

ПРИМЕНЕНИЕ $S_2 - S_0$ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КРАСИТЕЛЕЙ ДЛЯ ПИКОСЕКУНДНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

М. Д. Галанин, Э. А. Чижикова

УДК 621.378.325

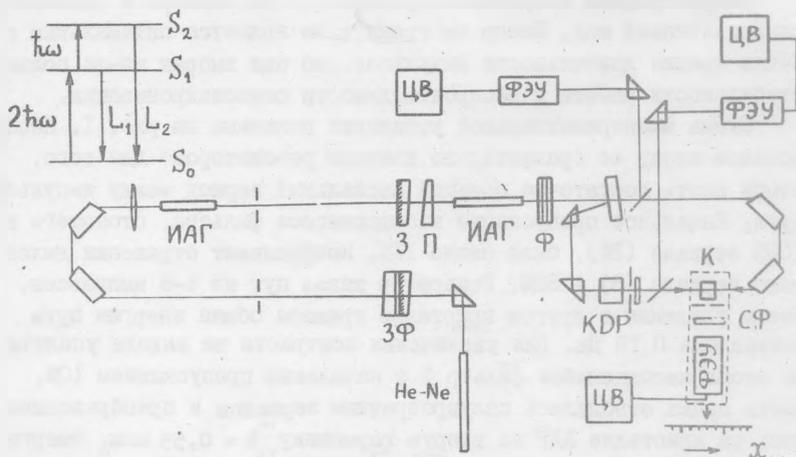
Двухступенчатое возбуждение пикосекундными импульсами на основной частоте и гармонике ИАГ-лазера и измерение интенсивности люминесценции со второго возбужденного синглетного уровня S_2 применено для определения длительности импульсов и времени жизни на первом возбужденном уровне S_1 .

В технике пикосекундных световых импульсов и в исследовании процессов, протекающих в пикосекундном диапазоне, наряду с измерениями при помощи быстродействующих электронно-оптических преобразователей, получили распространение методы, в которых используются скоростные затворы или пробные импульсы. Эти методы характерны тем, что не требуют скоростной аппаратуры, так как для открывания затворов (или в качестве пробных импульсов) применяются те же пикосекундные импульсы, под действием которых происходит исследуемое явление (см. напр. /1/).

В работе /2/ для определения короткого времени жизни на первом возбужденном уровне S_1 азулена было применено двухступенчатое возбуждение на второй возбужденный уровень S_2 и наблюдение люминесценции с этого уровня, которая очень сильна только у азулена. В данной работе была исследована возможность обобщить этот метод на тот случай, когда, как это имеет место у большинства молекул, люминесценция с уровня S_2 очень слаба. Так, например, в нашей работе /3/ было показано, что выход люминесценции с уровня S_2 родамина 6Ж порядка 10^{-5} .

Предположим, что частота гармоники достаточна для перехода $S_0 - S_1$, но недостаточна для перехода $S_0 - S_2$, а основная частота достаточна для $S_1 - S_2$, но недостаточна для $S_0 - S_1$

(рис. 1, наверху слева). Тогда при распространении импульса на частоте гармоники по кювете с раствором будет бежать с групповой скоростью света v фронт возбуждения на S_1 . Если время жизни этого возбужденного состояния τ , то позади этого фронта концентрация возбужденных молекул будет экспоненциально убывать



Р и с. 1. Схема экспериментальной установки

$\exp(t'/\tau)$, где $t' = t - x/v$. Импульс лазера на основной частоте, распространяющейся навстречу импульсу гармоники, будет играть роль пробного или опрашивающего импульса, так как будет возбуждать люминесценцию I_2 (рис. 1) только в той области, где молекулы возбуждены в состоянии S_1 . Предположим, что импульс гармоники идет слева направо, а импульс основной частоты справа налево. Тогда люминесценция I_2 будет наблюдаться только слева от той точки, где импульсы на частоте гармоники и на основной частоте встречаются. Если измерять интенсивность люминесценции I_2 в зависимости от расстояния вдоль направления распространения пучков, то полученная зависимость будет отображать временную форму импульсов. Легко видеть, что из-за встречного движения возбуждающего и опрашивающего импульсов пространственная картина будет сжата вдвое и для преобразования t в x нужно пользо-

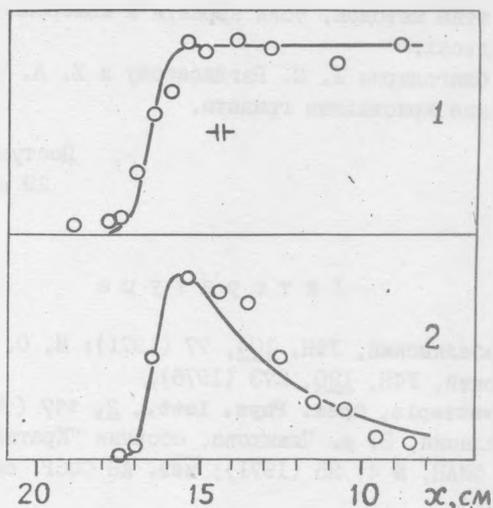
заться формулой $x = vt/2$, где v - групповая скорость света. По этой же причине аппаратная функция в этом методе будет определяться полусуммой длительностей импульсов и длиной того участка, с которого фиксируется люминесценция.

Пикосекундные импульсы получались от ИАГ-лазера с пассивной синхронизацией мод. Лазер на гранате не является оптимальным с точки зрения длительности импульсов, но был выбран из-за большей стабильности работы и воспроизводимости самосинхронизации.

Схема экспериментальной установки показана на рис. 1. Использовался лазер со сравнительно длинным резонатором для того, чтобы иметь достаточно большой аксиальный период между импульсами пучка. Начальное пропускание насыщающегося фильтра, стоявшего на 100% зеркале (ЗФ), было около 15%. Коэффициент отражения выходного зеркала (З) - 50%. Генератор давал пучок из 6-8 импульсов. После усиления в другом кристалле граната общая энергия пучка составляла 0,15 Дж. Для увеличения контраста на выходе усилителя стоял насыщающийся фильтр Ф с начальным пропусканием 10%. Часть пучка отводилась полупрозрачным зеркалом и преобразовывалась на кристалле КДР во вторую гармонику $\lambda = 0,53$ мкм. Энергия второй гармоники составляла $3 \cdot 10^{-4}$ Дж (10^{16} квантов/см²). Энергия лазера и гармоники контролировались при помощи ФЭУ, интеграторов и цифровых вольтметров. Пучки на основной частоте и на частоте гармоники тщательно встировались навстречу друг другу при помощи гелий-неонового лазера. Дисперсия в клиновой подложке выходного зеркала (З на рис. 1), компенсировалась клиновой подложкой П. Кювета К устанавливалась вблизи точки, где равны оптические пути импульсов на основной частоте и на частоте гармоники, которая могла передвигаться вместе с фотоумножителем вдоль шкалы x . Светофильтр СФ пропускал область около 400 нм и полностью задерживал обычную люминесценцию L_1 с уровня S_1 .

Результаты измерений представлены на рис. 2. Каждая экспериментальная точка получена усреднением по пяти импульсам. Тем не менее разброс довольно велик, что возможно связано со статистикой самосинхронизации и с отсутствием прокачки насыщающегося фильтра. Кривая I относится к спиртовому раствору родамина 6Ж. В этом случае время затухания $\tau = 4,5$ нс далеко выходит за измеряемый диапазон. Но существенно, что люминесценция L_1 успевает затухнуть до 2%, за аксиальный период $2L/c = 18,7$ нс. По-

этому когда приходит следующий импульс цуга, то раствор практически не возбужден. Поэтому наблюдается крутой подъем интенсивности люминесценции I_2 слева от точки встречи импульсов (на рис. 2 направление x справа налево). По крутизне этого подъема



Р и с. 2. Зависимость интенсивности люминесценции I_2 (в относительных единицах) от положения по шкале x : 1 - родамин 6Ж в этаноле; 2 - родамин 6Ж в воде + КJ (0,15 г/мл)

можно судить о ширине аппаратной функции данного метода, т.е. о длительности пикосекундных импульсов (ширина щели на кювете 2 мм). Сплошная кривая 1 на рис. 2 вычислена для импульсов гауссовой формы с полушириной 45 пс, что согласуется с данными для примененного гранатового лазера /4/. На кривой 2 даны результаты для водного раствора родамина 6Ж, сильно потушенного йодистым калием (концентрация 0,15 г/мл). Сплошная кривая вычислена как свертка гауссиана с экспонентой $\tau = 300$ пс. Таким образом τ уменьшено в 15 раз по сравнению с непотушенным раствором. Это находится в соответствии с уменьшением квантового выхода.

Таким образом даже очень слабая люминесценция с уровня S_2 достаточна для временных измерений методом двухступенчатого возбуждения. Люминесценцией $S_2 - S_0$ обладают многие вещества, применяемые в качестве насыщающихся фильтров, например, криптоцианин /5/. Поэтому имеется возможность измерять их время жизни на уровне S_1 этим методом, если перейти к измерениям на более коротких импульсах.

Авторы благодарны Х. С. Багдасарову и Е. А. Федорову за предоставление кристаллов граната.

Поступила в редакцию
29 марта 1978 г.

Л и т е р а т у р а

1. И. Л. Фабелинский, УФН, 104, 77 (1971); М. С. Песин и И. Л. Фабелинский, УФН, 120, 273 (1976).
2. P. M. Rentzepis, Chem. Phys. Lett., 2, 117 (1968).
3. М. Д. Галанин, З. А. Чижикова, сборник "Краткие сообщения по физике" ФИАН, № 4, 35 (1971); изв. АН СССР, сер. физ., 36, 941 (1972).
4. М. Д. Галанин, З. А. Чижикова, Квантовая электроника, 4, 2462 (1977).
5. A. Müller, E. Pflüger, Chem. Phys. Lett., 2, 155 (1968).