

Эффективность накачки и время жизни уровня ${}^4F_{3/2}$ иона неодима в жидкой лазерно-активной среде $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{UO}_2^{2+} : \text{Nd}^{3+}$ при импульсном облучении осколками деления на реакторе БАРС-6

В.И.Лапидус, А.Ф.Добровольский, П.П.Дьяченко, Е.А.Серёгина, Г.В.Тихонов

Изложен метод и приведены результаты измерения эффективности накачки δ и времени жизни τ уровня ${}^4F_{3/2}$ иона Nd^{3+} ($\lambda = 1.05$ мкм) в жидкой лазерно-активной среде $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{UO}_2^{2+} : \text{Nd}^{3+}$ при облучении на импульсном реакторе БАРС-6. Получены значения δ и τ , равные $1.9 \pm 0.2\%$ и 230 ± 30 мкс соответственно. Это подтверждает результаты проведенных ранее подпороговых экспериментов на нейтронном генераторе и свидетельствует о выполнении необходимых условий для использования исследуемой жидкости в качестве активной среды оптического квантового усилителя с ядерной накачкой.

Ключевые слова: жидкая лазерно-активная среда, ядерная накачка, эффективность накачки, импульсный реактор.

1. Введение

Неорганические жидкости на основе апротонных растворителей, активированных ионами неодима и урана, представляют интерес для использования в качестве активных сред лазеров и оптических квантовых усилителей с прямой ядерной накачкой [1, 2]. По сравнению с газовыми активными средами урансодержащие жидкости наряду с такими недостатками, как более высокий уровень активных потерь, обусловленный большой термооптической постоянной и трековой структурой возбуждаемой смеси, обладают и существенным преимуществом. Благодаря содержанию в растворе урана может быть реализована гомогенная накачка, при которой эффективность передачи энергии деления лазерной среде примерно в 10 раз выше, чем при гетерогенной накачке газов. По сравнению с твердым телом жидкость менее подвержена радиационному воздействию, и при ее использовании достаточно легко организовать охлаждение и очистку среды от продуктов деления и радиолитиза путем непрерывной прокачки по замкнутому контуру через соответствующие теплообменники и фильтры.

Важными параметрами, характеризующими лазерные свойства среды, являются эффективность накачки δ и время жизни τ верхнего рабочего уровня ${}^4F_{3/2}$ активной среды [3]. В настоящее время экспериментальные данные об этих параметрах для случая возбуждения неорганических жидкостей продуктами ядерных реакций имеются лишь при облучении их нейтронами с энергией 14 МэВ в подпороговых экспериментах на импульсном нейтронном генераторе [4–6]. Так, согласно работе [4], для жидкости $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{UO}_2^{2+} : \text{Nd}^{3+}$ с концентрациями

$[\text{Nd}^{3+}] = 2.0 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$ и $[\text{UO}_2^{2+}] = 5.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ параметры $\delta = 1.5\%$ и $\tau = 250$ мкс, что позволило авторам [4] сделать вывод о перспективности использования такой жидкости в качестве активной среды оптического квантового усилителя с прямой ядерной накачкой. Однако не исключено, что в условиях работы на импульсном реакторе значения этих параметров могут оказаться меньше, чем указано в [4]. Дело в том, что в таких условиях, в отличие от экспериментов [4–6], накачка среды будет производиться в основном осколками деления урана, т. е. более тяжелыми частицами, а уровень энерговклада в активную среду будет на много порядков больше.

Цель данной работы – экспериментальное исследование этой проблемы.

2. Методика эксперимента

Известно [3], что при отсутствии резонатора поведение населенности $N_2(t)$ верхнего рабочего уровня лазерного компонента среды в процессе ее возбуждения и релаксации можно описать с помощью уравнения

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = R(t) - \frac{N_2(t)}{\tau}, \quad (1)$$

где

$$N_2(t) = \tau_{\text{rad}} \frac{\lambda}{hc} Q(t); \quad (2)$$

$R(t)$ – скорость накачки верхнего рабочего уровня; $Q(t)$ – мощность спонтанного излучения (люминесценции) с длиной волны λ , соответствующей лазерному переходу; τ_{rad} – радиационное время жизни верхнего рабочего уровня относительно перехода на нижний лазерный уровень.

Подставляя (2) в (1) и учитывая, что

$$R(t) = W(t) \delta \frac{\lambda}{hc},$$

В.И.Лапидус, А.Ф.Добровольский, П.П.Дьяченко, Е.А.Серёгина, Г.В.Тихонов. ФГУП «ГНЦ РФ – Физико-энергетический институт им. А.И.Лейпунского», Россия, 249033 Обнинск, Калужская обл., пл. Бондаренко, 1

Поступила в редакцию 27 декабря 2002 г.

где $W(t)$ – скорость энерговыклада продуктов ядерной реакции в среду, получаем

$$\frac{dQ}{dt} = W(t) \frac{\delta}{\tau_{\text{rad}}} - Q(t) \frac{\tau_{\text{rad}}}{\tau}. \quad (3)$$

Отсюда видно, что для того, чтобы определить значения искомых величин δ и τ , необходимо в процессе импульса накачки измерить $W(t)$ и $Q(t)$.

Схема эксперимента показана на рис.1. Образец 1 представляет собой герметичную кварцевую кювету длиной 50 мм с внутренним диаметром 16 мм, заполненную исследуемой жидкостью $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{UO}_2^{2+} : \text{Nd}^{3+}$. Жидкость была изготовлена по технологии, описанной в работе [7]. Концентрации Nd^{3+} и UO_2^{2+} (90 % поглощения по ^{235}U) составили соответственно 3.0×10^{20} и $6.1 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Кювета помещалась в цилиндрический полиэтиленовый замедлитель нейтронов 2, который, в свою очередь, размещался в реакторном зале стенда «Б» [8] вблизи активных зон импульсного реактора БАРС-6.

Излучение люминесценции исследуемой жидкости с помощью системы плоских 3 и сферического 4 зеркал, а также линзы 5 по оптическому тракту длиной около 15 м транспортировалось в измерительный зал к фотодетектору 6. Для выделения волны с $\lambda = 1.05 \text{ мкм}$ перед фотодетектором устанавливался ИКС-фильтр 7.

Для измерения $W(t)$ использовалась вакуумная камера деления 8, которая устанавливалась в специальный канал полиэтиленового замедлителя, расположенный в непосредственной близости от кюветы.

Импульсы с детекторов 6 и 8 поступали в блок регистрации 16, состоящий из запоминающего двухканального цифрового осциллографа TDS-220 и персонального

компьютера. Запуск системы регистрации осуществлялся с помощью низкого порога поверхностно-барьерного кремниевого детектора быстрых нейтронов и γ -лучей, испускаемых реактором.

Следует отметить, что система регистрации, включая детекторы, обладала достаточно высоким временным разрешением ($\Delta t \sim 1 \text{ мкс}$) и не приводила к сколько-нибудь заметному искажению формы измеряемых распределений. Для абсолютной привязки распределений использовались дополнительные экспериментальные процедуры.

Импульс с камеры деления нормировался на полную энергию осколков деления, вложенную в жидкость в течение импульса накачки. Последняя определялась по известному количеству урана в кювете, по измеренному удельному числу делений за импульс и по суммарной кинетической энергии осколков в акте деления, равной 172.6 МэВ. Удельное число делений за импульс f измерялось с помощью миниатюрного стеклянного трекового детектора и калиброванной урановой фольги, расположенных на поверхности кюветы в канале полиэтиленового замедлителя.

Для абсолютной привязки импульса люминесценции использовалась более сложная процедура. Дело в том, что стандартного эталонного источника света с длиной волны 1.05 мкм и достаточной для данной геометрии экспериментальной интенсивности не существует. В частности, в нашем случае вольфрамовая лампа неприменима из-за низкой интенсивности, поэтому в качестве эталона использовалась специальная система, состоящая из четырех основных элементов: калибровочного лазера 9, рассеивателя 10, калориметра 11 (измерителя энергии калибровочного импульса) и калориметра-монитора 12. Калибровочным лазером служил импульсный лазер с оптической накачкой, расположенный в измерительном зале. Активной средой в нем была жидкость, идентичная исследуемой, но не содержащая уран. Излучение калибровочного лазера по трассе длиной около 15 м с помощью зеркал 13 и линзы 14 транспортировалось в реакторный зал, проходило через светоделительную пластинку 15 и подавалось на рассеиватель 10. Часть рассеянного излучения проходила через кювету 1 и по трассе регистрации люминесценции образца поступала на фотодетектор 6. Полная энергия импульса света, падающего на рассеиватель, измерялась в отдельном опыте, когда перед рассеивателем помещался калориметр 11. Для учета возможной нестабильности калибровочного лазера в оптической схеме был предусмотрен калориметр-монитор 12.

Рассеивателем служила сборка из двух матированных с обеих сторон кварцевых пластин толщиной 7 мм и диаметром 22 мм каждая. Индикатриса рассеяния этой сборки $I(\theta, \varphi)$ была измерена с помощью калибровочного лазера и фотодетектора ФД-24К. С этой целью в измерительном зале была смонтирована специальная система, позволяющая устанавливать детектор ФД-24К на расстоянии 50 см от рассеивателя под различными углами θ и φ (изменяющимися в пределах $0 - \pi$ и $0 - 2\pi$ соответственно) к пучку калибровочного лазера. Результаты измерения $I(\theta, \varphi)$ показаны на рис.2.

Основной эксперимент проводился в три этапа. До и после реакторного импульса выполнялись две серии измерений по калибровке канала регистрации люминесценции. Для этого в каждой серии производилось два им-

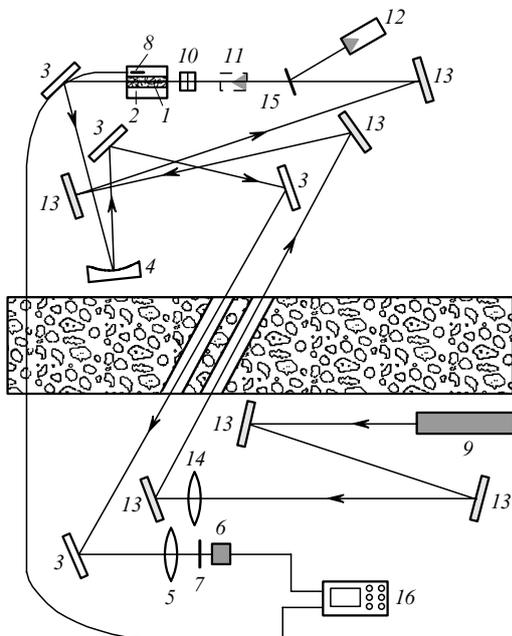


Рис.1. Схема эксперимента:

1 – экспериментальный образец; 2 – замедлитель нейтронов; 3 – плоские зеркала; 4 – сферические зеркала; 5 – линза; 6 – фотодетектор ФД-24К; 7 – ИКС-фильтр; 8 – вакуумная камера КНТ-5; 9 – калибровочный лазер; 10 – рассеиватель; 11 – калориметр; 12 – калориметр-монитор; 13 – зеркала калибровочного канала; 14 – линза калибровочного канала; 15 – поворотная пластинка; 16 – блок регистрации.

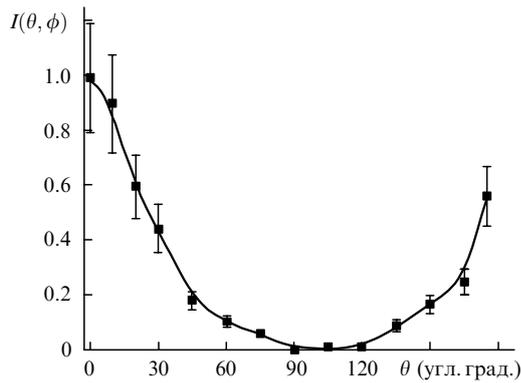


Рис.2. Индикатриса рассеяния сборки из двух матированных пластин.

пульса калибровочного лазера. В первом измерялась полная энергия импульса Q_k (перед рассеивателем I_0 устанавливался калориметр $I1$). Во втором (калориметр $I1$ отсутствовал) канал измерения люминесценции регистрировал форму калибровочного импульса $A_k(t)$. Все результаты калибровочных измерений нормировались на одинаковые показания монитора $I2$ и усреднялись. Во время реакторного импульса (калориметр $I1$ отсутствовал, калибровочный лазер 9 не работал) канал измерения люминесценции и канал измерения скорости энерговыклада регистрировали соответственно форму импульса люминесценции $A_{lum}(t)$ и форму импульса накачки $P(t)$. При этом трековый детектор регистрировал число делений в урановой фольге, по которому определялось значение f .

В такой постановке эксперимента искомые распределения $W(t)$ и $Q(t)$ можно получить из измеренных данных с помощью следующих соотношений:

$$W(t) = 2 \times 10^{10} \frac{fP(t)}{\int P(t)dt}, \quad (4)$$

$$Q(t) = 4\pi \frac{A_{lum}(t)Q_k I(\theta = 0, \varphi = 0)}{\int A_k(t)dt \int_{\theta\varphi} I(\theta, \varphi) \sin \theta d\theta d\varphi}. \quad (5)$$

3. Результаты и обсуждение

На рис.3 приведены результаты измерения распределений $P(t)$, $A_{lum}(t)$, $A_k(t)$. На рис.4 показаны полученные из них в соответствии с выражениями (4) и (5) распреде-

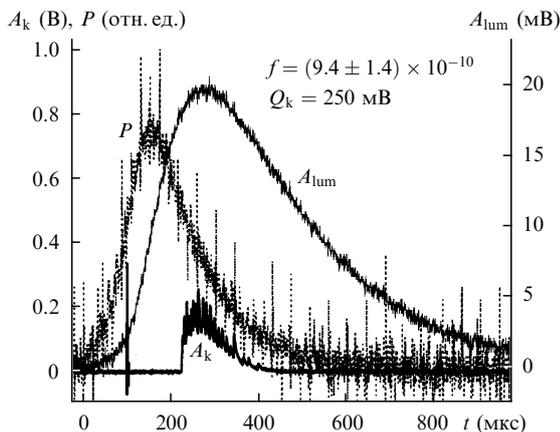


Рис.3. Экспериментальные зависимости $A_{lum}(t)$, $A_k(t)$ и $P(t)$.

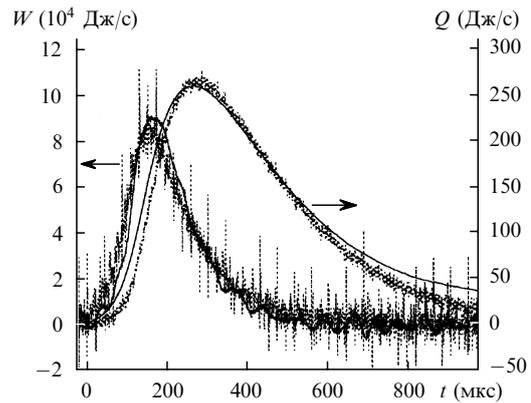


Рис.4. Экспериментальные (пунктир) и расчетные (сплошные кривые) зависимости $W(t)$ и $Q(t)$.

ления $W(t)$ и $Q(t)$. Там же представлены результаты расчетных распределений, полученных с помощью уравнения (3) для $\tau_{rad} = 633$ мкс [9] и определенных методом наименьших квадратов значений δ и τ , которые оказались равными соответственно $(1.9 \pm 0.2) \times 10^{-2}$ и 230 ± 30 мкс. Видно, что эти значения позволяют достаточно хорошо описать измеренные распределения.

Таким образом, можно сказать, что в лазерно-активной жидкости $POCl_3 - SnCl_4 - UO_2^{2+} : Nd^{3+}$ при ее возбуждении на импульсном реакторе значения эффективности накачки и времени жизни верхнего рабочего уровня Nd^{3+} не меньше соответствующих значений, измеренных методом подпороговой диагностики [3]. Причем значение параметра δ даже больше, чем в случае возбуждения среды на нейтронном генераторе. Однако следует заметить, что в условиях работы на реакторе накачка среды производится не только осколками деления урана, но и быстрыми электронами, возникающими в результате взаимодействия γ -квантов с веществом (γ -квантов деления из реактора и вторичных γ -квантов, возникающих при радиационном захвате тепловых нейтронов ядрами хлора, входящего в состав исследуемой жидкости). Несмотря на то, что сечение и энергии (n, γ)-реакции в 20 и 30 раз меньше соответствующих величин для реакции деления урана, вклад этого процесса может оказаться заметным, т. к. концентрация ядер хлора в образце в 600 раз больше концентрации урана.

Для изучения влияния этих процессов был проведен дополнительный эксперимент, аналогичный основному, но с образцом жидкости, не содержащей уран. Результаты эксперимента показали, что суммарный вклад γ -лучей в эффективность накачки составляет не более 30%. Отсюда следует, что значения эффективности накачки и времени жизни верхнего рабочего уровня Nd^{3+} в жидкости $POCl_3 - SnCl_4 - UO_2^{2+} : Nd^{3+}$ при возбуждении осколками деления на импульсном реакторе удовлетворительно согласуются с соответствующими данными, полученными при возбуждении аналогичной жидкости продуктами ядерных реакций, которые возникают при взаимодействии с ядрами среды нейтронов с энергией 14 МэВ и с плотностью потока в импульсе примерно на семь порядков меньше, чем в случае импульсного реактора. Этот факт можно объяснить трековым характером плазмы, возбуждаемой заряженными продуктами ядерных реакций (в том числе осколками деления) в веществе [3]. В условиях работы на реакторе, несмотря на относительно высокий уровень энерговыклада в среду, по-видимому,

еще не происходит существенного перекрытия треков. Поэтому параметры δ и τ в этом случае, так же как и при работе на нейтронном генераторе, определяются свойствами отдельного трека, а их зависимость от массы и заряда возбуждающих частиц в диапазоне, соответствующем продуктам ядерных реакций на быстрых нейтронах с атомами среды, с одной стороны, и с осколками деления урана, с другой, по-видимому, слаба.

4. Заключение

Таким образом, экспериментальные данные о лазерных характеристиках урансодержащих жидкостей на основе апроптонной кислоты, активированной неодимом, которые получены методом подпороговой диагностики, адекватны условиям работы среды при высоком уровне энерговыклада на импульсном реакторе.

Среди известных в настоящее время активных сред для лазеров с ядерной накачкой неорганическая жидкость $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{UO}_2^{2+}:\text{Nd}^{3+}$ обладает наибольшей эффективностью накачки, отнесенной к полной энергии деления, выделяемой в системе, и наибольшим временем жизни верхнего лазерного уровня. Так, например, у смеси $\text{Ne} - \text{Ar} - \text{Xe}$, используемой в качестве активной среды наиболее эффективного на сегодня газового лазера с ядерной накачкой, значения δ меньше в 10, а τ – в 200 раз.

При этом важно отметить, что время жизни верхнего лазерного уровня Nd^{3+} сравнимо с длительностью импульса накачки, характерной для импульсных реакторных систем (0.1–1 мс). Это свойство, а также высокая эффективность преобразования энергии деления ядер в энергию, запасенную в инверсии, являются необходи-

мым условием для создания на основе исследуемой жидкости мощного и эффективного оптического квантового усилителя с ядерной накачкой. Что касается выполнимости достаточного условия – сохранения удовлетворительной прозрачности среды на длине волны генерации в процессе накачки, – то здесь требуются дальнейшие исследования.

Авторы считают своим долгом выразить признательность В.В.Коробкину за интерес к работе и полезные обсуждения, а также персоналу стенда «Б» ГНЦ РФ ФЭИ за бесперебойную работу реактора БАРС-6.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 01-02-16551).

1. Dyachenko P.P., Zrodnikov A.V., Kononov V.V., et al. *Fusion Techn.*, **20**, 969 (1991).
2. Серегин А.А., Добровольский А.Ф., Дьяченко П.П. и др. *Квантовая электроника*, **27** (2), 127 (1999).
3. Dyachenko P.P., Dorofeev Yu.V., Poletaev E.D., et al. In: *Proc. Int. Conf. LASER'90* (San-Diego, USA, 1991, p. 835).
4. Дьяченко П.П., Калинин В.В., Серегина Е.А. и др. В сб. *Труды отраслевой конф. «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой» (ЛЯН-92)* (Обнинск, 1993, т. 2, с. 156).
5. Добровольский А.Ф., Дьяченко П.П., Калинин В.В., Серегина Е.А. В сб. *Труды II Междун. конф. «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой» (ЛЯН-94)* (Арзамас-16, 1995, т. 1, с. 142).
6. Дьяченко П.П., Калинин В.В., Серегина Е.А. и др. В сб. *Труды II Междун. конф. «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой» (ЛЯН-94)* (Арзамас-16, 1995, т. 1, с. 219).
7. Серегина Е.А., Тихонов Г.В. *Химическая физика*, **15**, 116 (1996).
8. Дьяченко П.П., Еловский О.А., Прохоров Ю.А. и др. *Атомная энергия*, **88**, 337 (2000).
9. Серегина Е.А., Тихонов Г.В. *Химия высоких энергий*, **34**, 30 (2000).