

# ПРОПУСКАНИЕ ВОЗБУЖДЕННОЙ ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ ЛАЗЕРНОЙ ЖИДКОСТИ В КЮБЕТАХ РАЗНОЙ АПЕРТУРЫ

## LIGHT TRANSMISSION OF THE EXCITED BY FISSION FRAGMENTS LASER LIQUID IN DIFFERENT APERTURE CELLS

П. П. Дьяченко, П. А. Куликов, Е. А. Серегина, А. А. Серегин, Г. В. Тихонов  
P. P. Dyachenko, P. A. Kulikov, E. A. Seregina, A. A. Seregin, G. V. Tikhonov

АО «Государственный научный центр Российской Федерации –  
Физико-энергетический институт им. А. И. Лейпунского»  
JSC «State Scientific Centre of Russian Federation – Institute for Physics  
and Power Engineering named A. I. Leypunsky»

*Измерено пропускание лазерной жидкости  $POCl_3-SnCl_4-^{235}UO_2^{2+}-Nd^{3+}$  при импульсном возбуждении осколками деления урана на длине волны 1,054 мкм лазерного перехода  $Nd^{3+}$ . Показано, что при давлении жидкости 100 бар ее пропускание не превышает единицу. Установлено, что пропускание жидкости в активном элементе с апертурой 25 мм примерно в 4 раз меньше, чем в элементе с апертурой 10 мм. Предложено качественное объяснение наблюдаемого явления, основанное на предположении о рассеянии света на радиальных звуковых волнах плотности жидкости.*

*The laser liquid  $POCl_3-SnCl_4-^{235}UO_2^{2+}-Nd^{3+}$  transmission on the wave length 1.054  $\mu m$  of  $Nd^{3+}$  laser transition during the pulse uranium fission fragments excitation had been measured. It was shown that its transmission do not exceed unity for liquid pressure 100 bar. It was found that liquid transmission in the element with aperture 25 mm is about 4 times less than it's for element with aperture 10 mm. Quality interpretation of the observed phenomena based on assumption about light scattering on the radial sound waves of the liquid density was proposed.*

### Введение

Урансодержащая лазерная жидкость на основе апротонной кислоты, активированной неодимом ( $POCl_3-SnCl_4-^{235}UO_2^{2+}-Nd^{3+}$ ), по ряду параметров является одной из наиболее подходящих для использования в качестве лазерно-активной среды оптического квантового усилителя с ядерной накачкой [1]. Ее исследованию посвящено значительное количество работ [2–8]. В частности, была получена лазерная генерация при оптической накачке жидкости [2]. Экспериментально установлено [3], что при накачке жидкости осколками деления урана эффективность заселения и время жизни верхнего уровня лазерного перехода  $Nd^{3+}$  с длиной волны 1,054 мкм составляют около 2 % и 250 мкс, соответственно. Это примерно в 10 и 1000 раз больше значений соответствующих величин для наиболее эффективного на сегодняшний день газового лазера на атомарном переходе ксенона с длиной волны 2,03 мкм при гетерогенной накачке осколками деления He-Ar-Xe смеси [9]. Следует заметить, что кроме этой смеси, сегодня известен целый ряд других газовых сред, при ядерной накачке которых наблюдалась лазерная генерация [10]. Попытки же получить генерацию или превышающее потери усиление при накачке осколками деления лазерной жидкости, в отличие от газовых сред, пока не увенчались успехом.

Причин этого может быть несколько. Первая – это заселение нижнего уровня во время импульса накачки. Однако простые оценки, основанные на известных значениях энергии и времени жизни рабочих уровней  $Nd^{3+}$  и эффективности накачки верхнего уровня, а также прямой эксперимент [4] по измерению инверсии показывают, что этим эффектом можно пренебречь.

Вторая – появление наведенных потерь во время действия импульса накачки за счет рассеяния света на микронеоднородностях среды, возникающих в результате образования паровых пузырьков в треках осколков деления [5]. Опыты и расчеты для возбуждаемой осколками деления жидкости при различных давлениях в диапазоне 1–25 бар показали [6], что ее пропускание на длине волны 1,054 мкм действительно растет с повышением давления, но не превышает значения, необходимого для получения лазерной генерации.

Третья причина может быть связана с появлением макроскопических неоднородностей среды типа оптического клина в процессе импульса накачки из-за возможной аксиальной неоднородности энерговклада и большой, характерной для жидкости, термооптической постоянной. При достаточно малой апертуре активного элемента этот эффект может приводить к потере лазерного излучения за счет отклонения пучка на стенку элемента. На возможность такого эффекта указывают результаты эксперимента по зондированию обсуждаемой среды с помощью лазерного пучка и позиционно-чувствительного фотодетектора [7, 8].

Данная работа посвящена более детальному исследованию двух последних предположений. В частности, измерению пропускания на длине волны 1,054 мкм лазерной жидкости, возбуждаемой импульсом осколков деления, при давлении 100 бар и в активных элементах различной апертуры.

### Экспериментальный метод

Эксперимент проводили в ГНЦ РФ – ФЭИ на двухзонном импульсном реакторе стенда "Б" БАРС-6 [11]. Число делений в импульсе в каждой из активных зон (АЗ) составляло  $\sim 10^{17}$  дел/АЗ. Схема эксперимента показана на рис. 1. Герметичную фторопластовую кювету, снабженную торцевыми узлами с оптическими окнами (активный элемент), полностью заполненную исследуемой жидкостью (без воздушных пузырьков), устанавливали на оси специального контейнера из нержавеющей стали диаметром 150 и длиной 300 мм, заполненного замедлителем нейтронов (полиэтиленом). Контейнер выдерживал внутреннее давление до 150 бар. Сжатие жидкости осуществляли с помощью масла, нагнетаемого в контейнер по трубопроводу расположенным в измерительном зале компрессором на основе гидравлического домкрата грузоподъемностью 3 т. Для повышения эффективности передачи давления от масла в контейнере к лазерной жидкости на заливном фторопластовом патрубке кюветы был предусмотрен тонкостенный участок длиной 10 мм с толщиной стенки 0,5 мм.

Контейнер устанавливали посередине между АЗ реактора. При этом его ось располагалась перпендикулярно к оси, проходящей через центры АЗ, на расстоянии 100 мм ниже последней. Расстояние между АЗ составляло 700 мм.

Зондирующий лазер располагался в измерительном зале и представлял собой работающий в режиме свободной генерации импульсный лазер с оптической накачкой с длиной волны 1,054 мкм и энергией в импульсе до 1,5 Дж. Активной средой задающего лазера служила такая же, как исследуемая, неорганическая жидкость, активированная неодимом, но не содержащая уран. Запуск лазера осуществляли либо вручную, либо системой синхронизации реактора через регулирующую задержку. Форма импульса генерации зондирующего лазера регистрировалась рпн-диодом и записывалась цифровым осциллографом TDS-1012.

Из измерительного зала пучок зондирующего лазера с помощью системы поворотных зеркал транспортировался в реакторный бокс на расстояние около 15 м и через диафрагму диаметром 3 мм подавался на вход активного элемента. На выходе он проходил через фокусирующую кварцевую линзу ( $F = 100$  мм,  $\varnothing = 80$  мм) и регистрировался калориметром ИМО-2Н (№ 1). Перед входом в активный элемент часть пучка ( $\sim 7\%$ ) с помощью делительной пластины направлялась в калориметр-монитор ИМО-2Н (№ 2). Для регистрации формы импульса накачки использовалась вакуумная камера деления КНТ-5, установленная в полиэтиленовом блоке под контейнером с активным элементом. Импульс с камеры деления записывался осциллографом TDS-1012.

Были исследованы два активных элемента различной апертуры. Их геометрические размеры и основные параметры содержащейся в них лазерной жидкости приведены в табл. 1.

Таблица 1

Размеры кювет и характеристики лазерных жидкостей

Состав лазерной жидкости	№ актив. элемента	Диаметр кюветы, мм	Длина кюветы, мм	Концентр. неодима $\text{Nd}^{3+}$ , $\text{см}^{-3}$	Концентр. урана-235 $^{235}\text{U}$ , $\text{см}^{-3}$	Время жизни уровня $^4\text{F}_{3/2}$ $\text{Nd}^{3+}$ , мкс
$\text{POCl}_3\text{-SnCl}_4\text{-}^{235}\text{UO}_2^{2+}\text{-Nd}^{3+}$	1	10	200	$2,5 \cdot 10^{20}$	$2,1 \cdot 10^{19}$	280
	2	25	100	$2,2 \cdot 10^{20}$	$1,7 \cdot 10^{19}$	180



Введем обозначения:  $Q_1$  и  $Q_2$  – показания ИМО № 1 при измерении энергии пучка зондирующего лазера, прошедшего через элемент с возбужденной жидкостью (во время реакторного импульса) и показания ИМО № 2 – монитора, соответственно, для данного опыта;  $Q_3$  и  $Q_4$  – показания ИМО № 1 при измерении энергии пучка, прошедшего через элемент с невозбужденной жидкостью (перед реакторным импульсом) и показания ИМО № 2 – монитора, соответственно, для данного опыта;  $Q_{1ф}$  и  $Q_{2ф}$  – фоновые показания калориметров ИМО № 1 и ИМО № 2 при реакторном импульсе (зондирующий лазер выключен).

Тогда с учетом фона калориметров и возможной нестабильности воспроизведения энергии в различных импульсах зондирующего лазера для пропускания  $T$  жидкости на длине волны 1,054 мкм при возбуждении осколками деления можно записать:

$$T = Q_4(Q_1 - Q_{1ф}) / Q_3(Q_2 - Q_{2ф}) \quad (1)$$

Результаты обработки экспериментальных данных, приведенных в табл. 2, в соответствии с выражением (1) показаны на рис. 2., а именно, для элемента № 1 – результаты обработки данных опытов 1, 2, 3 и 4, 5, 3; для элемента № 2 – результаты опытов 6, 7, 9( $Q_{1ф}$ ), 12( $Q_{2ф}$ ) и 10, 11, 12. Погрешности получены из разброса серий измерений в дополнительном эксперименте. Там же показаны в относительных единицах характерные импульсы накачки и зондирующего лазера, регистрируемые вакуумной камерой деления и рпн-диодом, соответственно, а также измеренный в работе [3] импульс люминесценции среды на длине волны 1,054 мкм, иллюстрирующий поведение населенности верхнего рабочего уровня лазерного перехода  $Nd^{3+}$  в результате накачки.

Таблица 2

Результаты измерений

№ актив. элемента	№ опыта	ИМО № 1, мДж	ИМО № 2, мДж	Импульс реактора	Импульс зондир. лазера	$\Delta t$ , мкс	$P$ , бар	Примечания
1	1	147	10	нет	есть		100	
	2	150	10,2	есть	есть	30	100	
	3	45	1,6	есть	нет		100	Фон ИМО
	4	121	11,5	нет	есть		100	
	5	158	12,5	есть	есть	130	100	
2	6	120	5	нет	есть		30	С линзой 4 (рис. 1)
	7	69	6,5	есть	есть	85	30	С линзой 4 (рис. 1)
	8		4,8	нет	есть		30	Отпечаток без линзы 4
	9	35 (фон)	6	есть	есть		30	Отпечаток без линзы 4 Экран закрывает линзу и
	10	108	5,4	нет	есть		80	Без линзы 4
	11	72	8	есть	есть	70	80	Без линзы 4
	12	45	1,6	есть	нет		80	Фон ИМО
	13	90	5,5	нет	есть			Окна
	14	150	8,2	есть	есть	115		Окна

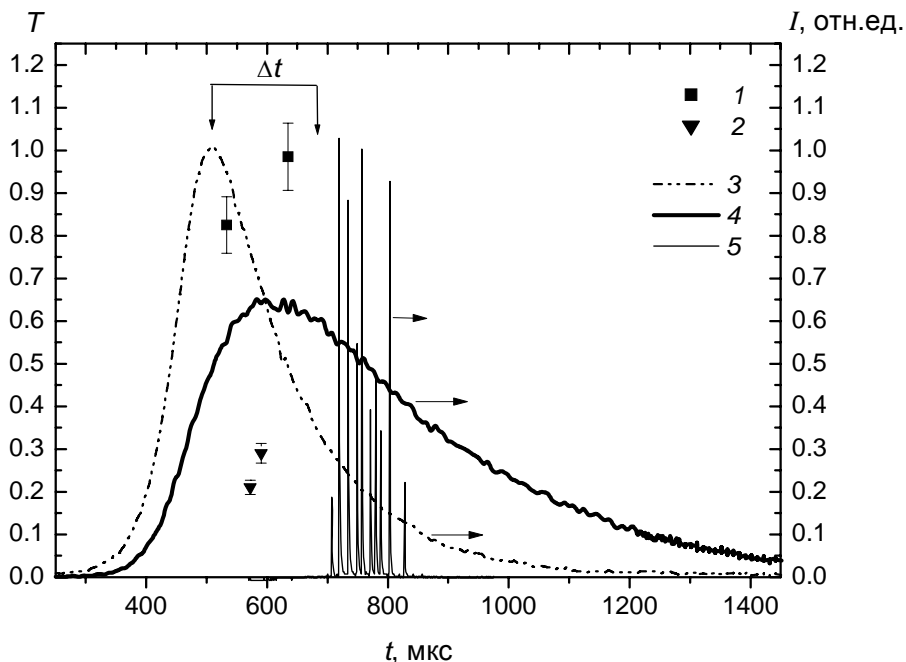


Рис. 2. Пропускание  $T$  на длине волны 1,054 мкм лазерной жидкости при импульсном возбуждении осколками деления урана в активных элементах № 1 (■) и № 2 (▼); осциллограммы импульсов накачки (3), люминесценции жидкости (4) и зондирующего лазера (5).

На рис. 2 видно, что пропускание жидкости в элементе № 1 с апертурой 10 мм при давлении 100 бар не превышает единицы. Отсюда следует вывод, что уже при давлении 25–30 бар [6] наступает насыщение эффекта уменьшения потерь света за счет рассеяния на паровых пузырьках в треках осколков деления и дальнейшее повышение давления с этой точки зрения не имеет смысла. На рис. 3 видно также, что вместо ожидаемого увеличения пропускания с ростом апертуры активного элемента происходит его уменьшение, причем, весьма значительное. Рост апертуры в 2,5 раза приводит к уменьшению пропускания примерно в 4 раза. Это неожиданный результат. Поэтому его достоверность требует дополнительной проверки.

Возможной, хотя и маловероятной, причиной занижения показаний калориметра ИМО-1 во время импульса накачки может служить отклонение зондирующего пучка от оптической оси системы за пределы входного зрачка калориметра. Для проверки этого предположения были сняты два отпечатка пучка на копировальной бумаге ожоговым методом в месте расположения входного зрачка ИМО-1 до и в момент реакторного импульса, опыты № 8 и № 9, соответственно. Оказалось, что в обоих случаях отпечатки совпадают и находятся на оптической оси системы.

Второй причиной наблюдаемого эффекта может быть уменьшение прозрачности фокусирующей линзы, установленной перед калориметром ИМО-1, в результате радиационного воздействия нейтронов и  $\gamma$ -квантов реакторного импульса. Однако измерения без этой линзы (опыты №, № 10, 11) к заметному изменению результатов не привели.

Наконец, третьей причиной искажения результатов может служить уменьшение пропускания оптических окон активного элемента во время импульса накачки. Для проверки этого предположения активный элемент № 2 был демонтирован из контейнера, и в места расположения его оптических окон были установлены другие, такие же окна, изготовленные из той же кварцевой пластины, что и окна рабочего элемента. Измерения (опыты №, № 13, 14) показали, что значение пропускания в этом случае составляет 0,97. Таким образом, влиянием реакторного излучения на пропускание оптических окон активного элемента можно также пренебречь. Отсюда следует вывод, что уменьшение пропускания лазерной жидкости, возбуждаемой осколками деления урана, при увеличении апертуры активного элемента действительно имеет место и представляет собой реальное физическое явление, природа которого пока не ясна.

Очевидно, что разное пропускание в исследуемых элементах может быть лишь при разном состоянии жидкости в области прохождения зондирующего пучка. Строго говоря, причины для этого существуют. В частности, одна из них может быть связана с эффектом блокировки нейтронного потока ураном и особенно изотопом  $^{35}\text{Cl}$ , имеющим высокую концентрацию в жидкости и достаточно большое сечение радиационного захвата тепловых нейтронов  $\sim 40$  барн [12]. На рис. 3 приведены результаты расчета методом Монте-Карло радиальных распределений удельного энерговклада для исследуемых активных элементов. Видно, что они существенно отличаются друг от друга. В частности, удельный энерговклад на оси элемента (в области прохождения зондирующего пучка) с большей апертурой примерно в два раза меньше, чем значение соответствующей величины в элементе № 1. Однако это не должно привести к существенной разнице в измеряемом пропускании соответствующих жидкостей. Дело в том, что определяющие его коэффициенты усиления и наведенного поглощения света за счет рассеяния на паровых пузырьках в треках осколков деления согласно работам [4, 6] примерно одинаково (пропорционально) зависят от скорости удельного энерговклада и с его изменением компенсируют друг друга.

Еще один эффект, который связан с радиальной неоднородностью энерговклада и который необходимо рассмотреть – эффект термолинзы. Расчеты фокусного расстояния для цилиндрической линзоподобной среды длиной  $l$  с учетом квадратичной зависимости коэффициента преломления от расстояния до оси согласно выражениям из работ [8, 13] показали, что в случае элемента № 1 формируется более короткофокусная линза, чем в элементе № 2, но в обоих случаях наименьшая длина фокуса была больше 50 см. Поскольку калориметр в эксперименте располагался на расстоянии менее 20 см от выходного окна изучаемого элемента, то формирование термолинзы также не должно было повлиять на результаты измерения пропускания.

Наблюдаемое явление качественно можно объяснить, если предположить существование в жидкости активного элемента дополнительного источника внутренних потерь света, связанного с его рассеянием на радиальных звуковых волнах плотности среды, возникающих из-за радиальной неоднородности энерговклада. При скорости звука в жидкости  $\sim 2000$  м/с характерное время прохождения радиальной звуковой волны расстояния, равного диаметру активного элемента № 2 составляет около 10 мкс. Это означает, что за время действия импульса накачки ( $\sim 500$  мкс) звуковая волна успеет сделать около 50 радиальных проходов в активном элементе. При соответствующей амплитуде волны это может привести к заметному уменьшению интенсивности зондирующего пучка света за счет рассеяния. Можно показать, что для цилиндрической сходящейся волны ее амплитуда в приосевой области будет пропорциональна произведению радиальной неоднородности энерговклада  $\Delta E = E_{\text{уд}}(R) - E_{\text{уд}}(0)$  и  $\sqrt{R}$ , где  $R$  – радиус активного элемента. На рис. 3 видно, что радиальная неоднородность энерговклада в элементе № 2 примерно в два раза больше, чем в элементе № 1. Следовательно, амплитуда звуковой волны в приосевой области активного элемента

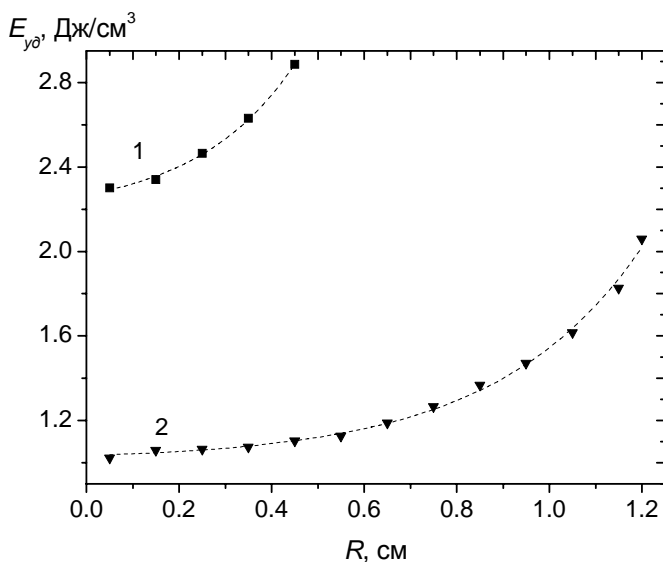


Рис. 3. Радиальное распределение удельного энерговклада осколков деления в лазерную жидкость  $E_{\text{уд}}$  для активных элементов № 1 (■) и № 2 (▼)

№ 2 будет примерно в 3 раза больше, чем у элемента № 1. Действительно,  $\Delta E_2 \cdot \sqrt{R_2} / \Delta E_1 \cdot \sqrt{R_1} \approx \approx 3$ . Поэтому потери света зондирующего пучка за счет обсуждаемого эффекта в нем будут значительно больше, а пропускание меньше, что и наблюдается в эксперименте.

Возможно именно эффект рассеяния света на звуковых волнах является причиной неудач в попытках получить генерацию при ядерной накачке урансодержащей лазерной жидкости на основе активированной неодимом апротонной кислоты. Исходя из результатов данной работы, можно предложить два способа уменьшения его влияния. Первый, это уменьшение диаметра активного элемента до минимально технически возможного. По-видимому, это 2–3 мм. Второй более радикальный способ – замена естественной смеси изотопов хлора в лазерной жидкости на изотоп  $^{37}\text{Cl}$ . Сечение радиационного захвата нейтронов у этого изотопа примерно в 100 раз меньше, чем у  $^{35}\text{Cl}$ , содержание которого в естественной смеси составляет около 75 %.

### Заключение

Экспериментально исследовано влияние апертуры активного элемента и давления урансодержащей лазерной жидкости  $\text{POCl}_3\text{-SnCl}_4\text{-}^{235}\text{UO}_2\text{-Nd}^{3+}$  на ее пропускание лазерного излучения с длиной волны 1,054 мкм при возбуждении жидкости осколками деления урана на импульсном реакторе БАРС-6.

Показано, что сжатие жидкости до давления 100 бар не приводит к увеличению пропускания, превышающему единицу. Отсюда с учетом результатов работы [6] сделан вывод о том, что давление 25-30 бар является достаточным для минимизации потерь света за счет рассеяния на микропузырьках пара в треках осколков деления.

Установлено, что увеличение апертуры активного элемента с 10 до 25 мм приводит к уменьшению пропускания жидкости примерно в 4 раза. Этот результат противоречит существующим к настоящему времени представлениям о прохождении пучка света в жидкости при импульсном возбуждении осколками деления. Качественно его можно понять, если предположить возникновение дополнительного источника потерь света во время импульса накачки, обусловленного его рассеянием на радиальных звуковых волнах плотности среды, амплитуда которых определяется радиальной неоднородностью энерговклада и растет с увеличением апертуры активного элемента.

Существование таких потерь, по-видимому, является одной из основных причин отсутствия генерации при ядерной накачке лазерной жидкости. Для их уменьшения необходимо увеличение радиальной однородности энерговклада. Этого можно добиться двумя способами, во-первых, за счет уменьшения диаметра активного элемента, во-вторых, путем обогащения естественной смеси изотопов хлора, входящих в состав лазерной жидкости, изотопом  $^{37}\text{Cl}$ .

В заключение авторы считают своим долгом выразить признательность В. М. Калмыкову за изготовление деталей активных элементов, а также персоналу стенда «Б» за бесперебойную работу реактора БАРС-6.

### Список литературы

1. Dyachenko P. P., Zrodnikov A. V., Pupko V. Ya., Korobkin V. V. and Prokhorov A. M. Conception of Combined ICF and Fission Reactor-Laser Driver // Fusion Techn..1991. V. 20. P. 969–976.
2. D'yachenko P. P., Kalinin V. V., Seregina E. A., Tikhonov G. V., Shevchuk O. D., Gilyarov O. N., Krasilov Yu. I., Kulikovskiy B.N., Novoderyozhkina T.L. Inorganic Liquid Laser Doped with Neodymium and Uranyl // Laser and Particle Beams. 1993. V. 11. P. 493–498 .
3. Лapidус В. И., Добровольский А. Ф., Дьяченко П. П., Серегина Е. А., Тихонов Г. В. Эффективность накачки и время жизни уровня  $^4\text{F}_{3/2}$  иона неодима в лазерной жидкости  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$  при импульсном облучении на реакторе БАРС-6 // Квантовая электроника. 2003. Т. 33. С. 507–510.
4. Серегина Е. А., Добровольский А. Ф., Кабаков Д. В., Серегин А. А., Тихонов Г. В. Исследование кинетики заселения лазерных уровней иона неодима в  $\text{POCl}_3 - \text{SnCl}_4 - \text{UO}_2^{2+} - \text{Nd}^{3+}$  при накачке осколками деления // Квантовая электроника. 2009. Т. 39. С. 705–713 .
5. Серегина Е. А., Добровольский А. Ф., Дьяченко П. П., Лapidус В. И., Серегин А. А., Тихонов Г.В. Исследование с помощью лазерного излучения временной зависимости наведенного поглощения в жидкости, возбужденной осколками деления урана // Квантовая электроника. 2003. Т. 33. С. 926–930 .

6. Серегина Е. А., Добровольский А.Ф., Дьяченко П. П., Серегин А. А., Тихонов Г. В. Влияние давления в лазерной среде на наведенные дополнительные потери в жидкостных лазерах с ядерной накачкой // Труды конференции ЛЯН-ИР-2007. Обнинск: ГНЦ РФ-ФЭИ. 2009. Т. 1. С. 244–249.
7. Лapidус В. И., Дьяченко П. П., Семенова Н. Н., Серегина Е. А. Позиционно-чувствительный фотодетектор для изучения пространственно-временного распределения интенсивности излучения в лазерном пучке // ПТЭ. 2001. № 3. С. 108–112 .
8. Серегина Е. А., Добровольский А. Ф., Дьяченко П. П., Лapidус В. И., Тихонов Г. В. Термооптические характеристики урансодержащей лазерно-активной жидкости при возбуждении осколками деления // Препринт ФЭИ-2940 (Обнинск, 2002). С. 14.
9. Дюжов Ю. А., Кухарчук О. Ф., Полетаев Е. Д., Смольский В. Н., Суворов А. А. Лазерные характеристики Ag-Xe и He-Ag-Xe смесей при накачке осколками деления // Квантовая электроника, 2010. Т. 40. С. 11–18.
10. Мельников С. П., Сизов А. Н., Синянский А. А. Лазеры с ядерной накачкой. Саров: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2008.
11. Дьяченко П. П., Еловский О. А., Прохоров Ю. А., Фокин Г. Н., Якубов П. А., Снопков А. А. реакторно-лазерный комплекс «Стенд Б» //Атомная энергия. 2000. Т. 88. С. 337–345.
12. Радиационный захват нейтронов: Справочник // Беланова Т. С., Игнатюк А. В., Пашенко А. Б., Пляскин В. И. М.: Энергоатомиздат, 1986.
13. Малышев Б. Н., Салюк В. А. Действие эффективной линзы активного элемента на расходимость выходного излучения жидкостного ОКГ // ЖТФ. 1971. Т. 40. С. 1690–1696.