

26

И Н С Т И Т У Т ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ СОАН СССР

И Я Ф 83 - 72

Г.Г.Долгов - Савельев, Б.А.Князев,
Е.П.Фокин^{*}

ДИНАМИКА ОПТИЧЕСКИХ НЕОДНОРОДНОСТЕЙ И
НАВЕДЁННОЙ ЭКСТИНКЦИИ ПРИ ЭЛЕКТРОННОМ
ОБЛУЧЕНИИ ОРГАНИЧЕСКИХ РАСТВОРИТЕЛЕЙ

Новосибирск

1972

ДИНАМИКА ОПТИЧЕСКИХ НЕОДНОРОДНОСТЕЙ И НАВЕ-
ДЕННОЙ ЭКСТИНКЦИИ ПРИ ЭЛЕКТРОННОМ ОБЛУЧЕНИИ
ОРГАНИЧЕСКИХ РАСТВОРИТЕЛЕЙ

А Н Н О Т А Ц И Я

С помощью импульсного лазера на растворе родамина В исследована динамика оптических искажений и ослабления интенсивности луча лазера, проходящего через органический растворитель (ацетон, толуол), при облучении импульсным пучком быстрых электронов ($E_e = 0,9 \text{ Мэв}$). Показано, что в результате неоднородной диссипации энергии в жидкости образуется эффективная призма, отклоняющая луч лазера на $40'$. Обнаружено, что в момент импульса тока появляется сильная экстинкция (спадающая после импульса с постоянной времени $\tau_1 = (1,3; 3,7 \text{ мксек})$, а затем — слабая ($\tau_2 \gg 100 \text{ мксек}$). Показано, что накачка жидкостных лазеров ионизирующим излучением возможна только при использовании активных сред с большим временем жизни верхнего лазерного уровня.

^х) Новосибирский Институт органической химии
СО АН СССР.

1. Введение

Одной из причин, вызывающих ухудшение генерационных характеристик жидкостных лазеров, является возникновение в активной среде в процессе накачки оптических неоднородностей [1]. В частности, при несимметричной (одноламповой) накачке среда приобретает свойства призмы [2]. Кроме "быстрых" эффектов известно также появление тепловых свилей, исчезающих, примерно, за 10 минут [3]. Однако, несмотря на значительный интерес к данной теме, относительная важность различных типов потерь все еще интенсивно дискутируется. В частности в работе [4], где получена генерация на растворе родамина 6G длительностью 650 мксек с циклооктатетраеном в качестве триплетного тушителя, авторы утверждают, что оптические потери не могут играть определяющей роли в срыве генерации.

В настоящей работе приводятся результаты экспериментов по исследованию оптических искажений и наведенных потерь в органических растворителях при облучении импульсным электронным пучком ($E_e = 0,9$ Мэв, $t = 3$ мксек, $W = 2$ дж), в связи с предложением использовать ионизирующее излучение для накачки лазеров на органических жидкостях [5,6].

2. Методика эксперимента

Динамика оптических искажений при накачке импульсными лампами исследовалась либо по временной зависимости генерационных характеристик жидкостного лазера [2,7], либо по отклонению и расходимости луча непрерывного He-Ne лазера после прохождения лазерной среды [8]. В наших экспериментах в качестве зондирующего луча использовался импульсный лазер на родамине В с ламповой накачкой, что позволяет точнее измерить временные и пространственные характеристики.

Схема экспериментальной установки изображена на рис. 1. Поскольку данная установка использовалась также для измерения коэффициента усиления лазерных сред [9], то для ограничения спектрального диапазона зондирующего луча, он пропусклся через монохроматор МДР-2. Грубая настройка на требуемую длину

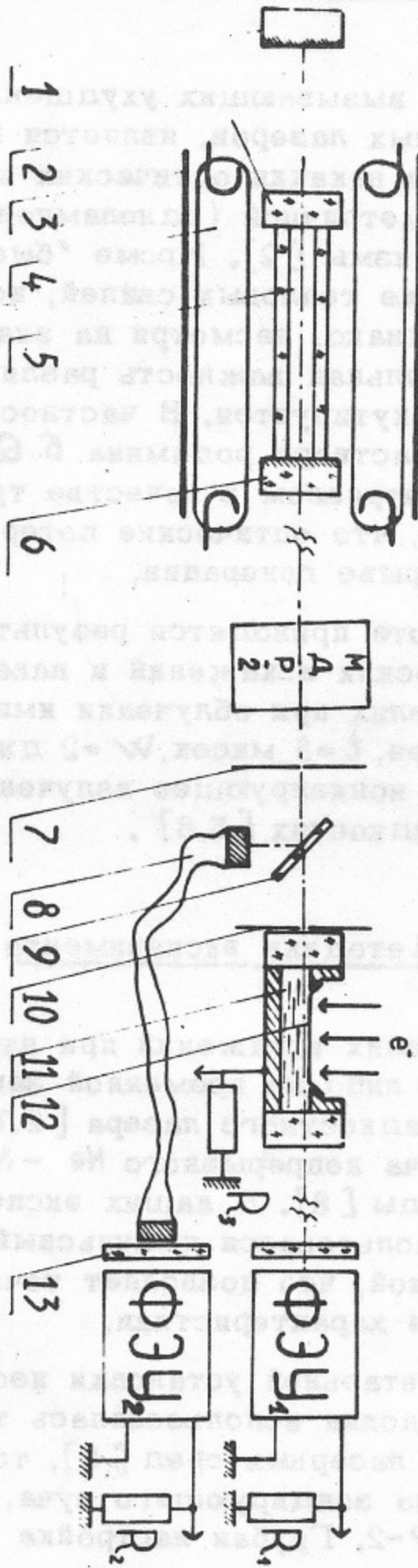


Рис. 1

волны осуществлялась изменением концентрации родамина В. Импульс генерации на входе МДР-2 представлял из себя моноимпульс длительностью 3 мксек. Однако тот же импульс после диафрагмы 7 имел вид, представленный на осциллограмме рис. 2а, где верхний луч - сигнал с ФЭУ₁, а нижний - с ФЭУ₂. Форма импульса (которая, в общем, менялась от импульса к импульсу), по видимому, обусловлена пространственно-спектральным и временным распределением пятна генерации на малом отверстии 7 (\varnothing 0,5 мм) после прохождения МДР-2.

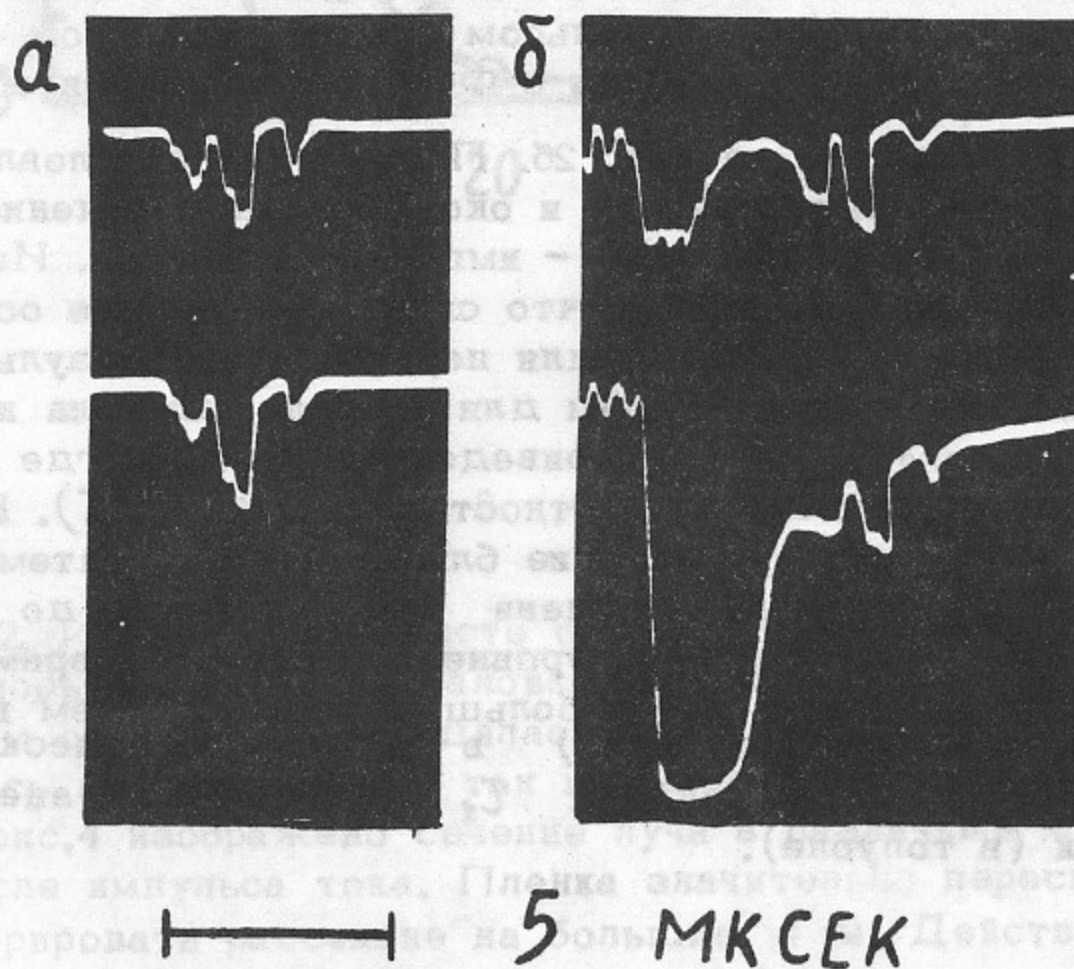


Рис. 2

Зондирующий луч проходил через кювету с жидкостью вдоль фольги 12 (перпендикулярно направлению распространения электронного пучка) на глубине 1 мм, которая соответствует максимуму интенсивности люминесценции под действием электронов с энергией $0,9 \text{ МэВ}^{-6}$. Длина облучаемой части кюветы равна 50 мм, сечение $5 \times 5 \text{ мм}^2$.

3. Результаты эксперимента

3.1. Потери обусловленные наведенной экстинкцией определялись путем сравнения отношений интенсивности зондирующего луча на выходе и входе кюветы 11 в отсутствие облучения электронами и после него. Для исследования временной зависимости менялась задержка между импульсом тока и импульсом лазера. Типичная осциллограмма сигналов с ФЭУ₁ и ФЭУ₂ при облучении электронами изображена на рис. 2б. Первый пик обусловлен мощной флуоресценцией растворителя и окон кюветы в течение импульса тока. Последующие три пика - импульс генерации. Из сравнения с осциллограммой 2а видно, что сигнал на выходе ослаблен, причем ослабление максимально для первого пика. Результаты обработки подобных осциллограмм для толуола, ацетона и раствора в ацетоне хелата Eu^{3+} [9] приведены на рис. 3, где по оси ординат отложена оптическая плотность $D_0 = \lg(I_0/I)$. Видно, что в момент импульса пропускание близко к нулю, затем восстанавливается с постоянной времени τ_1 мксек до величины $\sim 0,95$ и остается на этом уровне значительное время, причем в толуоле экстинкция имеет большую величину, чем в ацетоне. Перестроив зависимость $D_0(t)$ в полулогарифмическом масштабе из наклона кривых найдём: $\tau_1 = 1,3 \text{ мксек}$ (в ацетоне), $\tau_1 = 3,7 \text{ мксек}$ (в толуоле).

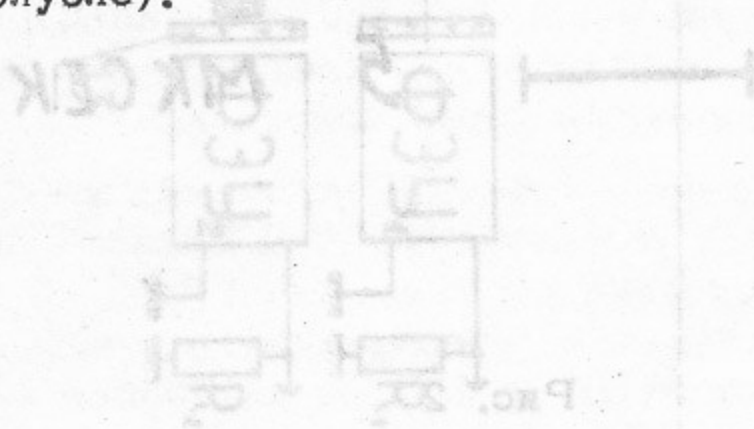


Рис. 1

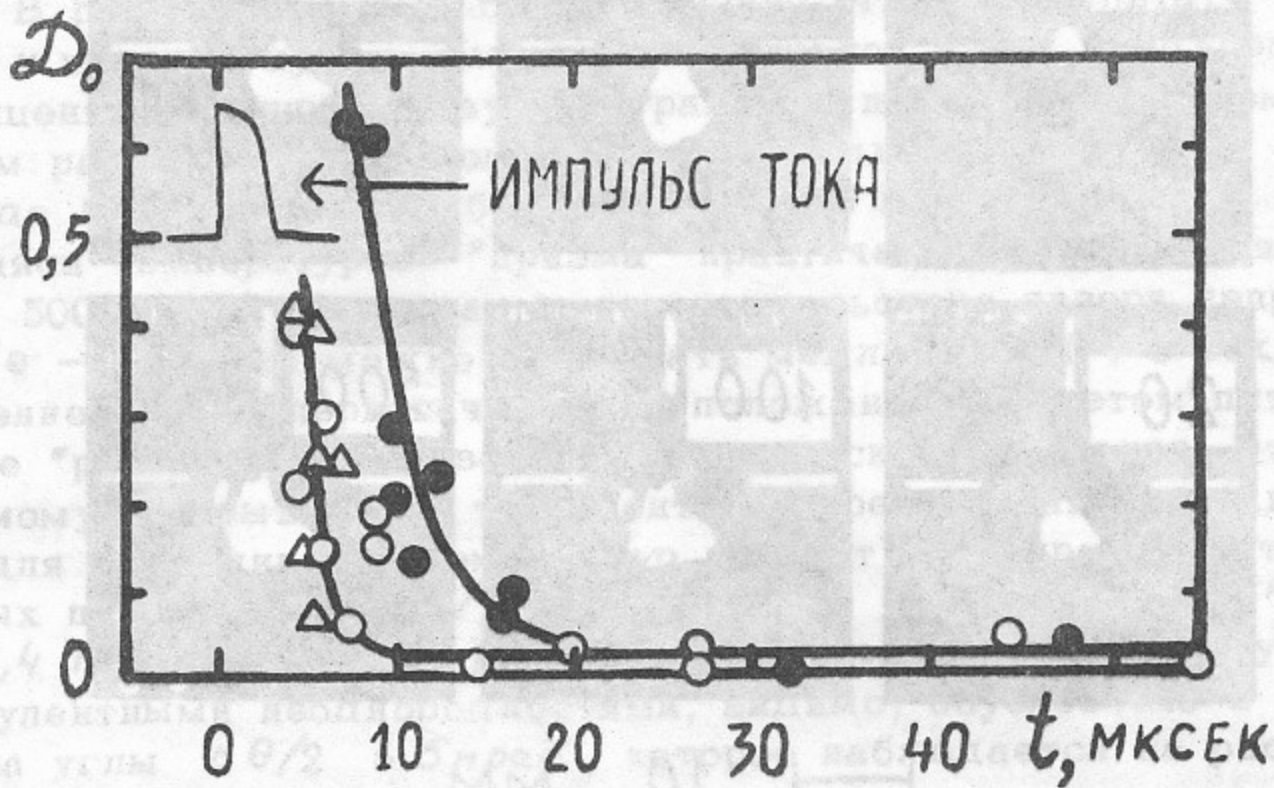
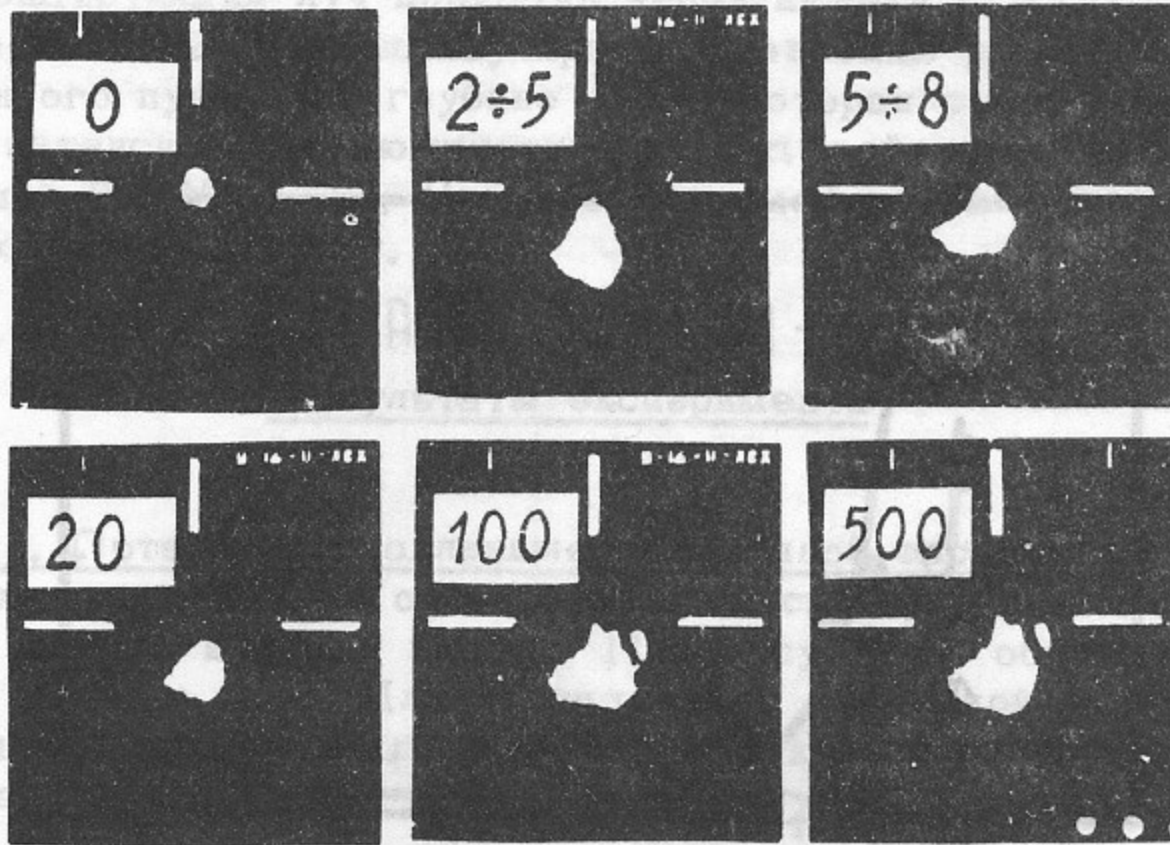


Рис. 3

3.2. Исследование чисто оптических искажений в жидкости проводилось на той же установке, но вместо ФЭУ₁ на расстоянии 50 см от кюветы помещалась фотопленка, на которой регистрировалось как отклонение, так и "размывание" зондирующего луча. На рис.4 изображено сечение луча в различные моменты времени после импульса тока. Пленка значительно пересвечена, чтобы зарегистрировать рассеяние на большие углы. Действительный размер невозмущенного пятна лазера ($t = 0$ мксек на рис. 4), снятый при большем ослаблении луча светофильтрами равен 1 мм. На рис.5 представлено отклонение центра луча (место наибольшей яркости на фотографиях рис.4) по вертикали в зависимости от времени.



10 MM

Рис. 4

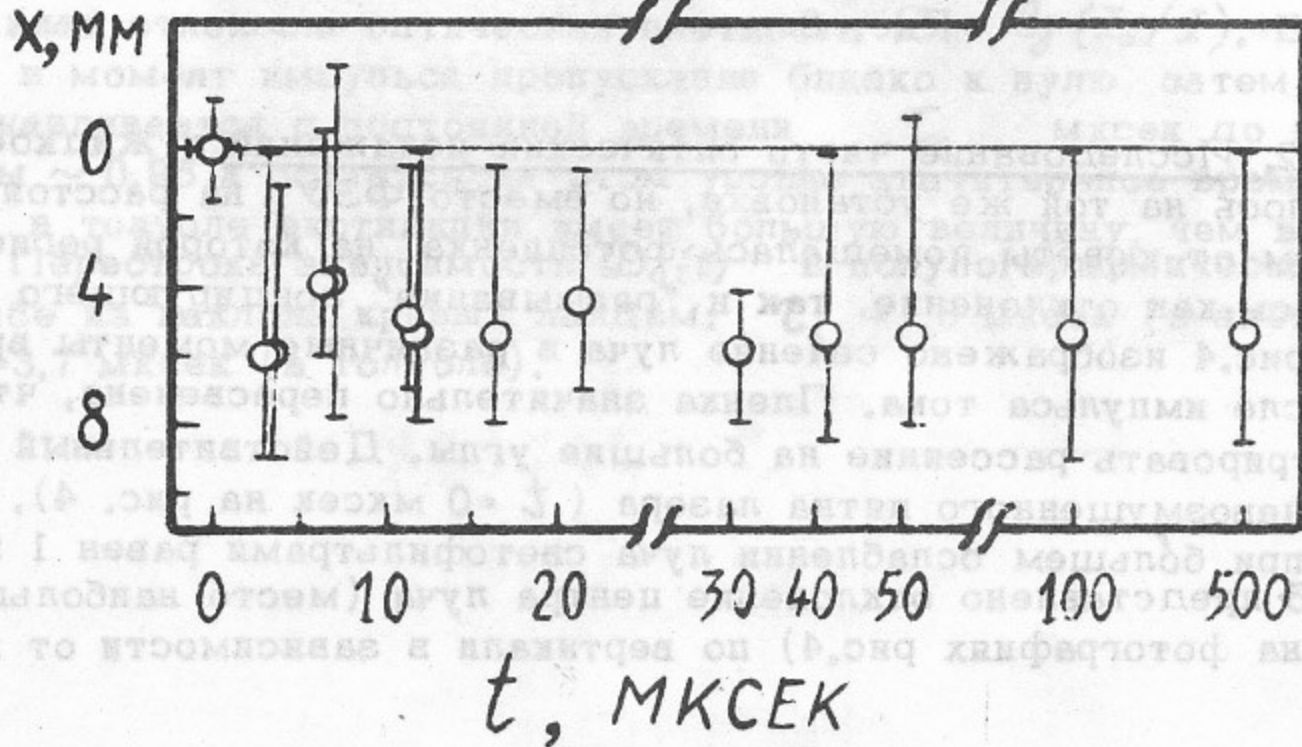


Рис. 5

4. Обсуждение результатов

В работе [6] нами было показано, что в результате облучения жидкости пучком быстрых электронов из-за неоднородного поглощения энергии образуется градиент показателя преломления, причем развитие неоднородности происходит со скоростью звука в среде (~ 2 мксек для бензола). Рис. 5 показывает, что образовавшаяся температурная "призма" практически не меняется в течение 500 мксек. Помещая вместо импульсного лазера непрерывный He - Ne лазер можно наблюдать медленное ($1 \div 3$ сек) возвращение луча к первоначальному положению, при этом пятно на экране "размазано" и совершает хаотические колебания. Это, по видимому, указывает на турбулентное перемешивание жидкости, т.к. для выравнивания температур за счет теплопроводности при данных параметрах ($dT/dx \sim 10$ град/см, $S = 5 \times 0,5$ см², $\lambda = 1,4 \cdot 10^{-3}$ Дж/см.сек.град) необходимо время порядка минуты. Турбулентными неоднородностями, видимо, обусловлено и рассеяние на углы $\Delta\theta/2 \leq 5$ мрад, которое наблюдается на рис.4.

Приведенные результаты не являются специфичными для электронного возбуждения и количественно согласуются с результатами, полученными при ламповой накачке [1, 8]. Однако при накачке электронным пучком появляются новые источники потерь, связанные с принципиально иным по сравнению с оптической накачкой механизмом возбуждения. Это связано прежде всего с тем, что энергия выделяется локально в небольших ($30 \div 300$ Å) объемах (шпорах, блобах, коротких треках), где протекают радиационно-химические реакции с образованием реакционноспособных промежуточных продуктов (ионы, радикалы, сольватированные электроны (e_s^-), возбужденные молекулы), которые могут иметь полосы поглощения в видимой области спектра [10,11,12,13]. С другой стороны, поскольку температура среды в шпорах поднимается на 30-40° (т.е. тепловой клин [12]), шпоры, во-первых, являются центрами рассеяния света на флуктуациях плотности, во-вторых, могут быть источником сферических акустических волн [14], на которых в принципе также могут рассеиваться фотоны. Еще одним источником потерь могут быть пузырьки пара или газа, образующиеся при облучении [15].

Все эти источники могут вносить вклад в наблюдаемую в течение импульса "сильную" экстинкцию, но вычисление их относительной важности из-за неполноты литературных данных представляет значительную трудность и выходит за рамки настоящей работы. По-видимому, в течение импульса основными причинами ослабления луча являются рассеяние на "тепловых клиньях" и пузырьках, а также поглощение света продуктами радиолиза, наиболее важным из которых является сольватированный электрон (выход $G(e_s^-) \sim (0,1 \div 1) 1/100$ эв). В отличие от большинства продуктов, поглощающих в УФ и синей областях спектра, поглощение e_s^- перекрывает всю видимую область практически для всех органических растворителей с коэффициентом экстинкции $\epsilon \sim 10^4$ л/моль.см [10].

Приведенный на рис. 3 спад экстинкции не может быть обусловлен "тепловыми клиньями" и пузырьками, т.к. по оценкам в согласии с [12, 15] время жизни этих образований $10^{-10} \div 10^{-8}$ сек. Рассеяние на акустических волнах в принципе можно бы объяснить скорость спада кривой рис. 3, т.к. звуковая волна проходит характерный размер ~ 1 мм за время $\sim 0,9$ мксек (в ацетоне). Но, вследствие малой энергии каждого источника и очень большого их числа, сумма сферических волн, видимо, образует плоскую волну [6] за время, соответствующее примерно 10 расстояниям между шпорами (2000 А), т.е. за $\sim 2 \cdot 10^{-10}$ сек. Единственным приемлимым источником, обуславливающим скорость спада экстинкции остается e_s^- , который в некоторых системах имеет время жизни $\sim (1 \div 10)$ мксек [10]. Причем, если время жизни в толуоле больше, чем в ацетоне, то легко объясняется большая величина экстинкции в толуоле. К сожалению, однако, литературных данных о времени жизни e_s^- в облученных толуоле, бензоле и ацетоне не имеется.

Б. В ы в о д ы

Из изложенного можно сделать следующие выводы относительно использования электронных пучков для накачки жидкостных лазеров.

1). Поскольку в момент импульса тока и в течение нескольких микросекунд после него наблюдается сильная экстинкция, то

нельзя использовать ионизирующее излучение для накачки активных сред с малыми временами жизни верхнего лазерного уровня (лазеры на растворах сложных органических соединений [16]). Этот факт объясняет причину неудачи попытки получить генерацию на растворах красителей и сцинтилляторов при накачке мощным электронным пучком [5].

2). Из рисунков 4 и 5 видно, что при юстировке резонатора следует учитывать отклонение луча от оптической оси системы после импульса электронов. Применение пучков больших энергий (5-10 Мэв) должно уменьшить отклонение пучка из-за более равномерной диссипации энергии [17].

3). Сравнение углов рассеяния на "тепловых" неоднородностях при ламповой и электронной накачке показывает, что их значения сравнимы.

4). Так как потери в резонаторе жидкостного лазера при электронной накачке через несколько микросекунд после импульса тока имеют примерно ту же величину, что и при ламповой накачке, то генерация при накачке пучком может быть осуществлена при использовании активной среды с долгоживущим верхним лазерным уровнем. В качестве такой среды могут быть предложены хелаты Cu^{2+} , которые имеют $\tau \approx (100-500)$ мксек, и для которых высока эффективность преобразования энергии электронного пучка в возбуждение (Cu^{2+}) [9].

14. В.И. Назаров, УФН, 87, 618, 1968.

15. A. Norman, S. Spiegel, *Arch. Sci. Engineering*, 10, 213, 1963.

16. В.И. Степанов, А.Н. Русаков, УФН, 35, 45, 1963.

17. R. D. Birkhoff, *Handbuch der Physik*, 31, 1958.

Подписи к рисункам

Рис. 1 Схема экспериментальной установки. 1 - диэлектрическое зеркало ($R = 0,99$), 2 - окно, 3 - алюминиевая фольга, 4 - лампа ИФП-2000, 5 - трубка с красителем (\varnothing 3 мм), 6 - выходное зеркало ($R = 0,95$), 7 - диафрагма \varnothing 0,5 мм, 8 - волоконный световод, 9 - плоскопараллельная пластинка, 10 - диафрагма \varnothing 1,5 мм, 11 - исследуемая жидкость, 12 - титановая фольга, 13 - светофильтры.

Рис. 2 Осциллограммы интенсивности импульса генерации до кюветы (вверху) и после прохождения кюветы (внизу): а) в отсутствие электронного пучка; б) после импульса электронов. В кювете - абсолютный ацетон.

Рис. 3 Оптическая плотность $D_o = \lg(I_o/I)$ жидкости после облучения электронами в зависимости от времени: \circ - ацетон, Δ - раствор хелата $\text{Cu}(\text{DFDBM})_4$, $\text{C}_5\text{H}_{11}\text{N}$ [9] в ацетоне; \bullet - толуол. $\lambda = 608$ нм.

Рис. 4 Сечение зондирующего луча после прохождения кюветы с толуолом на расстоянии 50 см от выходного окна кюветы. Цифры - время импульса генерации в мксек.

Рис. 5 Отклонение зондирующего луча от горизонтали после импульса тока. Вертикальные черточки - величина "размытия" луча по вертикали.

Л и т е р а т у р а

1. B. B. Snavely. *Proceedings of IEEE*, 57, 1374, 1969
2. B. B. Snavely, F. P. Schäfer. *Phys. Letters*, 28A, 728, 1969
3. P. P. Sorokin, J. R. Lankard, V. L. Moruzki, E. C. Hammond. *J. Chem. Phys.* 48, 4726, 1968
4. R. Pappalardo, H. Samuelson, A. Lempicki. *J. of Quantum Electronics*, QE-6, 716, 1970
5. В. С. Бурмасов, Г. Г. Долгов-Савельев, Б. А. Князев, Е. П. Фокин *ЖЭТФ*, 62, 2019, 1972.
6. В. С. Бурмасов, Г. Г. Долгов-Савельев, Б. А. Князев, Е. П. Фокин. Препринт ИЯФ СО АН СССР № 66-71, 1971.
7. А. В. Аристов, Ю. С. Маслюков. *ЖПС*, 13, 1002, 1970.
8. E. P. Riedel. *Appl. Phys. Letters*, 5, 162, 1964.
9. Г. Г. Долгов-Савельев, Б. А. Князев, Е. П. Фокин. Препринт ИЯФ СО АН СССР, №
10. А. К. Пикаев, "Сольватированный электрон в радиационной химии", "Наука", 1969.
11. R. Cooper, J. K. Thomas. *J. Chem. Phys.*, 48, 5097, 1968.
12. "Углеводороды. Аспекты радиоллиза" под ред. Ю. Уанье и Т. Гейманна, "Мир", 1971.
13. "ЭПР свободных радикалов в радиационной химии" С. Я. Пшежецкий и др. "Химия", 1972.
14. Е. И. Несис. *УФН*, 87, 615, 1965.
15. A. Norman, P. Spiegler. *Nucl. Sci. Engineering*, 16, 213, 1963.
16. Б. И. Степанов, А. Н. Рубинов. *УФН*, 95, 45, 1968.
17. R. D. Birkhoff. "Handbuch der Physik", 34, 1958.

Содержание

1. Введение
2. А.А. Князев
3. А.А. Князев
4. А.А. Князев
5. А.А. Князев
6. А.А. Князев
7. А.А. Князев
8. А.А. Князев
9. А.А. Князев
10. А.А. Князев
11. А.А. Князев
12. А.А. Князев
13. А.А. Князев
14. А.А. Князев
15. А.А. Князев
16. А.А. Князев
17. А.А. Князев

Ответственный за выпуск КНЯЗЕВ Б.А.
Подписано к печати 8/ХП-72г. МН 10592
Усл. 0,6 печ.л., тираж 200 экз. Бесплатно.
Заказ №83 ПРЕПРИНТ

Отпечатано на ротапинтере в ИЯФ СО АН СССР, вт