

## АНОМАЛЬНАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ДИСПЕРСНЫХ СРЕД ПРИ ГЕНЕРАЦИИ ИЗЛУЧЕНИЯ НА МОДАХ "ШЕПЧУЩЕЙ ГАЛЕРЕИ"

В.В.Дацюк, И.А.Измайлов, В.А.Кочелап

Теоретически исследована люминесценция среды с конденсированной дисперсной фазой при генерации света в сферических частицах – микрорезонаторах. Впервые предсказан эффект значительного увеличения интенсивности люминесценции дисперсной среды, содержащей молекулы с инверсно заселенными уровнями.

1. В последние годы возрос интерес к физико-химическим свойствам гетерофазных дисперсных сред (см., например, обзор экспериментальных исследований люминесценции капель растворов красителей <sup>1</sup>). Цель работы – изучение люминесценции гетерофазных сред в условиях генерации света в дисперсных частицах.

2. Рассмотрим сферическую диэлектрическую частицу как открытый оптический резонатор. Как известно, в сферическом резонаторе могут существовать медленно затухающие поверхностные электромагнитные колебания, или моды "шепчущей галереи". Каждая мода характеризуется  $p$ -набором индексов  $n, k, q, m$ , где  $n$  – большое целое число,  $k = 1$  и  $k = 0$  для колебаний электрического и магнитного типа, соответственно,  $q$  – продольный индекс (номер корня уравнения  $A_i(x) = 0$ ,  $A_i$  – функция Эйри),  $m$  – азимутальный индекс ( $-n \leq m \leq n$ ). Угловая частота  $\omega_p$   $p$ -ой моды резонатора зависит от  $n, k, q$  и примерно равна  $(c/Ma)/(n + 1/2)$ , где  $c$  – скорость света,  $M$  – относительный показатель преломления света вещества резонатора,  $a$  – радиус шара <sup>2</sup>.

Для добротности резонатора  $Q$  нами было получено выражение:  $Q^{-1} \leq Q_r^{-1} + Q_s^{-1}$ , где  $Q_r$  – найденная в <sup>2</sup> радиационная добротность резонатора,

$$Q_r = \left(n + \frac{1}{2}\right) \left(\frac{\epsilon}{M}\right)^{2k-1} \frac{(M^2 - 1)^{1/2}}{2} \exp\{2T_p\},$$

$$T_p \equiv \left(n + \frac{1}{2}\right) (\eta_p - \text{th } \eta_p), \quad \text{ch } \eta_p \equiv \frac{M^2 a \omega_p}{c \left(n + \frac{1}{2}\right)};$$

$$Q_s = \frac{1}{2\pi} \left(n + \frac{1}{2}\right) \left(\frac{\epsilon}{M}\right)^{2k-1} (M^2 - 1) \gamma^1 (\lambda/b)^2, \quad \lambda = 2\pi c \omega_p^{-1},$$

$\epsilon$  – относительная диэлектрическая проницаемость вещества шара,  $b$  – амплитуда отклонения поверхности частицы от идеальной сферической формы ( $b \ll \lambda$ ).

Пусть частица является каплей, а величина  $b$  равна среднеквадратичной амплитуде тепловых капиллярных колебаний. В этом случае величины  $Q_r$  и  $Q_s$  сравнимы друг с другом – причем  $Q$  максимальна – при  $a$  порядка 30 мкм.

3. В капле возможна генерация света на модах "шепчущей галереи", если длина волны излучения  $\lambda$  равна  $2\pi c/\omega_p$  и

$$\frac{1}{Q} \omega_p < c \sigma \Delta, \quad \Delta \equiv \frac{\int dV \Delta N(r) E_p^2}{\int dV \epsilon E_p^2}, \quad (1)$$

где  $\sigma$  – сечение вынужденного излучения в капле,  $\Delta N(r)$  – плотность инверсной заселенности уровней,  $E_p$  – вектор напряженности электрического поля  $p$ -ой моды резонатора. Лазерная генерация наблюдалась при оптическом возбуждении капель раствора красителя радиуса  $20 \div 30$  мкм <sup>1</sup>.

4. Пусть в газовой фазе дисперсной среды происходит возбуждение метастабильных частиц и при этом между определенными электронными уровнями возникает инверсная заселенность. Распределение метастабильных частиц в газовой и жидкой фазе дисперсной среды было найдено из решения уравнений, описывающих диффузию, возбуждение и дезактивацию молекул. При  $a \approx 30$  мкм внутри капли имеем

$$\Delta N(r) = y N_g \frac{d_g}{d_l} \frac{L_l}{a} \exp \left\{ -\frac{r-a}{L_l} \right\},$$

где  $y$ ,  $N_g$  — степень электронного возбуждения и концентрация частиц в газовой фазе дисперсной среды, соответственно,  $d_g$ ,  $d_l$  — коэффициенты диффузии возбужденных частиц в газе и жидкости,  $L_l = \sqrt{d_l \tau_{ql}}$ ,  $\tau_{ql}$  — время жизни метастабильных молекул в жидкости,  $r$  — расстояние от центра капли. Если возбуждается уже существующая дисперсная среда,  $y = y_g \tau_{qd} \tau_{qg}^{-1}$ , где  $y_g$  — степень электронного возбуждения газа при отсутствии жидкой фазы и той же интенсивности возбуждения молекул,  $\tau_{qd}^{-1} = \tau_{qg}^{-1} + 4\pi a d_g N_k$ ,  $\tau_{qg}$  — время жизни метастабильных молекул в газе ( $\tau_{qg} \gg \tau_{ql}$ ),  $N_k$  — концентрация капель. Если дисперсная среда образуется при быстром введении капель в предварительно возбужденный газ,  $y = y_0 \exp \left\{ -t/\tau_{qd} \right\}$ , где  $y_0$  — начальная степень возбуждения газа.

Критерий возбуждения электромагнитных мод (1) можно записать в виде условия на  $y > y_t$ , где  $y_t$  — величина порядка  $\pi a^2 (\lambda N_g d_g \tau_{ql} \sigma Q)^{-1}$ .

Приведем характеристики лазерного излучения, которые достигаются в условиях стационарной генерации. Мощность света, излучаемого одной каплей, равна

$$P = 4\pi a d_g N_g (y - y_t) \frac{hc}{\lambda}.$$

В условиях лазерной генерации квантовый выход излучения молекул возрастает. Вследствие этого интенсивность люминесценции дисперсной среды —  $I_d$  может значительно превышать  $I_g$  — интенсивность люминесценции однородного газа.

5. В качестве примера исследуем возможность получения лазерной генерации в каплях кислорода, содержащих метастабильные молекулы  $O_2(^1\Delta)$ . На электронно-колебательном переходе  $O_2(^1\Delta, v' = 0 \rightarrow ^3\Sigma, v'' = 1)$  ( $\lambda = 1,58$  мкм) при  $y \gg 10^{-3}$ ,  $T < 300$  К существует инверсная заселенность.

Рассмотрим дисперсную среду, содержащую капли кислорода с  $a = 30$  мкм,  $T = 75$  К и массовой долей жидкой фазы, равной 0,1. Для таких капель имеем  $Q = 10^5$ , генерация света в каплях возникает, если относительное содержание  $O_2(^1\Delta)$  в газе  $y > y_t = 0,02$ .

В настоящее время получают газообразный кислород с  $y \lesssim 0,9$ . Таким образом, генерация на переходах метастабильных молекул  $O_2(^1\Delta)$  может быть получена в эксперименте. Для мощности излучений одной капли при  $y \gg y_t$  имеем  $P = 7y$  (мВт), а  $I_d/I_g \approx 10^6$ .

6. Заключение. Наличие конденсированной дисперсной фазы в возбужденном газе при определенных условиях приводит к аномальному увеличению интенсивности люминесценции метастабильных молекул вследствие лазерной генерации на модах "шелчущей галереи" в каплях-микрорезонаторах. Таким образом, существует новая возможность эффективного преобразования энергии долгоживущих электронно-возбужденных молекул в световую энергию.

#### Литература

1. Qian S.-X. et al. Science, 1986, **231**, 486.
2. Вайнштейн Л.А. Открытые резонаторы и открытые волноводы. М.: Сов. радио, 1966.
3. Басов Н.Г. и др. Труды ФИАН, 1986, **171**, 30.