминесценции растворов органических молекул в жидкокапельной форме при фемтосекундном возбуждении. Фотография светящейся капли при наносекундном возбуждении представлена на рис. 1. В описанных во второй главе экспериментах использовалась установка, представленная на рис. 2, где в качестве источника наносекундных импульсов использовался лазер на гранате с неодимом. Максимальная энергия излучения на длине волны  $\lambda = 1,06$  мкм, измеряемая ИМО-2Н, составляла  $40 \div 50$  мДж, на длине волны  $\lambda = 0,53$  мкм – 10 мДж. Длительность импульса по основанию составляла  $\sim 10$  нс. Спектры свечения красителя в жидкокапельном состоянии регистрировались спектрографом Spectrastar S150



**Рис. 1.** Фотография светящейся миллиметровой капли с Р6Ж при продольной накачке сфокусированным лазерным пучком ( $\lambda=532$  нм,  $\tau=10$ нс)

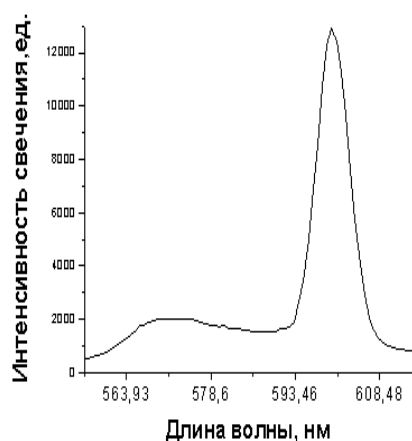


**Рис. 2.** Экспериментальная установка для исследования спектральных, временных и энергетических характеристик свечения подвешенной миллиметровой капли при возбуждении лазерными импульсами ( $\lambda=532$  нм,  $\tau=10$ нс).  
1 – Фильтры, 2 – ФЭК-40, 3 – Световод ( $d=100$  мкм)

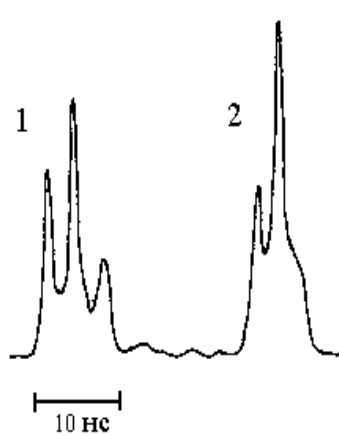
(спектральное разрешение 0,44 нм, рабочий спектральный диапазон 200 – 1100 нм) с последующей передачей, обработкой и воспроизведением результатов на персональном компьютере. Для регистрации спектра особо слабого свечения использовался монохроматор на базе спектрометра ДФС-452 с разрешением 1 нм и ФЭУ-79.

Исследование люминесценции при облучении погруженных в воду (для придания наибольшей сферичности) каплей (радиус  $1 \pm 0,1$  мм) из дибутилфталата с раствором красителя Родамин 6Ж показали, что максимум спектра спонтанной люминесценции сдвинут в коротковолновую область при облучении капли наносекундными импульсами ( $\lambda = 0,53$  мкм, плотность мощности  $310$  МВт/см<sup>2</sup>) на 9 нм по сравнению со спонтанной люминесценцией такого же раствора в кювете [1\*]. Получена зависимость наблюдаемого спектрального сдвига от плотности мощности возбуждающего излучения и дано объяснение обнаруженной спектральной особенности, состоящее в деформации спектра спонтанной люминесценции молекул красителя из-за эффекта насыщения поглощения. Проведение экспериментов с полидисперсным аэрозолем этанольного раствора Родамин 6Ж (диаметр частиц 3 – 40 мкм) показали наличие аналогичного спектрального сдвига при тех же условиях возбуждения. Эксперименты по изучению характеристик свечения подвешенных на капилляре каплей (радиус  $1 \pm 0,1$  мм) выполнены с растворами различных красителей: Родамин 6Ж (Р6Ж),

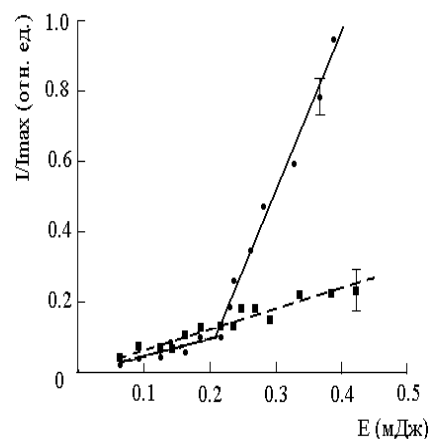
Родамин С, 6-аминофеналенон, феналемин 512, CF3-ОФ в воде, этаноле, дибутилфталате (ДБФ). Было показано, что, начиная с некоторой пороговой энергии накачки, спектры излучения капли имеют характерную двугорбую структуру, причем первый, коротковолновый спектральный пик относится к спонтанной люминесценции, идущей из объема капли, а второй, длинноволновый является спектром вынужденной люминесценции (ВЛ) в зоне шепчущей галереи в приповерхностном слое капли (рис. 3). В пользу последнего утверждения говорят результаты проведенных автором исследований энергетических, временных и пространственных характеристик свечения возбужденной капли с красителем. А именно, длительность импульса излучения второго спектрального пика не превосходит длительности импульса лазерной накачки (рис. 4), зависимость интенсивности свечения длинноволнового спектрального пика от энергии накачки имеет характерный для лазерной генерации пороговый характер (рис. 5),



**Рис.3.** Типичный спектр свечения миллиметровой капли с Р6Ж



**Рис. 4.** Типичные осциллограммы:  
1 – излучения лазера ( $\lambda=532$  нм). 2– свечения из приповерхностной области капли



**Рис. 5.** Энергетические характеристики свечения капли от энергии накачки:  
■ ■ ■ – первый пик,  
● ● ● – второй пик

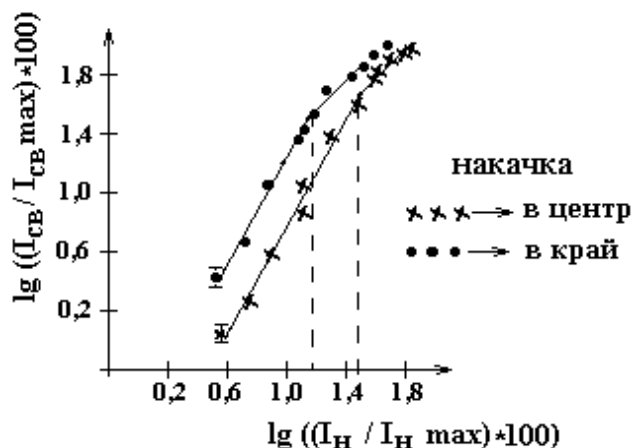
с ростом энергии накачки происходит заметное сужение ширины второго спектрального пика (до  $\sim 10$  нм) [8\*,10\*,12\*,15\*]. Все отмеченные признаки характерны для вынужденной люминесценции в растворах красителей. Автор экспериментально доказывает, что длинноволновая локализация спектра ВЛ в каплях радиуса 1мм вызвана эффектом реарбсорбции моле-

кулами красителя. Результаты проведенных измерений энергетических и спектральных характеристик свечения полидисперсного аэрозоля с красителем качественно совпадают с аналогичными характеристиками для миллиметровых капель, что свидетельствует о схожести протекания ВЛ в микронных сферических частицах и подвешенных каплях диаметром 1 – 2мм.

Показано, что диаграмма направленности ВЛ в каплях с красителем существенно вытянута вперед и имеет минимум в направлении, перпендикулярном направлению излучения накачки.

**В третьей главе** приводятся результаты экспериментальных исследований люминесценции в миллиметровых каплях с красителем Р6Ж в этаноле (концентрация  $\sim 10^{-3}$  моль/л) и дибутилфталате при многофотонном (в общем случае) поглощении ИК-излучения наносекундной и фемтосекундной длительности. В экспериментах по исследованию двухфотонно возбужденной люминесценции (ДФВЛ) в каплях красителя при наносекундном возбуждении использовался лазер на гранате с неодимом, генерирующий импульсы на длине волны 1,06 мкм, длительностью до 10 нс и плотностью мощности в сфокусированном пучке до 2 ГВт/см<sup>2</sup>. Показано, что начиная с плотности мощности возбуждающего импульса 80 МВт/см<sup>2</sup> при фокусировке излучения накачки в центр капли раствора Р6Ж в ДБФ спектр свечения капли с выраженными коротковолновым и длинноволновым пиками аналогичен спектру свечения капли, излучающей в режиме генерации на МШГ при однофотонном поглощении излучения накачки ( $\lambda=0,53$  мкм) [11\*]. При этом длительность излучения, относящегося к длинноволновому спектральному пику, не превосходит длительности импульса накачки, в то время как длительность коротковолнового пика составляет приблизительно 20 нс, что совпадает с измерениями длительности спонтанной ДФВЛ в кювете.

Анализ зависимости величины сигнала свечения капли, относящегося к длинноволновому пику, показывает, что при плотности мощности накачки 80 МВт/см<sup>2</sup> характерная для спонтанной люминесценции при двухфотонном поглощении квадратичная зависимость величины второго спектрального пика переходит в зависимость, близкую к линейной, что является признаком перехода спонтанной люминесценции в вынужденную.



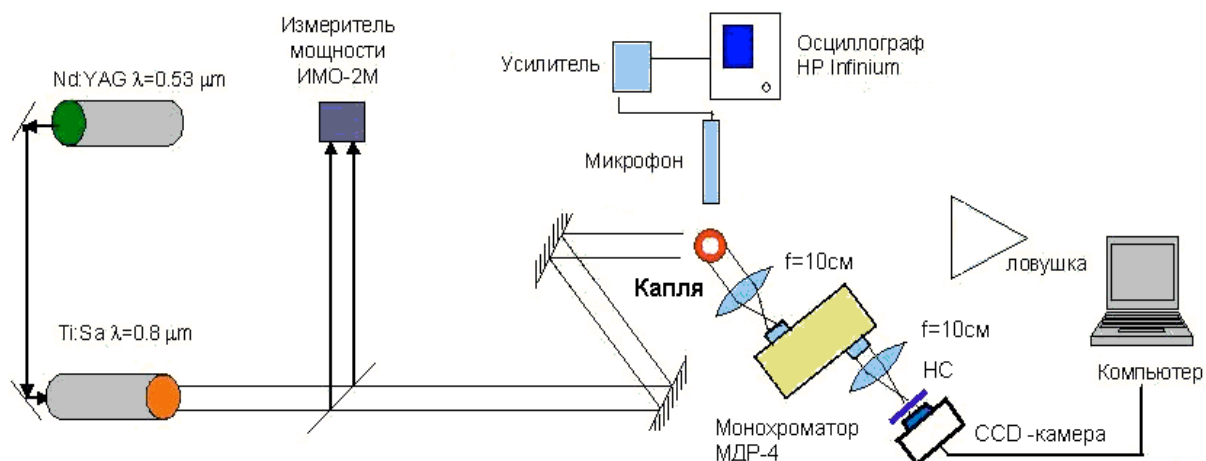
**Рис. 6.** Зависимость интенсивности ДФВЛ при различной геометрии возбуждения

При этом энергетические пороги перехода квадратичной зависимости в линейную для раствора Р6Ж в этаноле при накачке сфокусированным пучком в край капли в два раза ниже, чем в центр, что объясняется локализацией высоко-добротных мод капли-резонатора в её приповерхностной области (рис. 6).

Таким образом, при выполнении пороговых условий в капле с красителем Р6Ж (концентрация  $\sim 10^{-3}$  моль/л) радиусом 1 мм при двухфотонном возбуждении лазерными импульсами наносекундной длительности реализуется вынужденная люминесценция в зоне шепчущей галереи. Характерным признаком ВЛ в зоне шепчущей галереи миллиметровой капли с Р6Ж является локализация спектра генерации в длинноволновом крыле линии люминесценции Р6Ж.

Во второй части **третьей главы** приводится описание и анализ результатов экспериментов по исследованию особенностей взаимодействия лазерных импульсов фемтосекундной длительности с подвешенными каплями этанольного раствора Р6Ж.

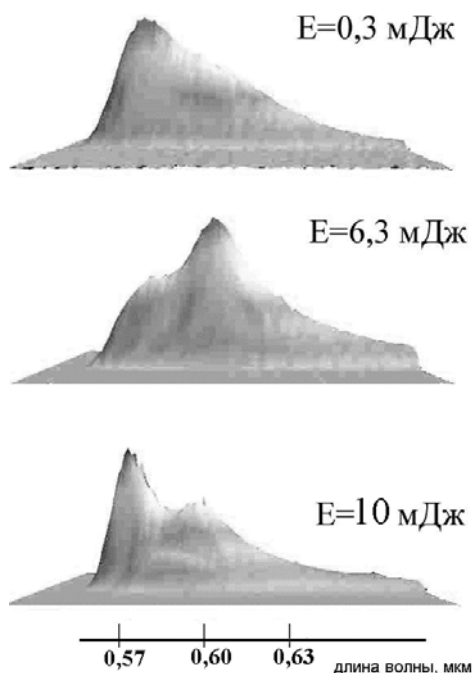
Эксперименты проводились автором в Институте прикладной физики РАН с использованием лазерного комплекса (рис. 7) с активными элементами на основе титан-сапфировых кристаллов со следующими характеристиками: основная длина волны излучения  $\lambda = 0,8$  мкм, длительность импульса  $\tau_{\text{и}} \approx 80$  фс, энергия в импульсе  $E_{\text{и}} < 17$  мДж, ширина спектрального излучения по полувысоте  $\Delta\lambda \sim 25$  нм [10]. Размер пучка  $d = 8$  мм. Распределение энергии по сечению пучка близко к гауссову.



**Рис. 7.** Экспериментальная установка для исследования спектральных, энергетических и акустических характеристик подвешенной миллиметровой капли при возбуждении лазерными импульсами ( $\lambda = 0,8 \text{ мкм}$ ,  $\tau \approx 80 \text{ фс}$ )

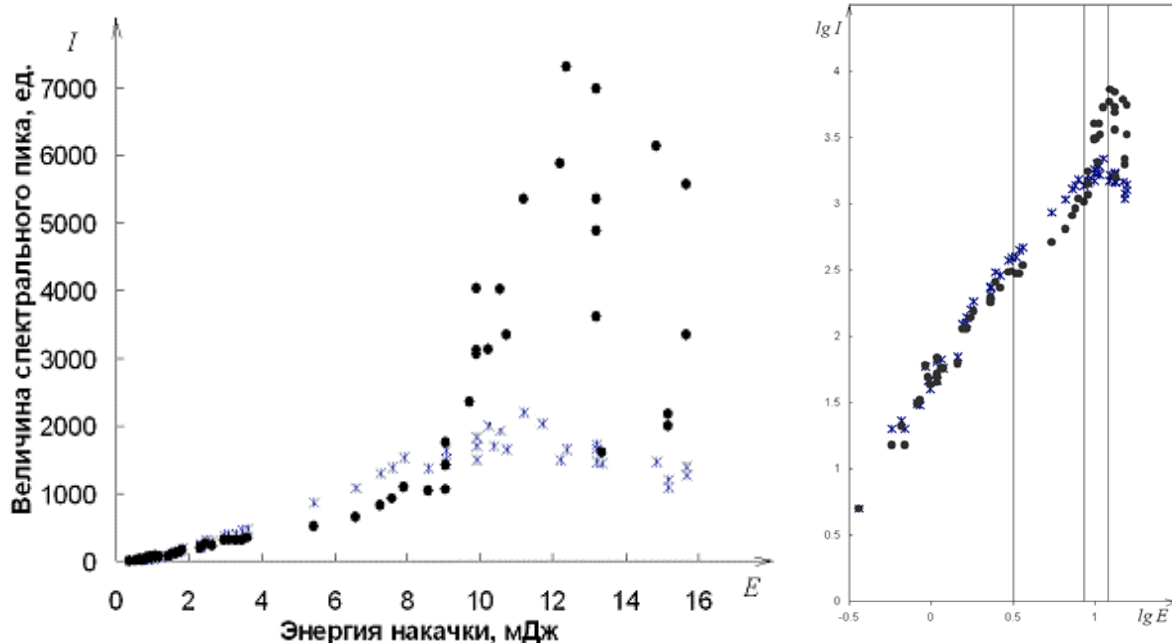
Спектр возбуждаемой люминесценции регистрировался под углом  $45^\circ$  к направлению возбуждающего излучения с помощью монохроматора МДР-4 с дифракционной решеткой 600 штр/мм и CCD камеры размером  $4,8 \times 6,4 \text{ мм}$  ( $240 \times 320$  пикселей). Весь цикл измерений сопровождался измерениями акустических откликов от возбуждаемой капли. Канал регистрации акустических сигналов имел линейный частотный диапазон 2 – 100 кГц.

Установлено, что спектры свечения капли этанольного раствора Р6Ж с концентрациями  $10^{-4} \div 10^{-3}$  моль/л во всем диапазоне энергий фемтосекундной накачки практически не отличаются от спектров спонтанной люминесценции капель с такими же растворами при низкоинтенсивной (до порога ВЛ) наносекундной накачке. Зависимость энергии свечения капли с указанным раствором от энергии фемтосекундных импульсов имеет квадратичный характер в диапазоне энергий  $0,3 \div 16 \text{ мДж}$ , что свидетельствует о реализации в этих каплях спонтанной люминесценции. При концентрации Р6Ж в этаноле  $\sim 10^{-2}$  моль/л спектр свечения капли резко меняется и приобретает характерную двугорбую структуру, причем в диапазоне энергий накачки  $2 \div 8 \text{ мДж}$  длинно-волновый пик превалирует над коротковолновым, но при дальнейшем повышении энергии накачки исчезает, а в спектре остается только коротковолновый пик, который приобретает неоднородную пиковую структуру (рис. 8).



**Рис. 8.** Спектры люминесценции капли с РБЖ при различной энергии фемтосекундного импульса накачки

На основании анализа полученных спектров и зависимости величин коротковолнового и длинноволнового спектральных пиков от энергии возбуждаемого излучения (рис. 9), автор доказывает, что два наблюдаемых пика имеют различную физическую природу – коротковолновый относится к суперлюминесценции в объеме капли, а длинноволновый к вынужденной люминесценции в зоне шепчущей галереи капли-резонатора. Основанием для сделанного утверждения служит спектральная локализация обоих пиков и наличие энергетического порога, при котором квадратичная зависимость (рис. 9) переходит в линейную.



**Рис.9.** а) Зависимость величины первого и второго спектральных пиков спектра люминесценции капли с РБЖ от энергии фемтосекундных импульсов (кружочки – коротковолновый пик, крестики – длинноволновый пик);  
 б) Зависимость логарифмов значений величины первого и второго спектральных пиков спектра люминесценции капли с РБЖ от логарифмов энергии фемтосекундных импульсов (кружочки – коротковолновый пик, крестики – длинноволновый пик)

Уменьшение величин коротковолнового и длинноволнового спектральных пиков спектра ВЛ в капле при увеличении энергии фемтосекундных импульсов (рис.9,а) от 12мДж до 16 мДж связано, очевидно, с фотодеградацией красителя в высокоинтенсивных лазерных полях. Наблюдаемый в этом диапазоне энергий импульсов столь сильный разброс значений величин спектральных пи-

**Рис. 10.** Зависимость величины акустического сигнала от капель при фемтосекундном возбуждении

ков, вызван, возможно, проявлением нелинейно-оптических эффектов, исследованиями которых автор не занимался.

В результате исследований акустических откликов от капель показано, что для капель с чистым этанолом и раствором Р6Ж в этаноле с концентрацией не выше  $10^{-3}$  моль/л величины акустических сигналов практически совпадают (рис. 10). Увеличение концентрации Р6Ж до  $10^{-2}$  моль/л приводит к резкому уменьшению акустических сигналов, начиная с энергии импульсов накачки 1,5 мДж, что соответствует пороговым значениям вынужденной люминесценции в капле (рис. 9). Автор объясняет наблюдаемое уменьшение акустического давления при увеличении поглощающих (и люминесцирующих) центров уменьшением вероятности многофотонной ионизации молекул. Уменьшение многофотонной ионизации (т.е. исходной физической причины возникновения акустической волны при фемтосекундном возбуждении) вызвано, по мнению автора, включением механизма быстрой релаксации (опустошения) посредством вынужденного излучения возбужденного уровня  $S_1$  молекул Р6Ж.

В **Заключении** сформулированы основные научные результаты диссертационной работы.



## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

1. Установлено, что энергетические и пространственные характеристики вынужденного излучения в миллиметровой капле определяются зоной возбуждения капли.
2. Показано, что подвешенная на капилляре капля с раствором органического красителя может быть использована для моделирования процессов люминесценции в аэрозольных частицах в силу схожести проявлений в них процессов люминесценции, в том числе и вынужденной.
3. Установлено, что возникающая в каплях радиусом 1 мм раствора Р6Ж в ДБФ вынужденная люминесценция при двухфотонном поглощении лазерного излучения наносекундной длительности проявляет себя аналогично вынужденной люминесценции при однофотонном поглощении лазерного излучения наносекундной длительности.
4. Показано, что реализация вынужденной люминесценции в зоне шепчущей галереи миллиметровой капли с раствором Р6Ж в этаноле при двухфотонном поглощении излучения фемтосекундной длительности на длине волны 0,8 мкм возможна при концентрации красителя не ниже  $10^{-2}$  моль/л и в диапазоне энергий возбуждающих импульсов  $1,5 \div 12$  мДж.
5. Обнаружено уменьшение величины акустического давления от возбуждаемых фемтосекундными лазерными импульсами ( $\lambda = 0,8$  мкм,  $\tau \approx 80$  фс) миллиметровых капель с раствором красителя Р6Ж при увеличении концентрации красителя с  $10^{-3}$  моль/л до  $10^{-2}$  моль/л в диапазоне энергий  $1,5 \div 10$  мДж.
6. Показано, что при возбуждении миллиметровых капель ( $r = 1 \pm 0,1$  мм) раствора органического красителя Родамин 6Ж в этаноле (концентрация  $\sim 10^{-2}$  моль/л) при облучении фемтосекундными импульсами ( $\lambda = 0,8$  мкм,  $\tau \approx 80$  фс) с энергией  $1,5 \div 12$  мДж в капле реализуются два процесса вынужденной люминесценции: суперлюминесценция в объеме капли и вынужденная люминесценция в зоне шепчущей галереи.
7. Обнаружен коротковолновый сдвиг (9 нм) максимума спектра спонтанной люминесценции в капле раствора Р6Ж в дибутилфталате относительно максимума спектра люминесценции того же раствора в кювете при плотности мощности лазерных импульсов наносекундной длительности ( $\lambda = 0,53$  мкм)  $310 \text{ МВт/см}^2$ .

### Цитируемая литература

1. Strickland D., Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses // *Opt. Commun.* 1985. V.56. P.219.
2. Mourou G. The ultrahigh-peak power laser: present time and future // *Appl. Phys. B.* 1997. V.65. P.205.
3. Mejean G., Kasparian J., Ju J., Frey S., Salmon E., Wolf J. Remote detection and identification of biological aerosols using a femtosecond terawatt lidar system // *Appl. Phys.* 2004. V.78. P. 532–537.
4. Саркисов О.М., Уманский С.Я. Фемтохимия // *Успехи химии.* 2001. Т.70. С. 515–538.
5. Ораевский А.Н. Волны шепчущей галереи // *Квантовая электроника.* 2002. Т.32. №5. С.377–401.
6. Карпов С.В., Слабко В.В. Оптические и фотофизические свойства фрактально-структурированных золей металлов. Новосибирск. Изд-во СО РАН. 2003. с. 265.
7. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Чистякова Е.К. Угловые характеристики поля вынужденного рассеяния при многомодовой генерации в сферических частицах // *Оптика атмосферы и океана.* 1998. Т. 12, №7, С. 599–605.
8. Клочков В.П., Верховский Е.Б. О механизме возбуждения некогерентной сверхфлуоресценции // *Оптика и спектроскопия,* 1993. Т. 75, В 6. С. 1183–1187.
9. Светличный В.А., Копылова Т.Н. Двухфотонно возбуждаемая генерация феналемина 512 в растворах, полимерных матрицах и каплях // *Оптика атмосферы и океана.* 2003. Т. 16, №10. С. 952–957.
10. Бабин А.А., Киселев А.М., Сергеев А.М., Степанов А.Н. Тераваттный фемтосекундный титан-сапфировый лазерный комплекс // *Квантовая электроника.* 2001. Т.31, №7. С. 623–626.
11. Qian S.X., Snow J.B., Tzeng H.M., Chang R.K. Lasing droplets: Highlighting the liquid-air interface by laser emission // *Science* 1986. V. 231, № 4737. P. 486–488.
12. Ермолаева Г.М., Грегг В.Г., Смирнов В.А., Шилов В.Б. К вопросу об аномальной флуоресценции ансамблей оптических центров в поле интенсивной лазерной накачки // *Оптика и спектроскопия.* 1998. Т. 84, №3 С. 393–397.

13. Клочков В.П., Верховский Е.Б. Коллективное испускание молекул родамина 6Ж в жидком резонаторе // Оптика и спектроскопия. 1998. Т. 85, №3. С. 427–433.

**Основные материалы диссертации опубликованы в работах:**

1\*. Донченко В.А., Землянов А.А., Землянов Ал.А., Копылова Т.Н., Кибиткин П.П. Спектры флуоресценции в жидких частицах с красителем при интенсивной лазерной накачке // Оптика атмосферы и океана. 1998. Т. 12, №1. С. 36–38.

2\*. Donchenko V. A., Zemlyanov A. A., Zemlyanov Al. A., Kibitkin P.P. Bichromatic Laser Induced Dye Fluorescence in Drop // XXVI-th General Assembly of URSI. Books of Abstracts. Canada, 1999. P.190

3\*. Землянов Ал.А., Кибиткин П.П. Флуоресценция капель с красителем при возбуждении ИК излучением // II Межвузовская научно-практическая конференция студентов и молодых ученых, труды. Томск, 1999. С. 24–26

4\*. Донченко В.А., Землянов А.А., Землянов Ал.А., Кибиткин П.П. Спектральные временные характеристики свечения капель с красителем при интенсивном лазерном возбуждении //6-ой Международный симпозиум “Оптика атмосферы и океана”. Тезисы докладов. Томск. ИОА СО РАН. 1999. С.162

5\*. Donchenko V. A., Zemlyanov A. A. Zemlyanov Al. A., Kibitkin P.P. Dichromatic Laser Induced Dye Fluorescence in Drop by IR and Visible Laser Radiation // International Conference “Lasers 99”. Technical Digest. Quebec, Canada. 1999. P. 35.

6\*. Землянов Ал.А., Кибиткин П.П. Вынужденная двухфотонно возбуждаемая флуоресценция в каплях органических красителей // XXXVIII Международная научно- студенческая конференция. Новосибирск, 2000. Физика Ч. 2, С. 75–76.

7\*. Donchenko V. A., Zemlyanov A. A., Zemlyanov Al. A., Kibitkin P.P., Spectral and temporal characteristics of fluorescence of drops comprising by the IR laser radiation// Infrared Physics and Technology. 2000. V. 41, № 2. P. 133–136.

- 8\*. Donchenko V., Zemlyanov A., Zemlyanov Al., Kibitkin P. Laser- Induced Fluorescence in Dye Droplets// Proceeding SPIE. Atomic and Molecular Pulsed Lasers. 2000.V 4071, P2234–2237.
- 9\*. Donchenko V. A., Geints Yu. E., Zemlyanov D. A., Zemlyanov Al. A., Kibitkin P.P. Nonlinear optical effects in liquid drops // Proceeding of the 5-th Russian-chinese symposium on laser physics and technologies. 2000. Tomsk, Russia. P. 207–208.
- 10\*. Донченко В. А., Землянов Д. А., Землянов Ал. А., Кибиткин П. П. Снижение порогов нелинейных оптических эффектов в крупных жидких каплях при различной геометрии возбуждения// 8-ой Международный симпозиум “Оптика атмосферы и океана”. Томск, Россия, 2000, тез. С. 76.
- 11\*. Донченко В. А., Землянов Д. А., Землянов Ал. А., Кибиткин П. П. Двухфотоно-возбужденная люминесценция в каплях с красителем // 8-ой Международный симпозиум “Оптика атмосферы и океана” Томск, Россия. 2000. тез. докл., С. 72.
- 12\*. Donchenko V. A., Zemlyanov A. A. Zemlyanov Al. A., Kibitkin P.P. Spectral Shift of Lasing in Pendant Millimeter Dye Drops at Various Excitation Geometry // Proc. International Conference on Laser-2000. STS Press, 2001, V.J.Corcoran, editors. P.68-72.
- 13\*. M.S. Zhuravleva, Al. A. Zemlyanov, P.P. Kibitkin Energy and spectral characteristics of the dye generation in liquid droplet form with the nanoparticles // IX International Conference “Modern techniques and technologies”. 2003. Proceeding. P. 236-238.
- 14\*. В.А.Донченко, М.С.Журавлева, А.А.Землянов, Ал. А. Землянов, П.П. Кибиткин, Ю.П. Мешалкин, А.Н.Степанов Экспериментальные исследования флуоресценции капель красителя с субмикронными структурами при нано- и фемтосекундном возбуждении // 7-й Российско-Китайский Симпозиум по лазерной физике и лазерным технологиям, Томск, 2004. Сб. трудов. С.105-108.
- 15\*. Н.Н. Бочкарев, В.А. Донченко, А.А. Землянов, Ал.А. Землянов, А.М. Кабанов, Д.В. Карташев, П.П. Кибиткин, Г.Г. Матвиенко, А.Н. Степанов. Флуоресценция красителя в жидкокапельной форме при возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами // Известия ВУЗов, Физика, 2005.Т. 18, №4 стр. 15-19.