

# Исследование кинетики заселения лазерных уровней иона неодима в $\text{POCl}_3\text{–SnCl}_4\text{–}^{235}\text{UO}_2^{2+}\text{–Nd}^{3+}$ при накачке осколками деления

Е.А.Серёгина, **А.Ф.Добровольский**, Д.В.Кабаков, А.А.Серёгин, Г.В.Тихонов

*Проведены экспериментальные и теоретические исследования кинетики заселения лазерных уровней иона неодима в урансодержащей лазерной жидкости  $\text{POCl}_3\text{–SnCl}_4\text{–}^{235}\text{UO}_2^{2+}\text{–Nd}^{3+}$  при её облучении на импульсном реакторе БАРС-6. Измерены соотношения между населённостями верхнего и нижнего лазерных уровней в разные моменты времени относительно импульса накачки. Обнаружена инверсная населённость лазерных уровней, которая прямо пропорциональна мощности накачки. Определена эффективность накачки верхнего лазерного уровня иона неодима и получена количественная информация об инверсной населённости, о коэффициенте усиления и об их зависимостях от мощности накачки лазерной среды осколками деления ядер урана.*

**Ключевые слова:** урансодержащая и неодимсодержащая жидкая среда, оксихлорид фосфора, ядерная накачка осколками деления, кинетика заселения, инверсная населённость.

## 1. Введение

Развитие новых лазерных технологий и их промышленное применение требуют разнообразных и достаточно дешёвых источников лазерного излучения. В перспективе одними из таких источников могут стать лазеры и лазерные усилители с ядерной накачкой, в которых энергия деления атомных ядер преобразуется в энергию лазерного излучения [1, 2]. Сегодня уже известны более тридцати различных газовых сред, на которых получена генерация при накачке осколками деления [3], и показана принципиальная возможность преобразования энергии цепной реакции деления в лазерное излучение [4]. Однако полученные параметры преобразования энергии деления в лазерное излучение в известных газовых средах пока не удовлетворяют специалистов. Поэтому идет поиск новых лазерных сред, в которых процесс преобразования кинетической энергии осколков деления в лазерное излучение происходил бы более эффективно.

Одним из направлений такого поиска является замена газовых сред жидкими лазерными средами. По своим потенциальным возможностям жидкостные лазерно-активные среды более перспективны, чем газовые. В жидкостях эффективность преобразования кинетической энергии осколков деления в энергию возбужденных активных ионов почти в десять раз больше, чем в газовых средах. Жидкие лазерно-активные среды обладают огромной «энергетикой». Так, при использовании лазерной жидкости на основе оксихлорида фосфора ( $\text{POCl}_3\text{–SnCl}_4\text{–Nd}^{3+}$ ) в случае оптической накачки за импульс длительностью 150 мкс была получена выходная энергия  $\sim 6$  Дж с одного

кубического сантиметра активной среды [5]. Эти преимущества жидкостного лазера с ядерной накачкой можно будет реализовать только при успешном решении двух задач. Во-первых, если удастся получить урансодержащую лазерную среду, обладающую высокой радиационной стойкостью, малым поглощением на длине волны генерации и малой вязкостью для улучшения условий её прокачки, в которой не должен выпадать осадок ни в рабочем режиме, ни при хранении. И во-вторых, если удастся получить лазерную генерацию при облучении этой урансодержащей лазерной среды реакторным излучением, что невозможно сделать без понимания физических процессов, протекающих в жидкой лазерной среде при ядерной накачке.

В ФЭИ впервые в мире разработана технология синтеза жидкостного урансодержащего лазерного материала первого поколения ( $\text{POCl}_3\text{–SnCl}_4\text{–}^{235}\text{UO}_2^{2+}\text{–Nd}^{3+}$ ), отвечающего указанным выше требованиям, с концентрациями ионов неодима до  $5 \times 10^{20}$  см<sup>-3</sup> и ионов урана-235 до  $5 \times 10^{19}$  см<sup>-3</sup> и получен патент на этот материал [6]. С использованием данной среды уже реализована лазерная генерация при оптической накачке. Таким образом, задача создания урансодержащей жидкой лазерной среды для ядерной накачки выполнена. А вот получить лазерную генерацию при ядерной накачке урансодержащей лазерной среды пока не удается.

Наши предыдущие экспериментальные исследования [7] и модельные расчеты [8] показали, что лазерная неорганическая жидкость  $\text{POCl}_3\text{–SnCl}_4\text{–}^{235}\text{UO}_2^{2+}\text{–Nd}^{3+}$  имеет эффективность преобразования кинетической энергии осколков деления в энергию возбуждения ионов неодима, достаточную для создания жидкостного лазера с ядерной накачкой при условии, что лазер работает по четырёхуровневой схеме. При оптической накачке четырёхуровневое приближение для описания работы неодимового лазера является вполне удовлетворительным. Однако при ядерной накачке механизм возбуждения лазерных уровней иной и существенно более сложный. По-

Е.А.Серёгина, А.Ф.Добровольский, Д.В.Кабаков, А.А.Серёгин, Г.В.Тихонов. ГНЦ РФ – Физико-энергетический институт им. А.И.Лейпунского, Калужская обл., 249033 Обнинск, пл. Бондаренко, 1; e-mail: seregina@ippe.ru

Поступила в редакцию 26 декабря 2008 г., после доработки – 24 февраля 2009 г.

этому исследования кинетики и эффективности заселения не только верхнего, но и нижнего лазерного уровня иона неодима представляются крайне важными для данного направления работ.

В настоящей работе рассматривается кинетика заселения нижнего и верхнего лазерных уровней иона неодима при ядерной накачке, определяется временная область существования инверсной населённости и её зависимость от энерговклада осколков деления в лазерную среду.

## 2. Теоретическое моделирование процесса заселения лазерных уровней $Nd^{3+}$ при ядерной накачке

Для экспериментального исследования кинетики заселения верхнего и нижнего лазерных уровней иона неодима в лазерной среде (рис.1), возбужденной осколками деления, предлагается метод, подобный описываемому в литературе [9, 10] методу «сброса» люминесценции. Суть метода заключается в регистрации изменения интенсивности перехода  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$  иона неодима в среде, возбужденной осколками деления, при прохождении через неё излучения вспомогательного лазера с длиной волны, резонансной лазерному переходу  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ .

На рис.1 приведена схема энергетических уровней иона  $Nd^{3+}$ . Населённость  $i$ -го уровня  $N_i$  иона  $Nd^{3+}$  в невозбуждённой среде описывается распределением Больцмана:

$$N_i(T) = N_1 \exp \left[ -\Delta E_i / (kT) \right], \quad (1)$$

где  $N_1$  – концентрация ионов неодима в среде;  $\Delta E_i$  – разность энергий  $i$ -го и основного уровней;  $k$  – постоянная Больцмана;  $T$  – температура среды в кельвинах. Энергию верхнего лазерного уровня  ${}^4F_{3/2}$  иона неодима в исследуемой среде можно определить из спектров люминесценции на переходе  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ . Энергию нижнего лазерного уровня непосредственно измерить сложно из-за высокого поглощения света средой в ИК области спектра. В то же время из рис.1 видно, что, зная экспериментальные энергии переходов  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$  и  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ , можно определить положение уровня  ${}^4I_{11/2}$ . Оказалось, что эти энергии в лазерных жидкостях  $POCl_3 - SnCl_4 - {}^{235}UO_2^{2+} - Nd^{3+}$  равны 1.389 и 1.179 эВ соответственно, и, следовательно, энергия нижнего лазер-

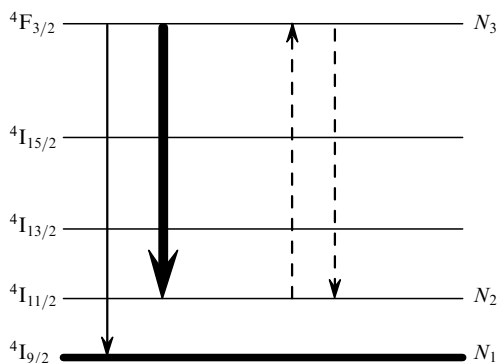


Рис.1. Схема уровней иона неодима  $Nd^{3+}$ . Жирная стрелка – лазерный переход, тонкая стрелка – исследуемый переход, штриховые стрелки – переходы, обусловленные поглощением или усилением излучения вспомогательного лазера.

ного уровня составляет 0.21 эВ. Таким образом, при температуре 293 К населённость нижнего лазерного уровня  ${}^4I_{11/2}$  равна  $3.24 \times 10^{-4} N_1$ , а населённость верхнего уровня более чем на 20 порядков меньше  $N_1$ , т. е. при комнатной температуре верхний уровень практически пустой по сравнению с нижним. При прохождении через невозбуждённую среду излучения вспомогательного лазера с длиной волны, резонансной лазерному переходу  ${}^4I_{11/2} \rightarrow {}^4F_{3/2}$ , часть этого излучения будет поглощаться и тем самым переводить ионы неодима из состояния  ${}^4I_{11/2}$  в верхнее возбуждённое состояние  ${}^4F_{3/2}$ . В результате появится спонтанная люминесценция с верхнего лазерного уровня на все нижележащие уровни, в том числе и на основной. Наведённую излучением вспомогательного лазера люминесценцию с верхнего лазерного уровня на основной уровень иона неодима можно будет регистрировать соответствующими приборами.

При возбуждении среды осколками деления возникает спонтанная люминесценция ионов неодима. При прохождении через возбуждённую среду излучения вспомогательного лазера происходит быстрое изменение населённости верхнего лазерного уровня  ${}^4F_{3/2}$  за счёт либо поглощения, либо усиления излучения с длиной волны  $\lambda = 1053$  нм. При этом изменяется интенсивность люминесценции на переходе  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ . Если интенсивность не изменяется, то это означает, что населённости верхнего и нижнего лазерных уровней равны друг другу. Таким образом, по изменению интенсивности люминесценции на переходе  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$  в момент прохождения резонансного лазерного импульса можно судить об отношении населённостей верхнего ( ${}^4F_{3/2}$ ) и нижнего ( ${}^4I_{11/2}$ ) лазерных уровней иона неодима в возбуждённой осколками деления лазерной жидкости  $POCl_3 - SnCl_4 - UO_2^{2+} - Nd^{3+}$ , которые описываются следующей системой уравнений:

$$\frac{dN_3}{dt} = w_{13}(N_1 - N_3) + \sigma I(N_2 - N_3) - \frac{N_3}{\tau_3}, \quad (2)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = w_{12}(N_1 - N_2) - \sigma I(N_2 - N_3) + \frac{N_3}{\tau_{32}} - \frac{N_2 - N_{20}}{\tau_2},$$

где  $N_3$  и  $N_2$  – концентрации ионов неодима на верхнем и нижнем лазерных уровнях соответственно;  $N_{20}$  – равновесная концентрация ионов неодима на нижнем уровне (см. уравнение (1));  $w_{12}$  и  $w_{13}$  – скорости ядерной накачки нижнего и верхнего уровней;  $\sigma$  – сечение вынужденного излучения на переходе  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ ;  $I$  – плотность потока фотонов в лазерном импульсе;  $\tau_2$  и  $\tau_3$  – времена жизни нижнего и верхнего лазерных уровней;  $1/\tau_{32}$  – вероятность излучения на переходе  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ .

Выражение для скорости ядерной накачки нижнего уровня имеет вид [8]

$$w_{12}(t) = \frac{\delta_2 \varepsilon_f I_f(t)}{N_1 h \nu_{21}}, \quad (3)$$

а для скорости накачки верхнего уровня –

$$w_{13}(t) = \frac{\delta_3 \varepsilon_f I_f(t)}{N_1 h \nu_{31}}. \quad (4)$$

В этих выражениях  $\varepsilon_f = 172$  МэВ – энергия, выделяемая при делении одного ядра урана-235;  $\delta_2$  и  $\delta_3$  – эффективности накачки нижнего и верхнего уровней;  $h\nu_{21}$  и  $h\nu_{31}$  – энергии переходов с основного уровня  ${}^4I_{9/2}$  на уровни  ${}^4I_{11/2}$  и  ${}^4F_{3/2}$  соответственно;  $I_f(t)$  – интенсивность деле-

ний ядер урана в  $1 \text{ см}^3$  лазерной жидкости, которое хорошо описывается для двухзонного импульсного реактора выражением [8]

$$I_t(t) = \frac{E_r \kappa}{2\theta_{\text{las}} V} \exp\left(\frac{\theta_r^2}{4\pi\theta_{\text{las}}^2} - \frac{t - t_m}{\theta_{\text{las}}}\right) \times \left\{ 1 + \operatorname{erf}\left[\frac{\sqrt{\pi}(t - t_m)}{\theta_{\text{las}}} - \frac{\theta_r}{2\theta_{\text{las}}\sqrt{\pi}}\right] \right\}. \quad (5)$$

Здесь  $E_r = 2 \times 10^{17}$  – число делений в двух зонах реактора за импульс;  $V$  – объём жидкости в кювете;  $\kappa$  – экспериментально измеряемый геометрический фактор, который зависит от расположения кюветы относительно реакторов;  $t_m = 165 \text{ мкс}$  – время достижения максимума импульса в реакторе;  $\theta_r = 80 \text{ мкс}$  – длительность нейтронного импульса в активной зоне реактора;  $\theta_{\text{las}} = 140 \text{ мкс}$  – длительность нейтронного импульса после замедления нейтронов в области расположения кюветы с урансодержащей лазерной жидкостью;  $\operatorname{erf}(x)$  – функция ошибок.

При решении системы уравнений (2) необходимо учесть, что  $N_1 + N_2 + N_3 = N_t$ ,  $N_2(0) = N_{20}$  и  $N_3(0) = 0$ . Тогда система (2) преобразуется в следующую систему уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dN_3}{dt} &= w_{13}(N_t - N_2 - 2N_3) + \sigma I(N_2 - N_3) - \frac{N_3}{\tau_3}, \\ \frac{dN_2}{dt} &= w_{12}(N_t - 2N_2 - N_3) - \sigma I(N_2 - N_3) \\ &+ \frac{N_3}{\tau_{32}} - \frac{N_2 - N_{20}}{\tau_2}. \end{aligned} \quad (6)$$

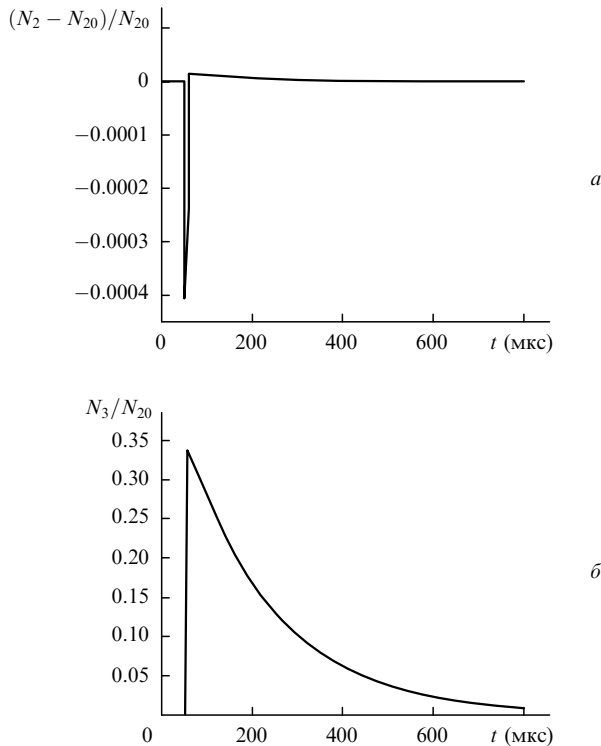


Рис.2. Результаты расчёта относительных населённостей нижнего (а) и верхнего (б) лазерных уровней  $\text{Nd}^{3+}$  при прохождении через среду зондирующего импульса с длиной волны 1053 нм, длительностью 10 мкс и плотностью энергии 1 Дж/см<sup>2</sup>.

Аналитического решения системы (6) не существует, и она решалась численно. На рис.2 приведены результаты расчёта населённостей нижнего ( ${}^4\text{I}_{11/2}$ ) и верхнего ( ${}^4\text{F}_{3/2}$ ) лазерных уровней иона неодима в лазерной жидкости  $\text{POCl}_3\text{-SnCl}_4\text{-}^{235}\text{UO}_2^{2+}\text{-Nd}^{3+}$  в отсутствие ядерной накачки. В расчёте использовались типичные параметры жидкой лазерной среды:  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ,  $N_{20} = 1.2 \times 10^{-4} N_t$ ,  $\sigma = 8 \times 10^{-20} \text{ см}^2$ ,  $\tau_3 = 200 \text{ мкс}$ ,  $\tau_{32} = 830 \text{ мкс}$  и  $\tau_2 = 0.01 \text{ мкс}$ . Сечение вынужденного излучения  $\sigma$  и излучательное время жизни  $\tau_{32}$  взяты из работы [11]. Из рис.2 видно, что лазерный импульс с плотностью энергии 1 Дж/см<sup>2</sup> за счёт резонансного поглощения света переводит часть ионов неодима с нижнего на верхний лазерный уровень. В момент прохождения импульса концентрация ионов на нижнем уровне резко уменьшается, а на верхнем резко возрастает. Затем равновесие на нижнем уровне быстро восстанавливается из-за малого времени жизни  $\tau_2$ , а концентрация ионов неодима на верхнем уровне начинает уменьшаться в соответствии с его временем жизни, которое в данном случае составляет 200 мкс.

В случае ядерной накачки ситуация более сложная. На рис.3 представлены результаты расчёта временных зависимостей населённости верхнего лазерного уровня  $N_3$ , равновесной населённости нижнего уровня  $N_{20}$  и наведённой осколками деления населённости нижнего лазерного уровня  $N_2 - N_{20}$  при удельной энергии накачки  $E_{\text{in}} = 7$  и  $14 \text{ Дж/см}^3$ . Здесь  $E_{\text{in}}$  – удельный энерговклад, который равен кинетической энергии осколков деления, поглощённой в  $1 \text{ см}^3$  жидкости. В расчётах эффективность накачки  $\delta$  верхнего лазерного уровня полагалась равной 1%. Из рис.3 видно, что при накачке осколками деления существуют две последовательные точки на оси  $t$ , в которых меняется соотношение между населённостями ниж-

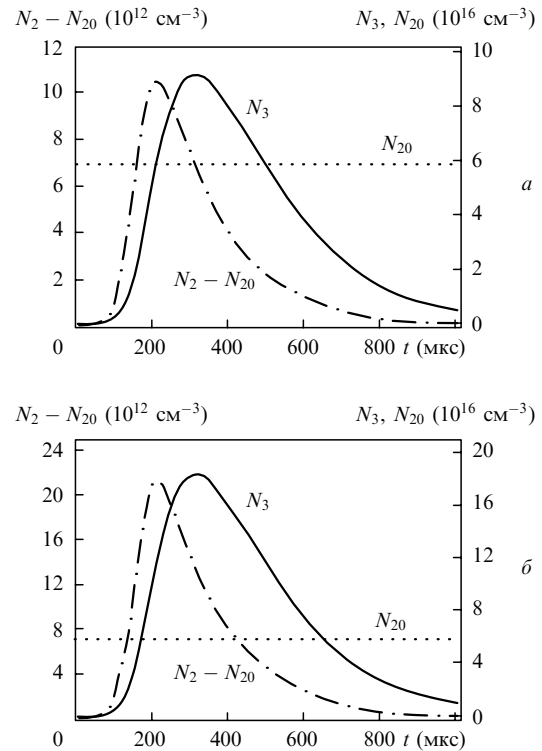


Рис.3. Результаты расчёта населённостей нижнего ( $N_2 - N_{20}$ ) и верхнего ( $N_3$ ) лазерных уровней  $\text{Nd}^{3+}$  в случае возбуждения жидкости осколками деления с энерговкладами 7 (а) и 14 Дж/см<sup>3</sup> (б) при  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ,  $N_{20} = 5.8 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$  и  $\delta = 1\%$ .

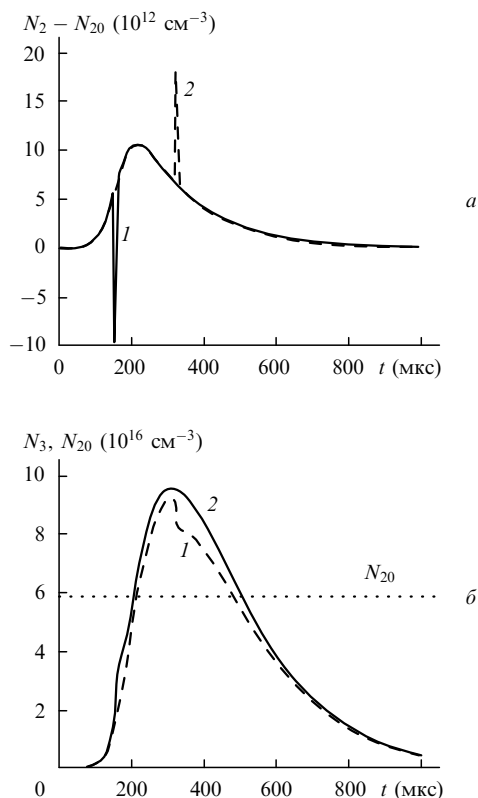


Рис.4. Временные зависимости населённостей нижнего (а) и верхнего (б) лазерных уровней в случае накачки осколками деления с энерговкладом  $7 \text{ Дж/см}^3$  при прохождении через среду зондирующего импульса с задержкой 150 (1) и 320 мкс (2).

него и верхнего лазерных уровней. Эти точки разбивают время ядерной накачки на три последовательных интервала. В первом интервале населённость нижнего лазерного уровня  $N_2$  больше населённости верхнего лазерного уровня  $N_3$ . Во втором интервале  $N_2$  становится меньше  $N_3$ , т.е. в этой области появляется инверсная населённость. В третьем интервале  $N_2$  снова становится больше  $N_3$ . Из результатов расчёта, представленных на рис.3, видно, что область инверсной населённости расширяется с ростом энерговклада осколков деления в лазерную жидкость. Первая упомянутая точка на оси  $t$  позволяет определить минимальный порог накачки, при котором появляется инверсия в лазерной жидкости. Оказалось, что для данной жидкости он равен  $1.6 \text{ Дж/см}^3$ . Эта минимальная пороговая удельная энергия накачки соответствует минимальному теоретическому порогу лазерной генерации в идеальном случае отсутствия потерь света на торцах кюветы с лазерной жидкостью и на зеркалах резонатора, а также потерь, связанных с поглощением и рассеянием света в лазерной среде.

На рис.4 представлены результаты расчёта населённостей верхнего и нижнего лазерных уровней при прохождении через возбужденную среду зондирующего импульса с плотностью энергии  $1 \text{ Дж/см}^2$  в разные моменты времени относительно начала импульса накачки осколками деления с энерговкладом  $7 \text{ Дж/см}^3$ . При прохождении зондирующего импульса с задержкой 150 мкс относительно момента времени  $t = 0$ , т.е. в области, где  $N_2 > N_3$ , за счёт поглощения зондирующего излучения происходит резкое уменьшение населённости нижнего лазерного уровня (кривая 1 на рис.4,а) и возрастание населённости верхнего лазерного уровня (кривая 1 на

рис.4,б). При прохождении зондирующего импульса с задержкой 320 мкс картина обратная: возрастает неравновесная населённость нижнего лазерного уровня (кривая 2 на рис.4,а) и резко падает населённость верхнего лазерного уровня (кривая 2 на рис.4,б).

Следует отметить, что максимальное увеличение населённости нижнего уровня относительно равновесной в процессе ядерной накачки невелико и составляет менее одного процента.

Таким образом, проведенные расчёты показывают, что при накачке осколками деления с энерговкладом, большим минимального теоретического порога для жидкой лазерной среды, активированной неодимом, появляется инверсная населённость лазерных уровней. Поскольку интенсивность люминесценции пропорциональна населённости верхнего уровня, то в экспериментах по регистрации люминесценции с верхнего уровня на основной в момент прохождения через среду зондирующего импульса с разными временными задержками относительно импульса накачки могут быть зарегистрированы изменения интенсивности люминесценции, подобные расчётным (рис.4). При этом, как следует из расчётов, инверсия должна будет возрастать с увеличением удельного энерговклада в среду.

### 3. Методика эксперимента

Методика эксперимента и результаты предварительных экспериментов подробно рассмотрены нами в работах [12, 13]. Здесь кратко опишем схему эксперимента на реакторе БАРС-6, которая приведена на рис.5. Герметично запаянную кварцевую кювету 2 с исследуемой средой  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - {}^{235}\text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$ , помещённую в отполированный конус 3, устанавливали между активными зонами 1 импульсного реактора. Поскольку основной вклад в возбуждение среды дают осколки деления изотопов урана-235, то для увеличения числа делений кювету окружали полиэтиленовым замедлителем нейтронов 4. Кювету с исследуемой жидкостью, возбуждённой осколками деления, «простреливали» из измерительного зала пучком излучения вспомогательного лазера 5 с резонансной лазерному переходу длиной волны  $\lambda = 1053 \text{ нм}$ .

В качестве вспомогательного лазера использовался жидкостный лазер на  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{Nd}^{3+}$ , работающий в режиме модулированной добротности с пассивным затвором 7 (кристалл  $\text{YAG} : \text{Cr}^{4+}$ ). Запуск блока накачки и регистрирующей аппаратуры проводили синхронно с импульсом реактора БАРС-6. Энергия генерации вспомогательного лазера измерялась калориметром 23, на который отводилась часть лазерного излучения кварцевой пластиной 22. С помощью pin-фотодиода 25 регистрировался импульс генерации. Энергия генерации лазера была равна  $0.7 \pm 0.1 \text{ Дж}$ , длительность импульса – 20 нс. С помощью систем зеркал лазерное излучение вводилось в кювету, установленную в реакторном зале. Возникающее люминесцентное излучение направлялось конусом 3 на сферическое зеркало 14 и далее зеркалами 13 и 12 на плоское алюминиевое зеркало 15 с отверстием диаметром 10 мм, через которое излучение вспомогательного лазера попадало в реакторный зал. Отражённое от зеркала 15 люминесцентное излучение с помощью зеркал 16, 17 и 18 передавалось в измерительный зал, где фокусировалось линзой 20 на окно фотоэлектронного умножителя ФЭУ-100 21. Перед входным окном ФЭУ установ-

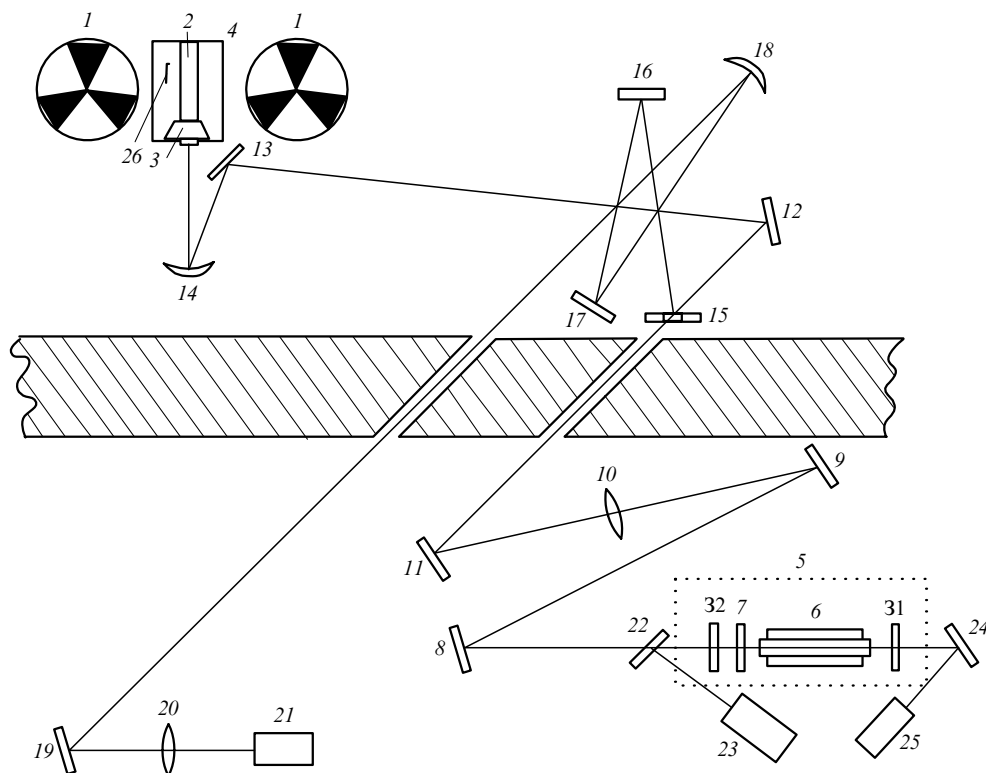


Рис.5. Схема эксперимента на реакторе БАРС-6:

1 – активные зоны реактора; 2 – кювета с урансодержащей лазерной жидкостью; 3 – конус; 4 – замедлитель нейтронов; 5 – вспомогательный лазер на основе жидкости  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{Nd}^{3+}$ ; 6 – лазерный модуль; 7 – пассивный затвор; 31 и 32 – зеркала резонатора с коэффициентами отражения 99 % и 17 % соответственно; 8, 9, 11, 12, 13, 16, 17, 19 – плоские зеркала; 10 – линза; 14 – сферическое медное зеркало с радиусом кривизны  $R = 4$  м; 15 – плоское алюминиевое зеркало с отверстием в центре; 18 – сферическое медное зеркало с  $R = 6$  м; 20 – линза; 21 – ФЭУ-100; 22, 24 – кварцевые пластинки; 23 – калориметр ИМО-2Н; 25 – pin-фотодиод; 26 – камера деления.

ливался полосовой светофильтр, пропускающий только излучение неодама с верхнего лазерного уровня на основной ( $\lambda = 880 \pm 50$  нм).

Для измерения скорости делений в течение реакторного импульса использовалась вакуумная камера деления 26, которая устанавливалась в специальный канал полиэтиленового замедлителя, расположенный в непосредственной близости от исследуемой кюветы. Импульсы с камеры деления, ФЭУ-100 и pin-фотодиода поступали в блок регистрации, состоящий из запоминающих двухканальных цифровых осциллографов TDS-220, TDS-1012 и персонального компьютера. Система регистрации, включая детекторы, обладала достаточно высоким временным разрешением (менее 1 мкс) и не вызывала сколько-нибудь заметного искажения формы измеряемых сигналов.

Для расчёта мощности накачки временное распределение интенсивности сигнала с камеры деления нормировалось на энерговыдел осколков деления за реакторный импульс. Последний определялся по известному количеству урана в кювете, измеренному удельному числу делений за импульс и суммарной кинетической энергии осколков в акте деления. Удельное число делений за импульс измерялось с помощью миниатюрного стекляннотрекового детектора и калиброванной урановой фольги, расположенных на поверхности кюветы в канале полиэтиленового замедлителя.

При облучении лазерной жидкости  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - {}^{235}\text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$  нейтронами импульсного реактора ядра урана делятся на два осколка. При торможении в жидкости энергия осколков деления расходуется на ионизацию

и возбуждение частиц, в том числе и ионов  $\text{Nd}^{3+}$ . В такой возбуждённой среде будет происходить заселение как верхнего, так и нижнего лазерного уровня иона неодама. Ожидается, что при прохождении мощного резонансного излучения вспомогательного лазера будет осуществляться быстрое изменение населённости верхнего лазерного уровня  ${}^4\text{F}_{3/2}$  за счёт либо поглощения, либо усиления излучения с  $\lambda = 1053$  нм. При этом должна изменяться интенсивность люминесценции на переходе  ${}^4\text{F}_{3/2} \rightarrow {}^4\text{I}_{9/2}$ , которая измеряется соответствующей аппаратурой. Если интенсивность не будет меняться, то это означает, что населённости верхнего и нижнего лазерных уровней равны друг другу и жидкость остаётся прозрачной для излучения вспомогательного лазера.

Здесь важно отметить, что в данной методике благодаря малому объёму люминесцирующего вещества (менее  $0.8 \text{ см}^3$ ), который «просматривается» отражающим конусом 3 высотой 2 см, можно не учитывать ни неактивные потери в среде, ни наведённые осколками потери, т. к. из-за малости проходимого светом расстояния в лазерной жидкости эти потери практически не влияют на интенсивность люминесценции на переходе  ${}^4\text{F}_{3/2} \rightarrow {}^4\text{I}_{9/2}$ .

#### 4. Результаты эксперимента и их обсуждение

Для проведения экспериментов были приготовлены две лазерные жидкости с одинаковыми концентрациями ионов неодама  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$  и разными концентрациями урана:  $1.8 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$  (№ 1) и  $7.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$  (№ 2). Лазерные жидкости были синтезированы по ранее разработанной методике [6].

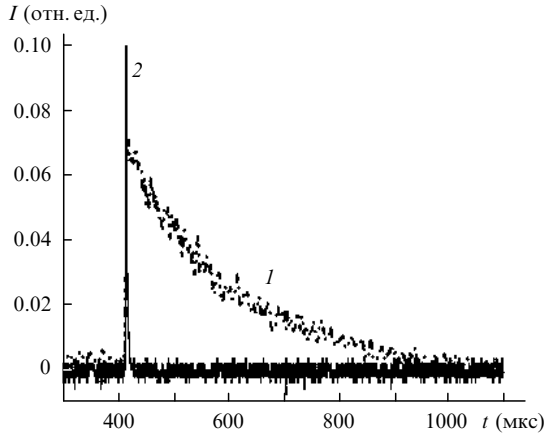


Рис.6. Осциллограммы импульсов люминесценции на переходе  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$  иона неодима (1) и излучения вспомогательного лазера (2) при его прохождении через среду в отсутствие реакторного импульса.

Перед началом эксперимента измерялась интенсивность люминесценции образца, находящегося между активными зонами реактора, при воздействии на него импульса вспомогательного лазера. На рис.6 приведены типичная осциллограмма импульса излучения вспомогательного лазера и сигнал люминесценции на переходе  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ . По этому рисунку можно судить о достаточно высокой чувствительности регистрирующего канала. При исследовании жидкости № 1 энерговклад осколков деления составлял  $5 \pm 0.5$  Дж/см<sup>3</sup>, при исследовании жидкости № 2 он изменялся в пределах 10–14 Дж/см<sup>3</sup>. Во всех случаях в области максимума спонтанной радиолуминесценции регистрировалось наличие инверсной населённости верхнего лазерного уровня. Результаты исследования жидкости № 1 описаны в работе [13]. Здесь более подробно остановимся на результатах исследования жидкости № 2.

На рис.7 показаны интенсивности люминесценции иона неодима на переходе с верхнего лазерного уровня на

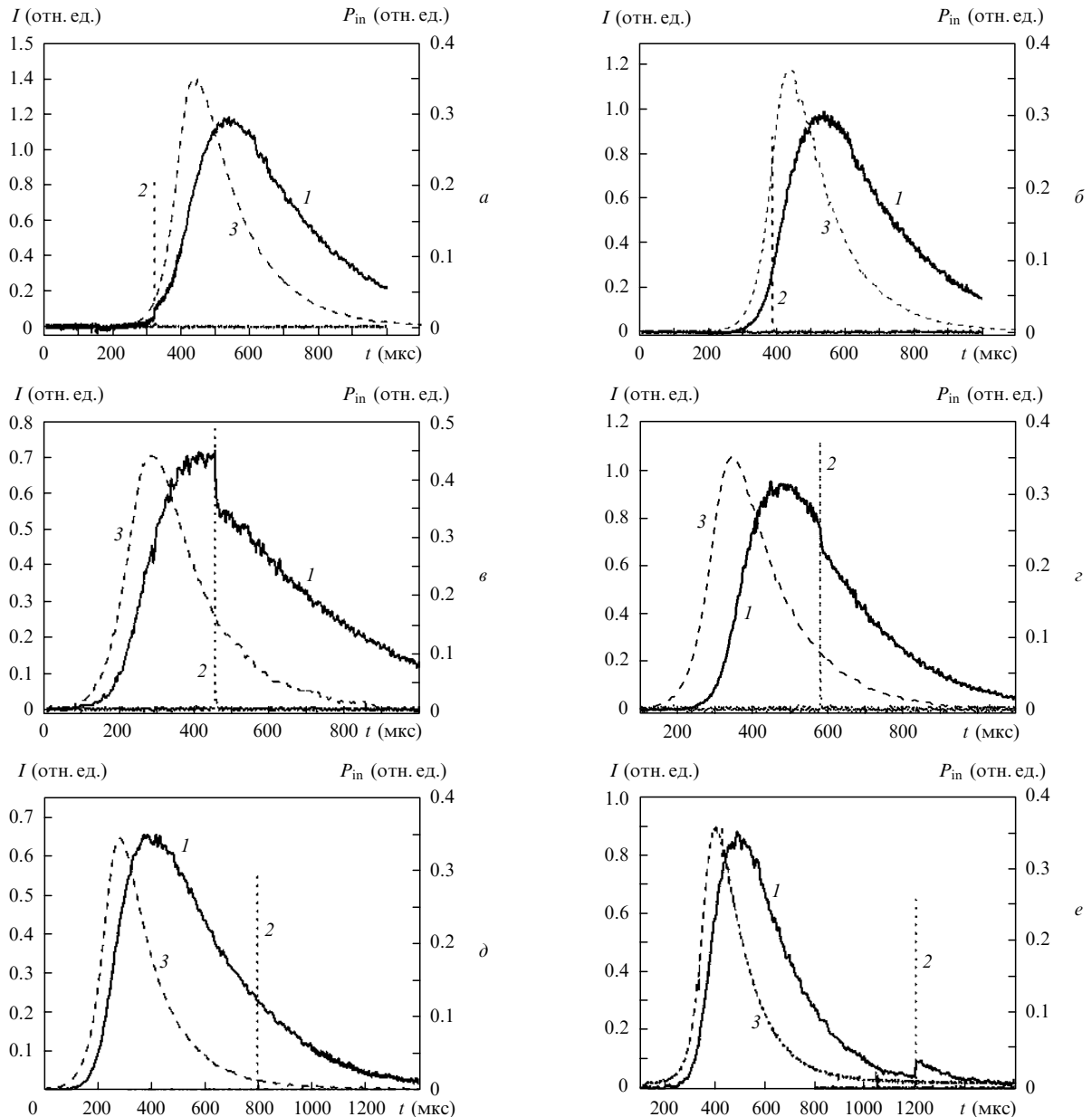


Рис.7. Временные зависимости интенсивностей люминесценции (1) и излучения вспомогательного лазера (2), а также удельной мощности накачки лазерной жидкости  $P_{in}$  (3) при прохождении импульса через среду в разные моменты времени.

основной при прохождении через возбуждённую осколками деления жидкость № 2 импульса вспомогательного лазера в разные моменты времени относительного реакторного импульса. Из рис.7,*a* видно, что в начальный период развития реакторного импульса происходит увеличение интенсивности люминесценции. Здесь импульс вспомогательного лазера опережает максимум импульса накачки на время  $\Delta t = -115$  мкс. Однако уже при  $\Delta t = -55$  мкс лазерный импульс проходит без изменений, т. е. в данный момент за счёт ядерной накачки населённости верхнего и нижнего уровней становятся равными (рис.7,*b*). При смещении лазерного импульса к максимуму импульса люминесценции происходит резкое уменьшение её интенсивности. На рис.7,*в* и *г* временная задержка импульса лазера относительно максимума импульса накачки составляет 165 и 235 мкс соответственно. Уменьшение интенсивности люминесценции под действием лазерного импульса продолжается до тех пор, пока населённости верхнего и нижнего уровней вновь не станут равными. В случае жидкости № 2 это происходит при задержке лазерного импульса относительно максимума импульса накачки примерно на 510 мкс (рис.7,*д*). При дальнейшей задержке импульса вспомогательного лазера (рис.7,*е*,  $\Delta t = 800$  мкс) населённость верхнего уровня становится меньше населённости нижнего, и снова резко возрастает интенсивность люминесценции на переходе  ${}^4\text{F}_{3/2} \rightarrow {}^4\text{I}_{9/2}$  в момент прохождения лазерного импульса.

Здесь важно отметить, что увеличение интенсивности люминесценции, полученное в проведённых экспериментах, прямо пропорционально увеличению энерговыклада осколков деления. Данное обстоятельство указывает на то, что заселение нижнего уровня при ядерной накачке невелико, и его влияние на усилительные свойства среды в пределах экспериментальных ошибок не обнаружено.

Таким образом, при анализе результатов экспериментов с жидкостями № 1 и 2, было установлено, что увеличение энерговыклада при ядерной накачке приводит к значительному росту инверсной населённости. При этом расширяется временная область, в которой эта инверсная населённость создаётся.

Из результатов данных экспериментов можно извлечь дополнительную информацию о лазерных свойствах среды. Для этого отметим, что удельная мощность спонтанного излучения иона неодима, измеряемая в эксперименте, описывается следующим выражением [7]:

$$P_{\text{lum}}(t) = N_3(t)E_{\text{ph}}\eta/\tau_3. \quad (7)$$

Здесь  $E_{\text{ph}}$  – энергия регистрируемых фотонов;  $\eta$  – квантовый выход люминесценции.

Проанализируем временное распределение интенсивности люминесценции в те моменты времени, когда не происходит изменения интенсивности люминесценции образца под действием импульса излучения вспомогательного лазера. Это означает, что в такие моменты времени ( $t_e$ ) населённость верхнего уровня примерно равна известной равновесной населённости  $N_{20}$  нижнего уровня, т. е.  $N_3(t_e) = N_{20} = 3.24 \times 10^{-4} N_1$ . Тогда, подставляя все известные величины в выражение (7) легко рассчитать абсолютное значение удельной мощности люминесценции в моменты времени  $t_e$ . Такие расчёты были выполнены, и полученные экспериментальные кривые нормировались на расчетные значения  $P_{\text{lum}}$  в точках  $t_e$ . Например, на рис.7,*б* и *д* моментам  $t_e$  соответствуют моменты

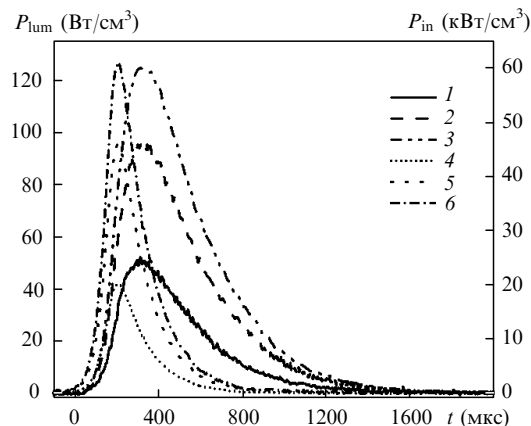


Рис.8. Временные зависимости удельной мощности люминесценции  $P_{\text{lum}}$  (1–3) и удельной мощности накачки  $P_{\text{in}}$  (4–6) при  $N_1 = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$  для [U] =  $1.8 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 225$  мкс,  $\eta = 0.61$ ,  $E_{\text{in}} = 5 \text{ Дж/см}^3$  (1, 4), [U] =  $7.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 205$  мкс,  $\eta = 0.55$ ,  $E_{\text{in}} = 11 \text{ Дж/см}^3$  (2, 5) и [U] =  $7.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 200$  мкс,  $\eta = 0.54$ ,  $E_{\text{in}} = 15 \text{ Дж/см}^3$  (3, 6).

времени, когда импульс зондирующего лазера проходит через среду (кривые 2). Погрешность определения  $t_e$  составляла  $\pm 5$  мкс. Если зондирующий импульс проходил через среду в моменты времени, отличающиеся от  $t_e$  на 5 мкс и более, то регистрировался либо спад, либо скачок интенсивности люминесценции. Данная неопределённость в измерении  $t_e$  приводила к относительной погрешности при расчёте мощности  $P_{\text{lum}}(t_e)$ , не превышающей  $\pm 10\%$ . На рис.8 представлены экспериментальные распределения удельной мощности люминесценции иона неодима при разных энерговыкладах.

Зная мощности люминесценции и накачки, определим эффективность накачки  $\delta$  верхнего лазерного уровня [7]:

$$\delta = \frac{\int P_{\text{lum}}(t) dt}{\eta \int P_{\text{in}}(t) dt}. \quad (8)$$

где  $P_{\text{in}}$  – удельная мощность накачки осколками деления. На рис.9 приведены эффективности накачки, полученные в экспериментах, в которых регистрировалось прохождение импульса вспомогательного лазера в отсутствие изменения интенсивности люминесценции образца. Относительная погрешность определения  $\delta$  связана в основном с точностью определения  $P_{\text{lum}}$  и точностью измерения энерговыклада осколков деления в среду. По нашим оценкам, эта погрешность в каждом отдельном импульсе не превышала 20%. Из рис.9 видно, что в среднем эф-

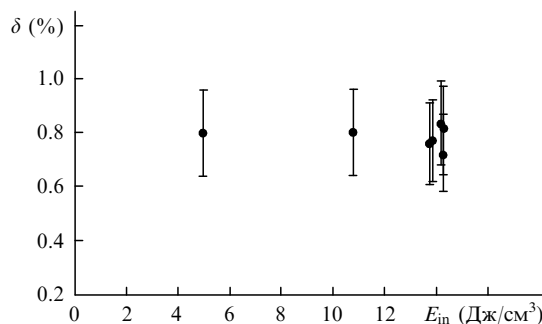


Рис.9. Эффективность накачки верхнего лазерного уровня иона неодима при разных удельных энерговыкладах за импульс реактора для  $N_1 = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$ .

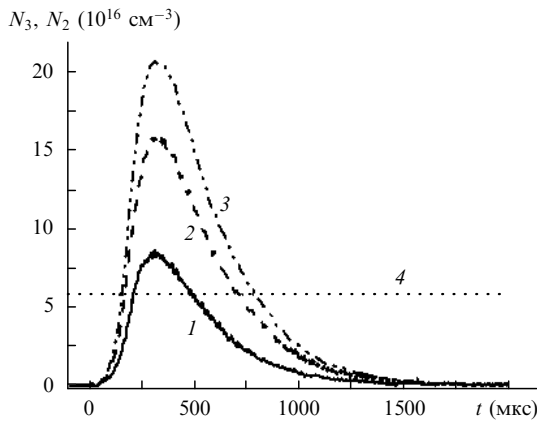


Рис.10. Временные распределения населённости верхнего лазерного уровня  $N_3$  (1–3) и нижнего лазерного уровня  $N_2$  (4) при  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$  для  $[U] = 1.8 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 225 \text{ мкс}$ ,  $\eta = 0.61$ ,  $E_{\text{in}} = 5 \text{ Дж/см}^3$  (1),  $[U] = 7.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 205 \text{ мкс}$ ,  $\eta = 0.55$ ,  $E_{\text{in}} = 11 \text{ Дж/см}^3$  (2) и  $[U] = 7.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 200 \text{ мкс}$ ,  $\eta = 0.54$ ,  $E_{\text{in}} = 15 \text{ Дж/см}^3$  (3).

фективность накачки остается постоянной и не зависит от энерговклада. Таким образом, при  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$  средняя эффективность накачки верхнего лазерного уровня осколками деления в лазерной жидкости составляет  $0.78 \pm 0.05 \%$ . Если учесть, что эффективность накачки пропорциональна концентрации ионов неодима, то результаты настоящей работы находятся в удовлетворительном согласии как с данными по подпороговой диагностике [14, 15], так и с экспериментальными данными, полученными на реакторе другим методом, с использованием эталонного излучения [7].

Зная экспериментальные распределения  $P_{\text{lum}}(t)$ , из выражения (7) найдем распределение населённости верхнего лазерного уровня  $N_3(t)$  иона неодима при накачке лазерной среды осколками деления. На рис.10 показаны результаты такого расчёта. Используя полученные распределения  $N_3(t)$  и учитывая, что  $N_2$  практически не меняется и примерно равно равновесной населённости  $N_{20}$ , найдем временную зависимость линейного коэффициента усиления (поглощения)  $\alpha$  для лазерной среды при ядерной накачке:

$$\alpha(t) = \Delta N(t)\sigma, \quad (9)$$

где  $\Delta N(t) = N_3(t) - N_2(t)$  – плотность инверсной населённости. Для лазерного перехода  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$  иона неодима в  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - {}^{235}\text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$  сечение  $\sigma = 8 \times 10^{-20} \text{ см}^2$ . Коэффициент  $\alpha$  в отрицательной области соответствует линейному коэффициенту поглощения излучения на длине волны генерации неодима, а в положительной области – линейному коэффициенту усиления. На рис.11 приведены временные зависимости коэффициента  $\alpha$  для жидкостей с  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$  при разных энерговкладах. В областях, где  $\alpha$  больше нуля, есть инверсия населённости верхнего лазерного уровня, и в эксперименте наблюдается спад интенсивности люминесценции. В областях, где  $\alpha$  меньше нуля, излучение вспомогательного лазера поглощается средой, и в эксперименте наблюдается скачок интенсивности люминесценции. На рис.12 показана зависимость максимального линейного коэффициента усиления от удельного энерговклада. Видно, что эта зависимость практически линейна вплоть до удельного энерговклада осколков деления  $15 \text{ Дж/см}^3$  за импульс.

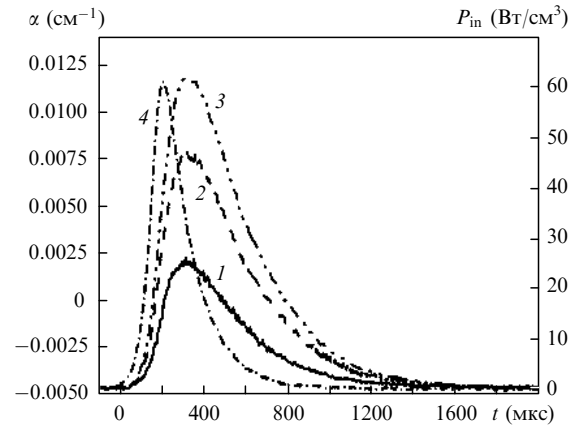


Рис.11. Временные зависимости коэффициента  $\alpha$  (1–3) для разных энерговкладов при  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$  и удельной мощности накачки  $P_{\text{in}}$  (4) при  $E_{\text{in}} = 15 \text{ Дж/см}^3$ :  $[U] = 1.8 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 225 \text{ мкс}$ ,  $\eta = 0.61$ ,  $E_{\text{in}} = 5 \text{ Дж/см}^3$  (1),  $[U] = 7.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 205 \text{ мкс}$ ,  $\eta = 0.55$ ,  $E_{\text{in}} = 11 \text{ Дж/см}^3$  (2) и  $[U] = 7.0 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ,  $\tau = 200 \text{ мкс}$ ,  $\eta = 0.54$ ,  $E_{\text{in}} = 15 \text{ Дж/см}^3$  (3).

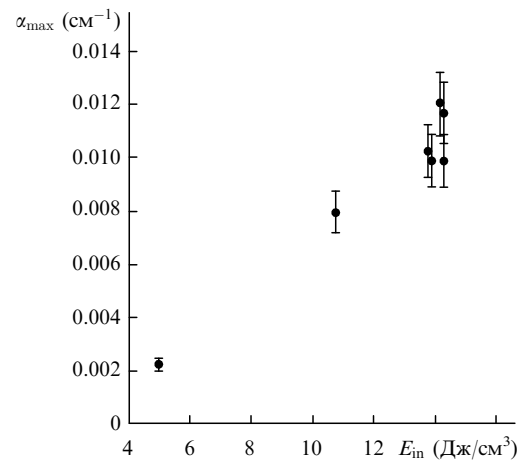


Рис.12. Зависимость максимального линейного коэффициента усиления от удельного энерговклада за импульс реактора при  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$ .

## 5. Заключение

Проведено теоретическое моделирование процесса заселения нижнего и верхнего лазерных уровней при ядерной накачке. Определен минимальный теоретический порог накачки, при котором появляется инверсная населённость иона неодима в жидкой лазерной среде  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - {}^{235}\text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$ , оказавшийся равным  $1.6 \text{ Дж/см}^3$  при  $N_t = 1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$ .

Измерены изменения интенсивности люминесценции на переходе  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$  иона неодима при прохождении через возбуждённую осколками деления среду импульса излучения вспомогательного лазера с длиной волны, резонансной лазерному переходу  ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ . В области максимума люминесценции иона неодима в лазерной среде  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - {}^{235}\text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$  была зарегистрирована инверсная населённость верхнего лазерного уровня относительно нижнего, которая возрастала пропорционально увеличению энерговклада осколков деления.

Проведен анализ полученных экспериментальных результатов. Теоретические расчёты хорошо описывают наблюдаемые экспериментальные данные. Показано, что



заселение нижнего лазерного уровня при накачке осколками деления слабо влияет на инверсную населённость и пороговые характеристики жидкостного лазера с ядерной накачкой.

Таким образом, из теоретического анализа и анализа проведённых экспериментов следует, что дополнительная населённость нижнего лазерного уровня  ${}^4\text{I}_{11/2}$  иона неодима в  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - {}^{235}\text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$ , появляющаяся при накачке осколками деления, не превышает 1 % от равновесной населённости данного уровня, и это не является препятствием для достижения порога генерации жидкостного лазера с ядерной накачкой. Важно отметить, что эффективность накачки  $\text{Nd}^{3+}$  осколками деления зависит, прежде всего, от состава матрицы, а инверсная населённость лазерных уровней и линейный коэффициент усиления растут пропорционально увеличению концентрации ионов неодима и мощности накачки. В нашем случае при концентрации ионов неодима  $1.8 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$  в  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - {}^{235}\text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$  максимальные инверсная населённость и линейный коэффициент усиления составили соответственно  $(2.05 \pm 0.20) \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$  и  $0.012 \pm 0.001 \text{ см}^{-1}$  при удельном энергокладе осколков деления  $14.5 \text{ Дж/см}^3$ .

Исходя из полученных результатов, можно наметить следующие основные направления работ по созданию жидкостного лазера с ядерной накачкой. Во-первых, дальнейшее совершенствование технологии синтеза уран- и неодимсодержащей лазерной жидкости с целью снижения неактивных потерь на длине волны генерации неодима до уровня менее  $8 \times 10^{-3} \text{ см}^{-1}$  при концентрации неодима более  $2.5 \times 10^{20} \text{ см}^{-3}$ . Во-вторых, увеличение энергоклада осколков деления в среду за счёт увеличения как концентрации урана в лазерной жидкости, так и плотности потока нейтронов в месте расположения лазерной кюветы относительно плотности потока в активных зонах реактора. Но поскольку увеличение энергоклада приводит к росту наведённых осколками деления потерь на длине волны генерации, то третьим на-

правлением работ являются исследования, связанные с изучением природы светорассеяния при ядерной накачке и поиском методов его подавления.

1. Зродников А.В. *Труды I междунар. конф. «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой» (ЛЯН-92)* (Обнинск, 1993, т. 1, с. 122).
2. Lipinski R.J., McArthur D.A. *Труды II междунар. конф. «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой» (ЛЯН-94)* (Арзамас-16, 1995, т. 1, с. 44).
3. Карелин А.В., Синянский А.А., Яковленко С.И. *Квантовая электроника*, **24** (5), 387 (1997).
4. Дьяченко П.П. *Матер. III междунар. конф. «Проблемы лазеров с ядерной накачкой и импульсные реакторы»* (Снежинск: изд. РФЯЦ – ВНИИТФ, 2003, с. 5).
5. Зарецкий А.И., Владимиров С.И., Кириллов Г.А., Кормер С.Б., Негина В.Р., Сухарев С.А. *Квантовая электроника*, **1** (5), 1180 (1974).
6. Дьяченко П.П., Серёгина Е.А., Тихонов Г.В. Патент РФ № 2075143. Приоритет от 10.03.97.
7. Лапидус В.И., Добровольский А.Ф., Дьяченко П.П., Серёгина Е.А., Тихонов Г.В. *Квантовая электроника*, **33** (6), 507 (2003).
8. Гулевич А.В., Дьяченко П.П., Зродников А.В., Кухарчук О.Ф. *Связанные реакторные системы импульсного действия* (М.: Энергоатомиздат, 2003).
9. Рудницкий Ю.П., Смирнов Р.В., Черняк В.М. *Квантовая электроника*, **3** (9), 2035 (1976).
10. Григорьянц В.В., Жаботинский М.Е., Маркушев В.М. *Квантовая электроника*, **8** (3), 571 (1981).
11. Кабаков Д.В., Серёгина Е.А. *Оптика и спектроскопия*, **98** (2), 254 (2005).
12. Добровольский А.Ф., Кабаков Д.В., Серёгин А.А., Серёгина Е.А., Тихонов Г.В. *Труды регионального конкурса научных проектов в области естественных наук* (Калуга: изд. АНО «Калужский научный центр», 2008, вып. 13, с. 145–149).
13. Добровольский А.Ф., Кабаков Д.В., Серёгина Е.А. *Труды IV междунар. конф. «Физика лазеров с ядерной накачкой и импульсные реакторы» (ЛЯН-ИР-2007)* (Обнинск, 2008, т. 1, с. 115).
14. Серёгина Е.А., Дьяченко П.П., Калинин В.В., Шевчук О.Д., Гиляров О.Н., Красилов Ю.И., Куликовский Б.Н., Новодережкина Т.Л. *Неорганические материалы*, **28** (1), 162 (1992).
15. Серёгина Е.А., Тихонов Г.В. *Химия высоких энергий*, **34** (1), 30 (2000).