

**Т.Н. Копылова, Р.Т. Кузнецова, Г.В. Майер, В.А. Светличный,
Е.Н. Тельминов, Д.Н. Филинов**

Фотоника сложных молекул в условиях нелинейного поглощения при мощном лазерном возбуждении. I. Особенности спонтанного и вынужденного излучения молекул в мощных световых полях

*Сибирский физико-технический институт им. акад. В.Д. Кузнецова
при Томском государственном университете*

Поступила в редакцию 14.03.2001 г.

Изучены особенности излучения концентрированных ($10^{18} - 10^{19} \text{ см}^{-3}$) растворов сложных органических соединений (родамин 6Ж, замещенный *para*-терфенил) в мощных световых полях возбуждающего лазерного излучения ХеСl-лазера (плотность мощности до $5 \cdot 10^{26} \text{ фот}/(\text{с} \cdot \text{см}^2)$). Установлено, что в условиях данного эксперимента наблюдаются 4 типа свечения, три из которых интерпретируются однозначно (флуоресценция, генерация, генерация на наведенной накачке тепловой линзе), а природа четвертого типа излучения («полоса») предположительно интерпретируется как усиленное спонтанное излучение, однако оно может быть и коллективным испусканием ансамбля возбужденных молекул. Намечены исследования, результаты которых позволят понять природу наблюдаемого излучения.

Известно, что в мощных световых полях оптические свойства молекул могут изменяться, что приводит к ряду наблюдаемых явлений, природа которых сложна и до сих пор до конца не понята [1–3]. Создание лазеров и их дальнейшее интенсивное развитие позволили поставить тонкие физические эксперименты, которые существенно повлияли на саму интерпретацию взаимодействия резонансного оптического излучения с атомами и молекулами. В последнее время появился цикл работ известных российских ученых (В.Б. Шилова, В.П. Ключкова с соавт. [4–19]), выполненных в этом направлении.

С момента опубликования первых работ В.П. Ключкова с соавт. [5] природа явлений, наблюдающихся при взаимодействии мощного лазерного излучения с органическими молекулами, широко обсуждается в литературе, появляется все больше экспериментальных данных об их особенностях. Однако есть еще много неясностей, требующих проведения экспериментов с использованием возбуждающих лазерных пучков с различными параметрами, а также исследований влияния особенностей спонтанного излучения органических молекул в мощных световых полях (лазерных красителей) на развитие их вынужденного излучения.

Несколько слов о сути наблюдаемых явлений. В.П. Ключковым и Е.Б. Верховским [5] при исследовании спонтанного излучения (флуоресценции) органических молекул (родамины, цианины и другие лазерно-активные среды) под действием мощного лазерного излучения 2-й гармоники неодимового лазера

обнаружен аномальный рост флуоресценции молекул в условиях насыщения поглощения. Установлено, что зависимость носит пороговый характер, пороговый уровень плотности мощности зависит от свойств вещества, концентрации раствора, условий формирования возбуждающего лазерного пучка (сфокусированный – несфокусированный). Пороговый уровень плотности мощности значительно увеличивается при возбуждении несфокусированным излучением. Совокупность признаков наблюдаемого явления, названного В.П. Ключковым «некогерентной сверхфлуоресценцией», дала ему основание предположить, что оно связано с увеличением вероятности спонтанного испускания молекул при возрастании плотности мощности возбуждающего излучения в результате четырехволнового смешения двух волн накачки, волны флуктуирующего поля вакуума и сопряженной с ней волны. Возможность увеличения вероятности спонтанного испускания при взаимодействии поля вакуума с излучением накачки предсказывалась в 80-е годы [20, 21].

Наблюдаемые явления широко обсуждаются. Есть работы [22–24], в которых полученные результаты ставятся под сомнение, имеют другую трактовку и т.д. Это лишь подчеркивает сложность проводимых экспериментов и актуальность их исследования.

В.Б. Шилов с сотр. [13] обнаружили существенное отклонение экспериментальных кривых оптического просветления органических молекул при высоких интенсивностях накачки от теоретических расчетов, следующих из классических представлений взаимодействия лазерного поля с уширенными многоуровневыми

системами, т.е. они также наблюдали аномально высокую флуоресценцию органических молекул в мощных световых полях. Однако причиной этого явления они считают не увеличение вероятности спонтанного испускания молекул (по их мнению, такая трактовка явления требует фундаментальных обоснований), а возможность коллективных взаимодействий молекул в сильном резонансном поле.

Эти взаимодействия могут приводить к изменению динамики населенностей и флуоресценции, если они включают нулевые колебания вакуума, притом только в том случае, если эти колебания имеют конечный радиус пространственной когерентности, свечение рассматривается в рамках 4-волнового коллективного взаимодействия с участием двух колебаний вакуума (первая теоретическая работа, посвященная этому явлению, была одновременно представлена Файном [3]).

В последних работах В.П. Ключкова и Е.Б. Верховского [17, 19] исследовано свечение растворов родамина 6Ж и родамина В при высокой концентрации ($C > 10^{18} \text{ см}^{-3}$), возбуждающееся в световых полях с плотностью мощности $10^{25} - 10^{26} \text{ фот} / (\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1})$.

Установлено, что в зависимости от концентрации растворов и плотности мощности возбуждающего излучения наблюдаются несколько типов свечения: коллективное спонтанное испускание, усиленное спонтанное испускание, генерация лазерного излучения.

Интенсивность коллективного направленного свечения изменяется от плотности мощности возбуждающего излучения по квадратичному закону и интерпретируется авторами как коллективное спонтанное испускание типа Дике. Особенностью его является необходимость очень малого времени наведения корреляций и времени задержки импульса, что обусловлено высокой скоростью поперечной релаксации у молекул красителей ($\sim 10^{12} + 10^{13} \text{ с}^{-1}$). Такое требование может быть удовлетворено при высоких концентрациях возбужденных молекул, при $C = 10^{17} - 10^{19} \text{ см}^{-3}$ время наведения корреляций может быть $\sim 5 \cdot 10^{-14} - 5 \cdot 10^{-15} \text{ с}$, оно значительно меньше времени дефазировки в результате поперечной релаксации в молекулах.

Наблюдаемые излучения спектрально разнесены, соотношение интенсивности их полос меняется в зависимости от вышеуказанных параметров. Все три типа свечения, по мнению авторов, испускаются не одновременно. Наименьшим временем испускания обладает коллективное свечение, отдельные импульсы этого свечения у родамина 6Ж испускаются за время $< 10^{-13} \text{ с}$, процесс коллективного испускания идет в течение всего времени действия возбуждающего импульса – испускается цуг импульсов фемтосекундного диапазона. Коллективное испускание, снижая концентрацию возбужденных молекул, препятствует развитию усиленного спонтанного испускания и генерации лазерного излучения.

Появление лазерной генерации при уменьшении концентрации раствора объясняется увеличением времени развития коллективного испускания, уменьшении

ем концентрации сфазированных излучателей вследствие колебательной релаксации и увеличением концентрации возбужденных молекул, у которых отсутствует фазировка излучателей. Возбужденные молекулы с расфазированными излучателями ответственны за усиленное спонтанное испускание и лазерную генерацию.

Исследования аномальной флуоресценции молекул в поле интенсивной лазерной накачки Шиловым и сотр. продолжаются. Так, в [13, 15] исследована аномальная светонаведенная флуоресценция растворов многоатомных молекул при возбуждении излучением интенсивного лазерного поля субнано- и пикосекундной длительности. Впервые обнаружен эффект конденсации флуоресценции в поле накачки, выраженный в сближении кинетики флуоресценции с кинетикой импульса накачки и возрастании квантового выхода с увеличением плотности энергии возбуждения. В развитие своих прежних представлений высказана гипотеза о механизме наблюдаемых явлений – четырехволновое коллективное взаимодействие в системе «ансамбль оптических центров – поле накачки» с участием нулевых колебаний вакуума при их частичной локальной когерентности.

Понимание причин этих явлений необходимо не только с точки зрения получения фундаментальных знаний, но и с практической точки зрения – оптимизации энергетических параметров лазеров на основе органических соединений при мощном возбуждении. Так, например, установлено, что КПД преобразования лазерноактивной среды падает при возрастании мощности возбуждающего излучения [23]. Причина этого явления сложна и определяется как нелинейными оптическими процессами, характеризующими в большей мере условия эксперимента (сверхлюминесценция в пристенном слое; люминесценция, возбужденная излучением накачки, рассеянной по объему кюветы; обратимое ухудшение окон прозрачности кюветы; нелинейное рассеяние различной природы), так и изменением внутримолекулярных процессов в самой молекуле (некогерентная сверхфлуоресценция, наведенное поглощение и обратимые фотохимические процессы [22, 23, 25]; двухступенчатые переходы, обусловленные поглощением излучения накачки в канале возбужденных синглетных состояний [26]). Изменяется и вероятность протекания фотохимических превращений в лазерноактивной среде в мощных световых полях. Так, установлено [29], что квантовый выход фотораспада молекулы в режиме генерации ниже, чем в условиях спонтанного излучения, при одинаковых параметрах возбуждающего излучения.

Ключковым и Верховским [11] показано, что пороговое значение мощности генерации лазеров на красителях снижается при мощностях, превышающих порог возбуждения некогерентной сверхфлуоресценции. Это связано с тем, что увеличение скорости спонтанного испускания должно вызывать не только снижение населенности возбужденного состояния (что должно привести к росту пороговой мощности генерации), но и уменьшение времени разгорания генерации (времени, за которое достигается пороговая мощность).

Последняя работа В.Б. Шилова, выполненная совместно с В.П. Ключковым [18], показывает, что коллективные взаимодействия в оптических ансамблях влияют на пороговые характеристики генерации органических молекул при оптической когерентной накачке. Ими обнаружено существенное замедление роста пороговой накачки с уменьшением квантового выхода флуоресценции по сравнению с предсказаниями классической теории лазеров, что находится в согласии с концепцией коллективных процессов, развивающихся в концентрированных средах при интенсивном когерентном возбуждении.

Таким образом, прослеживается прямая связь изменения люминесцентных характеристик органических молекул при мощном возбуждении с их генерационными свойствами, определяющими оптимальные параметры лазеров на их основе.

Исследования особенностей излучения органических молекул в мощных световых полях возбуждающего излучения эксимерных лазеров начаты нами в 1995 г. [27–30].

Объекты исследования: органические молекулы, имеющие различное строение и спектрально-люминесцентные свойства (таблица).

Спектрально-люминесцентные и генерационные свойства исследуемых соединений

Соединение	Растворитель	$\lambda_{\text{погл.}}^{\text{макс}}$, нм	$\lambda_{\text{фл.}}^{\text{макс}}$, нм	$\sigma_{01}^{308} \cdot 10^{-16}$, см ²	$\sigma_{10} \cdot 10^{-16}$, см ²	$A_{10} \cdot 10^8$, с ⁻¹	$\eta_{\text{фл}}$	Квант. кпд ген., %
Родамин 6Ж	Этанол	532	560	0,53	13,8	2,7	0,75	36
<i>Para</i> -терфенил	Этанол	280	340	0,28	4,6	9,9	0,92	27,5
ЛОС1	Этанол	309	373	1,67	5,7	8,2	0,96	51
4RuPO	Этанол	323	395	0,76	3,5	4,7	0,9	20,7
4RuPON(CH ₃) ₂	Этанол	382	560	0,32	4,2	2,5	0,27	27,8
	Гексан	365	417	0,95	2,5	2,8	0,8	3,3
Кумарин 2	Этанол	370	440	0,1	2,2	1,9	0,84	39
<i>Транс</i> -стильбен	Этанол	309	348	1	2,8	5,27	0,05	5
Бифлуорофор (<i>T</i> -стильбен-CH ₂ -K120)	Этанол	370	440	1,1	2,2	1,9		39

Квантовый выход флуоресценции молекул, как видно, изменяется от 0,05 (*транс*-стильбен) до 0,96 для ЛОС1. Различие спектрально-люминесцентных и генерационных характеристик исследуемых молекул обусловлено различием фотофизических процессов, протекающих в этих молекулах. Поэтому представляет интерес исследование действия мощного лазерного излучения на их протекание.

Источник возбуждения: эксимерный лазер на ХеСl ($\lambda_r = 308$ нм, E_r до 50 мДж, $\tau_{1/2} = 10$ нс, размеры пучка 21 × 8 мм). Пространственно энергетические и временные характеристики этого лазера сильно отличаются от неодимового, используемого в работах Ключкова и Шилова [4–19] (так, его пространственная когерентность, по нашим оценкам, равна 12 мкм при видности интерференционной картины).

Проводимые исследования: пропускание, временные, энергетические, спектральные характеристики излучения в световых полях возбуждающего излучения от 1 до 350 МВт/см² (10^{23} – 10^{27} фот/(см²·с)).

Экспериментальная установка, блок-схема которой приведена на рис. 1, подробно описана в [27, 28].

Отметим лишь, что она позволяет исследовать излучение в различных режимах – спонтанное излучение, суперфлуоресценцию, генерацию.

Из полученных научных результатов представляется необходимым отметить следующие:

1. Экспериментально исследована зависимость интенсивности люминесценции этанольных растворов 2-(4-пиридил)-5-фенилоксазола, излучающего в синем диапазоне спектра с достаточно высокой интенсивностью, от плотности мощности возбуждающего излучения ХеСl*-лазера ($P = 10^{23} \div 10^{27}$ фот/(см²·с)). Обнаружен, как и в работах В.П. Ключкова, аномальный рост люминесценции при интенсивной накачке. Однако причиной этого, по-нашему мнению, может быть возрастающая роль вынужденного излучения [27].

2. Проведено исследование интенсивности, длительности импульсов и спектров излучения *транс*-стильбена и 2-(4-пиридил)-5 фенилоксазола (4RuPO) при возбуждении излучением ХеСl*-лазера с плотностью мощности от 10^{23} до 10^{26} фот/(см²·с). Обнаружен аномальный рост интенсивности излучения для этанольных растворов 4RuPO, *транс*-стильбена, фотокатионной формы 4RuPO в водном растворе, а также коротковолновый (< 10 нм) сдвиг спектров при увеличении

интенсивности возбуждающего излучения. Анализ полученных экспериментальных данных позволил предположить, что аномальный характер наблюдаемого излучения может быть связан как с вынужденным излучением, так и с коллективными взаимодействиями молекул [28].

3. Исследованы излучательные и фотохимические свойства лазерных красителей (4RuPO, его диметилзамещенный, *para*-терфенил (ЛОС1)) при возбуждении сфокусированным излучением ХеСl*-лазера с плотностью мощности до 200 МВт/см². Предложена методика измерения коэффициента усиления органических молекул при мощном возбуждении. Изучена зависимость пропускания исследуемыми молекулами возбуждающего излучения от его плотности мощности.

Показано, что особенности спектральных и временных характеристик изученных органических соединений (смещение и изменение полуширины спектра излучения, изменение формы импульса), возникающие при возбуждении органических молекул мощным излучением ХеСl-лазера, связаны с формированием усиленного спонтанного излучения – сверхлюминесценции [29].

4. Исследованы спектрально-люминесцентные свойства 8 органических красителей, в том числе и родамина 6Ж, при возбуждении сфокусированным излучением ХеСl-лазера в области плотности мощности накачки до $200 \text{ МВт}/\text{см}^2$. Концентрация красителей изменялась от 5 до $1000 \text{ мкмоль}/\text{л}$ в зависимости от эффективности поглощения излучения накачки и интенсивности флуоресценции при лазерном возбуждении.

Показано, что особенности излучения изученных молекул в мощных световых полях ХеСl*-лазера в условиях данного эксперимента связаны с формированием сверхлюминесценции [30].

Таким образом, наблюдаемые особенности излучения молекул в мощных световых полях достаточно трудно однозначно интерпретировать, излучения различной природы могут конкурировать между собой.

Работа Ключкова [17] и наблюдение излучения, связанного с коллективным спонтанным испусканием молекул, стимулировали наши исследования излучения концентрированных растворов некоторых органических соединений (систем с высокой скоростью дефазировки [19], к которым относятся и лазерные красители) при мощном возбуждении ХеСl-лазера.

В работах [2, 32] рассматривается кооперативное излучение и для протяженных объемов $V \gg \lambda^3$, когда излучение накачки действует продолжительное время (больше времени поперечной релаксации). В этих случаях характеристики кооперативного излучения [3] могут значительно отличаться от сверхизлучения, описанного Дике [1]. Кроме того, наряду с кооперативным излучением в среде одновременно могут развиваться (конкурируя друг с другом) и другие типы излучения: спонтанное, многопроходная генерация, усиленное спонтанное излучение (суперфлуоресценция).

В качестве объектов исследования выбраны родамин 6Ж (исследованный Ключковым и соавт.), концентрация которого изменялась от $5 \cdot 10^{-3}$ ($3 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$) до 10^{-1} моль/л ($6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$), и феналемин 512 от 10^{-2} ($6 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$) до $5 \cdot 10^{-3}$ моль/л ($3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$). Для них характерна сильная реабсорбция излучения. Для соединения ЛОС1 реабсорбция отсутствует, однако растворимость в этаноле несколько ниже и максимальная концентрация для ЛОС1 – $5 \cdot 10^{-3}$ моль/л ($3 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$).

Исследование проводилось на той же установке (рис. 1), возбуждение осуществлялось через круглую диафрагму диаметром 0,5 мм, при этом возбужденный объем представлял собой цилиндр высотой, равной глубине проникновения излучения накачки в раствор, и диаметром основания 0,5 мм. 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. Для соединения с сильной реабсорбцией (родамин 6Ж и феналемин 512) наблюдались следующие 4 типа свечения.

1. Спонтанное испускание – при фронтальном возбуждении обычная флуоресценция, излучение не направленное, с широким спектром ($\lambda_{\text{max}} = 570 \text{ нм}$),

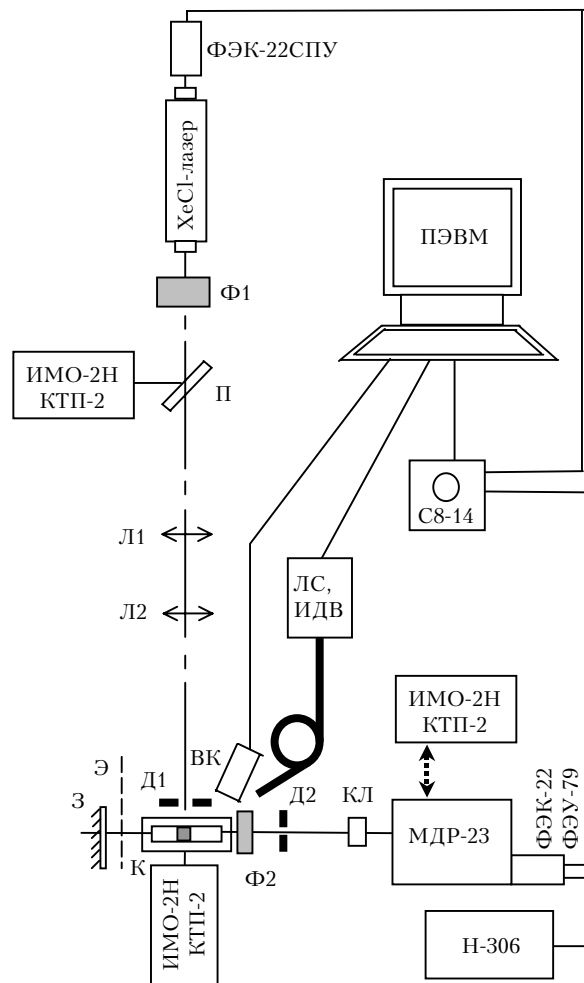


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: С8-14 – осциллограф; П – светоделительная пластина; Ф1, Ф2 – светофильтры; Л1, Л2 – линзы; Э – экран; З – зеркало; К – кювета с исследуемым раствором; Д1, Д2 – диафрагмы, КЛ – коллиматор; ФЭК-22, ФЭУ-79 – фотоприемники; ИМО-2Н, КТП-2 – калориметры; МДР-23 – монохроматор; Н-306 – графопостроитель; ВК – видеокамера для измерения размеров возбуждаемого объема; ЛС – лазерный спектрометр; ИДВ – измеритель длин волн; ПЭВМ – программно-вычислительный комплекс

совпадающим со спектром флуоресценции, снятом при низкоинтенсивном возбуждении на «Hitachi-850», при регистрации перпендикулярно накачке сильно реабсорбировано, сдвиг 30 нм. При концентрации С родамина 6Ж, равный 10^{-1} моль/л, флуоресценция уменьшается, наблюдаются неизлучающие димеры.

2. Генерация – это явление возникает в низкодобротном резонаторе, образованном гранями кюветы, в направлении, перпендикулярном накачке. Характеризуется высоким порогом генерации ($20 - 100 \text{ МВт}/\text{см}^2$), обусловленным большими потерями в низкодобротном резонаторе, дифракционными потерями из-за поглощения в тонком слое и потерями на реабсорбцию (при концентрации $5 \cdot 10^{-2}$ и 10^{-1} моль/л генерация формируется только в резонаторе с базой $L = 0,2 \text{ см}$, при $L = 1 \text{ см}$ генерации нет) и низким кпд ($\approx 1\%$).

3. «Полоса» – излучение, распространяющееся по кругу во всех направлениях в плоскости, перпендикулярной направлению возбуждения, на экране наблюдается в виде узкой вертикальной полосы, спектр излучения шире спектра генерации (для родамина 6Ж $\Delta\lambda = 10 - 20$ нм), максимум спектра излучения «полосы» не совпадает с максимумом спектра генерации (сдвинут в более коротковолновую область, например, при концентрации родамина 6Ж 10^{-2} моль/л максимум спектра «полосы» 573 нм, максимум спектра генерации – 596 нм). Если излучение в «полосе» регистрируется под малым углом к генерации ($\alpha = 10 \div 15^\circ$), то можно наблюдать картину, представленную на рис. 2.

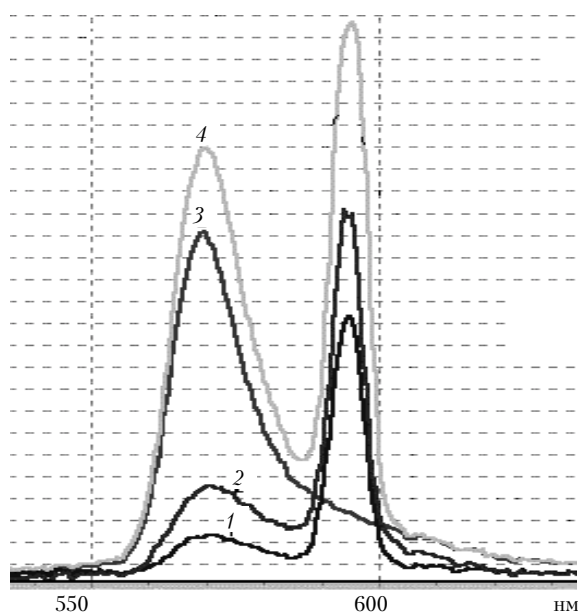


Рис. 2. Спектры излучения в «полосе». $P = 50$ МВт/см² – кривая 1; 120 – 2; 250 – 3, 4; без вкладыша – 1, 2, 4, с вкладышем – 3

Спектр излучения состоит из двух полос, если в кювету поместить вкладыш – длинноволновая полоса, соответствующая рассеянной генерации, исчезает. Таким образом, спектрально излучение в «полосе» для родамина 6Ж совпадает с положением полосы коллективного излучения, наблюдаемого Клочковым [19]. Однако уверенности в том, что наблюдаемое нами излучение в «полосе» носит ту же природу, у нас нет. Мы полагаем изучить зависимость интенсивности излучения I в «полосе» от плотности мощности возбуждающего излучения P и от концентрации возбужденных частиц N . Только анализируя ход зависимости $I = f(N)$, можно говорить о природе этого излучения.

Наблюдаемые нами отклонения от линейной зависимости интенсивности излучения в «полосе» от плотности мощности возбуждающего излучения для ЛОС1 при $C = 5 \cdot 10^{-3}$ моль/л (максимальная растворимость), вероятнее всего, связаны с формированием усиленного спонтанного излучения, конкурирующего с коллективным излучением [17, 19], так как

при $C < 3 \cdot 10^{18}$ ($5 \cdot 10^{-3}$ моль/л) преобладает процесс формирования усиленного спонтанного излучения и генерации.

Однако следует подчеркнуть, что параметры возбуждающего излучения (XeCl-лазера) сильно отличаются от параметров неодимового лазера, например по когерентности, что, несомненно, скажется на характеристиках, при которых идет формирование коллективного испускания, например концентрации органических молекул в растворах. А пока нам представляется наиболее вероятной причиной возникновения этого излучения усиленное за один проход спонтанное излучение (суперфлуоресценция). Это излучение формируется в пределах возбужденной области, где реабсорбция значительно меньше, чем в невозбужденных областях кюветы, поэтому полоса такого излучения сдвигается в коротковолновую сторону в отличие от генерации, которая формируется при многократных проходах.

Представляют интерес с точки зрения интерпретации природы излучения в «полосе» полученные результаты для ЛОС1 (рис. 3,б). Спектр излучения «полосы» состоит из «подшвы» шириной 20–25 нм и узкой полосы (3–4 нм на полувысоте) в центре, причем последняя полоса наблюдается и при значительных углах к генерации. Предельный коэффициент усиления ЛОС1 при этой концентрации больше 10^3 см⁻¹, время жизни флуоресцентного состояния ~1 нс (для родамина 6Ж – это 3–5 нс), концентрационного тушения флуоресценции не наблюдается, поэтому за один проход формируется узкополосное излучение – суперфлуоресценция. Как видно из рис. 3,б, формирование суперфлуоресценции с ростом интенсивности происходит плавно, в то время как формирование генерации носит «пороговый» характер (рис. 3,а).

Представляется интересным привести следующую оценку: по ширине «полосы» суперфлуоресценции по методике, предложенной Клочковым [19], была рассчитана глубина проникновения в раствор излучения накачки и оценены размеры возбужденной области. Исходя из этих оценок при плотности мощности накачки 200 МВт/см² каждая молекула из возбужденного объема должна в течение импульса накачки поглотить не менее 10^4 фотонов. Таким образом, время цикла «поглощение – релаксация» составляет ~1 пс, что значительно меньше времени жизни флуоресцентного состояния, но это время более характерно для усиленного излучения, чем для кооперативных процессов. Кроме того, при плотностях мощности накачки 1–30 МВт/см² наблюдается нелинейная зависимость интенсивности излучения ЛОС1 в «полосе» от плотности мощности возбуждения, однако нам представляется, что при таких плотностях мощности накачки нелинейная зависимость может быть связана с формированием суперфлуоресценции.

4. «Конусное» излучение – направленное излучение, распространяющееся по направляющей конуса с вершиной в точке возбуждения. Спектр состоит из двух полос. Так, для родамина 6Ж оно наблюдается

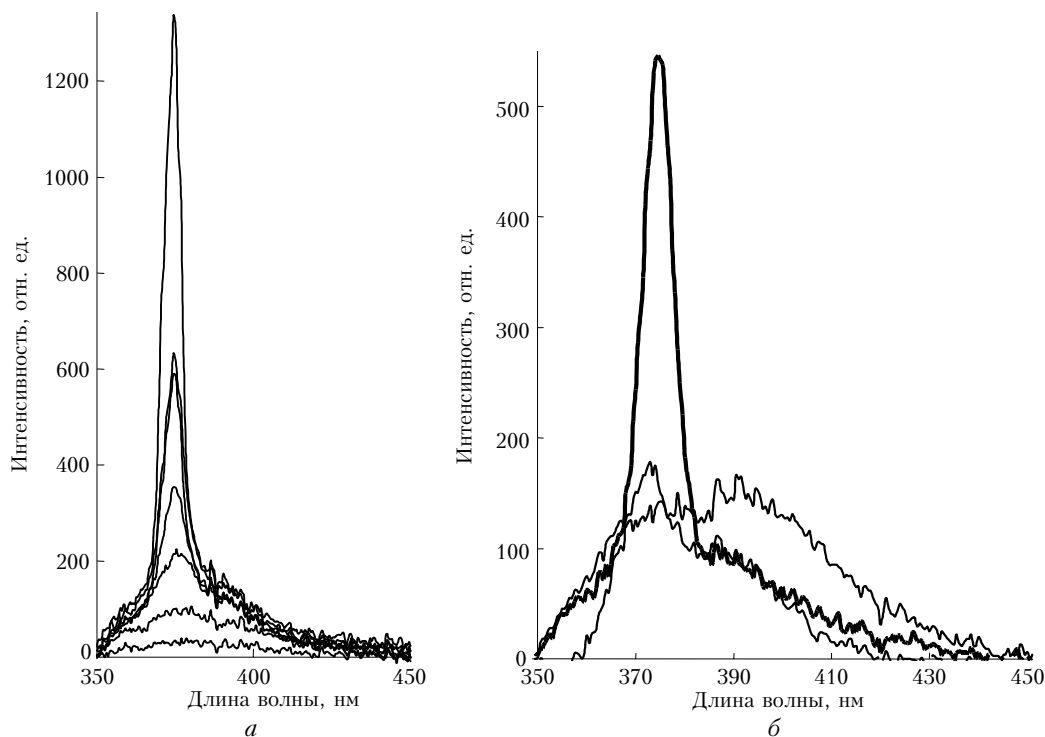


Рис. 3. Формирование генерации (а) и «полосы» (б) ЛОС1. Для разных кривых изменение W не более 20% (а) и в два раза (б)

при концентрации $5 \cdot 10^{-2}$ моль/л (генерации при этом в резонаторе с базой $L = 1$ см не наблюдается), максимумы полос излучения 588 и 600 нм.

Возможной причиной возникновения этого излучения, на наш взгляд, может быть наведение градиента коэффициента преломления на границе раздела возбужденного и невозбужденного объема, а также формирование «быстрой» тепловой линзы при наносекундной накачке [26, 31]. Эти два процесса могут привести к появлению оптической системы, формирующей усиленное вынужденное излучение в данном направлении. Подтверждением этой точки зрения может быть то, что «конусного» излучения для ЛОС1 не наблюдалось, так как порог и время наведения эффективно рассеивающей тепловой линзы должны быть значительно больше.

Таким образом, для концентрированных растворов родамина 6Ж в этаноле при мощном возбуждении излучением ХеС1-лазера наблюдается излучение неизвестной природы, предположительно отнесенное нами по совокупности признаков (сужение полосы, укорочение импульса) к усиленному спонтанному излучению. Для подтверждения природы излучения в «полосе» необходимо исследование зависимости интенсивности «полосы» от концентрации молекул.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 98-03-32082, № 01-02-16901).

1. Dicke R.H. Coherence in spontaneous radiation processes // Phys. Rev. 1954. V. 93. № 1. P. 99–110.
2. Андреев А.В., Емельянов В.И., Ильинский Ю.А. Кооперативные явления в оптике. М.: Наука, 1988. С. 180.

3. Fain B. Laser-Driven Collective Emission // SPIE 1996. V. 2798. P. 9–20.
4. Макогоненко А.Г., Клочков В.П. Некогерентная сверхфлуоресценция // Оптика и спектроскопия. 1988. Т. 64. Вып. 2. С. 244–246.
5. Клочков В.П., Верховский Е.Б. Поляризация флуоресценции при лазерном возбуждении // Оптика и спектроскопия. 1988. Т. 65. Вып. 1. С. 237–240.
6. Клочков В.П., Верховский Е.Б., Богданов В.Л. Населенность возбужденного состояния родамина 6Ж при некогерентной сверхфлуоресценции // Оптика и спектроскопия. 1991. Т. 70. Вып. 3. С. 547–551.
7. Макогоненко А.Г., Мякишева И.Н., Смирнов В.А., Шилов В.Б. Сложные молекулы в интенсивных световых полях: поглощение и люминесценция // Оптика и спектроскопия. 1991. Т. 70. Вып. 4. С. 795–800.
8. Макогоненко А.Г., Клочков В.П. Нелинейное пропускание раствором родамина 6Ж лазерного излучения и некогерентная сверхфлуоресценция // Оптика и спектроскопия. 1991. Т. 70. Вып. 2. С. 439–455.
9. Клочков В.П. Скорость спонтанного испускания у атомов и молекул в неомогенном пространстве // Оптика и спектроскопия. 1993. Т. 74. № 4. С. 676–694.
10. Клочков В.П., Верховский Е.Б. О механизме возбуждения некогерентной сверхфлуоресценции // Оптика и спектроскопия. 1993. Т. 75. Вып. 6. С. 1183–1187.
11. Клочков В.П., Верховский Е.Б. Пороговая мощность накачки лазера при возбуждении некогерентной сверхфлуоресценции // Оптика и спектроскопия. 1994. Т. 77. Вып. 3. С. 394–397.
12. Клочков В.П., Верховский Е.Б. Влияние концентрации молекул на некогерентную сверхфлуоресценцию // Оптика и спектроскопия. 1996. Т. 81. Вып. 4. С. 613–615.
13. Шилов В.Б., Смирнова В.А., Корсакова Е.Г., Гудков Ю.П., Мальшева И.Н., Ермолаева Е.М. Нулевые колебания вакуума и светондуцированная люминесценция и поглощение в условиях интенсивных резонансных лазер-

- ных полей // Оптика и спектроскопия. 1996. Т. 81. Вып. 5. С. 767–773.
14. Клочков В.П., Верховский Е.Б. Коллективное испускание молекул родамина 6Ж в жидком растворе // Оптика и спектроскопия. 1998. Т. 85. Вып. 3. С. 427–433.
 15. Ермолаева Г.М., Грегг Е.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. Вып. 3. С. 393–397.
 16. Высотина Н.В., Грегг Е.Г., Ермолаева Г.М., Кузнецов В.В., Кулясов В.Н., Смирнов В.А., Шилов В.Б. Аномальное поглощение и люминесценция паров молекулярного йода при лазерном возбуждении // Оптика и спектроскопия. 1999. Т. 86. Вып. 4. С. 598–603.
 17. Клочков В.П., Верховский Е.Б. Коллективное испускание молекул красителей при высоких скоростях дефазировки // Оптика и спектроскопия. 2000. Т. 88. Вып. 5. С. 768–771.
 18. Ермолаева Г.М., Клочков В.П., Николаев Г.Е., Светличный В.А., Смирнов В.А., Шилов В.Б. Влияние коллективных взаимодействий в оптических ансамблях на пороговые характеристики генерации при оптической когерентной накачке // Оптика и спектроскопия. 2000. Т. 89. Вып. 1. С. 157–159.
 19. Клочков В.П., Верховский Е.Б. Спектр испускания высококонцентрированных растворов красителей при возбуждении лазерным излучением большой мощности // Оптика и спектроскопия. 2000. Т. 89. Вып. 1. С. 114–118.
 20. Milomi P.W., Bochove E.J., Cook R.J. Quantum theory of spontaneous emission and excitation near a phase – conjugating mirror // J. Opt. Soc. Amer. В 1989. V. 6. № 10. P. 1932–1941.
 21. Send-Tiong Ho, Kumar P., Shapiro J.H. Quantum theory of nondegenerate multiwave mixing. III. Application to single-beam squeezed-state generation // J. Opt. Soc. Amer. В. 1991. V. 8. № 1. P. 37–57.
 22. Аристов А.В., Козловский Д.А., Николаев А.Б. Особенности люминесценции растворов красителей в условиях интенсивного импульсного возбуждения // Оптика и спектроскопия. 1989. Т. 67. Вып. 2. С. 327–331.
 23. Аристов А.В., Козловский Д.А., Николаев А.Б. Особенности условий люминесцентных исследований при интенсивных импульсных накачках // Оптика и спектроскопия. 1990. Т. 68. Вып. 2. С. 335–338.
 24. Белоногов А.Ю., Старцев А.В., Стойлов Ю.Ю., Чо Сандзю. О флуоресценции красителей при сверхнасыщающих мощностях накачки // Квант. электрон. 1996. Т. 23. № 6. С. 571–573.
 25. Батище С.А., Ганжа В.А., Малевич Н.А., Мостовников В.Ф., Перлов Д.И., Шифрин В.П. Эффективность работы лазерных сред на основе красителей при накачке наносекундными импульсами излучения высокой мощности // Ж. прикл. спектроскопии. 1983. Т. 39. № 6. С. 934–938.
 26. Безродный В.И., Пржонская О.В., Тихонов Е.А., Шпак М.Т. Насыщаемое поглощение и тепловая фокусировка света в растворах красителей // Ж. эксперим. и теор. физ. 1981. Т. 80. Вып. 2. С. 512–523.
 27. Копылова Т.Н., Кузнецова Р.Т., Тельминов Е.Н., Дегтяренко К.М., Светличный В.А., Майер Г.В. Излучательные свойства органических молекул в мощных световых полях // Изв. вузов. Физ. 1997. № 4. С. 69–74.
 28. Копылова Т.Н., Кузнецова Р.Т., Светличный В.А., Тельминов Е.Н., Самсонова Л.Г. Флуоресцентные характеристики органических молекул при мощном импульсном лазерном возбуждении // Оптика и спектроскопия. 1998. Т. 85. Вып. 5. С. 778–782.
 29. Копылова Т.Н., Кузнецова Р.Т., Светличный В.А., Сергеев А.К., Тельминов Е.Н., Филинов Д.Н. Излучательные и фотохимические свойства органических соединений при мощном возбуждении ХеСl-лазером // Квант. электрон. 2000. Т. 30. № 6. С. 489–494.
 30. Кузнецова Р.Т., Светличный В.А., Копылова Т.Н., Тельминов Е.Н. Излучение органических красителей в условиях нелинейного поглощения при возбуждении ХеСl-лазером // Оптика и спектроскопия. 2000. Т. 89. Вып. 2. С. 261–268.
 31. Берик Е., Давыденко В. Влияние тепловых эффектов на динамическую стабильность длины волны генерации лазеров на красителях с эксимерной накачкой // Изв. АН Эстонии. Физ. Матем. 1990. Т. 39. № 1. С. 46–51.
 32. Меньшиков Л.И. Сверхизлучение и некоторые родственные явления // Успехи физ. наук. 1999. Т. 169. № 2. С. 113–154.

T.N. Kopylova, R.T. Kuznetsova, G.V. Mayer, V.A. Svetlichnyi, E.N. Telminov, D.N. Filinov. The photonics of complex molecules in the conditions of nonlinear absorption under high power laser excitation. I. The features of spontaneous and induced emission of molecules in high power light fields.

The features of emission of highly concentrated solutions of complex organic compounds (Rhodamine 6G, substituted paraterphenyl) under high power excitation of ХеСl laser ($W = 5 \cdot 10^{26}$ fot/cm² · с⁻¹) is studied.

Four types of emission were observed under conditions of our experiment. They are: fluorescence, generation, generation on the heat lens and so called «strip». Three of them are well-known but the nature of «strip» is unknown. We suggest that it is an amplified spontaneous emission but it may be group emission of an ensemble of excited molecules. The investigations to understand the nature of the «strip» emission are planned.