

НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ

УДК 535.345.6

В.А. Донченко, А.А. Землянов, Ал.А. Землянов, Т.Н. Копылова, А.П. Серых

УСИЛЕНИЕ ИЗЛУЧЕНИЯ ВКР В СИСТЕМЕ ПОЛИДИСПЕРСНЫХ КАПЕЛЬ С ЛАЗЕРНЫМ КРАСИТЕЛЕМ В УСЛОВИЯХ ВЫНУЖДЕННОЙ ФЛЮОРЕСЦЕНЦИИ КРАСИТЕЛЯ

Экспериментально получено усиление излучения вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) этанола в системе полидисперсных микрокапель этанольного раствора красителя родамина С при облучении капель лазерными импульсами с длиной волны излучения 0,532 мкм.

Микрокапля представляет собой сферический резонатор, спектр собственных мод которого определяется радиусом капли, длиной волны излучения, комплексным показателем преломления вещества капли [1]. Если при воздействии на каплю излучением накачки одна из длин волн возникающей вторичной эмиссии (например, излучения комбинационного рассеяния или флюоресценции молекул красителя, содержащегося в капле) совпадает с одной из собственных мод капли-резонатора, то возникающая при этом положительная обратная связь может привести к усилению излучения на этой длине волны и к проявлению таких нелинейных эффектов, как вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) или вынужденная флюоресценция красителя – lasing [2, 3]. Это условие названо в [2] условием «выходного резонанса». Физический механизм возникновения ВКР в сферической капле подробно описан (см., например, обзор [4]).

Если в прозрачную каплю ввести молекулы оптически активных красителей, то при облучении капли лазерными импульсами накачки последняя начинает активно флюоресцировать, а при достижении пороговых условий в капле-резонаторе может возникнуть генерация – lasing [3]. Поскольку спектр спонтанной флюоресценции красителя достаточно широк, то в его пределах помещается много различных резонансов из спектра собственных мод капли. Спектральная картина lasing капли с красителем представляет собой пиковую структуру, причем спектральное расположение пиков, расстояние между ними и число пиков в пределах спектра флюоресценции красителя определяются размерами капли, физико-химическими свойствами вещества капли и мощностью лазерной накачки, от которой зависит порядок возбужденных собственных мод резонатора.

В работах [5, 6] сообщается о наблюдении совместного проявления эффектов lasing и ВКР при облучении капли, содержащей этанольный раствор родамина 6Ж. Обнаруженное в [5, 6] усиление излучения ВКР этанола в капле с красителем происходит, когда одна из линий комбинационного рассеяния этанола находится в пределах спектра флюоресценции красителя и для нее выполняются условия «выходного резонанса». Выполнение этих условий достигалось подбором длины волны излучения лазерной накачки. При этом усиление ВКР в капле сопровождалось частичным подавлением спектральных пиков lasing [6].

В настоящей статье приведены результаты наших экспериментов по наблюдению ВКР этанола в системе флюоресцирующих микрокапель со случайным набором размеров, при этом выполнение условия «выходного резонанса» для ВКР реализовалось также случайным образом.

Известно, что одну из интенсивных полос спектра комбинационного рассеяния валентных СН-колебаний молекул этанола при возбуждении излучением с длиной волны $\lambda = 0,532$ мкм можно видеть в окрестности длины волны $\lambda_k \approx 0,631$ мкм (две другие полосы комбинационного рассеяния лежат в окрестностях длин волн 0,628 и 0,632 мкм) [7]. Поэтому для наблюдения совместного действия ВКР этанола на длине волны 0,631 мкм и lasing красителя в капельной среде мы использовали распыленный раствор красителя родамина С, спектр флюоресценции которого при возбуждении лазерным излучением с длиной волны $\lambda = 0,532$ мкм лежит в пределах от 0,570 до 0,650 мкм с максимумом при $\lambda = 0,595$ мкм.

В эксперименте использовался лазер на гранате с неодимом, работающий в режиме модуляции добротности, с активным элементом длиной 100 мм и диаметром 5 мм. Лазерные импульсы длительностью 10 нс (по полувысоте) после удвоения частоты фокусировались в облако полидисперсного аэрозоля из капель этанольного раствора родамина С, получаемое с помощью аэрозольного генератора «Аэрозоль У-1». Радиусы капель в аэрозольном облаке распределены в пределах от 1 до 35 мкм с максимумом около 5 мкм. Плотность мощности сфокусированного лазерного излучения достигала 800 МВт/см². Энергия импульсов измерялась на ИМО-2Н, длительность импульсов – с помощью ФЭК-19КМ и осциллографа С7-19. В качестве фильтра для подавления упругого рассеяния от капель использовался монохроматор со спектральной шириной аппаратной функции 10 Å и набор оптических фильтров. Степень подавления упругого рассеяния (на длине волны 0,630 мкм) была не менее 10⁻⁷. Спектральная картина излучения капель снималась с помощью того же монохроматора с шагом 10 Å. Регистрация сигналов осуществлялась ФЭУ-79 с индивидуально подобранным делителем напряжения для улучшения временного разрешения до 6 нс.

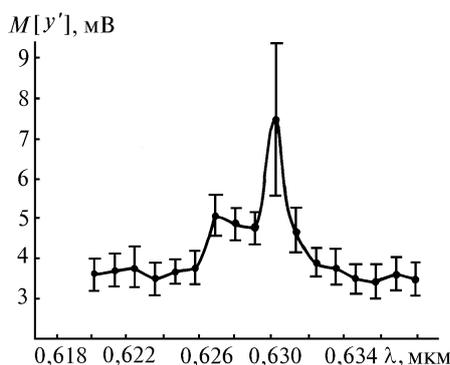


Рис. 1. Спектральное распределение среднего значения амплитуды y' сигналов излучения от капель этанола

При облучении облака полидисперсных капель чистого этанола лазерными импульсами с плотностью мощности 600–800 МВт/см² визуально наблюдалось (через оптические фильтры) красное свечение от капель. На рис. 1 приведено спектральное распределение средних значений амплитуд сигналов излучения капель чистого этанола. Каждая точка кривой представляет собой среднее по выборке $N=150$. Видно, что при длине волны $\lambda_k \approx 0,631$ мкм на некотором фоне наблюдается различимый максимум, причем дисперсия амплитуды сигналов на этой длине волны выше, чем на всем рассматриваемом спектральном диапазоне. Этот факт можно объяснить следующим образом. При попадании в лазерный пучок капель с размерами, соответствующими условию «выходного резонанса», в каплях возникает вынужденное комбинационное рассеяние, сигнал которого превосходит фоновую засветку. Увеличение дисперсии амплитуды сигналов на длине волны комбинационного рассеяния этанола отражает случайный характер появления капель с размерами, удовлетворяющими резонансным условиям.

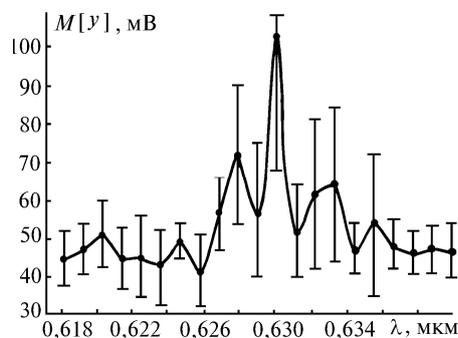


Рис. 2. Спектральное распределение среднего значения амплитуды y сигналов флюоресценции от капель с родамином С

На рис. 2 показан фрагмент спектральной характеристики флюоресценции системы полидисперсных капель этанольного раствора родамина С с концентрацией красителя $2 \cdot 10^{-4}$ г/мл. Каждая точка кривой на рис. 2 представляет среднее по выборке объема $N = 150$. Флюоресценция возбуждалась лазерными импульсами с плотностью мощности $P = 800$ МВт/см².

Из анализа работ [2–6] можно сделать вывод, что lasing системы полидисперсных капель представляет собой сложную пиковую структуру, причем величина пиков, их спектральное расположение и расстояние между ними по спектру случайным образом меняются от импульса к импульсу лазерной накачки, так как случайным образом меняются число и размеры облучаемых в данный момент капель. В [8] мы показали, что в этом случае признаками проявления эффекта lasing могут служить такие статистические характеристики сигналов флюоресценции, как дисперсия и распределение величин регистрируемых сигналов.

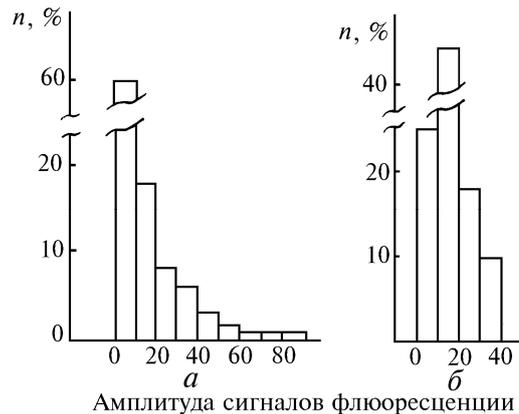


Рис. 3. Гистограммы сигналов флюоресценции ($\lambda = 0,631$ мкм) от капель этанола с родамином С при различной плотности мощности лазерной накачки P ($a - 800$ МВт/см², вынужденная флюоресценция; $b - 1,6$ МВт/см², спонтанная флюоресценция)

На рис. 3 приведены гистограммы величин сигналов флюоресценции, регистрируемых на длине волны $\lambda = 0,621$ мкм при различных плотностях мощности накачки P : $P = 800$ МВт/см² (рис. 3,а) и $P = 1,6$ МВт/см² (рис. 3,б). Как показано в [8], наличие «тяжелой» правой части в распределении на рис. 3,а говорит о существовании в капельной среде вынужденной флюоресценции. В таблице приведены значения дисперсии амплитуды сигналов флюоресценции и упругого рассеяния от капель этанола.

Согласно выводам, сделанным в [8], резкое увеличение дисперсии сигналов флюоресценции при высокой плотности мощности лазерной накачки также говорит о наличии эффекта lasing.

Вид излучения	Флюоресценция капель, $\lambda = 0,621$ мкм		Упругое рассеяние, $\lambda = 0,532$ мкм
Плотность мощности накачки, МВт/см ²	800	1,6	800
Дисперсия сигналов	1,68	0,12	0,09

Обратимся к рис. 2. На длине волны $\lambda_k \simeq 0,631$ мкм виден хорошо различимый максимум. Присутствие максимума на длине волны, соответствующей линии из спектра комбинационного рассеяния этанола, качественно согласуется с результатами работ [5, 6] по наблюдению совместного действия ВКР и lasing в одиночной капле с красителем. Для сравнения мы приводим на рис. 4 спектрограмму, полученную в [6].

При измерении сигналов излучения капель на длине волны, соответствующей линии комбинационного рассеяния этанола, в спектральный интервал, определяемый аппаратной функцией прибора, помимо пика усиленного излучения ВКР могут попасть спектральные пички или фрагменты пичков вынужденной флюоресценции от тех капель, размеры которых не удовлетворяют условию «выходного резонанса» для длины волны комбинационного рассеяния этанола. Другими словами, в каждом акте измерений регистрируется усиленный сигнал ВКР на фоне шума, который является суперпозицией от пичков и (или) фрагментов пичков вынуж-

денной флюоресценции тех капель, для которых не выполняются резонансные условия на длине волны комбинационного рассеяния. Подобный шум (по сути, сигналы lasing) будет регистрироваться в любой точке спектрального интервала, не связанной с длиной волны комбинационного рассеяния. Величина шума в каждой точке спектрального диапазона определяется спектральным поведением флюоресценции красителя.

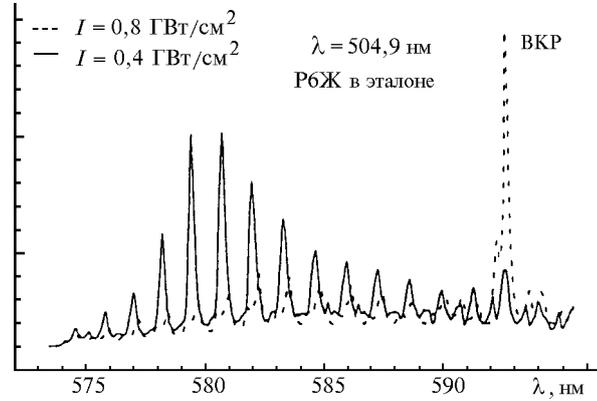


Рис. 4. Спектрограммы ВКР и lasing от одиночной капли этанола с родамином БЖ при различной плотности мощности накачки I [6]

Таким образом, наблюдаемый на длине волны λ в одном акте испытаний сигнал можно определить в виде

$$y(\lambda) = \psi(\lambda) [n^*(\lambda) + CK(\lambda - \lambda_k)], \quad (1)$$

где $\psi(\lambda)$ – функция, описывающая флюоресценцию красителя (в нашем случае $\psi(\lambda)$ нормирована на значение $\psi(\lambda_k)$, $\lambda_k = 0,631$ мкм); $n^*(\lambda)$ – эквивалентный шум, создаваемый пиковыми сигналами, не связанными с длиной волны комбинационного рассеяния λ_k ; $K(\lambda - \lambda_k)$ – колоколообразный сигнал, заданный на интервале $(\lambda_k - \Delta, \lambda_k + \Delta)$ и принимающий максимальное значение в точке λ_k $K(0) = 1$; Δ – спектральный интервал, определяемый аппаратной функцией прибора; C – случайная амплитуда пика, заданного на интервале $(\lambda_k - \Delta, \lambda_k + \Delta)$.

Далее оценим среднее значение и дисперсию амплитуды C по результатам повторных независимых испытаний при различных значениях λ .

В рамках модели (1) математическое ожидание $M[y(\lambda)]$ величины $y(\lambda)$ равно

$$M[y(\lambda)] = \psi(\lambda) [M[n^*(\lambda)] + K(\lambda - \lambda_k) M[C]]. \quad (2)$$

В предположении независимости шума $n^*(\lambda)$ и случайной амплитуды C дисперсия для $y(\lambda)$ запишется в виде

$$D[y(\lambda)] = \psi^2(\lambda) [D[n^*(\lambda)] + K^2(\lambda - \lambda_k) D[C]], \quad (3)$$

где $D[n^*(\lambda)]$ и $D[C]$ – дисперсия шума и амплитуды C соответственно.

Из выражений (2) и (3) нетрудно записать интересующие нас моменты $M[C]$ и $D[C]$:

$$M[C] = [M[y(\lambda)]/\psi(\lambda) - M[n^*(\lambda)]]/K(\lambda - \lambda_k); \quad (4)$$

$$D[C] = [D[y(\lambda)]/\psi^2(\lambda) - D[n^*(\lambda)]]/K^2(\lambda - \lambda_k). \quad (5)$$

Итак, для вычисления $M[C]$ и $D[C]$ необходимо знать среднее значение и дисперсию наблюдаемого сигнала y и шума $n^*(\lambda)$, причем вне интервала $(\lambda_k - \Delta, \lambda_k + \Delta)$ эти моменты не определены.

При $\lambda = \lambda_k$, т.е. на длине волны комбинационного рассеяния, имеем

$$M[C] = M[y(\lambda_k)]/\psi(\lambda_k) - M[n^*(\lambda_k)]; \quad (6)$$

$$D[C] = D[y(\lambda_k)]/\psi^2(\lambda_k) - D[n^*(\lambda_k)]. \quad (7)$$

А если $\lambda_1 \notin (\lambda_k - \Delta, \lambda_k + \Delta)$, то из (2) – (3) следует (здесь $K(\lambda_1 - \lambda_k) = 0$):

$$M[y(\lambda_1)] = \psi(\lambda_1) M[n^*(\lambda_1)]; \quad (8)$$

$$D[y(\lambda_1)] = \psi^2(\lambda_1) D[n^*(\lambda_1)]. \quad (9)$$

Если шум $n^*(\lambda)$ стационарный в широком смысле, т.е. в нашем случае

$$M[n^*(\lambda_k)] = M[n^*(\lambda_1)]; \quad D[n^*(\lambda_k)] = D[n^*(\lambda_1)], \quad (10)$$

то выражения (6)–(7) можно записать в виде

$$M[C] = M[y(\lambda_k)]/\psi(\lambda_k) - M[y(\lambda_1)]/\psi(\lambda_1); \quad (11)$$

$$D[C] = D[y(\lambda_k)]/\psi^2(\lambda_k) - D[y(\lambda_1)]/\psi^2(\lambda_k). \quad (12)$$

Моменты для случайной величины C в последних выражениях представлены через моменты наблюдаемых сигналов на длинах волн λ_k и λ_1 и могут быть оценены стандартным образом.

Аналогичным образом можно оценить среднее значение и дисперсию для случая измерений сигналов ВКР от чистого спирта.

Определим усиление сигнала ВКР этанола в системе флюоресцирующих в режиме lasing капель на длине волны $\lambda_k \simeq 0,631$ мкм (здесь $\psi(\lambda_k) = 1$) как

$$G = M[C]/M[C'], \quad (13)$$

где $M[C']$ – математическое ожидание амплитуды сигналов комбинационного рассеяния от капель чистого спирта.

В нашем случае из рис. 1 и 2 получаем

$$G = 12,8 \pm 2,7.$$

Мы показали, что в системе полидисперсных микрокапель с красителем в результате взаимодействия возникающего в каплях излучения ВКР с флюоресцирующим в режиме lasing красителем возможно значительное (на порядок) усиление излучения ВКР.

Работа выполнена при финансовой поддержке Конкурсного центра МОПО фундаментального естествознания при Санкт-Петербургском университете (грант N 95-05. 5-32).

1. Пришивалко А. П. Оптические и тепловые поля внутри светорассеивающих частиц. Минск: Наука и техника, 1983. 190 с.
2. Snow J. B., Qian S.-X., Chang R. K. // Opt. News. 1986. V. 12. N 5. P. 5–7.
3. Pinnick R. G., Bismas A., Pendleton J., Armstrong R. Z. // Appl. Opt. 1992. V. 31. N 3. P. 987–996.
4. Гейнц Ю. Э., Землянов А. А., Чистякова Е. К. // Оптика атмосферы и океана. 1994. Т. 7. N 7. С. 914–928.
5. Kwok A. S., Chang R. C. // Opt. Lett. 1992. V. 17. N 18. P. 1263–1264.
6. Kwok A. S., Chang R. C. // Opt. Lett. 1993. V. 18. N 19. P. 1597–1599.
7. Шреттер Х., Клекнер Х. Сечение комбинационного рассеяния в газах и жидкостях // Спектроскопия комбинационного рассеяния света в газах и жидкостях / Под ред. А. Вебера: Пер. с англ. М.: Мир, 1982. С. 154–202.
8. Донченко В. А., Землянов А. А., Землянов Ал. А., Копылова Т. Н., Серых А. П. // Оптика атмосферы и океана. 1997. Т. 10. N 3. С. 294–300.

Институт оптики атмосферы СО РАН, Томск
Сибирский физико-технический институт, Томск

Поступила в редакцию
16 января 1997 г.

V. A. Donchenko, A. A. Zemlyanov, Al. A. Zemlyanov, T. N. Kopylova, A. P. Serykh. **Amplification of SRS Radiation in System of Polydispersed Drops with Laser Dye under Induced Fluorescence of the Dye.**

An amplification of ethanol SRS radiation in a system of polydispersed microdroplets of rhodamine C dye ethanol solution is obtained experimentally when exposing the droplets to laser pulses of 0,532 μm wavelength.