

ИССЛЕДОВАНИЕ КИНЕТИКИ ИЗЛУЧЕНИЯ ОРГАНИЧЕСКОГО
КРАСИТЕЛЯ В ПИКОСЕКУНДНОМ ДИАПАЗОНЕ

Л. Л. Деркачев, В. А. Петухов

УДК 621.375.9

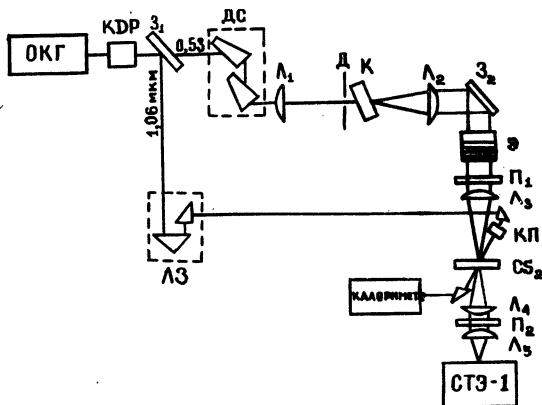
Получены временные развертки спектров излучения растворов родамина 6G в пикосекундном диапазоне. Установлено возникновение двух видов излучения, происходящих в различные моменты времени. По задержке нарастания суперфлуоресценции оценено время колебательной релаксации молекул в возбужденном состоянии.

В настоящее время техника пикосекундных импульсов и сверхскоростных затворов позволяет исследовать быстротекающие процессы, осуществляя временные развертки спектров в интервале нескольких десятков пикосекунд. Сведения, имеющиеся в литературе относительно кинетики излучения органических красителей, носят предварительный характер и весьма противоречивы /1-3/. Измерениями разными авторами времена релаксации ксантоновых красителей сильно различаются (0 - 40 пс) /4-7/.

В данной работе исследованы временные развертки суперфлуоресценции растворов родамина 6G в диапазоне 50 пс с временным разрешением 5 пс и спектральным разрешением 2 Å. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Возбуждение красителя производилось либо путем импульсов, либо одиночным световым пикосекундным импульсом второй гармоники кольцевого лазера на неодимовом стекле, работающего в режиме самосинхронизации мод. Длительность импульсов составляла ~ 10 пс. Регистрирующая часть установки состояла из скоростного затвора на CS₂, открываемого импульсом неодимового лазера, стеклянного эшелона со ступенями толщиной 3 мм (что соответствовало задержке излучения на 5 пс) и спектрографа СТЭ-1. В схему включалась дисперсионная система из двух призм для устранения слабого крыла второй гармоники, попадающего в полосу усиления красителя, а также рассеиватель, обес-

печивающий однородное освещение эшелона. Плотность мощности накачки составляла $\sim 10^{11}$ Вт/см².

Предварительно были исследованы спектры излучения растворов родамина 6G в этиловом спирте, не развернутые во времени, при возбуждении одиночным пикосекундным импульсом ^ж). При

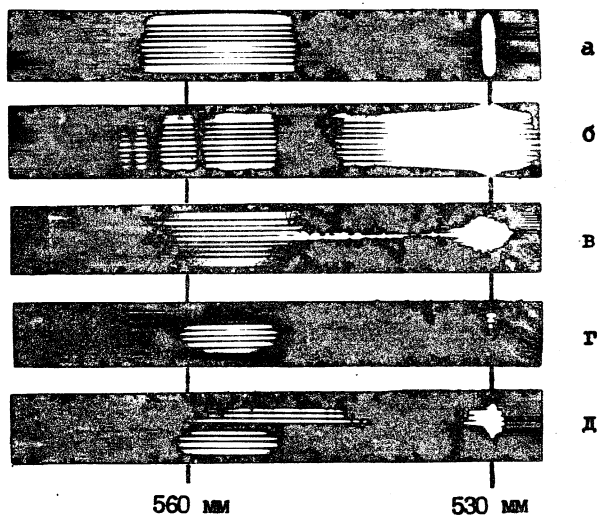


Р и с. 1. Схема экспериментальной установки. $З_1, З_2$ - зеркала, ДС - дисперсионная система, L_1-L_4 - сферические линзы, L_5 - цилиндрическая линза, Д - диафрагма, К - кванта с красителем длиной 1 см, Э - эшелон, P_1, P_2 - поляризаторы, КП - кварцевая пластинка, ЛЗ - линия задержки.

малых уровнях накачки спектр представлял собой гладкую бесструктурную симметричную полосу шириной $\sim 120 \text{ \AA}$ с максимумом в области максимума люминесценции (рис. 2а). При увеличении накачки в 2-4 раза в спектре появлялась нерегулярная, не повторяющаяся от выстрела к выстрелу структура с характерным размером 3-10 \AA , спектр расширялся, перекрывая зачастую область от 530 нм до 625 нм (рис. 2б). Исследуя угловое распределение спектра этого излучения, мы обнаружили, что оно состоит из резко направленного широкополосного структурированного излучения с расходямостью 0,003 рад

^ж) Характер спектров не менялся при возбуждении путом импульсов.

и излучения с гладким спектром и с расходимостью 0,05 рад, определяемой отношением диаметра к длине возбужденной области красителя (рис. 2в).



Р и с. 2. Спектры излучения растворов родамина 6Г с концентрацией $1 \cdot 10^{-4}$ М при возбуждении пикосекундными импульсами. а, б - спектры излучения; в - угловое распределение спектра; г, д - временная развертка спектра. Мощность накачки на рис. б, в, д в 2 - 4 раза больше, чем на а, г. Время увеличивается сверху вниз, интервал между ступенями 5 пс

Временные развертки спектров, полученные при возбуждении путем пикосекундных импульсов, приведены на рис. 2 г, д. При малых уровнях накачки наблюдалось излучение с гладким спектром, задержанное относительно возбуждающего импульса на ~ 15 пс (рис. 2г). Спектр этого излучения не менялся со временем, максимум его совпадал с максимумом спектра люминесценции. При большей накачке на начальных стадиях развертки по времени, совпадающих с максимумом возбуждающего импульса, наблюдались широкие полосы излучения со структурным спектром. При малых концентрациях раствора ($\leq 1 \cdot 10^{-4}$ М) эти полосы начинались от второй гармоники, а при больших концентра-

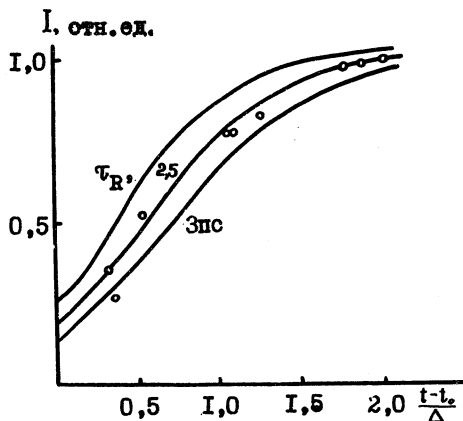
ниях раствора проявлялось в основном длинноволновое крыло этого излучения. Ширина полосы излучения зависела от мощности накачки. На более поздних стадиях развертки спектр излучения был таким же, как при малых уровнях накачки.

Таким образом, наши эксперименты показали, что при возбуждении раствора красителя пикосекундными импульсами возникает два вида излучения: 1) Излучение с широким спектром с линейчатой структурой, происходящее одновременно с накачкой красителя. Это излучение очень направлено, его расходимость не превышает расходимости излучения накачки. 2) Суперфлуоресценция, достигающая максимума через ~ 15 пс после максимума возбуждающего импульса и характеризующаяся обычными свойствами: ширина спектра 100–120 Å, максимум в области максимума люминесценции, расходимость при используемом диаметре возбуждающего пучка $\sim 3^\circ$.

Можно предполагать, что направленное излучение, происходящее одновременно с накачкой, представляет собой уширенное растворителем излучение второй гармоники, которое затем усиливается красителем. Однако, наблюдаемое уширение спектра гармоники в чистом растворителе не сопровождалось появлением в спектре характерной нерегулярной структуры. Выяснение природы структурированного излучения требует дальнейших исследований. Оценки показывают, что при использованной мощности накачки появление структуры может вызываться рассеянием, связанным с либрациями молекул красителя, когерентными эффектами, вынужденным комбинационным рассеянием на молекулах красителя и вынужденным излучением красителя с высоких колебательных уровней возбужденного электронного состояния, инициированным уширенным излучением второй гармоники.

По задержке нарастания суперфлуоресценции было оценено время релаксации молекул родамина 6G по колебательным уровням возбужденного состояния. При предположении о гауссовой форме возбуждающего импульса, переводе всех молекул в возбужденное состояние, полном просветлении красителя передним фронтом импульса накачки и больших коэффициентах усиления интенсивность суперфлуоресценции можно описать выражением $J(t) = \text{const} \cdot \exp \left\{ - \sigma n \nu \exp \left[- \left(\frac{t - t_0}{\tau_R} \right)^2 \right] \right\}$, где σ - сечение усиления, n - концентрации молекул, τ_R - время релаксации, t_0 - момент достижения фронтом им-

ульса накачки задней стенки киветы, а В учитывает отличие скорости распространения фронта от скорости света в среде. Интенсивность света, прошедшего через затвор, определяется сверткой



и с. 3. Изменение во времени интенсивности суперлюминесценции, прошедшей через скоростной затвор. Кривые - результат расчета, точки - экспериментальные значения

функций, описывающих временную зависимость интенсивности супер-

люминесценции $J(t)$ и пропускания затвора $T(t)$. $T(t) \sim \exp \left\{ -2 \frac{t^2}{\Delta^2} \right\}$,

где Δ - полуширина импульса накачки. Экспериментальные данные кривые, представляющие свертки $J(t)$ и $T(t)$, рассчитанные для нескольких значений τ_R , приведены на рис. 3. Положение экспериментальных точек лучше всего соответствует значению $\tau_R = 2,5$ пс.

Учет сброса инверсии, перевода только части молекул в возмущенное состояние и неполного просветления раствора красителя должен привести к увеличению значения τ_R . Поэтому определенная нами величина $\tau_R = 2,5 \pm 1$ пс является нижней границей значения времени релаксации.

Поступила в редакцию
29 сентября 1976 г.

Л и т е р а т у р а

1. M. R. Topp, P. M. Rentzepis, R. P. Jones. Chem. Phys. Lett., 9, 1 (1971).
2. M. M. Malley, G. Mourou. Optics Commun., 10, 323 (1974).
3. A. N. Rubinov, M. C. Richardson, K. Sala, A. J. Alcock. Appl. Phys. Lett., 27, 368 (1975).
4. R. R. Alfano, S. L. Shapiro. Phys. Rev. Lett., 29, 1655 (1972).
5. D. Ricard, W. H. Lowdermilk, J. Dueuing. Chem. Phys. Lett., 16, 617 (1972).
6. G. Porter, E. S. Reid, C. J. Tredwell. Chem. Phys. Lett., 29, 469 (1974).
7. G. Mourou, M. M. Malley. Chem. Phys. Lett., 32, 476 (1975).