

## О предельной длине усиления флуоресценции при лазерной накачке случайно-неоднородных сред

Д. А. Зимняков<sup>+\*1)</sup>, С. С. Волчков<sup>+</sup>, Л. А. Кочкуров<sup>+</sup>, А. Ф. Дорогов<sup>+</sup>

<sup>+</sup> Саратовский государственный технический университет им. Ю. А. Гагарина, 410054 Саратов, Россия

<sup>\*</sup> Институт проблем точной механики и управления РАН, 410028 Саратов, Россия

Поступила в редакцию 13 мая 2022 г.

После переработки 25 мая 2022 г.

Принята к публикации 27 мая 2022 г.

Представлены результаты исследований эффекта насыщения спектрального качества флуоресцентного отклика случайно-неоднородных сред при внешней лазерной накачке с интенсивностями выше порога стохастической лазерной генерации в среде. Установлено, что насыщение спектрального качества флуоресценции обусловлено убыванием длины усиления флуоресценции в среде до предельного значения, определяемого средним размером ассоциируемых с лазерными спеклами локальных эмиттеров флуоресценции и фактором радиационного обмена между эмиттерами.

DOI: 10.31857/S1234567822140014, EDN: ixpebm

В 1967 году В. С. Летохов рассмотрел эффект генерации излучения в случайно-неоднородных средах с отрицательным резонансным поглощением [1]. Продолжительное время эта работа оставалась невосребованной, однако 1990-х гг. начался бум в исследованиях безрезонаторных лазерных систем на основе случайно-неоднородных сред [2–18]. Наблюдаемое в подобных средах сужение спектра флуоресценции имеет в зависимости от интенсивности внешней накачки  $I_p$  пороговый характер и интерпретируется как переход от режима спонтанной флуоресценции к стохастической лазерной генерации (*random lasing*, в дальнейшем СЛГ). Помимо порогового характера зависимости полуширины спектра флуоресценции от  $I_p$ , характерной особенностью СЛГ является практическое отсутствие влияния  $I_p$  на полуширину спектра эмиссии в запороговом режиме. Кроме того, предельные значения фактора спектрального качества флуоресценции  $Q_{sp} = \Delta\lambda_{f,\max}/\Delta\lambda_{f,\min}$  для различных систем на основе комбинаций рассеивающих сред с флуорофорами имеют достаточно близкие значения в интервале от  $\approx 5$  до  $\approx 10$  [2, 4, 14, 15, 18] ( $\Delta\lambda_{f,\max}, \Delta\lambda_{f,\min}$  – полуширины спектров в спонтанном режиме и при значениях  $I_p$ , существенно превышающих порог СЛГ, условно определяемый при  $Q_{sp} = 2$ ). Механизм насыщения  $Q_{sp}$  и близости насыщенных значений  $Q_{sp}$  для различных систем неочевиден, несмотря на значительное число работ, посвященных различным аспектам СЛГ.

Обычно при описании распространения лазерного света и флуоресцентного излучения в случайно-неоднородных средах применяется диффузионное приближение [7, 8, 13], не позволяющее учесть эффект стохастической интерференции парциальных составляющих светового поля накачки. Как правило, в экспериментах по возбуждению СЛГ длина когерентности накачки существенно превышает характерный масштаб распространения излучения в среде. В результате имеет место спекл-модуляция поля накачки, оказывающая влияние на пространственное распределение локальных значений плотности энергии лазерного излучения и флуоресцентного отклика в накачиваемом объеме. В [18] рассмотрено влияние спекл-модуляции накачки, приводящей к возникновению в среде во время действия импульса накачки стохастического ансамбля локальных эмиттеров, ассоциируемых с лазерными спеклами. В сильно рассеивающих средах, характеризующихся диффузионным режимом распространения лазерного излучения, средний размер лазерных спеклов  $\langle d \rangle \leq \lambda_p$ , где  $\lambda_p$  – длина волны накачки. Критерий  $\langle d \rangle \leq \lambda_p$  согласуется с проведенной в [18] оценкой характерного размера локальных эмиттеров на основе сопоставления типичных значений фактора Парселла [19] и параметра  $\bar{\lambda}_f/\Delta\lambda_{f,\min}$  для флуоресцирующих случайно-неоднородных сред при высоких уровнях  $I_p$ . В [18] показано, что к числу ключевых факторов, определяющих флуоресцентный отклик среды в зависимости от  $I_p$ , является усредненное по

<sup>1)</sup>e-mail: zimnykov@mail.ru

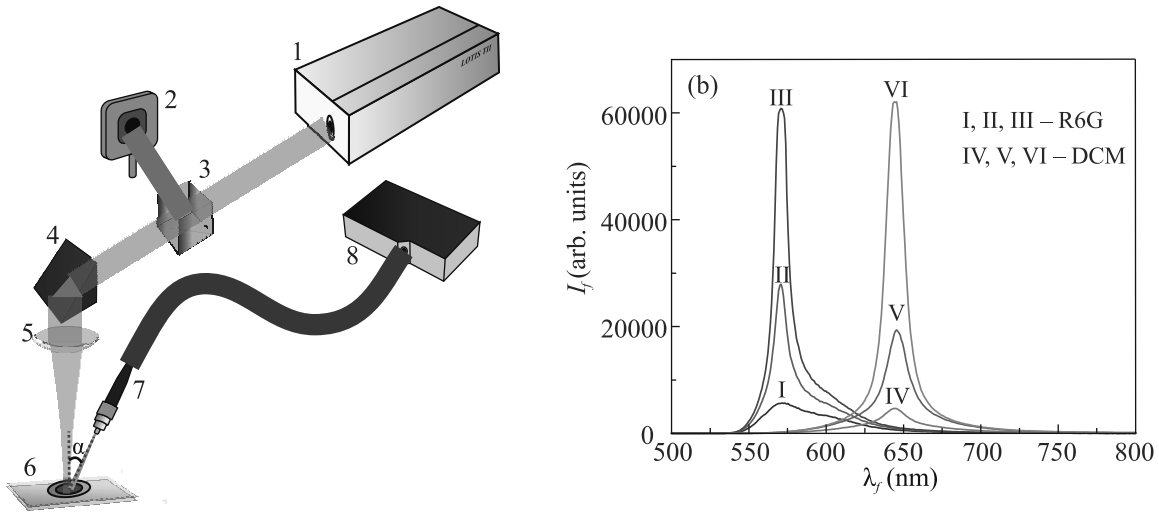


Рис. 1а. (Цветной онлайн) (а) – Схема экспериментальной установки: 1 – лазер; 2 – измеритель энергии лазерного излучения; 3 – светоделитель; 4 – поворотная призма; 5 – собирающая линза (фокусное расстояние  $F = 150$  мм); 6 – контейнер с образцом; 7 – волоконно-оптический патчкорд ( $\alpha \approx 20^\circ$ ); 8 – спектрометр. (б) – Спектры флуоресценции исследуемых слоев  $\text{TiO}_2$ , насыщенных раствором R6G (I, II, III) и DCM (IV, V, VI) при возбуждении на 532 нм; I –  $I_p = 1.0 \cdot 10^6$  Вт/см<sup>2</sup>; II –  $I_p = 2.6 \cdot 10^7$  Вт/см<sup>2</sup>; III –  $I_p = 3.9 \cdot 10^7$  Вт/см<sup>2</sup>; IV –  $I_p = 2.2 \cdot 10^7$  Вт/см<sup>2</sup>; V –  $I_p = 1.0 \cdot 10^8$  Вт/см<sup>2</sup>; VI –  $I_p = 1.8 \cdot 10^8$  Вт/см<sup>2</sup>

ансамблю сечение радиационных потерь локальных эмиттеров.

Целью работы явилась интерпретация общего для систем “рассеивающая среда-флуорофор” эффекта насыщения фактора спектрального качества на основе моделирования предельных состояний ансамблей локальных эмиттеров флуоресценции при больших  $I_p$  и сопоставления результатов моделирования с экспериментальными данными.

Экспериментальные исследования влияния  $I_p$  на  $Q_{sp}$  проводились по традиционной схеме исследования СЛГ (рис. 1а; см., например, [2, 15, 18]). Накачка образцов осуществлялась сфокусированным лазерным пучком (лазер Lotis ТП LS-2145 (1),  $\lambda_p = 532$  нм, длительность импульса  $\tau_i = 10$  нс, частота повторения импульсов 10 Гц, энергия импульсов  $E_p$  – от 0.02 до 20 мДж). Контроль энергии импульсов накачки осуществлялся с помощью светоделителя (3) и измерителя энергии лазерного излучения Gentec Maestro (2). Перед началом измерений была проведена предварительная калибровка с целью установления соответствия между показаниями измерителя (2) и значениями энергии импульсов в зоне воздействия. Флуоресцентный отклик регистрировался с помощью волоконно-оптического патчкорда ((7), Ocean Optics P200-5-UV-VIS), входной торец которого располагался на расстоянии  $\approx 50$  мм от зоны воздействия. Выходной торец патчкорда был подключен к спектрометру Ocean Optics QE65000 (8). Регистра-

ция спектров флуоресценции была синхронизирована с накачкой, производимой пакетами из 5 лазерных импульсов (с целью исключения фотодегradации образцов, имеющей место при длительных воздействиях), и осуществлялась с временем накопления спектрометра, равным 500 мс.

В качестве образцов использовались слои плотноупакованных полидисперсных наночастиц анатаза (продукт # 637254 от Sigma Aldrich Inc., средний диаметр не более 25 нм), насыщенные растворами лазерных красителей (родамин 6Ж (R6G) и 4-дицианометил-2-метил-6-[4-(ди-метиламино)-стирил]-4Н-пиран (DCM)) в этаноле. Толщина слоев составляла  $\approx (0.94 \pm 0.04)$  мм; объемная доля частиц в слоях, определенная с помощью массовомерных измерений, составляла  $\approx (0.22 \pm 0.02)$ . Слои находились в цилиндрических контейнерах с внутренним диаметром 20 мм и высотой 1.5 мм, расположенных на стеклянных подложках. Перед началом экспериментов были проведены измерения транспортных длин  $l^*$  [20] распространения излучения в слоях для длин волн  $\lambda_p = 532$  нм (накачка),  $\bar{\lambda}_{f,R6G} \approx 597$  нм и  $\bar{\lambda}_{f,DCM} \approx 675$  нм (средние длины волн флуоресценции), а также длин поглощения  $l_a = (\mu_a)^{-1}$  излучения накачки растворами красителей. Значения  $l_{532}^* \approx (2.50 \pm 0.20)$  мкм,  $l_{597}^* \approx (2.85 \pm 0.20)$  мкм и  $l_{675}^* \approx (3.20 \pm 0.25)$  мкм были определены на основе измерений коэффициентов диффузного пропускания слоев по методике,

описанной в [18]. Значения длины поглощения  $l_a$  на 532 нм определялись путем измерений коллимированного пропускания растворов красителей с различной молярной концентрацией в кюветах различной толщины. Исходя из полученных данных, были выбраны молярные концентрации, обеспечивающие близкие значения  $l_a$  для исследуемых образцов. Соответственно, они составили  $c_{R6G} \approx 3.4 \cdot 10^{-3}$  М и  $c_{DCM} \approx 6.1 \cdot 10^{-2}$  М, что обеспечивало значения  $l_{a,DCM} \approx (45.0 \pm 4.0)$  мкм и  $l_{a,R6G} \approx (53.0 \pm 5.0)$  мкм для  $\lambda_p = 532$  нм.

Исходя из более высокого порога СЛГ для DCM-насыщенных образцов, они располагались вблизи плоскости перетяжки сфокусированного пучка; при этом диаметр зоны воздействия, предварительно оцененный путем поперечного сканирования зоны воздействия без образца ножом Фуко с одновременным измерением энергии прошедшего излучения, составил  $d_p \approx 100$  мкм. R6G-насыщенные образцы, характеризующиеся значительно меньшим порогом, располагались в сходящемся пучке вне зоны перетяжки; при этом  $d_p \approx 1000$  мкм. Интенсивность накачки определялась на основе измерений энергии лазерных импульсов как  $I_p \approx 4E_p/\pi d_p^2 \tau_i$ . В ходе экспериментов после каждого цикла воздействия из 5 импульсов образцы сдвигались в поперечном направлении на величину, превышающую  $d_p$  (с целью дополнительной минимизации влияния фотодеградации). На рисунке 1b выборочно представлены спектры флуоресценции образцов при различных уровнях накачки; интенсивность флуоресценции выражена в показаниях спектрометра. Соответствующий накачке пик на 532 нм исключен.

На рисунке 2 представлены восстановленные из спектров флуоресценции зависимости  $Q_{sp}$  от  $I_p$  для исследуемых образцов, используемые для сопоставления с данными моделирования. Маркеры соответствуют значениям  $Q_{sp}$ , усредненным по группам из 5 спектров, каждый из которых получен при фиксированной  $E_p$  при различных положениях образцов в поперечной плоскости.

В [18] предложена кинетическая модель формирования усредненного по спектру флуоресцентного отклика  $\langle I_f(t) \rangle_\lambda$  для ассоциируемого с лазерным спеклом локального эмиттера в накачиваемой случайно-неоднородной среде:

$$\frac{df}{dt} = \frac{\sigma_a}{h\nu_p} I_p(t) \{1 - f\} - \frac{\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda f + \frac{\langle \sigma_{sa} \rangle_\lambda}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda \{1 - f\} - \delta f, \quad (1)$$

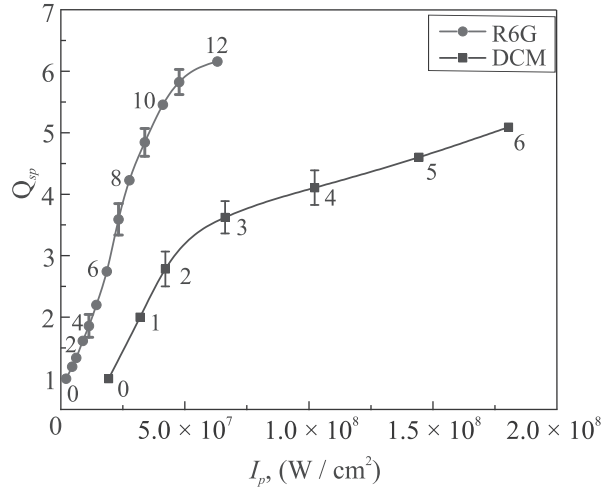


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости фактора спектрального качества флуоресценции от интенсивности накачки для исследуемых образцов. Красная кривая – R6G-насыщенный слой; синяя кривая – DCM-насыщенный слой. Выборочно показанные доверительные интервалы соответствуют уровню значимости 0.9

$$\frac{d\langle I_f(t) \rangle_\lambda}{dt} = \left\{ \frac{\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda f + \delta f - \frac{\langle \sigma_{sa} \rangle_\lambda}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda \{1 - f\} - \frac{\sigma_{rad}}{\langle h\nu_f \rangle_\lambda} \langle I_f(t) \rangle_\lambda \right\} n_0 \langle h\nu_f \rangle_\lambda v, \quad (2)$$

где  $\sigma_a$  – сечение поглощения молекулы флуорофора,  $h\nu_p$  – энергия кванта накачки,  $f$  – населенность возбужденного состояния молекул флуорофора,  $\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda$ ,  $\langle h\nu_f \rangle_\lambda$ ,  $\langle \sigma_{sa} \rangle_\lambda$  – усредненные по спектру сечение индуцированного излучения молекул флуорофора, энергия кванта и сечение самопоглощения флуоресценции,  $\delta$  – скорость спонтанной релаксации возбужденного состояния молекул флуорофора,  $\sigma_{rad}$  – сечение радиационных потерь локального эмиттера,  $n_0$  – концентрация молекул флуорофора в среде,  $v$  – скорость света в среде. Рассмотренная в [18] феноменологическая модель радиационных потерь для единичного локального эмиттера сферической формы основана на следующих предположениях: в произвольно выбранный момент времени находящиеся в объеме эмиттера кванты флуоресценции распределены в объеме эмиттера диаметром  $\langle d \rangle$  с объемной плотностью  $\tilde{N}_f$ ; плотность квантов вне эмиттера равна 0; направления распространения квантов в эмиттере равномерно распределены в телесном угле  $4\pi$ ; распространение квантов на расстояниях, существенно меньших  $l^*$ , является баллистическим. Скорость изменения  $\tilde{N}_f$  вследствие излуче-

ния части квантов из эмиттера определяется отношением потока квантов через границу эмиттера к его объему  $V_{em}$ :  $(d\tilde{N}_f/dt)_{rad} = -3\tilde{N}_f v/2\langle d \rangle$ . Рассматривая вклад  $(d\tilde{N}_f/dt)_{rad}$  в кинетику изменения  $\langle I_f \rangle_\lambda$ , можно получить следующее выражение для сечения радиационных потерь единичного локального эмиттера без учета притока квантов из других эмиттеров (оценка сечения радиационных потерь сверху) [18]:  $\sigma_{rad}^{max} = 3/2n_0\langle d \rangle$ . Приток квантов из других эмиттеров приводит к существенному уменьшению  $\sigma_{rad}$  в сравнении с  $\sigma_{rad}^{max}$ , что может быть учтено введением фактора радиационного обмена  $0 < K \ll 1$  [21]:  $\langle \sigma_{rad} \rangle = K/n_0\langle d \rangle$ .

Качественный анализ представленных в литературе спектров поглощения и флуоресценции различных лазерных красителей (в том числе R6G и DCM) позволяет предположить, что вклад самопоглощения ( $\langle \sigma_{sa} \rangle_\lambda$ ) в кинетику формирования флуоресцентного отклика мал по сравнению с процессами возбуждения центров флуоресценции ( $\sigma_a$ ), спонтанного ( $\delta$ ) и вынужденного ( $\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda$ ) излучения. Оценка модельных параметров для исследуемых образцов производилась на основе результатов измерений  $l_a$  и литературных данных о кинетике затухания спонтанной флуоресценции для R6G и DCM [22, 23]; значения  $\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda$  вычислялись по полученным спектрам флуоресценции с использованием подхода, описанного в [18]. В результате получены следующие значения:  $\sigma_{a,DCM} \approx (6.0 \pm 0.5) \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$ ,  $\sigma_{a,R6G} \approx (9.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-17} \text{ см}^2$ ,  $\langle \sigma_{st} \rangle_{\lambda,R6G} \approx (2.8 \pm 0.3) \times 10^{-16} \text{ см}^2$ ,  $\langle \sigma_{st} \rangle_{\lambda,DCM} \approx (1.1 \pm 0.1) \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$ ,  $\delta_{R6G} \approx (2.6 \pm 0.2) \cdot 10^8 \text{ с}$ ,  $\delta_{DCM} \approx (1.0 \pm 0.1) \cdot 10^9 \text{ с}$ . Отметим значительно меньшую эффективность накачки возбужденного состояния и существенно большие скорости спонтанной и индуцированной излучательной рекомбинации для молекул DCM в сравнении с молекулами R6G.

Численное моделирование флуоресцентного отклика R6G- и DCM-насыщенных слоев при накачке прямоугольными импульсами лазерного излучения с длительностью 10 нс показывает, что при  $I_p \geq 1 \times 10^6 \text{ Вт/см}^2$  характерные времена выхода флуоресцентного отклика в стационарное состояние ( $df/dt = 0$ ,  $d\langle I_f(t) \rangle_\lambda/dt = 0$ ) существенно меньше длительности импульса накачки. Соответственно, система (1), (2) при пренебрежимо малом самопоглощении флуоресценции сводится к системе двух уравнений:

$$\langle I_f \rangle_\lambda = \frac{\delta f \langle h\nu_f \rangle_\lambda}{\langle \sigma_{rad} \rangle - \langle \sigma_{st} \rangle_\lambda f},$$

$$\langle I_f \rangle_\lambda = \left( \frac{\sigma_a}{h\nu_p} I_p \{1 - f\} - \delta f \right) \frac{\langle h\nu_f \rangle_\lambda}{\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda f}. \quad (3)$$

Анализ системы (3) показывает, что с ростом амплитуды импульса накачки  $I_p$  населенность  $f$  стремится к предельному значению  $f_{ext} = \langle \sigma_{rad} \rangle / \langle \sigma_{st} \rangle_\lambda$ . Исходя из значительно большей величины  $\langle \sigma_{st} \rangle_\lambda$  в случае DCM, следует ожидать существенно меньшее предельное значение  $f_{ext}$  для DCM-насыщенного слоя в сравнении с R6G-насыщенным слоем.

Приводящий к сужению спектра эффект усиления флуоресценции может быть рассмотрен на основе анализа вероятностей реализации последовательностей актов индуцированного излучения квантов флуоресценции при их распространении в накачиваемой среде. Обсуждаемая модель усиления флуоресценции иллюстрируется рис. 3. Исходя из предполо-

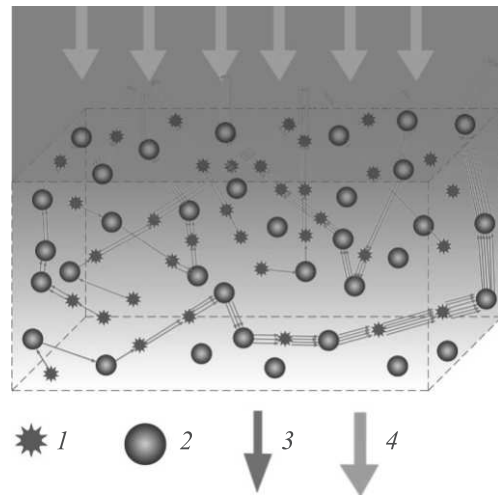


Рис. 3. (Цветной онлайн) Отображение рассматриваемой вероятностной модели усиления флуоресценции в накачиваемой случайно-неоднородной среде; 1 – возбужденные молекулы флуорофора; 2 – рассеиватели (наночастицы анатаза); 3 – флуоресценция; 4 – накачка

жения о статистической независимости актов индуцированного излучения при распространении пакета квантов, плотность условной вероятности регистрации пакета из  $n + 1$  квантов, соответствующих длине волны  $\lambda_f$  может быть представлена как:

$$\tilde{p}_{n+1}(\lambda_f) = p_{sp}(\lambda_f) p_{st}^n(\lambda_f), \quad (4)$$

где  $p_{sp}(\lambda_f)$  и  $p_{st}(\lambda_f)$  – плотности безусловных вероятностей спонтанного и индуцированного излучения квантов. Для пакета квантов, распространившегося в среде на расстояние  $s$ , число актов индуцированного излучения может быть оценено как  $n \approx s/l_{st}$ , где  $l_{st} \approx (\sigma_{st} n_0 f)^{-1}$  – характерная длина усиления флуоресценции. Плотность безусловной вероятности обнаружения пакета  $n + 1$  квантов для длины волны  $\lambda_f$  среди аналогичных пакетов, соответствующих

другим длинам волн, может быть получена из условия нормировки:

$$p_{n+1}(\lambda_f) = \frac{\tilde{p}_{n+1}(\lambda_f)}{\int_0^\infty \tilde{p}_{n+1}(\lambda_f) d\lambda_f}. \quad (5)$$

Плотности вероятности единичных актов  $p_{sp}(\lambda_f)$  и  $p_{st}(\lambda_f)$  могут быть выражены через спектральную плотность спонтанной флуоресценции  $S_{sp}(\lambda_f) = S(\lambda_f, I_p \rightarrow 0)$ :

$$p_{sp}(\lambda_f) = \frac{(S_{sp}(\lambda_f)/(hc/\lambda_f))}{\int_0^\infty (S_{sp}(\lambda_f)/(hc/\lambda_f)) d\lambda_f} = \frac{\lambda_f S_{sp}(\lambda_f)}{\int_0^\infty \lambda_f S_{sp}(\lambda_f) d\lambda_f},$$

$$p_{sp}(\lambda_f) \approx \Psi p_{st}(\lambda_f). \quad (6)$$

Здесь введен коэффициент пропорциональности  $\Psi$  между значениями плотности вероятности актов спонтанной и индуцированной эмиссии; в результате нормировки (5) этот коэффициент исключается из рассмотрения. Таким образом,

$$p_{n+1}(\lambda) = \frac{\left\{ \lambda S_{sp}(\lambda) / \int_0^\infty \lambda S_{sp}(\lambda) d\lambda \right\}^{n+1}}{\int_0^\infty \left\{ \lambda' S_{sp}(\lambda') / \int_0^\infty \lambda S_{sp}(\lambda) d\lambda \right\}^{n+1} d\lambda'} =$$

$$= \frac{\{\lambda S_{sp}(\lambda)\}^{n+1}}{\int_0^\infty \{\lambda' S_{sp}(\lambda')\}^{n+1} d\lambda'}. \quad (7)$$

Вклад пакетов, состоящих из  $n + 1$  квантов, в нормированную спектральную плотность флуоресцентного отклика на длине волны  $\lambda_f$  может быть представлен как

$$\tilde{S}_{n+1}(\lambda) = \frac{S_{n+1}(\lambda)}{\int_0^\infty S_{n+1}(\lambda) d\lambda} = \left( \frac{1}{\lambda} \right) \cdot p_{n+1}(\lambda) =$$

$$= \left( \frac{1}{\lambda} \right) \cdot \frac{\{\lambda S_{sp}(\lambda)\}^{n+1}}{\int_0^\infty \{\lambda' S_{sp}(\lambda')\}^{n+1} d\lambda'}. \quad (8)$$

Нормированная спектральная плотность флуоресцентного отклика может быть представлена как:

$$\tilde{S}(\lambda) = \sum_{n=0}^\infty \tilde{S}_{n+1}(\lambda) p_s(n+1), \quad \sum_{n=0}^\infty p_s(n) = 1. \quad (9)$$

Здесь  $p_s(n)$  – вероятность обнаружения пакетов из  $n$  квантов в регистрируемом отклике. Переходя от дискретного описания статистики парциальных составляющих флуоресцентного поля в среде к непрерывному (см., например, [24]) и вводя в рассмотрение функцию плотности вероятности путей парциальных

составляющих флуоресцентного отклика  $\rho(s)$ , преобразуем (9) к следующей форме:

$$\tilde{S}(\lambda) = \int_0^\infty \tilde{S}_{s/l_{st}+1}(\lambda) \rho(s) ds; \quad \int_0^\infty \rho(s) ds = 1, \quad (10)$$

где индекс  $s/l_{st} + 1 \leftrightarrow n + 1$  принимает нецелые значения.

С использованием (8) и (10) было проведено моделирование влияния  $l^*$  и  $l_{st}$  на  $Q_{sp}$  для исследуемых образцов. Перенос излучения накачки и флуоресценции в слоях моделировался с использованием метода Монте-Карло; применялся алгоритм моделирования, аналогичный описанному в [24]. На первом этапе воспроизводились пространственные распределения плотности потока энергии накачки и концентрации возбужденных молекул флуорофоров в слоях в стационарном режиме. Характер рассеяния в слоях полагался изотропным. При моделировании учитывалась геометрия накачки слоев; в качестве параметров моделируемых систем использовались  $l_{a,DCM}$ ,  $l_{a,R6G}$  для  $\lambda_p = 532$  нм, а значения транспортной длины  $l^*$  являлись варьируемым параметром. Полное число генерируемых элементарных источников флуоресценции (возбужденных молекул) принималось равным  $10^7$ .

На втором этапе для полученных распределений элементарных источников флуоресценции моделировались случайные блуждания квантов флуоресценции в слоях и генерировались выборочные функции плотности вероятности  $\rho(s)$  для различных  $l^*$ . Для полученных функций  $\rho(s)$  в соответствии с (8), (10) для различных значений  $l_{st}$  рассчитывались нормированные спектры флуоресценции  $\tilde{S}(\lambda)$  и значения  $Q_{sp}$ .

На рисунке 4 приведены цветовые карты модельных  $Q_{sp}$ -состояний флуоресцирующих слоев в координатах  $(l^*, l_{st})$ , на которых также представлены линии эволюции исследуемых образцов при возрастании  $I_p$ , восстановленные по эмпирическим зависимостям рис. 2. При отображении линий значения  $l^*$  полагались не зависящими от  $I_p$ , поскольку  $l^* \ll \ll l_{a,DCM}, l_{a,R6G}$ , а возрастание  $I_p$  должно приводить к росту  $l_a$ . Пунктирные линии соответствуют  $Q_{sp} = 2$  (порогу СЛГ).

Ключевым результатом является близость предельных значений  $l_{st}$  для DCM-и R6G-насыщенных слоев, соответствующих сгущениям отображающих точек на линиях эволюции. Несмотря на существенные различия эмиссионных свойств флуорофоров и ожидаемых предельных значений  $f_{ext} = \langle \sigma_{rad} \rangle / \langle \sigma_{st} \rangle \lambda$ , близость предельных величин

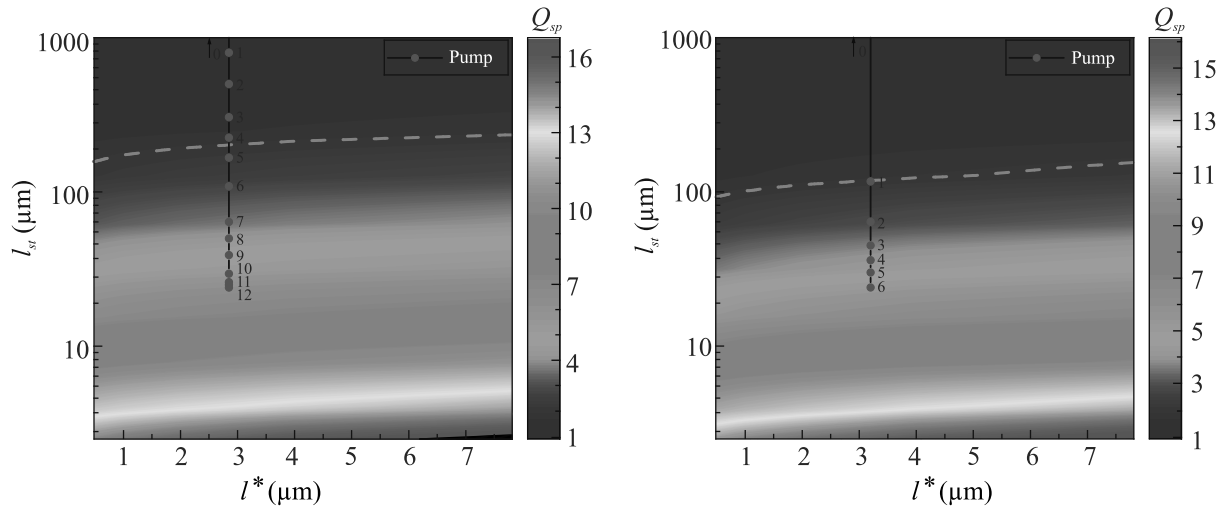


Рис. 4. (Цветной онлайн) Карты моделируемых  $Q_{sp}$ -состояний накачиваемых случайно-неоднородных слоев и эволюционные линии, соответствующие исследованным образцам при различных уровнях накачки (нумерация отображающих точек на эволюционных линиях соответствует рис. 2). (a) – R6G-насыщенный слой; (b) – DCM-насыщенный слой

$l_{st,DCM} \approx l_{st,R6G} \approx 24$  мкм обусловлена тем, что по мере приближения к предельному состоянию систем с ростом  $I_p$  длина усиления  $l_{st} \rightarrow \langle d \rangle / K$  становится зависимой только от характерного размера ассоциируемых со спеклами локальных эмиттеров и фактора радиационного обмена между ними (т.е. от структурных свойств спекл-поля, модулирующего излучение накачки). Отметим, что значение  $\langle d \rangle$  может быть оценено как средний размер спеклов в сильно рассеивающей среде:  $\langle d \rangle \propto \lambda_p / n_r \Omega$ , где  $\Omega$  – ширина углового спектра плотности потока излучения [25],  $n_r$  – эффективный показатель преломления среды. Учитывая близкий к изотропному характер углового спектра плотности потока излучения для исследуемых образцов и принимая во внимание, что  $n_r$  для исследуемых слоев составляет приблизительно  $1.5 \div 1.6$  [18], получим приближенную оценку  $\langle d \rangle$  для  $\lambda_p = 532$  нм как  $\approx (0.07 \div 0.10)$  мкм. Фактор радиационного обмена  $K$  может быть приближенно оценен как  $0.002 \div 0.004$  [21]. Таким образом, подобные весьма приближенные оценки предельной длины усиления находятся в интервале от  $\approx 17$  мкм до  $\approx 50$  мкм и удовлетворительно согласуются с результатами проведенного анализа.

Таким образом, в работе рассмотрены ранее не исследованные особенности перехода в предельное состояние спектрального качества флуоресцентного отклика случайно-неоднородных сред при росте уровня лазерной накачки. Путем сопоставления экспериментальных данных и результатов моделирования установлено, что переход обусловлен достижением насыщенного состояния по населенности возбужденного состояния молекул флуорофора в среде. Это

приводит к уменьшению характерной длины усиления флуоресценции в среде до предельного значения, не зависящего от свойств флуорофора, а определяемого средним размером локальных эмиттеров, ассоциируемых со спеклами поля накачки, и фактором радиационного обмена между эмиттерами.

Данная работа поддержана грантом Российского научного фонда # 22-29-00612.

1. В. С. Летохов, ЖЭТФ **53**(4), 1442 (1967) [V. S. Letokhov, Sov. Phys. JETP **26**(4), 835 (1968)].
2. N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, and E. Sauvain, Nature **368**(6470), 436 (1994).
3. D. S. Wiersma and A. Lagendijk, Phys. Rev. E **54**(4), 4256 (1996).
4. K. Totsuka, G. van Soest, T. Ito, A. Lagendijk, and M. Tomita, J. Appl. Phys. **87**(11), 7623 (2000).
5. G. van Soest, M. Tomita, and A. Lagendijk, Opt. Lett. **24**(5), 306 (1999).
6. H. Cao, J. Y. Xu, D. Z. Zhang, S.-H. Chan, S. T. Ho, E. W. Seelig, S. Liu, and R. P. H. Chang, Phys. Rev. Lett. **84**(24), 5584 (2000).
7. G. van Soest, F. J. Poelwijk, R. Sprik, and A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett. **86**(8), 1522 (2001).
8. G. van Soest and A. Lagendijk, Phys. Rev. E **65**(4), 047601 (2002).
9. X. H. Wu, A. Yamilov, H. Noh, H. Cao, E. W. Seelig, and R. P. H. Chang, J. Opt. Soc. Am. B **21**(1), 159 (2004).
10. M. A. Noginov, J. Novak, D. Grigsby, G. Zhu, and M. Bahoura, Opt. Express **13**(22), 8829 (2005).
11. K. L. van der Molen, A. P. Mosk, and A. Lagendijk, Opt. Commun. **278**(1), 110 (2007).

12. D. S. Wiersma, *Nat. Phys.* **4**(5), 359 (2008).
13. S. García-Revilla, J. Fernández, M. A. Illarramendi, B. García-Ramiro, R. Balda, H. Cui, M. Zayat, and D. Levy, *Opt. Express* **16**(16), 12251 (2008).
14. R. G. S. El-Dardiry, A. P. Mosk, and A. Lagendijk, *Opt. Lett.* **35**(18), 3063 (2010).
15. R. G. S. El-Dardiry and A. Lagendijk, *Appl. Phys. Lett.* **98**(16), 161106 (2011).
16. F. Luan, B. Gua, A. S. L. Gomes, K. T. Yong, S. Wen, and P. N. Prasad, *Nano Today* **10**(2), 168 (2015).
17. G. Weng, J. Tian, S. Chen, J. Xue, J. Yan, X. Hu, S. Chen, Z. Zhu, and J. Chua, *Nanoscale* **11**(22), 10636 (2019).
18. D. A. Zimnyakov, S. S. Volchkov, L. A. Kochkurov, V. I. Kochubey, A. G. Melnikov, and G. V. Melnikov, *Opt. Express* **29**(2), 2309 (2021).
19. E. M. Purcell, *Phys. Rev.* **69**(11–12), 681 (1946).
20. A. Ishimaru, *Wave propagation and scattering in random media*, Academic press, N.Y. (1978).
21. D. A. Zimnyakov, S. S. Volchkov, L. A. Kochkurov, A. F. Dorogov, A. S. Tokarev, A. A. Nikiforov, and N. S. Markova, *Izvestiya of Sarat. Univ. Physics* **21**(2), 145 (2021).
22. A. Penzkofer and Y. Lu, *Chem. Phys.* **103**(2–3), 399 (1986).
23. M. Meyer, J. C. Mialocq, and M. Rougee, *Chem. Phys. Lett.* **150**(5), 484 (1988).
24. D. A. Zimnyakov, S. A. Yuvchenko, M. V. Pavlova, and M. V. Alonova, *Opt. Express*, **25**(13), 13953 (2017).
25. А. П. Иванов, И. Л. Кацев, *Квантовая электроника* **35**(7), 670 (2005) [A. P. Ivanov and I. L. Katsev, *Quantum Electron.* **35**(7), 670 (2005)].