

## Излучение галогенидов инертных газов при возбуждении альфа-частицами

М.У. Хасенов, М.Т. Накискожаев, А.С. Сырлыбаев, И.И. Смирнова\*

ТОО «Фотоника»

050062, г. Алматы, ул. Утеген батыра, 112, Республика Казахстан

Поступила в редакцию 30.07.2009 г.

Изучены спектры люминесценции смесей инертных газов с  $\text{NF}_3$  и  $\text{CCl}_4$  при возбуждении  $\alpha$ -частицами  $^{210}\text{Po}$ . Спектры состоят из нескольких полос, наиболее интенсивная полоса идентифицируется с переходом В–Х. Для смеси  $\text{Ar}$  (1,5 атм) +  $\text{Xe}$  (40 торр) +  $\text{CCl}_4$  (0,7 торр) определен коэффициент преобразования ядерной энергии в излучение в полосе 308 нм:  $\eta \approx 11\%$ .

**Ключевые слова:** ядерная накачка, галогениды инертных газов, спектры, эффективность люминесценции, радиационная стойкость; nuclear pumping, halides of inert gases, spectra, luminescence efficiency, radiation resistance.

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  $\text{см}^3$  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  $10 \text{ кВт}/\text{см}^3$  [2, 3].

В настоящей статье рассмотрены спектры излучения смесей инертных газов с  $\text{NF}_3$  и  $\text{CCl}_4$  при возбуждении  $\alpha$ -частицами  $^{210}\text{Po}$ . Установка для измерения спектров в диапазоне длин волн 210–800 нм описана в [4]. В камере из нержавеющей стали располагались 18 источников с  $^{210}\text{Po}$  с суммарной активностью  $10^{10}$  Бк. Размер области возбуждения  $\varnothing 25 \times 70$  мм, максимальный пробег  $\alpha$ -частиц с энергией 5 МэВ в газе при нормальных условиях составляет [5]: в  $\text{Ar}$  – 37,  $\text{He}$  – 183,  $\text{Xe}$  – 24,  $\text{N}_2$  – 34 мм. Перед установкой источников камера прогревалась и обезгаживалась при вакууме  $\sim 10^{-5}$  торр. Сами  $\alpha$ -источники после установки откачивались без прогрева в течение 2–3 нед 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  $^3\text{He}$ ,  $\text{Xe}$  и  $\text{Kr}$  с содержанием примесей менее  $10^{-3}\%$ , аргон и гелий содержали менее  $8 \cdot 10^{-3}\%$

примесей, в  $\text{NF}_3$  было  $\sim 6\%$  азота. Спектр излучения анализировался с помощью монохроматора SPM-2 с кварцевой призмой и ФЭУ-106, работающего в режиме счета фотонов. 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 смесей инертных газов с галогенидами (рис. 1–3) состоят из нескольких полос: наиболее интенсивная полоса идентифицируется с переходом В–Х.

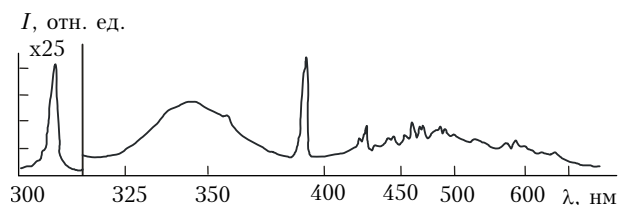


Рис. 1. Спектр излучения смеси  $^3\text{He}$  (2 атм) +  $\text{Xe}$  (250 торр) +  $\text{CCl}_4$  (5 торр). Интенсивность полосы 308 нм уменьшена в 25 раз

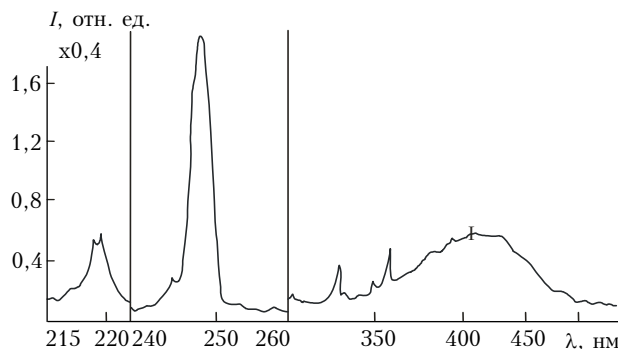


Рис. 2. Спектр излучения смеси  $\text{Ar}$  (2 атм) +  $\text{Kr}$  (100 торр) +  $\text{NF}_3$  (1,5 торр)

\* Мендыхан Уразович Хасенов (nauka\_1@nursat.kz); Манен Тлеубердиевич Накискожаев; Азамат Серикбайулы Сырлыбаев; Инна Игоревна Смирнова.

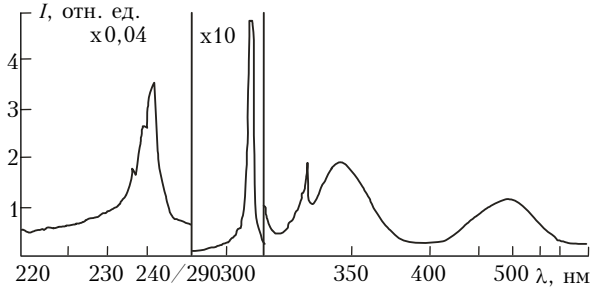


Рис. 3. Спектр излучения смеси Ar (1,5 атм) + Xe (40 торр) + CCl<sub>4</sub> (0,7 торр). Интенсивность полосы 308 нм в максимуме – 84 единицы

В красной части спектра расположена широкая область континуума, соответствующая переходам  $C(2P_{3/2})-A(2P_{3/2})$ , с максимумами при 475 (XeF), 344 (XeCl), 290 (KrF), 236 нм (KrCl). При малых межъядерных расстояниях происходит смещение уровней D и B, 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<sub>3</sub> наблюдалась полоса Kr<sub>2</sub>F в области 340–500 нм, в Ar–Xe–CCl<sub>4</sub> полоса Xe<sub>2</sub>Cl (420–600 нм), в Ar–Kr–CCl<sub>4</sub> полоса примеси Cl<sub>2</sub> (~257 нм).

Для смеси Ar–Xe–CCl<sub>4</sub> определен коэффициент преобразования ядерной энергии в излучение в полосе 308 нм ( $\eta$ ). Значение  $\eta$  определялось из сравнения измеренных интенсивностей излучения в исследуемой смеси с интенсивностью полосы азота  $C^3\Pi_u-V^3\Pi_g$  в смеси Ar–N<sub>2</sub>. Давление газа

выбиралось таким образом, чтобы максимальный пробег  $\alpha$ -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. В этом случае максимальная величина сигнала с ФЭУ пропорциональна интегральной спектральной интенсивности линий [6].

Эффективность люминесценции смеси Ar + N<sub>2</sub> определялась путем расчета. Использовалась схема кинетических процессов, аналогичная приведенной в [7]. Время жизни метастабильных уровней аргона составляет ~50 с [8], а излучение при переходе из  $^3P_1$  и  $^1P_1$  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 приведены в таблице.

Рассмотрим переход  $N_2(C^3\Pi_{u,v'=0}) \rightarrow N_2(B^3\Pi_{g,v'=i})$ , число излучаемых на этом переходе фотонов определяется выражением

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

Коэффициенты Эйнштейна  $A_{0,i}$  приводятся в [13], плотность молекул азота в состоянии  $C^3\Pi_{u,v=0}$  рассчитывалась с учетом процессов 1–21. Прямое возбуждение азота несущественно. Как показали наши измерения, интенсивность второй положительной системы азота в N<sub>2</sub> (100 торр) в ~140 раз меньше, чем в смеси Ar (1140 торр) + N<sub>2</sub> (100 торр). Интенсивность C–B-переходов с  $v' = 1$  в смеси Ar + N<sub>2</sub> примерно в 15 раз меньше интенсивности переходов с  $v' = 0$ .

#### Константы скоростей процессов в смеси Ar–N<sub>2</sub>

№ процесса	Процесс	Константа процесса	Ссылка
1	Ar + $\alpha \rightarrow Ar^* + \alpha$	$E_1 = 94$ эВ	[9]
2	Ar + $\alpha \rightarrow Ar^+ + \alpha + e$	$E_2 = 26,1$ эВ	[9]
3	Ar <sup>+</sup> + 2Ar $\rightarrow$ Ar <sub>2</sub> <sup>+</sup> + Ar	$k_3 = 2,1 \cdot 10^{-31} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
4	Ar <sup>+</sup> + N <sub>2</sub> $\rightarrow$ N <sub>2</sub> <sup>+</sup> + Ar	$k_4 = 2,2 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[10]
5	Ar <sub>2</sub> <sup>+</sup> + e $\rightarrow$ Ar* + Ar	$k_5 = 2,3 \cdot 10^{-7}$ при $T_e = 2$ 100 К	[11]
6	Ar* + 2Ar $\rightarrow$ Ar <sub>2</sub> * + Ar	$k_6 = 1,1 \cdot 10^{-32} \text{ см}^6 \cdot \text{с}^{-1}$	[12]
7	Ar <sub>2</sub> * $\rightarrow$ $h\nu$ + 2Ar	$k_7 = 2 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$	[7]
8	Ar* + N <sub>2</sub> $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (B) + Ar	$k_8 = 8 \cdot 10^{-12} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
9	Ar* + N <sub>2</sub> $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (C) + Ar	$k_9 = 1,5 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
10	Ar* + N <sub>2</sub> $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (E) + Ar	$k_{10} = 5 \cdot 10^{-12} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
11	Ar <sub>2</sub> * + N <sub>2</sub> $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (B) + 2Ar	$k_{11} = 1 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
12	N <sub>2</sub> (E) + Ar $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (C) + Ar	$k_{12} = 3 \cdot 10^{-12} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
13	N <sub>2</sub> (C) $\rightarrow$ $h\nu$ + N <sub>2</sub> (B)	$k_{13} = 2,44 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$	[13]
14	N <sub>2</sub> (C) + N <sub>2</sub> $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (B) + N <sub>2</sub>	$k_{14} = 1,5 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
15	N <sub>2</sub> (C) + Ar $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (B) + Ar	$k_{15} = 8 \cdot 10^{-13} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
16	N <sub>2</sub> (B) $\rightarrow$ $h\nu$ + N <sub>2</sub> (A)	$k_{16} = 1,5 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$	[13]
17	N <sub>2</sub> (B) + N <sub>2</sub> $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (A) + N <sub>2</sub>	$k_{17} = 2 \cdot 10^{-12} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
18	N <sub>2</sub> (B) + Ar $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (A) + Ar	$k_{18} = 1,4 \cdot 10^{-14} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
19	N <sub>2</sub> (A) + N <sub>2</sub> (A) $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (E) + N <sub>2</sub>	$k_{19} = 1 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
20	N <sub>2</sub> (A) + N <sub>2</sub> (A) $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (C) + N <sub>2</sub>	$k_{20} = 1 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]
21	N <sub>2</sub> (A) + N(A) $\rightarrow$ N <sub>2</sub> (B) + N <sub>2</sub>	$k_{21} = 8 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$	[7]

Сравнивая измеренные интенсивности перехода молекулы азота ( $I_c$ ) на длине волны  $\lambda_c$  и исследуемого перехода ( $I_r$ ) на длине волны  $\lambda_r$ , можно определить значение коэффициента преобразования ядерной энергии в световую. Простое выражение получается в данном случае, когда преобладает процесс 3 конверсии ионов аргона в молекулярные и можно не учитывать процесс 4:

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

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

Давление азота в смеси  $Ar + N_2$  менялось от 10 до 100 торр, полученные значения  $\eta$  усреднялись по результатам измерений. Для смеси  $Ar$  (1,5 атм) +  $Xe$  (40 торр) +  $CCl_4$  (0,7 торр) получено значение коэффициента преобразования энергии  $\alpha$ -частиц в излучение в полосе 308 нм  $\eta = (11 \pm 3)\%$ . Некоторое отличие от квантового кпд (15%), по-видимому, обусловлено тушением В-состояния  $XeCl$  молекулами  $CCl_4$  [12].

Интенсивность полос  $KrF$ ,  $KrCl$  мала по сравнению с интенсивностью В–Х-переходов  $XeCl$  и  $XeF$  (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) +  $Xe$  (30 торр) +  $NF_3$  (20 торр) с учетом рассчитанного значения энерговклада  $\alpha$ -частиц дает  $\eta \sim 4\%$ , что в 3 раза меньше, чем для полосы 308 нм  $XeCl$ .

Таким образом, В–Х-переход молекулы  $XeCl$  представляет наибольший интерес для создания эксимерного лазера с прямой ядерной накачкой. Высокая радиационная стойкость рабочей смеси  $XeCl$ -лазера в поле излучения ядерного реактора была показана в нашей работе [14]. Спектр люминесценции смеси  ${}^3He-Xe-CCl_4$  при возбуждении продуктами ядерной реакции  ${}^3He(n,p)T + 0,76$  МэВ в активной зоне стационарного ядерного реактора аналогичен спектру люминесценции при возбуждении  $\alpha$ -частицами (см. рис. 1). В плазме газовой смеси  $CCl_4$  разлагается в процессе прилипания электронов:  $CCl_4 + e \rightarrow CCl_3 + Cl^-$ .

*M.U. Khasenov, M.T. Nakiskozhaev, A.S. Syrlybaev, I.I. Smirnova. Emission of inert gas halides at excitation by alpha-particles.*

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

Для смеси  ${}^3He:Xe:CCl_4 = 1500:50:1$  атмосферного давления при потоке тепловых нейтронов  $10^{13}$  нейтрон/(см<sup>2</sup>·с) скорость указанного процесса составляет  $\approx 2 \cdot 10^{16}$  см<sup>-3</sup>·с<sup>-1</sup>. Тем не менее интенсивность излучения в полосе 308 нм оставалась постоянной при интегральных потоках нейтронов до  $10^{17}$  нейтрон/см<sup>2</sup>. Это может быть связано как с наличием достаточно быстрых обратных процессов, так и с образованием других соединений хлора.

Спектры люминесценции измерены в Институте ядерной физики Национального ядерного центра Республики Казахстан.

Авторы благодарены А.М. Назарову за помощь при измерениях спектров.

1. *Эксимерные лазеры* / Под ред. Ч. Роудз. М.: Мир, 1981. 245 с.
2. *Haas G.N., McArthur D.A., Neal D.R., Rice J.K.* Gain measurements near 351 nm in  ${}^3He/Xe/NF_3$  mixtures excited by fragments from the  ${}^3He(n,p){}^3H$  reaction // *Appl. Phys. Lett.* 1986. V. 49. N 7. P. 363–366.
3. *Мавлютов А.А., Мисьякевич А.И.* Эксимерный лазер с ядерной накачкой с длиной волны генерации 308 нм // *Письма в ЖТФ.* 1996. Т. 22. Вып. 8. С. 48–52.
4. *Батырбеков Г.А., Батырбеков Э.Г., Долгих В.А., Рудой И.Г., Сорока А.М., Тлеужанов А.Б., Хасенов М.У.* Кинетика возбужденных состояний Hg при накачке ионизирующим излучением. Препр. / ИЯФ АН КазССР (Алма-Ата). 1987. № 3–87. С. 1–31.
5. *Немец О.Ф., Гофман Ю.В.* Справочник по ядерной физике. Киев: Наук. думка, 1975. 415 с.
6. *Малышев В.И.* Введение в экспериментальную спектроскопию. М.: Наука, 1979. 480 с.
7. *Басов Н.Г., Данилычев В.А.* Лазеры на конденсированных и сжатых газах // *Успехи физ. наук.* 1986. Т. 148. Вып. 1. С. 55–100.
8. *Радциг А.А., Смирнов Б.М.* Параметры атомов и атомных ионов. М.: Энергоатомиздат, 1986. 344 с.
9. *Дышниц Ю.И., Неверов В.Г., Хорошев В.Т.* Расчет выходов первичных продуктов облучения инертных газов быстрыми электронами // *Химия высок. энергий.* 1982. Т. 16. № 3. С. 201–208.
10. *Вирин Л.И., Джагацян Р.В., Карачевцев Г.В., Потанов В.К., Тальрозе В.Л.* Ионно-молекулярные реакции в газах. М.: Наука, 1979. 548 с.
11. *Иванов В.А.* Диссоциативная рекомбинация молекулярных ионов в плазме инертных газов // *Успехи физ. наук.* 1992. Т. 162. № 1. С. 35–70.
12. *Смирнов Б.М.* Возбужденные атомы. М.: Энергоиздат, 1982. 232 с.
13. *Кузнецова Л.И., Кузьменко Н.Е., Кузяков Ю.Я., Пластинин Ю.А.* Вероятности оптических переходов двухатомных молекул. М.: Наука, 1980. 320 с.
14. *Батырбеков Г.А., Керимов О.М., Кострица С.А., Кузьмин Ю.Е., Сагитов С.И., Тлеужанов А.Б., Хасенов М.У.* Радиационная стойкость элементов внутриреакторной лазерной установки // *Изв. АН КазССР.* 1986. № 6. С. 23–26.