

21

**И Н С Т И Т У Т
ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ СОАН С С С Р**

И Я Ф 66 - 71

В.С.Бурмасов, Г.Г.Долгов-Савельев,

Б.А.Князев, Е.П.Фокин

**ЭЛЕКТРОННЫЙ ПУЧОК КАК ИСТОЧНИК НАКАЧКИ
ЛАЗЕРОВ НА ОРГАНИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЯХ**

Новосибирск

1971

ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ СИБИРСКОГО ОТДЕЛЕНИЯ

ЭЛЕКТРОННЫЙ ПУЧОК КАК ИСТОЧНИК НАКАЧКИ
ЛАЗЕРОВ НА ОРГАНИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЯХ

АННОТАЦИЯ

Рассмотрена возможность использования электронного пучка для накачки жидкостных органических лазеров. Изучены свойства ускоренной электроны в зависимости от энергии и плотности тока.

В.С.Бурмасов, Г.Г.Долгов-Савельев,
Б.А.Князев, Е.П.Фокин

ЭЛЕКТРОННЫЙ ПУЧОК КАК ИСТОЧНИК НАКАЧКИ
ЛАЗЕРОВ НА ОРГАНИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЯХ

Резюме. Рассмотрена возможность использования электронного пучка для накачки жидкостных органических лазеров. Изучены свойства ускоренной электроны в зависимости от энергии и плотности тока.

Новосибирск

1971

Институт Органической Химии СО АН СССР

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

ЭЛЕКТРОННЫЙ ПУЧОК КАК ИСТОЧНИК НАКАЧКИ
ЛАЗЕРОВ НА ОРГАНИЧЕСКИХ ЖИДКОСТЯХ

А Н Н О Т А Ц И Я

Рассмотрена возможность использования электронных пучков для накачки жидкостных органических лазеров. Из решения скоростных уравнений найдена зависимость плотности заселенности верхнего лазерного состояния бинарных органических растворов от плотности потока электронов. Экспериментально исследована зависимость выхода люминесценции от плотности тока и энергии электронов, а также от концентрации, для растворов некоторых красителей. Измерен спад интенсивности люминесценции с ростом поглощенной дозы. Исследована временная зависимость возникающих в жидкости оптических неоднородностей. Оценена необходимая для достижения порога генерации плотность тока электронов.

^{*)} Институт Органической химии СО АН СССР.

1. Введение

К настоящему времени выполнено значительное число исследований в области использования жестких излучений для накачки лазерных сред /1 - 5/ (см. также ссылки в обзоре /1/). Для этой цели использовались как излучение реактора /1/, /2/, так и мощные электронные пучки /3/, /4/, /5/. Большая часть работ посвящена накачке газовых лазеров, а в работах /4/ и /5/ получена генерация излучения в жидком ксеноне и $Y_3 Al_2 O_{12} - (Nd^{3+})$, соответственно.

Столь большой интерес к данной проблеме связан по-видимому с тем, что такая накачка, во-первых, может оказаться самой эффективной для лазеров работающих в ультрафиолетовом диапазоне, где трудно осуществить световую накачку, а, во-вторых, позволяет воспользоваться столь мощным источником накачки как ядерный реактор.

С другой стороны бурное развитие лазеров на растворах органических жидкостей /6/, привело к созданию лазеров перекрывающих большой спектральный диапазон вплоть до 340 км /7/, /8/. Т.к. некоторые из использованных в /7/ и /8/ растворов давно применяются в качестве сцинтилляторов /9/, накачка их заряженными частицами может оказаться эффективной. Поскольку энергия ионизирующего излучения в отличие от энергии светового излучения поглощается средой не избирательно, то накачка будет эффективной только тогда, когда энергия, поглощенная в растворителе будет передаваться к молекулам люминесцирующего вещества, что осуществляется для сцинтилляторов в ароматических растворителях /9/.

Оценим максимально возможную энергетическую эффективность накачки органических жидкостей заряженными частицами.

Если начальная энергия частиц E_0 невелика (10 - 50 Мэв для электронов), то потерями на излучение можно пренебречь, и энергия частиц идет главным образом на ионизацию и возбуждение. Если принять, что на возбуждение молекул среды идет примерно 2/3 всей энергии /9/, то доля энергии, идущая на возбуждение π -электронных оболочек органических молекул, которые являются "ответственными" за люминесценцию, будет

$$P \sim \frac{2}{3} F_{\pi}$$

где F_{π} -доля π -электронов в молекуле. Т.к. для большинства интересных нас соединений /9/ (полиацены, полифенилы и др.)

$$\begin{aligned} F_{\pi} &\sim 0,15 \\ P &\sim 0,1 \end{aligned} \quad (1)$$

то

Если Q -полная энергетическая эффективность преобразования первичного возбуждения в люминесценцию, то энергия фотонов люминесценции E_{φ} , приходящаяся на одну первичную частицу, будет

$$E_{\varphi} = Q \cdot P \cdot E_0 = S E_0 \quad (2)$$

где S -абсолютная сцинтилляционная эффективность.

Т.о. из (2) видно, что энергетический выход люминесценции $\eta = E_{\varphi}/E_0$ зависит, во-первых, от эффективности возбуждения π -электронов первичным излучением, которая согласно (1) порядка 10%, во-вторых, от эффективности преобразования возбуждения в излучение. Последняя зависит от многих факторов: от тушения возбуждения в треке первичной частицы продуктами радиолиза, от эффективности передачи энергии возбуждения к люминесцирующим центрам, от квантового выхода люминесценции последних и т.д. Но несмотря на зависимость от многих факторов, коэффициент Q при низких плотностях возбуждающих частиц, с которыми приходится иметь дело в сцинтилляционных счетчиках, является константой, не зависящей от плотности тока заряженных частиц. Это связано с тем, что процессы ионизации, возбуждения происходят в области трека частицы, где локальная плотность всех продуктов вдоль трека зависит только от начальной энергии E_0 . Другими словами треки отдельных частиц не перекрываются.

По отношению к процессам люминесценции "размером" трека следует считать не область начального возбуждения и ионизации, определяемую пробегом δ -электронов, а область, определяемую миграцией возбуждения за полное время жизни возбужденных состояний. Легко показать, что для большинства органических жидкостей "начальные" размеры трека практически одинаковы и, следовательно зависимость эффективности преобразования возбуждения в люминесценцию от плотности тока для данного сорта возбуждающих ча-

стиц будет зависеть только от скорости миграции возбуждения в среде.

Рассмотрим зависимость заселенности лазерного уровня плотности тока возбуждающих частиц для бинарной системы состоящей из растворителя $[D]$ см⁻³ и люминесцирующей добавки $[A]$ см⁻³. Предположим, что при облучении растворителя происходит его радиолиз с образованием каких-либо продуктов Q (например, радикалов), которые в общем случае тушат возбужденные состояния /10/.

Использование для накачки мощных потоков заряженных частиц приводит к необходимости учитывать эффекты, связанные с ростом мощности дозы облучения, т.к. при этом возрастает роль реакций второго порядка /10/, что увеличивает тушение возбужденных состояний. Критерием влияния эффекта мощности дозы может служить степень "перекрывания" треков β . Пусть плотность тока возбуждающих частиц равна j а/см², т.е. за секунду образуется $N = j/e$ треков. Если $\tau_{tr} = (\sum_i k_i A)^{-1}$ есть время жизни трека по отношению к люминесценции, где $\sum_i k_i A$ сумма констант скоростей всех реакций, приводящих к исчезновению возбужденных состояний A^* , а S_{tr} -сечение области возбуждения, образованной одной первичной частицей к моменту τ_{tr} , то очевидно, что критерием перекрывания "треков" будет соотношение $\beta > 1$, где

$$\beta = \frac{j \tau_{tr} S_{tr}}{e} \quad \text{см}^2 \quad \text{на } 1 \text{ см}^2 \quad (3)$$

есть сумма площадей одновременно существующих треков на см², которая зависит только от свойств молекул D и A при равных условиях возбуждения.

Очевидно, что при $\beta \leq 1$ перекрывания треков нет и каждая возбужденная область возникает и распадается не испытывая внешних влияний. Так как все процессы в треке не зависят от плотности возбуждающего тока, то выход локальной плотности возбужденных состояний $[A^*]$ на одну частицу будет постоянен, а средняя плотность равна

$$[A^*] = [A^*]_{\text{локальная}} \cdot \frac{j \tau_{tr} S_{tr}}{e} = \beta [A^*]_{\text{л}} \quad (4)$$

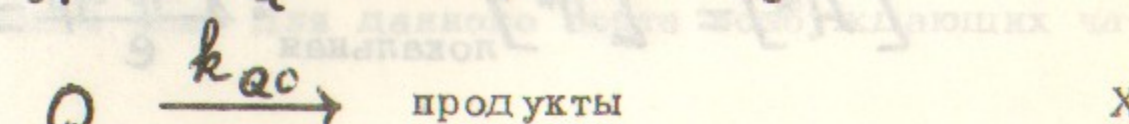
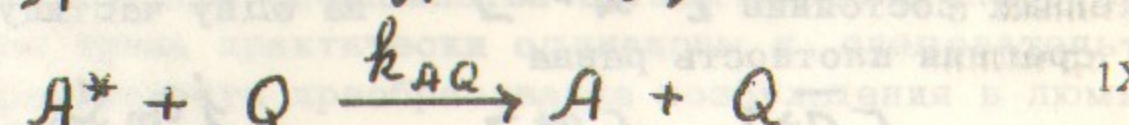
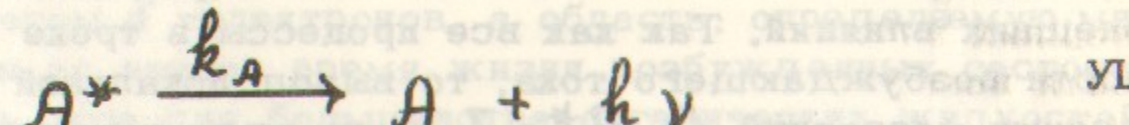
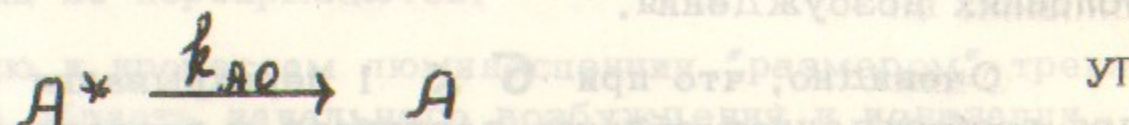
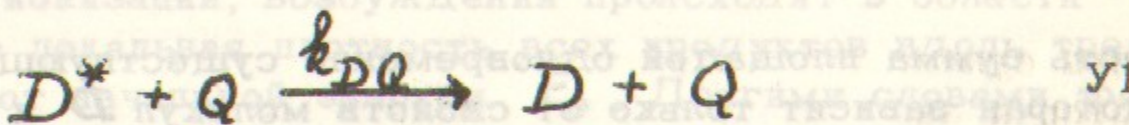
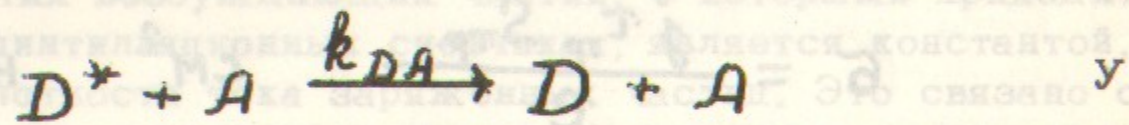
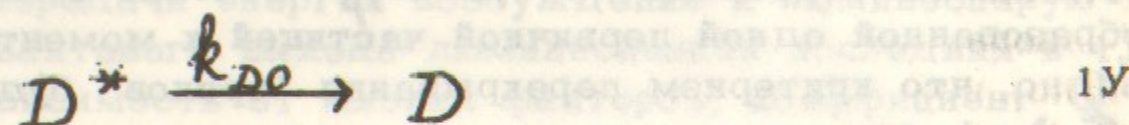
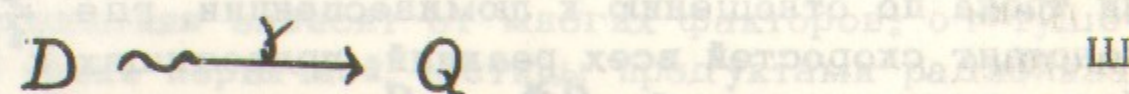
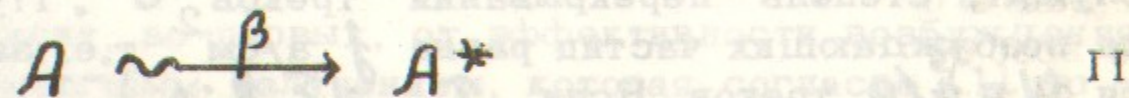
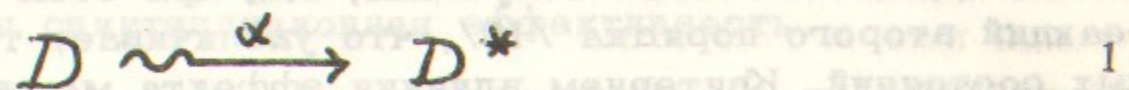
Т.е. выход люминесценции J из области объемом $1 \text{ (см}^2\text{)} \cdot \Delta \text{ (см)}$, где Δ — полный пробег первичной частицы,

$$J = k_A [A^*] \cdot \Delta = \text{const} \cdot j \quad (5)$$

будет линейно зависеть от плотности тока (k_A — константа скорости излучательного перехода молекул A^*).

При $\sigma > 1$ треки перекрываются, локальная плотность становится равна средней плотности, и процессы миграции энергии и тушения становятся нелинейными.

В случае бинарного раствора можно записать следующую систему реакций (учитывая, что $[A] \ll [D]$):



Здесь звёздочки обозначают возбужденные состояния, k_{XO} — константа реакций квазипервого порядка /10/, смысл остальных констант ясен из 1 - X.

Запишем скоростные уравнения для D ; A и Q :

$$\frac{d[D^*]}{dt} = \alpha [D] j - k_{DA} [D^*][A] - k_{DQ} [D^*][Q] - k_{D0} [D^*] \quad (6)$$

$$\frac{d[A^*]}{dt} = \beta [A] j + k_{DA} [D^*][A] - (k_{A0} + k_A) [A^*] - k_{AQ} [A^*][Q] \quad (7)$$

$$\frac{d[Q]}{dt} = \gamma [D] j - k_{DQ} [D^*][Q] - k_{AQ} [A^*][Q] - k_{Q0} [Q] \quad (8)$$

Если характерные времена жизни много меньше длительности импульса ионизирующего излучения, то производные по времени равны нулю и решение системы имеет два предельных случая: 1) передача энергии от D к A отсутствует ($k_{DA} = 0$), тогда следует учитывать только реакции II, III, VII-X, 2) заселение A^* происходит главным образом за счёт передачи энергии от D^* к A , тогда можно исключить реакцию II и предложить, что реакция VI более существенна, чем IX. Выражения для $[A^*]$, тогда соответственно будут:

$$[A^*] = \frac{\beta j [A]}{k_A + k_{A0} + \frac{k_{AQ}}{k_{Q0}} \gamma [D] j}, \quad (k_{DA} = 0) \quad (9)$$

$$[A^*] = \frac{k_{DA}}{k_{A0} + k_A} \cdot \frac{\alpha [D][A] j}{k_{DA} [A] + k_{D0} + \frac{k_{DQ}}{k_{Q0}} \gamma [D] j}, \quad (k_{DA} [D^*] \gg \beta j) \quad (10)$$

Из (9) и (10) видно, что интенсивность люминесценции растворов в обоих случаях с ростом плотности тока, начиная с

$j = e / \tau_{tr} S_{tr}$ возрастает как дробно-линейная функция j :

$$J = k_A [A^*] \cdot \Delta = \frac{C_1 j}{C_2 + C_3 j} \quad (11),$$

где константы C_i определяются из (9) или (10). Очевидно, однако, что при $k_{DA}[D] \gg \beta j$ абсолютная величина интенсивности люминесценции много больше, чем при наличии только прямого возбуждения.

Что касается зависимости интенсивности люминесценции от концентрации люминесцирующих молекул, то она должна существенно отличаться для обоих случаев. Из (9) и (10) найдем

$$J = C_1' [A], \quad (k_{DA} = 0) \quad (12)$$

$$J = \frac{C_2' [A]}{C_3' + C_4 [A]}, \quad (k_{DA}[D] \gg \beta j) \quad (13)$$

где C_i' - определяются из (9) и (10). Т.о. видно из (11), (12) и (13), что экспериментально полученные зависимости $J(j)$ и $J([A])$ могут сразу указать на наличие или отсутствие передачи энергии. Кроме того положение перегиба кривой $J(j)$, соответствующее переходу от зависимости (5) к зависимости (11) может дать информацию о "размерах" трека, т.е. о расстоянии, на которое мигрирует энергия первичного возбуждения.

II. Эксперимент

Как видно из раздела 1 накачка лазеров жестким излучением предъявляет иные требования к рабочей среде, чем световая накачка. В связи с этим традиционные "хорошие" красители типа родамина 6 G могут оказаться неподходящими. Выбор же подходящих сред на основе опыта работы со сцинтилляционными счетчиками ограничен узким классом соединений люминесцирующих в УФ области. Кроме того люминесцентные свойства сцинтилляторов изучались при низкой мощности дозы облучения, тогда как при

больших мощностях дозы выход люминесценции может значительно уменьшиться (см. раздел 1).

Для выяснения возможности получения генерации красителей при накачке электронным пучком были проведены следующие исследования:

- 1) измерены абсолютные выходы люминесценции ряда растворов, получена зависимость выхода люминесценции от плотности тока пучка и концентрации растворов;
- 2) измерен спад выхода люминесценции от поглощенной раствором дозы;
- 3) измерены оптические неоднородности, возникающие в рабочей жидкости в результате её облучения импульсом электронов.

Объектом исследования были выбраны красители, синтезированные в Институте Органической Химии СО АН СССР /11/ (красители 1 - 11 на рис.1), и для сравнения, известные красители родамина 6 -экстра и 9,10 - диацетил - антрагидрохинон (12 на рис.1), а также сцинтиллятор П -терфенил.

Поскольку продукты взаимодействия излучения с данным веществом в основном те же самые независимо от вида и энергии излучения /12/, результаты можно распространить на остальные виды излучений с поправкой на разницу в линейных потерях энергии.

1. Измерение выходов люминесценции

Зависимость интенсивности люминесценции от плотности тока измерена на установке (рис.2), состоящей из кюветы, расположенной на выходе ускорителя ЭЛИТ-1, монохроматора МДР-2 и фотомножителя ФЭУ 14Б. Ток, попадавший в кювету измерялся на сопротивлении R_1 , присоединенному к металлическому дну кюветы. Раствор отделялся от атмосферы десятимикронной лавсановой пленкой (раствор предварительно не обезгаживался). Длительность импульса тока 2 мксек, скважность при измерениях составляла 10сек. На рисунке 3 представлены результаты измерений при $j \leq 0,25 \text{ а/см}^2$ для наиболее интенсивно люминесцирующих красителей 2 и 4, П-терфенила и родамина 6. По оси ординат отложена наблюдаемая интенсивность на длине волны вблизи максимума (в относительных единицах). Масштаб кривых не соблюден, т.к. выход люминесцен-

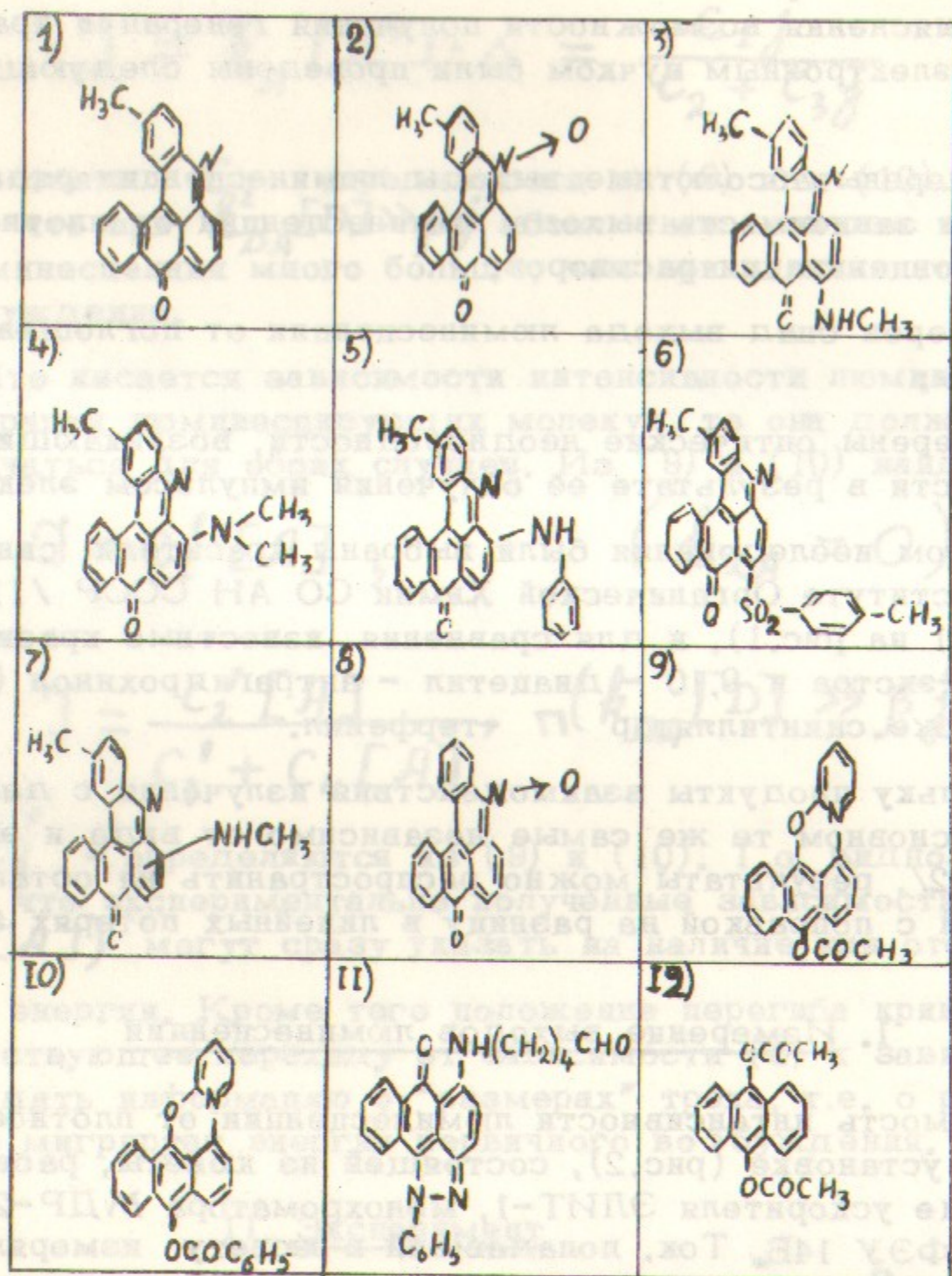


Рис.1. Структурные формулы исследованных соединений.

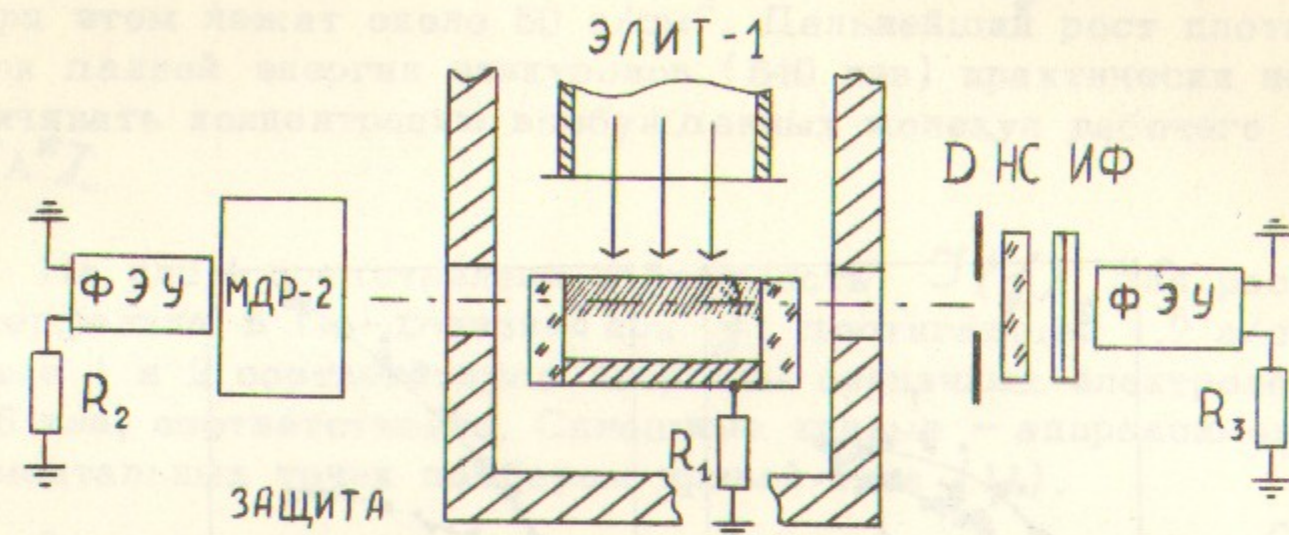


Рис.2. Установка для измерения выходов люминесценции

ции спиртовых растворов растворов чрезвычайно мал.

Видно, что зависимость интенсивности люминесценции от j для растворов в ароматических растворителях хорошо аппроксимируется функциональной зависимостью (11), - рис.3б, в, г, причём при данном масштабе графиков не наблюдается четкого прямолинейного участка вблизи нуля (5), что можно объяснить значительным перекрытием треков уже при $j \sim 0,02 \div 0,03$ а/см² (энергия электронов здесь 540 кэв). Из рис.3б видно, что вид кривой не зависит от концентрации при изменении её широких пределах.

Далее из графиков видно, что для растворов в этаноле зависимость J от j вначале близка к линейной, а затем резко отклоняется от последней. Это можно объяснить, предположив, что излом обусловлен перекрытием треков. По точке перегиба, соответствующей примерно 0,1 а/см², зная время жизни молекулы родамина $\tau \sim 10^{-8}$ сек, найдем площадь сечения трека из (3). При $\delta = 1$ "диаметр" трека будет $\sim 1400 \text{ \AA}$, что примерно равно расстоянию между шпорами в треке для электронов с $E_0 = 1 \text{ Мэв}$ /12/.

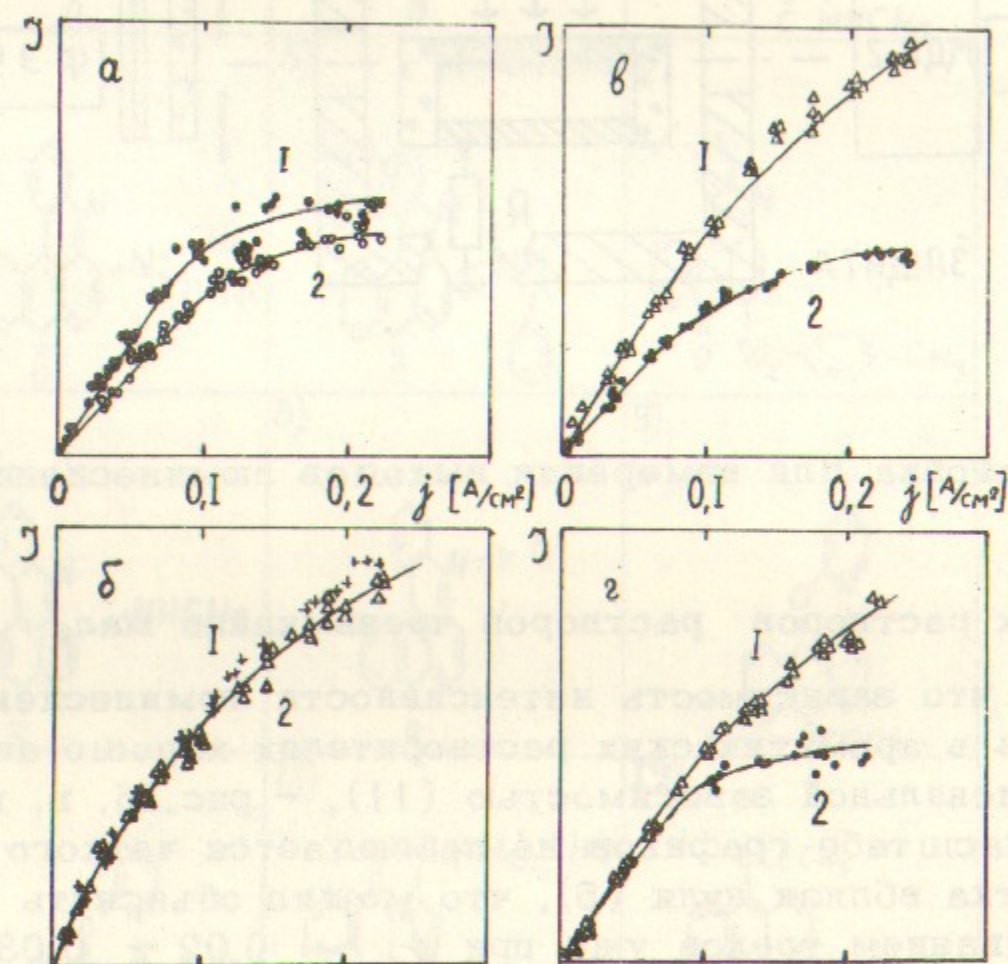


Рис.3. Интенсивность люминесценции растворов как функция плотности при $E_0 = 540$ кэв:

а) родамин 6 G -экстра в этаноле ($\lambda = 570$ нм), 1- $C=0,4$ г/л, 2- $C=0,3$ г/л; б) П-терфенил в бензоле ($\lambda = 350$ нм), 1- $C=5,0$ г/л, 2- $C=0,05$ г/л; в) краситель 4 ($\lambda = 620$ нм), 1-в толуоле $C=0,04$ г/л, 2-в этаноле $C=0,03$ г/л; г) краситель 2 ($\lambda = 610$ нм); 1- в бензоле $C=0,18$ г/л, 2-в этаноле $C=0,15$ г/л.

Функциональная зависимость (11) при росте j асимптотически стремится к предельному значению. Экстраполируем кривые, подобранные по экспериментальным точкам для П - терфенила и красителей 2 и 4, вплоть до значений $J = 0,9 J(j \rightarrow \infty)$. Значения j при этом лежат около 50 а/см². Дальнейший рост плотности тока при данной энергии электронов (540 кэв) практически не будет увеличивать концентрацию возбужденных молекул рабочего вещества $[A^*]$.

На рис.4 представлена зависимость $J(j)$ для раствора П - терфенила в П - ксилоле при j достигающей $1,2$ а/см². Кривые 1 и 2 соответствуют энергиям первичных электронов 900кэв и 685 кэв, соответственно. Сплошные кривые - аппроксимации экспериментальных точек подбором кривой типа (11).

Заметим, что если перестроить рис.4 в координатах $J(j \cdot E_0)$, т.е. построить зависимость интенсивности люминесценции от энергии, поглощаемой на 1 см² раствора, то кривая 2 будет лежать несколько ниже кривой 1, что указывает на более сильное тушение при меньших энергиях (и, соответственно, больших плотностях вторичных продуктов вдоль трека). Отношение измеренных интенсивностей $\frac{J(j \cdot E_0) | 900 \text{ кэв}}{J(j \cdot E_0) | 685 \text{ кэв}} = 1,3$ совпадает с тем же отношением для люминесценции вызываемой отдельными электронами, см.рис.6-1 в /1/.

На той же установке (рис.2) получена зависимость интенсивности люминесценции от концентрации C растворенного вещества. На рисунке 5 кривые 1 и 2 представляют интенсивность люминесценции раствора красителя в толуоле как функцию концентрации красителя в области длин волн $\lambda = 615$ нм и $\lambda = 648$ нм, соответственно. Спад кривых обусловлен самопоглощением фотонов люминесценции на крыле полосы поглощения люминесцирующих молекул. Для данной геометрии кюветы легко вычислить поправочный множитель

$$k = \frac{1 - 10^{-\epsilon c l}}{\epsilon c l \cdot \ln 10} \quad (14)$$

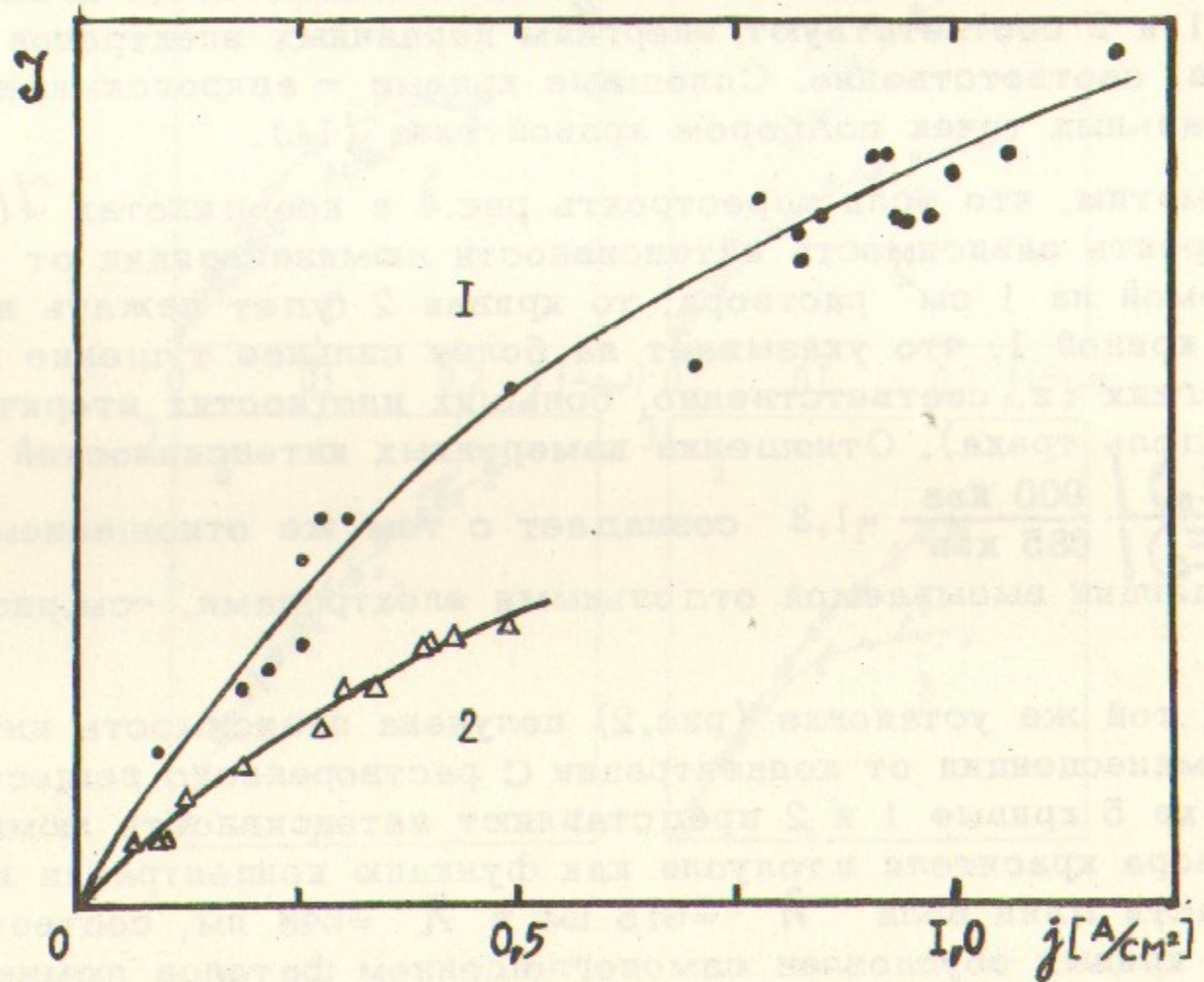


Рис.4. Интенсивность люминесценции П-терфенила в П-ксилоле как функция плотности тока $\lambda = 350\text{nm}$):
1 - $E_0 = 900$ кэв, 2 - $E_0 = 685$ кэв.

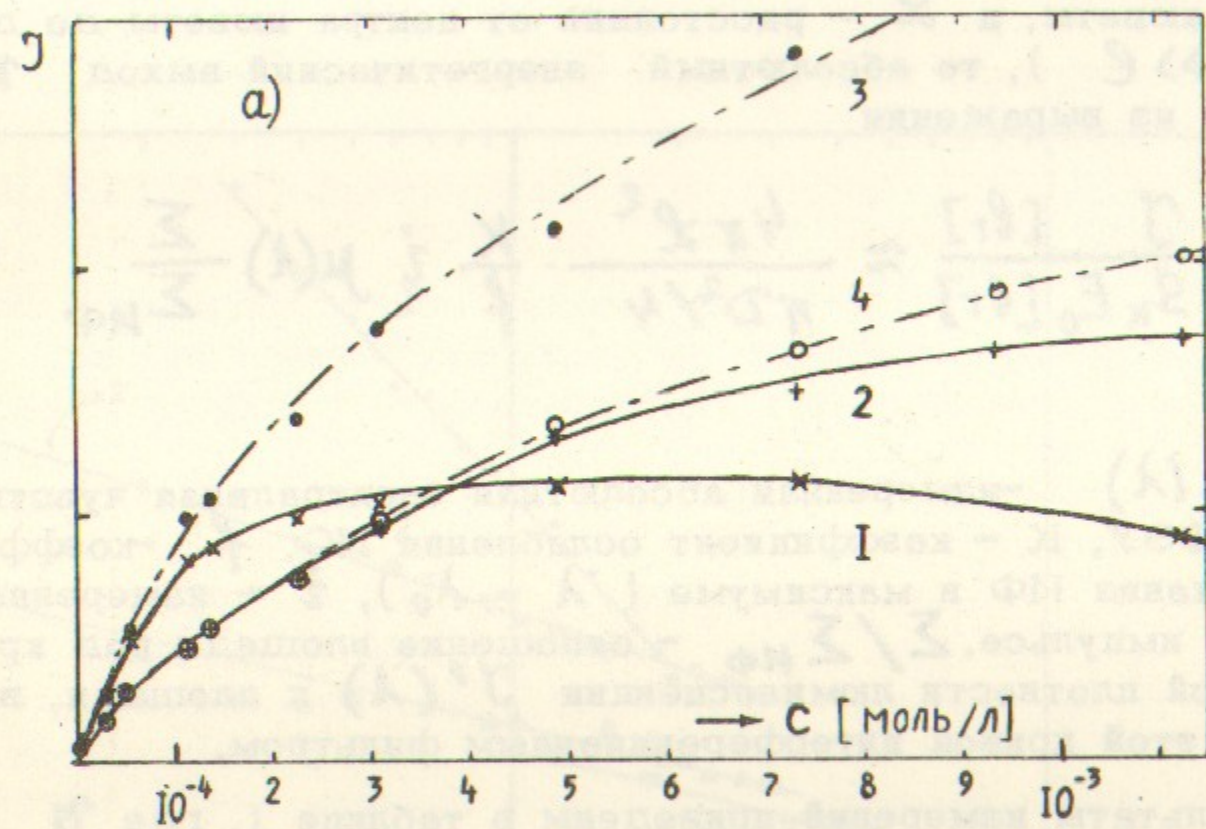


Рис.5. Зависимость интенсивности люминесценции раствора красителя 4 в толуоле от концентрации ($j = \text{const}$, $E_0 = \text{const}$).

для каждой экспериментальной точки. "Исправленные" кривые 3(615 нм) и 4(648 нм) аппроксимируются уравнением типа (13).

Интенсивность люминесценции красителя 4 в C_2H_5OH меньше фонового свечения и зависимость $\mathcal{J}(c)$ в этом случае снять не удалось.

Измерение абсолютным энергетических выходов проводилось на установке, изображенной на рис.2 справа (здесь, Д - диафрагма, НС-нормальный светофильтр, ИФ - интерференционный фильтр вырезавший узкую полосу $\Delta\lambda$ из спектра люминесценции). Если l - длина кюветы, а L - расстояние от центра кюветы до диафрагмы ($L \gg l$), то абсолютный энергетический выход η вычислялся из выражения

$$\eta = \frac{\mathcal{J} [вт]}{j S_k E_0 [вт]} \approx \frac{4\pi L^2}{\pi D^2/4} \cdot \frac{k}{f} i \mu(\lambda) \frac{\Sigma}{\Sigma_{ИФ}} \quad (15)$$

Здесь $\mu(\lambda)$ - измеренная абсолютная спектральная чувствительность ФЭУ, k - коэффициент ослабления НС, f - коэффициент пропускания ИФ в максимуме ($\lambda = \lambda_0$), i - измеренный ток ФЭУ в импульсе, $\Sigma/\Sigma_{ИФ}$ - отношение площади под кривой спектральной плотности люминесценции $\mathcal{J}'(\lambda)$ к площади, вырезаемый из этой кривой интерференционным фильтром.

Результаты измерений приведены в таблице 1, где η выражена в % к энергии поглощенного электронного пучка при указанной концентрации C раствора ($j = 0,25$ а/см², $E_0 = 540$ кэВ). В последнем столбце приведена рассчитанная концентрация возбужденных молекул C^* . Абсолютные измерения были проведены для 4-х соединений. Для остальных были измерены относительные выходы.

Для этого при постоянных параметрах электронного пучка измерялась спектральная плотность люминесценции

$$\mathcal{J}'(\lambda) = i(\lambda) \cdot \mu(\lambda) \cdot \xi(\lambda) \quad (16)$$

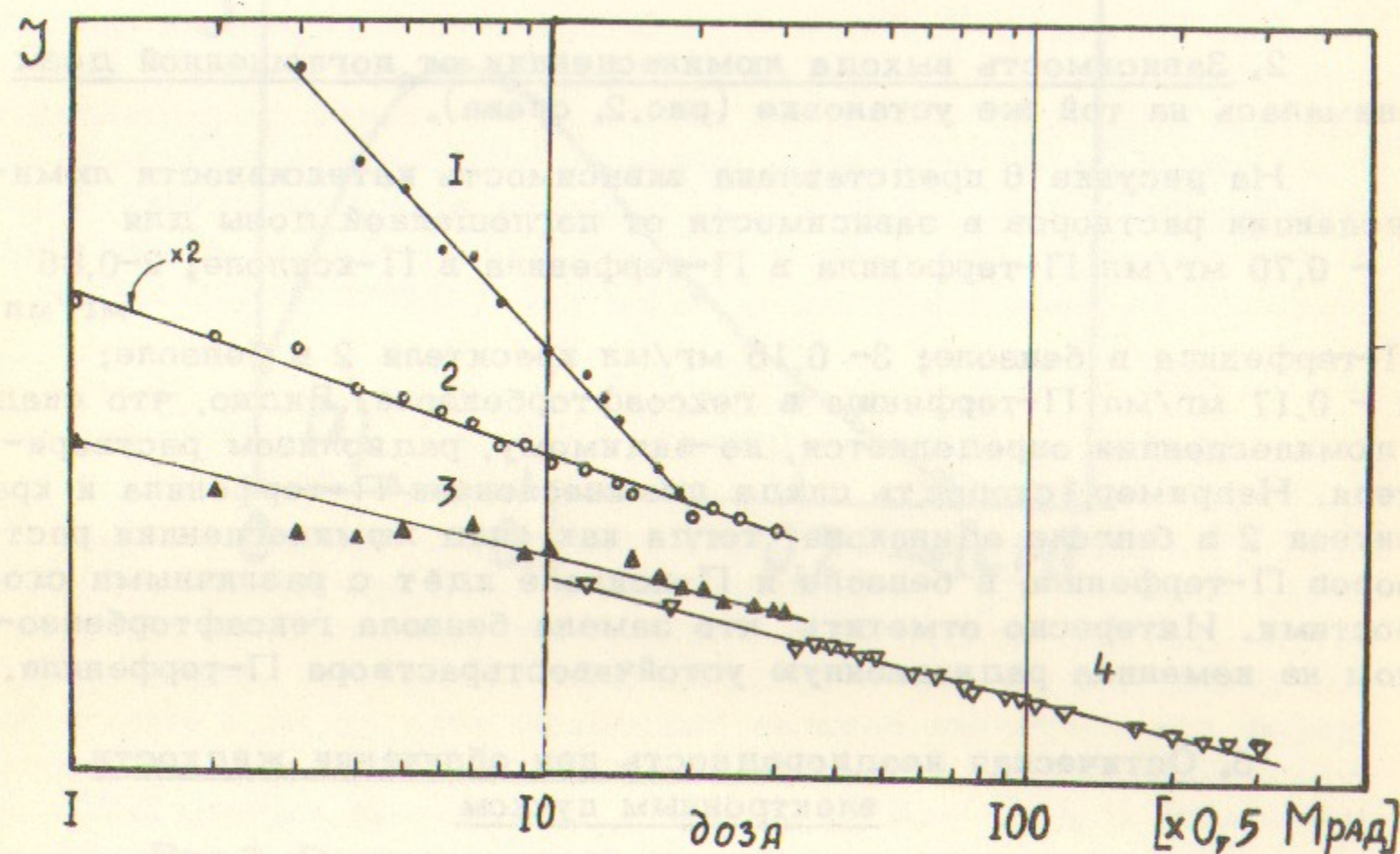


Рис.6. Зависимость интенсивности люминесценции от поглощенной раствором дозы.

где $\xi(\lambda)$ — измеренное спектральное пропускание монохроматора. Площадь под кривой

$$J = \int_0^{\infty} J'(\lambda) d\lambda \quad (17)$$

пропорциональна полной интенсивности люминесценции. Эта величина для П-терфенила принята за 100%. Полученные величины приведены в таблице П. Кроме того в таблице указаны λ_{\max} люминесценции и ширина полосы $\Delta\lambda$, рассчитанное время жизни $\tau^\circ / 13/$ и концентрация C раствора. Видно, что некоторые из использованных соединений имеют выходы того же порядка, что и П-терфенил, известный как один из лучших сцинтилляторов.

2. Зависимость выхода люминесценции от поглощенной дозы снималась на той же установке (рис.2, слева).

На рисунке 6 представлена зависимость интенсивности люминесценции растворов в зависимости от поглощенной дозы для 1 — 0,70 мг/мл П-терфенила в П-терфенила в П-ксилоле; 2—0,85 мг/мл П-терфенила в бензоле; 3— 0,15 мг/мл красителя 2 в бензоле; 4 — 0,17 мг/мл П-терфенила в гексафторбензоле. Видно, что спад люминесценции определяется, по-видимому, радиоллизом растворителя. Например, скорость спада люминесценции П-терфенила и красителя 2 в бензоле одинакова, тогда как спад люминесценции растворов П-терфенила в бензоле и П-ксилоле идёт с различными скоростями. Интересно отметить, что замена бензола гексафторбензолом не изменила радиационную устойчивость раствора П-терфенила.

3. Оптическая неоднородность при облучении жидкости электронным пучком

Из экспериментов с накачками жидкостных лазеров импульсными лампами известно /14/, что возникающий за счёт неоднородного нагрева градиент показателя преломления ("тепловой клин") может привести к срыву генерации. Аналогичная ситуация возникает при накачке лазера внешним источником жёсткого излучения.

На рисунке 7 представлено измеренное с помощью электроно-оптического преобразователя распределение интенсивности люми-

...распределения интенсивности люминесценции по глубине проникновения электронного пучка (E₀ = 0,8 Мэв). Эта кривая показывает, что потеря энергии электронами неопределяет момент, когда может наблюдаться распределение.

Для исследования временных характеристик откликной системы использован метод Тейлора /18/. Схема эксперимента изображена на рис.8. Источник света свечится в области 8 — 4 мм на табулированной лампе 0. Размер светящейся области 8 — 4 мм (рис.8) и свет, проходя через неё, падает на фотоприёмник.

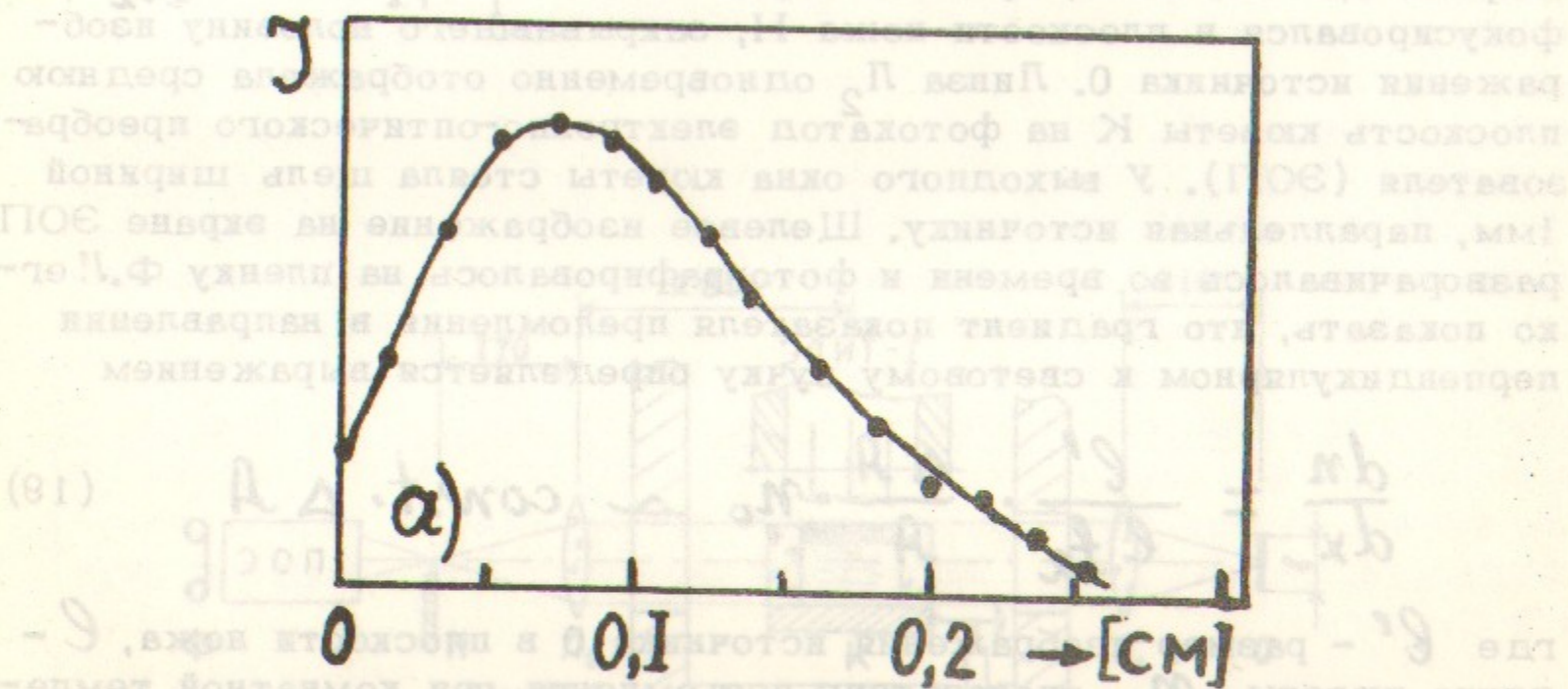


Рис.7. Распределение интенсивности люминесценции по глубине проникновения электронного пучка (E₀ = 0,8 Мэв).

...распределения интенсивности люминесценции по глубине проникновения электронного пучка (E₀ = 0,8 Мэв). Эта кривая показывает, что потеря энергии электронами неопределяет момент, когда может наблюдаться распределение.

несценции вдоль направления распространения электронного пучка с энергией $E_0 = 0,75$ Мэв (краситель 2 в бензоле). Эта кривая повторяет вид распределения диссипации энергии электронного пучка в жидкости /15/. Видно, что потери энергии существенно неоднородные и что в момент импульса может наблюдаться расстройка резонатора.

Для исследования временных характеристик оптической неоднородности был использован метод Теплера /16/. Схема эксперимента изображена на рис.8. Источником света служила импульсная газоразрядная лампа O . Размеры светящейся области $\rho = 4$ мм, ширина $0,3$ мм. Свет, проходя через линзы L_1 ($f_1 = 210$) и L_2 ($f_2 = 170$) фокусировался в плоскости ножа H , закрывавшего половину изображения источника O . Линза L_2 одновременно отображала среднюю плоскость кюветы K на фотокатод электронно-оптического преобразователя (ЭОП). У выходного окна кюветы стояла щель шириной 1 мм, параллельная источнику. Щелевое изображение на экране ЭОП разворачивалось во времени и фотографировалось на пленку Φ . Легко показать, что градиент показателя преломления в направлении перпендикулярном к световому пучку определяется выражением

$$\frac{dn}{dx} = \frac{\rho'}{e f_2} \cdot \frac{\Delta A}{A} \cdot n_0 \sim \text{const} \cdot \Delta A \quad (19)$$

где ρ' - размер изображения источника O в плоскости ножа, e - длина кюветы, n_0 - показатель преломления при комнатной температуре, $\Delta A/A$ - относительное изменение освещенности в исследуемой точке. На рисунке 9 представлены результаты обработки фотографии при облучении бензола импульсом тока ($E_0 = 0,9$ Мэв) почти треугольной формы слева показана измеренная разность плотности почернения ($\Delta S \sim \Delta A$) вдоль изображения кюветы $\Delta S(x) = S_0 - S$ где S_0 - плотность почернения изображения точки X в отсутствие электронного пучка, а S - плотность почернения изображения той же точки в тот же момент времени при облучении кюветы. Из рисунка видно, что имеется задержка между временем начала поглощения энергии и началом нарастания градиента показателя преломления, равная $\sim (2 - 3)$ мксек. Начальная глубина оптической неоднородности примерно равна глубине проникновения электронного пучка, затем градиент возрастая распространяется на всю глубину кюветы и начинает спадать по величине. Приведенной картине можно

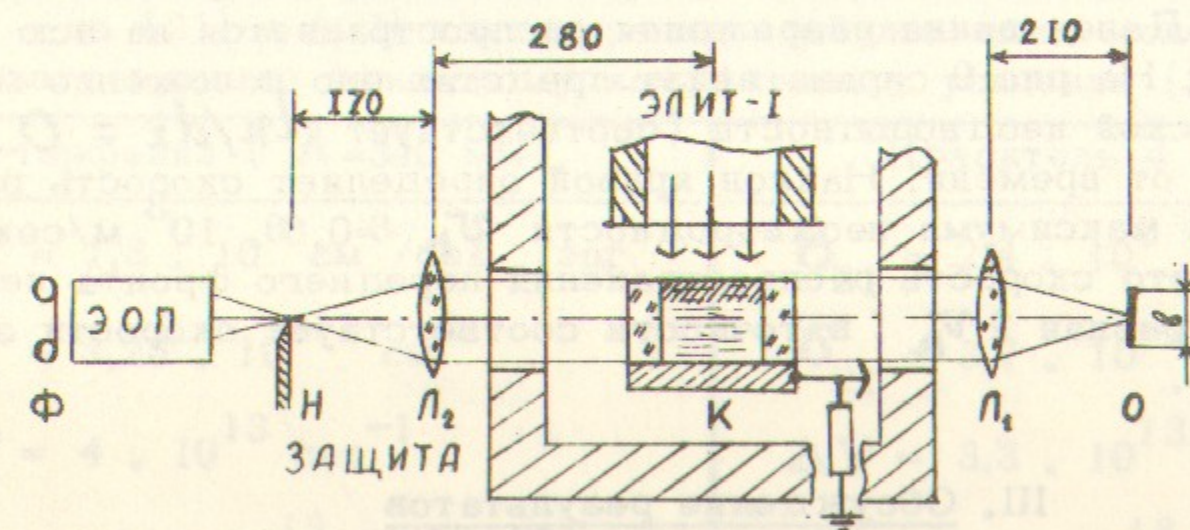


Рис.8. Схема установки для исследования временных характеристик градиента показателя преломления.

дать следующее объяснение. Почти вся энергия электронного пучка переходит в жидкости в тепло за времена $10^{-11} - 10^{-13}$ сек/13/. Поскольку показатель преломления зависит от числа осцилляторов в единице объема, т.е. от плотности среды, то расширение нагретого объема вызовет уменьшение показателя преломления в данном элементарном объеме, пропорциональное поглощенной в нём энергии. Как известно /17/, в жидкостях волна разрежения распространяется со скоростью звука

$$c_0 = \sqrt{\frac{V}{\alpha}} \quad (19)$$

где $V = 1/\rho$ - удельный объем, а α - модуль сжимаемости. Время возникновения градиента показателя преломления будет определяться временем распространения волны разрежения на расстояние X , равное $t_x = X/c_0$. Если $X = 3$ мм (см. рис. 7), а $c_0 = 1,3 \cdot 10^3$ м/сек. (для бензола), то $t_x = 2,3 \cdot 10^{-8}$ сек, т.е. t_x^0 соответствует наблюдаемому времени задержки развития неоднородности. Далее волна разрежения распространяется на всю глубину кюветы. На рис. 9 справа внизу представлено положение максимума оптической неоднородности (соответствует $dn/dx = 0$) в зависимости от времени. Наклон кривой определяет скорость распространения максимума неоднородности $v_n = 0,6 \cdot 10^3$ м/сек. Т.о. видно, что скорость распространения переднего фронта неоднородности, равная $2v_n$, в точности соответствует скорости звука в бензоле.

III. Обсуждение результатов

Проведённые эксперименты позволяют сделать некоторые выводы относительно накачки жидких органических лазеров электронным пучком.

Сначала проведём расчёт требуемой пороговой концентрации возбужденных молекул для раствора П-терфенила и красителя 4. Если длина кюветы с алюминированными торцами равна $l = 4$ см, одно из зеркал глухое, а другое пропускает 10% падающих фотонов ($T = 0,1$), тогда без учёта синглет-синглетного и триплет-триплетного поглощения пороговый коэффициент усиления среды должен быть

$$k = \frac{(1-R)(1-R+T)}{2l} \quad (20)$$

где R - коэффициент отражения на частоте генерации ν_r (см. /18/). Для $\lambda = 340$ нм $k = 6 \cdot 10^{-3}$ см $^{-1}$, а для $\lambda = 640$ нм $k = 10^{-3}$ см $^{-1}$.

С другой стороны коэффициент усиления среды равен /6/ (в обычных обозначениях)

$$k_{21}(\nu) = \alpha_{21}(\nu) \left[\frac{n_2}{n} - \frac{n_1}{n} e^{-\frac{h(\nu_{21}-\nu)}{kT}} \right] \quad (21)$$

$$\alpha_{21}(\nu) = \frac{h\nu}{v} n B_{21}(\nu) = n \sigma_{21}(\nu) \quad (22)$$

где σ_{21} - сечение предельного усиления. Используя спектры поглощения и люминесценции и вычислив B_{21} через $A_{21} = (\tau^0)^{-1}$, найдём из (21) и (22) концентрации возбуждённых молекул $n \equiv [A]$, соответствующие пороговому коэффициенту усиления (20):

П-терфенил ($\lambda = 340$ нм)	Краситель 4 ($\lambda = 640$ нм)
$B_{21} = 1,3 \cdot 10^6$ см 3 /сек. эрг	$B_{21} = 2,4 \cdot 10^5$
$\sigma_{21} = 3,25 \cdot 10^{-11}$ см 2	$\sigma_{21} = 3,7 \cdot 10^{-17}$
$\Delta\nu = 4 \cdot 10^{13}$ сек $^{-1}$	$\Delta\nu = 3,3 \cdot 10^{13}$
$n_2 = 1,85 \cdot 10^{13} + 1,7 \cdot 10^{-3} n$	$n_2 = 2,7 \cdot 10^{13} + 5 \cdot 10^{-3} n$
1) если $n = 5 \cdot 10^{16}$ см $^{-3}$ $n_2 = 1,35 \cdot 10^{14}$ см $^{-3}$	1) если $n = 5 \cdot 10^{16}$ $n_2 = 2,77 \cdot 10^{14}$
2) если $n = 10^{19}$ см $^{-3}$ $n_2 = 1,7 \cdot 10^{16}$ см $^{-3}$	2) если $n = 10^{19}$ $n_2 = 5 \cdot 10^{16}$

Сравнивая требуемые величины n_2 с приведенными в таблице 1 видим, что для достижения порога генерации нужно увеличить концентрацию возбужденных молекул \sim в 20 раз. А экстраполируя кривые на рисунках 3 и 4 найдём, что такие концентрации могут быть достигнуты при плотности тока ~ 50 а/см² при $E_0 \sim 1$ Мэв. Желательно, однако, чтобы импульс тока имел очень крутой передний фронт с тем, чтобы генерация успела начаться раньше, чем произойдет заселение триплетного состояния.

Из рис.9 следует, что длительность электронного пучка накачки может быть порядка 2 мксек. За это время не успевают произойти существенной расстройки резонатора за счёт теплового клина. Кроме того при токе ~ 100 а/см² эта длительность является

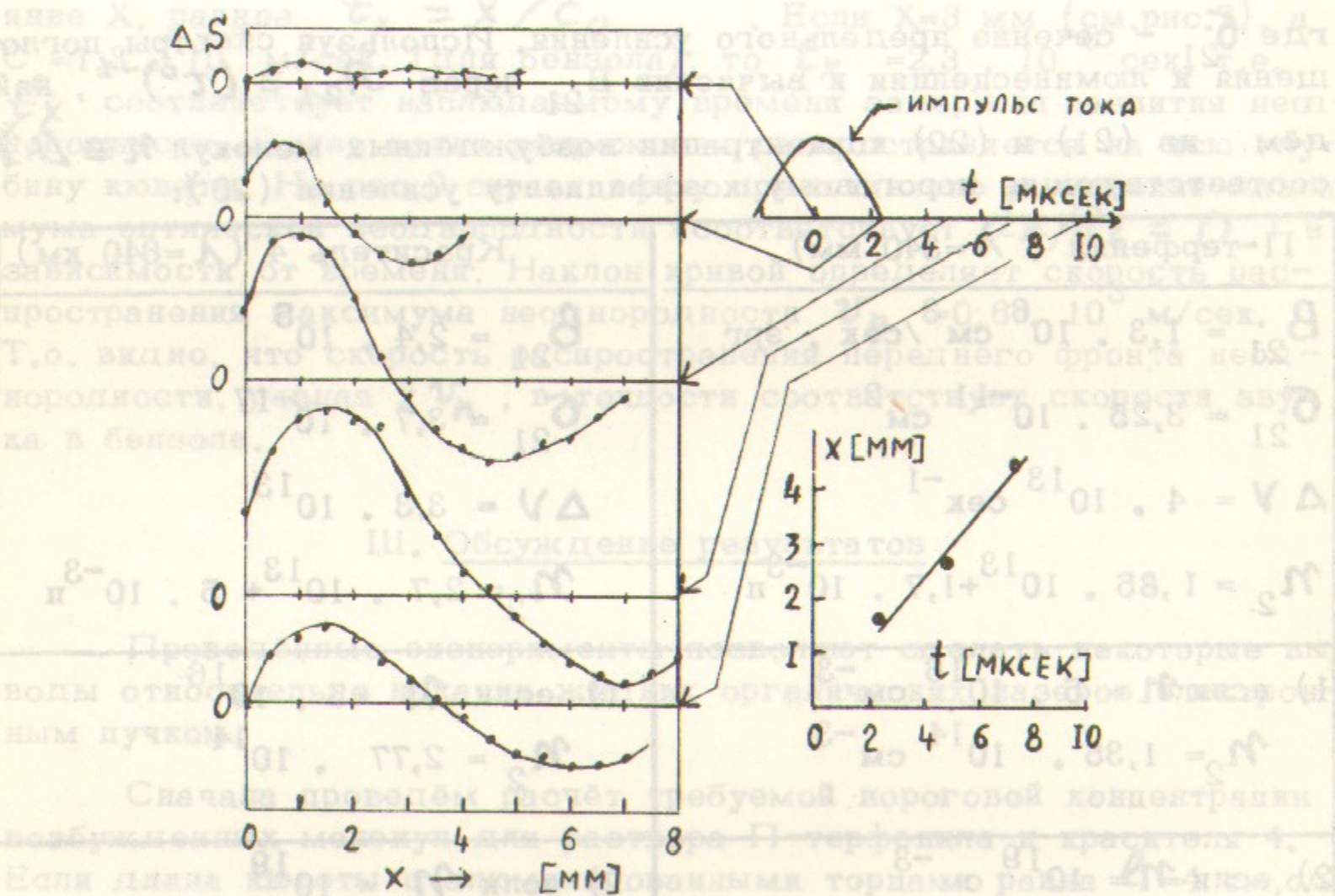


Рис.9. Результаты измерений оптической неоднородности

$$k = \frac{(1-R)(1-R+T)}{2e} \quad (20)$$

оптимальной и по соображениям радиационной устойчивости. А именно, из рис.6 следует, что доза, поглощение раствором терфенила в бензоле за импульс с указанными параметрами, приводит к уменьшению интенсивности люминесценции в 4 раза, т.е. раствор "вырабатывается" за 1 импульс.

Измеренный выход люминесценции $\sim 0,25\%$ (для п-терфенила) при $0,25$ а/см² невысок и видимо объясняется эффектами мощности дозы /10/. Действительно, касательная, проведенная в начале координат к кривой $\eta(j)$ на рис. 3б дала бы выход люминесценции при $0,25$ а/см² в 3 - 4 раза больший. Видно также, что рост E_0 также ведет к увеличению выхода люминесценции.

В заключение следует заметить, что повысить выход возбужденных состояний может и дальнейший поиск красителей, с высокой эффективностью поглощающих энергию, запасенную в растворителе, обладающих высоким квантовым выходом, малым перекрытием спектров поглощения и люминесценции, а также подбором эффективных средств тушения триплетных состояний.

Авторы выражают глубокую благодарность А.М.Оришичу и А.И.Шушаро за помощь в шпирен-измерениях, а также Р.В.Хохлову, Г.А.Абакумову, В.В.Фадееву за полезное обсуждение результатов.

Таблица 1

Вещество	Растворитель	$C \cdot 10^{-16} \text{ см}^{-3}$	$\eta\%$	$C^* \cdot 10^{-12} \text{ см}^{-3}$
П-терфенил	бензол	1320	0,22	9,4
--	толуол	--	0,25	10,7
Родамин 6G	C_2H_5OH	4,8	0,0017	0,2
4	Толуол	6,4	0,016	6,5
--	C_2H_5OH	--	0,00016	0,065
11	толуол	5,4	0,0032	0,9
--	C_2H_5OH	11	0,00012	0,07

Таблица II

Вещество	λ_{max} нм	$\Delta\lambda$ нм	$\tau_{\text{нсек}}^{\circ}$	$C \cdot 10^5$ моль/л	η %
П-терфенил	340	26		13,0	100
1	550	-	22	6,8	-
2	600	72	42	9,7	79
3	560	-	59	6,2	-
4	625	88	23	5,9	46
5	625	106	40	5,3	13
7	570	70	49	5,6	38
9	510	102	26	9,1	27
10	-	-	38	10,2	-
12	420	64	50	7,0	17

Л и т е р а т у р а

- /1/ K. Thom, R.T. Schneider, *AJAA Paper*
No 71-110 (1971)
- /2/ В.М. Андрияхин, В.В. Васильцов, С.С. Красильников, В.Д. Письменный, В.Е. Хвостюнов. Письма в ЖЭТФ, 12, 83 (1970).
- /3/ Г.Г. Долгов-Савельев, Б.А. Князев, Ю.Л. Козьминых, В.К. Кузнецов, А.М. Оришич. ЖПС, 12, 1930 (1970).
- /4/ Н.Г. Басов, В.А. Данилычев, Ю.М. Попов. Сб. "Квантовая электроника", 1971, № 1, 29.
- /5/ Ю.К. Воронько, Э.Л. Нолле, В.В. Осико, М.И. Тимошечкин. Письма в ЖЭТФ, 13, 125 (1971).
- /6/ Б.И. Степанов, А.Н. Рубинов. УФН, 95, 45 (1968).
- /7/ Г.А. Абакумов, А.П. Симонов, В.В. Фадеев, Л.А. Харитонов, Р.В. Хохлов. Письма в ЖЭТФ, 9, 15 (1969).
- /8/ H.W. Furumoto, K.L. Sisson *IEEE J. QE-6*,
262 (1970)
- /9/ J.V. Birks, "Theory and Practice of Scintillation Counting", N.Y., 1964
- /10/ "Углеводороды, Аспекты радиоллиза", под ред. Ю. Уанье и Т. Гейманна, "Мир", 1971.
- /11/ Е.П. Фокин, Р.П. Шишкина. Изв. Сиб. отд. АН СССР, сер. хим., 12, № 5, 104 (1969); Е.П. Фокин, В.Я. Денисов. Изв. АН СССР сер. хим., 2073 (1965); Е.П. Фокин, В.Я. Денисов, И.Г. Сивакова. Изв. СО АН СССР, сер. хим. - , 143, 1965, Е.П. Фокин и др. Изв. СО АН СССР, сер. хим. 1971 (в печати).
- /12/ Дж. Синкс, Р. Вудс. "Введение в радиационную химию", Атомиздат, 1967
- /13/ Н. Турро. "Молекулярная фотохимия", Мир, 1967.

- /14/ В.В. Znavely *Proc of IEEE*, 57, 1374 (1969)
- /15/ R.D. Birkhoff "Handbuch der Physik",
v. 34, 1958
- /16/ Л.А. Душин, О.С. Павличенко. "Исследование плазмы с помощью лазера", Атомиздат, 1968.
- /17/ Я.Б. Зельдович, Ю.П. Райзер. "Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений", 1964.
- /18/ Дж. Кей, Т. Лэби. "Таблицы физических и химических постоянных", ФМ, 1962.

