«Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»

На правах рукописи

Подкопаев Антон Викторович

# ИЗЛУЧАТЕЛЬНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ АКТИВНЫХ СРЕД ЭКСИМЕРНЫХ ЛАЗЕРОВ НА ОСНОВЕ ГАЗОВЫХ СМЕСЕЙ Ar-Xe-CCl4 И Ar-Xe-C2HBrClF3 ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ПУЧКОМ ЭЛЕКТРОНОВ И ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ <sup>235</sup>U

Специальность 01.04.21. – Лазерная физика

# ΑΒΤΟΡΕΦΕΡΑΤ

диссертации на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Москва — 2022

Работа выполнена в Акционерном обществе «Государственный научный центр Российской Федерации – Физико-энергетический институт имени А.И. Лейпунского»

Научный руководитель:	Миськевич Алексей Иустинович доктор физико-математических наук, ведущий инженер кафедры «Лазерная физика» НИЯУ МИФИ
Официальные оппоненты:	Стариков Федор Алексеевич доктор физико-математических наук, начальник теоретического отдела ИЛФИ ФГУП «РФЯЦ – НИИЭФ»
	<b>Дудоров Вадим Витальевич</b> доктор физико-математических наук, заместитель директора по научной работе ИОА СО РАН
	Бочков Александр Викторович кандидат физико-математических наук, начальник отделения 505, главный конструктор по лазерным системам и комплексам ФГУП «РФЯЦ – ВНИИТФ»

Защита состоится «29» сентября 2022 г. в 17:00 часов на заседании диссертационного совета «МИФИ.01.04» Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ» (115409, Москва, Каширское шоссе, 31).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ и на caйте https://ds.mephi.ru/ Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ».

Автореферат разослан «\_\_\_»\_\_\_\_ 2022 г.

Учёный секретарь диссертационного совета канд. физ.-мат. наук \_\_\_\_\_

June

Краснов В.В.

#### Общая характеристика работы

#### Актуальность темы диссертации

Одним из возможных вариантов использования осколков деления <sup>235</sup>U является прямое преобразование их энергии в световое излучение. Такое преобразование позволяет получать высокоэнергетические источники светового излучения, в том числе в виде лазерного излучения.

Наиболее высокой эффективностью преобразования энергии продуктов ядерных реакций в световое излучение обладают активные среды на основе эксимерных молекул галогенидов инертных газов типа  $RgX^*$ , где Rg – атом инертного газа (Ar, Ne, Kr, Xe), а X – атом галогена (F, Br, Cl, I). Эти молекулы существуют только в возбужденном состоянии, а их нижний рабочий уровень является разлетным или слабо связанным.

Выбор эффективность молекулы донора галогена влияет на люминесценции газовой смеси. Молекулы галогенов Cl<sub>2</sub>, Br<sub>2</sub>, I<sub>2</sub> и F<sub>2</sub> отличаются высокой химической активностью по отношению к большинству материалов, что усложняют их использование в качестве компонент лазерно-активных сред газовых лазеров. Чистые галогены даже в небольших концентрациях в газовой смеси вызывают сильное столкновительное тушение образующихся эксимерных молекул. По этой причине поиск и изучение новых химически нейтральных доноров является важной практической задачей, связанной с повышением долговечности и эффективности работы лазера.

Одними из наиболее перспективных молекул доноров являются сложные многоатомные органические соединения, содержащие в своём составе атомы галогенов. Большое разнообразие органических соединений с галогенами делает возможной ситуацию, когда такая молекула может содержать несколько атомов разного типа галогенов. Использование такого донора в смеси с инертным газом позволяет получать одновременно несколько видов эксимерных молекул, излучающих на разных длинах волн.

Широкое использование эксимерных сред в лазерах с ядерной накачкой сдерживается недостаточным знанием физических процессов, происходящих в

ядерно-возбуждаемой плазме при образовании и распаде эксимерных молекул. Построение теоретических моделей, описывающих кинетику процессов в активных средах эксимерных лазеров, возбуждаемых продуктами ядерных реакций, затруднительно из-за недостатка экспериментальных данных. В связи с этим проведение экспериментальных исследований ядерно-возбуждаемой люминесценции эксимерных молекул в плотных газовых смесях на основе галогенидов инертных газов различного состава является актуальной задачей. Настоящая работа посвящена таким экспериментальным исследованиям.

**Цель диссертационной работы** состояла в определении излучательных характеристик новых активных сред эксимерных лазеров на основе плотных газовых смесей Ar-Xe с галогеносодержащими соединениями CCl<sub>4</sub> и C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> при возбуждении пучком электронов и осколками деления <sup>235</sup>U.

Для достижения этой цели были поставлены следующие задачи:

1. Разработать и изготовить экспериментальную установку для измерения характеристик люминесценции плотных газовых смесей при возбуждении пучком электронов малогабаритного импульсного ускорителя электронов РАДАН-220.

2. Разработать и создать оптическую схему для измерения характеристик люминесценции плотных газовых смесей при возбуждении осколками деления <sup>235</sup>U на базе импульсного ядерного реактора БАРС-6.

3. Провести цикл экспериментальных исследований излучательных характеристик люминесценции эксимерных молекул XeCl<sup>\*</sup>, Xe<sub>2</sub>Cl<sup>\*</sup>, XeBr<sup>\*</sup>, Xe<sub>2</sub>Br<sup>\*</sup>, XeF<sup>\*</sup>, образующихся в плотных газовых смесях Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> и Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> при возбуждении пучком электронов и осколками деления <sup>235</sup>U.

4. Провести исследования генерационных и усилительных характеристик эксимерных молекул XeCl<sup>\*</sup> в газовых смесях Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> с низким содержанием донора CCl<sub>4</sub> при импульсной накачке пучком электронов и осколками деления <sup>235</sup>U.

5. Разработать кинетическую модель плазмохимических процессов образования и распада эксимерных молекул XeBr\*, XeCl\* и XeF\* в плотной

газовой среде Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> при возбуждении пучком электронов и осколками деления <sup>235</sup>U.

#### Основные научные положения, выносимые на защиту

На защиту выносятся:

1. Результаты экспериментальных исследований спектральнокинетических характеристик люминесценции эксимерных молекул XeCl<sup>\*</sup> и XeBr<sup>\*</sup> в газовых смесях Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> и Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> при накачке пучком электронов и осколками деления <sup>235</sup>U.

2. Результаты исследований усиленного спонтанного и лазерного излучения эксимерных молекул XeCl<sup>\*</sup> в условиях накачки пучком электронов и осколками деления <sup>235</sup>U.

3. Новая активная среда на основе газовой смеси Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub>, позволяющая получать УФ излучение одновременно трех эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup>, XeCl<sup>\*</sup> и XeF<sup>\*</sup> при возбуждении осколками деления <sup>235</sup>U.

## Научная новизна

Научная новизна определяется тем, что в работе впервые:

1. Проведены комплексные исследования излучательных характеристик люминесценции газовых смесей Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> различного состава при возбуждении осколками деления <sup>235</sup>U и пучком электронов со средней энергией 150 кэB.

2. Экспериментально установлено, что при использовании  $C_2HBrClF_3$  в активной среде под воздействием осколков деления <sup>235</sup>U происходит образование трех эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup>, XeCl<sup>\*</sup>u XeF<sup>\*</sup>.

3. Обнаружен режим суперлюминесценции на C-A переходе эксимерной молекулы  $XeCl^*$  ( $\lambda \approx 352$  нм) при накачке плотной Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> газовой смеси осколками деления <sup>235</sup>U.

4. На основе полученных экспериментальных данных рассчитаны константы скоростей столкновительного тушения люминесценции эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup> и XeCl<sup>\*</sup> молекулами донора C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub>.

#### Практическая значимость

1. Предложено новое малотоксичное донорное соединение  $C_2HBrClF_3$  для экспериментального исследования эксимерных лазерных сред, позволяющее получать излучение одновременно трех эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup>, XeCl<sup>\*</sup> и XeF<sup>\*</sup>.

2. Создана установка для исследования люминесценции плотных газовых сред при возбуждении пучком электронов со средней энергией 150 кэВ, с возможностью очистки и регенерации Хе.

3. Выдвинуто предположение о влиянии гамма-излучения реактора на кинетику процессов возбуждения лазерных сред продуктами ядерных нейтронных реакций, открывающее новое направление исследований.

#### Личный вклад автора

Все представленные в диссертационной работе экспериментальные данные были получены автором лично либо при его непосредственном участии. Автор лично участвовал в разработке, сборке и настройке экспериментальной установки, созданной при выполнении данной работы. Автор самостоятельно разработал и реализовал с помощью средств программирования расчетную кинетическую модель, представленную в работе. Постановка задач и обсуждение результатов проводились совместно с научным руководителем.

#### Апробация работы

Основные результаты работы прошли апробацию на следующих международных и российских конференциях:

• «Будущее атомной энергетики – atomfuture», Обнинск, 2017 г.;

• VII Международная молодежная научная школа-конференция «Современные проблемы физики и технологий», Москва, 2018 г.;

• VII, VIII и IX Международная конференция по фотонике и информационной оптике, Москва, 2018–2020 гг.;

• International Conference on Lasers, Optics and Photonics, Осака, Япония,

2018 г.

# Публикации по теме

По теме диссертации опубликовано 13 печатных работ, среди них:

- 4 статьи в изданиях, включенных в Перечень ВАК РФ,
- 7 в трудах международных и всероссийских конференций,
- 2 в прочих изданиях.

# Структура и объём диссертации

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и списка литературы, включающего 145 наименований. Общий объем диссертации составляет 150 страниц, включая 58 рисунков и 8 таблиц.

# Содержание работы

Во введении в показана актуальность темы исследования, установлены цель и задачи. Показана научная новизна и практическая значимость работы. Приведены научные положения, выносимые на защиту. Указаны сведения об апробации полученных результатов. Приведена информация о публикациях по теме диссертационной работы.

В первой главе приводится обзор научных публикаций по теме ксенон содержащих инертно-галоидных эксимерных молекул.

Рассмотрены основные научные работы, касающиеся исследования эксимерных лазерных сред на основе плотных газовых смесей, возбуждаемых частицами высокой энергии. Образование эксимеров типа RgX<sup>\*</sup> в основном происходит по двум каналам, первый – гарпунная реакция:

$$Rg^* + RX \to RgX^* + R, \tag{1}$$

где RX – молекула, содержащая атом галогена и радикал R. Данная реакция преобладает при низких давлениях газовых смесей.

Второй тип реакций – ион-ионные рекомбинации, в общем случае имеющие вид:

$$Rg^{+} + X^{-} + Rg(B) \rightarrow RgX^{*} + Rg(B), \qquad (2)$$

где В – атом буферного газа, которым чаще всего является инертный газ (He, Ne, Ar). Реакция (2) преобладает в плотных газовых смесях давлением порядка атмосферы и выше при возбуждении пучком электронов и тяжелыми заряженными частицами. Эксимерные молекулы находятся в одном из возбужденных состояний, имеющих время жизни от 10 до 100 нс. Основное состояние эксимеров является либо разлетным, либо слабосвязанным. При переходе в основное состояние эксимерные молекулы RgX<sup>\*</sup> излучают квант света определенной длины волны, в основном в УФ и ВУФ области длин волн.

Одним из возможных источников накачки для эксимерных лазерных сред могут служить продукты нейтронных ядерных реакций. Экспериментальные работы, которые выполнялись в СССР, а затем и в России, а также в США показали, что эксимерные лазерные среды обладают высокой эффективностью при возбуждении продуктами ядерных нейтронных реакций. Достигнуты показатели квантовой эффективности до 16% при передаче энергии продуктов ядерной реакции в эксимерные среды на основе эксимеров XeF<sup>\*</sup>, XeCl и XeBr<sup>\*</sup>. В ряде экспериментов достигнуты значения усиления в 0,007 см<sup>-1</sup> для излучения с длиной волны 351 нм В-Х перехода эксимерной молекулы XeF<sup>\*</sup>, при возбуждении осколками деления  $^{235}$ U с мощностью энерговклада  $\approx 5 \text{ kBt/сm}^3$ .

Наиболее перспективными донорными соединениями считаются тяжелые органические молекулы. Их преимущество состоит в меньшей химической активности по сравнению с чистыми галогенами F<sub>2</sub>, Cl<sub>2</sub>, Br<sub>2</sub>. Это позволяет продлить срок службы элементов конструкции эксимерных лазеров эффективность. Одним И повысить ИХ ИЗ основных параметров, характеризующих донор атомов галогена, является константа скорости столкновительного тушения эксимерной молекулы в реакции типа:

$$RgX^* + RX \rightarrow Rg + X + Rg.$$
(3)

Скорость реакции (3) ограничивает предельную концентрацию атомов донора и эффективность образования эксимерных молекул.

**Во второй главе** приводится описание созданных экспериментальных установок для исследования характеристик люминесценции плотных газовых смесей, возбуждаемых пучком электронов со средней энергией 150 кэВ и осколками деления <sup>235</sup>U.

Блок-схема установки для исследования излучательных характеристик плотных газовых смесей под воздействием пучка электронов представлена на рисунке 1.



1 – ускоритель электронов Радан-220; 2 – экспериментальная камера;
 3 – газовый пост; 4 – система очистки и рециркуляции газов; 5 – вакуумный насос;
 6 – блок управления газовым постом; 7 – система питания и заземления установки;

- 8 монохроматор МДР-23; 9 блок управления монохроматором;
- 10 фотоэлектронный умножитель ФЭУ-106; 11 блок питания ФЭУ-106;
- 12 цифровой осциллограф *Tektronix TDS-1012*; 13 блок синхронизации;

14 - спектрометр Maya 2000 Pro; 15 - персональный компьютер

Рисунок 1 – Блок-схема экспериментальной установки для исследования люминесценции плотных газовых смесей, возбуждаемых электронным

пучком

Импульсный ускоритель электронов РАДАН-220 обеспечивает ток электронов  $\approx 150$  A с длительностью импульса  $\approx 2$  нс. Для создания плотных газовых смесей высокого (до 4 атм) давления применяется газовый контур с возможностью очистки и регенерации Xe. Точность определения парциального давления компонент газовой смеси составляет  $\pm 0,005$  Topp.

Установка для исследования излучательных характеристик плотных газовых смесей, возбуждаемых осколками деления <sup>235</sup>U, создана на базе реакторно-лазерного комплекса «Стенд-Б». Оптическая схема экспериментальной установки представлена на рисунке 2.



1 – экспериментальное устройство; 2 – активные зоны реактора БАРС-6;
 3 – оптический канал; 4 – биологическая защита; 5 – лазеры для настройки оптической схемы; 6 – спектрометр *Maya 2000 Pro*; 7 – фотоэлектронные умножители; 8 – кварцевые делительные пластины; 9 – монохроматор МДР-12;
 10 – интерференционные светофильтры

Рисунок 2 – Оптическая схема измерительной системы, использованной в экспериментах на реакторе Источником нейтронов служит быстрый импульсный реактор БАРС-6 с плотностью потока нейтронов на поверхности активной зоны  $\approx 5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2} \text{c}^{-1}$ . Возбуждение исследуемой газовой смеси происходит в экспериментальном устройстве ЭУС-25. Экспериментальное устройство представляет собой стальную трубу, в которую вложен цилиндр из алюминиевой фольги, на внутреннюю поверхность которой нанесен слой из U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (обогащение по <sup>235</sup>U  $\approx$  90%). Плотность ядер <sup>235</sup>U в слое составляет  $\approx$  3 мг/см<sup>2</sup>. Труба окружена слоем полиэтиленового замедлителя. Длительность импульсного воздействия осколков деления <sup>235</sup>U составляет  $\approx$  250 мкс.

Для измерения спектральных характеристик в экспериментальных установках применяется спектрометр *Maya-2000 Pro*, основанный на полупроводниковом детекторе *Hamamatsu S10420*. Спектрометр позволяет записывать спектры люминесценции в области 200 – 1100 нм с разрешением 0,5 нм. Для записи временных характеристик использовались фотоэлектронные умножители ФЭУ-100 и ФЭУ-106 совместно с быстрым цифровым осциллографом *Tektronix TDS-1012*. В установке на базе ускорителя электронов для выделения конкретной длины волны при записи временных характеристик использовался монохроматор МДР-24. В установке на базе реакторнолазерного комплекса для этих целей применялся монохроматор МДР-12, а также набор узкополосных интерференционных фильтров.

Проведена оценка КПД преобразования энергии пучка электронов и осколков деления <sup>235</sup>U в энергию квантов излучения эксимерных молекул. Методика оценки основана на пересчете относительной интенсивности полос В-Х переходов эксимерных молекул в измеряемых спектрах люминесценции в количество квантов света, излучаемого возбуждаемым объемом исследуемой плотной газовой среды. КПД преобразования в излучение XeCl<sup>\*</sup> составили приблизительно 3% и 11% для электронов и осколков деления соответственно.

B третей главе приводятся результаты экспериментального исследования спектрально-кинетических и генерационных характеристик газовой смеси Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> различного парциального состава, плотной возбуждаемой пучком электронов и осколками деления <sup>235</sup>U. На рисунке 3 представлен спектр люминесценции смеси Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> (760-15-0,05), возбуждаемой продуктами ядерной реакции деления <sup>235</sup>U



Рисунок 3 – Спектр люминесценции смеси Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> (760-15-0,05), возбуждаемой продуктами ядерной реакции деления <sup>235</sup>U

На основе измерений времени высвечивания эксимерной молекулы XeCl<sup>\*</sup> были рассчитана константа скорости столкновительного тушения в реакции:

$$XeCl^* + CCl_4 \rightarrow Xe + Cl^- + CCl_4.$$
(4)

Значение константы скорости реакции столкновительного тушения составляет  $(2,2 \pm 0,4) \cdot 10^{-10}$  см<sup>3</sup>/с.

Проведены эксперименты по получению генерации на длине волны 308 нм с использованием газовой смеси Ar-Xe-CCl<sub>4</sub>. В экспериментах использовался резонатор на основе зеркал с коэффициентом отражения 99,5% на длине волны 308 нм.

Зафиксировано сужение полосы В-Х перехода эксимерной молекулы XeCl\*. Расходимость пучка излучения на длине волны 308 нм составляет  $\approx 0,02$  радиан. Верхняя оценка коэффициента усиления среды на длине волны 308 нм, соответствующей В-Х переходу эксимерной молекулы XeCl\*, составляет  $\approx 0,01$  см<sup>-1</sup>.

В работе впервые наблюдается режим суперлюминесценции на длине волны 352 нм С-А перехода эксимерной молекулы XeCl<sup>\*</sup>. Режим был выражен в лавинообразном увеличении интенсивности сигнала на длине волны 352 нм (рисунок 4).





Рисннок 4 – Зависимость инетенсивности люминесценции (–) на длине волны 352 нм и плотности потока нейтронов (– –) от времени

**В четвертой главе** приводятся результаты экспериментального исследования характеристик люминесценции плотной газовой смеси Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> различного парциального состава, возбуждаемой пучком электронов и продуктами реакции деления <sup>235</sup>U. На рисунке 5 представлен спектр люминесценции смеси Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> при возбуждении пучком электронов.





Рисунок 5 – Спектр люминесценции газовой смеси Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub>, парциальный состав (760-15-0,05), возбуждаемой пучком электронов

На основе измерений времени высвечивания эксимерных молекул XeCl<sup>\*</sup> и XeBr<sup>\*</sup> были рассчитаны константы скоростей столкновительного тушения в реакциях:

$$XeCl^* + C_2HBrClF_3 \rightarrow Xe + Cl^- + C_2HBrClF_3,$$
(5)

$$XeBr^* + C_2HBrClF_3 \rightarrow Xe + Br^- + C_2HBrClF_3.$$
(6)

Для эксимерной молекулы XeBr<sup>\*</sup> значение константы скорости реакции столкновительного тушения составляет  $(2,8 \pm 0,4) \cdot 10^{-10}$  см<sup>3</sup>/с, для XeCl<sup>\*</sup> –  $(2,0 \pm 0,3) \cdot 10^{-10}$  см<sup>3</sup>/с.

На рисунке 6 представлен спектр люминесценции газовой смеси Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub>, полученный при возбуждении осколками деления <sup>235</sup>U.





# Рисунок 6 – Спектр люминесценции газовой смеси Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> с соотношением парциальных давлений 760-20-0,05 Торр, возбуждаемой осколками деления урана

Помимо полос с максимумами на длине волны 282 нм и 308 нм, соответствующими B-X переходам эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup> и XeCl<sup>\*</sup>, в спектре присутствует полоса с максимумом около 351 нм, которая принадлежит B-X переходу эксимерной молекулы XeF<sup>\*</sup>.

Создана плазмохимическая модель кинетики плазмохимических процессов в среде Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub>. В модели учитывается 46 реакций с константами скоростей  $k_i$  на основе которых была составлена система дифференциальных уравнений для концентраций 18 компонент:

$ \begin{split} [\dot{Ar}] &= k_5 [Ar^+][e_1] + k_9 [Ar^*] + 2k_8 [Ar_2^*][e_1] + 2k_{10} [Ar_2^*] + k_{17} [Ar^+][Xe] + k_{18} [Ar^*][[Xe] + 2k_{19} [Ar_2^+][Xe] + 2k_{20} [Ar_2^*][Xe] - k_1 [Ar][e_2] - k_2 [Ar][e_3] - k_6 [Ar]([Ar][Ar^+] - [Ar_2^+]) - k_7 [Ar]([Ar][Ar^*] - [Ar_2^*]) \end{split} $
$[\dot{Ar^+}] = k_2[Ar][e_3] + k_3[Ar^*][e_3] - k_5[Ar^+][e_1] - k_4[Ar^+][e_1] - k_6[Ar^+][Ar]^2 - k_{17}[Ar^+][Xe]$
$[\dot{Ar^*}] = k_1[Ar][[e_2] + k_4[Ar^+][e_1] - k_3[Ar^*][e_3] - k_9[Ar^*] - k_7[Ar^*][Ar]^2 - k_{18}[Ar^*][Xe]$
$ \begin{split} [\dot{Xe}] &= -k_{11}[Xe][e_2] - k_{12}[Xe][e_3] + k_{15}[Xe^+][e_1] + k_{16}[Xe^*] - k_{17}[Ar^+][Xe] - k_{18}[Ar^*][Xe] - \\ & -k_{19}[Ar_2^+][Xe] - k_{20}[Ar_2^*][Xe] + k_{33}[XeBr^*][Ft] + k_{34}[XeCl^*][Ft] + \\ & +k_{35}[XeF^*][Ft] + k_{36}[XeBr^*][Ar] + k_{37}[XeCl^*][Ar] + k_{38}[XeF^*][Ar] + \\ & +k_{39}[XeBr^*] + k_{40}[XeCl^*] + k_{41}[XeF^*] + k_{45}[XeBr^*][e_1] + k_{46}[XeCl^*][e_1] + \\ & +k_{47}[XeF^*][e_1] \end{split} $
$ \begin{split} [\dot{Xe^+}] &= k_{12}[Xe][e_3] + k_{13}[Xe^*][e_3] - k_{14}[Xe^+][e_1] - k_{15}[Xe^+][e_1] + k_{17}[Xe][Ar^+] + \\ &+ k_{19}[Xe][Ar_2^+] - k_{27}[Xe][Xe^+][Br^-] - k_{28}[Xe][Xe^+][Cl^-] - k_{29}[Xe][Xe^+][Cl^-] - \\ &- k_{30}[Ar][Xe^+][Br^-] - k_{31}[Ar][Xe^+][Cl^-] - k_{32}[Ar][Xe^+][F^-] - k_{42}[Xe^+][Br^-] - \\ &- k_{43}[Xe^+][Cl^-] - k_{44}[Xe^+][F^-] \end{split} $
$ \begin{bmatrix} \dot{Xe^*} \end{bmatrix} = k_{11}[Xe][e_2] - k_{13}[Xe^*][e_3] + k_{14}[Xe^+][e_1] - k_{16}[Xe^*] + k_{18}[Ar^*][Xe] + k_{20}[Ar_2^*][Xe] - k_{24}[Xe^*][Ft] - k_{25}[Xe^*][Ft] - k_{26}[Xe^*][Ft] $
$ \begin{split} \dot{[e_1]} &= k_1 [\text{Ar}][e_2] + k_2 [\text{Ar}][e_3] + k_3 [\text{Ar}^*][e_3] - k_4 [\text{Ar}^+][e_1] - k_5 [\text{Ar}^+][e_1] - k_8 [\text{Ar}_2^+][e_1] + \\ &+ k_{12} [Xe][e_3] + k_{13} [Xe^*][e_3] - k_{14} [Xe^+][e_1] - k_{15} [Xe^+][e_1] - k_{21} [e_1] [Ft] - \\ &- k_{22} [e_1] [Ft] - k_{23} [e_1] [Ft] \end{split} $
$[\dot{e}_2] = k_2[Ar][e_3] + k_3[Ar^*][e_3] - k_1[Ar][e_2] - k_{11}[Xe][e_2] + k_{12}[Xe][e_3] + k_{13}[Xe^*][e_3]$
$[\dot{e_3}] = -k_2[\operatorname{Ar}][e_3] - k_3[\operatorname{Ar}^*][e_3] - k_{12}[Xe][e_3] - k_{13}[Xe^*][e_3]$
$[\dot{Ft}] = -k_{21}[e_1][Ft] - k_{22}[e_1][Ft] - k_{23}[e_1][Ft] - k_{24}[Xe^*][Ft] - k_{25}[Xe^*][Ft] - k_{26}[Xe^*][Ft]$
$[A\dot{r}_{2}^{+}] = k_{6}[Ar^{+}][Ar]^{2} - k_{8}[Ar_{2}^{+}][e_{1}] - k_{19}[Ar_{2}^{+}][Xe]$
$[\dot{Ar}_{2}^{*}] = k_{7}[Ar^{*}][Ar]^{2} - k_{10}[Ar_{2}^{*}] - k_{20}[Ar_{2}^{*}][Xe]$
$[B\dot{r}^{-}] = k_{21}[e_1][Ft] - k_{27}[Xe][Xe^+][Br^-] - k_{30}[Ar][Xe^+][Br^-] - k_{42}[Xe^+][Br^-]$
$[C\dot{l}^{-}] = k_{22}[e_1][Ft] - k_{28}[Xe][Xe^{+}][Cl^{-}] - k_{31}[Ar][Xe^{+}][Cl^{-}]k_{43}[Xe^{+}][Cl^{-}]$
$[\dot{F^{-}}] = k_{23}[e_1][Ft] - k_{29}[Xe][Xe^+][F^-] - k_{32}[Ar][Xe^+][F^-] - k_{44}[Xe^+][F^-]$
$\begin{split} [Xe\dot{B}r^*] &= k_{24}[Xe^*][Ft] + k_{27}[Xe^+][Br^-][Xe] + k_{30}[Xe^+][Br^-][Ar] + k_{42}[Xe^+][Br^-] - \\ &- k_{45}[XeBr^*][e_1] - k_{33}[XeBr^*][Ft] - k_{36}[XeBr^*][Ar] - k_{39}[XeBr^*] \end{split}$
$ \begin{bmatrix} XeCl^* \end{bmatrix} = k_{25} \begin{bmatrix} Xe^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ft \end{bmatrix} + k_{28} \begin{bmatrix} Xe^+ \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Cl^- \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Xe \end{bmatrix} + k_{31} \begin{bmatrix} Xe^+ \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Cl^- \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ar \end{bmatrix} + k_{43} \begin{bmatrix} Xe^+ \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Cl^- \end{bmatrix} - k_{34} \begin{bmatrix} XeCl^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ft \end{bmatrix} - k_{37} \begin{bmatrix} XeCl^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ar \end{bmatrix} - k_{40} \begin{bmatrix} XeCl^* \end{bmatrix} - k_{46} \begin{bmatrix} XeCl^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e_1 \end{bmatrix} $
$ \begin{bmatrix} XeF^* \end{bmatrix} = k_{26} \begin{bmatrix} Xe^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ft \end{bmatrix} + k_{29} \begin{bmatrix} Xe^+ \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F^- \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Xe \end{bmatrix} + k_{32} \begin{bmatrix} Xe^+ \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F^- \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ar \end{bmatrix} + k_{44} \begin{bmatrix} Xe^+ \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F^- \end{bmatrix} - k_{35} \begin{bmatrix} XeF^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ft \end{bmatrix} - k_{38} \begin{bmatrix} XeF^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Ar \end{bmatrix} - k_{41} \begin{bmatrix} XeF^* \end{bmatrix} - k_{47} \begin{bmatrix} XeF^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e_1 \end{bmatrix} $

Модель описывает возбуждение плотной газовой смеси Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> импульсным пучком электронов со средней энергией 150 кэВ и осколками деления <sup>235</sup>U с мощностью энерговклада  $\approx 800$  Bт/см<sup>3</sup>. На основе разработанной модели были рассчитаны зависимости концентрации эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup>, XeCl<sup>\*</sup> и XeF<sup>\*</sup> от времени. На рисунке 7 представлено сравнение формы зависимости концентрации XeBr<sup>\*</sup> от времени, полученной расчетным путем и формы зависимости интенсивности люминесценции XeBr<sup>\*</sup>, полученной в эксперименте.



Рисунок 7 – Сравнение экспериментальной зависимости интенсивности люминесценции XeBr<sup>\*</sup> от времени с расчетной зависимостью концентрации эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup> от времени

Рассчитанные коэффициенты усиления на B-X переходах XeBr<sup>\*</sup>, XeCl<sup>\*</sup> и XeF<sup>\*</sup> составляют  $7 \cdot 10^{-4}$ ,  $2 \cdot 10^{-4}$  и  $6,9 \cdot 10^{-5}$  см<sup>-1</sup> для возбуждения осколками деления и  $3,2 \cdot 10^{-4}$ ,  $2,3 \cdot 10^{-4}$  и  $5,4 \cdot 10^{-5}$  см<sup>-1</sup> для возбуждения пучком электронов.

#### Основные выводы работы

Основные результаты работы заключаются в следующем:

1. Экспериментально показано, что использование смеси Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> с низким парциальным давлением CCl<sub>4</sub> ( $\approx$ 0,05 Topp) позволяет существенно улучшить излучательные характеристики B-X перехода 308 нм эксимерной молекулы XeCl<sup>\*</sup>. Константа тушения эксимерной молекулы XeCl<sup>\*</sup> молекулой CCl<sub>4</sub> составила (2,2 ± 0,4)·10<sup>-10</sup> см<sup>3</sup>/с. Коэффициент усиления на длине волны 308 нм в газовой среде Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> (760-15-0,05) может достигать 0,01 см<sup>-1</sup>. КПД преобразования энергии, вложенной в газовую среду осколками деления, в энергию излучения B-X перехода XeCl<sup>\*</sup> составляет  $\approx$  11%.

2. Впервые наблюдался режим суперлюминесценции на С-А переходе эксимерной молекулы XeCl<sup>\*</sup> длина волны 352 нм в среде на основе плотной газовой смеси Ar-Xe-CCl<sub>4</sub> (760-15-0,05), возбуждаемой осколками деления <sup>235</sup>U. Эффект проявлялся в лавинообразном увеличении интенсивности излучения на длине волны 352 нм.

3. Экспериментально установлено достижение режима, близкого к лазерной генерации, на длине волны 308 нм В-Х перехода эксимерной молекулы XeCl<sup>\*</sup> в газовой смеси Ar-Xe-CCl<sub>4</sub>, возбуждаемой пучком электронов и осколками деления <sup>235</sup>U. В резонаторе с коэффициентом отражения на длине волны генерации  $\approx$  99,5% наблюдается сужение ширины полосы В-Х перехода на 17%, пучок излучения на выходе из резонатора обладает расходимостью  $\approx$  0,02 радиан.

4. Впервые было проведено экспериментальное исследование C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> (фторотана) как нового донорного соединения для получения эксимерных соединений. Экспериментально установлено, что при использовании фторотана в исследуемых смесях при возбуждении осколками деления <sup>235</sup>U одновременно образуется три эксимерные молекулы XeBr\*, XeCl\* и XeF<sup>\*</sup>. Рассчитаны константы скоростей столкновительного тушения молекулой C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub>, для молекулы XeCl\*  $(2,8 \pm 0,4) \cdot 10^{-10}$  см<sup>3</sup>/с, а для XeBr\* –  $(2,0\pm0,3)\cdot10^{-10}$  cm<sup>3</sup>/c.

5. Создана экспериментальная установка для исследования спектрально-кинетических свойств люминесценции плотных газовых смесей при возбуждении пучком электронов. Установка создана на базе компактного

ускорителя электронов РАДАН-220, средняя энергия электронов 150 кэВ, длительность возбуждения ≈ 2 нс. В установке применяется система очистки и регенерации Хе, разработанная в настоящей работе.

6. Создана плазмохимическая модель, описывающая кинетику процессов образования и распада эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup>, XeCl<sup>\*</sup> и XeF<sup>\*</sup> в новой активной среде на основе плотной газовой среды Ar-Xe-C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub>. Численные расчеты показали, что в имеющихся экспериментальных условиях коэффициенты усиления на B-X переходах эксимерных молекул XeBr<sup>\*</sup>, XeCl<sup>\*</sup> и XeF<sup>\*</sup> достигают  $7 \cdot 10^{-4}$ ,  $2 \cdot 10^{-4}$  и  $6,9 \cdot 10^{-5}$  см<sup>-1</sup> для возбуждения осколками деления и  $3,2 \cdot 10^{-4}$ ,  $2,3 \cdot 10^{-4}$  и  $5,4 \cdot 10^{-5}$  см<sup>-1</sup> для возбуждения пучком электронов

7. Были обнаружены новые особенности кинетики процессов образования и распада эксимерных молекул во время импульсного воздействия осколков деления <sup>235</sup>U. Выдвинуто предположение о негативном влиянии гамма-излучения реактора на процессы образования эксимерных молекул.

### Статьи в журналах, включенных в Перечень ВАК РФ

1. Миськевич А. И., **Подкопаев А. В.** Установка для исследования люминесценции, возбуждаемой заряженными частицами высокой энергии в плотных ксенонсодержащих газовых средах, с возможностью регенерации и повторного использования ксенона // Приборы и техника эксперимента. – 2017. – № 3. – С. 154–159.

2. Миськевич А. И., **Подкопаев А. В.** Образование эксимерных молекул XeCl<sup>\*</sup>, XeBr<sup>\*</sup>, XeF<sup>\*</sup> в плотной газовой смеси Ar–Xe–C<sub>2</sub>HBrClF<sub>3</sub> при возбуждении пучком электронов и осколками деления урана // Вестник национального исследовательского ядерного университета «МИФИ». – 2019. – Т. 8, № 2. – С. 1–7.

3. Mis'kevich A.I., Guo Jin Bo, Duyzov Y.A., **Podkopaev A.V.** The effect of super-radiance on the C-A transition of the excimer molecule XeCl\* at 352 nm excited only by <sup>235</sup>U fission fragments // American Journal of Modern Physics. – 2019. – Vol. 8, no 2. – P. 14–17. DOI 20.11648/J.Amp. 2019 08 02.11/

4. Миськевич А. И., **Подкопаев А. В.** Излучательные характеристики эксимерных молекул Ar<sub>2</sub>Cl<sup>\*</sup> при накачке плотной Ar + CCl<sub>4</sub> газовой смеси быстрыми электронами // Оптика и спектроскопия. – 2021. – Т. 129, № 9. – С. 1146 – 1151.

Тираж 80 экз. Заказ № 135. 07.07.2022
Отпечатано с оригинала автора в ОПиНТИ АО «ГНЦ РФ – ФЭИ».
г. Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1.