

Теоретическое описание спектра излучения из капли раствора родамина 6Ж в этаноле при фемтосекундном лазерном воздействии

А.Д. Булыгин, А.А. Землянов, Ал.А. Землянов*

*Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1*

Поступила в редакцию 4.04.2011 г.

На основе численного решения уравнений для спектральной плотности светового поля, сформулированных авторами, были объяснены спектральные особенности стока излучения из капли этанола с раствором Р6Ж при фемтосекундном лазерном воздействии. Установление соответствия между рассматриваемой моделью формирования спектров и экспериментальными данными возможно лишь при учете пространственной неоднородности возбужденного вещества в фокусе капли.

Ключевые слова: фемтосекундное лазерное излучение, суперфлуоресценция, многофотонное поглощение; femtosecond laser radiation, superfluorescence, multiphoton absorption.

Введение

Экспериментальным исследованиям характеристик стока излучения растворов красителей при фемтосекундном лазерном облучении был посвящен ряд работ [1–5]. При этом для достаточно высоких концентраций красителя и геометрии эксперимента, обеспечивающего фокусировку излучения за счет обычной линзы [1] или за счет эффектов фокусировки в капле [2], была обнаружена спектральная особенность излучения. Особенность взаимодействия капли из диэлектрического слабо поглощающего вещества с излучением обусловлена тем, что капля, действуя, как фокусирующая линза, в то же время является открытым сферическим резонатором. Эти свойства капли обуславливают особенности формирования углового, временного и спектрального излучения даже из чистой капли. Эти же свойства капли могут также обеспечить существенное снижение порогов проявления различных нелинейных эффектов, таких как вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР) [6–8], что может быть использовано для повышения чувствительности методов диагностики химического состава капель и представляет несомненный интерес для мониторинга окружающей среды, являющегося важным разделом атмосферной оптики.

Вместе с тем, несмотря на указанные важные прикладные аспекты, регулярных методов исследования спектров вещества при различных нелинейных механизмах взаимодействия с веществом в нестационарном случае на данный момент в имеющихся

публикациях не представлено. Исходя из этого, построение математической модели нестационарного взаимодействия особенно важно в свете последних достижений в области создания ультракоротких световых импульсов [9].

В связи с этим авторами была предложена система уравнений для спектральной плотности стока излучения вещества из капли, описывающая формирование спектра во времени при взаимодействии вещества капли с фемтосекундным лазерным импульсом [3]. Данные уравнения прошли апробацию на задаче о качественном теоретическом объяснении спектральной особенности стока излучения родамина 6Ж из капли этанола после воздействия на нее фемтосекундного лазерного импульса [3].

Эта особенность в случае эксперимента с миллиметровой каплей [2] (радиус капли 2 мм) проявляется в образовании пика в синей части спектра стока излучения на длине волны $\lambda = 585$ нм наряду со спектром спонтанного излучения из капли, имеющего пик на длине волны $\lambda = 605$ нм. Зависимость величины этих спектральных пиков от энергии лазерного излучения растет по квадратичному закону, что обусловлено двухфотонным механизмом поглощения, вплоть до достижения энергией лазерного излучения некоторых характерных значений.

При дальнейшем увеличении энергии зависимость величин пиков от энергии меняется: красный пик перестает расти, в то время как синий пик растет в зависимости от энергии, которая может быть аппроксимирована шестой степенью [2]. Такой сильный рост сигнала от светящейся капли в узком спектральном диапазоне в области синей части спектра флуоресценции красителя может свиде-

* Андрей Дмитриевич Булыгин (b.a.d@iao.ru); Александр Анатольевич Землянов (zaa@iao.ru); Алексей Анатольевич Землянов (zeml16@mail.ru).

тельствовать о развитии процесса вынужденной флуоресценции или, другими словами, суперфлуоресценции в объеме капли [2, 3].

Сделаем некоторые замечания относительно используемой терминологии. Термин «суперфлуоресценция» введен еще в 1954 г. [10] и широко распространен в англоязычной литературе [11]. При переводе на русский язык для обозначения соответствующего явления употребляется также термин «суперизлучение» [12]. Процесс суперфлуоресценции, или суперизлучения, находясь в развитом режиме, является когерентным, коротким во времени излучением, по величине интенсивности пропорциональным квадрату числа молекул в единице объема N^2 . Однако на своем начальном этапе развития этот процесс является некогерентным и называется усиленным спонтанным излучением (ASE-SASE) [13]. В этом случае величина интенсивности пропорциональна N и лишь при выполнении некоторых условий, сформулированных в работе [14] в виде сильных неравенств, изучаемый процесс развивается в когерентный.

А если эти неравенства выполняются слабо, или среда является пространственно неоднородной, то различие процесса на суперфлуоресценцию и усиленную спонтанную флуоресценцию не всегда возможно, поэтому в общем случае авторам представляется целесообразным использование термина «суперфлуоресценции» в широком смысле, подразумевая под этим, что мы не будем разделять процесс на когерентную и некогерентную составляющие. Именно в таком широком смысле мы будем использовать термин «суперфлуоресценция», как это делалось в работах [2, 14].

Отметим также, что термин «суперфлуоресценция» естествен в том смысле, что это явление есть частный случай суперлюминесценции, когда излучение реализуется по «разрешенному» каналу, т.е. при излучении света, сопровождающегося возвращением спаренного электрона из возбужденного уровня на более низкую орбиталь. Теоретическое описание этого явления, данное в работе [12], не позволяет количественно описать экспериментальную ситуацию [2], в которой исследовались особенности формы спектра излучения, а не только энергетические характеристики стокова излучения.

Некоторые качественные оценки порога развития суперфлуоресценции были приведены в работе [3]. Однако в связи с необходимостью дальнейшего теоретического исследования, обусловленного в том числе рядом экспериментов, проведенных в последнее время [15, 16] в этом направлении, требуется установить наиболее полное соответствие между математической моделью, предложенной авторами [3] для процесса суперфлуоресценции, и данными, полученными в эксперименте [2]. В настоящей статье представлено численное решение уравнений для спектральной плотности светового поля и населенностей энергетических уровней молекул флуорофора, помещенных в каплю этанола, при их возбуждении фемтосекундным лазерным импульсом.

Основные соотношения и формулировка модели

При интерпретации экспериментальных данных для спектральных характеристик стокова светового поля необходимо выразить измеряемую в эксперименте [2] величину спектральной плотности светового поля, усредненную за время излучения молекул из капли, через стохастические поля $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$, $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$, входящие в квантовые уравнения Максвелла–Лоренца. Такая взаимосвязь может быть осуществлена посредством введения функции Вигнера–Вайскопфа [3] $J_E(\mathbf{R}, \mathbf{n}, \omega, t)$ (для поля \mathbf{H} аналогично), которая представляет собой не что иное, как Фурье-образ от двухточечной функции когерентности светового поля второго порядка Γ_E :

$$J_E(\mathbf{R}, \mathbf{k}, t, \omega) = \frac{cn_a}{8\pi} \iiint_{\rho} d\rho \int_{-\infty}^{\infty} \Gamma_E(\mathbf{R}, \rho, t, \tau) e^{i(\omega\tau + \mathbf{k}\rho)} d\tau, \quad (1)$$

где

$$\Gamma_E(\mathbf{R}, \rho, t, \tau) = \langle \mathbf{E}(\mathbf{R} - \rho, t - \tau) \mathbf{E}^*(\mathbf{R} + \rho, t + \tau) \rangle. \quad (2)$$

Здесь $\langle \rangle$ означает процедуру усреднения по всем реализациям, проявляющимся в рассматриваемом процессе возбуждения капли и излучения из нее; n_a – показатель преломления среды. Тогда спектральная плотность усредненной за время измерения прибором t_p (спектрометром) интенсивности излучения, падающего на площадку с единичной площадью поверхности с нормалью к поверхности \mathbf{n} , есть

$$I(\mathbf{R}, \omega) = \frac{1}{t_p} \int_0^{t_p} I(\mathbf{R}, t, \omega) dt, \quad I(\mathbf{R}, t, \omega) = \mathbf{nS}(\mathbf{R}, t, \omega), \quad (3)$$

где

$$\mathbf{S} = \int_{\mathbf{k}} J_E(\mathbf{R}, \mathbf{k}, t, \omega) \mathbf{k} d\mathbf{k}$$

– вектор Умова–Пойнтинга.

Введение функции Вигнера для напряженности светового поля $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$, очевидно, предполагает и введение этой функции для поляризации вещества $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$, так как система «резонатор плюс активные молекулы» представляет собой единую полевую структуру. Введение такой функции для вещества сводится, как было отмечено в работе [3], к рассмотрению спектральной функции распределения населенностей на стоковой частоте $n^S(\mathbf{R}, t, \omega)$, связанной с поляризацией на стоковой частоте $\mathbf{P}_s(\mathbf{r}, t)$, как

$$\int_{-\infty}^{\infty} \langle [\tilde{\mathbf{P}}_s(\mathbf{r}, t) \tilde{\mathbf{P}}_s^*(\mathbf{r}', t - \tau)] \rangle e^{i\omega\tau} d\tau = \hbar\omega_s \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') C(\mathbf{r}') n^S(\mathbf{R}, t, \omega). \quad (4)$$

Здесь $C(\mathbf{r})$ – концентрация флуорофора в капле.

При рассмотрении конкретной экспериментальной ситуации [2] изучение исследуемых нами спектральных форм стокова излучения $I^S(\mathbf{R}, \omega)$

целесообразно провести в приближениях, которые, с одной стороны, адекватно учитывают наиболее значимые стороны процесса, а с другой — существенно упрощают исследование поставленной задачи. Сформулируем эти приближения в виде двух положений.

1) Определяющим эффектом излучения стокового поля из миллиметровой капли является излучение раствора родамина 6Ж из области фокуса капли. Спектр излученного из фокуса капли стокового поля, усредненный по времени излучения и размерам фокуса капли:

$$\bar{I}_f(\omega) = \frac{1}{V_f} \frac{1}{t_p} \int_0^{t_p} \int_{V_f} I(\mathbf{R}, t, \omega) d\mathbf{R} dt, \quad (5)$$

совпадает со спектром поля, наблюдаемого в эксперименте на приборе, расположенном в точке \mathbf{R} , т.е.

$$I(\mathbf{R}, \omega) = \bar{I}_f(\omega) \mu(\mathbf{R}),$$

где $\mu(\mathbf{R})$ — функция распределения излучения по пространственным координатам.

2) Будем полагать, что пространственная неоднородность функции распределения значения населенностей молекул флуорофора после прохождения лазерного импульса $n^S(\mathbf{R}, t_L, \omega)$ в области фокуса капли имеет масштабы δL , которые много меньше размера фокуса капли L_f , т.е. $\delta L < L_f$.

Поясним физический смысл указанных приближений.

Первое и второе положения обеспечивают возможность замены пространственно неоднородной области возбужденной среды некоторой пространственно однородной средой с эффективными характеристиками (см. П.1), такими как усредненное по объему капли значение населенности флуорофора

$$n^S(t) = \int_0^\infty n^S(\mathbf{R}, t, \omega) d\omega d\mathbf{R} / V_f$$

[3] и дифференциальное по спектру эффективное сечение поглощения σ'_{abs} (вид спектра поглощения, приведенный ниже, соответствует характерному масштабу пассивной части среды L порядка 50–100 мкм, см. П.1) (рис. 1).

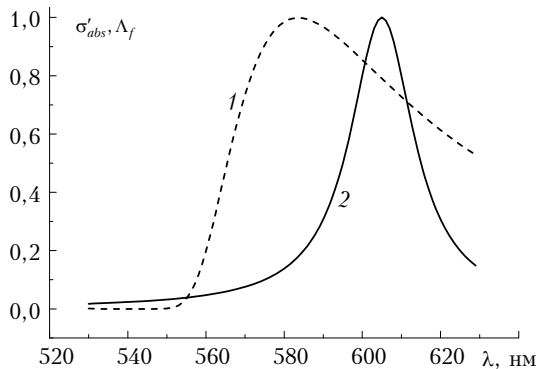


Рис. 1. Зависимость нормированного эффективного сечения поглощения σ'_{abs} (1) и сечения излучения Λ_f родамина 6Ж в капле этанола при фемтосекундной лазерной накачке от длины волны

Таким образом, в рамках указанных предположений задачу об измеряемом в эксперименте спектре стокового излучения флуорофора после его возбуждения фемтосекундным лазерным импульсом можно свести к исследованию процесса суперфлуоресценции из однородной области ударно-возбужденной эффективной среды, т.е. среды с эффективной формой спектра поглощения.

Уравнения для спектральной плотности светового поля в капле

Исследуем численно систему уравнений, сформулированную в работе [3], для непрерывной спектральной плотности моды светового поля, локализованной в фокусе капли:

$$I_f(t, \omega) = \int_{V_f} I(\mathbf{R}, t, \omega) d\mathbf{R} / V_f,$$

и усредненное по объему капли значение населенности флуорофора на стоковой частоте $n^S(t)$. Система уравнений для мод и населенностей в базисе квадратично ортогональных пространственных мод расщепляется, и для моды, локализованной в фокусе капли, имеем

$$\frac{d}{dt} I_f(t, \omega) = I_d C_0 \left(\chi \Gamma_f^{\text{rad}}(\omega) n_f^S(t) + (2n_f^S - 1) \sigma'_{abs}(\omega) \frac{I_f(t, \omega)}{\hbar \omega_s} \right) - \Gamma_f I_f(t, \omega), \quad (6)$$

$$\frac{d}{dt} n_f^S(t) = -\Gamma_f^{\text{rad}}(\omega_s) n_f^S(t) - (2n_f^S - 1) \int_{-\infty}^{\infty} \sigma'_{abs} I_f(t, \omega) d\omega / \hbar \omega_s + \frac{I_{L,f}(t)}{(\hbar \omega_L)^2} [\sigma^{(2)} I_{L,f}(t)]. \quad (7)$$

В уравнения (6) и (7) входят следующие величины:

$$I_{L,f}(t) = \int_{V_f} I_L^{\text{tra}}(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} / V_f,$$

где $I_L^{\text{tra}}(\mathbf{r}, t)$ — интенсивность поля на частоте падающего лазерного излучения, сформированного в капле [3, 5]; Γ_f — коэффициент релаксации пространственной моды, локализованной в фокусе капли, оценивался через поперечный размер r_f фокального пятна во внутреннем фокусе капли как $\Gamma_f \sim c / (nr_f)$ [3]. $I_{L,f}$ -зависимость значения интенсивности поля на длине волны лазерного излучения 800 нм в фокусе капли от времени выбиралась в виде дельта-функции, что соответствует приближению ударного возбуждения

$$I_{L,f}(t) \approx t_p \delta(t - t_p) I_L B_f.$$

Здесь $t_p = 80$ фс в соответствии с экспериментом [2]; B_f — параметр неоднородности, характеризует, во сколько раз интенсивность $I_{L,f}$ в фокусе капли размером $a = 2$ мм больше, чем интенсивность падающего излучения I_L , и может быть оценен исхо-

для экстраполяции закономерностей для параметра неоднородности, установленных в работе [18], на миллиметровую каплю, а также через отношение радиуса капли к радиусу r_f фокального пятна в ней, т.е. $B_f \approx (a/r_f)^2$. Значение r_f оценено исходя непосредственно из результатов эксперимента с миллиметровой каплей, представленных в работе [15]: $r_f \approx (0,1 - 0,02)a$, тогда $B_f \approx 10^2 \div 10^3$ и $\Gamma_f \approx 10^{12} \div 10^{13} \text{ с}^{-1}$. На частоте лазерного излучения сечение двухфотонного поглощения Р6Ж $\sigma^{(2)} \approx 1,4 \cdot 10^{-18} \text{ см}^4 \cdot \text{с}$ [3, 4, 14]; $\chi \approx 10^{-3} \div 10^{-4}$ — коэффициент тушения флуорофора в этаноле [17]. Заметим также, что в фокусе капли спектр спонтанного излучения флуорофора, равный $\Gamma_f^{\text{rad}}(\omega)/\Gamma_f^{\text{rad}}(\omega_s)$, весьма близок к спектру излучения молекул флуорофора в пространстве без резонансных особенностей, т.е. $\Gamma_f^{\text{rad}}(\omega)/\Gamma_f^{\text{rad}}(\omega_s) \approx \Lambda_f(\omega)$, где $\Lambda_f(\omega)$ — единичная функция Лоренца (см. рис. 1).

Заметим, что значение параметров, входящих в уравнения, имеют существенный разброс, в рамках которого возможно проведение разумных оценок порога развития суперфлуоресценции [3]. При численном решении уравнений (6), (7) значение безразмерных параметров, определяющих эволюцию системы, доопределялись по экспериментальным значениям нормированных пиков спектра при энергиях лазерного излучения 1 и 9 мДж (рис. 2). Тогда параметр $\Gamma_f/\Gamma_f^{\text{rad}}(\omega_s)$, определяющий эволюцию системы (6), (7), выбирался равным $8 \cdot 10^3$ и $B_f \approx 10^2 \sqrt{2}$, что находится в границах варьирования параметров, рассмотренных выше. Калибровка интенсивности стокова поля выбиралась в соответствии с экспериментом [2].

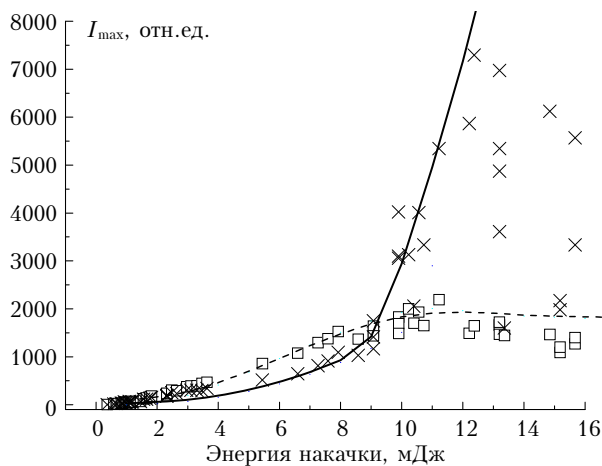


Рис. 2. Зависимость значений пиков спектральной плотности интенсивности (5) от энергии фемтосекундного лазерного импульса: сплошные кривые — синий пик, значение которого получено при численном решении системы уравнений (6), (7); крестики — значения синего пика в спектре флуоресценции, полученные в эксперименте [2]; штриховая кривая — красный пик, значение которого получено при численном решении системы уравнений (6), (7); квадратики — значения красного пика в спектре флуоресценции, полученные в эксперименте [2]

Система (6)–(7) решалась численно явным методом с адаптивным по времени шагом, область рассматриваемого спектра выбиралась в интервалах от $\lambda_{\min} = 570 \text{ нм}$ до $\lambda_{\max} = 620 \text{ нм}$, число узлов $N_\lambda = 500$.

На рис. 2 представлены зависимости синего и красного пиков функции $\bar{I}_f(\omega) = \int_0^{t_p} I_f(t, \omega) dt$, по-

строенной в соответствии с численным решением системы уравнений (6) и (7), а также положение пиков спектра излучения Р6Ж из капли, найденное в эксперименте [2].

Рис. 2 свидетельствует о том, что уравнения (6), (7) действительно адекватно описывают наблюдаемые в эксперименте спектральные особенности флуоресценции родамина 6Ж из капли.

Отличия между результатами численного решения уравнений (6), (7) начинают проявляться лишь при достаточно больших энергиях лазерного фемтосекундного излучения, что, как уже отмечалось в работах [2, 3], связано с фотодеградацией красителя при высоких плотностях мощности лазерной накачки.

Заключение

В рамках приближений, сформулированных в статье, на основе предложенных в работе [3] уравнений для населенностей с включением ряда феноменологических параметров, методом численного решения этих уравнений были получены количественные результаты, которые хорошо согласуются с экспериментальными данными [2].

Построенная математическая модель процесса суперфлуоресценции из капли требует знания эффективного сечения поглощения флуорофора. Введение данной эффективной величины позволяет учитывать влияние неоднородности пространственного распределения населенностей молекул флуорофора на спектральные характеристики стокова поля, измеряемого в эксперименте, после прохождения фемтосекундного лазерного импульса. Показано что эффективное сечение поглощения определяется величиной характерного расстояния между «горячими» областями в капле, сформировавшимися после прохождения фемтосекундного лазерного импульса. В настоящей статье указанный характерный параметр пространственной неоднородности определялся феноменологически.

Работа выполнена при финансовой поддержке Федерального агентства по образованию (Гос. контракт № П367).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Необходимость введения эффективного сечения поглощения и излучения Р6Ж обусловлена, как уже отмечалось выше, неоднородностью распределения функции n в пространстве после прохождения лазерного импульса длительностью t_p . Для того чтобы понять, чему соответствуют введенные эффективные параметры без потери общности,

предположим, что световое излучение распространяется вдоль оси z вплоть до дистанции L , причем длительность светового импульса много меньше масштабов неоднородности функции n , т.е. в пределах импульса значение $n(t, \omega)$ можно считать постоянным. Неоднородность среды, для простоты анализа, смоделируем последовательностью «горячих» слоев длиной δl с населенностью стоковых уровней $n^S(t, \omega)$, чередующихся «холодными» слоями длиной δL , в которых находится невозбужденная среда, причем $\delta L \ll \delta l$. Также будем полагать, что время прохождения лазерного излучения через неоднородную среду много меньше времени релаксации среды. Тогда с учетом всего сказанного после прохождения «холодного» слоя спектральная плотность интенсивности из-за поглощения преобразуется следующим образом:

$$J(t, \omega, z + \delta L) = J(t, \omega, z) \exp[-n_a C_0 \sigma_{abs} \delta L / c].$$

После прохождения вслед за этим горячего слоя излучение приобретает дополнительную энергию

$$J(t, \omega, z + \Delta z) = J(t, \omega, z) \exp[-n_a C_0 \sigma_{abs} \delta L / c] \times \\ \times (1 + C_0 \sigma_{abs} (2n^S(t, \omega) - 1) n_a \delta l / c),$$

где $\Delta z = \delta L + \delta l = Tc/n_0$.

Тогда для яркости излучения получим следующее соотношение:

$$J(t, \omega, z + \Delta z) = J(t, \omega, z) + \Delta z J(t, \omega, z) (n_a / c) \times \\ \times C_0 (-K_{\delta L} \sigma_{abs} + \sigma'_{abs} (2n^S(t, \omega) - 1)). \quad (\text{П.1})$$

Здесь

$$K_{\delta L} \equiv (1 + \delta l / \delta L)^{-1} \text{ и } K_{\delta l} \equiv (1 + \delta L / \delta l)^{-1};$$

c/n_a — скорость света в среде;

$$\sigma'_{abs} \equiv K_{\delta l} \sigma_{abs} \exp[-n_a C_0 \sigma_{abs} \delta L / c].$$

Введем эффективное сечение поглощения, формирующееся при условии, что расстояние между активными зонами δL . Из (П.1), предполагая, что $\Delta z \leq L$, получим

$$J(t, \omega, T) \approx J_L(\omega) \exp[TC_0 \sigma'_{abs} (2n^S(t, \omega) - 1)], \quad (\text{П.2})$$

где

$$J(\omega, L) \equiv \exp[-LK_{\delta L} C_0 \sigma_{abs} n_a / c].$$

Дифференцируя (П.2) по времени T , с учетом граничных условий (излучение покидает среду, проходя через ее границу) получим выражение, соответствующее слагаемым в скобках в правой части (6) и ответственное за спонтанное и вынужденное излучение.

На рассмотренном примере демонстрируется, чему соответствует введенное эффективное сечение поглощения σ'_{abs} .

1. Клочков В.П. Скорость спонтанного испускания у атомов и молекул в неомогенном пространстве // Оптика и спектроскопия. 1993. Т. 74, № 4. С. 676–694.
2. Бочкарев Н.Н., Донченко В.А., Землянов А.А., Землянов Ал.А., Кабанов А.М., Карташев Д.В., Кибиткин П.П., Матвиенко Г.Г., Степанов А.Н. Флуоресценция красителя в жидкокапельной среде при возбуждении фемтосекундными лазерными импульсами // Изв. вузов. Физ. 2005. Т. 48, № 4. С. 15–19.
3. Бульгин А.Д., Быкова Е.Е., Землянов А.А., Землянов Ал.А. Особенности флуоресценции органических молекул из капли под действием фемтосекундного лазерного импульса при двухфотонном поглощении // Изв. вузов. Физ. 2009. Т. 52, № 8. С. 84–91.
4. Мешалкин Ю.П., Светличный В.А., Резниченко А.В., Мячин А.Ю., Бахарева С.С., Долотов С.М., Копылова Т.Н., Пономаренко Е.П. Двухфотонное возбуждение красителей в полимерной матрице фемтосекундным излучением титан-сапфирового лазера // Квант. электрон. 2003. Т. 33, № 9. С. 803–806.
5. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Спонтанная флуоресценция молекул из микрочастицы, иницированная лазерными импульсами // Оптика атмосфер. и океана. 2005. Т. 18, № 1–2. С. 61–69.
6. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Резонансное возбуждение светового поля в слабопоглощающих сферических частицах фемтосекундным лазерным импульсом. Особенности нелинейно-оптических взаимодействий // Оптика атмосфер. и океана. 2001. Т. 14, № 5. С. 349–359.
7. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Генерация вынужденного комбинационного рассеяния света в сферической микрочастице // Оптика атмосфер. и океана. 2002. Т. 15, № 12. С. 1088–1094.
8. Дацок В.В., Измаилов И.А. Оптика микрокапель // Успехи физ. наук. 2001. Т. 171, № 10. С. 1117–1129.
9. Кандидов В.П., Шленов С.А., Силаева Е.П., Дергачев А.А. Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения в воздухе и ее приложения в атмосферной оптике // Оптика атмосфер. и океана. 2010. Т. 23, № 10. С. 873–884.
10. Dicke R.H. Coherence in spontaneous radiation process // Phys. Rev. 1954. V. 93, N 1. P. 99–110.
11. Bonifacio R., Pellegrini C., Narducci L. Collective instabilities and high-gain regime in a free electron laser // Opt. Commun. 1984. Т. 50, N 6. P. 373.
12. Звелто О. Принципы лазеров. М.: Мир, 1990. 560 с.
13. Allen L., Peters G.I. Amplified Spontaneous Emission and External Signal Amplification in an Inverted Medium // Phys. Rev. A. 1973. V. 8, N 4. 2031.
14. Polder D., Schuurmans M.F.H., Vreken Q.H.F. Superfluorescence: Quantum-mechanical derivation of Maxwell–Bloch description with fluctuating field source // Phys. Rev. A. 1979. V. 19, N 3. P. 1192.
15. Гейнц Ю.Э., Землянов А.А. Фазовый взрыв водной капли фемтосекундным лазерным импульсом. I. Динамика оптического пробоя // Оптика атмосфер. и океана. 2009. Т. 22, № 8. С. 725–733.
16. Апекумов Д.В., Букин О.А., Быкова Е.Е., Гейнц Ю.Э., Голук С.С., Землянов А.А., Землянов Ал.А., Иль-

ин А.А., Кабанов А.М., Матвиенко Г.Г., Ошляков В.К., Соколова Е.Б. Взаимодействие гигаваттных лазерных импульсов с жидкими средами. Часть 1. Взрывное вскипание крупных изолированных водных капель // Оптика атмосфер. и океана. 2010. Т. 23, № 7. С. 536–542.

17. Клышко Д.Н. Физические основы квантовой электроники. М.: Наука, 1986. 296 с.

18. Землянов А.А., Гейнц Ю.Э. Внутренняя и внешняя фокусировка оптического поля фемтосекундного импульса при дифракции на сферической частице // Оптика атмосфер. и океана. 2003. Т. 16, № 10. С. 898–902.

A.D. Bulygin, A.A. Zemlyanov, Al.A. Zemlyanov. Theoretical description of the spectral energy distribution light of Rhodamine 6G molecules dissolved in spherical ethanol microparticle under femtosecond laser impact.

Spectral energy distribution light of Rhodamine 6G molecules dissolved in spherical ethanol microparticle under femtosecond laser impact was explained by methods of numerical of the equation for Wigner function. Correlation between experimental data and numerical data is possible only when taking into account spatial inhomogeneity of the exited matter in the droplet focus.