

ФИЗИКА НАШИХ ДНЕЙ

535

**НОВЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ МЕТОДЫ ИЗУЧЕНИЯ
БЫСТРОПРОТЕКАЮЩИХ ПРОЦЕССОВ****И. Л. Фабелинский**

1. Введение. 2. Определение времени жизни фононов, возникших в вынужденном рассеянии Мандельштама — Бриллюэна. 3. Методы прямого определения времени восстановления поглощения некоторых растворов красителей, просветленных под действием интенсивного света. 4. Сверхскоростной оптический затвор и некоторые его применения. 5. Применение импульсных источников света в теневом методе (метод Теплера).

1. ВВЕДЕНИЕ

Методы прямого измерения времен и изучения кинетики быстропротекающих процессов представляют большую ценность для различных областей науки и техники. Современные оптические методы прямых измерений в наносекундном и пикосекундном диапазоне времен стали возможны благодаря успешному развитию техники генерирования коротких и сверхкоротких интенсивных импульсов света и начали развиваться за последние 2—3 года. В этой статье мы расскажем об основных принципах новых методик и не будем уделять много места обсуждению полученных этими методами физических результатов. Этот последний вопрос заслуживает самостоятельного детального рассмотрения.

До появления лазерных импульсных источников света изучение различных быстропротекающих процессов производилось с помощью различного типа механического разворачивания во времени изображения изучаемого явления. Этот способ позволял изучать процессы, длительность которых не меньше 10^{-7} — 10^{-8} сек^{1, 2}.

Процессы, протекающие за время $\sim 10^{-9}$ сек, уже требовали более сложной методики, использующей модуляцию света либо в ультразвуковой ячейке, либо в ячейках Керра или Покейса³⁻⁵. Прямые способы изучения процессов, развивающихся быстрее чем за 10^{-9} сек, встретились с, казалось бы, непреодолимыми трудностями. Повышение частоты ультразвуковой модуляции до частот, превышающих 10^9 гц, требует применения криогенной техники, что сильно осложняет применение этого метода и ограничено частотой $\sim 10^{10}$ гц.

Применение ячейки Керра для модуляции света (более высокой частотой, чем 10^9 гц) после работы⁶ казалось вовсе невозможным, поскольку там время релаксации анизотропии в нитробензоле и хлороформе было найдено равным $2 \cdot 10^{-9}$ сек. Такой результат противоречил нашим косвенным определениям времени релаксации анизотропии^{7, 8}, и вскоре появилось указание⁸ на неправильность выводов работы⁶. Однако

модуляция на высоких частотах, основанная на использовании эффекта Керра для измерения времен короче 10^{-9} сек, не осуществлялась.

Успешно развивалась техника модуляции света, основанная на эффекте Покейса. Этот метод позволил произвести модуляцию света частотой $\sim 10^{10}$ гц и даже более высокими частотами ^{4, 9}, но, насколько нам известно, и этот способ не применялся для прямых измерений быстропротекающих процессов, хотя он имеет много сильных сторон и, возможно, еще найдет применение в дальнейшем.

В последние годы эффективно развивается способ изучения быстропротекающих процессов путем применения электронной развертки изображения в приборах типа электронно-оптических преобразователей изображения ¹⁰⁻¹², который уже теперь позволяет изучать процессы длительностью 10^{-10} — 10^{-11} сек.

Здесь мы не будем касаться этого и уже упомянутых «старых» методов прямого измерения и изучения быстропротекающих явлений, но сосредоточим внимание на новых оптических методах.

Новые методы, о которых будет идти речь ниже, чисто условно можно разделить на два типа:

1) Методы, в которых используются два скрещенных или коллинеарных импульса света, причем один из них интенсивный — вызывает изучаемое явление (нелинейное оптическое явление), а другой слабый импульс той же или другой длительности и длины волны служит пробным или зондирующим («прощупывающим») явление в разные моменты его развития.

2) Метод, в котором также используются два импульса света, причем интенсивный импульс вызывает в ячейке (с сероуглеродом, например) высокочастотный эффект Керра, и если этот импульс короткий (например, пикосекундной длительности), то он создает сверхбыстрый оптический затвор. Слабый импульс, который также может быть той же или другой длины волны и длительности, может нести сведения о быстро развивающемся явлении и регистрироваться в разные фазы развития явления пикосекундными экспозициями.

Требование к интенсивности малоинтенсивного луча только такое, чтобы за время экспозиции явление могло быть зарегистрировано и чтобы этот свет не вызывал нелинейных эффектов. Пока насчитывается всего несколько работ, посвященных развитию новых методов, но эти методы уже применены для изучения и измерения таких явлений и величин, как время безызлучательных переходов, время просветления и восстановления поглощения в насыщающихся растворах, время затухания флуоресценции, время жизни фононов в кристалле при разных температурах и кинетике развития плазмы, возникшей в сфокусированном импульсе интенсивного света.

2. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВРЕМЕНИ ЖИЗНИ ФОНОНОВ, ВОЗНИКШИХ В ВЫНУЖДЕННОМ РАССЕЯНИИ МАНДЕЛЬШТАМА — БРИЛЛЮЭНА

Изучение поглощения звука высокой частоты в кристаллах при низких температурах существенно продвинулось вперед в последнее время. Использование метода, предложенного Баранским ¹³, позволило в ряде случаев изучать поглощение гиперзвука вплоть до частот 114 Ггц. Поглощение звука высокой частоты было доступно изучению ранее только при очень низких гелиевых температурах или близких к ним ¹⁴⁻¹⁵. Наиболее труднодоступная для изучения область времени жизни фононов лежит между 10^{-7} и 10^{-8} сек. Эта область и была недавно изучена с использованием наносекундных импульсов рубинового лазера ^{16, 17}. Схема опыта

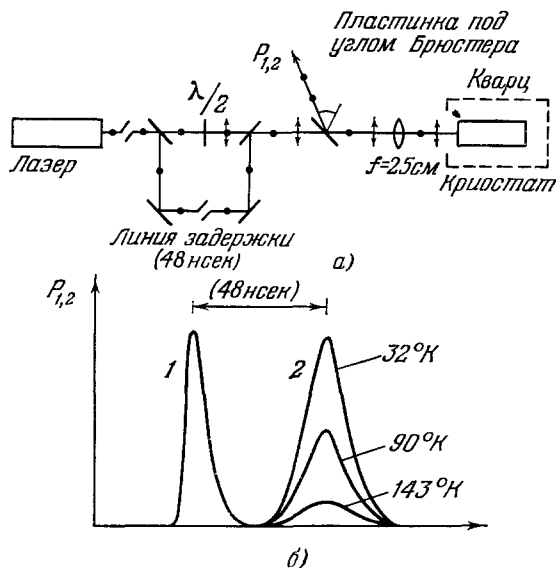


Рис. 1 а) Схема установки для определения времени жизни фононов, генерируемых при вынужденном рассеянии Мандельштама — Бриллюэна^{16, 17}. б) Осциллограммы тока, вызванного светом, отраженным назад при разных температурах кварца.

1 — импульс света ВРМБ, рассеянного назад без задержки; 2 — импульсы с одной и той же задержкой (48 нсек) при трех температурах образца кварца.

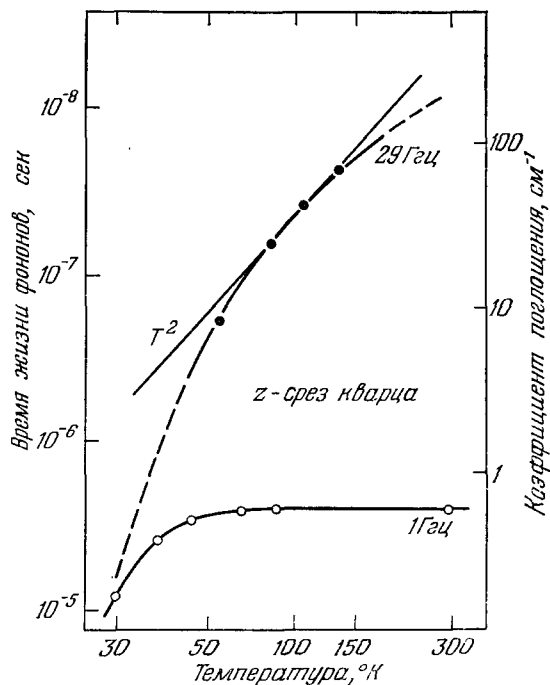


Рис. 2. Время жизни фононов в кварце для частоты 28 ГГц в кристалле кварца при различных температурах.

Штриховой линией дана квадратичная по частоте экстраполяция времени жизни фононов. Для сравнения приведены прежние данные для частоты 1 ГГц^{16, 17}.

показана на рис. 1, а. Луч рубинового лазера с модулированной добротностью, пиковой мощностью 15 *Мвт* и полушириной по времени 16 *нсек* направлялся в образец *z*-среза кварца, помещенного в криостат. Малая часть света ответвлялась, задерживалась по времени и посылалась в том же направлении с первоначальной поляризацией. Основная часть пучка (с поляризацией, повернутой на 90°) вызывала в образце монокристалла кварца вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна, которое в свою очередь рождает интенсивную гиперзвуковую волну, двигающуюся в направлении возбуждающего света ¹². Слабый ответвленный луч света, который мы будем здесь и в других случаях в дальнейшем называть пробным или зондирующим лучом, задерживался относительно возбуждающего света на 48 *нсек*.

Если в момент его прихода в объем, где рождена гиперзвуковая волна, эта волна еще не успела затухнуть, то пробный свет почти полностью отражается от звуковой «решетки». Чем больше затухание, тем менее интенсивно отражение. На рис. 1, б кривая 1 соответствует незадержанному свету Мандельштама — Бриллюэна, а кривая 2 показывает, как при одной и той же задержке растет затухание гиперзвука от температуры от 32 до 143° К.

Результаты измерения времени жизни фононов и соответствующие им коэффициенты поглощения гиперзвука частоты 29 *Гц* приведены на рис. 2. Из рис. 2 видно, что в области температуры ~100° К коэффициент поглощения для 29 *Гц* падает как квадрат температуры и не выявляет плато, найденное для частоты 1 *Гц* (для примера приведено на том же рисунке).

Если считать, что поглощение гиперзвука вызвано взаимодействием с тепловыми фононами (т. е. фонон-фононное взаимодействие ^{18, 19}), то следует предположить, что $\omega\tau_{\text{тепл}} \geq 1$ и для 29 *Гц* вплоть до температуры 150° К время жизни соответствующих тепловых фононов (включая *U*- и *N*-процессы) $\tau_{\text{тепл}} \geq 0,5 \cdot 10^{-11}$ *сек*.

Изучение фонон-фононного взаимодействия путем исследования поглощения звука в кристаллах и особенно при низких температурах стало интересной и существенной областью физики твердого тела ²⁰. В этой статье мы вовсе не будем касаться этого важного вопроса по существу, но лишь обращаем внимание на новый простой способ измерения времени жизни фононов, рожденных в процессе вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна.

3. МЕТОДЫ ПРЯМОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ ВРЕМЕНИ ВОССТАНОВЛЕНИЯ ПОГЛОЩЕНИЯ НЕКОТОРЫХ РАСТВОРОВ КРАСИТЕЛЕЙ ПРОСВЕТЛЕННЫХ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ИНТЕНСИВНОГО СВЕТА

Хорошо известно, что в качестве модуляторов добротности оптического резонатора лазеров используются кюветы, наполненные растворами криптианина, фталоцианина или других красителей в разных растворителях, иногда обозначенных определенным шифром.

Кювета с раствором таких красителей помещена внутрь оптического резонатора и настолько портит его добротность, что генерация светового импульса не возникает при такой степени инверсии заселенностей уровней, которая повела бы к вынужденному излучению в отсутствие кюветы с поглотителем.

Такая «задержка» вынужденного излучения приводит к еще большей инверсии, в результате которой рождается настолько интенсивное вынужденное излучение, многократно проходящее сквозь кювету, что оно переводит практически все молекулы поглотителя света в возбужденное

состояние, раствор становится прозрачным и начинается генерация при большой степени инверсии. После того как действие интенсивного света прекращается, возбужденные молекулы красителя возвращаются в основное состояние и раствор становится непрозрачным. Существенно измерить время жизни молекул в возбужденном состоянии или время восстановления прежнего поглощения. Эти времена очень короткие, и поэтому существовавшие ранее прямые способы их измерения непригодны.

Появление лазеров с синхронизацией мод, которые излучают цуги пикосекундных импульсов длительностью в несколько пикосекунд, разделенные между собой временем в несколько наносекунд, позволило развить методы прямого измерения времени жизни возбужденного состояния.

Лазер на неодимовом стекле

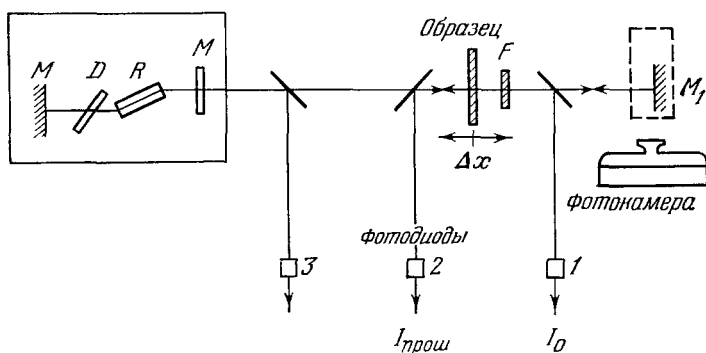


Рис. 3. Схема установки для прямого определения времени восстановления поглощения насыщающихся растворов красителей²². M и M_1 — зеркала; R — стержень из неодимового стекла; D — насыщающийся раствор красителя; $I-3$ — фотодиоды; I_0 — интенсивность зондирующего луча; $I_{\text{прош}}$ — интенсивность зондирующего луча, прошедшего через образец раствора красителя. Зеркало M_1 может помещаться в кювету (показана штриховыми линиями) для определения длительности импульса методом двухфотонной люминесценции.

Учитывая, что время жизни в возбужденном состоянии таких красителей определяется несколькими пикосекундами, от одного импульса до другого проходит вполне достаточное время, чтобы система полностью пришла в исходное состояние равновесия. Другими словами, самое длинное время релаксации системы гораздо короче времени между двумя соседними импульсами.

Экспериментальный метод прямого измерения наносекундного времени жизни молекул в возбужденном состоянии или времени безызлучательного опустошения возбужденного уровня описан Шелтоном и Армстронгом²¹ и использовался Скарлетом и др.²² Кинетика возбуждения и опустошения этого быстро развивающегося процесса может быть прослежена. Действительно, если располагать лазером с модулированной добротностью и синхронизованными модами, таким, что в цуге пикосекундных импульсов каждый индивидуальный импульс отделен от своих ближайших соседей на время, например $4 \cdot 10^{-9}$ сек, как в опыте Скарлета и др.²², то можно с помощью пробного пикосекундного импульса проследить процесс просветления раствора и восстановления поглощения в нем.

Для примера на рис. 3 приведена схема установки, использованная в опыте²². За излучаемым образцом раствора красителя (краситель Кодак 9860) и светофильтром F на расстоянии 60 см помещено отражающее зеркало. Если время между двумя соседними пикосекундными импульсами 4 нсек, то свет n -го импульса, отраженного от зеркала M_1 , встретится

в образце с $(n + 1)$ -м импульсом, вступающим в образец. Интенсивность пробного импульса I_0 регистрируется фотодиодом, а интенсивность пробного импульса, вышедшего из образца в некоторый момент, регистрируется на другом фотодиоде. Меняя положение образца вдоль оси всего устройства, можно просвечивать раствор в разные моменты возникновения просветления и восстановления поглощения. На рис. 4 приведена кривая зависимости $\frac{I_{\text{проп}}}{I_0}$ в функции относительного сдвига появления просветляющего и пробного импульса в образце.

Измерения интенсивности на сравнительно инерционном осциллографе и, следовательно, усреднение по разным импульсам можно считать

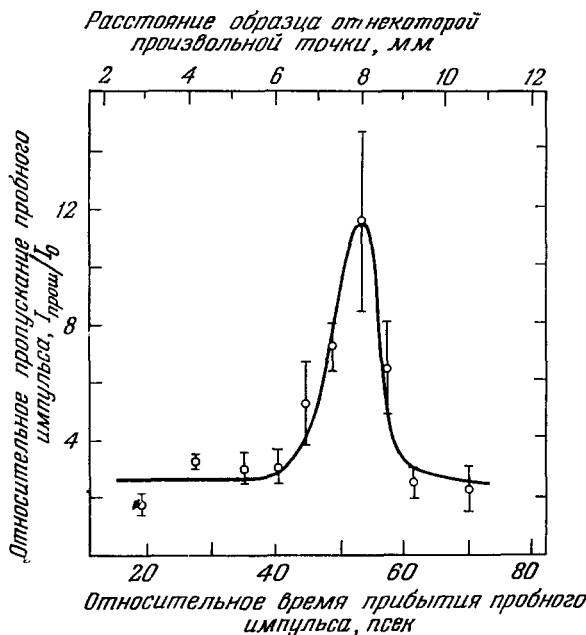


Рис. 4. Кривая зависимости отношения интенсивностей $I_{\text{проп}}/I_0$ от времени задержки пробного импульса относительно просветляющего импульса ²².

допустимым, поскольку фильтр F настолько сильно ослабляет просветляющий импульс, что, становясь зондирующим, он никаких нелинейных эффектов вызвать не может, и нужно считать, что $I_{\text{проп}}$ пропорционально I_0 . Изменение в положении кюветы на Δx соответствует задержке во времени на $\Delta t = 2\Delta x/c$.

Кривая, представленная на рис. 4, не выявляет быстрого экспоненциального возрастания и спада, как следовало ожидать. По мнению авторов работы ²², это обусловлено конечными размерами образца раствора и конечной протяженностью импульса.

Время пробега света в растворе $T_w \approx 3 \cdot 10^{-12}$ сек и длительность импульса оценивается в $T \approx (3-5) \cdot 10^{-12}$ сек. Принимая в расчет эти данные и представив полуширину кривой рис. 4 приблизительно равной $2T_w + \frac{1}{2}\tau$, где τ и есть время жизни в основном электронном колебательном состоянии, получим, что измерение полуширины дает величину $\sim 9 \cdot 10^{-12}$ сек, поэтому $\tau \approx 6 \cdot 10^{-12}$ сек.

Авторы этих измерений ²² полагают, что полученная ими в предварительных опытах величина τ в действительности может отличаться от

истинной в два раза, хотя она хорошо согласуется с результатом косвенного определения этой величины $\tau = 8 \cdot 10^{-12}$ сек.

Учитывая, что длительность пикосекундных импульсов определялась методом двухфотонной люминесценции²³, который в действительности не дает хорошего представления о характеристике пикосекундных импульсов, погрешность может быть еще больше, но в данном случае не столько важна точность измерения, сколько открывающаяся возможность

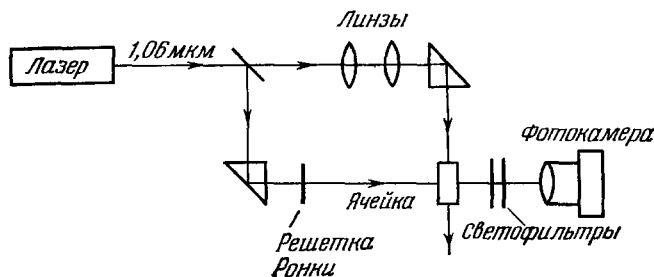


Рис. 5. Схема установки для прямого определения времени восстановления поглощения насыщающегося раствора красителей²⁴.

Задержка пробного луча относительно просветляющего осуществляется пластинками кварца, располагаемыми на пути пробного луча.

изучать процессы, длящиеся несколько пикосекунд, что было совершенно недоступно прежним методам измерения.

Мэллей и Рентципис²⁴ предложили простой способ определения времени просветления насыщающихся растворов. Схема их установки изображена на рис. 5. Неодимовый лазер с модулированной добротностью и синхронизованными модами дает излучение на длине волны $\lambda = 1,06$ мкм в направлении, указанном стрелкой. Делительная пластинка ответвляет малую часть луча (зондирующий луч), который поворачивается призмой, проходит через грубую дифракционную решетку Ронки для того, чтобы сделать пучок света достаточно широким и равномерным. Этот пучок освещает все сечение ячейки. Прямо прошедший интенсивный свет сжимается телескопической системой до сечения 2 мм^2 и направляется в ячейку, которая в ширину имеет как раз два миллиметра. Следовательно, интенсивный луч просветляет раствор по всей толщине кюветы. Вставляя на пути зондирующего луча пластинки кварца разной толщины, можно было менять время запаздывания, а помещенная за ячейкой камера могла фиксировать степень прозрачности раствора. На рис. 6 показаны соответствующие фотографии и их микрофотограммы.

Наблюдаемые картины есть, разумеется, результат свертки функций, описывающих просветляющий и зондирующий импульсы, и функции, характеризующей опустошение возбужденного состояния молекул растворенного вещества. Авторы полагают, что длительность просветляющего импульса ($\sim 10^{-12}$ сек) мала по сравнению с временем релаксации молекул раствора и временем восстановления поглощения раствора, и поэтому они предлагают следующую простую модель, удовлетворительно описывающую оптическую плотность раствора.

Для временной зависимости оптической плотности $\alpha(t)$ полагается

$$\alpha(t) = \begin{cases} \alpha_0 & t < 0, \\ \alpha_0(1 - e^{-t/\tau}), & t \geq 0, \end{cases} \quad (1)$$

где $t=0$ есть время прихода просветляющего импульса, α_0 — оптическая плотность до просветления. Оптическая плотность $\alpha(x)$ вдоль

просветляющего луча

$$\alpha(x) = \begin{cases} \alpha_0, & x < 0, \\ \alpha_0 \left[1 + \frac{\delta}{d} (1 - e^{-x/\delta}) \right], & 0 \leq x < d, \\ \alpha_0 \left[1 + \frac{\delta}{d} (1 - e^{d/\delta}) e^{-x/\delta} \right], & d \leq x; \end{cases}$$

x — координата в направлении распространения просветляющего луча и d — толщина ячейки 2 мм, а $\delta = v\tau$, где v — групповая скорость импульса ($2 \cdot 10^{10}$ см/сек). Эти формулы хорошо описывают полученные

экспериментальные результаты и для раствора красителя (Кодак-9740) дают время релаксации $\tau \approx 10^{-11}$ сек, что находится в хорошем согласии с величиной τ , полученной косвенными методами.

Описанный метод может быть применен и для ряда других исследований, и его варианты уже использованы авторами²⁴ для определения высвечивания люминесценции в ряде растворов и органических жидкостей.

Метод измерения времени жизни в электронном колебательном состоянии, основанный также на применении пикосекундных импульсов, развит Рентцписом²⁵.

Таким же методом и его видоизменением удалось Дренту и др.²⁶ и Рентцпису²⁷ измерить в некоторых органических жидкостях время жизни в электронном колебательном состоянии, времена жизни безызлучательных переходов и величины кросс-релаксации.

Для примера на рис. 7 приведена энергетическая схема азулена и указаны времена пикосекундного диапазона, измеренные в упомянутых работах.

В первоначальном методе Рентцписы²³ пуг пикосекундных импульсов с длиной волны $\lambda_1 = 1,06$ мкм проходил через кристалл KDP, после чего выходили вместе импульсы света $\lambda_1 = 1,06$ мкм (ω_1) и $\lambda_2 = 0,53$ мкм

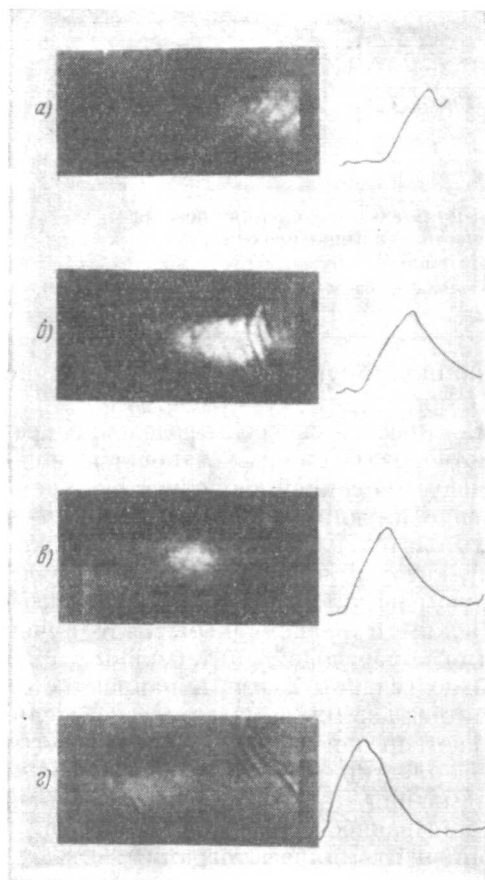


Рис. 6. Фотографии света пробного луча, прошедшего через ячейку с разным временем задержки и микрофотограммы фотографии этого света.

а) Без задержки; задержки пластинками толщиной: б) 6,3 мм; в) 12,5 мм; г) 18,8 мм.

(ω_2). Эти импульсы попадали в кювету с жидкостью (бромбензол), где вследствие различной групповой скорости ω_1 и ω_2 импульсы пространственно разделялись и далее вступали в кювету с азуленом, причем импульс ω_1 вступал первым. Азулен обладает тем свойством, что возбужденный до колебательного уровня $S(1)$ не излучает света флуоресценции, а излучает ее только, когда молекула возбуждена до следующего колебательного состояния $S(2)$. Импульс ω_1 не может возбудить состояние

$S(2)$ ни однофотонным, ни двухфотонным путем. Двухфотонное возбуждение $S(2)$ импульсом ω_2 возможно, но оно так малоинтенсивно, что свет флуоресценции не может наблюдаться. Возбуждение на уровень $S(2)$ возможно ступенчатым путем. Импульс ω_2 способен возбудить уровень $S(1)$ ($\nu \approx 5$). Импульс ω_1 , который уже прошел кювету, отражается от зеркала и распространяется обратно в кювету, встречает импульс ω_2 и возбужденные им молекулы на уровне $S(1)$. Этот импульс ω_1 способен перевести молекулы из возбужденного состояния $S(1)$ в состояние $S(2)$, с которого будет наблюдаться флуоресценция. Таким образом, импульс ω_1 является зондирующим, и флуоресценция будет функцией относительной

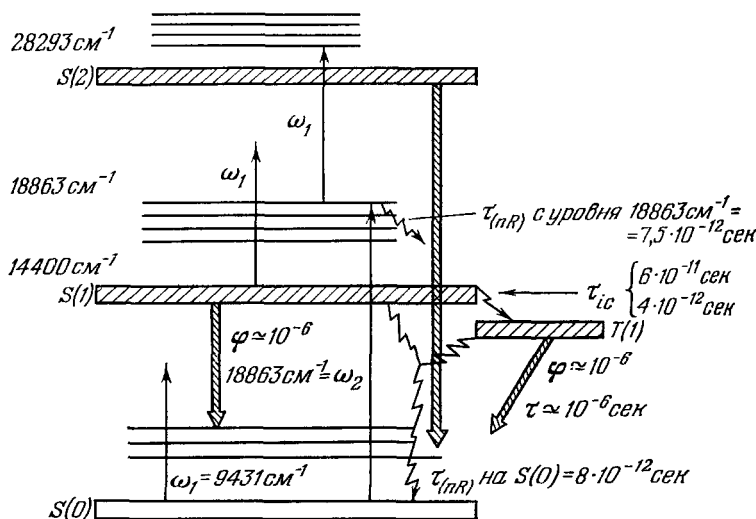


Рис. 7. Энергетическая схема молекулы азулена.

τ_{nR} — время безызлучательного перехода; τ_{ic} — время внутренней кросс-релаксации при переходе $S(1) \rightarrow T(1)$ ²⁷.

задержки импульсов ω_1 и ω_2 . Соответствующая ширина спектра излучения определяется длительностью лазерного импульса и временем колебательной релаксации ²⁵.

Некоторое видоизменение этого метода позволило измерить и кросс-релаксацию ²⁷. Во всех случаях характер цуга импульсов света, излучаемого лазером с модулированной добротностью и синхронизованными модами, изучался на скоростном осциллографе с разрешающей силой по времени 0,5 нсек. На таком осциллографе отчетливо видна «гребенка» импульсов, отстоящих друг от друга на 4—5 нсек. Естественно, что осциллограф не может дать представление о длительности отдельного импульса этого цуга. Для измерения этого важного параметра обычно применяется известный и уже упоминавшийся метод двухфотонной люминесценции ²³. Однако, как показали убедительные теоретические исследования Кузнецовой ²⁸, метод двухфотонной люминесценции не может дать правильное представление о длительности и форме индивидуального импульса. Между тем знание этих величин совершенно необходимо для точных измерений в пикосекундном диапазоне длительностей. Поэтому вполне возможно, что точность измерений в рассмотренных выше методах преувеличена. Этот вопрос может быть решен вместе с созданием надежного метода измерения формы и длительности пикосекундных импульсов.

4. СВЕРХСКОРОСТНОЙ ОПТИЧЕСКИЙ ЗАТВОР И НЕКОТОРЫЕ ЕГО ПРИМЕНЕНИЯ

Косвенные исследования показали, что время релаксации анизотропии, полученное прежними прямыми методами, явно преувеличено.

Изучение спектра деполяризованного рассеяния в жидкостях с анизотропными молекулами указывало на то, что существует по крайней мере два времени релаксации анизотропии, различные для разных жидкостей

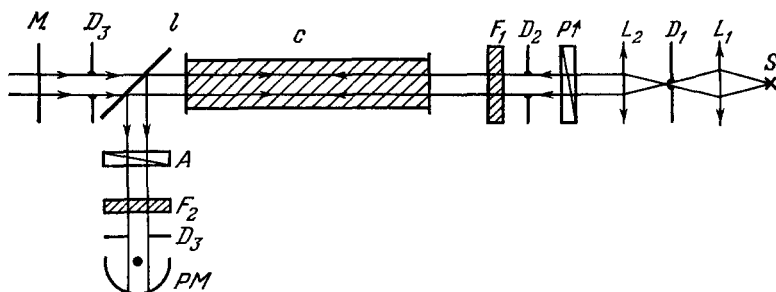


Рис. 8. Схема установки для наблюдения двойного лучепреломления в жидкостях, вызванного интенсивным импульсом света ²⁹.

S — источник слабого света; L_1, L_2 — линзы; P и A — поляризатор и анализатор; D_1, D_2 и D_3, D_4 — диафрагмы; C — ячейка с изучаемой жидкостью; l — полупрозрачная пластинка; PM — фотоумножитель; M — выходное зеркало оптического резонатора рубинового лазера.

и заключенные в пределах между от 10^{-10} сек до 10^{-13} сек ⁸. Однако не существовало прямого способа измерения таких коротких времен.

Работы самого последнего времени дали возможность сделать количественную оценку времени релаксации анизотропии путем прямого измерения этой величины.

Мейер и Жир ²⁹ доказали экспериментально, что в ячейке, заполненной жидкостью с анизотропными молекулами, в луче интенсивного света возникает двойное лучепреломление.

Схема их опыта изображена на рис. 8. Свет источника S превращается в параллельный поляризованный пучок, вектор электрического поля которого лежит в плоскости чертежа. Луч проходит через кювету и отражается пластинкой l . Если в кювете нет двойного лучепреломления, то свет источника S не достигнет фотоумножителя PM , но задержится поляризатором A . Рубиновый лазер с модулированной добротностью посылает параллельный пучок лучей от выходного зеркала M вправо. Электрический вектор поля световой волны составляет угол 45° с плоскостью чертежа. Луч лазера целиком охватывает луч источника S и поглощается в фильтре F_1 . Созданное лазерным лучом двойное лучепреломление открывает лучу источника S путь к фотоумножителю. Длительность лазерного импульса составляла $5,5 \cdot 10^{-8}$ сек, а энергия 0,14 дж. В этих условиях наблюдалось двойное лучепреломление в сероуглероде, нитробензоле, хлорбензоле и бензоле. В воде двойное лучепреломление не было наблюденно.

Величина двойного лучепреломления пропорциональна интенсивности лазера, а сигнал на фотоумножителе PM пропорционален квадрату разности показателей преломления Δn обыкновенного и необыкновенного лучей, пока соответствующая разность хода меньше длины волны света. Для количественного определения постоянной Керра B ($\Delta n = \lambda B E^2$) вместо ячейки C помещалась эталонная ячейка, на электроды которой подавались электрические импульсы известной амплитуды.

В опыте ²⁹ поле светового луча $(\bar{E}^2)^{1/2}$ составляло 39 кВ/см. В сероуглероде, в пределах ошибок опыта, такое же статическое поле вызывало такое же двойное лучепреломление. Как и следовало ожидать, у бездипольных молекул константа Керра на световых частотах и в квазистатическом или статическом режиме одна и та же. Это относится, например, к сероуглероду и бензолу и сильно различается для таких дипольных жидкостей, как нитробензол и хлорбензол. С точки зрения теории Ланжевена ^{8, 30} этот результат легко объясняется. В молекулах, не имеющих постоянного дипольного момента, но характеризующихся заметной анизотропией, проявляющейся, например, в наличии деполяризации рассеянного света, электрическое поле световой волны индуцирует момент, вообще говоря, не совпадающий с направлением поля, в результате чего возникает пара сил, стремящихся установить молекулу осью наибольшей поляризуемости по направлению электрического поля.

При изменении знака поля меняется и наведенный момент, а ориентирующая сила сохраняет направление. Такая ориентация и создает преимущественное направление осей наибольшей поляризуемости вдоль поля, а изотропная в целом газообразная или жидкая среда приобретает свойство одноосного кристалла. В такой среде возникает двойное лучепреломление.

Постоянный дипольный момент, который (например, в нитробензоле) так сильно сказывается на величине постоянной Керра, на световых частотах не может играть никакой роли из-за инерционности молекулы, с которой жестко связан постоянный дипольный момент. В таких молекулах на световых частотах играет роль только анизотропия. Именно поэтому в нитробензоле константа Керра такая же или даже несколько меньше, чем в сероуглероде ³⁰, хотя в статическом или низкочастотном поле она в 100 раз больше, чем в сероуглероде. Теперь существенно выяснить, каково наименьшее время действия ячейки Керра с той или иной жидкостью как оптического затвора.

Коэффициент преломления в направлении, параллельном $(n_{||})$ и перпендикулярном (n_{\perp}) направлению электрического поля, управляющего ячейкой, запишется следующим образом ^{8, 31}:

$$n_{||} = n + \frac{2}{3} \lambda B E^2(t) \quad \text{и} \quad n_{\perp} = n - \frac{1}{2} \lambda B E^2(t),$$

где n — показатель преломления в отсутствие поля. Если $\delta n_{||} = n_{||} - n$ и $\delta n_{\perp} = n_{\perp} - n$, то

$$\Delta n = \delta n_{||} - \delta n_{\perp} = \lambda B E^2(t). \quad (2)$$

Соотношение (2) характеризует стационарный случай. Изменение со временем подчиняется уравнению ^{8, 31}

$$\frac{d(\Delta n)}{dt} + \frac{1}{\tau} \Delta n = \frac{1}{\tau} \lambda B E^2(t). \quad (3)$$

Из (3) следует, что возникшее двойное лучепреломление, предоставленное самому себе после выключения поля $E(t)$, убывает по экспоненциальному закону:

$$\Delta n = \text{const} \cdot \exp \{-t/\tau\}. \quad (4)$$

Из последнего выражения ясно, что затухание двойного лучепреломления не может происходить быстрее, чем за время τ . Как уже было сказано здесь, τ имеет смысл времени релаксации анизотропии или времени ориентации анизотропных молекул в электрическом поле. О природе и предель-

но малых значениях времени затухания двойного лучепреломления в электрическом поле мы скажем ниже.

Прямое измерение τ в ячейках, наполненных сероуглеродом, нитробензолом, иодистым метилом и дихлорэтаном, новым оптическим методом, использующим пикосекундные импульсы, выполнено Дюге и Хансеном³².

Схема их эксперимента представлена на рис. 9. На преобразователь частоты кристалл KDP падает импульс света мощностью ~ 100 Мвт, излученный неодимовым лазером с модулированной добротностью и с синхронизованными модами. Длина волны $\lambda = 1,06$ мкм. Длительность каждого пикосекундного импульса оценивается в ~ 5 псек.

Кристалл KDP устанавливается таким образом, чтобы только $\sim 1\%$ падающего на него света превращался в свет второй гармоники $\lambda = 0,53$ мкм. Свет второй гармоники нарочно делается настолько слабым, что он не может вызывать в ячейке сколько-нибудь заметное двойное лучепреломление или другие нелинейные эффекты, но служит только зондом.

Импульс инфракрасного света $\lambda = 1,06$ мкм вызывает в ячейке с жидкостью (CS_2) двойное лучепреломление, и в это время импульс зеленого света, путь которого показан на рис. 9, может пройти через ячейку и попасть на фотоумножитель PM. Линии задержки D_1 и D_2 могут менять относительное время встречи импульсов зеленого и инфракрасного света в ячейке с жидкостью. Таким путем по величине сигнала на PM можно проследить характер и время нарастания двойного лучепреломления в жидкости.

Интенсивность света, прошедшего через анализатор, выражается известной формулой

$$I_A = I_0 \sin^2 \varphi, \quad (5)$$

где $\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n L$; здесь L — длина пути луча в ячейке с жидкостью, а Δn определяется в нестационарном случае формулой (4). Если φ мало, то

$$I_A = \text{const} \cdot (\Delta n)^2. \quad (6)$$

В схеме рис. 9 сигнал фотоумножителя будет пропорционален интенсивности I_A и, следовательно, квадрату Δn .

На рис. 10 приведены кривые пропускания ячейки, когда она наполнялась либо сероуглеродом, либо нитробензолом³². По оси ординат отложен логарифм I_A в условных единицах, а по оси абсцисс — время относительного запаздывания интенсивного и зондирующего импульсов. Для сероуглерода пропускание в максимуме достигало в лучшем опыте³² 20%.

Полуширина симметричной кривой для сероуглерода, проведенная на рис. 10 штрихами, составляет ~ 8 псек. Определение времени релаксации анизотропии τ по характеру этой кривой нецелесообразно, поскольку

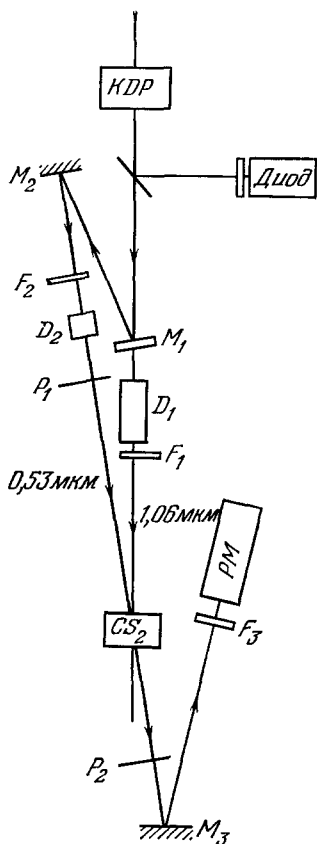


Рис. 9. Схема установки для измерения времени релаксации анизотропии в жидкостях³².

F_1 , F_2 и F_3 — светофильтры; M_1 — разделительное зеркало; M_2 и M_3 — зеркала; P_1 и P_2 — скрещенные поляризаторы; D_1 и D_2 — линии задержки; PM — фотоумножитель.

ку это время заведомо мало. Как было сказано, согласно косвенным определениям этой величины по полуширине интенсивного участка крыла линии Рэля ^{8, 33-35}, τ заключено в пределах от 2,4 до 1,8 псек.

С другой стороны, в опытах ³² форма импульса света была сложной и неизвестной, а длительность была известна лишь приблизительно. Кривая пропускания в функции относительного времени прибытия импульсов в кювету с нитробензолом нанесена на рис. 10 сплошной кривой.

Как легко видеть, результат для нитробензола и качественно, и количественно отличается от того, что получено для сероуглерода. В этом случае пропускание в максимуме составляет лишь 1,4% и максимум сдвинут в сторону больших задержек. На рис. 10 максимумы обеих кривых совмещены для удобства сопоставления.

Кривая для нитробензола (рис. 10) после 20 псек показывает экспоненциальный спад и следует формуле (6) с учетом формулы (4). В ходе этой кривой существен вклад времени релаксации анизотропии, и оно определялось по наклону экспоненциального участка кривой. Среднее из нескольких измерений дает величину $\tau = 32 \pm 6$ псек.

Косвенное определение времени релаксации анизотропии по узкому участку крыла линии Рэля, выполненное для нитробензола Старуновым и др. ³⁶, дало величину $\tau = 50$ псек. Нужно считать, что результаты прямого и косвенного определения времени релаксации анизотропии находятся в хорошем согласии между собой.

Полученные величины времен релаксации анизотропии свидетельствуют о том, что процесс двойного лучепреломления обусловлен главным образом эффектом ориентации анизотропных молекул в электрическом поле.

Изучение распределения интенсивности в крыле линии Рэля показало ⁸, что в жидкостях, состоящих из анизотропных молекул, можно говорить по крайней мере о двух временах релаксации анизотропии — о «большом» времени, которое колеблется для разных жидкостей от 10^{-10} до 10^{-12} сек, и малом времени релаксации $\sim 10^{-13}$ сек и даже меньше.

Таким образом, ориентационные времена релаксации анизотропии позволяют изучать процессы длительностью до 10^{-13} — 10^{-14} сек.

Эффект Керра, обусловленный электронной поляризацией, даст возможность свести «собственную» постоянную времени затвора к величине $\sim 10^{-15}$ сек.

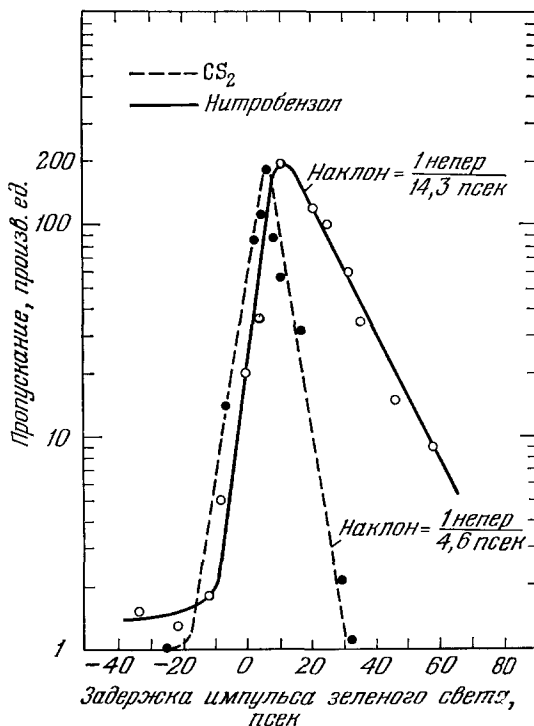


Рис. 10. Зависимость пропускания «световой» ячейки Керра от времени запаздывания импульса зеленого света относительно управляющего импульса ³².

Целый ряд твердых веществ могут обладать значительным двойным лучепреломлением вследствие электронной поляризуемости в электрическом поле. Прогресс техники создания быстродействующих оптических затворов зависит главным образом от прогресса получения возможно более коротких импульсов интенсивного света.

Ячейка Керра, управляемая световыми импульсами пикосекундного диапазона, уже была использована Дюге и Хансеном³⁷ для изучения

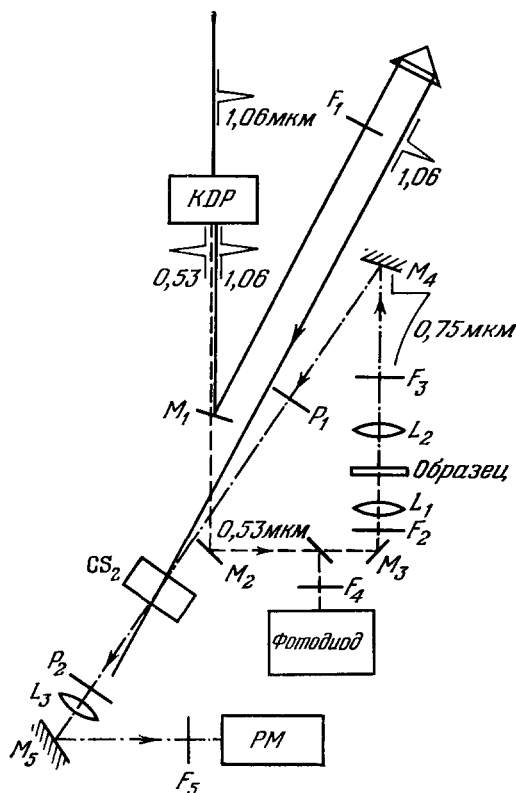


Рис. 11. Схема установки для измерения времени затухания люминесценции полиметиновых красителей с помощью сверхскоростного оптического затвора³⁷.

F_1, F_2, F_3, F_4 и F_5 — светофильтры; P_1 и P_2 — скрещенные поляризаторы; M_1 — разделительное зеркало; M_2, M_3, M_4 и M_5 — зеркала; PM — фотоумножитель.

после которой попадает на фотоумножитель PM . Светофильтры F в разных частях установки отсекают те длины волн света, которые в определенном направлении проходить не должны. Фотодиод за фильтром F регистрирует энергию зеленого света. Сигналы фотодиода и фотоумножителя регистрируются на двухлучевом осциллографе.

Гигантский импульс неодимового лазера состоял примерно из 20 пикосекундных импульсов, разделенных временем ~ 5 нсек. В описываемом опыте выбирались только такие импульсы, которые давали наибольшую величину сигнала в обоих каналах осциллографа. Таких сверхкоротких сигналов в центре импульса было 4—5. Чтобы выяснить время «отклика системы» или временную аппаратную функцию установки, раствор краси-

кинетики люминесценции двух полиметиновых красителей — криптоцианина (1,1'-diethyl-4,4'-dicarbocyanine iodide) и DDI (1,1'-diethyl-2,2'-dicarbocyanine iodide), время высвечивания флуоресценции в которых лежит в пикосекундном интервале времени. Схема установки показана на рис. 11. Лазер на неодимовом стекле с модулированной добротностью и синхронизованными модами посылает импульсы света $\lambda = 1,06$ мкм длительностью ~ 8 нсек с пиковой мощностью 800 Мвт и диаметром пучка 5 мм. После кристалла KDP появляется свет второй гармоники $\lambda = 0,53$ мкм с пиковой мощностью 80 Мвт. После зеркала M_1 свет $\lambda = 1,06$ мкм и $\lambda = 0,53$ мкм направляется по разным путям. Инфракрасный свет попадает на крышевидную призму, которую можно передвигать и таким путем менять время прибытия импульса $\lambda = 1,06$ мкм в ячейку с CS_2 .

Зеленый свет, отразившись от зеркал M_1 и M_2 , фокусируется в сосуд толщиной 1 мм, заполненный полиметиновым красителем ($\sim 10^{-3}$ М). Излучение люминесценции $\lambda = 0,75$ мкм собирается линзой L_2 и направляется в ячейку с CS_2 ,

теля заменялся матовым стеклом, для которого «время жизни в возбужденном состоянии» равно нулю. Этот отклик определяет разрешающую

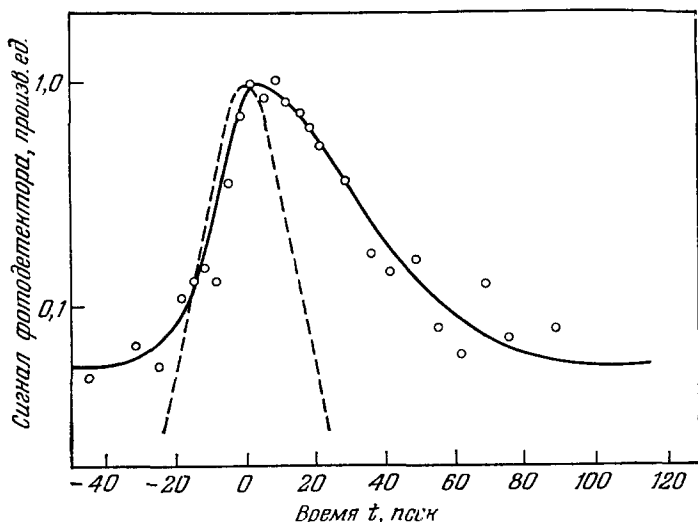


Рис. 12. Кривая зависимости величины сигнала фотоумножителя (рис. 11) от относительного времени опережения или запаздывания управляющего импульса ($\lambda = 1,06$ мкм) относительно импульса света люминесценции DDI в метаноле³⁷ (— DDI в метаноле, — — аппаратная функция).

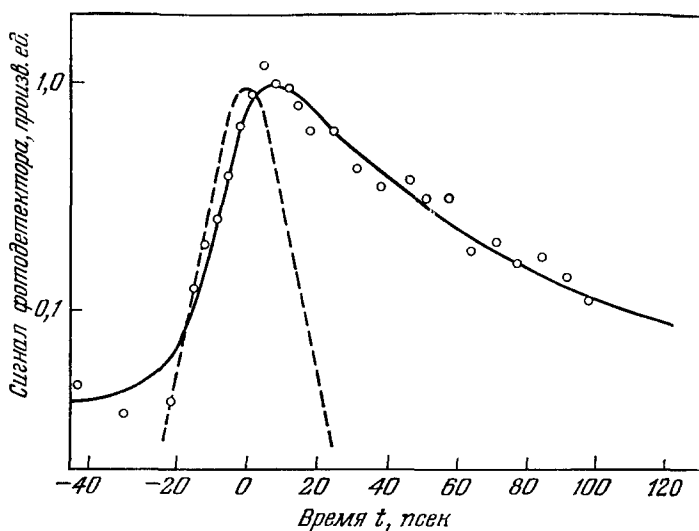


Рис. 13. Кривая зависимости величины сигнала фотоумножителя (рис. 11) в зависимости от относительного времени опережения или запаздывания управляющего импульса ($\lambda = 1,06$ мкм) относительно света люминесценции криптоцианина в метаноле³⁷. (— криптоцианин в метаноле, — — аппаратная функция).

силу установки по времени. На рис. 12 и 13 аппаратная функция^{*} представлена штриховой линией. В этом случае каждая ячейка оставалась открытой ~ 10 псек.

Сплошная линия на рис. 12 и 13 есть результат расчета на машине свертки аппаратной функции («отклика системы») с одной экспонентой или суммой двух экспоненциальных функций. Временем, необходимым для возбуждения, верхняя граница которого ~ 5 *псек*, пренебрегается, но учитывается постоянная составляющая, отчетливо выявленная со стороны нарастания кривой.

Для раствора DD1 в метаноле и ацетоне при 23° (рис. 12) экспериментальные данные хорошо описываются сверткой аппаратной функции с экспоненциальной функцией типа (6) и (4) с временем жизни, равным 14 ± 3 *псек*.

Данные для криптоцианина не поддаются такому однозначному описанию. В этом случае нужно предположить два времени жизни 10 и 45 *псек* с одинаковым весом. Это можно считать эквивалентным тому, что флуоресценция криптоцианина затухает в e раз за время 22 ± 4 *псек*, если предположить дельтообразный вид функции возбуждения.

Однако выбор 10 и 45 *псек* оказывается неоднозначным; авторы³⁷ нашли и другую пару времен, которая удовлетворительно описывает результаты опыта на рис. 13. По мнению авторов, сложная картина затухания люминесценции в криптоцианине может обуславливаться наличием двух или нескольких изомеров криптоцианина и различным временем жизни на различных уровнях флуоресценции.

Как уже упоминалось, минимальное время открытия сверхскоростного оптического затвора составляет приблизительно 10 *псек* и складывается из двух частей: 1) длительности пикосекундного импульса (на его долю приходится около 8 *псек*) и 2) времени релаксации анизотропии в ячейке с сероуглеродом (оно составляет приблизительно 2 *псек*).

Итак, пока почти все определяется длительностью импульса интенсивного света, а учитывая возможности работать с меньшими временами релаксации в интервале 10^{-13} — 10^{-15} *сек*, о которых было сказано выше, скорость действия оптического затвора определяет пока только длительность импульса света, управляющего ячейкой.

Прогресс в технике сжатия пикосекундных импульсов и другие возможные способы укорочения длительности импульсов света, по-видимому, позволят в недалеком будущем существенно повысить скорость действия затвора.

5. ПРИМЕНЕНИЕ ИМПУЛЬСНЫХ ИСТОЧНИКОВ СВЕТА В ТЕНЕВОМ МЕТОДЕ (МЕТОД ТЕПЛЕРА)

Использование серии вспышек света в теневом методе, или методе Теплера, известно давно³⁸, но наименьшие экспозиции при всех ухищрениях были порядка 10^{-9} *сек*³⁹.

И в этой области оптических исследований лазеры с модулированной добротностью и синхронизованными модами принесли совершенно новые возможности.

В качестве примера использования таких источников света приведем исследование Алкока и др.⁴⁰. В этой работе изучалась кинетика развития искры, полученной при фокусировании импульса света рубинового лазера с длительностью импульса от 14 до 30 *нсек* и мощностью от 35 до 3000 *Мвт*. Схема установки представлена на рис. 14. Установка состоит из двух лазеров. *RL* — рубиновый лазер, в котором модуляция добротности осуществляется ячейкой Покейса, а характеристики лазера указаны выше. *MLL* представляет собой лазер на неодимовом стекле с модулированной добротностью и синхронизованными модами. Длительность импульса меняется от 0,4 до 1 *мксек* с полной энергией 0,4 *дж*. Импульс состоит

из цуга пикосекундных импульсов, разделенных промежутком времени 4—6 *нсек* и с длительностью индивидуального импульса ~ 5 *псек* (определено методом двухфотонной люминесценции). Весь импульс исследуется на осциллографе с разрешающей силой по времени 0,5 *нсек*. Неодимовый лазер *MLL* излучает вперед. Кристалл *KDP* генерирует вторую гармонику, которая затем используется как слабый зондирующий свет, просвечивающий сосуд *PC*, который наполняется разными газами. Этот же лазер излучает свет назад, который поджигает искровой промежуток, управляющий напряжением на ячейке Покейса и таким образом определяет момент генерации рубинового лазера *RL*.

На пути луча, содержащего цуг пикосекундных импульсов, после того как он прошел кювету *PC* с изучаемым газом, линза *L* фокусирует изображение места фокуса лазера *RL* на край ножа *K*. После возникновения плазмы в сосуде она освещается цугом следующих друг за другом

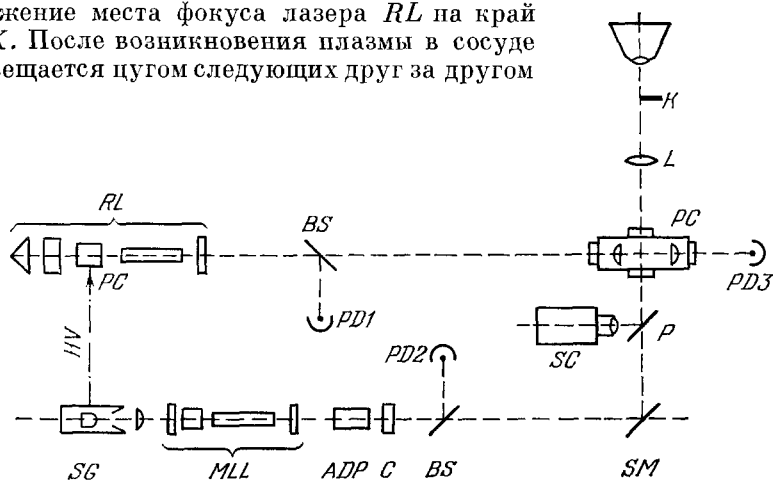


Рис. 14. Схема установки для изучения развития плазмы в фокусе лазерного импульса световым методом (метод Теплера).

MLL — лазер с модулированной добротностью и синхронизованными модами; *RL* — рубиновый лазер; *PC* — ячейка Покейса; *SC* — искровой промежуток; *ADP* — генератор второй гармоники; *C* — светофильтр из раствора медного купороса; *BS* — разделитель пучка; *SM* — серебряное зеркало; *PD3* — фотодетектор; *L* — линза; *K* — нож; *P* — пленка; *SG* — камера; *PD1* и *PD2* — фотодиоды.

импульсов с промежутком времени 5,5 *нсек* и длительностью 5 *псек*. Фотографическая камера регистрирует картину ряда «застывших» фронтов разлетающейся плазмы. По этим картинам измерены скорость продольного и поперечного расширения плазмы как функция времени, зависимость скорости расширения от давления в разных газах, определена температура плазмы и получен ряд других существенных характеристик плазмы. Разумеется, такой метод пригоден не только для изучения плазмы, но имеет и гораздо более универсальное значение.

Физический институт им. П. Н. Лебедева
АН СССР

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. С. М. Райский, ЖЭТФ 22, 781 (1952).
2. Г. С. Саламандра, Высокоскоростная съемка шпирен-методом, М., «Наука», 1965.
3. П. Г. Тагер, Ячейка Керра, М., «Искусство», 1937.
4. Е. Р. Мустель, В. Н. Шорыгин, Методы модуляции и сканирования света, М., «Наука», 1970.

5. Л. Бергман, Ультразвук, М., ИЛ, 1956.
 6. W. Haule, O. Marks, Zs. Phys. 114, 407 (1939).
 7. И. Л. Фабелинский, Изв. АН СССР, сер. физ. 9, 186 (1945).
 8. И. Л. Фабелинский, Молекулярное рассеяние света, М., «Наука», 1965.
 9. I. P. Kaminov, Appl. Phys. Lett. 2, 41 (1961).
 10. Е. К. Завойский, С. Д. Фанченко, Appl. Optics 4, 1155 (1965).
 11. В. В. Коробкин, А. А. Малютин, М. Я. Щелев, J. Photographic Sci. 17, 179 (1969).
 12. В. С. Старунов, И. Л. Фабелинский, УФН 98, 441 (1969).
 13. К. Н. Баранский, ДАН СССР 114, 517 (1957).
 14. K. Dransfeld, J. de Phys. Colloque CI, Supplement an 28, 157 (1967).
 15. J. Ihukor, E. H. Jacobson, Science 153, 1113 (1966).
 16. G. Winterling, W. Heinicke, Phys. Lett. 27A, 329 (1968).
 17. G. Winterling, W. Heinicke, K. Dransfeld, Optical Determination of the Ultrasonic Absorption in Quartz at 29 GHz Light scattering Spectra of Solids, Springer-Verlag, New York, 1969, p. 589.
 18. И. А. Ахизер, ЖЭТФ 8, 1318 (1938).
 19. И. Я. Померанчук, ЖЭТФ 11, 455 (1941).
 20. «Физическая акустика» под ред. У. Мезона, том III, часть Б (1966), том IV, часть А, М., «Мир», 1969.
 21. J. W. Shelton, J. A. Armstrong, IEEE J. QE3, 696 (1967).
 22. E. I. Scarlet, J. Eigueira, H. Mahr, Appl. Phys. Lett., 13, 71 (1968).
 23. J. A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, S. L. Shapiro, W. K. Wecht, Appl. Phys. Lett. 11, 216 (1967).
 24. M. M. Malley, P. M. Rentzepis, Chem. Phys. Lett. 3, 534 (1969).
 25. P. M. Rentzepis, Chem. Phys. Lett. 2, 117 (1968).
 26. E. Drant, G. Makkes, van der Deijl, P. J. Zandstra, Chem. Phys. Lett. 2, 526 (1968).
 27. P. M. Rentzepis, Chem. Phys. Lett. 3, 717 (1969); Science 169, 239 (1970).
 28. Т. И. Кузнецова, ЖЭТФ 54, 2453 (1968); Краткие сообщения по физике, № 6, 66 (1970).
 29. G. Mayer, F. Gires, C. R. 258, 2039 (1964).
 30. P. Langevin, Le Radium 7, 249 (1910).
 31. И. Л. Фабелинский, ЖЭТФ 45, 822 (1963).
 32. M. A. Duguay, J. W. Hansen, Appl. Phys. Lett. 15, 192 (1969).
 33. И. Л. Фабелинский, Молекулярное рассеяние света в жидкостях, Труды ФИАН 9, 181 (1958).
 34. В. С. Старунов, Оптика и спектроскопия 18, 300 (1965).
 35. S. L. Shapiro, H. P. Broida, Phys. Rev. 154, 129 (1967).
 36. В. С. Старунов, Е. В. Тиганов, И. Л. Фабелинский, Письма ЖЭТФ 4, 262 (1966).
 37. M. A. Duguay, J. W. Hansen, Opt. Commun. 1, 252 (1969).
 38. C. Sraz, H. Schardin, Zs. Phys. 56, 147 (1929).
 39. H. Schardin, Photogr. et cinématogr. ultra-rapides, Paris, 1956, p. 301.
 40. A. J. Alcock, C. De Michéles, K. Hamal, B. A. Tozer, IEEE J. QE4, 593 (1968).
-