

IMPULZUSÜZEMŰ FESTÉK-LÉZER SUGÁRZÁS POLARIZÁCIÓS TULAJDONSÁGAINAK ELMÉLETI ÉS KÍSÉRLETI VIZSGÁLATA

PINTÉR FERENC—VIZE LÁSZLÓ—GÁTI LÁSZLÓ—KLEBNICZKI JÓZSEF

A jelen dolgozatban a lineárisan poláros lézertérrel gerjesztett rodamin 6G aktív közegű festék-lézer sugárzás polarizációs tulajdonságainak elméleti és kísérleti vizsgálatairól számolunk be, különös tekintettel a rotációs depolarizáció hatására az oldat viszkozitásának függvényében.

Áttekintettük a kérdéskörre vonatkozó irodalmat [1—11] és azt találtuk, hogy az elméleti polarizációfokot megadó összefüggés hibás. A kísérleti és a javított elméleti adatokat összehasonlítva az adódott, hogy $1 \cdot 10^{-4}$ mol/l koncentrációjú oldatra az egyezés jó, az $1 \cdot 10^{-3}$ mol/l koncentrációjú oldatra eltérés tapasztalható. Valószínűnek tartjuk, hogy az eltérés a koncentrációs depolarizáció hatásának tulajdonítható, amelyet az elmélet nem tartalmaz.

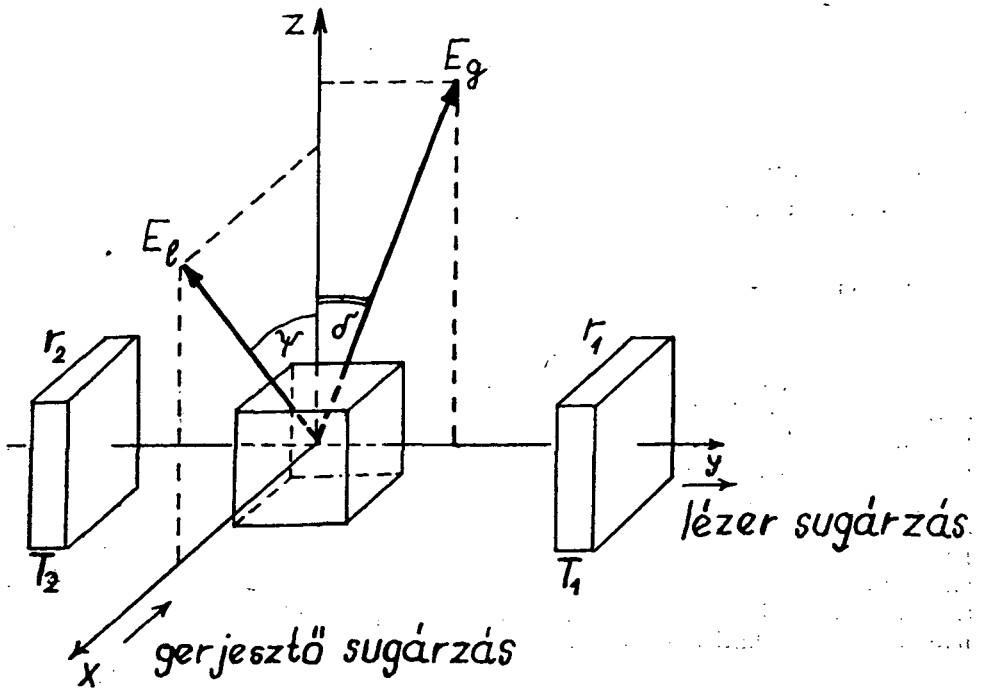
Elméleti áttekintés

A kényszerített sugárzás anizotrópiáját jellemző polarizációfok definíciója a spontán sugárzás vizsgálatánál bevezetett polarizációfok fogalmával azonos [12], ha cirkulációs polarizáció nem lép fel [24]. Meghatározásához tekintsük az 1. ábrát, ahol az $x-y$ sík a gerjesztő fény és a keletkező lézertér terjedési iránya által meghatározott sík, a z tengelyt pedig az erre a síkra merőleges egyenes adja. A gerjesztés lineárisan poláros fényel történik az x irányában. Az ábrán a gerjesztő fény elektromos vektorának az irányát \vec{E}_y egységvektorral, a folyadéklézer-sugárzás elektromos vektorának az irányát \vec{E}_z egységvektorral jelöljük, amelyek δ , ill. Ψ szöveget zárnak be a z tengellyel. A megfigyelés során a kisugárzott fényt felbontjuk az $x-y$ síkra merőleges és azzal párhuzamos irányú lineárisan poláros komponensekre, majd megmérjük ezek I_z és I_x intenzitását. A polarizációfokot a következőképpen számítjuk ki:

$$P = \frac{I_z - I_x}{I_z + I_x} \quad (1)$$

Folyadéklézerek vizsgálata esetén az aktív közeget rövid idejű fényimpulzussal világítjuk meg. Tehát mind a gerjesztő fény intenzitása, mind a keletkező lézertér intenzitása időfüggő. A detektor az $E = \int I(t) dt$ mennyiséget méri, és a keletkező lézertér anizotrópiáját ennek megfelelően a következőképpen jellemezzük:

$$P = \frac{E_z - E_x}{E_z + E_x} \quad (2)$$



1. ábra

A polarizációs sajátosságok részletezése előtt foglalkozunk a folyadéklézerek azon tulajdonságaival, amelyekre később hivatkozni fogunk.

A folyadéklézerek aktív közegeként használt szerves festékek egyik fontos tulajdonsága, hogy molekuláinak elektron-szintjei erősen kiszélesedtek és rajtuk nagyszámú vibrációs nívó helyezkedik el. Vizsgáljuk meg a fényerősítés feltételét a legegyszerűbb, a két kiszélesedett energiaszintből álló rendszerre (ld. 2. ábra).

Haladjon át az ilyen tulajdonságú közegen $I(\nu)$ intenzitású, ν frekvenciájú fényhullám. Ha az energiasűrűség $u(\nu)$, akkor az intenzitás megváltozása dx út befutása után [13]:

$$dI(\nu) = h\nu[B_{21}(\nu)n_2 - B_{12}(\nu)n_1]u(\nu)dx, \quad (3)$$

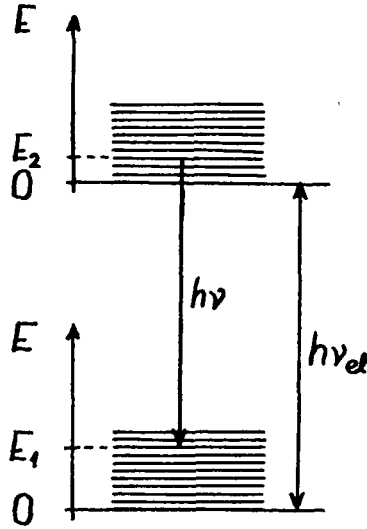
ahol h a Planck-állandó,

$B_{12}(\nu)$, ill. $B_{21}(\nu)$ — az Einstein-féle együtthatók az $1 \rightarrow 2$, ill. $2 \rightarrow 1$ indukált átmenetre,

n_1 ill. n_2 az alap, ill. a gerjesztett állapotban a térfogategységben levő molekulák száma.

Felhasználva az energiasűrűség és az intenzitás közötti

$$I(\nu) = \nu u(\nu) = \frac{c}{n_T} u(\nu) \quad (4)$$



2. ábra

kapcsolatot, (ahol v a közegbeli, c a vákuumbeli fénysebesség, n_T a közeg törésmutatója), a fenomenologikus abszorpciós törvényt kapjuk:

$$dI(v) = \frac{h\nu n_T}{c} [B_{21}(v)n_2 - B_{12}(v)n_1] I(v) dx. \quad (5)$$

Bevezetve a terület dimenziójú

$$\sigma_{21}(v) = \frac{h\nu n_T}{c} B_{21}(v) \quad \text{és} \quad \sigma_{12}(v) = \frac{h\nu n_T}{c} B_{12}(v) \quad (6)$$

hatáskeresztmetszeteket:

$$\alpha(v) \equiv \frac{1}{I(v)} \frac{dI(v)}{dx} = \sigma_{21}(v)n_2 - \sigma_{12}(v)n_1 = \sigma_{21}(v)n_2 \left(1 - \frac{\sigma_{12}(v)n_1}{\sigma_{21}(v)n_2} \right). \quad (7)$$

Abban az esetben, amikor

$$\frac{n_2}{n_1} < \frac{\sigma_{12}(v)}{\sigma_{21}(v)}, \quad (8)$$

$\alpha(v) < 0$, és a $-\alpha(v)$ -t abszorpciós együtthatónak, ha pedig

$$\frac{n_2}{n_1} > \frac{\sigma_{12}(v)}{\sigma_{21}(v)}, \quad (9)$$

akkor $\alpha(v)$ -t erősítési együtthatónak nevezzük, mivel a közegen áthaladó fény erősödik. Tegyük fel, hogy az alap és a gerjesztett állapotban levő molekulák külön-külön termikus egyensúlyban vannak, ugyanis a gerjesztés után a gerjesztett állapot élettár-

tamához (ns nagyságrendű) viszonyítva rövid idő alatt (ps nagyságrendű) beáll a termikus egyensúly. Az alap és a gerjesztett állapotban levő molekulák energiaszerinti eloszlását az $\eta_1(\varepsilon_1)$, ill. az $\eta_2(\varepsilon_2)$ Boltzmann-féle eloszlási függvényekkel adhatjuk meg melyekre fennáll, hogy:

$$n_i = \int_0^{\infty} \eta_i(\varepsilon_i) d\varepsilon_i. \quad (i = 1, 2) \quad (10)$$

Legyen $B_{21}(v, \varepsilon_2)$ az indukált átmeneti valószínűség a gerjesztett állapot valamely ε_2 energiájú szintjéről az alap állapot valamely szintjére. Ez az átmeneti valószínűség $B_{21}(v)$ -vel a következő kapcsolatban van:

$$B_{21}(v) = \int_0^{\infty} B_{21}(v, \varepsilon_2) \eta_2(\varepsilon_2) d\varepsilon_2, \quad (11)$$

és ugyanígy

$$B_{12}(v) = \int_0^{\infty} B_{12}(v, \varepsilon_1) \eta_1(\varepsilon_1) d\varepsilon_1. \quad (12)$$

A hatáskeresztmetszetek aránya:

$$\frac{\sigma_{12}(v)}{\sigma_{21}(v)} = \frac{c_1 \int_0^{\infty} B_{12}(v, \varepsilon_1) g_1(\varepsilon_1) \exp\left(-\frac{\varepsilon_1}{kT}\right) d\varepsilon_1}{c_2 \int_0^{\infty} B_{21}(v, \varepsilon_2) g_2(\varepsilon_2) \exp\left(-\frac{\varepsilon_2}{kT}\right) d\varepsilon_2} \quad (13)$$

A 2. ábra alapján:

$$h\nu_{e1} = \varepsilon_1 + h\nu - \varepsilon_2. \quad (14)$$

Elvégezve az

$$\varepsilon_2 = \varepsilon_1 + h(\nu - \nu_{e1}) \quad (15)$$

helyettesítést a nevezőben levő integrálban, és figyelembe véve a

$$B_{21}(v, \varepsilon_2) g_2(\varepsilon_2) = B_{12}(v, \varepsilon_1) g_1(\varepsilon_1) \quad (16)$$

Einstein-féle összefüggést kapjuk, hogy

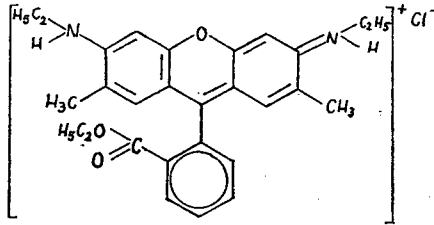
$$\frac{\sigma_{12}(v)}{\sigma_{21}(v)} = \frac{c_1}{c_2} \exp\left(\frac{h(\nu - \nu_{e1})}{kT}\right). \quad (17)$$

Az erősítés feltétele tehát (9) alapján a következő:

$$\frac{n_2}{n_1} > \frac{c_1}{c_2} \exp\left(\frac{h(\nu - \nu_{e1})}{kT}\right). \quad (18)$$

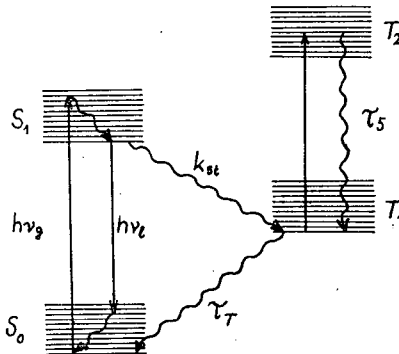
Az erősítési feltétel teljesüléséhez nem szükséges, hogy invertált állapotban legyen a rendszer, azaz n_2 nagyobb legyen n_1 -nél. Ahhoz, hogy nagy erősítést lehessen elérni, olyan molekulák szükségesek, amelyekre $\sigma_{21}(v)$ és $\nu_{e1} - \nu$ nagy, azaz olyanok, amelyeknek széles a fluoreszcencia-sávjuk. Ezeket a feltételeket jól kielégítik a szerves festék-molekulák.

Szerves festékeknek olyan szerves vegyületeket nevezünk [14], amelyeknek erős abszorpciós sávja van az ultravioleta és a közeli infravörös spektrumtartomány között. Ezek nagyszámú atomot tartalmazó bonyolult molekulák, melyek egyszerű- és kettőskötések rendszerét tartalmazzák. (A 3. ábra a rodamin 6G szerkezeti képletét mutatja.)



3. ábra

Egy tipikus szerves festékmolekula energiaszintjei a 4. ábrán láthatók. Minden elektronszint a vibrációs szintek kvázifolytonos sávjából áll. (Az ábrán a folytonos nyilak az optikai, a hullámosak a sugárzás nélküli átmeneteket jelölik.)



4. ábra

Az alábbiakban röviden ismertetjük azokat a mérlegegyenleteket, amelyek segítségével leírhatók az energiaszintek populációinak időbeli változásai [15].

Először számítsuk ki, hogy a $(\lambda, \lambda + \Delta\lambda)$ hullámhosszintervallumban az m -edik módusban a fotonok teljes N_m száma hogyan változik. Minden módusban a spontán emisszóban részt vevő fotonok számának növekedési sebessége $N_2 E(\lambda) d\lambda / \tau$, ahol N_2 az S_1 első szingulett gerjesztett állapotban levő molekulák teljes száma, τ ennek az állapotnak az átlagos élettartama, $E(\lambda)$ az ún. vonalakfüggvény, melyre $\int E(\lambda) d\lambda = \phi$, ahol ϕ a kvantumhatásfok. Ha V a rezonátor teljes módustérfogata, akkor a $(\lambda, \lambda + \Delta\lambda)$ hullámhosszintervallumba eső módusok száma:

$$\frac{8\pi n^3 V d\lambda}{\lambda^4}$$

(ahol n_T a közeg törésmutatója). Így a fotonszám növekedése a spontán emisszió következtében az m -edik módusban:

$$\frac{dN_m}{dt} = \frac{N_2 \lambda^4 E(\lambda)}{8\pi n_T^3 \tau V}. \quad (19)$$

Mivel az indukált és a spontán átmenet átmeneti valószínűségének az aránya a térfogategységben levő fotonszámmal egyezik meg, a spontán és az indukált emisszió során kibocsátott fotonszám teljes megváltozása az m -edik módusban:

$$\frac{dN_m}{dt} = \frac{N_2 \lambda^4 E(\lambda) (N_m + 1)}{8\pi n_T^3 \tau V}. \quad (20)$$

Ha F -fel jelöljük az aktív közeg által elfoglalt módustérfogatnak és a rezonátor teljes módustérfogatának az arányát, akkor $N_2 = FVn_2$, ahol n_2 a térfogategységben levő molekulaszámot jelenti. Bevezetve a

$$\sigma(\lambda) = \frac{\lambda^4 E(\lambda)}{8\pi n_T^2 c \tau} \quad (21)$$

erősítési hatáskeresztmetszetet, a (20) alatti egyenlet a következő alakú lesz:

$$\frac{dN_m}{dt} = \frac{Fn_2 \sigma(\lambda) c (N_m + 1)}{n_T}. \quad (22)$$

Hasonlóan írhatjuk fel az m -edik módusban levő fotonszám megváltozását a szingulett-szingulett és a tripllett-tripllett abszorpció miatt:

$$\frac{dN_m}{dt} = -[n_{TR} \sigma_{TT}(\lambda) + n_1 \sigma_{SS}(\lambda)] \frac{cFN_m}{n_T}, \quad (23)$$

ahol n_{TR} és n_1 — a tripllett és a szingulett alapállapot molekulásűrűsége,
 σ_{TT} és σ_{SS} — a tripllett-tripllett és a szingulett-szingulett abszorpció hatáske-
 resztmetszete.

Bevezethető egy τ_m átlagos élettartam, mely azt jellemzi, hogy az m -edik módusban levő fotonok száma az optikai elemeken történő diffrakció és transzmisszió következtében csökken:

$$\frac{dN_m}{dt} = -\frac{N_m}{\tau_m}. \quad (24)$$

Az m -edik módusban levő fotonok számának megváltozása tehát:

$$\frac{dN_m}{dt} = N_m \left[(n_2 \sigma(\lambda) - n_{TR} \sigma_{TT}(\lambda) - n_1 \sigma_{SS}(\lambda)) \frac{cF}{n_T} - \frac{1}{\tau_m} \right] + \frac{cFn_2 \sigma(\lambda)}{n_T}. \quad (25)$$

A gerjesztett szingulett, továbbá a tripllett alap- és a tripllett gerjesztett állapotban levő molekulák számát leíró egyenletek:

$$\frac{dN_2}{dt} = W_2 N_1 - \frac{N_2}{\tau} - \sum_m \frac{N_2 N_m \sigma(\lambda) c}{V n_T} + \sum_m \frac{N_1 N_m \sigma_{SS}(\lambda) c}{V n_T}, \quad (26)$$

$$\frac{dN_{TR}}{dt} = k_{S_1}N_2 - \frac{N_{TR}}{\tau_T} - \sum_m \frac{N_{TR}N_m\sigma_{TT}(\lambda)c}{Vn_T} + \frac{N_5}{\tau_5}, \quad (27)$$

$$\frac{dN_5}{dt} = \sum_m \frac{N_{TR}N_m\sigma_{TT}(\lambda)c}{Vn_T} - \frac{N_5}{\tau_5}, \quad (28)$$

$$N = N_1 + N_2 + N_{TR} + N_5, \quad (29)$$

ahol W_2 az N_g gerjesztő foton számmal a gerjesztés frekvenciáján és az $S_0 \rightarrow S_1$ átmenet hatáskeresztmetszetével a következő kapcsolatban van:

$$W_2 = \frac{N_g\sigma_{SS}(\lambda_g)c}{Vn_T}, \quad (30)$$

továbbá $1/k_{S_1}$ az $S_1 \rightarrow T_1$ átmenet átlagos élettartama, τ_T ill. τ_5 a triplétt alapállapot és a triplétt gerjesztett állapot átlagos élettartama.

A (26) egyenletnek az első tagja az optikai gerjesztést, a második a sugárzásos spontán átmenetet, ill. a triplétt állapotok felé történő sugárzás nélküli átmenetet, a harmadik az indukált átmenetet, a negyedik az abszorpciót írja le.

Áttérve a részecskekonzentrációra, a következő egyenletrendszert kapjuk:

$$\frac{dn_m}{dt} = n_m \left[(n_2\sigma(\lambda) - n_{TR}\sigma_{TT}(\lambda) - n_1\sigma_{SS}(\lambda)) \frac{Fc}{n_T} - \frac{1}{\tau_m} \right] + \frac{Fc n_2 \sigma(\lambda)}{n_T V} \quad (31)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = w_2 n_1 - \frac{n_2}{\tau} - \sum_m \frac{n_2 n_m \sigma(\lambda) c}{n_T} + \sum_m \frac{n_1 n_m \sigma_{SS}(\lambda) c}{n_T}, \quad (32)$$

$$\frac{dn_{TR}}{dt} = k_{S_1} n_2 - \frac{n_{TR}}{\tau_T} - \sum_m \frac{n_{TR} n_m \sigma_{TT}(\lambda) c}{n_T} + \frac{n_5}{\tau_5}, \quad (33)$$

$$\frac{dn_5}{dt} = \sum_m \frac{n_{TR} n_m \sigma_{TT}(\lambda) c}{n_T} - \frac{n_5}{\tau_5}, \quad (34)$$

$$n = n_1 + n_2 + n_{TR} + n_5, \quad (35)$$

ahol

$$w_2 = \frac{W_2}{V}. \quad (36)$$

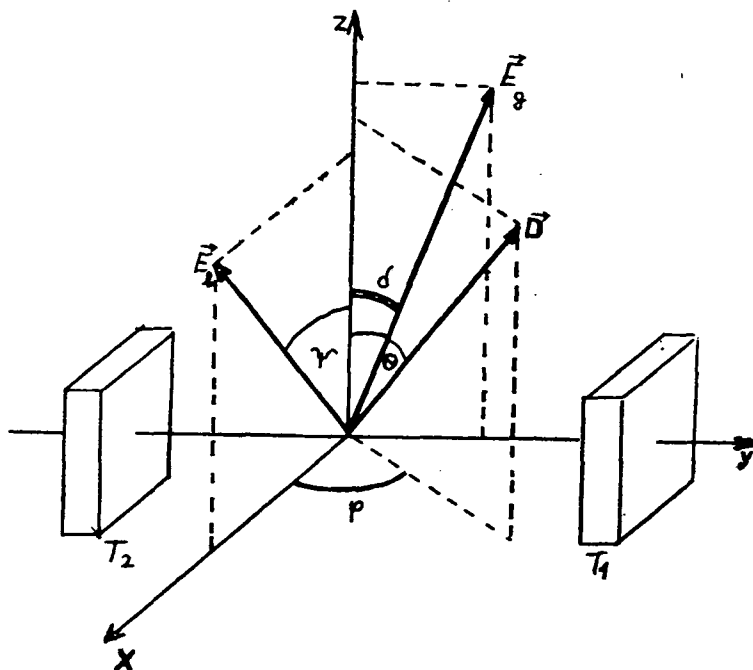
Az egyenletrendszer láthatóan igen bonyolult (nem lineáris) és a módusok száma igen nagy lehet. A számítógépes megoldásoknál is bizonyos közelítéseket használunk (pl. a triplétt állapot hatását egy veszteségi együtthatóval írjuk le, csak kétszintes rendszerre számolunk ld. pl. [16]). Ezen számítások eredményeire a megfelelő helyen később visszatérünk.

Az erősítési együttható dikroizmusa stacionárius esetben

A lumineszcencia kutatásából ismert, hogy ha egy közeget — amelynek sugárzó centrumait lineáris oszcillátoroknak tekintjük — lineárisan poláros fényvel besugárzunk, akkor polarizációs jelenségeket figyelhetünk meg. Ennek az az oka, hogy azok

az oszcillátorok, amelyeknek a tengelye kisebb szöget zár be a beeső fény elektromos vektorának az irányával, nagyobb valószínűséggel gerjesztődnek, mint a többiek. A gerjesztett részecskék irányeloszlásában anizotrópia lép fel, amely egy bizonyos idő elteltével a molekulák egymás közötti kölcsönhatása és a Brown-mozgás következtében megszűnik. Feltételezhető, hogy ehhez hasonló jelenség történik, amikor a festszéklézert lineárisan poláros lézerténnel gerjesztjük. A gerjesztett molekulák irány szerinti eloszlásának anizotrópiájából várható, hogy az erősítési együttható értéke függ mind a gerjesztő fény, mind a folyadéklézer által kibocsátott fény elektromos vektorának az irányától, ez utóbbi jelenséget dikroizmusnak nevezzük.

A továbbiakban meghatározzuk az erősítési együttható értékét a különböző irányokban. A molekulákat lineáris oszcillátoroknak tekintjük, amelyek iránya rögzített. Feltételezzük, hogy a molekula termrendszerre mindössze két kiszélesedett sávból áll. A gerjesztést u_g [16—17] energiasűrűségű, lineárisan poláros lézerténnel végezzük a folyadéklézer optikai tengelyére merőleges irányban, amelynek az \vec{E}_g irányú elektromos vektora a z tengellyel δ szöget zár be (5. ábra). Az ábrán a \vec{D} egységvektor a molekula dipólusmomentumának az irányát jelöli, melyet térbeli polárkoordináta-rendszerben a Θ és a φ szög határoz meg. \vec{E}_l a folyadéklézer-sugárzás elektromos vektorának az irányát megadó egységvektor, mely a z tengellyel Ψ szöget zár be.



5. ábra

A k erősítési együttható egy tetszőleges Ψ irányban valamely frekvencián (5)-nek megfelelően a következő lesz:

$$k(\Psi) = \frac{h\nu}{v} \int_{\Omega} b_{21}(\vec{E}_1, \vec{D}) n_2(\Theta, \varphi) d\Omega, \quad (37)$$

ahol $b_{21}(\vec{E}_1, \vec{D})$ — a differenciális Einstein-féle átmeneti valószínűség, mely megadja annak a valószínűségét, hogy időegység alatt egységnyi térerősség esetén a \vec{D} irányba mutató dipólusmomentumú molekula az \vec{E}_1 irányban polarizált fotont sugároz ki indukált átmenet révén,

$n_2(\Theta, \varphi) d\Omega$ — jelenti a térfogategységben levő azon gerjesztett molekulák számát, amelyek dipólusmomentuma a (Θ, φ) irányú $d\Omega$ nagyságú térszögbe esik. A gerjesztett állapotban levő molekulák szögeloszlásának a meghatározásához a (25—29) típusú differenciálegyenletrendszert kell megoldani.

Stacionárius esetben az erősítési együtthatóra a következő kifejezés adódik:

$$k(\Psi) = \kappa_{21}(\nu_l) [\beta \sin^2 \Psi + (\beta \sin^2 \delta + \gamma \cos^2 \delta) \cos^2 \Psi], \quad (38)$$

ahol $\kappa_{21}(\nu_l)$ — az ún. határerősítési együttható.

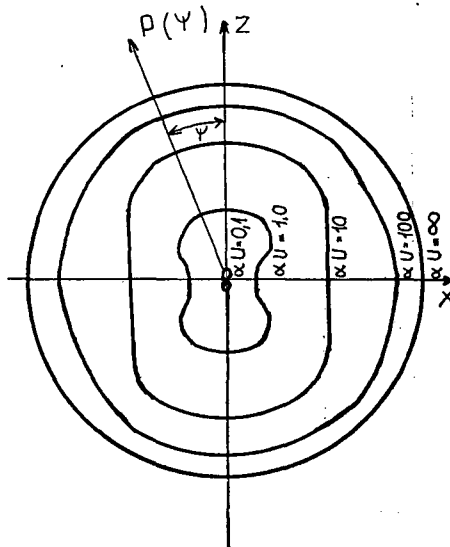
A bevezetett β és γ együtthatók a gerjesztő fény energiasűrűségétől függenek:

$$\beta = 1 + \frac{3}{2\alpha u_g} - \frac{3}{2} \left[\frac{1}{(\alpha u_g)^{3/2}} + \frac{1}{(\alpha u_g)^{1/2}} \right] \text{arc tg } (\alpha u_g)^{1/2}, \quad (39)$$

$$\gamma = 1 - \frac{1}{\alpha u_g} + \frac{1}{(\alpha u_g)^{3/2}} \text{arc tg } (\alpha u_g)^{1/2}. \quad (40)$$

Merőleges gerjesztés esetén ($\delta=0^\circ$):

$$k(\Psi) = \kappa_{21}(\nu_l) (\beta \sin^2 \Psi + \gamma \cos^2 \Psi). \quad (41)$$



6. ábra

Az erősítési együttható értékét erre az esetre vonatkozóan a 6. ábra mutatja különböző gerjesztő energiasűrűségeknél.

A dikroizmus mértékét a következő mennyiséggel jellemezzük:

$$D_k = \frac{k^{\max} - k^{\min}}{k^{\max} + k^{\min}}. \quad (42)$$

Merőleges gerjesztésnél:

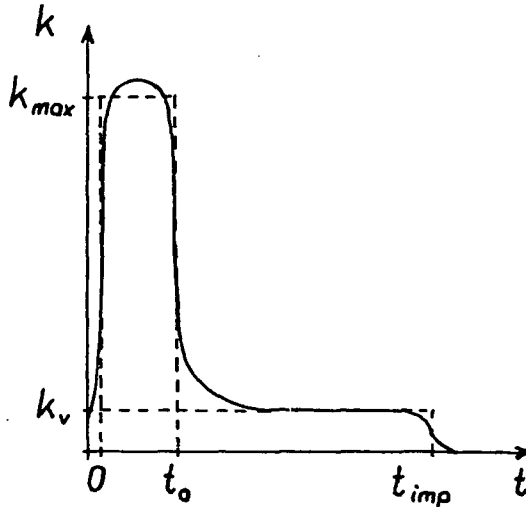
$$D_k = \frac{k(\Psi = 0^\circ) - k(\Psi = 90^\circ)}{k(\Psi = 0^\circ) + k(\Psi = 90^\circ)} = \frac{\gamma - \beta}{\gamma + \beta}. \quad (43)$$

Az erősítési együttható dikroizmusának a fogalmával könnyen interpretálhatók a lézersugárzás anizotrópiájára vonatkozó eredmények. Mivel a generálás feltétele a legjobban az erősítési együttható maximális értékénél teljesül, a dikroizmus nagysága és a kibocsátott fény polarizációfoka között szoros kapcsolat van.

Az erősítési együttható időfüggésének közelítése

A folyadéklézer fényének polarizációfokát a gerjesztés anizotrópiája mellett befolyásolhatja az erősítési együttható nagysága is.

A ftalimidszármazékokon végzett mérések azt mutatják, hogy a gerjesztő lézertény intenzitásának a növelésével nő a folyadéklézer sugárzásának a polarizációfoka is [9]. Figyelembe véve a folyadéklézer működésének nemstacionárius jellegét, a generálás kezdetén az erősítési együttható igen nagy, és lényegesen meghaladja a veszteségi együtthatót. Ez a rövid ideig tartó impulzussal (20—40 ns) történő gerjesztéskor áll fenn. A [18] dolgozatban számítást találunk az erősítési együttható időfüggésére, melyet a mérlegegyenletek megoldásával kaptak. Egy tipikus időfüggés a 7. ábrán látható. A görbét a következő függvénnyel közelítjük [19]:



7. ábra

$$k(\Psi) = \begin{cases} \text{áll.}, & \text{ha } 0 < t < t_0, \\ k_p, & \text{ha } t_0 < t < t_{\text{imp}}. \end{cases} \quad (44)$$

A két időintervallumon az erősítési együttható értéke állandó, az elsőn meghaladja a k_p veszteségi együtthatót, a másodikon pedig megegyezik vele.

Célunk most is a (37)-ben bevezetett $k(\Psi)$ meghatározása a két időintervallumra.

Az $n_2(\Theta, \varphi)$ számításához feltételezzük, hogy az alapállapotban levő molekulák dipólusmomentumának az iránya a tér minden irányában egyenletesen oszlik el. Így a gerjesztett állapotban levő molekulák számának a változása egy (Θ, φ) irányú térszögben:

$$\frac{dn_2(\Theta, \varphi)}{dt} = \frac{n_1}{4\pi} b_{12}(\vec{E}_g, \vec{D}) u_g - n_2(\Theta, \varphi) A_{21} - \sum_m n_2(\Theta, \varphi) b_{21}(\vec{E}_l, \vec{D}) u_{lm} \quad (45)$$

Az utolsó tagot elhagyjuk, mivel $n_2 \ll n_1$, és a generált sugárzás energiasűrűsége kezdetben kicsi a gerjesztő sugárzás energiasűrűségéhez képest (az egyenletet csak a $(0, t_0)$ intervallumra alkalmazzuk), így módon:

$$\frac{dn_2(\Theta, \varphi)}{dt} = \frac{n_1}{4\pi} b_{12}(\vec{E}_g, \vec{D}) u_g - n_2(\Theta, \varphi) A_{21}. \quad (46)$$

A (46) egyenlet megoldása:

$$n_2(\Theta, \varphi) = \frac{n_1}{4\pi} \frac{b_{12}(\vec{E}_g, \vec{D}) u_g}{A_{21}} [1 - \exp(-A_{21}t)]. \quad (47)$$

A gerjesztett állapotban levő molekulák maximális számát $t \rightarrow \infty$ -nél kapjuk, azaz

$$n_2(\Theta, \varphi) = \frac{3n_1}{4\pi} \frac{\bar{B}_{12}(v_g) u_g \cos^2(\vec{E}_g, \vec{D})}{A_{21}}. \quad (48)$$

Ezzel az erősítési együttható értéke:

$$k(\Psi) = \frac{9}{4\pi} \frac{h\nu_l}{v} \frac{\bar{B}_{21}(v_l) \bar{B}_{12}(v_g)}{A_{21}} n_1 u_g \int_{\Omega} \cos^2(\vec{E}_g, \vec{D}) \cos^2(\vec{E}_l, \vec{D}) d\Omega. \quad (49)$$

A számításokat elvégezve adódik, hogy

$$k(\Psi) = \frac{k_{\text{max}}}{3} (1 + 2 \cos^2 \delta \cos^2 \Psi), \quad (50)$$

ahol

$$k_{\text{max}} = \frac{3}{10} \frac{h\nu_l}{v} \frac{\bar{B}_{21}(v_l) \bar{B}_{12}(v_g)}{A_{21}} n_1 u_g. \quad (51)$$

A folyadéklézer-sugárzás polarizációfokának meghatározásánál az (50) egyenletben k_{max} értékét, illetve a nemstacionárius folyamat t_0 idejét fogjuk variálni.

A rotációs depolarizáció hatása

Az eddigi számítások mereven rögzített molekuláris oszcillátorrendszerre történtek. A kísérletekből azonban kiténik [9, 20], hogy a polarizációfok általában függ a viszkozitástól és a hőmérséklettől. A molekulák Brown-mozgásából származó elfordulása csökkenti a gerjesztés anizotrópiáját, ami a polarizációfok csökkentéséhez vezet. A rotációs depolarizáció elméletét F. Perrin dolgozta ki [21], és kimutatta, hogy a gerjesztett állapotban levő molekula átlagos elfordulási szögére (ξ) a következő kifejezés áll fenn:

$$\overline{\sin \xi} = \frac{4K\tau}{6K\tau + 1}, \quad (52)$$

ahol

$$K = \frac{kT}{6V\eta}, \quad (53)$$

- k — a Boltzmann-állandó,
- V — a molekula effektív térfogata a szolvátburokkal együtt,
- T — az abszolút hőmérséklet,
- η — az oldat viszkozitása,
- τ — a gerjesztett állapot élettartama.

Eme jelenségek figyelembe vétele a lumineszcencia elméletében látotthoz hasonlóan történik [12].

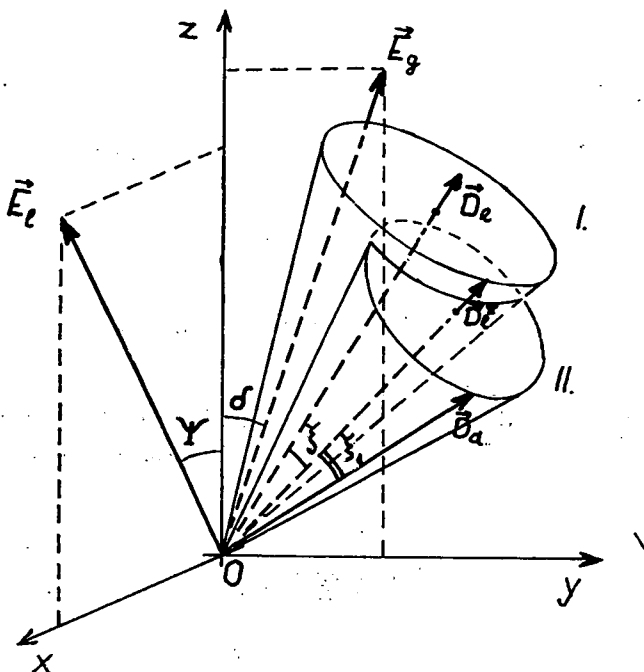
Számítás eltérő irányú abszorpció és emissziós oszcillátorokra

A bonyolult molekulák esetén előfordul, hogy a gerjesztés után a molekula egy sugárzás nélküli átmenet után átrendeződik, aminek az lesz a következménye, hogy az emisszióhoz rendelhető oszcillátor iránya nem egyezik meg az abszorpcióhoz rendelhető oszcillátor irányával. Jelöljük a két irány közötti szöget ξ_1 -gyel, és tételezzük fel, hogy a gerjesztett molekula a Brown-féle mozgás következtében ξ szöggel elfordul.

Vizsgáljunk egy tetszőleges \bar{D}_e irányú emittáló dipólust. Azok a dipólusok fognak ilyen irányban emittálni, amelyeknek a \bar{D}_e^* irányú emissziós dipólusai a \bar{D}_e tengelyű, ξ nyílásszögű I. kúp felületén voltak a Brown-mozgást megelőzően (8. ábra). A \bar{D}_e^* irányban pedig azok az emittáló oszcillátorok lesznek, amelyek abszorbeáló \bar{D}_e oszcillátorai a \bar{D}_e^* tengelyű, ξ_1 nyílásszögű II. kúp felületén vannak. Az átlagolást tehát most nemcsak az I. kúp felületére kell elvégezni, hanem ezen kívül a II.-re is.

A $k(\Psi)$ -re adódik, hogy

$$k(\Psi) = \frac{9}{4\pi} \frac{h\nu_l}{v} \frac{\bar{B}_{21}(\nu_l) \bar{B}_{12}(\nu_g)}{A_{21}} n_1 u_g \times \int \cos^2(\bar{E}_l, \bar{D}_e) \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \cos^2(\bar{E}_g, \bar{D}_e) d\eta_1 d\eta_2 d\Omega. \quad (54)$$



8. ábra

Elvégezve az integrálást (54)-ben η_1 és η_2 -re, a következő eredményt kapjuk:

$$\begin{aligned}
 k(\Psi) = & \frac{9}{4\pi} \frac{h\nu_l}{v} \frac{\bar{B}_{21}(\nu_l)\bar{B}_{12}(\nu_g)}{A_{21}} n_1 u_g \int \cos^2(\vec{E}_l, \vec{D}_e) [(\overline{\cos^2 \xi} \overline{\cos^2 \xi_1} + \frac{1}{2} \overline{\sin^2 \xi} \overline{\sin^2 \xi_1}) \times \\
 & \times (\sin^2 \delta \sin^2 \Theta \cos^2 \varphi + \cos^2 \delta \cos^2 \Theta) + \\
 & + (\frac{1}{2} \overline{\sin^2 \xi} \overline{\cos^2 \xi_1} + \frac{1}{4} \overline{\cos^2 \xi} \overline{\sin^2 \xi_1} + \frac{1}{4} \overline{\sin^2 \xi_1}) (\sin^2 \delta \cos^2 \Theta \cos^2 \varphi + \\
 & + \cos^2 \delta \sin^2 \Theta + \sin^2 \delta \sin^2 \varphi)] d\Omega.
 \end{aligned} \tag{55}$$

Integrálva (55)-öt az egységgömb teljes felületére a következőt kapjuk:

$$\begin{aligned}
 k(\Psi) = & \frac{1}{60} \frac{h\nu_l}{v} \frac{\bar{B}_{21}(\nu_l)B_{12}(\nu_g)}{A_{21}} n_1 u_g [10 - (2 - 3 \overline{\sin^2 \xi})(2 - 3 \overline{\sin^2 \xi_1}) + \\
 & + 3(2 - 3 \overline{\sin^2 \xi})(2 - 3 \overline{\sin^2 \xi_1}) \cos^2 \delta \cos^2 \Psi].
 \end{aligned} \tag{56}$$

$\xi_1 = 90^\circ$ esetében merőleges emissziós és abszorpciós dipólusokra:

$$k(\Psi) = \frac{k_{\max}}{4} [4 - \overline{\sin^2 \xi} - (2 - 3 \overline{\sin^2 \xi}) \cos^2 \delta \cos^2 \Psi], \tag{57}$$

ahol

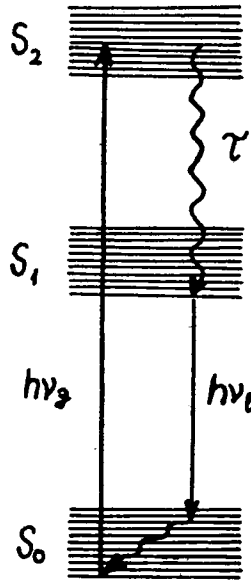
$$k_{\max}^{\perp} = k(\xi = 0^{\circ}, \Psi = 90^{\circ}) = \frac{1}{5} \frac{h\nu_l}{\nu} \frac{\bar{B}_{21}(\nu_l) \bar{B}_{12}(\nu_g)}{A_{21}}. \quad (58)$$

Az erősítési együttható értéke a $\Psi = 90^{\circ}$ -os irányra maximális és a $\Psi = 0^{\circ}$ -os irányra minimális:

$$k(\Psi = 90^{\circ}) = \frac{k_{\max}^{\perp}}{4} (4 - \overline{\sin^2 \xi}), \quad (59)$$

$$k(\Psi = 0^{\circ}) = \frac{k_{\max}^{\perp}}{4} (2 + 2 \overline{\sin^2 \xi}). \quad (60)$$

A kísérlet során a rodamin 6G molekulákat az S_2 szintre gerjesztették, ahonnan sugárzás nélküli átmenettel az S_1 szintre kerültek (9. ábra). A két energiaszinthez tartozó abszorpciós és emissziós dipólusok merőlegességek egymásra, így a számításnál az (57) összefüggést kell használnunk.



9. ábra

A kisugárzott lézertény polarizációfokának meghatározása [22]

Az $u_0(\Psi)$ energiasűrűségű sugárzás az aktív közegben x utat megtéve

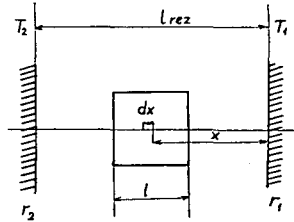
$$u(\Psi) = u_0(\Psi) \exp [(k(\Psi) - k_v) x] \quad (61)$$

értékre változik.

Vezessük be a t_c ciklusidőt, amely azt az időt jelenti, amely alatt a fénysugár oda-vissza megteszi a két rezonátortükrök közötti utat. A ciklusok száma:

$$m = \frac{t}{t_c}. \quad (62)$$

Tegyük fel, hogy az $(x, x+dx)$ hosszúságtartományban az aktív közegben a $t=0$ időpillanatban jelen van egy $u_0(\Psi)$ térfogati energiasűrűségű jobbra haladó, és egy $u_0(\Psi)$ energiasűrűségű balra haladó hullám a spontán sugárzás következtében [ld. 10. ábra]. Ez a sugárzás fog felerősödni a kényszerített átmenetek révén.



10. ábra

Tekintsük a jobbra haladó hullámot. x út megtétele után $u_0(\Psi)$ felerősödik a következő értékre:

$$u_1 = u_0(\Psi) \exp(k'x) dx, \quad (63)$$

ahol

$$k' = k(\Psi) - k_v, \quad (64)$$

kijutva az aktív közegből gyakorlatilag nem változik, majd az r_1 reflexiójú T_1 tükörről visszaverődik:

$$u_2 = r_1 u_0(\Psi) \exp(k'x) dx, \quad (65)$$

és kilép a rezonátorból:

$$u_3 = (1 - r_1) u_0(\Psi) \exp(k'x) dx. \quad (66)$$

u_2 az aktív közegen végighaladva erősödik, majd az r_2 reflexiójú T_2 tükörről visszaverődve az x pontban — tehát az első ciklus befejeztével — nagysága a következő lesz:

$$u_4 = r_1 r_2 u_0(\Psi) \exp(k'x) \exp(k'l) \exp[k'(l-x)] dx = u_0(\Psi) q dx, \quad (67)$$

ahol

$$q = r_1 r_2 \exp(2k'l). \quad (68)$$

Mivel x 0-tól l -ig változhat, az első ciklus végéig az egységnyi keresztmetszeten kilépett energia:

$$u_{k+1} = \int_0^l (1 - r_1) u_0(\Psi) \exp(k'x) dx = (1 - r_1) u_0(\Psi) \frac{\exp(k'l) - 1}{k'}. \quad (69)$$

Utána ugyanezt a számolást előlről kell kezdeni, de $u_0(\Psi)$ helyett $qu_0(\Psi)$ áll. Az m -edik ciklus után a kilépett energia:

$$u_{ki\ m} = (1 - r_1)u_0(\Psi) \frac{\exp(k'l) - 1}{k'} q^{m-1}, \quad (70)$$

és az x pontban a jobbra haladó hullám egységnyi keresztmetszetre és dx hosszúságra eső energiája:

$$u_{jm} = u_0(\Psi) q^m dx. \quad (71)$$

Ugyanígy számíthatjuk a balra haladó hullám energiáját is. Az m -edik ciklus végén a kilépett energia (egységnyi felületről):

$$u'_{ki\ m} = (1 - r_1)u_0(\Psi) \frac{\exp(k'l) - 1}{k'} r_2 \exp(k'l) q^{m-1}, \quad (72)$$

és a (69)-el analóg egyenlet a balra haladó hullámra:

$$u_{bm} = u_0(\Psi) q^m dx. \quad (73)$$

Az egységnyi felületről kilépett összes energia az m -edik ciklus végéig az egyes ciklusokban kijutottak összege:

$$\begin{aligned} u_{nst}(\Psi) &= (1 - r_1)u_0(\Psi) \frac{\exp(k'l) - 1}{k'} \sum_{i=1}^m q^{i-1} + \\ &+ (1 - r_1)u_0(\Psi) \frac{\exp(k'l) - 1}{k'} r_2 \exp(k'l) \sum_{i=1}^m q^{i-1} = \\ &= (1 - r_1)u_0(\Psi) \frac{\exp(k'l) - 1}{k'} [1 + r_2 \exp(k'l)] \frac{q^{m-1} - 1}{q - 1}. \end{aligned} \quad (74)$$

Ez addig a t_0 időpontig tart, amíg a fénysugár erősödik (azaz $k(\Psi) > k_v$). A stacionárius folyamatok ideje alatt az intenzitás már nem változik. Az $(x, x + dx)$ szakaszon megmarad az $u_0(\Psi) q^m dx$ energiájú jobbra, illetve az ugyanekkora energiájú balra haladó hullám. Ha a stacionárius szakaszban a ciklusok száma m_c , akkor a (t_0, t_{imp}) intervallumban az egységnyi felületről kilépő sugárzás energiája:

$$u_{st} = m_c \int_0^l u_0(\Psi) q^m (1 - r_1) (1 + r_2) dx = m_c u_0(\Psi) q^m (1 - r_1) (1 + r_2) l. \quad (75)$$

Az egységnyi felületről kilépő összes energia tehát a Ψ irányban (74) és (75) összege:

$$\begin{aligned} W(\Psi) &= u_0(\Psi) (1 - r_1) \left\{ \frac{\exp(k'l) - 1}{k'} [1 + r_2 \exp(k'l)] \cdot \right. \\ &\quad \left. \cdot \frac{q^{m-1} - 1}{q - 1} + m_c q^m (1 + r_2) l \right\}. \end{aligned} \quad (76)$$

A $W(\Psi)$ értéke meghatározható, ha kiszámítjuk a spontán lumineszcencia $u_0(\Psi)$ energiasűrűségét.

Válasszunk ki az oszcillátorrendszerből (mely alapállapotban minden irányban egyenletesen sűrűn oszlik el) egy tetszőleges dipólust. Az \vec{E}_g gerjesztő fény hatására az oszcillátorban rezgések jönnek létre, melyek amplitúdója:

$$A = aE_g \cos(\vec{E}_g, \vec{D})$$

(a — arányossági tényező).

Ennek vetülete a megfigyelés $\vec{e} = (0, \sin \Psi, \cos \Psi)$ irányára:

$$A_e = aE_g \cos(\vec{E}_g, \vec{D}) \cos(\vec{e}, \vec{D}). \quad (77)$$

A rezgés energiája az \vec{e} irányban:

$$cA_e^2 = ca^2 E_g^2 \cos^2(\vec{E}_g, \vec{D}) \cos^2(\vec{e}, \vec{D}). \quad (78)$$

Integráljunk a teljes oszcillátorrendszerre:

$$u_0(\Psi) = ca^2 E_g^2 \int_{\Omega} \cos^2(\vec{E}_g, \vec{D}) \cos^2(\vec{e}, \vec{D}) d\Omega = \frac{u_{0\max}}{3} (1 + 2 \cos^2 \delta \cos^2 \Psi). \quad (79)$$

Ha figyelembe vesszük a Brown-féle forgást, akkor az előző fejezetekben leírtakkal azonos módon kapjuk:

$$u_0(\Psi) = \frac{u_{0\max}}{3} [1 + \overline{\sin^2} \xi + (2 - 3 \overline{\sin^2} \xi) \cos^2 \delta \cos^2 \Psi]. \quad (80)$$

Ha a gerjesztés a második abszorpciós sávba történik, és az abszorpciós és emissziós dipólusok 90°-os szöget zárnak be egymással, akkor:

$$u_0(\Psi) = \frac{u_{0\max}}{4} [4 - \overline{\sin^2} \xi - (2 - 3 \overline{\sin^2} \xi) \cos^2 \delta \cos^2 \Psi]. \quad (81)$$

Ezzel a $W(\Psi)$ függvényt kiszámítottuk, és ismeretében a kibocsátott sugárzás P polarizációfoka is megadható:

$$P = \frac{E_z - E_x}{E_z + E_x}, \quad (82)$$

ahol

$$E_z = \int_0^{\frac{\pi}{2}} W(\Psi) \cos^2 \Psi d\Psi, \quad (83)$$

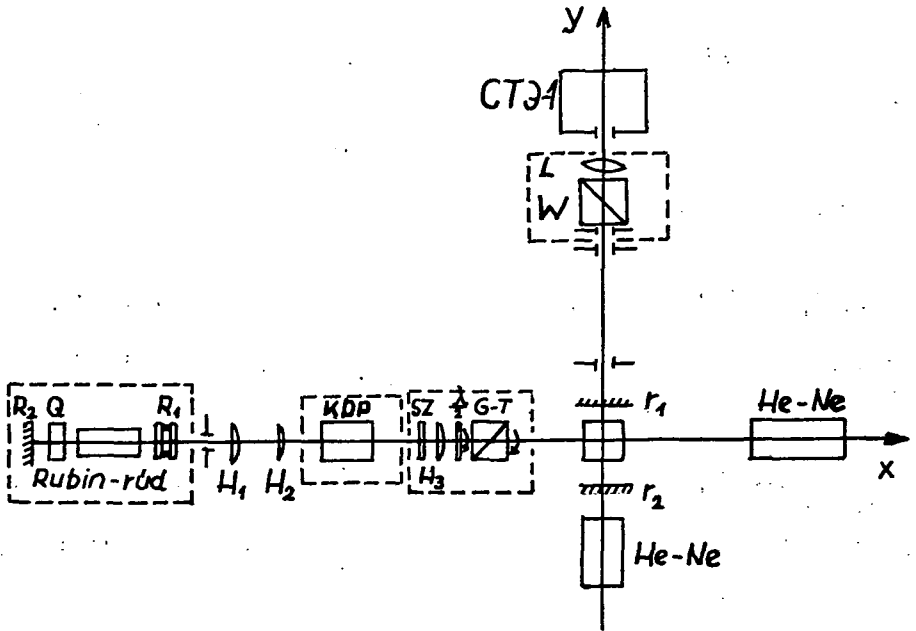
illetve

$$E_x = \int_0^{\frac{\pi}{2}} W(\Psi) \sin^2 \Psi d\Psi. \quad (84)$$

A számítást rodamin 6G alkoholos oldatára végeztük el.

A mérőberendezés

A kísérleti berendezés vázlatát a 11. ábra mutatja. Az x - és y -tengely metszéspontjában helyeztük el a vizsgált folyadéklézer aktív anyagát tartalmazó küvetát, az x -tengely mentén helyezkedik el a gerjesztő fényt előállító rendszer. Az y -tengely mentén az analízátor és a detektor nyert elhelyezést.



11. ábra

A gerjesztő fényforrás legfontosabb része egy nagyteljesítményű monoimpulzus üzemben működő rubinlézer.

A gerjesztésre két darab ИФП—2000 típusú villanólámpát használtunk, amelyeket sorba kapcsoltunk. Ezeket nagy reflexiójú alumíniumköpeny foglalja magába, amely a gerjesztő fényt az aktív közegre reflektálja. A rezonátort úgy alakítottuk ki, hogy térfogata a lehető legkisebb legyen. A fényforrás hővé alakult energiáját levegő átfújásával vezettük el.

A két villanólámpa tápegysége egy $475 \mu\text{F}$ kapacitású és $2,95 \text{ kV}$ feszültségre feltöltött kondenzátor. A rendszer időállandóját a kisülési kör önindukciójának változtatásával úgy állítottuk be, hogy a teljes impulzusidő 1 ms legyen, az impulzus felfutási ideje pedig $0,15\text{--}0,20 \text{ ms}$.

A rubinlézer által kibocsátott energia a kondenzátorra adott feszültség növelésével kb. 8 joule -ig növelhető normál üzemmódban.

A rezonátortükröket (R_1 , R_2) egymástól 40 cm távolságra helyeztük el. A rubinlézer hullámhosszán a zárótükrök $R_2=99\%$ reflexiójú. Kicsatoló tükrök helyett 2 db planparallel üveglemezt alkalmaztunk, melyek egymástól $0,3\text{--}0,5 \text{ cm}$ távolságra voltak. Ennek az üveglemezsorozatnak a reflexiója kb. $R_1=30\%$.

A rubinlézerből kilépő kb. 1 joule energiájú és ~ 20 ns félértékszélességű sugárzás egy 15 mm átmérőjű kördiafragmán át két hengerlencsén (H_1 , H_2) halad keresztül. A hengerlencséket úgy állítottuk be, hogy a rubinlézerből kilépő nyalábot 15 mm magasságú és 4—5 mm szélességű párhuzamos sugárrá alakítsa. Így elegendő energiasűrűség állítható elő a frekvenciakétszerező KDP-kristály működéséhez, amely azt teszi lehetővé, hogy a gerjesztés a 347,15 nm hullámhosszú fényel történjen.

A kristályt követő elem (Sz) egy UG—1 típusú szűrő, amely elnyeli a rubin-lézer 694,3 nm hullámhosszú fényét, és gyakorlatilag csak a felharmonikus sugár jut tovább. Ennek az energiája kb. 0,02 joule. A két korábbi hengerlencse tengelyére merőlegesen állítottuk be a harmadik hengerlencsét (H_3), amely 8 mm hosszú egyenessé fókuszálja a nyalábot a küvetta belső falára.

A KDP-kristályból kilépő, függőleges síkban lineárisan poláros fény elektromos vektorát úgy forgatjuk el az optikai tengely körül, hogy egy optikailag aktív $\frac{\lambda}{2}$ kvarclemezt helyeztünk el a szűrő után.

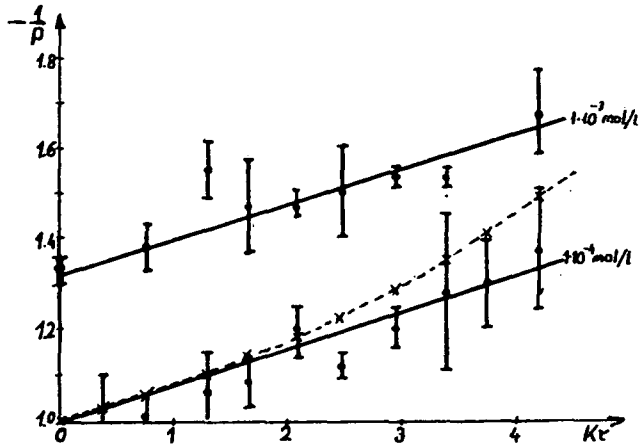
A kvarclemezből kilépő fény elliptikusan poláros és a polarizációs ellipszis alakja, valamint tengelyeinek iránya függ α -tól. Ez a fény egy (G—T) Glan—Thompson-prizmán áthaladva ismét lineárisan poláros lesz olyan síkban, ahogyan a prizma mint analizátor ezt megengedi. A Glan—Thompson-prizma elforgatásával a sugárzás polarizációs síkja is elfordul. Annak érdekében, hogy a különböző irányokban az elektromos vektor nagysága ne változzon meg, a $\frac{\lambda}{2}$ lemezt is el kell fordítanunk ahhoz, hogy a polarizációs ellipszis alakja és helyzete megváltozzon. Az elforgatások szögeit $\delta=0^\circ, 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ, 90^\circ$ -ra kísérletileg meghatároztuk.

A vizsgált folyadéklézer adatai: az aktív anyagot (rodamin 6G etilalkoholos oldatot) tartalmazó küvetta 1,000 cm \cdot 1,000 cm keresztmetszetű kvarc-küvetta. A sík rezonátortükrök távolsága 10 cm, reflexiójuk pedig 99%, ill. 80%. A folyadéklézer fénye 3 db 1—2 mm átmérőjű diafragmán át egy (W) Wollaston-prizmába kerül, amely az x — y síkra merőleges, illetve azzal párhuzamos irányban lineárisan poláros sugárra bontja fel a folyadéklézer fényét. A két sugár szét tartó, melyeket egy (L) gyűjtőlencse képez le a spektrográf részére. Abban az esetben, amikor a két lineárisan poláros komponens spektrálisan nem bontjuk fel, a fénysugarak egy objektív nélküli fényképezőgépbe jutnak. A polarizációfok hullámhossztól való függésének vizsgálatánál egy CT Θ —1 típusú prizma-rács kombinációjú keresztezett diszperziójú spektrográfot használtunk. A detektor ORWO NP—27 film volt, amelynek hitelesítése [23]-ban leírt módon történt.

Kísérleti és számítási eredmények

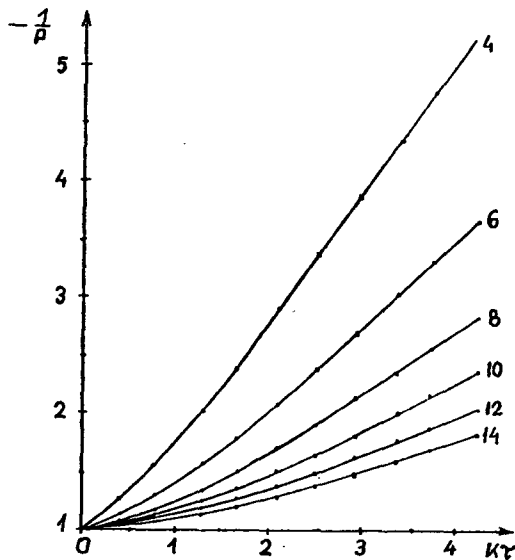
$1 \cdot 10^{-4}$ mol/l és $1 \cdot 10^{-3}$ mol/l koncentrációjú etilalkoholos rodamin 6G oldatosorozatot készítettünk, mely sorozat tagjai a viszkozitásukban térnek el egymástól. Az oldat viszkozitását glicerin hozzáadásával változtattuk.

A méréseket kétféleképpen végeztük el. Az egyik esetben megmértük a Wollaston-prizmából kilépő két egymásra merőleges irányban polarizált nyaláb intenzitását, és ebből számítottunk egy átlagos (melyet integrálisnak nevezünk) polarizációfokot. A másik esetben pedig a két nyalábot spektrálisan felbontottuk, megkerestük az egymásnak megfelelő z és x irányban polarizált spektrumvonalakat, és így a polarizációfoknak a spektrumon belüli változását is megmértük.

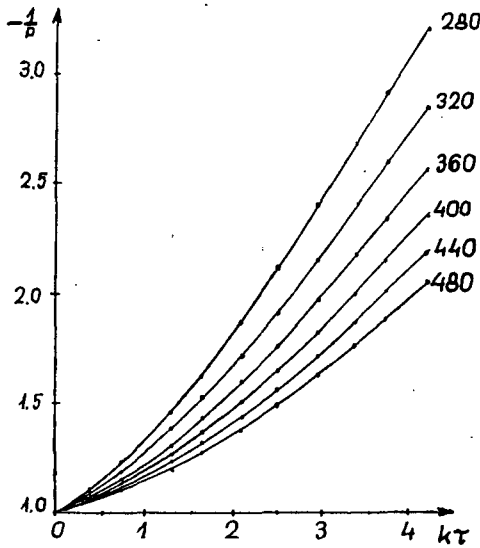


12. ábra

A 12. ábrán mutatjuk be, hogy az integrális polarizációfok reciproka hogyan függ a $K\tau$ (lásd (53)) értékétől. Az oldat viszkozitását növelve a rotációs depolarizáció hatása csökken, tehát a kisugárzott fény polarizációfoka nő. A két egyenes az $1 \cdot 10^{-4}$ mol/l és az $1 \cdot 10^{-3}$ mol/l koncentrációjú oldatsorozatra vonatkozik. Látható, hogy az $1 \cdot 10^{-4}$ mol/l-es rodamin 6G-nek már a kis viszkozitású, glicerinmentes oldatánál mért polarizációfoka is igen magas, és gyorsan eléri a határpolarizáció -1 értékét. A nagyobb koncentrációjú $1 \cdot 10^{-3}$ mol/l-es oldat esetében alacsonyabb a mért polarizációfok, és a nagy viszkozitásnál sem lesz -1 az értéke. Valószínű, hogy a rotációs depolarizáció mellett ennél a koncentrációnál már fellép a molekulák egy-



13. ábra (paraméter: $m, k_{\max}^{-1} = 480 \text{ m}^{-1}$)



14. ábra (paraméter: k_{\max}^{\perp} , $m=12$)

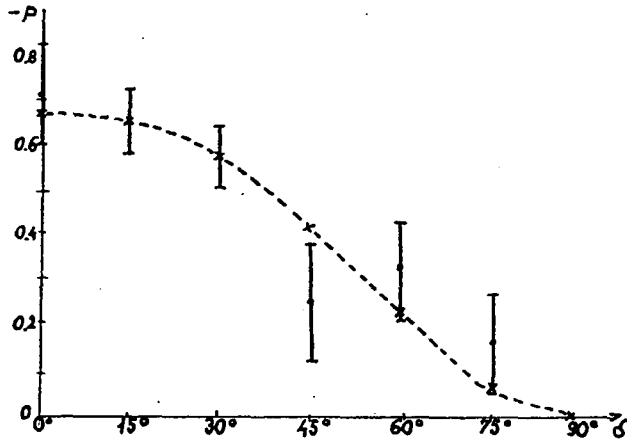
másközötti sugárzás nélküli energiaátadása, mely egy további depolarizációs hatást jelent. Ezt a jelenséget koncentrációs depolarizációnak nevezzük.

A korábban leírt modell segítségével kiszámítottuk a polarizációfok viszkozitásfüggését. A maximális erősítési együtthatót (k_{\max}^{\perp}) és a nemstacionárius folyamat idejét meghatározó ciklusszámot (m) variáltuk. A fontosabb adatok a következők voltak: $V=3,65 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^3$, $\tau=3,2 \cdot 10^{-9} \text{ s}^{-1}$, $l_{\text{rez}}=10 \text{ cm}$, $l=1 \text{ cm}$, $t_{\text{imp}}=20 \text{ ns}$, $r_1=0,8$, $r_2=0,99$. A 13. és 14. ábrán $-1/P$ -nek a $K\tau$ -tól való függését láthatjuk különböző k_{\max}^{\perp} és m variálási paraméterek mellett.

Minden számított görbe határértéke a $P=-1$ -hez tart, következésképpen csak az $1 \cdot 10^{-4} \text{ mol/l}$ -es oldatra kapott mérési eredményhez tudtuk hozzáilleszteni. A legjobb egyezést akkor kaptuk, amikor k_{\max}^{\perp} -ot 800 m^{-1} -nek, m -t pedig 12-nek választottuk. m ilyen értéke esetén a nemstacionárius folyamat ideje kb. 10 ns. A 22. ábrán a szaggatott vonal a számítással kapott függvényt jelöli.

A [9] dolgozatban ftalimidszarmazékokra vonatkozó kísérleti és számítási eredmények szerepelnek. Ezen anyagokra a polarizációfok erősebben függ a viszkozitástól, de a görbék menete hasonló azokhoz, amelyeket rodamin 6G-re kaptunk.

Megvizsgáltuk, hogy a gerjesztő fény elektromos vektorának az elforgatásával hogyan változik a festéklézer sugárzásának a polarizációfoka. A 15. ábrán a rodamin 6G $1 \cdot 10^{-4} \text{ mol/l}$ -es, glicerinmentes oldatára vonatkozó mérések adatait tüntettük fel. Az eredmények jól mutatják azt a kvalitatíve várható és számítással is igazolt tényt, hogy ha a gerjesztő fény elektromos vektorának polarizációs síkját beforgatjuk a folyadéklézer optikai tengelyébe, akkor a gerjesztés anizotrópiája csökken, majd megszűnik. Ennek következtében a festéklézer sugárzásának polarizációja is csökken, illetve $\delta=90^\circ$ -ra a festéklézer geometriája az optikai tengelyére szimmetrikus lesz (ha a veszteségek az optikai tengelyre merőleges irányokban megegyeznek); és azt várjuk, hogy a kisugárzott lézertér teljesen depolarizált lesz. Bár a kísérlet során



15. ábra

nem tudtuk a $\delta=90^\circ$ -ot beállítani anélkül, hogy a gerjesztő intenzitás ne változott volna meg lényegesen, a polarizációfok $\delta=75^\circ$ -nál már láthatóan erősen lecsökkent a $\delta=0^\circ$ -nál mért értékhez képest.

A számítást elvégeztük a polarizációfoknak a gerjesztő fény elektromos vektora állásától való függésre is. A számított görbét a korábban leírttal azonos módon illesztettük a mérési eredményekhez. A 15. ábra szaggatott görbéje a számítás eredményét mutatja arra az esetre, amikor az illesztési paraméterek értéke: $k_{\max}^{\perp} = 800 \text{ m}^{-1}$, $m = 12$.

A polarizációfok spektrális függését is megvizsgáltuk a két komponens spektrális felbontásával. (Ezeknél a felvételeknél $\delta=0^\circ$ volt).

A spektrum nagyon bonyolult szerkezetű, és ha az egyes összetartozó vonalokból számítjuk ki vonalanként a polarizációfokot, akkor alig vehető észre a kapott grafikon menetében szabályszerűség. A rezonátornak azt a hatását, hogy az egyik módust jobban erősíti, mint a mellette levőt, úgy próbáltuk csökkenteni, hogy a polarizációfokot nem vonalanként határoztuk meg. Egy hullámhosszintervallumra (0,6 nm, ill. 1,1 nm) számítottunk egy átlagot, összegezve a spektrum egy szakaszára az x , ill. z irányban polarizált komponensek energiasűrűségét. A polarizációfok meghatározására a következő összefüggést használtuk:

$$\bar{P}(\lambda) = \frac{\sum_{i=1}^n (E_{iz} - E_{ix})}{\sum_{i=1}^n (E_{iz} + E_{ix})}, \quad (85)$$

ahol E_i jelenti az i -edik vonal energiasűrűségét, n értéke pedig 5, ill. 10 volt.

A kapott spektrumokra az jellemző, hogy szélességük különböző, pontosabban a nagyobb intenzitású x komponens szélessége nagyobb, mint a z komponensé. Így a polarizációfok értéke a spektrum szélén -1 -nek adódott. Ezt a jelenséget az erősítés dikroizmusával magyarázhatjuk. Az x és a z irányában az erősítési együtthatók eltérő nagyságúak, azaz

$$k_x(\lambda) \neq k_z(\lambda). \quad (86)$$

A két erősítési tényező a következőképpen hozható egymással kapcsolatba a korábban leírt modellünk alapján (ld. (59) és (60)), mivel

$$k_x(\lambda) = \frac{k_{\max}^\perp}{4} (4 - \overline{\sin^2 \xi}). \quad (87)$$

$$k_z(\lambda) = \frac{k_{\max}^\perp}{4} (2 + 2\overline{\sin^2 \xi}). \quad (88)$$

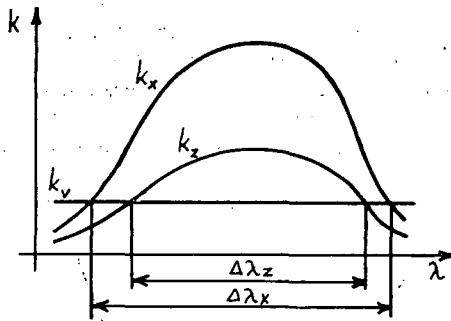
A hányadosukra adódik, hogy

$$\frac{k_x(\lambda)}{k_z(\lambda)} = \frac{4 - \overline{\sin^2 \xi}}{2 + 2\overline{\sin^2 \xi}}, \quad (89)$$

A viszkozitás növekedésével a $k_x(\lambda)/k_z(\lambda)$ arány nő, és határesetben ($\eta \rightarrow \infty$) adódik, hogy

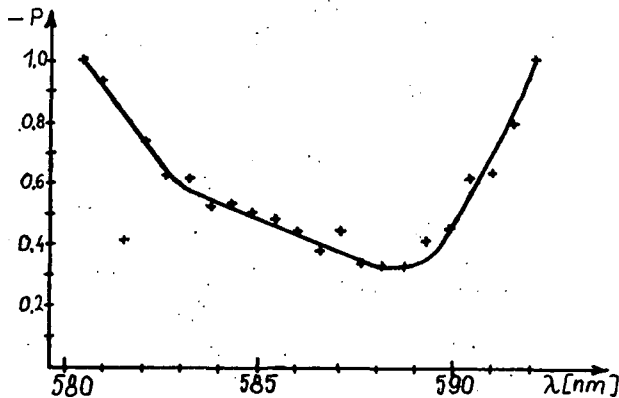
$$k_x(\lambda) = 2k_z(\lambda). \quad (90)$$

$k_x(\lambda)$ nagyobb spektrumtartományban múlja felül a veszteséget, mint $k_z(\lambda)$, tehát a spektrum x komponense szélesebb lesz (16. ábra).

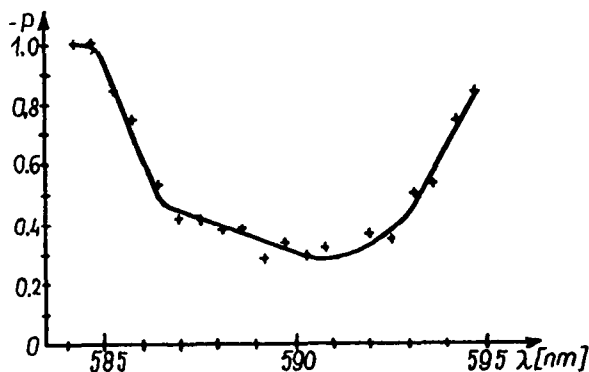


16. ábra

A viszkozitás változtatásával a $k_x(\lambda)/k_z(\lambda)$ arány is változik, tehát a spektrumok szélessége is eltérő lesz.



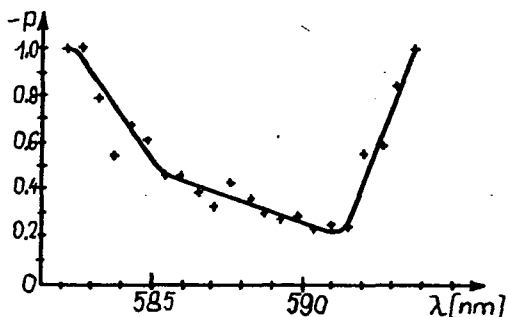
17. ábra



18. ábra

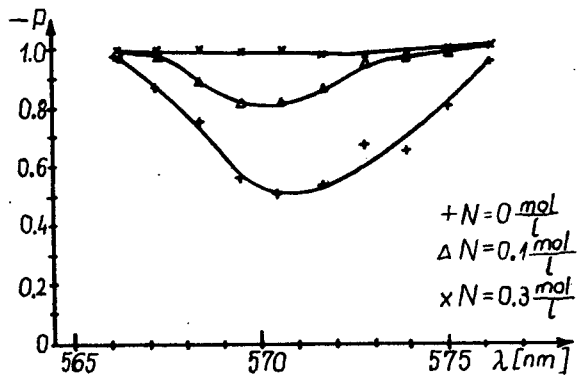
A polarizációfok spektrális változására az $1 \cdot 10^{-4}$ mol/l és az $1 \cdot 10^{-3}$ mol/l koncentrációjú oldatok esetében a 17—20. ábrán látható görbéket kaptuk.

Az irodalmi adatok [10] szerint a polarizációfok a hullámhossz növekedésével csökken. Ez a jelenség csak az $1 \cdot 10^{-3}$ mol/l koncentrációjú oldatnál mutatkozik. Valószínű, hogy a másik oldatnál ezt azért nem tudtuk kimutatni, mert nagyon keskeny volt az egyik komponens spektruma. A színekép nagy részén csak a másik komponens volt jelen, és a gyengébb komponensnél a küszöb közelében pedig különösen bonyolulttá teszik az amúgy is keskeny spektrum alakját a fluktuációk.



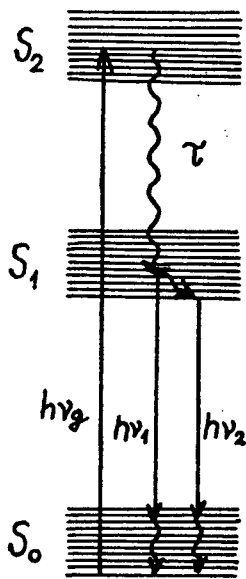
19. ábra

A polarizációfoknak a hullámhosszal való ilyen változását a korábban leírt modellel nem tudjuk megmagyarázni. Ugyanis a modell szerint a két kitüntetett irányban az erősítési együttható értéke különbözik, a (89) alatti kapcsolat áll fenn. Tehát $k_x(\lambda)$ -nak ott van maximuma, ahol $k_z(\lambda)$ -nak. A spektrumokból pedig látható (16. ábra), hogy a z komponens spektrumának a súlypontja egy kevéssel a hosszabb hullámhosszak felé tolik el a másikhoz képest. Egy lehetséges kvalitatív magyarázat a következő (ld. 21. ábra). Tegyük fel, hogy a molekula az S_1 term valamely energiaszintjén van, és az energiáját $h\nu_1$, illetve egy sugárzás nélküli átmenet után $h\nu_2$ energiájú foton kibocsátásával adja le. Azon idő alatt, amíg a molekula az S_1



20. ábra

term egyik magasabb szintjéről az alacsonyabb szintjére eljut, elfordulhat. Tehát fellép a rotációs depolarizáció, vagy további depolarizációs hatások is, melynek kö-



21. ábra

vetkeztében a hosszabb hullámú komponensek kevésbé lesznek polárosak, ami azt jelenti, hogy a polarizációfok értéke a spektrum hosszú hullámú részén kisebb lesz.

IRODALOM

- [1] MCFARLAND, B. B.: Appl. Phys. Lett. 10, 208, 1967.
- [2] SORONKIN, P. P., I. B. LANKARD ET AL.: IBM J. Res. and Development 11, 130, 1967.
- [3] SEVCHENKO, A. N., A. A. KOVALEV, V. A. PILIPOVICH, YU. V. RAZVIN: DAN USSR 179, 562, 1968.
- [4] SEVCHENKO, A. N., A. A. KOVALEV, V. A. PILIPOVICH: DAN USSR 187, 1039, 1969.
- [5] SEVCHENKO, A. N., L. G. PIKULIK, L. F. GLADCHENKO, A. D. DASKO: DAN USSR 188, 1263, 1969.
- [6] PIKULIK, L. G., L. F. GLADCHENKO, A. L. DASKO: Izv. AN USSR ser. fiz. 34, 1316, 1970.
- [7] KOVALEV, A. A., V. A. PILIPOVICH, YU. V. RAZVIN: ZhPS 16, 654, 1972.
- [8] PIKULIK, L. G., A. I. MAKSIMOV, K. I. RUDIK: ZhPS 19, 1025, 1973.
- [9] PIKULIK, L. G., K. I. RUDIK, A. I. MAKSIMOV, O. I. YAROSHENKO: ZhPS 20, 996, 1974.
- [10] PIKULIK, L. G., K. I. RUDIK, A. I. MAKSIMOV: Acta Phys. et Chem. Szeged 23, 77, 1977.
- [11] PIKULIK, L. G., A. I. MAKSIMOV, K. I. RUDIK: ZhPS 22, 1043, 1975.
- [12] LJOVSIN, V. L.: Folyékony és szilárd anyagok fotolumineszcenciája. Akadémiai Kiadó, Bp., 1956.
- [13] SZARZSEVSKIJ, A. M., A. N. SZEVCSENKO: Anizotropija poglosenyija i szpuszkanyija szveta molekulami. Izd. BGU, Minszk, 1971.
- [14] SHANK, C. V.: Rev. Mod. Phys., 47, 3, 649, 1975.
- [15] ATKINSON, J. B., F. P. PACE: IEEE J. Quant. Electr., QE—9, 6, 569, 1973.
- [16] GRUZINSZKIJ, V. V., SZ. V. DAVIDOV: Materiali vszeszojuznoj konferencii „Lazeri na osznové szlozsnüh organyicseszkih szojegyinyenyij”. Preprint, Minszk, 1975.
- [17] PILIPOVICS, V. A., A. A. KOVALJEV: Anizotropija vünuzsgyenovo izlucsenyija organyicseszkih szojegyinyenyij. Preprint, Minszk, 1977.
- [18] SZAMSZON, A. I. Metodi raszcota opticseszkih kvantovüh generatorov na organyicseszkih krasztyeljah. Preprint, Minszk, 1970.
- [19] YAROSHENKO, O. I., K. I. RUDIK, L. G. PIKULIK, A. I. MAKSIMOV: Opt. i. Spekr. 39, 745, 1975.
- [20] LEMPICKI, A.: Acta Physica Polonica A 50, 179, 1976.
- [21] PERRIN, F.: Acta Phys. Pol., 5, 335—347, 1936.
- [22] PINTÉR, F., L. GÁTI, L. VIZE, J. KLEBNICZKI: Acta Phys. et Chem. Szeged, 24, 381, 1978.
- [23] VIZE, L., F. PINTÉR, L. GÁTI, J. JUNG: Acta Phys. et Chem. Szeged, 21, 19, 1975.
- [24] HEBLING, J., F. PINTÉR, L. VIZE: Conference Digest of 3rd Conference on Luminescence. Szeged, 2, 327, 1979.

THEORETISCHE UND EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNG DER POLARISATIONSEIGENSCHAFTEN FARBSTOFFLASERSTRAHLUNG

FERENC PINTÉR—LÁSZLÓ VIZE—LÁSZLÓ GÁTI—JÓZSEF KLEBNICZKI

Es wurde theoretische und experimentell untersucht, welche Beziehungen zwischen der Rotationsbewegung der gelösten Moleküle und der Polarisationseigenschaften von Farbstofflaserstrahlung sind. Die Rhodamine 6G Lösung des Farbstofflasers wurde mit linear polarisiertem Laserlicht erregt. Bei der Farbstoffkonzentration $1 \cdot 10^{-4}$ mol/l übereinstimmen gut die Messresultate mit den theoretischen Daten bis auf einen unbestimmten Faktor. Bei der Farbstoffkonzentration $1 \cdot 10^{-3}$ mol/l ergab sich eine Abweichung von der Theorie. Der wahrscheinlichste Grund dieser Abweichung ist, dass die Wirkung der Konzentrationsdepolarisation in die Theorie nicht berücksichtigt wurde.

ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СТЕПЕНИ ПОЛЯРИЗАЦИИ ИЗЛУЧЕНИЯ ИМПУЛЬСНОГО ЛАЗЕРА НА КРАСИТЕЛЕ

Ф. ПИНТЕР, Л. ВИЗЕ, Л. ГАТИ И Й. КЛЕБНИЦКИ

Было исследовано теоретически и экспериментально влияние вращательной деполяризации на степень поляризации излучения лазера на красителе родамина 6Ж, в зависимости от вязкости растворителей при лазерном возбуждении линейно поляризованным светом. Теоретические и экспериментальные результаты хорошо согласуются при концентрации активного вещества равной $1 \cdot 10^{-4}$ моль/л, а в случае концентрации $1 \cdot 10^{-3}$ моль/л наблюдается расхождение. Вероятно, что влияние концентрационной деполяризации является причиной расхождения, которую теория не принимает во внимание.