

04;07;12

Электроразрядный источник УФ-излучения на основе парогазовой смеси Хе—CsCl

© М.С. Кленовский, В.А. Кельман, Ю.В. Жменяк, Ю.О. Шпеник

Институт электронной физики НАН Украины,
88017 Ужгород, Украина
e-mail: vkel@mail.uzhgorod.ua

(Поступило в Редакцию 3 августа 2009 г.)

Создан источник спонтанного УФ-излучения (эксилампа), максимум интенсивности излучения которого приходится на длину волны 308 nm. В качестве активной среды эксилампы использовалась смесь Хе с парой CsCl, которая возбуждалась в продольном импульсно-периодическом разряде. Наибольший вклад в интегральную мощность УФ-излучения эксилампы вносит переход $B \rightarrow X$ молекул ХеCl*. Исследованы спектральный состав УФ-излучения, временные характеристики источника и зависимости эффективности образования эксиплексных молекул от основных параметров возбуждения разряда.

Введение

Эксиплексные источники спонтанного излучения пользуются значительным спросом, поскольку в отличие от когерентных излучателей они способны облучать поверхности произвольной геометрии и в более широком интервале длин волн за счет значительной ширины излучающей полосы, которая на полувысоте составляет до 10 nm [1]. Неудивительно, что поиск в этом направлении ведется весьма интенсивно.

Представленная работа является успешным продолжением серии исследований авторов по поиску эффективных нетоксичных рабочих смесей для новых эксиплексных источников некогерентного излучения [2–4], в которых были использованы смеси ксенона и криптона с парами NaCl и KCl. Здесь же в качестве донора хлора, необходимого для формирования эксиплексных молекул ХеCl*, применено нетоксическое вещество — хлорид цезия CsCl.

Необходимым условием для эффективного формирования эксиплексных молекул ХеCl* является наличие в разрядном объеме достаточного давления пара галогеносителя. Использование в качестве галогеносителя хлорида цезия выгодно тем, что позволяет значительно снизить поглощение УФ-излучения молекул ХеCl* молекулами галогеносителя, в отличие от излучателей на основе смесей Cl₂ с инертными газами. Отсутствие коррозии электродов за счет их реакций с хлором является еще одним преимуществом использования в качестве донора хлора соли CsCl.

Необходимое давление пара в рабочем объеме обеспечивается нагреванием галогеносителя. Значения давлений насыщенного пара для CsCl сдвинуты в область меньших температур в сравнении с соответствующими значениями использованных нами ранее галогеносителей NaCl и KCl. Поэтому при использовании хлорида цезия есть основания ожидать снижения температуры рабочей смеси излучателя.

Техника и методика эксперимента

Экспериментальный образец эксилампы выполнен в виде вакуумно-герметичной газоразрядной трубки (ГРТ) из плавленого кварца внутренним диаметром 16 mm, вдоль которой размещались керамические кольца. Кольца ограничивали диаметр разряда до 12 mm. В промежутках между ними находился хлорид цезия в виде мелкодисперсного порошка. Коаксиальные водоохлаждаемые медные электроды вклеены с противоположных торцов ГРТ на расстоянии 400 mm. Излучение из ГРТ выводилось через кварцевые окна, которые находились за пределами разрядного промежутка.

Необходимая концентрация галогеносителя в рабочем объеме устанавливалась за счет испарения порошка CsCl, разогреваемого разрядом, а также внешним резистивным нагревателем. За счет этого дополнительного нагревателя осуществлялось варьирование концентрации CsCl в рабочем объеме в ходе экспериментальной работы.

Возбуждение продольного импульсно-периодического разряда в ГРТ осуществлялось с применением высоковольтного тиратронного коммутатора ТГИ1-2000/35 и накопительного конденсатора емкостью 1650 pF. Регистрация эмиссионных характеристик разряда проводилась с помощью монохроматора MS 7504i, построенного по горизонтальной оптической схеме Черни–Тернера. В качестве фоточувствительного элемента использовался фотоэлектронный умножитель R928 фирмы Hamamatsu и ПЗС-линейка HS 101H.

Результаты исследований и обсуждение

При накачке парогазовой смеси Хе—CsCl в продольном импульсно-периодическом разряде наблюдалось интенсивное УФ-излучение, преимущественно являющееся результатом электронных переходов с возбужденных состояний, формируемых в разряде эксиплексных молекул ХеCl*, причем интенсивность этого излучения сильно зависит от температуры ГРТ.

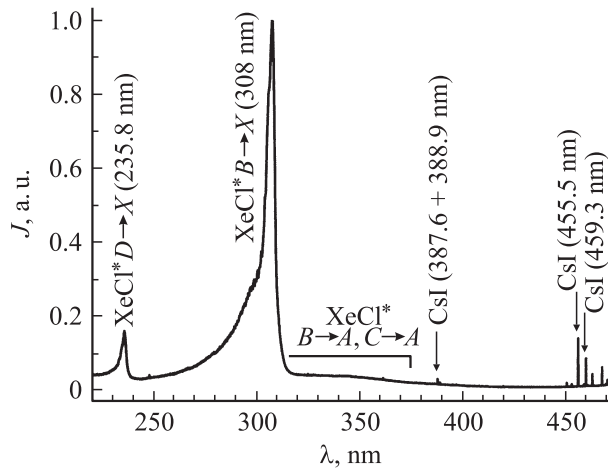


Рис. 1. Интегрированный во времени эмиссионный спектр $J(\lambda)$ эксилампы на смеси Xe–CsCl. Напряжение на выпрямителе 5 кВ, ток разряда 155 мА, частота 6 кГц, давление ксенона 30 Торр, температура ГРТ 950 К.

В процессе исследования был определен спектральный состав УФ-излучения газового разряда в смеси пара хлорида цезия с ксеноном. На рис. 1 приведен участок спектра излучения разряда в интервале 220–470 нм с поправкой на спектральную чувствительность системы регистрации. Как и следовало ожидать, максимум интенсивности УФ-излучения приходится на длину волны 308 нм. Наибольший вклад в интегральную мощность УФ-излучения вносит именно $B \rightarrow X$ -переход эксиплексной молекулы XeCl^* , достигающий величины 72%, причем спектральная ширина полосы на полувысоте не превышает 5.2 нм.

Отчетливо различима в спектре излучения также полоса с максимумом интенсивности при длине волны 235.8 нм, соответствующая $D \rightarrow X$ -переходу эксиплексной молекулы XeCl^* . Ширина полосы $D \rightarrow X$ на полувысоте равна 3.9 нм, а ее вклад в общую мощность УФ-излучения составляет 7.5%. Также на фоновом уровне проявляется еще одна молекулярная полоса, которая представляет собой наложение двух переходов $B \rightarrow A$ и $C \rightarrow A$ эксиплексных молекул XeCl^* .

Кроме указанных молекулярных эмиссий в пределах приведенного спектрального диапазона регистрируются резонансные дублеты атомов цезия, которым соответствуют электронные переходы $7p \rightarrow 6s$ (455.5 + 459.3 нм) и $8p \rightarrow 6s$ (387.6 + 388.9 нм). Наличие в разряде атомарного цезия (см. ниже реакцию (2)) обусловлено химическим составом галогенонесителя CsCl. Основной канал его появления — реакции замещения, по которым в основном и формируются в нашем случае эксиплексные молекулы XeCl^* . Отсутствие при оптимальных условиях возбуждения молекулярных полос хлора и его накопления свидетельствует, возможно, об эффективном задействовании хлора в восстановительных реакциях.

В процессе исследования были проведены измерения зависимостей интенсивности УФ-излучения эксиплекс-

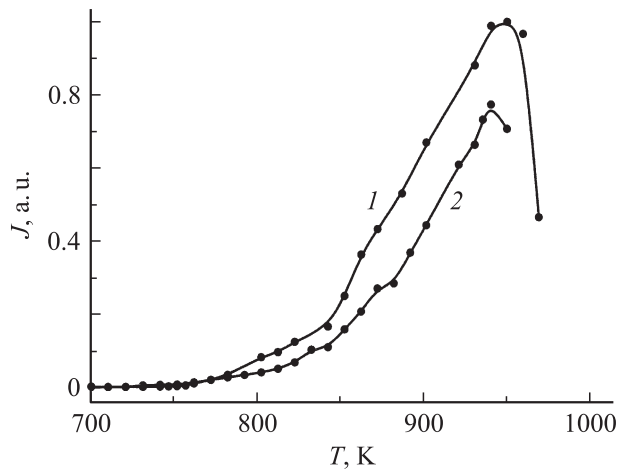
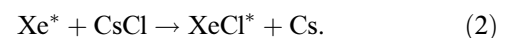
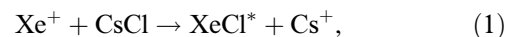


Рис. 2. Зависимости интенсивности излучения J смеси Xe–CsCl на длине волны 308 нм от температуры на стенках ГРТ T . Напряжение на выпрямителе 2 кВ, частота разряда 6 кГц, давление ксенона 45 (1), 75 Торр (2).

ного источника на длине волны 308 нм от температуры, давления ксенона, напряжения и частоты возбуждения разряда. Эти зависимости в диапазоне изменений условий исследований имеют экстремумы, по которым были определены оптимальные эксплуатационные параметры экспериментального образца, обеспечивающие максимальную интенсивность УФ-излучения за счет эмиссии перехода $B \rightarrow X$ эксиплексных молекул XeCl^* .

Пороговая температура внешней стенки ГРТ, при которой эмиссия перехода $B \rightarrow X$ эксиплексной молекулы XeCl^* уже отчетливо видна (рис. 2), составляет ~ 800 К. С ростом температуры интенсивность излучения постепенно увеличивается, что объясняется повышением концентрации галогенонесителя в рабочем объеме. Максимум температурной зависимости строго выражен и приходится на 950 К, отклонение от которого на ± 40 К приводит к уменьшению интенсивности излучения $B \rightarrow X$ -перехода в два раза. Дальнейшее повышение температуры ГРТ приводит к перенасыщению рабочей смеси паром CsCl, что приводит к снижению температуры электронов в разряде и соответственно к способности эффективного возбуждения и ионизации атомов ксенона, необходимых для формирования эксиплексных молекул.

Предполагаем, что доминирующую роль в процессах формирования XeCl^* эксиплексных молекул играют преимущественно бинарные реакции замещения [5]:



Одним из критериев эффективности формирования эксиплексных молекул XeCl^* за счет реакций замещения являются значения их дефектов энергий, которые определяются как разница энергии системы до и после реакции [5]. Для реакций замещения (1) и (2) значения

дефектов энергий соответственно составляют -0.09 и -0.02 eV. Следует заметить, что величина дефекта энергии в случае реакции замещения метастабильными атомами Хе* атомов Cs в молекуле CsCl на порядок меньше, нежели для аналогичной реакции в случае смеси Хе–KCl [3]. Эта особенность смеси Хе–CsCl может дать значительные преимущества в создании на ее основе эксиплексного источника УФ-излучения.

Сравнение интенсивностей резонансных линий атомов и ионов цезия могло бы дать качественный ответ касательно преобладания одной из двух реакций замещения (1), (2), играющих доминирующую роль в процессе формирования ХеCl* эксиплексных молекул. Поскольку, однако, резонансные линии ионов цезия располагаются в ВУФ-области, то это исследование нами не было выполнено.

При условиях возбуждения, далеких от оптимальных, в спектре излучения разряда все-таки наблюдается появление молекулярных полос хлора, что свидетельствует о преобладании процессов диссоциации молекул CsCl над реакциями замещения (1), (2), но при этом эффективность образования в разряде эксиплексных молекул ХеCl* падает до нуля. Это явление еще раз свидетельствует о преобладании в процессе формирования эксиплексных молекул ХеCl* при оптимальных условиях работы именно реакций замещения. Об этом же свидетельствует и наличие в спектре излучения при оптимальных условиях возбуждения линий цезия как побочных продуктов этих реакций.

Время жизни эксиплексных молекул ХеCl* в электронном B -состоянии составляет 11 ns [6]. После их распада в разрядном объеме должен был бы накапливаться хлор. Предполагаем, что отсутствие в спектре излучения молекулярных полос хлора свидетельствует о связывании атомов хлора с атомами цезия, при этом происходит восстановление галогенонесителя в его исходной форме.

Спектральная ширина полосы $B \rightarrow X$ эксиплексных молекул ХеCl* у основания составляет около 70 nm (рис. 1), что соответствует электронным переходам с колебательных состояний, находящихся в пределах одной трети от глубины потенциальной ямы электронного B -уровня. Анализ структуры спектра излучения разряда в смеси Хе–CsCl показывает, что в пределах условий исследований в эмиссии эксиплексных молекул ХеCl* доминируют преимущественно переходы с самых нижних колебательных состояний электронного B -терма (максимум на длине волны 308 nm, что соответствует переходу $B \rightarrow X$ с нулевого колебательного состояния). Это, по-видимому, объясняется не только процессами колебательной релаксации в пределах электронного B -уровня при низком давлении смеси, но и тем, что значения дефектов энергий для реакций замещения метастабильными атомами Хе* атомов Cs в молекуле CsCl, минимальны при образовании молекул ХеCl* именно в нулевом колебательном состоянии этого же электронного уровня.

Зависимость интенсивности излучения смеси Хе–CsCl от напряжения возбуждения разряда на длине

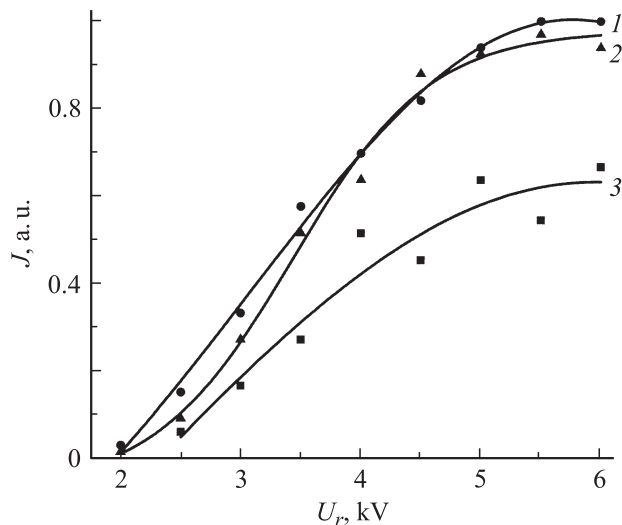


Рис. 3. Зависимости интенсивности излучения J смеси Хе–CsCl на длине волны 308 nm от напряжения на выпрямителе U_r . Частота 9 (1), 8 (2), 6 kHz (3), давление ксенона 30 Torr, температура ГРТ 950 K.

волны 308 nm приведена на рис. 3. Из представленных зависимостей видно, что до значений напряжения 5 kV идет резкое увеличение интенсивности излучения, после чего кривые выходят на насыщение. Полагаем, что это свидетельствует в пользу того, что с увеличением запаса энергии накопительного конденсатора увеличивается степень диссоциации молекул CsCl, а потому к началу очередного импульса возбуждения реализуется все меньшее значение их концентрации в силу неполного восстановления за межимпульсный промежуток.

На рис. 4 приведена зависимость интенсивности излучения перехода $B \rightarrow X$ эксиплексной молекулы ХеCl* на длине волны 308 nm от давления ксенона. Эта зависимость не характеризуется строго выраженным

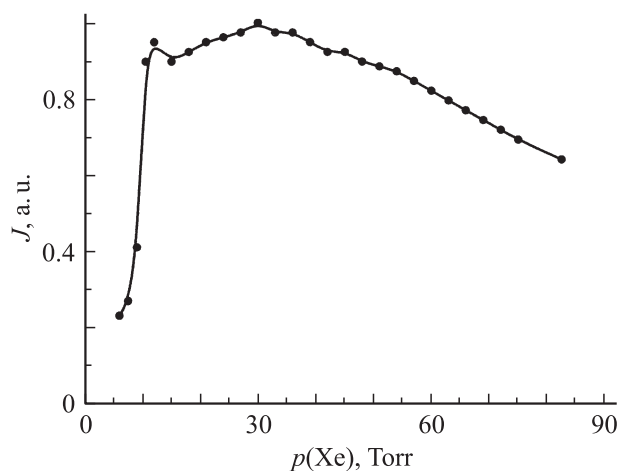


Рис. 4. Зависимость интенсивности излучения J смеси Хе–CsCl на длине волны 308 nm от давления Хе. Напряжение на выпрямителе 5 kV, частота разряда 4 kHz, температура ГРТ 964 K.

максимумом, а поэтому давление ксенона в ГРТ может принимать значения в пределах 12–50 Torr без существенных потерь интенсивности излучения. При дальнейшем увеличении давления ксенона наблюдается постепенное понижение интенсивности эмиссии перехода $B \rightarrow X$. Оценки показывают (см. далее), что снижение интенсивности излучения с увеличением давления Хе выше 30 Torr обусловлено в том числе и процессами самотушения атомов и ионов ксенона. Кроме того, с повышением давления ксенона увеличивается время диффузии молекул CsCl со стенок ГРТ на ось разряда, что необратимо приводит к неполному восстановлению концентрации молекул галогенонесителя к началу очередного импульса возбуждения.

Оценим время диффузии молекул CsCl в Хе. Используя данные об атомных радиусах [7] и применив модель упругих шаров, полное сечение рассеяния в столкновениях Хе + CsCl оценим как $\sigma = 4 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2$. Оценка средней скорости взаимодействия составляет

$$\bar{v} \approx \sqrt{\frac{2T}{\mu}} = 1.5 \cdot 10^5 \frac{\text{cm}}{\text{s}},$$

где T — абсолютная температура газа, μ — приведенная масса частиц CsCl и Хе.

Средняя длина свободного пробега молекул CsCl для давления Хе 1 Torr равна

$$\lambda = \bar{v}t = \bar{v} \frac{1}{N(\text{Xe})\sigma} = \frac{1}{N(\text{Xe})\sigma} = 0.03 \text{ cm},$$

где t — среднее время между последовательными соударениями.

Коэффициент диффузии будет равен

$$D = \bar{v} \frac{\lambda}{3} \approx 5000 \frac{\text{cm}^2}{\text{s}}.$$

Характерная длина диффузии молекул CsCl со стенок внутрь ГРТ за межимпульсный период $\Delta t = 100 \mu\text{s}$ составит ($p(\text{Xe}) = 1 \text{ Torr}$)

$$L \sim 2.4\sqrt{D\Delta t} = 1.68 \text{ cm}.$$

Время полного восстановления концентрации молекул CsCl на оси разряда (за счет их диффузии со стенок ГРТ) равно

$$\Delta t = \frac{L^2}{6D}$$

и для $p(\text{Xe}) = 1 \text{ Torr}$ и $L = 0.5 \text{ cm}$ — $\Delta t \approx 10^{-5} \text{ s}$.

Графическая зависимость рассчитанной предельной частоты возбуждения разряда для данной геометрии эксилампы f_{lim} , при которой еще успевает полностью восстанавливаться термически равновесная концентрация молекул CsCl, от давления ксенона в ГРТ приведена на рис. 5. Заметим, что имеет место соотношение $p(\text{Xe})f_{\text{lim}} = \text{const}$.

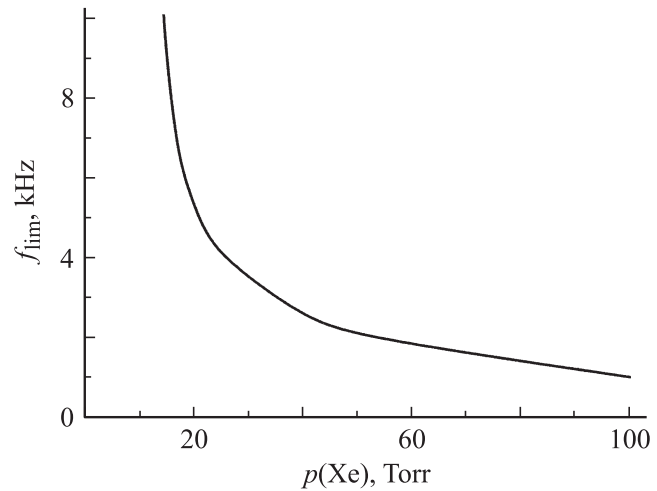


Рис. 5. Зависимость рассчитанной предельной частоты возбуждения разряда f_{lim} для данной геометрии источника, при которой еще успевает полностью восстанавливаться термически равновесное значение концентрации молекул CsCl, от давления ксенона в ГРТ.

На рис. 6 приведен временной ход импульса тока в ГРТ и импульса эмиссии перехода $B \rightarrow X$ эксилексной молекулы ХеCl* в спектральном максимуме 308 nm. Продолжительность токового импульса по основанию составляет 370 ns, а эмиссионного — значительно более 1 μs , причем излучение эксилексных молекул берет начало практически одновременно с развитием тока в ГРТ.

Рассмотрим упрощенно кинетику возбуждения эмиссии перехода $B \rightarrow X$, полагая, что процесс происходит преимущественно по окончании импульса возбуждения разряда. Концентрация метастабильных атомов Хе* в

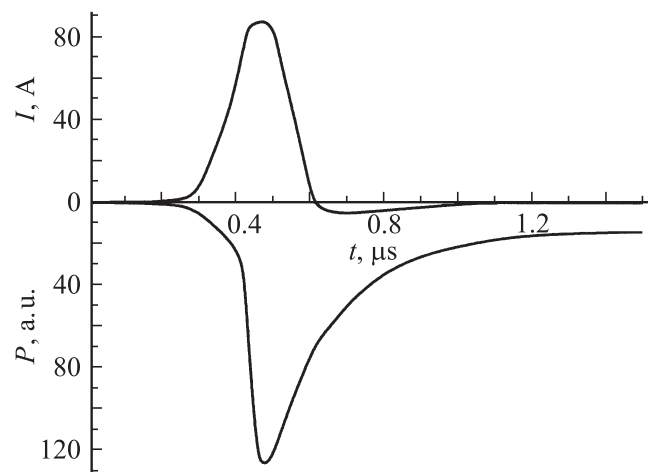


Рис. 6. Временные формы импульса тока $I(t)$ и эмиссии $P(t)$ электронного перехода $B \rightarrow X$ эксилексной молекулы ХеCl*. Напряжение на выпрямителе 5 kV, частота 4 kHz, давление ксенона 40 Torr, температура ГРТ 930 K.

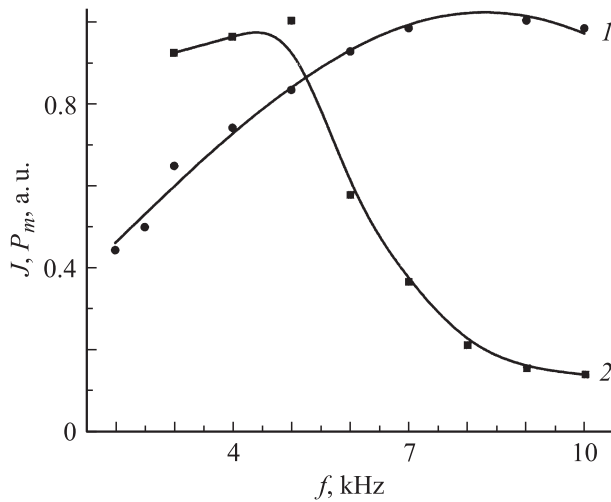


Рис. 7. Зависимости интенсивности J излучения (1) и амплитуды P_m импульса (2) эмиссии перехода $B \rightarrow X$ эксиплексных молекул XeCl^* на длине волны 308 nm от частоты возбуждения разряда f . Напряжение на выпрямителе 5 kV, давление ксенона 30 Torr, температура ГРТ 960 K.

этом случае со временем убывает таким образом

$$\frac{dN(\text{Xe}^*)}{dt} = -N(\text{Xe}^*)N(\text{CsCl})\langle\sigma_{\text{subs}}v\rangle - N(\text{Xe}^*)N(\text{Xe})\langle\sigma_{\text{quen}}v\rangle,$$

здесь $\langle\sigma_{\text{subs}}v\rangle$ — константа скорости реакции замещения (2), $\langle\sigma_{\text{quen}}v\rangle$ — константа скорости реакции тушения Xe^* атомами ксенона.

Отсюда

$$\frac{dN(\text{Xe}^*)}{N(\text{Xe}^*)} = -N(\text{Xe})\langle\sigma_{\text{quen}}v\rangle dt - N(\text{CsCl})\langle\sigma_{\text{subs}}v\rangle dt.$$

Решение этого уравнения

$$N(\text{Xe}^*) = N_0(\text{Xe}^*)e^{-A \cdot t},$$

где $A = N(\text{Xe})\langle\sigma_{\text{quen}}v\rangle + N(\text{CsCl})\langle\sigma_{\text{subs}}v\rangle$, $\tau = 1/A$ — постоянная времени затухания эмиссии.

Полагая, что интенсивность излучения $I(t) \sim N(\text{Xe}^*)$, отмечаем, что с увеличением давления ксенона и, соответственно $N(\text{Xe}^*)$, значение A увеличивается (следовательно, постоянная времени затухания эмиссии уменьшается, что совпадает с наблюдаемым поведением в эксперименте), а зависимость значения A от частоты в пределах условий измерений не является столь сильно выраженной (экспериментальные данные).

В любом случае спадающая зависимость постоянной времени затухания эмиссии от давления ксенона указывает на то, что процесс самотушения имеет место даже при низких давлениях ксенона.

Зависимости средней интенсивности (кривая 1) и амплитуды импульса (кривая 2) эмиссии перехода $B \rightarrow X$ эксиплексных молекул XeCl^* от частоты возбуждения

разряда приведены на рис. 7. Максимальное значение амплитуды импульса эмиссии приходится на частоту 4–5 kHz. Дальнейшее увеличение частоты приводит к снижению амплитуды импульса эмиссии, что объясняется весьма универсальным механизмом ограничения — неполным восстановлением до термически равновесного значения концентрации молекул CsCl за счет их диффузии со стенок ГРТ на ось разряда. Максимум интегральной интенсивности излучения перехода $B \rightarrow X$ наблюдается при частоте 8–9 kHz.

Таким образом, в результате проделанной работы определены оптимальные эксплуатационные параметры исследуемого газоразрядного источника, при которых можно получить максимальную интенсивность УФ-излучения за счет перехода $B \rightarrow X$ эксиплексной молекулы XeCl^* . Они таковы: напряжение на выпрямителе 6 kV, давление ксенона 30 Torr, частота возбуждения разряда 8–9 kHz, температура на стенках ГРТ 950 K.

Измерение средней мощности УФ-излучения проводилось с помощью прибора ИМО-2Н через одно из выходных окон с использованием светофильтра УФС 2. Определение полного значения средней мощности УФ-излучения разряда в смеси $\text{Xe}-\text{CsCl}$ сквозь всю поверхность излучателя основывалось на расчете с учетом геометрического фактора при определенных выше оптимальных условиях работы. С целью учета потерь в светофильтре УФС 2 была сделана поправка на спектральную характеристику пропускания светофильтра. Определенная таким образом средняя мощность УФ-излучения экспериментального образца составила приблизительно 10 W, что соответствует значению КПД $\sim 1\%$.

Выводы

Создан источник спонтанного УФ-излучения с возбуждением высоковольтным импульсно-периодическим разрядом, максимум интенсивности излучения которого приходится на длину волны 308 nm. В качестве активной среды для газоразрядного источника использована смесь ксенона с парой нетоксичной соли хлорида цезия.

Полученные результаты позволяют утверждать, что среди опробованных нами смесей для газоразрядного XeCl^* излучателя наиболее эффективной является именно смесь на основе хлорида цезия. Использование паров CsCl в качестве галогеноносителя дало возможность снизить оптимальное значение температуры рабочей смеси до 950 K, что на 130 K меньше в сравнении с аналогичным XeCl^* излучателем на основе смеси $\text{Xe}-\text{KCl}$ [3]. При этом значение мощности УФ-излучения $\text{Xe}-\text{CsCl}$ источника составило приблизительно 10 W, что соответствует КПД $\sim 1\%$.

Показано, что в ограничении эмиссионных характеристик разряда существенную роль играют неполное восстановление концентрации паров CsCl на оси разряда в межимпульсном промежутке и реакции тушения Xe^* атомами ксенона.

Список литературы

- [1] *Ломаев М.И., Скакун В.С., Соснин Э.А.* и др. // УФН. 2003. Т. 173. № 2. С. 201–217.
- [2] *Рийвес Р.Б., Светличный Е.А., Жменяк Ю.В.* и др. // ЖТФ. 2004. Т. 74. Вып. 10. С. 90–93.
- [3] *Рийвес Р.Б., Жменяк Ю.В., Кельман В.А., Шпеник Ю.О.* // ЖТФ. 2006. Т. 76. Вып. 10. С. 102–105.
- [4] *Кленовский М.С., Рийвес Р.Б., Кельман В.А., Жменяк Ю.В., Шпеник Ю.О.* // ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 7. С. 81–84.
- [5] *Бойченко А.М.* // Квант. электрон. 1999. Т. 20. № 2. С. 163–167.
- [6] *Смирнов Б.М.* // УФН. 1983. Т. 139. Вып. 1. С. 53–81.
- [7] *Кикоин И.К.* // Таблицы физических величин. Справочник. М.: Атомиздат, 1976. 1008 с.