

01

Концентрация паров кадмия и время жизни верхнего рабочего уровня He–Cd-лазера с ядерной накачкой на переходе $5s^2 \ ^2D_{5/2} - 5p^2 \ ^2P_{3/2}$ Cd II

© И.А. Денежкин, П.П. Дьяченко, В.И. Мешакин, С.П. Степанов

АО ГНЦ РФ „Физико-энергетический институт“,
249033 Обнинск, Россия
e-mail: denezhkin@ippe.ru

Поступила в редакцию 19.06.2020 г.

В окончательной редакции 23.11.2020 г.

Принята к публикации 26.11.2020 г.

Изложена методика и приведены результаты измерения концентрации атомов кадмия в He–Cd-лазере с ядерной накачкой на переходе иона кадмия с длиной волны $0.441 \mu\text{m}$. Показано, что наблюдаемая концентрация меньше насыщенной, соответствующей температуре лазерной кюветы, примерно в 10 раз. На основе полученных данных сделан вывод о том, что время жизни верхнего уровня лазерного перехода $5s^2 \ ^2D_{5/2} - 5p^2 \ ^2P_{3/2}$ Cd II в оптимальных условиях генерации составляет около $0.5 \mu\text{s}$.

Ключевые слова: лазер, ядерная накачка, пары кадмия, концентрация, время жизни верхнего уровня.

DOI: 10.21883/OS.2021.03.50649.177-20

Введение

He–Cd-газо-паровая смесь рассматривается в качестве одной из перспективных активных сред для лазерно-активного элемента (ЛАЭЛ) оптического квантового усилителя с ядерной накачкой [1]. Особый интерес здесь представляет лазерный переход $5s^2 \ ^2D_{5/2} - 5p^2 \ ^2P_{3/2}$ иона кадмия (Cd II) с длиной волны $0.441 \mu\text{m}$. Он обладает сравнительно высокими значениями эффективности накачки ($\sim 1.5\%$) [2], радиационного времени жизни верхнего рабочего уровня ($\sim 830 \text{ ns}$) [3] и работает при относительно высокой температуре ($\sim 700 \text{ K}$) [2], что является важным для охлаждения среды.

Вместе с тем по этому переходу имеется ряд вопросов, которые требуют дополнительного исследования. В частности, вопрос о времени жизни верхнего рабочего уровня в условиях генерации, которое определяет его накопительную способность в режиме работы „задающий генератор–усилитель“. Оптимальная температура среды при получении генерации на этом переходе по данным работ [2,4,5] составляет $660\text{--}690 \text{ K}$. При этом, согласно работе [6], его время жизни становится меньше радиационного почти на порядок и составляет $\sim 90 \text{ ns}$. Природа столь резкого уменьшения времени жизни уровня $5s^2 \ ^2D_{5/2}$ Cd II с ростом температуры, по-видимому, связана с концентрационным тушением этого уровня атомами кадмия, концентрация которого с увеличением температуры растет по экспоненте.

С другой стороны, согласно работам [6,7], максимальный выход люминесценции с длиной волны $0.441 \mu\text{m}$, а следовательно, максимальная населенность уровня $5s^2 \ ^2D_{5/2}$ при возбуждении He–Cd-среды осколками

деления наблюдается при температуре $560\text{--}580 \text{ K}$, т.е. примерно на 100 K ниже оптимальной температуры среды для получения генерации.

Наблюдаемое разногласие можно объяснить, если предположить, что концентрация паров кадмия в активных элементах лазеров, применяемых в работах [2,4,5], была ниже насыщенной, соответствующей их температуре ($660\text{--}690 \text{ K}$). Это можно ожидать, если учесть, что лазерные кюветы имели холодные концевые участки, и во время эксперимента в них осуществлялась прокачка гелия. Для проверки этого предположения необходимо измерение концентрации паров кадмия в активном элементе He–Cd-лазера в рабочих условиях. Настоящая работа посвящена таким исследованиям.

Устройство He–Cd-лазера

Кювета лазера представляла собой трубу из коррозионно-стойкой стали с толщиной стенки 0.5 mm , внутренним диаметром 48 mm и длиной 2.8 m , герметично закрытую торцевыми узлами с юстируемыми диэлектрическими зеркалами внутреннего резонатора, вводами системы откачки, наполнения и очистки гелия, термопар и датчика давления. На оси кюветы с помощью тонкостенного дистанционирующего каркаса из дюралюминия установлен ЛАЭЛ, выполненный в виде алюминиевой трубки внутренним диаметром 15.3 mm с толщиной стенки 0.35 mm , покрытой изнутри слоем U_3O_8 толщиной 3 mg/cm^2 (обогащение ^{235}U 90%). Алюминиевая трубка состоит из пяти секций — двух наружных длиной 49 cm и трех внутренних длиной 45 cm . Длина промежутков между секциями составляет 1.5 cm .

Трубу нагревали с помощью восьми термоэлектрических элементов диаметром 1.5 mm и длиной 2 m каждый, расположенных на ее внешней поверхности вдоль оси. Термоизоляция осуществлялась с помощью набираемых на трубу втулок из кварцевой керамики внутренним диаметром 49 mm, наружным 70 mm и общей длиной 2 m. Для выравнивания продольного распределения температуры был применен экран из алюминиевой фольги с переменной по длине отражательной способностью. Температуру по длине активного элемента контролировали пятью термодатчиками, расположенными внутри трубы. Распределение температуры показано на рис. 1.

В эксперименте гелий непрерывно очищали путем прокачки со скоростью около $10 \text{ cm}^3/\text{s}$ по замкнутому контуру через кювету и угольную ловушку, погруженную в жидкий азот. Холодный газ поступал в кювету с торцов, горячий отбирался с середины кюветы с помощью газоотводящих трубок из коррозионно-стойкой стали диаметром 10 mm. Такая циркуляция газа, охлаждающие радиаторы на концевых участках кюветы, а также подогрев зеркал резонатора до 323 K минимизировали конденсацию паров кадмия на зеркалах резонатора.

Навески из металлического кадмия располагали в четырех закрытых сетками углублениях в газоотводящих трубках напротив промежутков между секциями активного элемента. Использовалась естественная смесь изотопов кадмия. Полная масса загрузки составляла $\sim 10 \text{ g}$.

Более подробное описание устройства лазера и результаты генерационного эксперимента на импульсном реакторе Барс-6 содержатся в работе [2].

Метод измерения концентрации паров кадмия

Для определения концентрации паров кадмия в активном элементе лазера измерялась эквивалентная ширина A_λ линии поглощения света с длиной волны $\lambda = 326.1 \text{ nm}$ на атомарном переходе кадмия $5^1S_0 - 5^3P_1^0$ с помощью „метода широкой щели“ [8]. Этот метод не требует интегрирования контура линии поглощения, и в нем измеряемая величина A_λ не зависит от разрешающей способности монохроматора. В этом случае

$$A_\lambda = \Delta\lambda(1 - I_2/I_1), \quad (1)$$

где $\Delta\lambda$ — спектральная ширина выходной щели монохроматора, I_2, I_1 — световые потоки на выходе монохроматора при наличии и отсутствии паров кадмия в образце соответственно.

С другой стороны, если $k_\nu l < 1$, то для A_λ можно записать

$$\begin{aligned} A_\lambda &= (\lambda^2/c) \int_0^\infty (1 - \exp(-k_\nu l)) d\nu \approx (\lambda^2/c) \int_0^\infty k_\nu d\nu \\ &= (\lambda^2 \pi e^2 \rho f_{ki}) / (mc^2) = 1.75 \cdot 10^{-24} l \rho. \end{aligned} \quad (2)$$

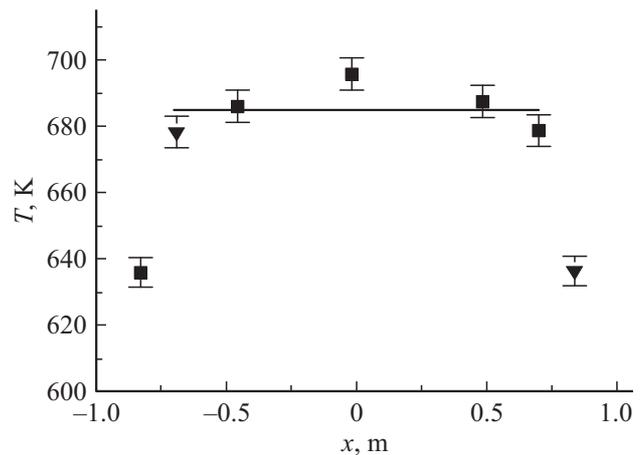


Рис. 1. Распределение температуры по длине активного элемента: ■ — измеренная температура; ▼ — температура, равная измеренной в точке, симметричной относительно середины активного элемента ($x = 0$); сплошная линия — аппроксимация методом наименьших квадратов.

Здесь k_ν, ν, c — коэффициент поглощения, частота и скорость света соответственно, l — длина образца (столба паров), e, m — заряд и масса электрона соответственно, ρ — концентрация атомов кадмия, $f_{ki} = 0.0019$ — сила осциллятора перехода $5^1S_0 - 5^3P_1^0$ [9].

Приравнявая (1) и (2), получаем выражение для определения концентрации атомов кадмия

$$\rho = (5.71 \cdot 10^{23} \Delta\lambda/l)(1 - I_2/I_1). \quad (3)$$

Видно, что для применимости метода необходимо выбрать такую длину образца l , чтобы выполнялось условие $k_\nu l < 1$. Если известна полуширина $\Delta\nu$ линии поглощения, то максимальный коэффициент поглощения k_ν^0 (в центре линии) можно оценить с помощью соотношения

$$\int_0^\infty k_\nu d\nu \sim k_\nu^0 \Delta\nu = 0.026 \rho f_{ki}.$$

В работе [10] приведены экспериментальные данные о значении $\Delta\nu$ при давлении P и температуре T гелия, равным соответственно 17.5 kPa и 439 K. Чтобы экстраполировать значение $\Delta\nu$ к условиям работы лазера [2] ($P = 0.4 \text{ MPa}$, $T = 685 \text{ K}$), мы использовали теоретическую модель из работы [11]. При использованных в эксперименте высоких значениях концентрации (давления) буферного газа гелия основным механизмом уширения линии является тушение атомами гелия, которое значительно превосходит доплеровское уширение и резонансное уширение в столкновениях с парами атомов кадмия в основном состоянии. В такой модели удельная (отнесенная к концентрации атомов буферного газа) ширина линии определяется произведением $\nu\sigma$, где ν — относительная скорость сталкивающихся атомов гелия

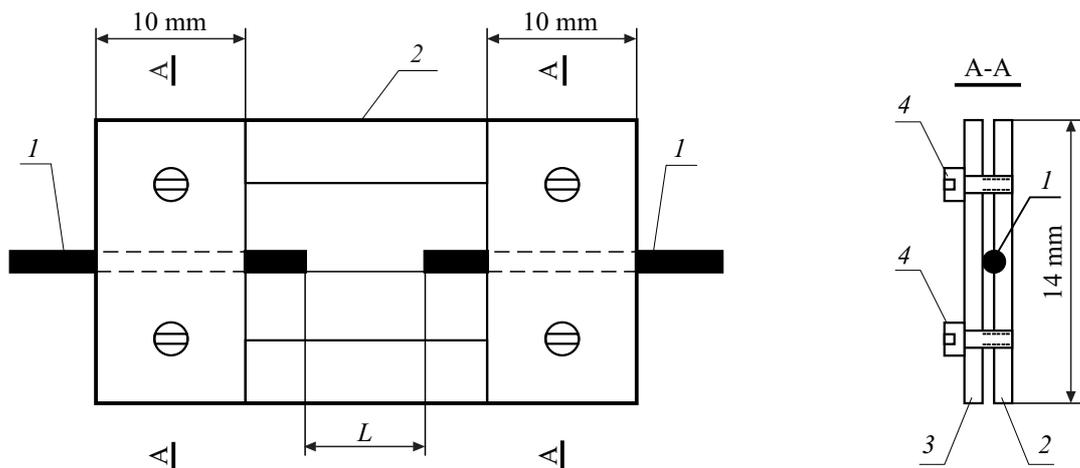


Рис. 2. Устройство разъема: 1 — оптоволокно; L — длина образца (столба паров); 2, 3 — направляющая и прижимная пластины соответственно толщиной 1.5 мм; 4 — винт М2.

и излучающего атома кадмия, σ — полное сечение столкновения. Для диполь-дипольного взаимодействия, убывающего с расстоянием по закону $1/R^6$, полное сечение столкновения зависит от скорости пропорционально $v^{-2/5}$ [11]. В предположении, что функция распределения атомов гелия имеет максвелловский профиль, для зависимости удельного уширения от температуры получается закон $T^{3/10}$, а для полной ширины линии $\Delta\nu$ — закон $\rho_{\text{He}} T^{3/10}$. При этом концентрация ρ_{He} атомов буферного газа определяется по измеряемым в эксперименте давлению и температуре на основе уравнения состояния.

Экстраполяция экспериментальных значений ширины линии из работы [10] к условиям работы лазера дает величину $\Delta\nu \sim 10^{11} \text{ s}^{-1}$. Отсюда следует, что при измерении концентрации атомов кадмия в области, насыщенной для $T = 685 \text{ K}$ ($\rho \sim 1.5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$), длина образца l должна быть не более 1.5 мм.

Для создания образца необходимой длины с минимальным возмущением поля паров кадмия в ЛАЭЛ была применена методика на основе оптоволокна. Транспортировка света в горячей части ЛАЭЛ осуществлялась с помощью двух отрезков длиной по 1.1 м высокотемпературного кварцевого оптоволокна с сердцевинной диаметром 1 мм из высокочистого кварцевого стекла в алюминиевом покрытии диаметром 1.4 мм. Для передачи пучка в холодных частях кюветы и в лаборатории были применены два отрезка длиной по 10 м низкотемпературного кварцевого волокна с сердцевинной диаметром 0.55 мм в поливиниловом покрытии диаметром 0.75 мм. Торцы всех отрезков оптоволокна были отполированы.

Создание образца паров и соединение отрезков оптоволокна осуществлялось с помощью специальных миниатюрных разъемов из дюралюминия, обеспечивающих соосность противоположных концов волокна. При этом в разъеме для соединения отрезков их торцы прижимались вплотную, а в разъеме-образце разводились на

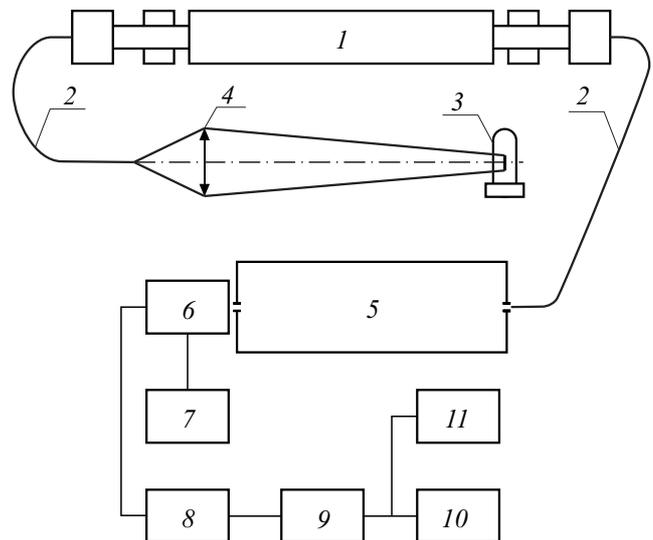


Рис. 3. Схема эксперимента. 1 — He–Cd-лазер, 2 — оптоволокно, 3 — вольфрамовая лампа (Сирш 8.5-200), 4 — кварцевая линза ($F = 110 \text{ mm}$, $\Phi = 60 \text{ mm}$), 5 — монохроматор МДР-23, 6 — ФЭУ-140, 7 — блок питания ФЭУ, 8 — усилитель, 9 — дискриминатор-формирователь, 10 — пересчетный прибор, 11 — персональный компьютер.

необходимое расстояние. Устройство разъема показано на рис. 2.

В лазерную кювету оптоволокно было введено через герметичные вводы в зеркалах резонатора и располагалось на оси ЛАЭЛ. При этом разъем для измерения концентрации паров кадмия размещали на его середине.

Схема эксперимента приведена на рис. 3. В качестве источника света применялась вольфрамовая лампа Сирш 8.5-200 с током 23 А. Изображение ленты лампы с помощью кварцевой линзы ($F = 110 \text{ mm}$, $\Phi = 60 \text{ mm}$) проектировалось на входной торец низкотемпературного оптоволокна. По оптоволокну свет передавался в кю-

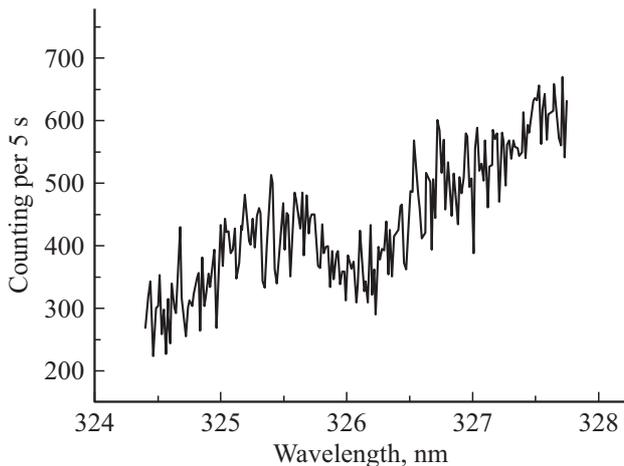


Рис. 4. Спектр поглощения паров кадмия.

вету, проходил через образец, выходил из кюветы и поступал на входную щель монохроматора МДР-23 с дифракционной решеткой 1200 lines/mm и дисперсией 1.3 nm/mm. За выходной щелью устанавливался фотодетектор на основе ФЭУ-140 с напряжением на фотокатоде — 1500 V, работающий в одноэлектронном счетном режиме. Импульсы с ФЭУ поступали на усилитель, дискриминатор и далее на пересчетный прибор или персональный компьютер.

Калибровка шкалы счетчика длин волн монохроматора была проведена путем сканирования спектра поглощения паров кадмия в области перехода с длиной волны 326.1 nm. Ширины входной и выходной щелей монохроматора устанавливали равными 0.2 mm. При этом давление и температура гелия в кювете были равны соответственно 0.4 МПа (при $T = 293$ K) и 685 K. Длина образца составляла 20 mm. Результаты показаны на рис. 4. Видно, что максимум линии поглощения находится при показаниях счетчика 326.1 nm.

Для исключения влияния на точность „метода широкой щели“ возможного изменения геометрии образца при нагревании (например, нарушения соосности концов оптоволокну), дрейфа параметров регистрирующей аппаратуры (коэффициента усиления, порога дискриминации) и других не зависящих от длины волны искажающих факторов в работе проведены измерения в условиях „с парами“ и „без паров“ для двух длин волн: исследуемой — 326.1 nm и опорной — 327.8 nm, при которой поглощения света нет. В этом случае можно записать

$$(I_2/I_1) = (N_{2н}/N_{2о})/(N_{1н}/N_{1о}), \quad (4)$$

где $N_{2н}, N_{2о}$ — число отсчетов за одинаковое время в условиях „с парами“ для исследуемой и опорной длин волн соответственно, $N_{1н}, N_{1о}$ — то же самое в условиях „без паров“. Ширина входной щели устанавливалась равной 0.15 mm, выходной — 0.3 mm. Давление и температура гелия в кювете в условиях „с парами“

соответствовали режиму работы лазера [2] и составляли $P = 0.4$ МПа (при $T = 293$ K) и $T = 685$ K, в условиях „без паров“ — $P = 0.4$ МПа и $T = 293$ K.

Измерения были проведены для четырех значений длины образца: 1.2, 5.0, 10 и 15 mm в режиме работы кюветы с прокачкой гелия и для одного значения (1.2 mm) в режиме без прокачки. Процедура измерений состояла в поочередной регистрации числа отсчетов за 10 s при положении счетчика монохроматора 326.1 nm и фона, положении счетчика 327.8 nm и соответствующего фона при комнатной температуре кюветы. Для измерения фона пучок, поступающий на вход оптоволокну, перекрывался непрозрачным экраном. Серия измерений состояла из семи таких замеров. Затем кювета нагревалась до рабочей температуры ($T = 685$ K) и такая же процедура измерений повторялась для условий „с парами“. Время выхода на рабочий температурный режим так же, как и в генерационном эксперименте [2], составляло 1–1.5 h. Отношение эффекта к фону было, как правило, не менее 10. Количество серий измерений для разных образцов составляло от 4 до 10.

Результаты и обсуждение

Полученные результаты приведены в таблице. В ней использованы следующие обозначения: l — длина образца; $\bar{N}_{2н}, \bar{N}_{2о}$ — среднее в серии измерений число отсчетов за 10 s после вычета фона в условиях „с парами“ ($T = 685$ K) для исследуемой (326.1 nm) и опорной (327.8 nm) длин волн соответственно; $\bar{N}_{1н}, \bar{N}_{1о}$ — то же самое в условиях „без паров“; $\langle I_2/I_1 \rangle$ — среднее по сериям измерений отношение потоков света, поступающих на фотодетектор, при наличии (I_2) и отсутствии (I_1) паров кадмия в образце, вычисленное по формуле (4); ρ — значение концентрации атомов кадмия в образце, вычисленное по формуле (3). Погрешности получены из разброса серий.

Видно, что для $l = 1.2$ mm измеренное значение концентрации, хотя и имеет большую погрешность, значительно меньше насыщенной при $T = 685$ K, равной $1.5 \cdot 10^{16}$ cm⁻³. В таком случае можно, не нарушая условия применимости „метода широкой щели“ ($k_v l < 1$), улучшить точность измерений, увеличив длину образца.

Результаты для $l = 5, 10$ и 15 mm, приведенные в таблице, свидетельствуют о том, что концентрация атомов кадмия в лазерной кювете в оптимальных условиях генерации [2] была более чем на порядок меньше ожидаемой при $T = 685$ K и соответствует насыщенной при $T \sim 575$ K. Это согласуется с данными работ [6,7] и говорит о том, что время жизни верхнего лазерного уровня перехода $5s^2^2D_{3/2} - 5p^2P_{3/2}$ Cd II с длиной волны 0.441 μm в условиях генерации составляет около 0.5 μs.

Возможной причиной уменьшения концентрации атомов кадмия в активном элементе лазера по сравнению с

Результаты измерения концентрации атомов кадмия в активном элементе He–Cd-лазера с ядерной накачкой

Режим работы кюветы	l , mm	$\bar{N}_{2n}/\bar{N}_{2o}$	$\bar{N}_{1n}/\bar{N}_{1o}$	$\langle I_2/I_1 \rangle$	ρ , 10^{15} cm^{-3}
С прокачкой	1.2	0.851	0.871	0.986 ± 0.012	2.6 ± 2.2
		0.871	0.877		
			0.870		
Без прокачки	1.2	0.844	0.871	0.973 ± 0.006	5.0 ± 1.1
		0.854	0.877		
			0.870		
С прокачкой	5.0	0.835	0.877	0.978 ± 0.010	1.0 ± 0.4
		0.842	0.843		
		0.844	0.862		
		0.837	0.854		
С прокачкой	10.0	0.803	0.869	0.947 ± 0.016	1.2 ± 0.3
		0.815	0.840		
С прокачкой	15.0	0.816	0.870	0.932 ± 0.015	1.0 ± 0.2
		0.812	0.856		
		0.790	0.869		
			0.864		

насыщенной является сток паров кадмия за счет конденсации на холодных участках кюветы в процессе концентрационной диффузии и принудительном переносе при прокачке гелия. В пользу этого утверждения свидетельствуют результаты измерения в режиме работы кюветы „без прокачки“. Видно, что в этом случае измеренная концентрация атомов кадмия возрастает почти в пять раз.

Причиной уменьшения концентрации мог также служить эффект образования теплоизолирующей окисной пленки на поверхности навесок кадмия. На это указывает тот факт, что после проведения эксперимента они изменили цвет — стали темно-серыми, но практически не изменили своей формы. Это означает, что в процессе эксперимента навески, если и плавилась, то лишь частично. Столь сильное влияние обсуждаемого эффекта на процессы, происходящие в навесках, можно объяснить тем, что они имели сравнительно высокое отношение площади поверхности к объему, так как были изготовлены путем сворачивания из фольги толщиной 0.5 mm. Необходимый для окисления кадмия кислород мог присутствовать в гелии, несмотря на его непрерывную очистку, из-за интенсивного газовыделения из конструкционных материалов кюветы при высокой температуре ($\sim 410^\circ\text{C}$).

Исключить эти эффекты можно, применив горячие окна в ЛАЭЛ и его предварительное обезгаживание вместо очистки гелия в процессе работы лазера. При этом оптимальная рабочая температура ЛАЭЛ должна понизиться примерно на 100 K.

Для более детального количественного анализа причин отличия наблюдаемой концентрации паров кадмия от насыщенной необходимы дальнейшие экспериментальные и расчетно-теоретические исследования.

Заключение

На основе оптоволоконной технологии разработана методика экспериментального определения концентрации паров кадмия путем измерения эквивалентной ширины линии поглощения атомарного кадмия с длиной волны 326.1 nm „методом широкой щели“. С помощью разработанной методики измерена концентрация атомов кадмия в He–Cd-лазере с ядерной накачкой на переходе Cd II с длиной волны 0.441 μm в рабочих условиях. Показано, что наблюдаемая концентрация атомов кадмия меньше насыщенной, соответствующей температуре ЛАЭЛ, примерно в 10 раз.

На основе полученных результатов и данных работ [6,7] сделан вывод о том, что время жизни верхнего рабочего уровня лазерного перехода $5s^2\ ^2D_{5/2} - 5p^2\ ^2D_{3/2}$ Cd II с длиной волны 0.441 μm в оптимальных условиях генерации лазера составляет около 0.5 μs .

Обсуждены возможные причины наблюдаемого уменьшения концентрации атомов кадмия по сравнению с насыщенной.

Предложены основные технические решения для разработки ЛАЭЛ оптического квантового усилителя с ядерной накачкой.

Благодарности

В заключение авторы считают своим долгом выразить глубокую благодарность руководителю группы „Кристаллические световоды“ старшему научному сотруднику НЦВО РАН Л.Н. Бутвина за любезно предоставленный образец высокотемпературного оптоволоконка, без которого выполнение данной работы было бы невозможным.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Дьяченко П.П., Зродников А.В., Кухарчук О.Ф., Суворов А.А. // Изв. вузов. Ядерная энергетика. 2019. № 2. С. 16–28. doi 10.3897/nucet.5.46381(25Sep2019)
- [2] Денежкин И.А., Дьяченко П.П., Степанов С.П. // Атомная энергия. 2019. Т. 127. В. 3. С. 166–171.
- [3] Справочник по лазерам / Под ред. Прохорова А.М. М.: Сов. Радио, 1978. Т. 1.
- [4] Денежкин И.А., Дьяченко П.П., Степанов С.П. // Труды конференции „Импульсные реакторы: история создания и перспективы использования“. Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 2016. Т. 2. С. 129–132.
- [5] Magda E.P., Grebyonkin K.F., Kryzhanovsky V.N. // Proc. Conf. „Laser-90“. McLean, USA. 1991. P. 827–834.
- [6] Полетаев Е.Д., Дьяченко П.П., Дюжов Ю.А., Тараско М.З. // Опт. и спектр. 1998. Т. 84. № 2. С. 186–192.
- [7] Dyachenko P.P., Dorofeev Yu.B., Poletaev E.D., Tarascko M.Z. // Laser and Particle Beams. 1993. V. 11. N 3. P. 477–484; Дьяченко П.П., Дорофеев Ю.Б., Полетаев Е.Д., Тараско М.З. // Тр. конф. „ЛЯН-92“. Обнинск: ФЭИ, 1992. Т. 1. С. 166–177.
- [8] Зайдель А.Н., Островская Г.В., Островский Ю.И. Техника и практика спектроскопии. М.: Наука, 1976.
- [9] Радциг А.А., Смирнов Б.М. Параметры атомов и атомных ионов. Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1986.
- [10] Bielski F., Lisak D., Trawinski R.S., Szudi J. // Acta Physica Polonica A. 2003. V. 103. N 1. P. 23–40.
- [11] Смирнов Б.М. // ЖЭТФ. 2018. Т. 154. В. 1(7). С. 57–68.