

ИЗЛУЧЕНИЕ СМЕСЕЙ ИНЕРТНЫХ ГАЗОВ С ГАЛОГЕНИДАМИ ПРИ ИОНИЗИРУЮЩЕЙ НАКАЧКЕ

М.У. Хасенов

ТОО «Фотоника», г. Алматы

Изучены спектры люминесценции смесей инертных газов с NF_3 и CCl_4 при возбуждении α -частицами ^{210}Po . Спектры состоят из нескольких полос, наиболее интенсивная полоса идентифицируется с переходом В-Х. Для смеси $\text{Ar}(1,5 \text{ атм})+\text{Xe}(40 \text{ Торр})+\text{CCl}_4(0,7 \text{ Торр})$ определен коэффициент преобразования ядерной энергии в излучение в полосе 308 нм: $\eta \approx 11 \%$.

Эксимерные лазеры на галогенидах инертных газов изучаются уже давно [1]. На сегодняшний день они являются самыми мощными лазерами, излучающими в УФ области спектра. Оптимальный режим работы эксимерных лазеров соответствует мощностям накачки порядка нескольких мегаватт на см^3 и давлениям в несколько атмосфер. Такие мощности накачки достигаются с помощью электронных пучков или объемного разряда. Представляет интерес создание эксимерного лазера с ядерной накачкой, когда энергия продуктов ядерных реакций непосредственно вкладывается в активную среду лазера, но мощность накачки не превышает 10 кВт/см^3 [2, 3].

В данной работе изучены спектры излучения смесей инертных газов с NF_3 и CCl_4 при возбуждении α -частицами ^{210}Po . Установка для измерения спектров в диапазоне длин волн 210-800 нм описана в [4]. 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 [5]: в $\text{Ar} - 37$, $\text{He} - 183$, $\text{Xe} - 24$, $\text{N}_2 - 34$ мм. Свет выводился через окно из лейкосапфира, температура камеры контролировалась с помощью термодатчика. 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 ^3He , ксенон и криптон с содержанием примесей менее $10^{-3} \%$, аргон и гелий содержали менее $8 \cdot 10^{-3} \%$ примесей, в NF_3 было $\sim 6 \%$ азота. 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.

Спектры люминесценции приводятся без поправки на спектральную чувствительность установки. Чувствительность установки на $\lambda=308$ нм была в 1,6 раза, а на $\lambda=248$ нм в 3,5 раза ниже, чем при 351 нм [4]. Спектры излучения галогенидов инертных газов (рис. 1-3) состоят из нескольких полос: наиболее интенсивная полоса идентифицируется с переходом В-Х. В красной части спектра расположена широкая область континуума, соответствующая переходам $\text{C}(^2\text{P}_{3/2})-\text{A}(^2\text{P}_{3/2})$, с максимумами при 475 (XeF), 344 (XeCl), 290 (KrF), 236 нм (KrCl). При малых межъядерных расстояниях происходит смешение уровней D и В, при этом снимается запрет на излучательный переход с уровня D в основное состояние. Максимумы этих переходов лежат в области 260 (XeF), 235,5 (XeCl), 219 нм (KrF), максимум D-X перехода KrCl находится за пределами чувствительности ФЭУ. Также в смеси Ar-Kr-NF_3 наблюдалась полоса Kr_2F в области 340÷500 нм, в Ar-Xe-CCl_4 полоса Xe_2Cl (420÷600 нм), в Ar-Kr-CCl_4 полоса примеси Cl_2 (~ 257 нм).

I , отн. ед.

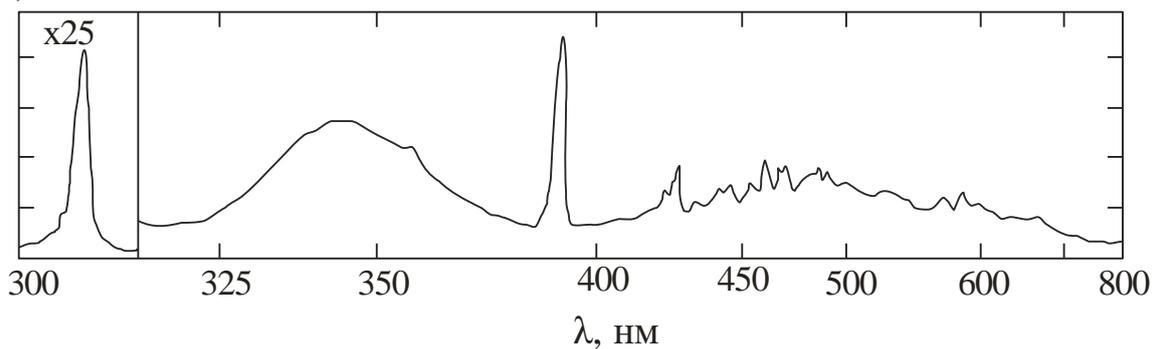


Рис. 1 Спектр излучения смеси ^3He (2 атм) + Xe (250 Торр) + CCl_4 (5 Торр).
Интенсивность полосы 308 нм уменьшена в 25 раз.

I , отн. ед.

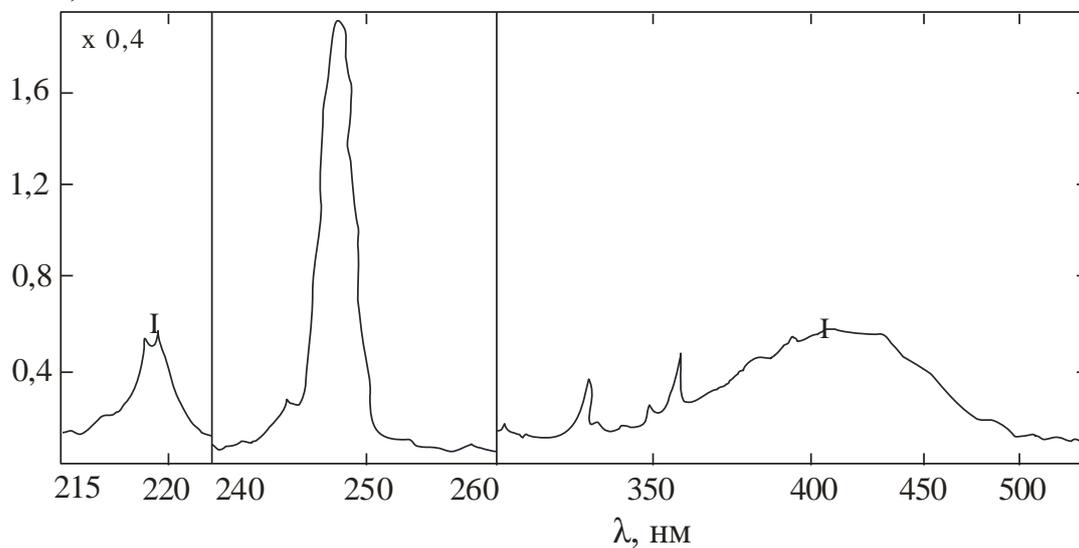


Рис.2 Спектр излучения смеси Ar (2 атм) + Kr (100 Торр) + NF_3 (1,5 Торр).

I , отн. ед.

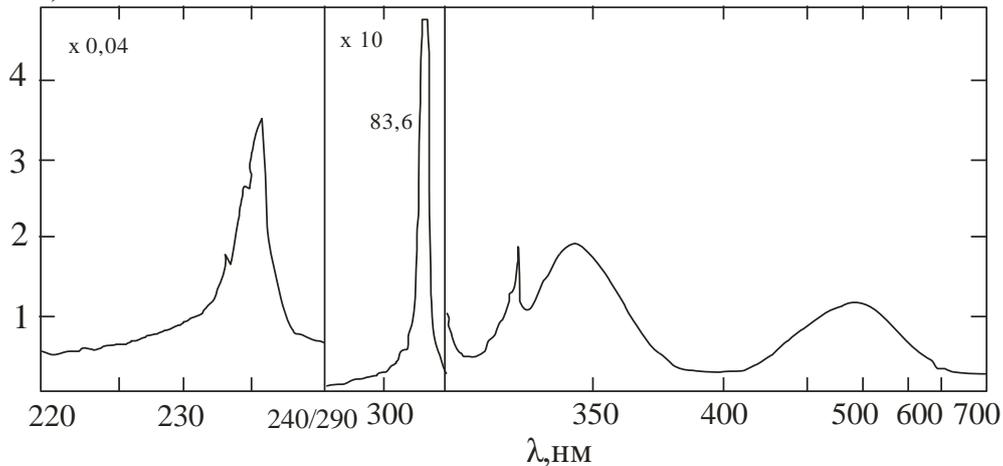


Рис. 3 Спектр излучения смеси Ar (1,5 атм) + Xe (40 Торр) + CCl_4 (0,7 Торр).

Для смеси Ar + Xe + CCl₄ определен коэффициент преобразования ядерной энергии в излучение в полосе 308 нм (η). Значение η определялось из сравнения измеренных интенсивностей излучения в исследуемой смеси с интенсивностью полосы азота C³Π_u-B³Π_g в смеси Ar + N₂. Давление газа выбиралось таким образом, чтобы максимальный пробег α-частиц с энергией 5 МэВ был одинаковым для всех смесей, соответственно и мощность накачки была одинаковой.

Спектры излучения записывались при максимальной ширине щели монохроматора, форма всех исследуемых линий близка к треугольной. Тогда максимальная величина сигнала с ФЭУ пропорциональна интегральной спектральной интенсивности линий [6].

Эффективность люминесценции смеси Ar + N₂ определялась из расчета. Использовалась схема кинетических процессов, аналогичная приведенной в [7]. Время жизни метастабильных уровней аргона составляет ~50 с [8], а излучение при переходе из ³P₁ и ¹P₁ в основное состояние при давлении 1,5 атм полностью пленено. Поэтому будем рассматривать все 4 уровня ³P, ¹P как один уровень Ar*. Учитываемые при расчетах, процессы и соответствующие константы скорости приводятся в таблице.

Таблица. Константы скоростей процессов в смеси Ar – N₂.

| № | Процесс | Константа скорости, (см ³ с ⁻¹ , см ⁶ с ⁻¹) | Литература |
|----|---|--|------------|
| 1 | Ar + α → Ar* + α | E ₁ =94 эВ | 9 |
| 2 | Ar + α → Ar ⁺ + α + e | E ₂ =26,1 эВ | 9 |
| 3 | Ar ⁺ + 2Ar → Ar ₂ ⁺ + Ar | k ₃ =2,1·10 ⁻³¹ | 7 |
| 4 | Ar ⁺ + N ₂ → N ₂ ⁺ + Ar | k ₄ =2,2·10 ⁻¹¹ | 10 |
| 5 | Ar ₂ ⁺ + e → Ar* + Ar | k ₅ =6,9·10 ⁻⁷ | 11 |
| 6 | Ar* + 2Ar → Ar ₂ * + Ar | k ₆ =1,1·10 ⁻³² | 12 |
| 7 | Ar ₂ * → hv + 2Ar | k ₇ =2·10 ⁸ с ⁻¹ | 7 |
| 8 | Ar* + N ₂ → N ₂ (B) + Ar | k ₈ =8·10 ⁻¹² | 7 |
| 9 | Ar* + N ₂ → N ₂ (C) + Ar | k ₉ =1,5·10 ⁻¹¹ | 7 |
| 10 | Ar* + N ₂ → N ₂ (E) + Ar | k ₁₀ =5·10 ⁻¹² | 7 |
| 11 | Ar ₂ * + N ₂ → N ₂ (B) + 2Ar | k ₁₁ =1·10 ⁻¹¹ | 7 |
| 12 | N ₂ (E) + Ar → N ₂ (C) + Ar | k ₁₂ =3·10 ⁻¹² | 7 |
| 13 | N ₂ (C) → hv + N ₂ (B) | k ₁₃ =2,44·10 ⁷ с ⁻¹ | 13 |
| 14 | N ₂ (C) + N ₂ → N ₂ (B) + N ₂ | k ₁₄ =1,5·10 ⁻¹¹ | 7 |
| 15 | N ₂ (C) + Ar → N ₂ (B) + Ar | k ₁₅ =8·10 ⁻¹³ | 7 |
| 16 | N ₂ (B) → hv + N ₂ (A) | k ₁₆ =1,5·10 ⁵ с ⁻¹ | 13 |
| 17 | N ₂ (B) + N ₂ → N ₂ (A) + N ₂ | k ₁₇ =2·10 ⁻¹² | 7 |
| 18 | N ₂ (B) + Ar → N ₂ (A) + Ar | k ₁₈ =1,4·10 ⁻¹⁴ | 7 |
| 19 | N ₂ (A) + N ₂ (A) → N ₂ (E) + N ₂ | k ₁₉ =1·10 ⁻¹¹ | 7 |
| 20 | N ₂ (A) + N ₂ (A) → N ₂ (C) + N ₂ | k ₂₀ =1·10 ⁻¹¹ | 7 |
| 21 | N ₂ (A) + N ₂ (A) → N ₂ (B) + N ₂ | k ₂₁ =8·10 ⁻¹¹ | 7 |
| 22 | N ₂ (A)+N ₂ →N ₂ +N ₂ , | k ₂₂ <2,6·10 ⁻¹⁸ | 14 |
| 23 | N ₂ (A)+Ar→N ₂ +Ar, | k ₂₃ <2·10 ⁻¹⁹ | 14 |

Рассмотрим переход N₂(C³Π_{uv'}=0) → N₂(B³Π_{gv'}=i), число, излучаемых на этом переходе фотонов определяется выражением:

$$I = A_{0i} \left[N_2 \left(C^3 \Pi_{u,v'=0} \right) \right]. \quad (1)$$

Коэффициенты Эйнштейна приводятся в [13], плотность молекул азота в состоянии $S^3\Pi_{u=0}$ рассчитывалась с учетом процессов (1-23). Прямое возбуждение азота несущественно, как показали наши измерения, интенсивность второй положительной системы азота в N_2 (100 Тор) в ~ 140 раз меньше, чем в смеси Ar (1140 Тор) + N_2 (100 Тор). Интенсивность переходов с $v'=1$ в смеси $Ar + N_2$ в ≈ 15 раз меньше интенсивности переходов с $v'=0$.

Сравнивая измеренные интенсивности перехода молекулы азота (I_c) на длине волны λ_c и исследуемого перехода (I_r) на длине волны λ_r можно определить значение коэффициента преобразования ядерной энергии в световую. Простое выражение получается в данном случае, когда можно не учитывать процессы (4, 22, 23):

$$\eta = \frac{A_{oi}[N_2] \left[k_8 + k_9 + \frac{(k_{19} + k_{20})(k_8 + k_9)}{k_{19} + k_{20} + k_{21}} \right]}{(k_{13} + k_{14}[N_2] + k_{15}[Ar]) \{ (k_8 + k_9 + k_{10})[N_2] + k_6[Ar]^2 \}} \cdot \frac{f(\lambda_c)}{f(\lambda_r)} \cdot \frac{I_r}{I_c} \cdot \frac{E_{21}}{E^*}, \quad (2)$$

где E_{21} энергия перехода с длины волн λ_r , $E^* \approx 20,6$ эВ – энергия, затрачиваемая на образование одного атома Ar^* в процессах (1÷5); $f(\lambda)$ – относительная спектральная чувствительность установки [4].

Измерения величины η проводились при температуре камеры (295 ± 2) К, давление азота в смеси $Ar + N_2$ менялось от 10 до 100 Тор, полученные значения η усреднялись по результатам измерений. Для смеси Ar (1,5 атм) + He (40 Торр) + CCl_4 (0,7 Торр) получено значение коэффициента преобразования энергии α -частиц в излучение в полосе 308 нм $\eta = 11 \pm 3\%$. Некоторое отличие от квантового КПД (15%), по-видимому, обусловлено тушением В-состояния $HeCl$ молекулами CCl_4 [12].

Интенсивность полос KrF , $KrCl$ мала по сравнению с интенсивностью В-Х переходов $HeCl$ и HeF (см. рис. 1-3), поэтому более подробно исследовали смеси с ксеноном. Оценка коэффициента преобразования ядерной энергии в излучение в полосах 351 и 353 нм в смеси 3He (2 атм) + He (30 Торр) + NF_3 (20 торр) с учетом рассчитанного значения энергозклада α -частиц дает величину $\eta \sim 4\%$, что в 3 раза меньше, чем для полосы 308 нм $HeCl$.

Таким образом, В-Х переход молекулы $HeCl$ представляет наибольший интерес для создания эксимерного лазера с прямой ядерной накачкой. Высокая радиационная стойкость рабочей смеси $HeCl$ -лазера в поле излучения ядерного реактора была показана в нашей работе [15]. Спектр люминесценции смеси $^3He + He + CCl_4$ при возбуждении продуктами ядерной реакции $^3He(n,p)T + 0,76$ МэВ в активной зоне стационарного ядерного реактора аналогичен спектру люминесценции при возбуждении α -частицами (см. рис.1). В плазме газовой смеси CCl_4 разлагается в процессе прилипания электронов $CCl_4 + e \rightarrow CCl_3 + Cl^-$. Для смеси $^3He:He:CCl_4 = 1500:50:1$ атмосферного давления при потоке тепловых нейтронов 10^{13} н/см²с скорость указанного процесса составляет $\approx 2 \cdot 10^{16}$ см⁻³с⁻¹. Тем не менее, интенсивность излучения в полосе 308 нм оставалась постоянной при интегральных потоках нейтронов до 10^{17} н/см²с. Это свидетельствует о том, что наряду с процессами разложения CCl_4 в плазме газовой смеси $^3He + He + CCl_4$ идут достаточно быстрые обратные процессы.

Спектры люминесценции измерены в Институте ядерной физики Национального ядерного центра РК, автор благодарен А.М. Назарову за помощь при измерениях.

Литература

1. Эксимерные лазеры. Под ред. Роудза Ч. М.: Мир, 1981, 245 с.
2. Hays G.N., McArthur D.A., Neal D.R., Rice J.K. Appl. Phys. Lett. 1986, V. 49, N 7, p. 363-366.
3. Мавлютов А.А., Миськевич А.И. Письма в ЖТФ, 1996, т.22, в.8, с. 48-52.

4. Батырбеков Г.А., Сорока А.М., Хасенов М.У. и др. Препринт ИЯФ АН КазССР, № 3-87, Алма-Ата, 1987.
5. Немец О. Ф., Гофман Ю. В. Справочник по ядерной физике. Киев: Наукова думка, 1975, 415 с.
6. Малышев В. И. Введение в экспериментальную спектроскопию. М.: Наука, 1979, 480 с.
7. Басов Н. Г., Данилычев В. А. УФН, 1986, т.148, в.1, с. 55 – 100.
8. Радциг А.А., Смирнов Б. М. Параметры атомов и атомных ионов. М., Энергоатомиздат, 1986, 344 с.
9. Дымшиц Ю. И., Неверов В. Г., Хорошев В. Т. – Химия высоких энергий, 1982, т.16, № 3, с. 201 – 208.
10. Вирин Л. И. и др. Ионно-молекулярные реакции в газах. М., Наука, 1979, 548 с.
11. Елецкий А.В., Смирнов Б.М. УФН, 1982, т. 136, № 1, с. 25-29.
12. Смирнов Б. М. Возбужденные атомы. М.: Энергоиздат, 1982, 232 с.
13. Кузнецова Л. И. и др. Вероятности оптических переходов двухатомных молекул. М.: Наука, 1980, 320 с.
14. Levron D., Phelps A. V. J. of Chem. phys., 1978, v. 69, p. 2260.
15. Батырбеков Г.А., Керимов О.М., Хасенов М.У. и др. Изв. АН КазССР, 1986, № 6, с.23-26.

ИОНДАУШЫ ҚОЗДЫРУ КЕЗІНДЕГІ ИНЕРТТІ ГАЗДАРДЫҢ ГАЛОГЕНИДТЕРМЕН ҚОСПАСЫНЫҢ СӘУЛЕЛЕНУІ

М.О. Хасенов

^{210}Po α -бөлшектерімен қоздыру кезіндегі инертті газдардың NF_3 және CCl_4 -мен қоспасының сәулелену спектрлері зерттелді. Спектрлер бірнеше жолақтардан тұрады, ең белсенді жолағы В-Х өтуімен сәкес келеді. $\text{Ar}(1,5 \text{ атм}) + \text{Xe}(40 \text{ Торр}) + \text{CCl}_4(0,7 \text{ Торр})$ қоспасында ядролық энергиясы 308 нм жолағындағы сәулеге өзгеру коэффициенті бағаланды: $\eta \approx 11\%$.

EMISSION OF THE MIXTURES OF INERT GASES WITH HALOGENIDES AT IONISED PUMPING

M.U. Khasenov

Spectra of a luminescence of mixes of inert gases with NF_3 and CCl_4 are investigated at excitation by α -particles of ^{210}Po . Spectra will consist of several bands, the most intensive band is identified with В - X transition. For $\text{Ar}(1.5 \text{ atm}) + \text{Xe}(40 \text{ Torr}) + \text{CCl}_4(0.7 \text{ Torr})$ mixture the factor of transformation of a nuclear energy into emission in a band of 308 nm is appreciated: $\eta \sim 11\%$.