

КИНЕТИКА ВОЗБУЖДЕНИЯ ГЕТЕРОЯДЕРНЫХ ИОННЫХ МОЛЕКУЛ (ArXe)⁺ ЖЕСТКИМ ИОНИЗАТОРОМ

М.У. Хасенов

ТОО «Фотоника», г. Алматы

Исследована возможность использования излучения с $\lambda \sim 329$ нм в смеси Ar-Xe в радионуклидных источниках света. При возбуждении α -частицами в этой смеси наблюдаются только переходы ($\lambda \sim 329$ нм и ~ 508 нм) с уровня $\text{Ar}^+(^2P_{1/2})\text{Xe}$ и отсутствуют переходы с $\text{Ar}^+(^2P_{3/2})\text{Xe}$. При использовании α -излучателей происходит наработка гелия, исследована зависимость интенсивности излучения в полосе 329 нм от давления гелия в смеси Ar-Xe-He.

Введение

Молекулярные полосы, наблюдавшиеся в спектрах излучения парных смесей инертных газов [1, 2], были идентифицированы [3] как переходы между состояниями гетероядерных ионных молекул:



где молекулярные состояния $M^+ N$ асимптотически соответствуют состояниям $M^+ + N$, а MN^+ состояниям $M + N^+$; здесь M, N – атомы инертных газов, причем N – более тяжелый атом. Если в плазме низкого давления в электрическом разряде в парных смесях инертных газов наблюдается до 5 таких полос [3], то при возбуждении ионизирующим излучением смеси среднего или высокого давления отсутствуют переходы с уровней, соответствующих состояниям атомарных ионов $^2P_{3/2}$ [4, 5]. В связи с высокой селективностью возбуждения излучение гетероядерных ионных молекул инертных газов представляет интерес для прямого преобразования ядерной энергии в когерентное и некогерентное оптическое излучение [5-7]. В настоящей работе исследована возможность использования излучения ионных молекул в смеси Ar-Xe в радионуклидных источниках света.

Молекулярные полосы в спектре излучения смесей Ar-Xe при возбуждении электрическим разрядом (давление смесей до 10 Торр) исследованы в [3]. Наблюдали 5 различных полос, обозначенные А (с максимумом при $\lambda = 329$ нм), В ($\lambda = 346$ нм), С ($\lambda = 349$ нм), D ($\lambda = 508$ нм) и Е ($\lambda = 545$ нм). Эти полосы приписаны переходам ионной молекулы $(\text{ArXe})^+$. А и D излучаются с состояния (далее $\text{Ar}^+(1/2)\text{Xe}$), с пределом диссоциации $\text{Ar}^+(^2P_{1/2}) + \text{Xe}(^1S_0)$, В, С и Е с состояния (далее $\text{Ar}^+(3/2)\text{Xe}$), диссоциирующего на $\text{Ar}^+(^2P_{3/2}) + \text{Xe}(^1S_0)$. Эти полосы в условиях [3] сравнимы по интенсивности.

Техника эксперимента

Измерения спектров в диапазоне длин волн 230-800 нм были проведены на установке с возбуждением α -частицами. В камере из нержавеющей стали располагались 18 источников с ^{210}Po с суммарной активностью 10^{10} Бк. Размер области возбуждения $\varnothing 25 \times 70$ мм, максимальный пробег α -частиц с энергией 5 МэВ в газе плотностью 1 Амага составляет [8]: в Хе – 24, Аг – 37, Не – 183 мм. Свет выводился через окно из лейкосапфира, температура камеры контролировалась с помощью термопар. Перед установкой источников камера прогревалась и обезгаживалась при вакууме $\sim 10^{-5}$ Торр. Сами α -источники после установки откачивались без прогрева в течение 2-3 недель до получения хорошо воспроизводимых (до 3-7% интенсивности для разных газов) спектров люминесценции. Давление газов измерялось с помощью образцового мановакуумметра и вакуумметра ВДГ-1. Использовались аргон и гелий с содержанием примесей менее $8 \cdot 10^{-3}$ %, ксенон содержал менее 10^{-3} % примесей. Спектр излучения анализировался с помощью монохроматора SPM-2 с кварцевой призмой и ФЭУ-106, работающего в режиме счета фотонов. Сигнал от ФЭУ через истоковый

повторитель подавался на вход спектрометра типа 20 046. Сигнал с выхода спектрометра, пропорциональный числу фотонов в секунду, поступал на самописец.

Результаты эксперимента и их обсуждение

При возбуждении α -частицами в смеси Ar-Xe наблюдаются только переходы с уровня $Ar^+(1/2)Xe$ ($\lambda \sim 329$ нм и ~ 508 нм, рис. 1) и отсутствуют переходы с $Ar^+(3/2)Xe$. Одинаковая зависимость интенсивности полос от давления ксенона в смеси (рис. 2) подтверждает вывод [3] о том, что они излучаются с общего уровня. Интенсивность (в фотонах/с, с учетом спектральной чувствительности установки) полосы 508 нм приблизительно в 17 раз меньше интенсивности полосы 329 нм. Эффективность люминесценции (η), отношение мощности излучения в полосе 329 нм к вложенной в газ мощности, определялась из сравнения с интенсивностью второй положительной системы азота в смеси Ar (1,5 атм) + N₂. Эффективность люминесценции смеси Ar + N₂ определялась расчетным путем, соответствующие схема кинетических процессов и константы скоростей процессов приводятся в [9]. Измеренное таким способом значение η для смеси Ar + Xe (30 Торр) при общем давлении смеси 1,5 атм составляет $5 \pm 2\%$. При использовании α -излучателей происходит наработка гелия, исследована зависимость интенсивности излучения в полосе 329 нм от давления гелия в смеси Ar-Xe-He (рис. 3), для сравнения приводится аналогичная зависимость [7] для полосы 490 нм в смеси Kr-Xe-He.

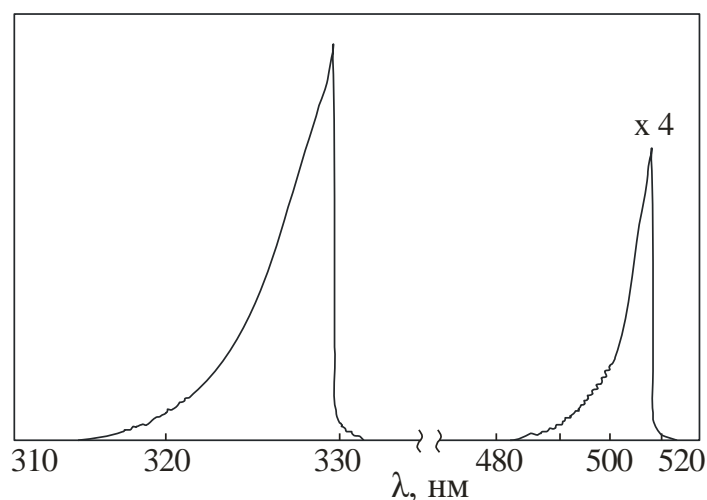


Рис.1 Спектр излучения смеси Ar(1,5 атм) + Xe(10 Торр). Интенсивность полосы 508 нм увеличена в 4 раза

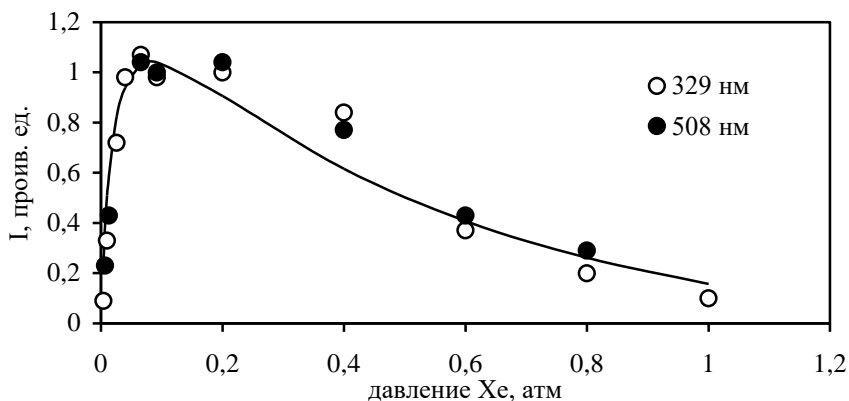


Рис. 2 Зависимость интенсивности от давления ксенона при давлении смеси Ar + Xe -1,5 атм. Кривая – расчет по формуле (2) при $k_2=7 \cdot 10^{-33}$ см⁶с⁻¹, $k_6=10^{-12}$ см³с⁻¹

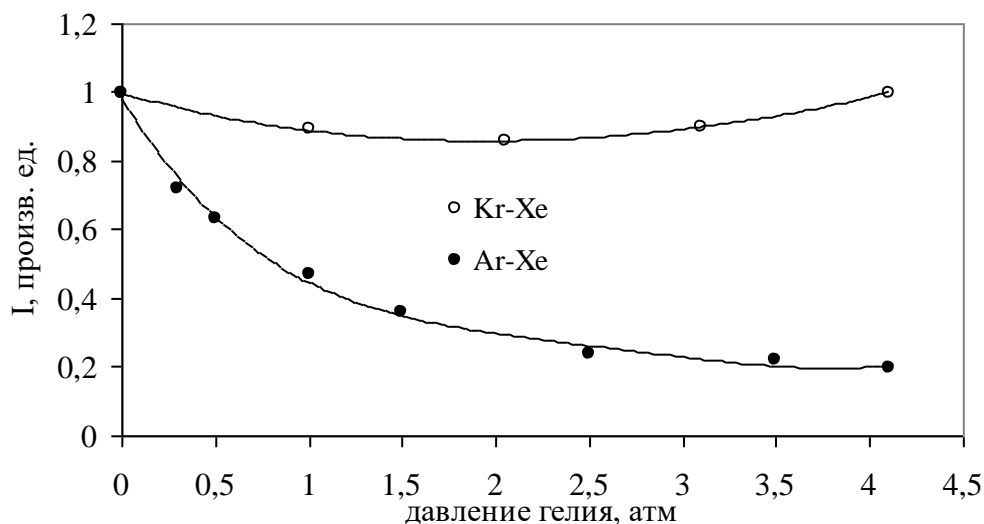


Рис. 3 Зависимость интенсивности излучения на $\lambda=329$ нм от давления гелия в смеси Ar (1,35 атм) + Xe (0,15 атм) + He и на 490 нм в смеси Kr (0,55 атм) + Xe (0,55 атм) + He.

Основные кинетические процессы образования и разрушения ионов $\text{Ar}^+(1/2)\text{Xe}$ в смеси Ar-Xe сведены в таблицу.

Таблица. Константы скоростей процессов в смеси Ar-Xe.

N	Процесс	Обозначение, единица	Константа скорости	Литература
1	$\text{Ar}^+(1/2) + \text{Xe} + \text{Ar} \rightarrow \text{продукты}$	$k_1, 10^{-31} \text{ см}^6\text{с}^{-1}$	5,2	4
	$\text{Ar}^+(1/2) + \text{Xe} + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^+(1/2)\text{Xe} + \text{Ar}$	ρk_1	$0,16 \leq \rho \leq 0,7$ $\rho \sim 1$	6 *
2	$\text{Ar}^+(1/2) + 2 \text{Ar} \rightarrow \text{продукты}$	$k_2, 10^{-33} \text{ см}^6\text{с}^{-1}$	0,72 7 ± 2	4 *
3	$\text{Ar}^+(1/2) + 2 \text{Xe} \rightarrow \text{продукты}$	$k_3, 10^{-32} \text{ см}^6\text{с}^{-1}$	3,4	4
4	$\text{Ar}^+(1/2)\text{Xe} \rightarrow \text{ArXe}^+(3/2) + h\nu$	$\tau, \text{ ns}$	58	6
5	$\text{Ar}^+(1/2)\text{Xe} + \text{Ar} \rightarrow \text{продукты}$	$k_5, 10^{-11} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$	3,2 <0,05	6 *
6	$\text{Ar}^+(1/2)\text{Xe} + \text{Xe} \rightarrow \text{продукты}$	$k_6, 10^{-12} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$	<10 ~1	6 *
7	$\text{Ar}^+ + \text{Xe} \rightarrow \text{Xe}^+ + \text{Ar}$	$k_7, 10^{-13} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$	9,8	6
8	$\text{Ar}^+(1/2)\text{Xe} + \text{He} \rightarrow \text{продукты}$	$k_8, 10^{-13} \text{ см}^3\text{с}^{-1}$	6 ± 2	*
9	$\text{Ar}^+(3/2) + 2 \text{Ar} \rightarrow \text{продукты}$	$k_9, 10^{-31} \text{ см}^6\text{с}^{-1}$	3	10, 4

* – данная работа.

При прохождении α -частиц в газовой смеси образуются ионы аргона, при этом на образование одного иона Ar^+ затрачивается 26,1 эВ энергии частицы [11]. Считая, что ионы

аргона образуются в соотношении их статистических весов, т.е. $Ar^+(3/2):Ar^+(1/2)=2:1$, находим квантовую эффективность излучения на переходе $Ar^+(1/2)Xe \rightarrow ArXe^+(3/2)$ $\eta_{quant}=3,77 \text{ eV}/3 \cdot 26,1 \text{ eV}=4,8\%$ (где $3,77 \text{ eV}$ – энергия фотона на этом переходе). Измеренная величина эффективности люминесценции близка к квантовой эффективности, что позволяет сделать следующие выводы:

1. В процессах (1) с вероятностью близкой к 100% образуются ионы $Ar^+(1/2)Xe$.

2. Константа скорости тушения $Ar^+(1/2)Xe$ аргоном, приведенная в [6] завышена, исходя из времени жизни этого состояния (58 нс) и давления аргона в смеси (до 1,5 атм) оценим константу тушения сверху – $k_5 < 5 \cdot 10^{-13} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$.

Константа скорости процесса (3) в 15 раз меньше k_1 , тогда можно пренебречь вкладом этого процесса в исчезновение ионов $Ar^+(1/2)$. Зависимость интенсивности на $\lambda=329 \text{ нм}$ от давления ксенона в смеси описывается выражением:

$$1/I \sim \left(1 + \frac{k_2[Ar]}{k_1[Xe]}\right) (1 + \tau k_6[Xe]) \left(1 + \frac{l_{Ar}}{l_{Xe}} \frac{[Xe]}{[Ar]}\right), \quad (2)$$

где l_{Ar} , l_{Xe} – пробег α -частиц в аргоне и ксеноне при нормальных условиях, соответственно. Выражение в первых скобках описывает конкуренцию процессов (1) и (2), второй множитель – тушение состояния $Ar^+(1/2)Xe$ ксеноном, третий – распределение энергии α -частицы в смеси между аргоном и ксеноном. Используя экспериментальную зависимость интенсивности от давления ксенона (см. рис. 2) и известные значения констант k_1 и τ , находим константы k_2 , k_6 .

Отсутствие излучения на переходах с уровня $Ar^+(3/2)Xe$ объясняется [4] резким отличием значений скорости процесса (2), конкурирующего с процессами образования $Ar^+(1/2)Xe$, и аналогичного процесса (9) для ионов $Ar^+(3/2)$. Константа скорости конверсии ионов $Ar^+(3/2)$ в молекулярные примерно в 50 раз выше, чем для ионов $Ar^+(1/2)$ (см. табл.).

При высокой степени ионизации смеси Ar-Xe излучение с состояния $Ar^+(3/2)Xe$ может появляться благодаря взаимодействию $Ar^+(1/2)Xe$ с электронами [6, 12]:



Плотность электронов в треке α -частицы в начальный момент составляет $n_e \sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$, однако, в результате распада трека n_e снижается быстрее, чем успеют образоваться ионы $Ar^+(3/2)Xe$. Излучение на переходах В, С, Е во всех исследованных нами смесях Ar-Xe, Ar-Xe-He отсутствует (или, по крайней мере, на 3 порядка уступает полосе 329 нм по интенсивности).

На рис. 4 приводится зависимость параметра E/I (Е-энерговклад в аргон, I-интенсивность полосы 329 нм) от давления гелия. Характер зависимости интенсивности на 329 нм от давления гелия в смеси Ar-Xe-He связан, по-видимому, с существенным отличием значений констант скорости перезарядки ионов He^+ (а также He_2^+) на Ar и Xe [10]. Зависимость E/I при малых давлениях гелия определяется тушением состояния $Ar^+(1/2)Xe$ гелием, так как ионы He^+ перезаряжаются на Xe значительно быстрее, чем на атомах Ar. Тогда зависимость E/I от давления гелия описывается следующей формулой:

$$E/I \sim 1 + \tau' k_8[He], \quad \text{где: } \frac{1}{\tau'} = \frac{1}{\tau} + k_6[Xe] \quad (4)$$

При высоких давлениях гелия атомарные ионы гелия конвертируются в молекулярные. В этом случае перезарядка He_2^+ на Ar (в том числе с образованием $Ar^+(1/2)$) преобладает над перезарядкой на Xe и интенсивность на $\lambda=329 \text{ нм}$ выше, чем определяемая соотношением (4). Как видно из рисунка 4, зависимость E/I при давлениях гелия до 2,5 атм хорошо

описывается формулой (4), что позволяет определить k_8 - константу скорости тушения $Ar^+(1/2)Xe$ гелием.

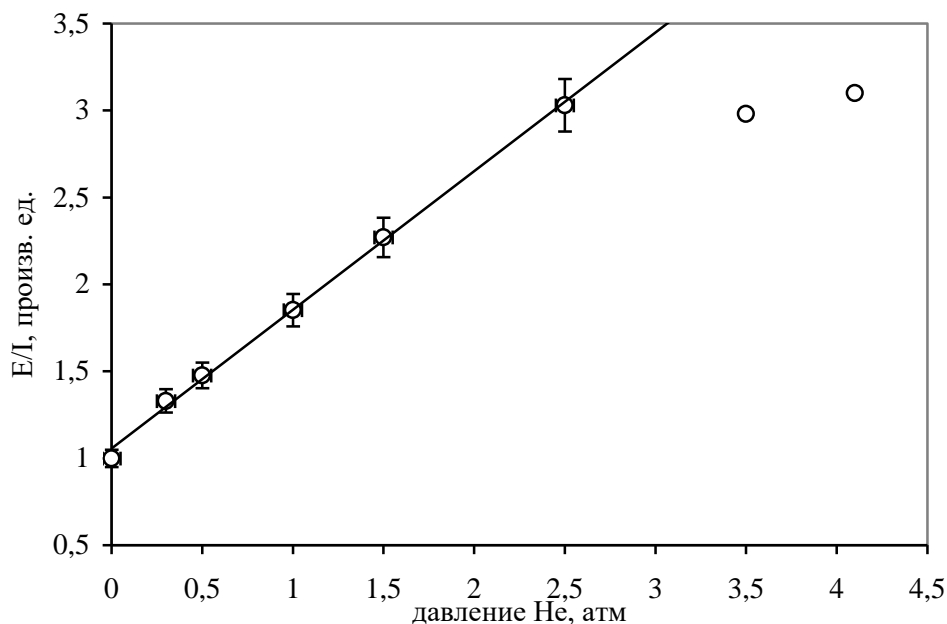
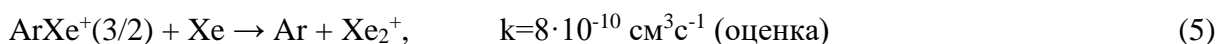


Рис. 4 Зависимость приведенной обратной интенсивности в смеси Ar (1,35 атм) + Xe (0,15 атм) + He на $\lambda=329$ нм от давления гелия.

Высокая селективность возбуждения полосы 329 нм в сочетании со слабым тушением верхнего уровня указывают на возможность создания лазера на этом переходе. Нижний уровень эффективно рассеивается в процессе:



Оценим порог генерации без учета нерезонансных потерь. Ненасыщенный коэффициент усиления определяется из соотношений:

$$\alpha = \sigma n \approx \sigma \frac{W}{E_u} \tau_u = \frac{\lambda^4}{4\pi^2 c} \frac{A \tau_u}{\Delta \lambda} \frac{W}{E_u}, \quad (6)$$

где σ – сечение стимулированного перехода, W – мощность накачки, $E_u=3 \cdot 26,1$ эВ – энергия затрачиваемая на образование одного иона $Ar^+(1/2)$, τ_u – время жизни верхнего уровня с учетом тушения атомами ксенона, $\Delta \lambda=2,5$ нм – полуширина полосы 329 нм, A – вероятность перехода. Тогда пороговая мощность накачки для смеси Ar(760 Торр) + Xe(50 Торр) составляет:

$$W_{th} = \frac{4\pi^2 c \Delta \lambda}{\lambda^4} \frac{\alpha_0 E_u}{A \tau_u} \approx 3 \text{ kW} \cdot \text{cm}^{-3}, \quad (7)$$

где α_0 – пороговый коэффициент усиления, здесь принято значение $\alpha_0=10^{-3} \text{ см}^{-1}$.

Несмотря на относительно невысокий рассчитанный порог генерации, при накачке смесей Ar-Xe электронным пучком генерация на этом переходе не была достигнута [6, 13]. Отсутствие генерации, по-видимому, объясняется сильным поглощением ионами Xe_2^+ , а также ухудшением селективности возбуждения $Ar^+(1/2)Xe$ при мощной накачке. Тушение верхнего уровня атомами аргона [6] на наш взгляд несущественно.

Заклучение

Люминесценция в полосе 329 нм в смеси Ar-Xe представляет большой интерес с точки зрения создания радионуклидных источников ультрафиолетового излучения:

а) имеет высокий коэффициент преобразования ядерной энергии в световую,
б) в смеси не происходит наработки стабильных химических соединений в результате радиационно-химических реакций,

в) относительно слабо тушится гелием, который нарабатывается в процессе α -распада.

Отрицательные результаты экспериментов по достижению генерации на этом переходе при накачке электронным пучком связаны, по-видимому, с сильным поглощением на $\lambda=329$ нм, а также с уменьшением селективности возбуждения при мощной накачке.

Спектры излучения измерены в Институте ядерной физики Национального ядерного центра Республики Казахстан. Автор благодарен А.М. Назарову за помощь при измерениях.

Литература

1. Friedl W., Z. Naturforsch., 1959, N 9, v. 14A, s. 848-848a.
2. Kugler E. Ann. der Phys., Leipzig, 1964, N 3-4, v. 14, s. 137-146.
3. Tanaka Y., Yoshino K., Freeman D. E., J. Chem. Phys., 1975, N 11, v. 62, p. 4484-4496.
4. Millet P., Barrie A. M., Birot A. et al. J. Phys. Ser. B., 1981, v. 14, p. 459-472.
5. Батырбеков Г. А., Батырбеков Э. Г., Тлеужанов А. Б., Хасенов М. У. Опт. и спектр., 1987, т.62, с. 212-214.
6. Laigle C., Collier F., J. Phys. Ser. B., 1983, v. 16, p. 687-697.
7. Хасенов М.У. Журнал прикл. спектроскопии, 2005, т. 72, №3, с. 301-304,.
8. Немец О. Ф., Гофман Ю. В. Справочник по ядерной физике. Киев: Наукова думка, 1975, 415 с.
9. Батырбеков Г. А., Батырбеков Э. Г., Тлеужанов А. Б., Хасенов М. У. Журнал прикл. спектроскопии, 1988, № 4, т. 47, с. 652-656.
10. Вирин Л. И. и др. Ионно-молекулярные реакции в газах. М.: Наука, 1979, 548 с.
11. Дымшиц Ю. И., Неверов В. Г., Хорошев В. Т. Химия высоких энергий, 1982, т.16, № 3, с. 201 – 208.
12. Иванов В.А. УФН, 1992, т. 162, № 1, с. 35-70.
13. Хасенов М.У. Тезисы докладов Международной конференции «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой», Обнинск, 1992, с. 169-170.

ArXe⁺ ГЕТЕРОЯДРОЛЫҚ ИОНДЫҚ МОЛЕКУЛАСЫНЫҢ ҚАТАҢ ИОНИЗАТОРМЕН ҚОЗУЫ КИНЕТИКАСЫ

М.О. Хасенов

Радионуклидті жарық көздерінде, Ar-Xe қоспасындағы $\lambda \sim 329$ нм сәулеленуді қолдану мүмкінділігі зерттелді. α -бөлшектерімен қоздыру кезінде осы қоспада Ar⁺(²P_{1/2})Xe денгейінен ($\lambda \sim 329$ нм және $\lambda \sim 508$ нм) өтулері байқалады және Ar⁺(²P_{3/2})Xe денгейінде өтулер болмайды. α -сәулеленуді қолдануда гелий жиналады, Ar-Xe-He қоспасында 329 нм жолағындағы сәулелену қарқындылығының гелий қысымына тәуелділігі зерттелді.

KINETIC OF EXCITATION OF HETERONUCLEAR IONIC MOLECULES (ArXe)⁺ BY HARD IONISER

M.U. Khasenov

The opportunity of use of the emission with $\lambda \sim 329$ nm in Ar-Xe mixtures in radioisotope light sources is investigated. At excitation by α -particles in this mixture the transitions from Ar⁺(²P_{1/2})Xe state ($\lambda \sim 329$ nm and ~ 508 nm) are observed only and there are no transitions from Ar⁺(²P_{3/2})Xe. At use of α -sources helium collects, dependence of intensity of emission in a band of 329 nm from pressure of helium in mixture Ar-Xe-He is also investigated.