

На рис. 2 показана зависимость относительных значений постоянной составляющей излучения в нулевом максимуме от напряжения на преобразователе в режиме бегущей волны (сплошные кривые) и в режиме стоячей волны (штриховые кривые) для различных длин волн. Из рис. 2 видно, что для длины волны света с  $\lambda=1.06$  мкм требуются управляющие напряжения в 3 раза больше, чем на  $\lambda=0.63$  мкм. Это объясняется зависимостью от длины волны света, а также изменением коэффициента качества.

Из-за сильного затухания ультразвука стекла системы As—S—J—Sb целесообразно использовать на бегущей ультразвуковой волне при не очень высоких управляющих частотах. Равенство упругооптических коэффициентов  $|p_{11}|$  и  $|p_{12}|$  позволяет эффективно использовать эти стекла при работе с неполяризованным излучением. Особенно полезным этот материал может оказаться для смещения частоты излучения при использовании его в широком спектральном диапазоне длин волн.

#### Литература

- [1] J. T. Krause, C. R. Kurkjian, D. A. Pinnow, E. A. Sigety. Appl. Phys. Lett., 17, 367, 1970.
- [2] Д. В. Шелопут, В. Ф. Глушков, Т. А. Шелопут. Тр. конф. по автоматизации научн. исслед. на основе применения ЭЦВМ, Новосибирск, 1972.
- [3] Л. Г. Айо, В. Ф. Кокорина. Оптико-механич. промышл., № 4, 39, 1961.
- [4] В. В. Клузгин, С. В. Кулаков, Б. П. Разживин, Г. К. Ульянов. Оптико-механич. промышл., № 1, 3, 1972.

Поступило в Редакцию 28 мая 1973 г.

УДК 535.34

## СПЕКТРЫ ДВУХФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ МОЛЕКУЛ ОРГАНИЧЕСКИХ КРАСИТЕЛЕЙ

Е. Б. Асланиди и Е. А. Тихонов

Для понимания механизма многофотонных переходов существенную информацию представляет спектральная зависимость сечений многофотонного поглощения.

В настоящем сообщении приводятся результаты исследования спектров двухфотонного поглощения (ДФП) для двух красителей ксантенового и имидокарбоданинового рядов в спиртовых растворах [1]. Объектами исследования были родамин 6Ж и имидокарбоданин, обладающий центром инверсии (рис. 1, 2). Измерения абсолютных сечений ДФП на частоте неодимового лазера выполнены ранее в работе [2]. Использование флуоресцентной методики для изучения спектров ДФП выбранных красителей основано на независимости их квантового выхода от частоты возбуждения в стоксовой области частот от 20 000 до 35 000  $\text{см}^{-1}$ . Возбуждение проводилось лазером на растворах красителей, обеспечивающих частоты генерации в области 13 500—9200  $\text{см}^{-1}$  при полуширине линии генерации  $\sim 100$   $\text{см}^{-1}$  и постоянной интенсивности  $\sim 100$   $\text{квт}/\text{см}^2$  [3]. Лазер на растворах красителей накачивался строго продольно рубиновым лазером. Сигнал флуоресценции раствора исследуемого красителя регистрировался перпендикулярно лучу возбуждения фотоумножителем ФЭУ-18А через набор светофильтров. Излучение накачки ( $\lambda=6943$  Å) отрезалось светофильтром ФС-7.

На рис. 1, 2 представлены спектры однофотонного и двухфотонного поглощения исследованных соединений. Строго говоря, кривая 2 на обоих спектрах соответствует спектру двухфотонного возбуждения, однако не имеется каких-либо оснований против отождествления ее со спектром ДФП. Спектры ДФП в обоих случаях обладают двумя максимумами. Первый совпадает с развитым вибронным переходом (колебание 1400—1500  $\text{см}^{-1}$ ) коротковолнового крыла длинноволновой полосы однофотонного поглощения. Второй максимум спектра ДФП приходится на область однофотонного перехода в высшие синглетные состояния.

Полученная спектральная зависимость вероятности ДФП может быть качественно объяснена следующим образом. Сечение ДФП в общем случае описывается зависимостью [4]

$$\sigma(2\omega) = \frac{\pi\omega g(2\omega)}{48nc\epsilon_0\hbar^3} \sum_i \frac{|d_{2i}|^2 |d_{i1}|^2}{(\omega - \omega_{i1})^2} I^2(\omega), \quad (1)$$

где  $\omega$  — частота возбуждения,  $d_{ji}$  — матричные элементы перехода  $j \rightarrow i$ ,  $I(\omega)$  — интенсивность возбуждения,  $n$  — показатель преломления,  $\epsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость вакуума,  $g(2\omega)$  — форм-фактор полосы ДФП.

При изменении частоты возбуждения изменяется конечное состояние, которое соответствует энергии двух фотонов  $E_k = 2\hbar\omega$ . Как видно из рис. 1, 2, когда система

не обладает собственным состоянием, соответствующим данному  $E_k$ , поглощение существенно уменьшается. Первый максимум ДФП, как отмечалось выше, в качестве конечного состояния имеет развитый вибранный уровень первой полосы однофотонного поглощения. В качестве промежуточного могут выступать все реальные вибранные состояния молекулы, однако, вероятно, актуальным промежуточным состоянием может стать чисто-электронное состояние, уширенное низкочастотными фононами. Последнее связано с начальным состоянием электронным дипольным моментом и с конечным состоянием — колебательным дипольным моментом. О том, что соответствующее колебание является дипольно активным, свидетельствует наличие в инфракрасных спектрах порошков исследованных молекул пика на частоте  $\sim 1600 \text{ см}^{-1}$ . Актуальность двухфотонных переходов с участием колебательных состояний показана в работе [5].

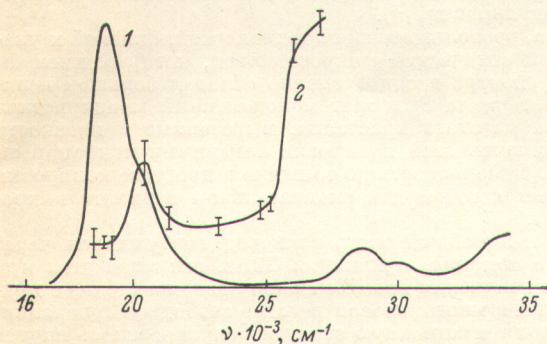


Рис. 1. Спектры поглощения раствора родамина 6Ж в этаноле.

1 — однофотонное поглощение, 2 — двухфотонное поглощение.

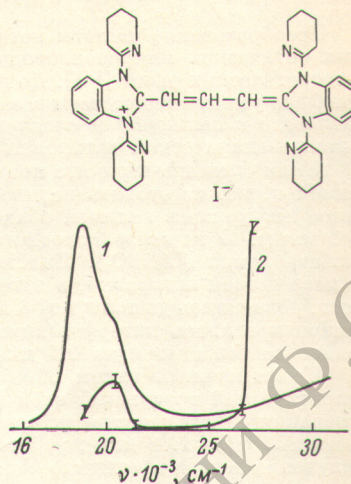


Рис. 2. Спектры поглощения раствора имидокарбодиамина в диэтиленгликоле и структурная формула молекулы этого красителя.

1 — однофотонное поглощение, 2 — двухфотонное поглощение.

Второй максимум ДФП для исследованных молекул характеризуется существенно большим поглощением, хотя однофотонное поглощение здесь заметно меньше. Возможная причина этого заключена в действии правил отбора по симметрии. Равновесную конфигурацию  $\pi$ -электронного облака родамина 6Ж можно отнести к группе  $C_{2v}$ , а имидокарбодиамина к группе  $D_{2h}$ . В этом случае длинноволновая полоса поглощения обеих молекул соответствует дипольно разрешенному однофотонному переходу, а коротковолновая — запрещенному. Для ДФП ситуация обратная. С другой стороны, увеличение вероятности может происходить за счет преимущественного вклада уже другого промежуточного состояния. Это состояние соответствует всей длинноволновой полосе поглощения. При переходах через указанное промежуточное состояние возрастают величины матричных элементов, описывающих вероятность ДФП и резонансный знаменатель в формуле (1) принимает меньшее значение. Поскольку результаты весьма сходны как для молекулы без центра инверсии, так и для centrosymmetricной, то можно утверждать, что последний механизм вносит наибольший вклад.

Дополнительным свидетельством актуальности промежуточного состояния, лежащего в энергетическом зазоре между начальным и конечным, являются следующие поляризационные измерения. Проводилось сравнение степени поляризации родамина 6Ж в этаноле ( $300^\circ \text{K}$ ) при двухфотонном возбуждении рубином и однофотонном — гармоникой рубина. В первом случае степень поляризации минус 4%, а во втором — минус 14%. Такой результат мог быть получен, если ориентации моментов перехода конечного и актуального промежуточного состояний взаимно перпендикулярны. Изучаемые молекулы обладают именно такими поляризационными спектрами.

#### Литература

- [1] Е. Б. Асланиди, Е. А. Тихонов, М. Т. Шпак. Тез. докл. на V Республиканском семинаре по квантовой электронике, 44. ИРЭ АН УССР, Харьков, 1973.
- [2] Е. Б. Асланиди, Е. А. Тихонов, М. Т. Шпак. УФЖ, 17, 1042, 1972.
- [3] Е. А. Тихонов, М. Т. Шпак. Сб. «Квантовая электроника», № 6, 48. Изд. «Наукова думка», Киев, 1972.
- [4] Р. Пантел, Г. Путхов. Основы квантовой электроники. Изд. «Мир», М., 1972.
- [5] А. И. Александров, В. И. Бредихин, В. Н. Генкин. ЖЭТФ, 60, 2001, 1971.

Поступило в Редакцию 6 июня 1973 г.