

## ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

УДК 535.37

*Т.Н. КОПЫЛОВА, В.А. СВЕТЛИЧНЫЙ, Г.В. МАЙЕР, Е.Н. ТЕЛЬМИНОВ, И.Н. ЛАПИН***ИЗЛУЧЕНИЕ КОНЦЕНТРИРОВАННЫХ РАСТВОРОВ ОРГАНИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЙ ПРИ МОЩНОМ ЛАЗЕРНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ**

Исследованы особенности излучения концентрированных растворов ( $C$  до  $1,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) органических молекул различного строения (родамин 6Ж, родамин С, феналемин 512, замещенный паратерфенила – ЛОС-1) при изменении энергии возбуждающего кванта ( $\lambda_{\text{возб}} = 308$  и  $532$  нм) и плотности мощности возбуждающего излучения (до  $1 \text{ ГВт/см}^2$ ). Изучена природа одного из наблюдаемых типов свечения – «полоса». Проведено исследование интенсивности излучения «полоса» (коротковолновый и длинноволновый максимумы) от плотности мощности возбуждающего излучения, временных и поляризационных характеристик этого излучения. Совокупность полученных результатов, а также проведенный эксперимент по исследованию особенностей спектра излучения концентрированного раствора родамина С при прохождении через него зондирующего излучения с максимумом, равным коротковолновому максимуму излучения «полоса», показали, что излучение «полоса» по своей природе является сверхфлуоресценцией.

**Введение**

В последнее время широко исследуются особенности поглощения и излучения сложных органических молекул в мощных световых полях возбуждающего излучения [1–9].

Особый интерес представляет исследование поглощения и излучения концентрированных растворов органических соединений при мощном лазерном возбуждении (плотность мощности до  $(10^{26} + 10^{27}) \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ ). В работах Клочкова с соавторами [3, 5] показано, что для ксантеновых красителей (родамина 6Ж, родамина С) с концентрацией  $\sim 10^{19} \text{ см}^{-3}$  и плотностью мощности возбуждающего излучения  $\sim 10^{26} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  при  $\lambda_{\text{возб}} = 532$  нм возможно наблюдение коллективного испускания молекул. Изучена зависимость спектров коллективного испускания сложными органическими молекулами от энергии возбуждающего фотона [5]. Показано, что при увеличении энергии возбуждающего фотона падает относительная интенсивность коллективного испускания, растет интенсивность сверхфлуоресценции и лазерной генерации [10], что предположительно связано с увеличением скорости дефазировки квантовых состояний и уменьшением концентрации возбужденных молекул со сфазированными квантовыми состояниями, при этом концентрация возбужденных дефазированных излучателей растет. Отношение интенсивностей коллективного испускания, сверхфлуоресценции и лазерной генерации определяется отношением скоростей коллективного испускания и дефазировки. При высоких концентрациях растворов ( $> 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) и возбуждении излучением фотонов с большой энергией ( $\lambda_{\text{возб}} = 347$  нм) появление лазерной генерации родамина 6Ж и родамина С обусловлено именно высокими скоростями дефазировки квантовых состояний.

Нами также изучались особенности излучения концентрированных ( $10^{18} + 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) растворов сложных органических соединений (родамина 6Ж, замещенных паратерфенила) в мощных световых полях возбуждающего излучения ХеСl-лазера (плотность мощности до  $5 \cdot 10^{26} \text{ фот/(с} \cdot \text{см}^2)$ ) [6–9]. Установлено, что в условиях проведенного эксперимента наблюдается четыре типа свечения, три из которых интерпретируются однозначно (флуоресценция, генерация, рассеянное излучение генерации и суперфлуоресценции на наведенной накачкой термической линзе), а природа четвертого типа излучения («полоса») предположительно интерпретируется как усиленное спонтанное излучение, однако, судя по работам В.П. Клочкова [1, 5, 10], в этом типе излучения может присутствовать коллективное испускание ансамбля возбужденных молекул.

В предлагаемой работе эти исследования нами продолжены.

**Эксперимент**

Экспериментальная установка, на которой проводились исследования излучения и поглощения органических молекул в мощных световых полях возбуждающего лазерного излучения, под-

робно описана в [11]. Она позволяет исследовать спектральные (в том числе спектр излучения за один импульс), временные, энергетические характеристики излучения различной природы (спонтанное, усиленное спонтанное излучение, генерация), а также зависимость пропускания возбуждающего излучения растворами органических молекул от его плотности мощности.

С целью исследования влияния длины волны возбуждающего излучения на особенности поглощения и излучения молекул в мощных световых полях использовались ХеС1-лазер ( $\lambda_{\text{возб}} = 308$  нм,  $E_{\text{имп}}$  до 50 мДж,  $\tau_{1/2} = 15$  нс) и АИГ-Nd<sup>3+</sup>-лазер ( $\lambda_{\text{возб}} = 532$  нм,  $E_{\text{имп}}$  до 25 мДж,  $\tau_{1/2} = 7$  нс).

Пучок формировался длиннофокусными линзами (две скрещенные цилиндрические линзы  $f_1 = 500$  и  $f_2 = 250$  мм при возбуждении ХеС1-лазером и сферическая линза  $f_1 = 250$  мм при возбуждении АИГ-Nd<sup>3+</sup>-лазером). Исследуемый раствор помещался в перетяжку или сходящийся пучок. Из центра пучка круглой диафрагмой (диаметр 1 и 0,5 мм) вырезалась центральная, наиболее однородная часть пучка. Поперечный профиль интенсивности имел форму «колокола», фокусировка позволяла создавать плотность мощности  $W$  до 600 МВт/см<sup>2</sup> (ХеС1-лазер) и до 1 ГВт/см<sup>2</sup> (АИГ-Nd<sup>3+</sup>, вторая гармоника). Изменение интенсивности накачки осуществлялось нейтральными фильтрами, они же использовались для проверки линейного режима работы измерительной аппаратуры. Излучение регистрировалось во всех направлениях, кроме фронтального. Распределение излучения в пространстве наблюдалось на экране, а его характеристики регистрировались лазерным спектрометром через световод диаметром 0,4 мм.

Оценка степени поляризации возбуждающего излучения и вторичного излучения молекул производилась с помощью призмы Глана, а также специальных поляризационных пленок. Степень поляризации  $P = (I_{\uparrow} - I_{\downarrow}) / (I_{\uparrow} + I_{\downarrow})$ , где  $I_{\uparrow}$ ,  $I_{\downarrow}$  – интенсивности излучения, регистрируемого через призму при взаимно перпендикулярных положениях ее относительно вектора поляризации измеряемого излучения. Для получения линейно поляризованного излучения ХеС1-лазера использовалась специальная поляризационная пластина, которая устанавливалась под углом Брюстера к оси резонатора, при этом степень поляризации увеличивалась на порядок (от 0,09 до 0,9).

В качестве объектов исследования выбраны родамин 6Ж и родамин С, которые активно исследуются в работах В.П. Ключкова, а также феналемин 512 и замещенный паратерфенила (ЛОС-1). Выбор последних обусловлен необходимостью исследования влияния строения и спектрально-люминесцентных свойств молекул на особенности их излучения и поглощения в мощных световых полях.

### Обсуждение результатов

Полученные результаты приведены в таблице и на рис. 1–6.

Спектральные характеристики излучения «полоса»  
и генерации концентрированных растворов органических молекул

Соединение	Концентрация, см <sup>-3</sup> (моль/л)	$\lambda_{\text{возб}} = 308$ нм, $W = (0,2+0,6)$ ГВт/см <sup>2</sup> (до $10^{27}$ см <sup>-2</sup> ·с <sup>-1</sup> )		$\lambda_{\text{возб}} = 532$ нм, $W = (0,2+1)$ ГВт/см <sup>2</sup> (до $3 \cdot 10^{27}$ см <sup>-2</sup> ·с <sup>-1</sup> )	
		«полоса», нм	генерация, нм	«полоса», нм	генерация, нм
Родамин 6Ж	$1,2 \cdot 10^{19}$ ( $2 \cdot 10^{-2}$ )	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 590$	$\lambda_1^{\text{Г}} = 593$	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 590$	$\lambda_1^{\text{Г}} = 592$
		$\lambda_2^{\text{«п»}} = 575$	$\lambda_2^{\text{Г}} = 597$	$\lambda_2^{\text{«п»}} = 575$	$\lambda_2^{\text{Г}} = 597$
	$6 \cdot 10^{19}$ ( $10^{-2}$ )	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 586$	$\lambda_1^{\text{Г}} = 590$	-	$\lambda_1^{\text{Г}} = 588$
		$\lambda_2^{\text{«п»}} = 573$	$\lambda_2^{\text{Г}} = 594$	-	$\lambda_2^{\text{Г}} = 592$
$1,5 \cdot 10^{19}$ ( $2,5 \cdot 10^{-3}$ )	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 579$	нет	-	$\lambda_1^{\text{Г}} = 582$	
	$\lambda_2^{\text{«п»}} = 567$				
Родамин С	$1,2 \cdot 10^{19}$ ( $2 \cdot 10^{-2}$ )	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 626$	$\lambda_1^{\text{Г}} = 636$	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 626$	$\lambda_1^{\text{Г}} = 636$
		$\lambda_2^{\text{«п»}} = 597$		$\lambda_2^{\text{«п»}} = 597$	
Феналемин 512	$1,8 \cdot 10^{19}$ ( $3 \cdot 10^{-2}$ )	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 615$	$\lambda_1^{\text{Г}} = 638$	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 610$	$\lambda_1^{\text{Г}} = 638$
		$\lambda_2^{\text{«п»}} = 630$		$\lambda_2^{\text{«п»}} = 630$	
ЛОС-1	$3 \cdot 10^{18}$ ( $5 \cdot 10^{-3}$ )	$\lambda_1^{\text{«п»}} = 374$	$\lambda_1^{\text{Г}} = 374$	-	-

Для соединений с сильной реабсорбцией (родамин 6Ж, родамин С и феналемин 512) наблюдалось четыре типа свечения (рис. 1):

1. Спонтанное испускание – при фронтальном возбуждении наблюдается обычная флуоресценция – ненаправленное излучение с широким спектром, совпадающим со спектром флуоресценции для родамина 6Ж, снятым при низкоинтенсивном возбуждении на спектрофотометре «Hitachi-850». При регистрации перпендикулярно накачке излучение сильно реабсорбировано, длинноволновый сдвиг составляет  $\approx 30$  нм ( $\lambda_{\text{max}} = 600$  нм). При увеличении концентрации родамина 6Ж до  $C = 6 \cdot 10^{19}$  см $^{-3}$  интенсивность флуоресценции уменьшается, а в спектре поглощения наблюдаются неизлучающие димеры.

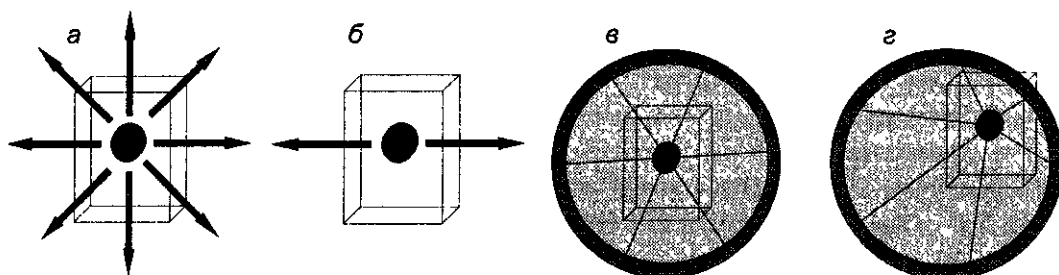


Рис.1. Типы свечения концентрированных растворов органических молекул: а – спонтанное излучение; б – генерация; в – излучение «полоса»; г – излучение «конус»

2. Генерация – возникает в низкодобротном резонаторе, образованном гранями кюветы, в направлении, перпендикулярном накачке. Характеризуется высоким порогом генерации ( $20 + 100$  МВт/см $^2$ ), обусловленным большими потерями в низкодобротном резонаторе, дифракционными потерями из-за поглощения в тонком слое и потерями на реабсорбцию (при концентрации  $3 \cdot 10^{19}$  и  $6 \cdot 10^{19}$  см $^{-3}$  генерация формируется только в резонаторе с базой  $L = 0,2$  см, при  $L = 1$  см генерации нет) и низким КПД ( $\approx 1\%$ ).

3. «Полоса» – излучение, распространяющееся по кругу во всех направлениях в плоскости, перпендикулярной направлению возбуждения, на экране наблюдается как узкая вертикальная полоса, спектр излучения шире спектра генерации (для родамина 6Ж  $\Delta\lambda = 10\text{--}20$  нм), максимум спектра излучения «полоса» не совпадает с максимумом спектра генерации и сдвинут в более коротковолновую область.

4. «Конусное» излучение – направленное излучение, распространяющееся по направляющей конуса с вершиной в точке возбуждения. Природа этого излучения связана, по-видимому, с рассеянием излучения «полоса» и генерации на наведенной мощным излучением накачки термической линзе в возбужденном объеме.

Обращает на себя внимание тот факт, что в излучении «полоса» содержится два максимума – коротковолновый и длинноволновый (рис. 2,б, в). Для родамина 6Ж, например, при  $C = 1,2 \cdot 10^{19}$  см $^{-3}$  это  $\lambda_1^n = 588$  нм ( $\nu = 17,006$  см $^{-1}$ ) и  $\lambda_2^n = 577$  нм ( $\nu = 17,331$  см $^{-1}$ ), полосы имеют полуширину  $\sim 16$  нм ( $\Delta\nu \sim 300$  см $^{-1}$ ). В зависимости от условий регистрации (рис. 2,а, в точках I, II, III) наблюдается перераспределение интенсивности между этими максимумами, регистрируется либо тот, либо другой в виде отчетливой полосы, в то время как другой проявляется в виде «подошвы». На рис. 2,б приведено изменение спектра излучения «полоса» при сканировании диафрагмы вдоль кюветы для родамина 6Ж при концентрации  $1,2 \cdot 10^{19}$  см $^{-3}$  и  $W = 1000$  МВт/см $^2$  ( $\lambda_{\text{возб}} = 532$  нм), а на рис. 2,в – для родамина С при  $1,2 \cdot 10^{19}$  см $^{-3}$  и  $W = 350$  МВт/см $^2$  ( $\lambda_{\text{возб}} = 308$  нм).

В более длинноволновой области спектра наблюдается генерация, которая может состоять из нескольких полос, что может быть связано с большим коэффициентом усиления среды ( $K_{yc} > 100$  см $^{-1}$ ) и большой шириной полосы усиления ( $\approx 20$  нм). Так, для концентрированного раствора родамина 6Ж ( $C = 2 \cdot 10^{-2}$  моль/л) спектр генерации имеет два максимума:  $\lambda_1^r = 593$  нм ( $\nu = 16863$  см $^{-1}$ ) и  $\lambda_2^r = 597$  нм ( $\nu = 16750$  см $^{-1}$ ) – ширина полос генерации  $\Delta\lambda = 1$  нм ( $\Delta\nu = 100$  см $^{-1}$ ). Пороговый уровень мощности генерации высок (порядка  $100$  МВт/см $^2$ ). В зависимости от условий эксперимента и плотности мощности возбуждающего излучения наблюдается перераспределение интенсивности в полосах генерации, при этом излучение «полоса» не изменяется (рис. 3).

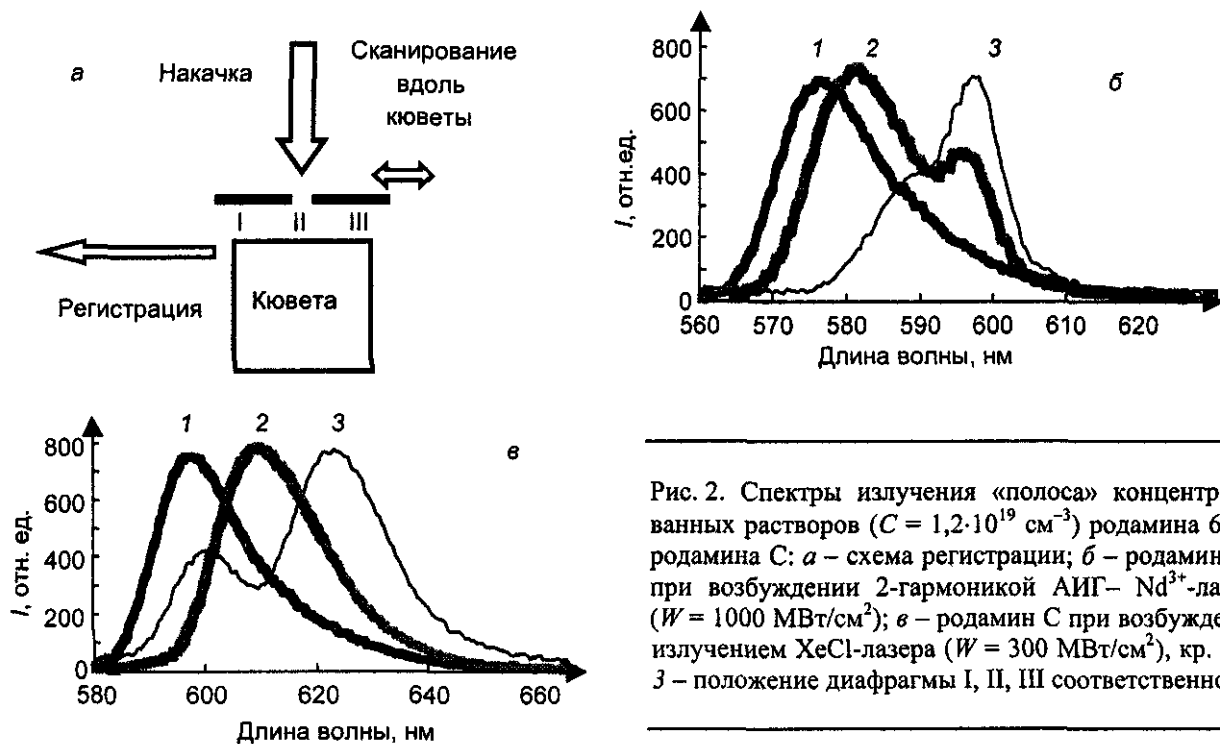


Рис. 2. Спектры излучения «полоса» концентрированных растворов ( $C = 1,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) родамина 6Ж и родамина С: а – схема регистрации; б – родамин 6Ж при возбуждении 2-гармоникой АИГ-  $\text{Nd}^{3+}$ -лазера ( $W = 1000 \text{ МВт/см}^2$ ); в – родамин С при возбуждении излучением ХеСл-лазера ( $W = 300 \text{ МВт/см}^2$ ), кр. 1, 2, 3 – положение диафрагмы I, II, III соответственно

Следует заметить, что при  $\lambda_{\text{возб}} = 532$  и при  $308 \text{ нм}$  наблюдаются похожие закономерности в изменении излучения в зависимости от плотности мощности возбуждающего излучения  $W$  и концентрации раствора (таблица): при уменьшении концентрации растворов излучение «полоса» размывается, полуширина составляющих это излучение полос увеличивается примерно в 2 раза, при этом генерация пропадает (для родамина 6Ж при  $C = 1,5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ,  $\lambda_{\text{возб}} = 308 \text{ нм}$  и  $W = 650 \text{ МВт/см}^2$ ,  $\lambda_1''$  и  $\lambda_2''$  смещаются в коротковолновую область –  $\lambda_1'' = 579 \text{ нм}$  ( $\nu = 17271 \text{ см}^{-1}$ ,  $\Delta\lambda = 40 \text{ нм}$ ),  $\lambda_2'' = 567 \text{ нм}$  ( $\nu = 17636 \text{ см}^{-1}$ ,  $\Delta\lambda = 25 \text{ нм}$ ), генерации не наблюдается). Для  $\lambda_{\text{возб}} = 532 \text{ нм}$  при этой же концентрации и  $W = 1000 \text{ МВт/см}^2$  излучение «полоса» не наблюдается, генерация остается, ее порог понижается до  $10 \text{ МВт/см}^2$ .

В зависимости от строения молекул картина несколько изменяется. Если для феналемина 512, родаминов 6Ж и С наблюдаются все три типа излучения (генерация, «полоса», конусное излучение), то для ЛОС-1 картина несколько иная (рис. 4). Спектр излучения «полоса» для ЛОС-1 имеет только один максимум, положение которого совпадает с максимумом генерации и флуоресценции, однако  $\Delta\lambda$  излучения «полоса» больше, чем  $\Delta\lambda$  генерации (6 и 1 нм соответственно). «Конусное» излучение для ЛОС-1 не наблюдается.

Что можно сказать о природе наблюдаемого излучения «полоса»? Прежде всего следует подчеркнуть, что картина излучения концентрированных растворов родаминов 6Ж, С и феналемина 512 ( $C = (1,5 \cdot 10^{18} + 2 \cdot 10^{19}) \text{ см}^{-3}$ ) при мощном возбуждении лазерным излучением (ХеСл-лазер и Nd-лазер,  $W$  до  $1000 \text{ МВт/см}^2$  ( $2 \cdot 10^{27} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ )) очень похожа на ту картину, которую наблюдали В.П. Ключков и Е.Б. Верховский для родамина 6Ж и родамина С [5], а также в более ранних работах. Они подчеркивали, что в вышеописанных условиях наблюдается три типа свечения: коллективное спонтанное испускание, усиленная сверхфлуоресценция и лазерная генерация. Спектрально  $\lambda_{\text{сфл}} < \lambda_{\text{к.с.и}} < \lambda_{\text{ген}}$  или  $\nu_{\text{ген}} < \nu_{\text{к.с.и}} < \nu_{\text{сфл}}$ . Для родамина 6Ж при  $\lambda_{\text{возб}} = 532 \text{ нм}$  и  $W = 7 \cdot 10^{25} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  это  $17000 \text{ см}^{-1}$

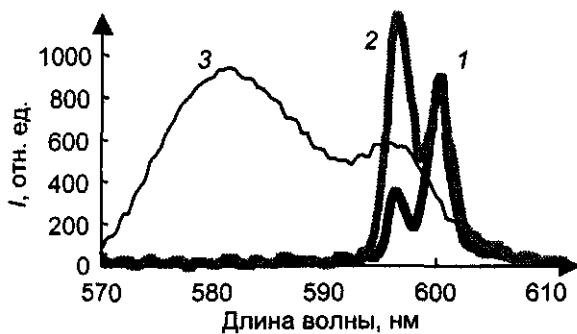


Рис. 3. Спектр генерации родамина 6Ж ( $C = 1,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) при возбуждении излучением ХеСл-лазера различной плотности мощности  $W$ , МВт/см<sup>2</sup>: кр. 1 – 100; кр. 2 – 650; кр. 3 – излучение «полоса» при возбуждении в варианте II

вали, что в вышеописанных условиях наблюдается три типа свечения: коллективное спонтанное испускание, усиленная сверхфлуоресценция и лазерная генерация. Спектрально  $\lambda_{\text{сфл}} < \lambda_{\text{к.с.и}} < \lambda_{\text{ген}}$  или  $\nu_{\text{ген}} < \nu_{\text{к.с.и}} < \nu_{\text{сфл}}$ . Для родамина 6Ж при  $\lambda_{\text{возб}} = 532 \text{ нм}$  и  $W = 7 \cdot 10^{25} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  это  $17000 \text{ см}^{-1}$

( $\Delta\nu = 100 \text{ см}^{-1}$ ) <  $17450 \text{ см}^{-1}$  ( $\Delta\nu = 200 \text{ см}^{-1}$ ) <  $17900 \text{ см}^{-1}$  ( $\Delta\nu = 300 \text{ см}^{-1}$ ). Полоса усиленной свержфлуоресценции наблюдалась в виде плеча с коротковолновой стороны спектра коллективного испускания. При понижении концентрации растворов относительный вклад усиленной свержфлуоресценции быстро растет.

Спектральное проявление типов свечения, наблюдаемых нами, аналогично:  $\lambda_1^{«п»} < \lambda_2^{«п»} < \lambda^{\text{г}}$  или  $\nu^{\text{г}} < \nu_1^{«п»} < \nu_2^{«п»}$ . Для родамина 6Ж при  $\lambda_{\text{возб}} = 532 \text{ нм}$  и  $W = 2 \cdot 10^{27} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  это  $16891$  и  $16750 \text{ см}^{-1}$  ( $\Delta\nu = 100 \text{ см}^{-1}$ ) <  $17035 \text{ см}^{-1}$  ( $\Delta\nu = 200 \text{ см}^{-1}$ ) <  $17391 \text{ см}^{-1}$  ( $\Delta\nu = 300 \text{ см}^{-1}$ ). Это наводит на мысль, что

наблюдаемое нами свечение «полоса» (2 максимума,  $\lambda_1^{«п»}$  и  $\lambda_2^{«п»}$ ) может быть коллективным испусканием ( $\nu = 17035 \text{ см}^{-1}$ ) и усиленной свержфлуоресценцией ( $\nu = 17391 \text{ см}^{-1}$ ). При  $\lambda_{\text{возб}} = 308 \text{ нм}$  и  $W = 650 \text{ МВт/см}^2 = 10^{27} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  это  $\nu = 17006$  и  $17331 \text{ см}^{-1}$  соответственно.

Для подтверждения этой гипотезы нами проведены исследования зависимости интенсивности излучения концентрированного раствора родамина 6Ж ( $C = 1,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) в коротковолновом и длинноволновом максимумах излучения «полоса» от плотности мощности возбуждающего излучения ХеСІ-лазера. Тонкий световод позволял не только регистрировать суммарное излучение «полоса», но и проводить сканирование по «полосе» (рис. 5,а). Спектральный состав излучения в различных точках наблюдения (1, 2, 3) не изменяется, в то время как ход зависимости интенсивно-

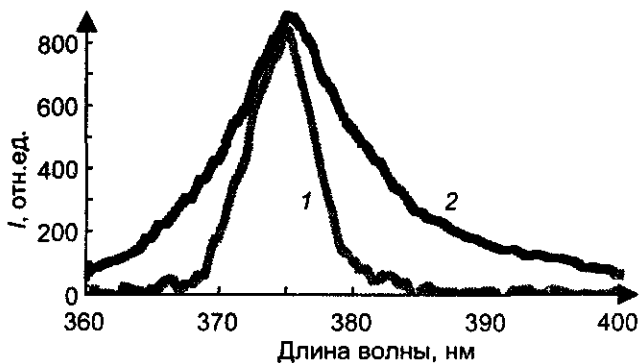


Рис. 4. Спектр излучения концентрированных растворов ЛОС-1 при возбуждении излучением ХеСІ-лазера ( $W = 650 \text{ МВт/см}^2$ ): кр. 1 – генерация, кр. 2 – «полоса»

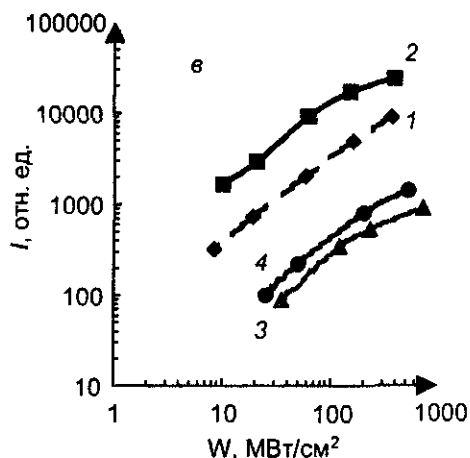
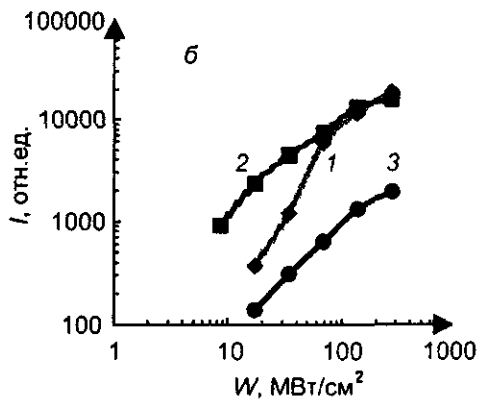
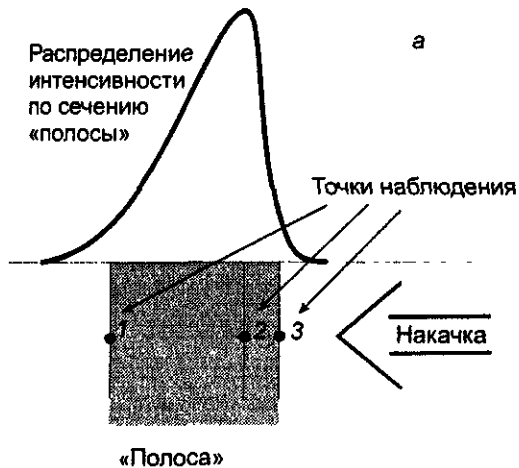


Рис. 5. Зависимость интенсивности излучения концентрированных растворов родамина 6Ж ( $C = 2 \cdot 10^{-2}$  моль/л) от плотности мощности возбуждающего излучения: а – схема наблюдения; б – возбуждение ХеСІ-лазером, кр. 1, 2, 3 – регистрация в точках 1, 2, 3 соответственно,  $\lambda_{\text{рег}} = 580 \text{ нм}$ ; в – наблюдение в точке 2: кр. 1, 2 – возбуждение ХеСІ-лазером, регистрация  $\lambda_{\text{рег}} = 580$  и  $600 \text{ нм}$  соответственно; кр. 3, 4 – возбуждение второй гармоникой АИГ-Nd<sup>3+</sup>-лазера, регистрация  $\lambda_{\text{рег}} = 580$  и  $600 \text{ нм}$  соответственно

сти излучения «полоса» от плотности мощности возбуждающего излучения сильно отличается (рис. 5,б). Причиной отличия, на наш взгляд, может быть завышение мощности возбуждения при наблюдении в точке 1. Зависимости  $I(W)$ , снятые при наблюдении в точках 2 и 3, похожи. Аналогичная зависимость наблюдается и в длинноволновом максимуме излучения «полоса» (рис. 5,в). Видно, что можно выделить три участка на кривых: нелинейный рост (формируется излучение «полоса»), линейную зависимость и частичное насыщение. Нелинейная зависимость на первом участке характерна для классической ненасыщенной суперфлуоресценции. Вследствие того, что спектральная картина излучения концентрированного раствора родамина 6Ж ( $C = 1,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) при  $\lambda_{\text{возб}} = 308$  и 532 нм подобна, следует ожидать аналогичных зависимостей  $I(W)$  и при  $\lambda_{\text{возб}} = 532$  нм, что и видно из рис. 5,в. Аналогичная картина наблюдается для ЛОС-1 при возбуждении излучением ХеС1-лазера ( $C = 6 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ ).

Исследования временных характеристик излучения в «полосе» для ЛОС-1 и родамина 6Ж показали, что длительность импульса излучения в «полосе» короче длительности импульса накачки на 2–3 нс. Для родамина 6Ж проведены измерения длительности импульса излучения и в коротковолновом (580 нм), и в длинноволновом (600 нм) максимумах излучения «полоса». Показано, что длительность этих импульсов практически одинакова.

Также исследована поляризация наблюдаемых типов свечения. Установлено, что генерация родамина 6Ж и родамина С при возбуждении неполяризованным излучением ХеС1-лазера частично поляризована (степень поляризации  $\sim 0,2$ ), излучение «полоса» (и коротковолновый, и длинноволновый максимумы) не поляризовано. В случае, когда возбуждающее излучение ХеС1-лазера поляризовано в горизонтальной плоскости, излучение в «полосе» не поляризовано. Аналогичный результат наблюдается и при возбуждении излучением с  $\lambda_{\text{возб}} = 532$  нм, поляризованным в горизонтальной плоскости. При смене поляризации возбуждающего излучения с  $\lambda_{\text{возб}} = 532$  нм на вертикальную наблюдается излучение генерации родамина 6Ж, поляризованное в вертикальной плоскости, степень поляризации высока  $\sim 0,9$ . Излучение «полоса» (и коротковолновый, и длинноволновый максимумы) также поляризовано в вертикальной плоскости, степень поляризации при увеличении плотности мощности возбуждающего излучения увеличивается ( $0,7+0,85$ ). Этот результат согласуется с данными Клочкова и Верховского [1], где показано, что при возбуждении излучением с  $\lambda_{\text{возб}} = 532$  нм, поляризованным в вертикальной плоскости, полоса коллективного испускания родамина 6Ж имеет высокую степень поляризации.

Однако полученные результаты по исследованию поляризации наблюдаемых типов свечения объяснимы и с точки зрения общепринятых представлений. Так, например, в [12, 13] теоретически и экспериментально показано, что поляризация электронных переходов  $S_0 \rightarrow S_3$  ( $\lambda_{\text{возб}} = 345, 308$  нм) и  $S_1 \rightarrow S_0$  родамина 6Ж взаимортогональны, что наблюдается и в наших экспериментах. Увеличение степени поляризации вынужденного излучения наблюдается в процессе его формирования (степень поляризации генерации больше, чем суперфлуоресценции).

Совокупность полученных результатов по изменению интенсивности длинноволнового максимума излучения «полоса» от плотности мощности возбуждающего излучения, измерения временных характеристик излучения и поляризации излучения потребовала проведения дальнейших исследований природы длинноволнового максимума. В частности, были проведены следующие эксперименты: исследовано изменение спектра излучения «полоса» концентрированного раствора родамина 6Ж и родамина С ( $C > 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) в зависимости от размеров поглощающего объема на пути распространения излучения из возбужденного объема (диафрагма сканируется по кювете) (рис. 2); исследовано изменение спектра зондирующего излучения с длиной волны, равной коротковолновому максимуму излучения «полоса» ( $\lambda = 597$  нм) при прохождении через кювету с концентрированным ( $C = 2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ) раствором родамина С (рис. 6).

Установлено следующее:

1. При увеличении поглощающего объема на пути прохождения излучения из возбужденного объема в спектре излучения «полоса» наблюдается два максимума излучения, как уже говорилось выше, коротковолновый и длинноволновый ( $\lambda_{\text{возб}} = 308$  и 532 нм). Эта картина наблюдается для концентрированных растворов молекул, обладающих большой реабсорбцией (родамин 6Ж, родамин С и феналемин 512) (рис. 2). Для замещенного паратерфенила излучение «полоса» практически совпадает с максимумом полосы генерации, но имеет большую ширину (рис. 4).

2. При прохождении зондирующего излучения с  $\lambda = 597$  нм (равной длине волны коротковолнового максимума излучения «полоса») через концентрированный раствор родамина С с концен-

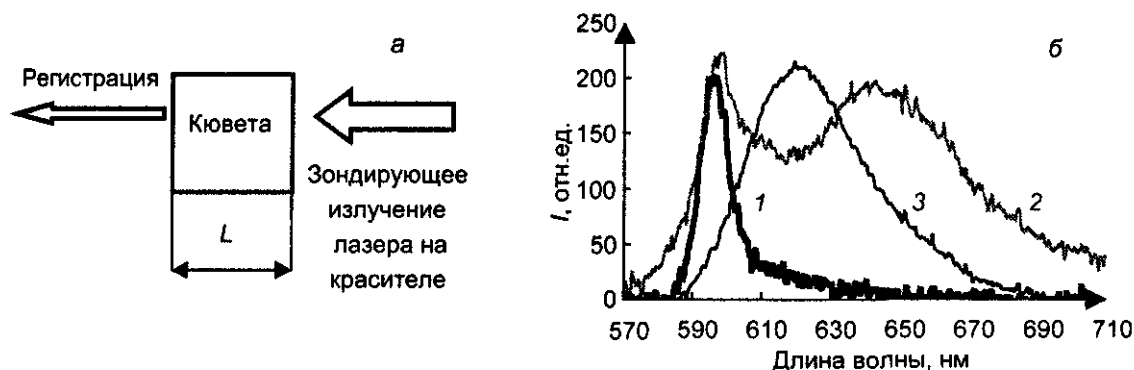


Рис. 6. Изменение спектра зондирующего излучения при прохождении через кювету толщиной  $L$  с невозбужденным концентрированным раствором родамина С ( $C = 2 \cdot 10^{-2}$  моль/л): а – схема эксперимента; б – спектры, кр. 1 – зондирующее излучение лазера на красителе  $\lambda = 597$  нм, кр. 2 – излучение после прохождения слоя  $L = 1$  см, кр. 3 – излучение после прохождения слоя  $L = 0,3$  см

трацией  $C = 1,2 \cdot 10^{19}$  см $^{-3}$  наблюдается спектр, идентичный спектру излучения «полоса» для родамина С ( $C > 10^{19}$  см $^{-3}$ ) при возбуждении мощным излучением с  $\lambda = 308$  и 532 нм; в спектре два максимума – коротковолновый и длинноволновый (рис. 6,б).

Эти результаты показывают, что длинноволновый максимум излучения «полоса» появляется в результате поглощения и персизлучения коротковолнового максимума излучения.

Таким образом, проведенное исследование особенностей излучения концентрированных растворов ( $C > 10^{19}$  см $^{-3}$ ) органических молекул различного строения в мощных световых полях возбуждающего лазерного излучения (УФ- и видимого диапазона, плотность мощности до 1 ГВт/см $^2$ ) показало, что для молекул с сильной реабсорбцией наблюдаемое одновременно с генерацией излучение «полоса» является сверхфлуоресценцией.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант 01-02-16901).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Клочков В.П., Верховский Е.Б. // Оптика и спектроскопия.– 1998.– Т. 85.– № 3.– С. 427–433.
2. Ермолаева Г.М., Грег Е.Г., Смирнов В.А., Шилов В.Б. // Оптика и спектроскопия.– 1998.– Т. 84.– № 3.– С. 393–397.
3. Клочков В.П., Верховский Е.Б. // Оптика и спектроскопия.– 2000.– Т. 88.– № 5.– С. 768–771.
4. Ермолаева Г.М., Клочков В.П., Николаев Г.Е. и др. // Оптика и спектроскопия.– 2000.– Т. 89.– № 1.– С. 157–159.
5. Клочков В.П., Верховский Е.Б. // Оптика и спектроскопия.– 2000.– Т. 89.– № 1.– С. 114–118.
6. Копылова Т.Н., Кузнецова Р.Т., Майер Г.В. и др. // Изв. вузов. Физика.– 1997.– № 4.– С. 69–74.
7. Копылова Т.Н., Кузнецова Р.Т., Светличный В.А. и др. // Оптика и спектроскопия.– 1998.– Т. 85.– № 5.– С. 778–782.
8. Копылова Т.Н., Кузнецова Р.Т., Светличный В.А. и др. // Квантовая электроника.– 2000.– Т. 30.– № 6.– С. 489–494.
9. Кузнецова Р.Т., Светличный В.А., Копылова Т.Н. и др. // Оптика и спектроскопия.– 2000.– Т. 89.– № 2.– С. 261–268.
10. Клочков В.П., Верховский Е.Б. // Оптика и спектроскопия.– 2002.– Т. 93.– № 2.– С. 242–247.
11. Копылова Т.Н., Кузнецова Р.Т., Майер Г.В. и др. // Оптика атмосферы и океана.– 2001.– Т. 14.– № 5.– С. 367–373.
12. Артюхов В.Я., Кузнецова Р.Т., Фофонова Р.М. и др. // Химическая физика.– 1976.– Т. 5.– № 5.– С. 24–30.
13. Пикулник Л.Г., Чернявский В.А., Гриб А.Ф. // Квантовая электроника.– 2000.– Т. 30.– № 6.– С. 479–482.