Доклады Академии наук СССР
1974. Том 217, № 6

УДК 539.194.01 ФИЗИКА

Б. И. МАКШАНЦЕВ, В. М. ФИНКЕЛЬБЕРГ

ТЕПЛОВОЕ РАСПРОСТРАНЕНИЕ ВОЛНЫ ТУШЕНИЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ

(Представлено академиком М. А. Леонтовичем 4 XII 1973)

Известно большое число люминесцирующих систем, у которых константа скорости ν безызлучательной дезактивации электронных возбуждений экспоненциально зависит от температуры T:

$$\nu = ae^{-E/T}. \tag{1}$$

Действием лазерного излучения в этих системах можно создать высокую концентрацию электронных возбуждений, причем такую, что, с одной стороны, при установившейся температуре * безызлучательная дезактивация не превосходит излучательную. С другой же стороны, если в некоторой области достаточно сильно повысить температуру, то там процессы безызлучательной дезактивации станут существенны, т. е. произойдет температурное тушение люминесценции. Вследствие теплопроводности и вида зависимости (1) тепловое распространение тушения оказывается аналогичным тепловому распространению пламени [1-3].

В некоторых задачах требуется знать профиль температуры более точно, чем это было необходимо в [1-3]; например, для исследования устойчивости полученного режима распространения волны тушения люминесценции. С этой целью удобно модифицировать известный метод оптимума [4]. Мы продемонстрируем это, решив задачу, которая близка к соответствующей задаче теплового распространения пламени [1-4].

Пусть в достаточно тонкой пленке лазерным излучением создается высокая, в указанном выше смысле, концентрация электронных возбуждений. Ограничимся случаем, когда продолжительность действия лазерного излучения и продолжительность восстановления электронных возбуждений за фронтом волны тушения таковы, что последняя за указанные времена проходит расстояние, много большее ширины своего фронта. При этом для нахождения профиля температуры и концентрации электронных возбуждений в области фронта волны, а также скорости ее движения процессом восстановления возбуждений можно пренебречь. Тогда в одномерном, как и в [1-4], случае температура $T(x, t)$ и концентрация электронных возбуждений $c(x, t)$ определяются системой уравнений

$$\frac{\partial T(x,t)}{\partial t} = \chi \frac{\partial^2 T(x,t)}{\partial x^2} + \chi g(x,t), \tag{2}$$

$$\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} = -ae^{-E/T}c(x,t); \tag{3}$$

здесь χ — температуропроводность, $\chi g(x,t) = -Q\partial c(x,t)/\partial t$, $Q=\varepsilon/c$, ε — энергия фотона лазерного излучения, $\tilde{c}$ — теплоемкость единицы объема вещества.

Как и в [1-4], ищем решение, зависящее лишь от комбинации $\xi = x+vt$. За начало отсчета переменной ξ примем точку, в которой функция источни-

* Необходимая температура обеспечивается внешними условиями.

ка тепла $g(\xi)$ максимальна. Пусть

$$E/T_0 \gg 1, \tag{4}$$

где $T_0 = T|_{\xi=0}$. Кроме того, будем считать — и это подтвердится результатом, — что неравенство

$$\frac{T_0}{E}\beta|\xi| \ll 1, \tag{5}$$

где $\beta = ET_0'/T_0^2$, $T_0' = dT/d\xi|_{\xi=0}$, выполняется вплоть до тех значений ξ, при которых функция $g(\xi)$ становится пренебрежимо малой, т. е.

$$g(\xi) \ll g(0). \tag{6}$$

Тогда $\exp(-E/T) \simeq \exp(-E/T_0 + \beta\xi)$. После решения уравнения (3) с граничными условиями $c(\xi)|_{\xi=-\infty} = c_-$, $c_+ = c(\xi)|_{\xi=\infty} = 0$ уравнение (2) принимает вид

$$\frac{d^2T}{d\xi^2} - \lambda\beta\frac{dT}{d\xi} + g(\xi) = 0, \tag{7}$$

где $\lambda = v/(\beta\chi)$ и $g(\xi) = \lambda\beta^2 Qc_- \exp(\beta\xi - e^{\beta\xi})$. При получении выражения для $g(\xi)$ использовано условие экстремума функции $g(\xi)$ в точке $\xi = 0$

$$\nu_0 = v\beta, \tag{8}$$

где $\nu_0 = a\exp(-E/T_0)$. Находя из уравнения (7) температуру T как функцию переменной ξ и параметров T_0, $T_0' = \frac{T_0^2}{E}\beta$ и v, получаем

$$T_0 = Qc_-[\Gamma(1-\lambda, 1) + 1 - 1/e] + T_-, \tag{9}$$

$$T_0' = Qc_-\lambda\beta\Gamma(1-\lambda, 1), \tag{10}$$

где неполная гамма-функция $\Gamma(\alpha, x) = \int\limits_x^\infty e^{-y}y^{\alpha-1}dy$.

Таким образом, имеем систему трех уравнений (8) — (10) для нахождения трех неизвестных v, T_0, T_0' и тем самым определяем профиль температуры $T(\xi)$. Из (9), (10) с учетом определения величины β, неравенства (4) и приближенного соотношения $\Gamma(1-\lambda, 1) \simeq 1/e(1+\lambda/2)$ имеем

$$\lambda = \frac{2\alpha(1+\gamma)^2}{1-\alpha(1+\gamma)^2} \qquad \alpha = \frac{Qc_-}{2eE}, \quad \gamma = e - 1 + \frac{eT_-}{Qc_-}.$$

Подставляя λ в (9), находим величину T_0. Используя далее (8) и определение параметра λ, получаем

$$v = \sqrt{\lambda\chi a}\, e^{-E/(2T_0)}. \tag{11}$$

Из уравнения (7) следует, что для точек ξ_-, удовлетворяющих неравенству (6) и лежащих слева от $\xi = 0$, $\lambda\beta T(\xi_-) = T'(\xi_-)$. Отсюда вытекает неравенство

$$y_0^{1-\lambda}/\Gamma(1-\lambda, y_0) \ll 1, \tag{12}$$

где $y_0 = \exp(\beta\xi_-)$. Неравенство (12) совместно с (4) — (6) определяет область применимости полученных результатов.

В случае, когда отношение $eT_-/(Qc_-) \ll 1$, $\lambda = 2e^2\alpha = eQc_-/E$. Это соответствует ситуации, рассматриваемой в теории теплового распространения пламени. Для распространения же волны теплового тушения люминесценции представляет интерес противоположный случай $eT_-/(Qc_-) \gg 1$, при этом

$$\lambda = \frac{eT_-^2}{EQc_-} \Bigg/ \left(1 - \frac{eT_-^2}{2EQc_-}\right) \tag{13}$$

Приведем численные оценки, например, в случае разрешенных электронных переходов. Для рассматриваемого нами процесса необходимо, чтобы константа скорости спонтанного радиационного процесса не превосходила соответствующей константы вынужденного излучения $\sigma I/\varepsilon$; здесь σ — сечение поглощения фотона, I — плотность мощности лазерного излучения. Согласно изложенным во введении условиям должны выполняться неравенства

$$\nu_-=ae^{-E/T_-}\lesssim\sigma I/\varepsilon\ll\nu_0. \tag{14}$$

Положим, например, $a=10^{12}$ сек$^{-1}$, $E=2000^\circ$ K, $T_-=200^\circ$ K, $\sigma=10^{-16}$ см^2, $I=10^6$ вт/см^2, $\varepsilon=1$ эв, $c_-=10^{21}$ см$^{-3}$, $\tilde{c}=0{,}5$ кал$\cdot$град$^{-1}$ см$^{-3}$ и $\chi=10^{-2}$ см$^2\cdot$$\cdot$сек$^{-1}$. Из формул (9), (13) получаем $T_0\simeq T_-+Qc_-=T_-+\varepsilon c_-/\tilde{c}\simeq300^\circ$ K. Далее имеем $\nu_-\simeq10^8$ сек$^{-1}$, $\sigma I/\varepsilon\simeq5\cdot10^8$ сек$^{-1}$ и $\nu_0\simeq5\cdot10^9$ сек$^{-1}$. При этом из выражения (11) следует, что скорость $v\sim10^4$ см$\cdot$сек$^{-1}$, т. е. волна тушения люминесценции при известных условиях может двигаться со значительной скоростью. Отметим, что при выбранных значениях параметров оказываются выполненными все исходные предположения, сформулированные в виде неравенств (4)—(6), (12) и (14).

В заключение отметим следующее. Изложенный выше метод отыскания решения системы уравнений (2), (3), зависящего лишь от комбинации $\xi=x+vt$, является по существу не чем иным, как методом итераций. В самом деле, в существенной для интегрирования области в качестве нулевого приближения был принят профиль температуры $T^{(0)}=T_0+T_0'\xi$, которому соответствовала концентрация электронных возбуждений $c^{(0)}=$ $=c_-\exp(-e^{\beta\xi})$. В результате для первой итерации профиля температуры $T^{(1)}(\xi)$ получалось уравнение (7), из которого следует

$$T^{(1)}(\xi)=Qc_-[e^{\lambda\beta\xi}\Gamma(1-\lambda,\ e^{\beta\xi})+1-\exp(-e^{\beta\xi})].$$

Соответствующая этому приближению концентрация электронных возбуждений

$$c^{(1)}(\xi)=c_-\exp\left(-\int e^{E/T_0-E/T^{(1)}(\xi)}\beta d\xi\right).$$

Как показывает рассмотрение, при решении системы уравнений (2), (3) можно ограничиться лишь первой итерацией. Поэтому параметры T_0 и T_0' определялись из условия $T_0=T^{(1)}|_{\xi=0}$ и $T_0'=dT^{(1)}/d\xi|_{\xi=0}$.

Найденные решения $T(\xi)=T^{(1)}(\xi)$ и $c(\xi)=c^{(1)}(\xi)$ необходимо исследовать на устойчивость. Для теплового распространения пламени в газообразной фазе такой режим, как известно, устойчив ([5]). В случае же горения безгазовых составов, который аналогичен рассматриваемому нами, в работе ([6]) путем расчетов на ЭВМ обнаружена граница неустойчивости решения, зависящего лишь от переменной $\xi=x+vt$. Согласно ([6]), решение устойчиво в области, где выполняется неравенство

$$\frac{Qc_-}{E}\left(1+\frac{T_-}{Qc_-}\right)\left[9{,}1\left(1+\frac{T_-}{Qc_-}\right)-2{,}5\right]>1.$$

Для рассматриваемой нами ситуации это неравенство выполняется. Следовательно, можно полагать, что полученное выше решение обладает устойчивостью.

Поступило
30 XI 1973

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

[1] *Я. Б. Зельдович, Д. А. Франк-Каменецкий*, ДАН, т. 19, 693 (1938). [2] *Я. Б. Зельдович*, Кинетика и катализ, т. 2, 305 (1961). [3] *А. Г. Истратов, В. Б. Либрович*, Журн. прикл. мех. и техн. физ., 68 (1962). [4] *Д. А. Франк-Каменецкий*, Диффузия и теплопередача в химической кинетике, «Наука», 1967, стр. 373. [5] *Ya. B. Zeldovich, G. I. Barenblatt*, Combustion and Flame, v. 3, 61 (1959). [6] *К. Г. Шкадинский, Б. И. Хайкин, А. Г. Мержанов*, Физика горения и взрыва, № 1, 19 (1971). [7] *Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц*, Квантовая механика, 1963.