

Член-корреспондент АН СССР Н. А. БОРИСЕВИЧ, И. И. КАЛОША,
В. А. ТОЛКАЧЕВ

ОПТИЧЕСКИЙ КВАНТОВЫЙ ГЕНЕРАТОР НА ПАРАХ СЛОЖНЫХ ОРГАНИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЙ

В нашей работе ⁽¹⁾ впервые сообщалось о генерации сложных органических молекул в газовой фазе. Позднее такая генерация наблюдалась и другими авторами ⁽²⁾.

В настоящей работе изучено влияние постороннего газа на частоту и другие характеристики генерируемого излучения паров 1,4-ди[2(5-фенил-оксазол)]-бензола (ПОПОП).

Генерация паров ПОПОП исследована на установке, аналогичной описанной в ⁽¹⁾. Так как с ростом температуры паров возрастает вероят-

ность безызлучательных переходов ⁽³⁾, то желательно работать при возможно более низких температурах T , дающих достаточную для генерации упругость паров P . Продольный вариант накачки позволил нам получить генерацию при более низких упругостях паров ($T=220^\circ\text{C}$ ⁽¹⁾), чем поперечный ($T=400^\circ\text{C}$ ⁽²⁾). Накачка производилась второй гармоникой рубинового лазера мощностью около 1 Мвт. Для увеличения плотности возбуждающего излучения применялась телескопическая система, позволяющая доводить плотность излучения до 100 Мвт/см^2 . Входное зеркало пропускало 80% излучения накачки $\lambda=347\text{ нм}$ и отражало более 90% излучения в области $390-440\text{ нм}$. Кювета длиной 50 мм, позволяющая работать при высоких давлениях, имела кварцевые окна.

Разреженные пары ПОПОП при упругости $P\approx 0,1\text{ мм рт. ст.}$ ($T=270^\circ\text{C}$) генерируют полосу излучения, приведенную на рис. 1а. Длина волны максимума этой полосы $\lambda=383\text{ нм}$.

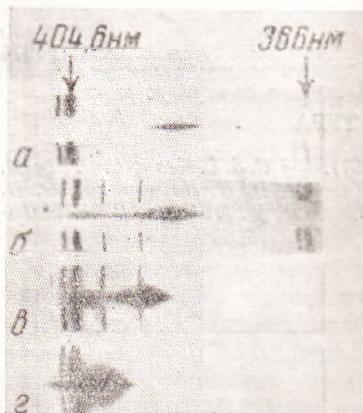


Рис. 1. Спектры излучения, генерируемого ОКГ на парах ПОПОП (упругость $P\approx 0,1\text{ мм рт. ст.}$). а — разреженные пары ($T=270^\circ\text{C}$); б — в — пары с пентаном ($T=240^\circ\text{C}$): б — $C_{\text{п}}=1,3\cdot 10^{20}\text{ см}^{-3}$; в — $C_{\text{п}}=6\cdot 10^{20}\text{ см}^{-3}$; г — $C_{\text{п}}=4\cdot 10^{21}\text{ см}^{-3}$

Так как длина волны возбуждающего излучения больше длины волны, соответствующей чисто электронному переходу ($\lambda=363\text{ нм}$), то в результате накачки молекулы паров ПОПОП приобретают избыток колебательной энергии относительно равновесного значения, равный примерно 1300 см^{-1} . Колебательная теплоемкость паров ПОПОП по данным работы ⁽⁵⁾ — $38\text{ см}^{-1}/\text{град}$. Эффективная температура возбужденных молекул становится выше опытной на 34° . В большинстве случаев вероятность безызлучательных переходов с увеличением энергии возбуждающего кванта, как и при повышении температуры, возрастает, а квантовый выход флуоресценции в результате этого падает. Влиять на вероятность безызлучательных переходов возбужденных молекул можно, добавляя к парам органических молекул химически неактивные посторонние газы. Если пары возбуждаются излучением, частоты которого больше частоты инвер-

сии, то при введении посторонних газов наблюдается усиление флуоресценции (стабилизация возбужденных молекул). Если частота возбуждающего излучения меньше частоты инверсии, то наблюдается ослабление флуоресценции (6, 7).

В случае больших плотностей возбуждающего и испускаемого излучений избыток колебательной энергии возбуждаемых молекул будет сильно возрастать за счет ступенчатых переходов. Для эффективного отвода избытка энергии у возбужденной молекулы время между столкновениями ее с молекулами постороннего газа $1/Z$ должно быть значительно меньше времени жизни τ_i в данном электронном состоянии, которое при плотностях излучения накачки u_n и генерации u_r будет задаваться выражением

$$\tau_i^{-1} = k_i + B_{r,i} u_r + B_{n,i} u_n, \quad (1)$$

где k_i — вероятность ухода молекулы из состояния i спонтанно, $B_{r,i} u_r$ и $B_{n,i} u_n$ — вероятности вынужденного излучением ухода молекул из этого состояния. При $k_i \gg B_{r,i} u_r + B_{n,i} u_n$ время жизни молекул не зависит от плотности излучения, при $k_i \ll B_{r,i} u_r + B_{n,i} u_n$ τ_i падает обратно пропорционально его плотности. Таким образом, при высоких интенсивностях излучения для эффективного отвода избытка колебательной энергии молекул давление постороннего газа необходимо увеличивать приблизительно пропорционально его интенсивности в среде. Поэтому в работе (1) для получения устойчивой генерации паров ПОПОП был использован стабилизирующий газ пентан.

На рис. 2 изображена зависимость частоты максимума полосы генерируемого излучения и максимума спектра флуоресценции паров ПОПОП от концентрации пентана. Температура паров равнялась 240°C . При возрастании концентрации пентана C_n от $1,4 \cdot 10^{19}$ до $4 \cdot 10^{21}$ см^{-3} длина волны максимума полосы генерации возрастает от 383 нм до 400 нм. Это связано с тем, что при повышении давления постороннего газа спектр флуоресценции паров, а следовательно, и спектр стимулированного испускания смещается в длинноволновую область. Колебательная структура спектров при этом размывается. Спектр флуоресценции паров ПОПОП имеет три электронно-колебательных полосы. Наиболее интенсивной является полоса 0—1 $\lambda = 379$ нм. Как видно из рис. 2, при больших давлениях пентана смещение длины волны максимума полосы генерируемого излучения следует за смещением максимума этой полосы в спектре флуоресценции. В разреженных парах длина волны максимума полосы генерации на 4 нм больше длины волны максимума 0—1 полосы, что связано с различием T .

Зависимостью положения полосы генерации от давления постороннего газа можно воспользоваться для плавной перестройки частоты генерируемого излучения. Газообразное состояние активной среды позволяет осуществлять прокачку ее с высокой скоростью.

При давлениях стабилизирующего газа порядка 1 атмосферы в основном изменяется форма спектра флуоресценции. Поэтому положение длины волны максимума полосы генерации паров ПОПОП, разреженных и стабилизированных малыми давлениями пентана, практически совпадают

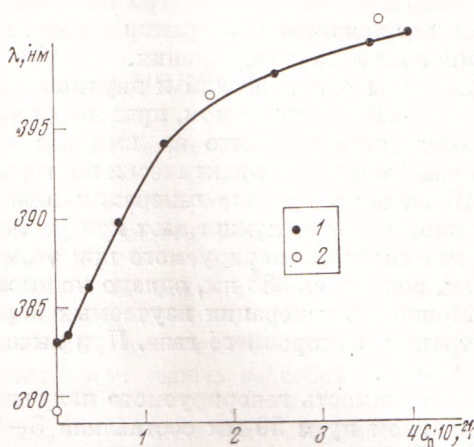


Рис. 2. Зависимость частоты максимума полосы генерации (1) и максимума полосы 0—1 спектра флуоресценции (2) паров ПОПОП от концентрации пентана ($T = 240^\circ\text{C}$), C_n в см^{-3}

($\lambda=383$ нм). В области давлений пентана 3—8 атм наблюдалась двухполосная генерация ($\lambda=383$ и 403 нм). Длинноволновая полоса генерации соответствует электронно-колебательной полосе 0—2 в спектре флуоресценции. Появление генерации на длине волны $\lambda=403$ нм можно объяснить возрастанием при этих давлениях пентана относительной интенсивности электронно-колебательной полосы 0—2 и уширением спектра поглощения. Последнее увеличивает потери на реабсорбцию в области полосы 0—1. Это облегчает появление генерации в полосе 0—2 и наблюдаются обе полосы за время импульса возбуждения.

Спектры однополосной и двухполосной генерации паров ПОПОП, стабилизированных пентаном, приведены на рис. 2б—г. Полуширина полос излучения, генерируемого за импульс возбуждения, составляет 2—4 нм. Импульс генерации практически повторяет импульс накачки.

Наблюдалась также генерация паров изучаемого вещества, когда посторонним газом служил азот при давлении до 10 атм. Длина волны максимума полосы генерируемого при этом излучения, как и в разреженных парах, равнялась 383 нм, однако мощность заметно возросла.

Мощность генерации изучаемых паров возрастает с увеличением концентрации постороннего газа. При высоких давлениях пентана она превышает 10 кв.

Расходимость генерируемого излучения при длине резонатора 180 мм и активном пути 50 мм составляла 3—4'. Генерируемое излучение паров ПОПОП поляризовано преимущественно в плоскости поляризации излучения накачки. При давлениях пентана 30—500 атм степень поляризации практически постоянна и равна примерно 50%.

Институт физики
Академии наук БССР
Минск

Поступило
12 VI 1974

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- ¹ Н. А. Борисевич, И. И. Калоша, В. А. Толкачев, Журн. прикл. спектроскоп., т. 19, 1109 (1973). ² B. Steyer, F. Schäfer, Optics Communications, v. 10, 249 (1974). ³ Н. А. Борисевич, Возбужденные состояния сложных молекул в газовой фазе, Минск, 1967. ⁴ Н. А. Борисевич, В. А. Толкачев, В сб.: Квантовая электроника и лазерная спектроскопия, Минск, 1971, стр. 147. ⁵ В. В. Грузинский, Л. А. Баркова, Журн. прикл. спектроскоп., т. 13, 254 (1973). ⁶ В. С. Непорент, ЖФХ, т. 13, 983 (1939); ЖФХ, т. 24, 1219 (1950). ⁷ Н. А. Борисевич, ДАН, т. 93, 695 (1954); Н. А. Борисевич, В. С. Непорент, Оптика и спектроскоп., т. 1, 536 (1956).