

A NAGYNYOMÁSÚ FÉMHALOID ADALÉKOS GÁZKISÜLÉSI CSÖVEK
FELMELEGEDÉSI SZAKASZÁBAN LEJÁTSZÓDÓ FIZIKAI ÉS KÉ-
MIAI FOLYAMATOK VIZSGÁLATA

Doktori értekezés

- 1976 -

Csányi István



TARTALOMJEGYZÉK

I.	Bevezetés	2. oldal
II.	A nagynyomású fémhaloid adalékos kisülések felmelegedési szakaszában lejátszódó folya- matok áttekintése	5.
III.	Célkitűzés	18.
IV.	Kísérleti feltételek, vizsgálati módszerek	
1.	Kísérleti feltételek	19.
2.	Alkalmazott vizsgálati módszerek.....	22.
a/	Ivfeszültség/emissziós vonalintenzitás mérése	
b/	Ujragyújtási csúcsfeszültség mérése	24.
V.	Eredmények	
1.	Ivfeszültség/emissziós vonalintenzitás válto- zása a felmelegedési szakaszban	25.
a/	Egykomponensű rendszerek feszültség felfutási karakterisztikái	25.
b/	Többkomponensű rendszerek feszültség és vo- nalintenzitás felfutási karakterisztikái	27.
2.	A HgI_2 hatása az ujragyújtási csúcsfeszültség karakterisztikára	43.
VI.	Összefoglaló értékelés	54.
	IRODALOMJEGYZÉK	57.

I. BEVEZETÉS

A nagynyomású ivkisüléssel fényforrások egyre inkább tért hódítanak a világítástechnikában, mivel kedvező hatásfokkal és nagy fényáramsűrűséggel rendelkeznek. A széles körben elterjedt Hg-gőz ivkisüléssel fényforrások spektrális intenzitáseloszlása azonban erősen eltér a természetes fénytől, így olyan világítástechnikailag igényes területeken mint például a színes TV- és filmtechnika, sportpályák és stadionok megvilágítása, már nem felelnek meg a követelményeknek. A spektrális intenzitáseloszlás javítását két úton lehet elérni: egyrészt olyan szinkorrigált fényporok alkalmazásával, amelyek a közeli UV-tartományban kisugárzott fényt a látható spektrum hosszú hullámu részébe konvertálják, s így biztosítják az egyenletes eloszlást, másrészt olyan adalékok kisülési térbe történő juttatásával, amelyek atomi vagy molekuláris emissziós spektruma biztosítja a szükséges korrekciót. Mivel a fényporok az UV-sugárzás egy részét hasznosítják, bizonyos hatásfoknövekedésnek kellene jelentkeznie, azonban a legtöbb fénypor a látható tartományban is rendelkezik némi abszorpcióval, így lényeges hatásfoknövekedés nem tapasztalható, s emellett a spektrális intenzitáseloszlás sem felel meg a követelményeknek.

A különböző fémek kisülési térbe történő juttatá-

sa elvileg korlátlan lehetőséget biztosít a spektrális eloszlás befolyásolására, azonban a kisülési cső falának hőmérsékletén ~ 1000 °K/ a Hg kivételével a fémek többségének viszonylag kicsi a parciális gőznyomása, s így ezek nem alkalmasak nagy intenzitású fény generálására. A 1960-as években a különböző fémeket halogén vegyületek formájában kezdték adalékolni a kisülési csőbe, s ezáltal jelentős parciális gőznyomás növekedést sikerült elérni. A fémhaloidok csaknem teljes mértékben disszociálnak az iv középponti hőmérsékletén ~ 5000 °K/, s így az elemek atomi emissziós spektruma jelenik meg a kisülés szinképében.

Az ilyen kisülési csövekben az elektromos és optikai paraméterek közben tartása lényegesen bonyolultabb feladatot jelent, mint Hg-gőz kisülésekben, s olyan új effektusok lépnek fel, amelyekkel Hg-gőz kisülésekben nem kellett számolni, s amelyek elsősorban a gyújtási és azt követő felmelegedési szakaszban jelentkeznek.

Ezen dolgozat keretében a 400 W-os Hg:TlI:DyI₃ adalékos nagynyomású gázkisülési csövek begyújtási és azt követő felmelegedési szakaszában lejátszódó fizikai és kémiai folyamatokat elemezzük az egyensúly beálltáig. Mivel ezen szakaszban a kisüléssel rendszer nincs egyensúlyi, sőt még stacioner állapotban sem, a pozitív oszlop leírására nem alkalmazható sem a nagy-

nyomású ivék jellemzésére használt lokális termodinamikai egyensúlyi /LTE/ modell, sem az alacsonynyomású ivéket leíró diffúziós modell. Vizsgálataink tárgyát a két állapot közötti átmeneti tartomány -- diffúzió domináltsból LTE-be való átmenet -- képezi.

Megfelelő elméleti modell hiányában így elsősorban kísérleti módszerekkel próbáltunk választ kapni a felmelegedési tartományban lejátszódó folyamatokra.

Az aktív plazmadiagnosztikai módszerek /pl. szondamérések/ szintén nem alkalmazhatók, részben az átmeneti tartomány végénél kialakuló magas ivhőmérséklet, részben pedig a szondák perturbáló hatása miatt. Ezek figyelembevételével a plazma által kibocsátott elektromágneses sugárzás spektrális eloszlásának és az iv vilamos karakterisztikáinak mérése alapján következtetünk a kisülés felmelegedési szakaszában lejátszódó mikrofizikai folyamatokra.

A kisülési csövek 50 Hz-es váltakozó áramu táplálása következtében a termikus egyensúly beállta előtt az iv a váltakozó áram minden félperiódusa végén kialakul, és a következő félperiódus kezdetén újra begyújt. Így ezen "ujragyújtási" feszültség időbeli változásának vizsgálata hasznos információkat szolgáltat a plazma átütési szilárdságáról, s ennek alapján következtetni lehet az esetleges szennyezések /pl. H_2 / je-

lenlétére, valamint az adalékként szereplő elektronegativ gázok /halogenidek/ mennyiségére. Ennek megfelelően az alábbi dolgozat keretében olyan vizsgálati módszert is megadunk, amely az ujragyújtási feszültségcsúcsok mérése alapján lehetővé teszi a fenti adalékok kvantitatív meghatározását.

Először kritikai áttekintést adunk a felmelegedési tartományban lejátszódó folyamatokkal kapcsolatban megjelent nemzetközi irodalomról -- amely bizonyos jelenségek értelmezésében nem teljesen egységes -- majd beszámolunk az általunk folytatott vizsgálatokról, s befejezésül diszkutáljuk a kapott eredményeket.

II. A NAGYNYOMÁSÚ FÉMHALOID ADALÉKOS KISÜLÉSEK FELMELEGEDÉSI SZAKASZÁBAN LEJÁTSZÓDÓ FOLYAMATOK ÁTTEKINTÉSE

A dolgozat témájával -- a begyújtástól az egyensúly beálltáig lejátszódó folyamatok tanulmányozásával -- annak ipari fontosságánál fogva mindössze néhány közlemény foglalkozik, azonban ezek sem a dolgozat szigorú értelemben vett tárgyáról, hanem csupán néhány, ezen szakaszban fellépő jelenségről szólnak.

A fémhaloid adalékos gázkisülési csövekkel kapcsolatos közlemények nagy többsége elsősorban az egyensúlyi iv vizsgálatát tárgyalja, illetve az ezzel kapcsos-

latos mérési módszereket ismerteti/¹⁻⁹/, s csak néhány mondatban tesznek említést a felmelegedési periódusban fellépő -- Hg-halogenidek okozta -- problémákról.

Megjelent ugyan két közlemény, amely a gyujtást követő 20-50 s időintervallumban vizsgálja az ujragyujtási csucsk változását Hg:HgI₂ adalékos kisülékes rendszerben/¹⁰⁻¹¹/, azonban egyik sem tárgyalja a felmelegedés további szakaszait. Kramel dolgozata az ujragyujtási csucsfeszültség maximuma és a HgI₂ mennyisége közötti összefüggést tárgyalja, de túl nagy jelentőséget tulajdonít az elektródák szerepének, mivel azt állítja, hogy jó minőségű elektródákkal 5 mg alatti HgI₂ mennyiséget már nem lehet kimutatni. Ugyanakkor azonban 0-8 mg közötti HgI₂ adalékra egy egyenletes lefutású görbét ad meg amelyen jól megkülönböztethetők az 5 mg alatti mennyiségekhez tartozó ujragyujtási csucsfeszültségek is. Valószínűleg az elektróda feltételek okozta bizonytalanság készítette a szerzőt arra, hogy a magas ujragyujtási csucsfeszültségek okozta esetleges ivkioltást inkább egy új előtét méretezésével kerülje el, semmint hogy egy "ujragyujtási csucsfeszültség/HgI₂ mennyiség" hitelesítési görbe segítségével a fémhaloid adalékos kisülési csövekben visszamaradó HgI₂ mennyiséget

határozza meg, s a rendszer fém/halogén arányát változtassa meg az egyensulynak megfelelően. A közlemény szerzője ez utóbbi lehetőségről említést sem tesz.

A másik csúcshőmérséklet változásra vonatkozó közlemény a Sylvania cég kollektívájától származik, akik a fent említett HgI_2 -től eredő csúcshőmérsékletnek a kisülési cső falhőmérsékletétől való függésére igyekeztek választ adni egyetlen kisülési cső esetén. Szerintük a csúcshőmérséklet növekedést a gáz fázisban jelenlevő elektronegatív jód okozza, amely HgI_2 formájában párolog be a kisülési cső faláról az ivbe, s a jelenség nem tulajdonítható az elektródok esetleges hibájának. Méréseikkel lényegében cáfolják Kramelnek az elektródok gáztérrel szembeni elsődleges befolyásoló szerepéről szóló megállapítását. A felmelegedési tartomány 0-60 s közötti intervallumát modellezték lényegében a hőmérsékletfüggés vizsgálatával, azonban a többi paraméter változásának, s a teljes felmelegedési tartománynak a vizsgálatát nem végezték el. A 250 °C falhőmérsékletig végzett vizsgálatok során megállapították, hogy az ujragyújtás a 180-220 °C hőmérséklet tartományban jelent problémát, mivel a HgI_2 gőznyomása 180 °C körül kezd jelentőssé válni. Az iven keresztülhaladó molekulák disszociálnak, s az így

keletkező elektronegativ jód atomok elektronokat fognak be. Ezek a negativ ionok több nagyságrenddel nehezebbek az elektronoknál, amelynek következtében nem tudják ugyanazt a driftsebességet elérni, s így csökken a plazma vezetőképessége. A polaritásváltásnál nagy mennyiségű negativ jód ion keletkezik, amely maga után vonja, hogy -- amíg a következő félpériódusban ismét kellő mennyiségű elektron nem keletkezik -- a feszültség nőni fog. Közben azonban növekszik a gázhőmérséklet is, s amikor ez olyan naggyá válik, hogy a feszültség polaritás váltásakor is fenn tud tartani egy ionizációs-rekombinációs egyensulyt, az ujragyújtási csucsfeszültség lecsökken. Ezt az állapotot 220 °C körüli hőmérsékletnél éri el a kisülési cső. Az ujragyújtási csucsfeszültség csökkentésének lehetőségét a következőkben adják meg a szerzők:

1. Ambipoláris diffúziós veszteségek csökkentése;
2. A jód gőznyomásának csökkentése az alacsony Hg-gőz nyomásu és alacsony gázhőmérsékletű felépülés alatt;
3. A váltakozó áram nulla-átmenetének minimálisra csökkentése;
4. Megfelelően nagy ujragyújtási csucsfeszültség biztosítása.

Az előző közleményhez hasonlóan ezen dolgozat szer-

zói is az előtétek méretezésével igyekeznek a problémát megoldani, s ugyanakkor figyelmen kívül hagyják, hogy ha ilyen módon nagyobb mennyiségű jód jelenlétét engedik meg a kisülésben /a sztöchiometriai arány felett/, akkor ez a falhoz közeli tartományokban erősen abszorbeálni fogja a 480-600 nm hullámhossz tartományba eső sugárzást, amely fényáram csökkenést idéz elő.

Néhány korábbi tanulmány is foglalkozik az elektro-negatív gázok kisülésre gyakorolt hatásával/¹²⁻¹⁶/, azonban ezek elsősorban alacsony nyomásu és áramu kisülésekre vonatkoznak, s elsősorban az elektronegativ gázok által okozott ivinstabilitást illetve ivösszehuzódást tárgyalják. Közülük a mi szempontunkból Emeleus és Sayers /¹²/ valamint Emeleus és Gray/¹³/ közleménye érdemel említést. Előbbi a negativ ionok kialakulását valamint azok rekombinációját vizsgálja alacsony /néhány torr/ nyomás tartományokban, s megállapítja, hogy a negativ jód ion élettartama hozzávetőlegesen a metastabil atomok élettartamával egyezik meg, mivel a rekombináció csak elektron ütközéssel, fotoelektromos effektussal, gyors ion és normál atom valamint gyors ion és gerjesztett atom közötti ütközéssel jöhet létre. Ezzel bizonyos mértékig értelmezni lehet a kisülés összehuzott

voltát, valamint néhány más tulajdonságát.

A másik közlemény már az általunk vizsgált tartományhoz közeli nyomásoknál végzett vizsgálatokról számol be /0,1-100 torr/, s olyan megállapításokat tesz a nagyobb áramu /néhány amperes/ ivekkel kapcsolatban, amelyekkel magyarázni lehet a HgI_2 adalékos kisülési csövek gyújtás utáni 20-50 s alatt fellépő ujragyújtási csúcsfeszültség növekedését illetve megszűnését. A szerzők szerint ugyanis a nagy áramsűrűségű ivek magjában gyorsan rekombinálnának a negatív ionok, s az iv úgy viselkedik mint egy elektron-pozitív ion rendszer, míg az alacsonyabb áramsűrűségű részekben az elektronok elnyelődését nem követi ugyanolyan mértékű rekombináció, s a vezetőképesség a külső részekben tovább csökken, amelynek következtében az iv beszűkül.

Ez utóbbi magyarázattal kiegészítve a Sylvania laboratórium munkatársainak vizsgálatait, teljes egészében értelmezni lehet kvalitatíven a HgI_2 okozta ujragyújtási feszültségcsúcsok időbeli változásának mechanizmusát.

Véleményünk azonban az, hogy mivel ismeretes az ujragyújtási csúcsfeszültség eredete, nem az előtét megváltoztatására kell gondolni, hanem a jelenséget felhasznál-

nálva a rendszer fém/halogén arányát kell úgy beállítani, hogy szabad HgI_2 ne maradjon a fémhaloid adalékos kisülési csőben, amely egyébként a magas ujragyújtási feszültségen kívül erős fényabszorpciót is okoz, s ezt csupán egy nagyobb feszültségű előtéttel nem lehet megakadályozni.

Waymouth az "Electric Discharge Lamps" című munkájában/¹⁷/ -- amely az egyetlen olyan könyv ami az összes kisüléssel lámpákat együtt tárgyalja -- egy fejezetben szintén foglalkozik a fémhaloid adalékos kisüléssel lámpák begyújtási problémáival és a gázszennyezések szerepével. Alapvető problémaként említi az argon-higany Penning-keveréken kívül a kisülési térben jelenlevő más, esetleg elektronegatív gázokat, amelyek kis koncentrációban is nagymértékben megnövelik a begyújtási feszültséget, mivel az elektronbefogás következtében erősen lecsökkentik a Townsend-féle ionizációs koefficiensét.

A Townsend-ionizációt, és annak az elektronegatív gázok elektronelnyelése következtében létrejövő megváltozását Loeb/¹⁸/ és Howatson/¹⁹/ munkái tárgyalják részletesebben.

Waymouth kitér a H_2 -szennyezés által okozott nehézségekre is. A H_2 a jóddal HI -ot alkot -- amelynek for-

ráspontja -35°C -- s ennek teljes mennyisége gőz állapotban van jelen a kisülési csőben szobahőmérsékleten. Ennélfogva a HI mennyiségétől függő módon megnövekszik az átütési feszültség. Szerinte nagyon gondos hőkezeléssel sem tüntethető el teljesen a hidrogén, mert 1000-2000 órai működés után a külső burából OH^- szabadul fel, amely a belső kvarctesten átdiffundálva megjelenik a kisülési térben. Különösen Th-W katódoknál okoz ez gondot, /a fémhaloid adalékos kisüléssel készült lámpák többnyire ilyen, vagy ThO_2 bevonatu W katóddal készülnek/, mivel egy monoréteg alakul ki a felületen, amely akadályozza a begyújtást.

A begyújtás utáni felmelegedési szakaszban bekövetkező ujragyújtási feszültségváltozásról szóló rövid összefoglaló lényegében a már említett /¹¹/ közleményt idézi rövidebb formában. A nagynyomású Hg-gőz kisülésekkel kapcsolatban utal a teljes felmelegedési szakaszra is, a fémhaloid adalékos kisülési csövek ugyanezen szakaszáról azonban -- amelyben lényegesen bonyolultabb folyamatok játszódnak le -- említést sem tesz.

Elenbaas, a nagynyomású Hg-gőz kisülésekkel kapcsolatos munkájában/²⁰/ bővebben tárgyalja a felmelegedési tartományt, és megadja tiszta A:Hg kisülésre az ivfe-

szültség, iváram és az integrált fényáram időtől való függését a begyújtástól az egyensúly beálltáig. Az általa adott kvalitatív kép elég szemléletes és egyszerű, s megértése -- az egyetlen, szobahőmérsékleten a falon elhelyezkedő komponens miatt -- nem igényel különösebb bizonyítást. Eszerint a begyújtás után disszipált teljesítmény egy része a fal hőmérsékletének növelésére fordítódik, s kezd bepárologni a kisülési térbe a higany. Így megnövekszik az ivfeszültség, s ezáltal a disszipált teljesítmény, amely mindaddig tart, amíg a viszonylag alacsony forráspontu Hg /357 °C/ teljes mennyisége be nem párolog a gáztérbe. Egy adott csőtipus, hálózati feszültség és előtétrendszer mellett a végső ivfeszültséget a Hg mennyisége szabja meg.

Fémhaloid adalékos kisülési csövekben azonban a végső ivfeszültséget különböző adalékarányoknál is azonosra lehet állítani, ami viszont az eredő szín szempontjából nem érdektelen, s ugyanakkor a nem megfelelő arányban adalékolt fémhaloidok különböző nehézségeket okozhatnak a felmelegedési szakaszban. Ezzel a kérdéssel az eddig ismertetett munkák egyike sem foglalkozik. behatóan.

A Hg:TlI:DyI₃ adalékos kisülési csöveknél az egyes adalékok olvadás illetve forráspontja néhány száz °K-ra

van egymástól, s ez nagymértékben megkönnyíti a kisülés felmelegedési szakaszát jellemző elektromos karakterisztikák értelmezését. Ezek az adalékok ugyanis különböző módon befolyásolják az elektromos iv vezetőképességét, elsősorban molekula és atomszerkezetük igen eltérő volta miatt. Kézenfekvő tehát az egyes adalékok kisülési térbe történő bepárolgása és az elektromos paraméterek közötti összefüggés vizsgálata, amelynek elvégzése után már csupán a felmelegedési szakasz feszültségváltozása alapján következtetni lehet a bepárolgott adalékok mennyiségére, s egy egyszerű minősítő módszer áll rendelkezésre az eddigi eléggé nehézkes, és főleg statisztikus módszeren alapuló vizsgálatok helyett.

Rokosz és munkatársai/²¹/ Hg:TlI:DyI₃ és Hg:TlI:InI₃:DyI₃ adalékos fémhaloid kisülési csövekben vizsgálták az elektromos paramétereket a HgI₂:Dy arány függvényében. Mivel a DyI₃ eléggé higroszkópos anyag, a Dy-hoz szükséges jódot HgI₂ formájában vitték a kisülési csőbe. Végső céljuk a jó színvisszaadás elérése volt, de természetesen kielégítő elektromos jellemzők mellett. A HgI₂:Dy arány függvényében vizsgálták a kisüléssel lámpák százalékos gyujtásképeségét valamint égve maradását, amely módszer meglehetősen nagyszámu kisülési cső elkészítését igényli, hogy a statisztikus vizsgálat kielégítő pontosságú legyen. Azt találták, hogy a legmegfelelőbb szín-

visszaadási index 2,1-es $\text{HgI}_2:\text{Dy}$ aránynál adódik. Az általuk megadott görbéből viszont kiderül, hogy a kisülési csövek 80 %-a marad ennél az aránynál égve, amely a gyakorlat számára természetesen nem felel meg. A kioltás -- bár ennek okát nem közlik -- valószínűleg a visszamaradó nagy mennyiségű HgI_2 miatt következett be, amelyet már a korábbiakban tárgyaltunk. Az ujragyújtási csucok vizsgálata valószínűleg lényegesen egyszerűbb módon választ tudott volna adni a $\text{HgI}_2:\text{Dy}$ arány és a gyakorlati alkalmazhatóság közötti összefüggésre. Ráadásul a $\text{HgI}_2:\text{Dy}$ 2,1-es aránya is elég biztonságosan fenntartható, amennyiben egy olyan adalékot viszünk a kisülési csőbe, amely a szobahőmérsékleten még felesleges jódot megkötve tartja, s csupán 300-400 °C körüli hőmérsékleten adja le, amikor a kisülés már néhány száz torr nyomású Hg és TlI gőzben történik. Ekkor már lényegesen nagyobb mértékű a negatív jód ion rekombinációja a nagyobb nyomás és magasabb gáz hőmérséklet következtében, ezért a kisülés nem szűnik meg, s ugyanakkor a Dy-hoz szükséges teljes jódmennyiség is biztosítva van a kisülési csőben.

Larssen és munkatársai/²²/ Hg:TlI adalékos kisülési cső felmelegedési szakaszában lejátszódó jelenségekkel kapcsolatban végeztek vizsgálatokat. A falhőmér-

séklet függvényében tanulmányozták az 535 nm hullámhosszú Tl-vonal, és az 546 illetve 577-579 nm hullámhosszú Hg-vonal intenzitásának változását. Megállapították, hogy a feszültség a Hg-vonalak intenzitás maximumáig növekszik, és utána elég tekintélyes Tl koncentráció mellett is konstans marad. Nem adják viszont meg a vonalintenzitások változásával párhuzamosan az ivfeszültség változását, hanem csupán a végső állapot beálltára adnak magyarázatot, s ugyanakkor a telített gőznyomás beállta utáni Hg vonalintenzitások csökkenésének okáról sem tesznek említést. Így csupán a megfigyelt jelenségeket írják le, de azok többségére nem adnak magyarázatot.

Reiling közleménye/²³/ a különböző fémhaloid adalékos kisülési csövek hatásfokának a betáplált teljesítmény függvényében bekövetkező változását tárgyalja, s a diszkusszióban a különböző fémek ivre gyakorolt hatásáról is említést tesz. Fejtegeti a különböző gerjesztési és ionizációs potenciálu fémek hatását az ivhőmérsékletre és az ivprofilra, s bár mindezt a beállt egyensúlyi ivben teszi, megállapításai a felmelegedési szakaszra is átvihetők.

Dobrusskin/²⁴⁻²⁷/ foglalkozik a ritka-földfém ada-

lékos nagynyomású gázkisüléssel fényforrásokkal, de főleg azok fontosabb működési paramétereit foglalja össze. Megadja a kisülési csövek végső falhőmérsékletét, az egyes adalékok parciális gőznyomását, a lámpa színhőmérsékletét, valamint egyéb optikai és elektromos paramétereket. Vizsgálati módszerekről nem tesz említést, inkább a gyakorlati felhasználás szempontjából előnyös jellemzőket adja meg. Röviden és csak általánosan tárgyalja a felmelegedést, s bemutatja a Dy-adalékos kisüléssel fényforrások jellegzetes, gyújtást követő feszültségfelfutási karakterisztikáját, azonban a közlemény jellegénél fogva nem tárgyalja annak jellegzetes szakaszait.

A fenti áttekintés alapján megállapítható, hogy az eddig megjelent közlemények nem foglalkoznak a kisülési cső felmelegedési szakaszában mérhető ujragyújtási feszültségcsúcsok és az effektív feszültség felfutásának karakterisztikus tulajdonságaival, holott ezek alapján értékes információk nyerhetők a felmelegedési szakaszban a kisülési csövön belül lejátszódó mikrofizikai folyamatokról.



III. CÉLKITÜZÉS

Mint az irodalmi áttekintésből is kitűnik, a nagynyomású gázkisülési csövek felmelegedési szakaszában lejátszódó fizikai és kémiai folyamatokkal kapcsolatban mindeddig kevés olyan tanulmány jelent meg, amely gyakorlatilag is hasznosítható eredményeket tartalmaz.

Ugyanakkor a fémhaloid adalékos gázkisülési csövek kutatásánál valamint gyártásánál felmerül a rendszer sztöchiometriájának /fém:halogén arány/ illetve adalékarányának /fém:fém arány/ viszonylag egyszerű és gyors ellenőrzési igénye. Az egyensúlyi állapotú iv elektromos paramétereinek vizsgálata erre nem látszik alkalmasnak, mivel viszonylag erősen eltérő adalékarányok mellett is lehet biztosítani az azonos elektromos jellemzőket, s a kisüléssel rendszer sztöchiometriájának valamint adalékarányának vizsgálata már csak laboratóriumi körülmények között -- spektrális mérési módszerekkel -- végezhető el. A felmelegedési szakaszban viszont -- amikor a kisülési cső falhőmérséklete a kb. 20 °C környezeti hőmérsékletéről közelítőleg 800 °C-ra melegszik fel -- az elektromos paraméterek változását az egyes fémhalogenidek ivbe történő bepárolgása szabja meg. Amennyiben tehát az egyes adalékok parciális gőznyomása kü-

lönböző mértékben változik a hőmérséklettel, az elektromos paraméterek is különböző mértékben változnak meg, s ez megteremti annak lehetőségét, hogy a makroszkopikus jellemzők vizsgálata révén a mikrofizikai folyamatokra lehessen következtetni.

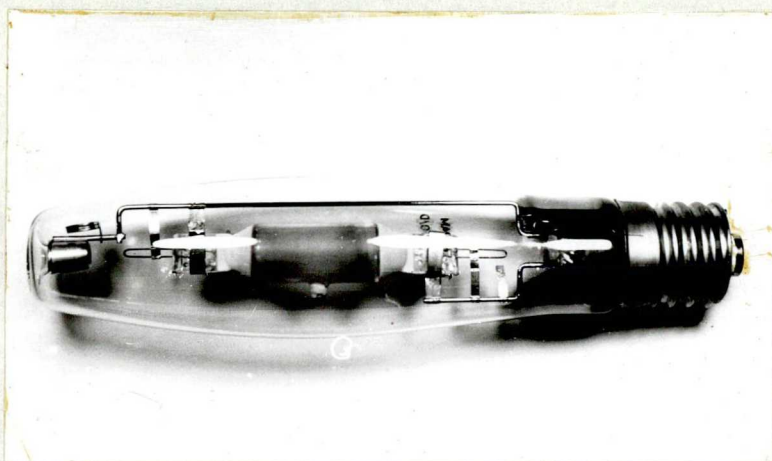
Az elmondottaknak megfelelően célul tűztük ki, hogy az optikai és elektromos paraméterek változásának egyidejű vizsgálata alapján nyomon kövessük a felmelegedési szakaszban lejátszódó fizikai és kémiai folyamatokat, s egyúttal könnyen elvégezhető és gyors mérési módszert dolgozzunk ki a kisülésben jelenlevő adalékok sztöchiometriájának és adalékarányának beállítására illetve ellenőrzésére.

IV. KISÉRLETI FELTÉTELEK, VIZSGÁLATI MÓDSZEREK

1. Kisérleti feltételek

A vizsgálatokat 23 mm külső átmérőjű és 1,5 mm falvastagságú kvarc kisülési csövekkel végeztük, amelyekben az elektródák csucstávolsága 46 mm volt. Az elektródák 1,5 % Th-ot tartalmazó Th-W huzalból készültek. Mind a kisülési cső, mind az elektródák geometriája megegyezett a 400 W-os Hg:TlI:DyI₃ adalékos nagynyomású gázkisüléses fényforrásokban alkalmazott megfelelő méretekkel.

Az ivfeszültség/emissziós vonalintenzitás mérések során a kisülési csöveket vákuumburába szereltük, s az elektródok mögötti kúpos részt kívülről hőreflektáló bevonattal láttuk el, hogy ott a hidegpont kialakulását megakadályozzuk /1. ábra/.



1. ábra

400 W-os Hg:TlI:DyI₃ adalékos nagynyomású gázkisüléses fényforrás

Mivel elsődleges célunk az adalékösszetétel pozitív oszlopra gyakorolt hatásának vizsgálata volt, ezért ál-

landó csőgeometria és elektróda-típus mellett csupán a fémhalogenidek arányát változtattuk az egyes vizsgálatok során.

A kisülési csöveket $\sim 10^{-5}$ torr végvákuumot biztosító laboratóriumi szivattyun készítettük a következő eljárással:

Először az egyes adalékokat / HgI_2 , TlI, Dy, Zr/ állandó szivás alatt külön-külön megfelelő hőkezeléssel gáztalanítottuk, majd légmentesen lezártuk azokat. Ezt követően a közepén szivócsővel ellátott kisülési csövet -- amely már az elektródákat is tartalmazta -- felforrasztottuk a szivattyura, és szintén szivás alatt kb. 1000°C hőmérsékleten gáztalanítottuk, majd a kvarctest lehülése után megtöltöttük kb. 20 torr argonnal. Az elektródák megfelelő gáztalanítása és utóaktiválása érdekében az ilyen módon előkezelt és argonnal töltött kisülési csőben 5 A áramerősségű váltakozó áramu kisülést hoztunk létre, amelynek hatására az elektródák kb. $1800-2000^\circ\text{C}$ hőmérsékletre hevültek fel. Ezen a hőmérsékleten felszabadulnak az elektródákban megkötött gáz szennyeződések, amelyek ezután az argonnal együtt eltávolíthatók a szivattyun levő kisülési csőből. Ezt a két egymást követő eljárást /hőkezelés és iveltetés/ háromszor megismételtük, majd a kisülési csövet kb. 1 atmoszféra

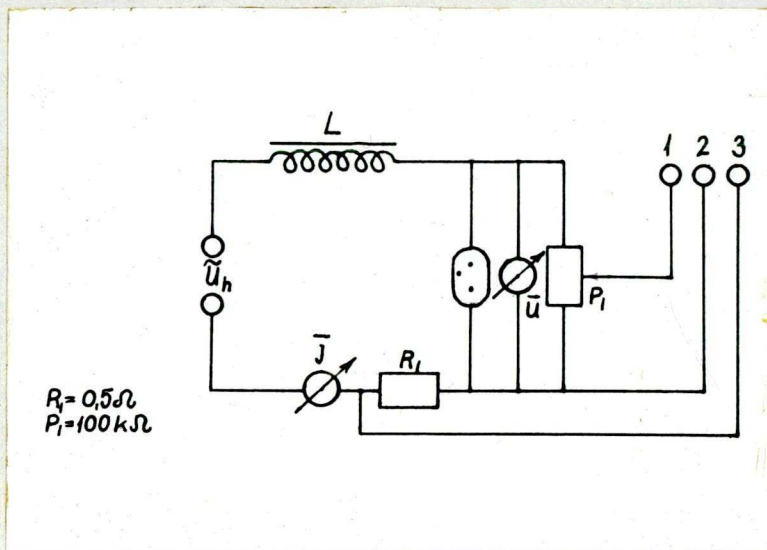
nyomásu argonnal töltve levágtuk a szivattyuról, s beletöltöttük a már előzőleg gáztalanított adalékokat. Ezt követően a már adalékkal töltött kisülési csövet ismét leforrasztottuk a szivattyura, s a végvákuum elérése után 20 torr argonnal megtöltve leforrasztottuk onnan, s amennyiben szükséges volt, vákuumburába szereltük. Ez a technológia biztosítja a gáztér nagyfoku tisztaságát.

2. Vizsgálati módszerek

a/ Ivfeszültség/emissziós vonalintenzitás mérések

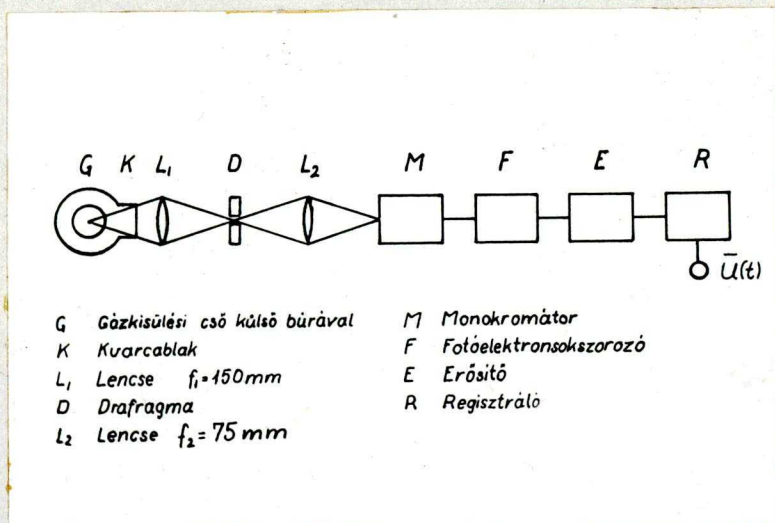
Vizsgálataink során első lépésként egy olyan mérési elrendezést alakítottunk ki, amellyel egyidejűleg lehetett regisztrálni a kisülési cső kapcsain mért feszültségnek és az egyes adalékok emissziós vonalintenzitásának változását a gyújtást követő felmelegedési szakaszban. A kisülési cső alapkapcsolását a 2.a. ábra, míg a teljes mérőkör blokkvázlatát a 2.b. ábra mutatja be.

A 2.a. ábrán látható L áramkorlátozó előtét egy szabvány méretezésű, 400 W-os Hg-gőz lámpához használt 100 mH induktivitású fojtótekercs. Az R_1 ellenállás és a P_1 potenciométer a kisülés áramának illetve feszültségének regisztrálásához szükséges jelet szolgáltatja. Az 1-2 valamint a 2-3 kapcsokon megjelenő jel a feszült-



2.a. ábra

A kisülési cső alapkapcsolása



2.b. ábra

A teljes mérőkör blokkvázlata

ség és az áram effektív, illetve csúcserőértékének regisztrálására egyaránt alkalmas, valamint egyidejűleg biztosítja az egy perióduson belüli változások oszcilloszkóppal történő megfigyelését is.

A 2.b. ábra az iv leképezésével együtt mutatja az egyszerűsített blokkvázlatot. Az L_1 és L_2 lencsék az iv határolására szolgáló R részen keresztül az UM-2 típusú monokromátor belépő részére képezik le az ivet. Az érzékelésre használt fotoelektron sokszorozó áramával arányos feszültség erősítés után egy Brüel-Kjær regisztrálóra kerül, s ide csatlakoznak a 2.a. ábra 1-2 és 2-3 kapcsain megjelenő feszültségek is. A Brüel-Kjær egy egycsatornás regisztráló, amely azonban a "Response Test Unit 4409" tartozékkal kétcsatornássá alakítható, s így alkalmas a vonalintenzitás valamint az ivfeszültség vagy az iváram effektív illetve csúcserőértékének egyidejű regisztrálására.

b/ Ujragyújtási csúcshőfeszültség mérése

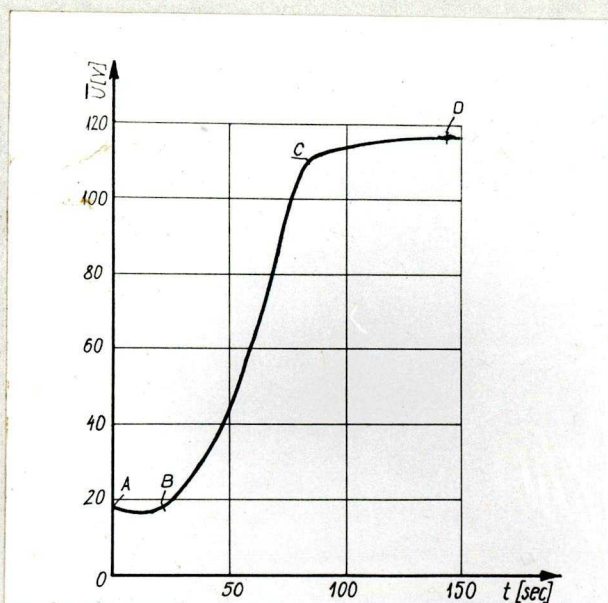
Az ujragyújtási csúcshőfeszültség mérését valamint regisztrálását a 2.a. ábra 1-2 pontjára csatlakoztatott Brüel-Kjær regisztrálóval és ugyanilyen típusú csúcshőfeszültségmérő műszerrel végeztük. Ide csatlakoztattuk az SZI-17 típusú oszcilloszkópot is, amellyel a feszültség abszolút értékét és a jelalakot tudtuk vizsgálni.

V. EREDMÉNYEK

1. Ivfeszültség/emissziós vonalintenzitás változása a felmelegedési szakaszban

a/ Egykomponensű rendszerek feszültség felfutási karakterisztikái

A falstabilizált kisülések \bar{U}/t effektív feszültség felfutási karakterisztikáinál a legegyszerűbb alakot az un. egykomponensű rendszerek -- így a Hg-gőz kisülések -- adják, amelyeknél a pozitív oszlop térerősségének időbeli növekedését, s ilymódon a rendszer kapcsolófeszültségét a bepárolgó Hg-gőz szabja meg/²⁰/. A 2.a. ábra 1-2 kapcsainál regisztrált \bar{U}/t karakterisztika Hg-gőz kisülésre kapott alakját a 3. ábra mutatja.



3. ábra

Hg-gőz kisülés tipikus feszültség felfutási karakterisztikája

Ennél a rendszernél figyelembe véve, hogy a kapcsolófeszültség, s a pozitív oszlop térerőssége elsősorban a Hg-atomok koncentrációjának függvénye, így a 3. ábrán bemutatott karakterisztika aránylag egyszerűen értelmezhető:

- Az \overline{AB} szakaszban a Townsend-féle lavina-folyamatok következtében előbb glimm, majd ivkisülés alakul ki; a pozitív oszlop vezetőképessége igen nagy, és a kapcsolófeszültség értéke közelítőleg az anódi és katódi terek összege.
- A \overline{BC} szakaszban az argon kisülés által disszipált hőteljesítmény következtében a T_f falhőmérséklet fokozatosan emelkedik, s ezzel növekszik a Hg-koncentráció, csökkennek a λ_e elektron szabad úthosszak, nő az \overline{E} térerősség.
- A C pontban elpárolog a teljes Hg-mennyiség, a rendszer telítetlen gőz állapotba kerül, s a további falhőmérséklet illetve plazmahőmérséklet növekedés már csak $p_{Hg} \sim kT$ arányu nyomásnövekedést eredményez.
- A D pontban a rendszer eléri üzemi állapotát -- lokális termodinamikai /LTE/ állapotba kerül/²⁰/ -- s a térerősség értéke már számítható az alábbi, LTE-feltételek alapján levezetett összefüggésből:

$$\bar{E}_z = C \cdot \frac{P^{1/2}}{(P - P_v/V_i) \cdot 4\bar{V}} \cdot \frac{m(V_i/4\bar{V})^{1/4}}{d^{3/2}} \quad /1/$$

ahol $P = \bar{E}_z I$ a betáplált villamos teljesítmény

P_v a hővezetési veszteség

V_i a Hg-atomok ionizációs potenciálja

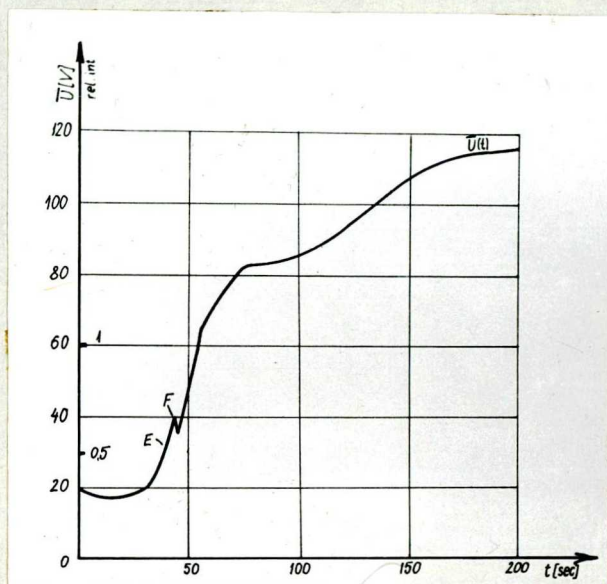
\bar{V} a Hg-atomok közepes gerjesztési potenciálja

d a pozitív oszlop hosszúsága

C a kisülési körülményektől függő állandó

b/ Többkomponensű rendszerek feszültség és vonalintenzitás felfutási karakterisztikái

Lényegesen bonyolultabb a felfutási karakterisztikák értelmezése az un. többkomponensű rendszereknél, ahol az egyes komponensek bepárolgási folyamatain túlmenően /amelyek az ivösszehuzódási és kiszélesedési effektusok miatt egymagukban is bonyolult vezetőképesség változást eredményeznek/, fontos szerepet játszanak a különböző disszociációs folyamatok, valamint az elektronegatív gázok /pl. jód/ elektronbefogási jelenségei is. A 4. ábra egy Hg:TlI:DyI₃ adalékos kisülési cső jellegzetes effektív feszültségfelfutási karakterisztikáját mutatja be.



4. ábra

Hg:TlI:DyI₃ adalékos kisülés tipikus feszültség felfutási karakterisztikája

A továbbiakban az ilyen többkomponensű rendszerek \bar{U}/t felfutási karakterisztikáinak vizsgálatával, és az egyes adalékok miatt fellépő karakterisztikus pontok értelmezésével foglalkozunk, lehetőséget teremtve ezzel az LTE modell keretében nem vizsgálható, s az irodalomban még nem tárgyalt átmeneti folyamatok jobb megértésére.

A kisülés felmelegedési szakaszában lejátszódó kölcsönhatási folyamatok tisztázása érdekében a 2.b. ábrán látható kísérleti elrendezéssel az \bar{U}/t feszültség fel-

futási karakterisztikával párhuzamosan regisztráltuk az egyes adalék fémek atomjai által emittált spektrumvonalak relativ intenzitását. Feltételeztük, hogy az egyes adalékok bevándorlásának kezdeti szakaszában a fémadalékok atomjai által emittált spektrumvonalak szempontjából a plazma optikailag vékony réteggként viselkedik, s így első közelítésben az intenzitás növekedés arányos a koncentráció növekedésével. /Ez utóbbi állítás kísérleti bizonyítására később még visszatérünk/.

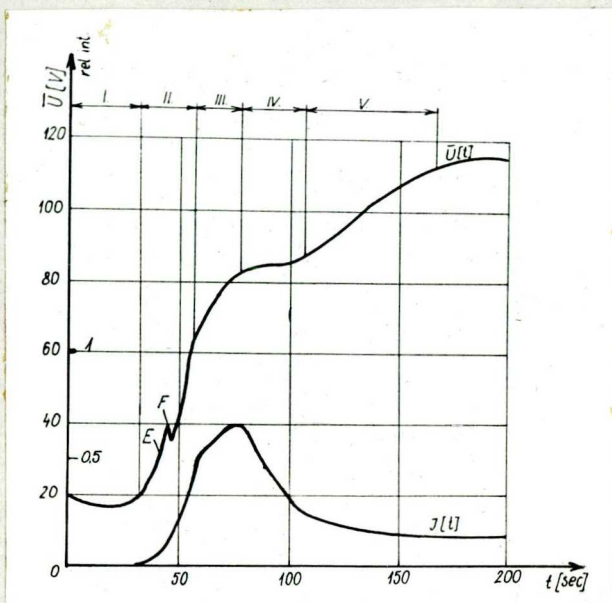
Méréseink azt mutatták, hogy az $\bar{U}/t/$ felfutási karakterisztika jellegzetes töréspontokat mutat azokban az időpontokban, amelyekben az egyes fémek atomjai által emittált spektrumvonalak intenzitás növekedése megindult vagy telítésbe ment át.

Mivel a monokromátorral végzett mérések néhány jellegzetes karakterisztika tulajdonságra nem adtak választ, így vizsgálataink második szakaszában a feltehetően molekuláris folyamatok eredményeként jelentkező effektusok tisztázása érdekében az $\bar{U}/t/$ karakterisztika jellegzetes pontjaiban egy PGS-2 típusu spektrográf segítségével felvettük a kisülés teljes spektrumát a 2300 Å-től a 6500 Å-ig terjedő hullámhossz-tartományban.

Vizsgálataink során az $\bar{U}/t/$ felfutási karakterisz-

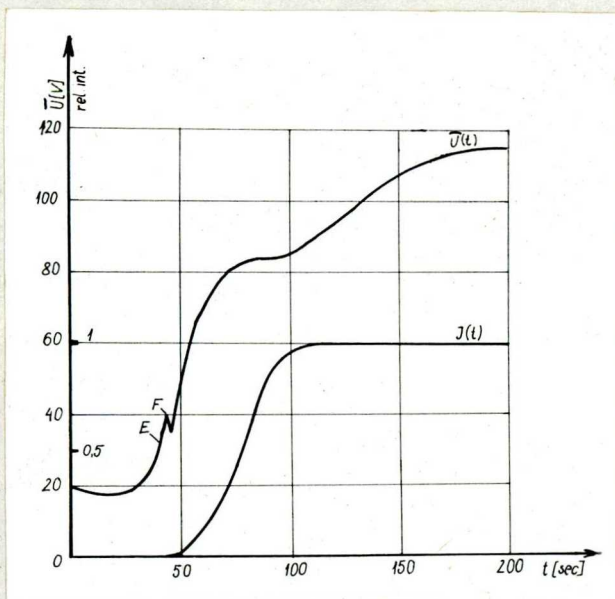
tikával párhuzamosan meghatároztuk a Hg $7^3S_1-6^3P_1$, $7^3S_1-6^3P_2$ és $7^3S_1-6^3P_0$ átmeneteihez, valamint a Tl $7^2S_{1/2}-6^2P_{3/2}$ és $9^2P_{1/2}-7^2S_{1/2}$ átmeneteihez tartozó spektrumvonalak relativ intenzitását az idő függvényében. A Dy esetében csak az adott vonalhoz tartozó energiaszintek értékét adjuk meg, mivel a ritka-földfémek elektron konfigurációja csak részben ismert/²⁸⁻³⁰/. Így adott esetben a 15000 cm^{-1} energiák felett hiányoznak az ide vonatkozó adatok; mértük a $23736 - 0\text{ cm}^{-1}$, valamint a $27837 - 4134\text{ cm}^{-1}$ és $30788 - 7050\text{ cm}^{-1}$ energiaátmenetekhez tartozó spektrumvonalak intenzitás felfutását. Az alábbiakban példaként bemutatjuk a $7^3S_1-6^3P_1$ átmenethez tartozó 436 nm hullámhosszu Hg-vonal /5. ábra/, a Tl $7^2S_{1/2}-6^2P_{3/2}$ átmenethez tartozó 535 nm hullámhosszu vonalának /6. ábra/, valamint a Dy $421,12-421,32\text{ nm}$ hullámhosszu vonalpárosának /7. ábra/ intenzitás felfutását az idő függvényében az $\bar{U}/t/$ karakterisztikával együtt. Itt jegyezzük meg, hogy a Dy vonalai olyan sűrűn helyezkednek el, hogy az alkalmazott monokromátor nem volt alkalmas a fenti vonalpáros elkülönítésére.

A bemutatott karakterisztikákból látható, hogy az $\bar{U}/t/$ feszültség-görbén az egyensúlyi helyzet beálltáig öt jellegzetes tartomány különíthető el /4. ábra/.



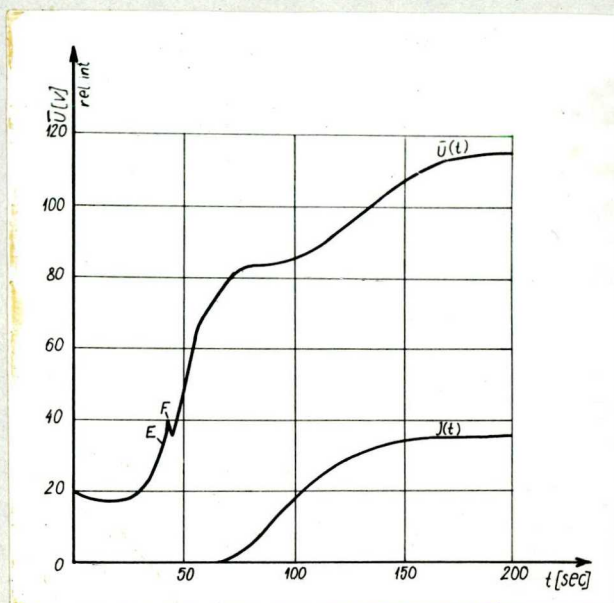
5. ábra

A Hg:TlI:DyI₃ adalékos kisülés kapcsolófeszültségének és a 436 nm hullámhosszu Hg-vonal intenzitásának időbeli változása



6. ábra

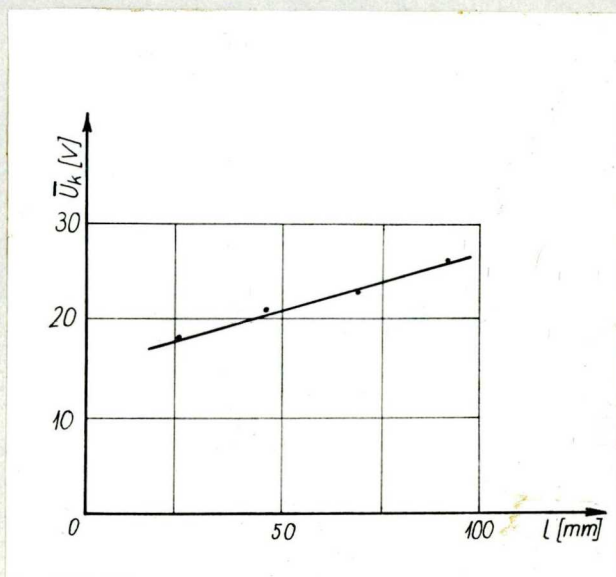
A Hg:TlI:DyI₃ adalékos kisülés kapcsolófeszültségének és az 535 nm hullámhosszu Tl-vonal intenzitásának időbeli változása



7. ábra

A Hg:TlI:DyI₃ adalékos kisülés kapocsfeszültségének és a 421,12-421,32 nm hullámhosszu Dy-vonalpáros intenzitásának időbeli változása

I. Mivel az adalékok jodidjainak parciális nyomása szobahőmérsékleten elhanyagolhatóan kicsi, így az átütés a kb. 20 torr argon és 10^{-3} torr nyomásu higany Penningkeverékében történik, s az ivkialakulás után mért 20 V-os kapocsfeszültség a katódi és anódi terek összegeként adódik, mint az a 8. ábrából is kitűnik, ahol 20 °C falhőmérsékleten az \bar{U}/t_1 kapocsfeszültség alakulását mutatjuk be különböző elektróda távolságok mellett.



8. ábra

Különböző elektróda távolságu A:Hg adalékos kisülési csövek 20 °C falhőmérséklet mellett mért kapcsolófeszültsége

II. A második intervallumban megindul a Hg bepárolgása a kisülési térbe, amelyet a Hg atomi vonalainak gyors intenzitás növekedése igazol. Mérőberendezésünk érzékenységi tartományában ekkor még sem a Tl sem pedig a Dy atomi vonalai nem jelentkeznek mérhető intenzitással, így a feszültségnövekedést a Hg-gőz koncentráció növekedése okozza, s a hővezetési veszteségeken túlmenően a betáplált energia a Hg-atomok gerjesztésére és ionizációjára fordítódik.

III. A falhőmérséklet fokozatos növekedése következtében / ~ 300 °C-nál/ megkezdődik a Tl bepárolgása a rendszerbe, de ugyanakkor tovább növekszik a Hg koncentrációja is. Átmenetileg mérséklődik a kapocsfeszültség növekedése, csökken a Hg-vonalak intenzitás felfutásának meredeksége, amely az alacsony gerjesztési és ionizációs potenciálu /6,3 eV/ Tl hatására megváltozott effektív hatáskeresztmetszetek következménye.

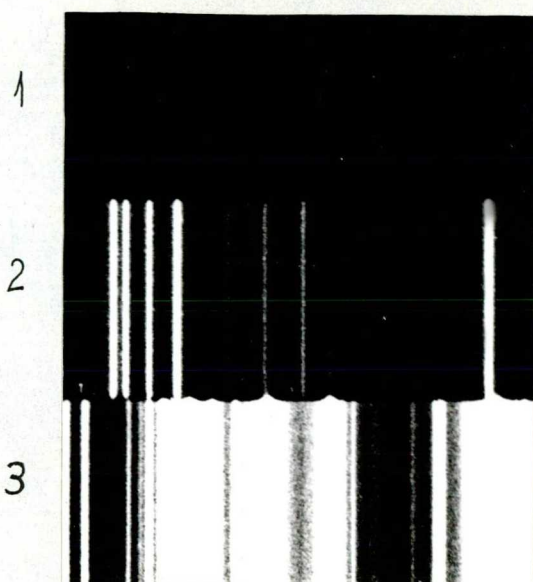
IV. Ezen tartomány kezdeti szakaszában a növekvő falhőmérséklettel párhuzamos bepárolgási folyamatok következményeként beáll a Hg végkoncentrációja, s ugyanakkor megindul a Dy koncentráció felfutása /kb. 450-500 °C-tól/, míg a tartomány végénél telítési szakaszba jut a tallium. A viszonylag lassu feszültségnövekedés azzal magyarázható, hogy megszűnt a Hg további párolgása, s a Tl -- mint azt az előző pontban említettük -- nem növeli lényegesen az iv ellenállását, sőt bizonyos esetekben még csökkenti is, azt, amely a kapocsfeszültség csökkenését vonhatja maga után.

V. A további feszültségnövekedés a DyI_3 folyamatos bepárolgásának tudható be, mivel a három vegyértékű vegyület disszociációjakor viszonylag nagy mennyiségű jód szabadul fel, amely csökkenti az iv vezetőképességét.

Bár a IV. tartományban már megkezdődik a DyI_3 bepárolgása, ez nem okoz lényeges feszültségnövekedést, mivel ekkor még tart a Tl koncentráció növekedése, s ez bizonyos mértékig kompenzálja a DyI_3 által okozott vezetőképesség csökkenést.

Az egyes adalékok atomjai által emittált spektrumvonalak felfutása alapján kvalitatív módon jól értelmezhető tehát az \bar{U}/t feszültség karakterisztika minden jellegzetes pontja, az F-fel jelölt pont kivételével, amely nagy valószínűséggel a kisülési csőbe bevitt Zr-getter jódvegyületeinek a körfolyamatban való részvételére vezethető vissza. Hasonlóképpen nem adtak választ a monokromátorral végzett vizsgálatok a jód felfutási karakterisztikára gyakorolt hatására sem.

A fenti problémák további vizsgálata érdekében egy PGS-2 típusu, a Zr-vonalak elkülönítésére alkalmas spektrográf segítségével az F karakterisztika pont környezetében 5 s expozíciós idővel felvételeket készítettünk. A spektrográf belépő részére a kisülés pozitív oszlopának középső részét képeztük le oly módon, hogy a rés merőleges volt a kisülési cső tengelyére. A felvett spektrum 4226-4243 Å hullámhossz-tartományba eső részét példaként a 9. ábrán mutatjuk be, a hitelesítésre használt vas-színképpel együtt.



9. ábra

A regisztrált spektrum a 4243 - 4226 Å hullám-
hossz-tartományban

1 - A kisülés spektruma az E karakterisztika-pont
környezetében; 2 - az F pont környezetében azono-
sitott Zr-vonalak; 3 - a hitelesítő vas iv spektruma

A szinképfelvételek alapján megállapítható, hogy az E pont környezetében a Hg atomi vonalain kívül egyetlen fémkomponens vonalai sem jelentkeznek, ugyanakkor az F pont környezetében már a Zr atomi vonalai dominálnak, s emellett jelentős intenzitású folytonos sugárzás is fellép, amely a jódt atomok elektronaffinitási effektusainak tudható be.

A viszonylag alacsony /200-250/°C/ falhőmérsékleten intenzíven megindul a ZrI_4 bepárolgása az ivbe, ahol az fém Zr-ra és atomi jódra bomlik, azaz:



Az elektronegativ jódot atomok egy elektron befogása, és az új elektron konfigurációnak megfelelő alapállapotba történő átmenet során a befogott elektron kinetikus energiájától függő hullámhosszú sugárzást emittálnak^{/31/}, amelynek hosszú hullámu küszöbértékét az alábbi egyenlet adja:

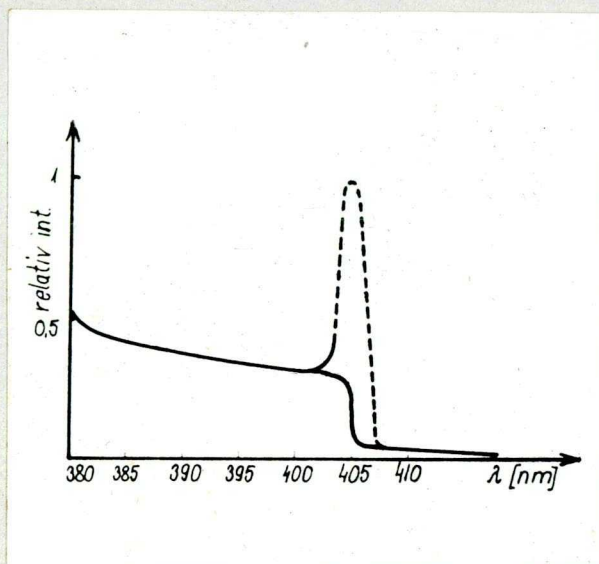
$$e(v=0) + J(^2P_{3/2}) = J(^1S_0) + \frac{hc}{\lambda_k} \quad /3/$$

ahol hc/λ_k a $I(^2P_{3/2})$ atom elektronegativitási energiája = 3,06 eV.

A /3/ összefüggés alapján meghatározott hullámhossz értéke tehát:

$$\lambda_k = 4048 \text{ \AA}$$

A folytonos spektrum ezen küszöbértéktől az elektron energiák nagyságának megfelelően terjed a rövidebb hullámhossz-tartományok felé. Az általunk vizsgált kisülékes rendszer-nél az $\bar{U}/t/$ karakterisztika F pontjában felvett szinképe-ken ez az affinitási kontinuum jól azonosítható, s a fo-tometrált intenzitás-eloszlást a 10. ábra mutatja.



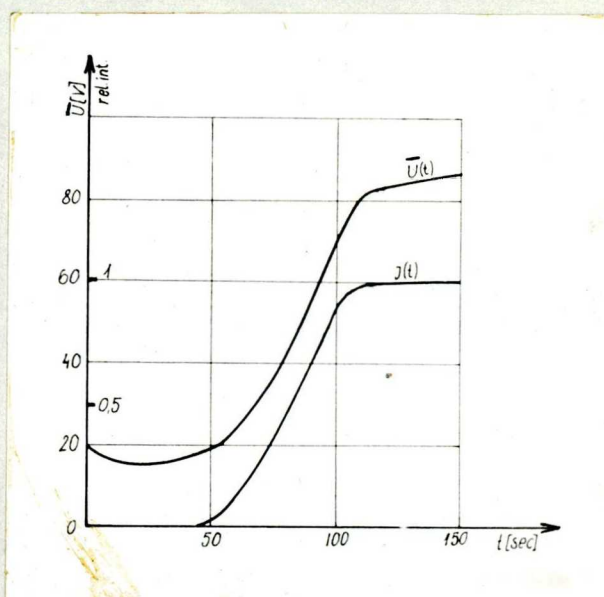
10. ábra

A $I/2P_{3/2}$ elektronaffinitási kontinuum.
--- a Hg 4046,5 Å hullámhosszu vonala

Az F pontban jelentkező karakterisztika változás ilymódon a ZrI_4 disszociációs jelenségeinek, s a szabaddá vált jó elektron befogási effektusainak tudható be.

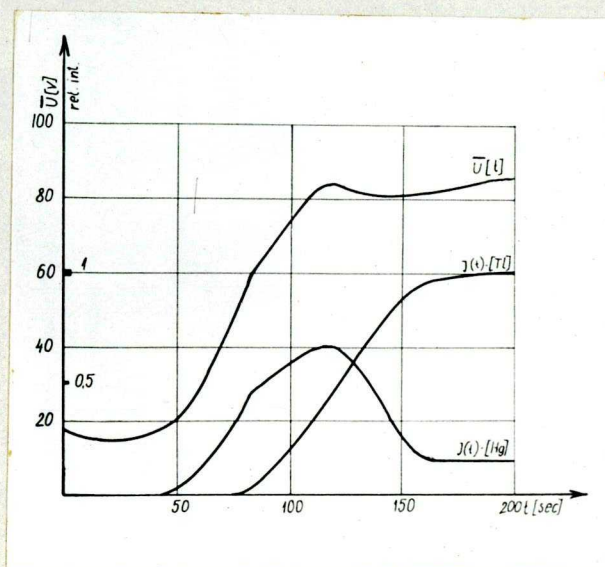
A vizsgálatok kezdetén feltételeztük, hogy az egyes adalékok bepárolgásának kezdeti szakaszában az emittált atomi vonalak intenzitásának növekedése a koncentráció növekedéssel arányos. Felmerül a kérdés azonban, hogy a IV. szakaszban tapasztalható Hg-vonal intenzitások csökkenésében nem játszik-e lényeges szerepet az önabszorpció az ütközési keresztmetszetek, és más -- a Hg atomok gerjesztését befolyásoló -- tényezők változása mellett:

Ennek eldöntésére modelleszöveket készítettünk Hg és Hg:TlI adalékkal, amelyek mennyiségét úgy állítottuk be, hogy az első "váll" feszültségét modellezzék, s a már ismertetett vizsgálatokat ezeken a csöveken is elvégeztük. A kapott eredményeket a 11. és 12. ábrák mutatják, amelyekből egyértelműen kiderül, hogy a Hg:TlI adalékos kisülési csőben a Hg atomi vonalainak intenzitás csökkenését nem a Hg-vonalak önabszorpciója okozza, mivel a tiszta Hg-adalékos kisülési csőben nem jelentkezik ez a csökkenés.



11. ábra

A Hg adalékos kisülés kapcsolófeszültségének és a 436 nm hullámhosszu Hg-vonal intenzitásának időbeli változása



12. ábra

A Hg:Tl1 adalékos kisülés kapocsfeszültségének és a 436 nm hullámhosszu Hg-vonal valamint az 535 nm Hullámhosszu Tl-vonal intenzitásának időbeli változása

Amennyiben az

$$n_m = n_0 \frac{g_m}{g_0} e^{-E_m/kT} \quad /4/$$

ahol n_m az m-edik gerjesztett állapotban levő atomok száma;

n_0 az összes atomok száma;

E_m az m-edik gerjesztett állapot energiája;

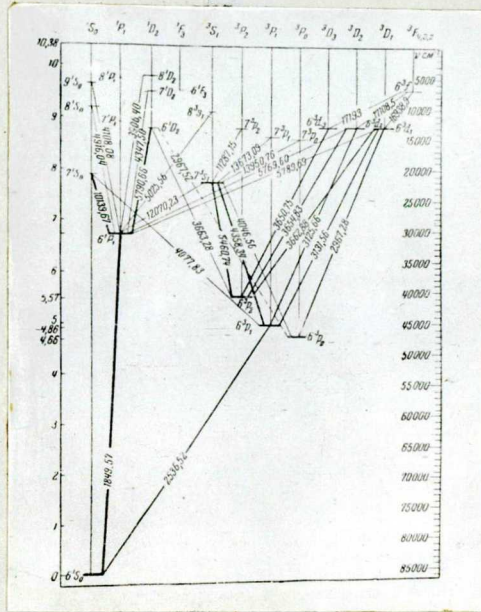
k a Boltzmann-állandó

T az abszolút hőmérséklet

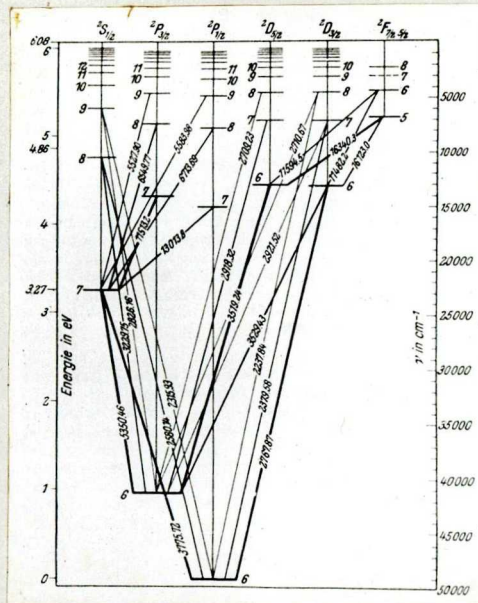
g_0, g_m az alapállapot illetve az m-edik szint statisztikus sulya

egyensúlyi állapotra vonatkozó Boltzmann-eloszlást vizsgáljuk -- amely a felfutott modelleszövekre már alkalmazható -- megállapíthatjuk, hogy egy bizonyos szintre gerjesztett állapotú atomok számának csökkenése elsősorban a hőmérséklet csökkenése miatt következhet be /amennyiben n_0 nem növekszik, tehát a bepárolgás megszűnt/. A Tl bepárolgása az alacsonyabb ionizációs potenciál miatt /6,3 eV/ növeli az iv vezetőképességét, s egyuttal lecsökkenti az iv hőmérsékletét is, amely a Hg-atomok gerjesztett állapotainak csökkenő betöltöttségét vonja maga után. A Hg:TlI kisülésben tehát a végső beállt hőmérsékleten, amikor már n_0 nem változik, a Hg-hoz képest alacsonyabb gerjesztési szintű Tl-vonalak dominálnak /lásd a 13.a. és 13.b. ábrákon bemutatott termsémákat/, s a Hg-vonalak csökkenését nem az önabszorpció, hanem egyrészt a lecsökkent ivhőmérséklet, másrészt pedig a Tl-hoz képest magasabb gerjesztési szintek okozzák.

A Hg:TlI adalékos kisülés igen jól modellezi a Hg:TlI:DyI₃ adalékos kisülés I.-IV. tartományát /az F pont kivételével/, s az itt bővebben tárgyalt folyamatokkal jól értelmezhetők a 3-adalékos rendszer megfelelő tartományaiban lejátszódó változások.



13.a. ábra
A Hg termsémája



13.b. ábra
A Tl termsémája

2. A HgI₂ hatása az ujragyújtási csúcsfeszültség karakterisztikára

A kisülési csőbe bevitt fém/halogén aránytól, valamint a kisülés üzemi viszonyaitól függően, a kisülési cső kikapcsolása után a fényt emittáló fémek haloidjain kívül kialakulhat bizonyos mennyiségű higanyhaloid is, amely alapvető mértékben befolyásolja a kisülési cső későbbi átütési és ujragyújtási karakterisztikáit, mivel a higanyhaloidok a kisülési cső begyújtási hőmérsékletén -- szobahőmérsékleten -- viszonylag nagy, kb. 10^{-3} - 10^{-2} torr parciális telítési nyomással rendelkeznek a 20 torr argon gyújtógáz mellett.

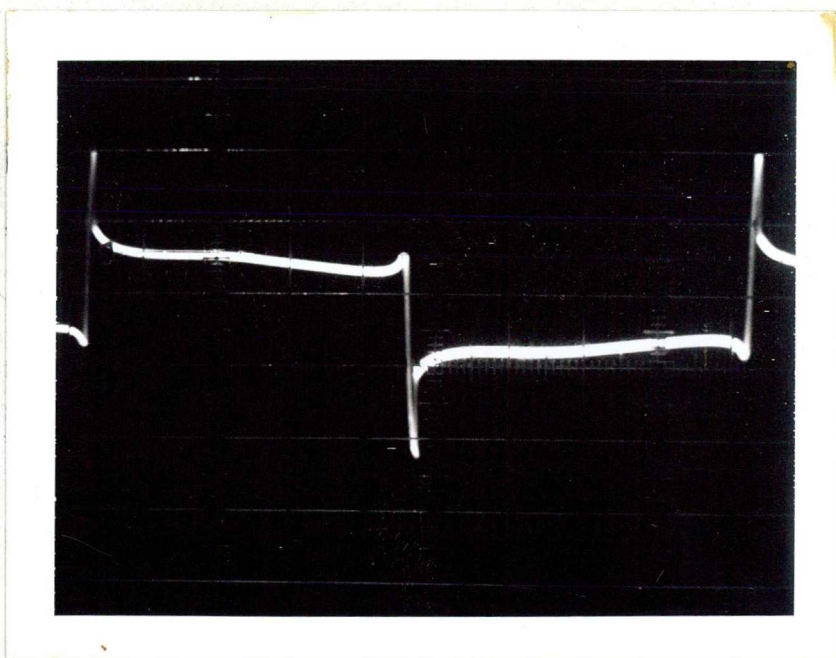
A kisülési csőben a működést követő kikapcsolás után kialakuló Hg-haloid mennyiségének meghatározása tehát igen fontos, mivel ennek ismerete lehetőséget nyújt a fém/halogén arány helyes megválasztására, s az optimális gyújtási tulajdonságok biztosítására.

A mennyiségi összefüggések tisztázása érdekében kiindulási vizsgálatainkat Hg:HgI₂ rendszerekben végeztük, mérve az ujragyújtási feszültség csúcsok változását az idő függvényében, különböző HgI₂ mennyiséget tartalmazó kisülési csöveknél.

A már ismerttetett csőgeometria és mérés-elrendezés

segítségével vizsgáltuk 2; 5; 7,5; 8,3 és 10 mg HgI_2 adalékot tartalmazó Hg-gőz kisülési csövek ujragyújtási karakterisztikáit, mérve az ujragyújtási feszültség csúcsok változását a kisülés begyújtásától a stacioner, egyensúlyi üzemi körülmények beálltáig.

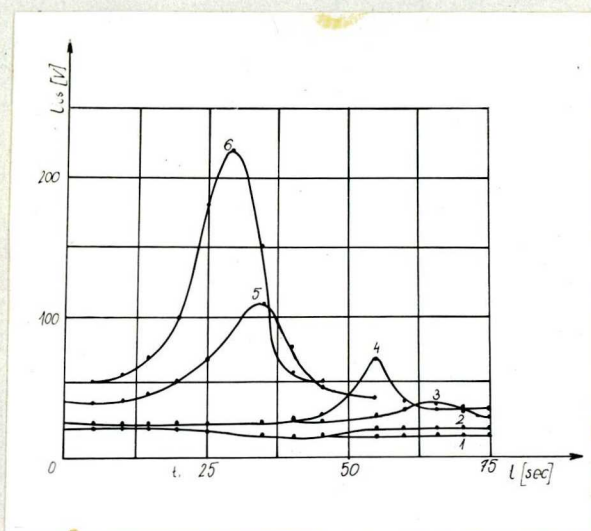
A szinusz-alaku váltakozó feszültségről üzemeltetett kisülési cső tipikus feszültségkarakterisztikáját -- egy perióduson belül -- a felfutási szakasz t_1 pillanatában a 14. ábra mutatja be.



14. ábra

A Hg: HgI_2 adalékos nagynyomású kisülési cső kapcsolófeszültségének változása a tápfeszültség egy periódusán belül a bekapcsolást követő t_1 időpillanatban

Az ábrán látható, hogy a feszültség periódus váltásakor a haloid adalék jelenléte következtében kiugró ujragyújtási feszültség csucs U_{cs} alakul ki. A további mérések során ezen U_{cs} feszültség-amplitudó változását mértük a felfutási idő függvényében. A különböző mennyiségű HgI_2 -t tartalmazó kisülési csövek U_{cs}/t felfutási karakterisztikáit a 15. ábrán láthatjuk.



15. ábra

A különböző mennyiségű HgI_2 adalékot tartalmazó kisülési csövek U_{cs}/t felfutási karakterisztikái

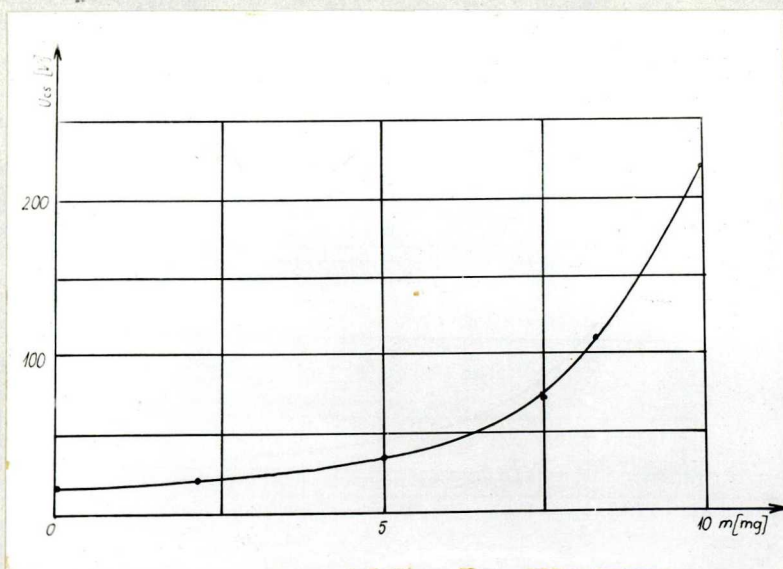
$p_A = 20$ torr; $m_{Hg} = 20$ mg; $m_{HgI_2} = 0$ /1/; 2 /2/; 5 /3/; 7,5 /4/; 8,3 /5/; 10 /6/ mg.

Az ábra alapján megállapítható, hogy a felfutási idő meghatározott pillanataiban az egyes görbék maximális értéket vesznek fel, majd azon túlhaladva fokozatosan csökkennek, s stacioner üzemi állapotban állandó szintre állnak be. Az ujragyújtási feszültség alakját Waymouth magyarázta meg, aki olajfürdőben különböző hőmérsékleteken stabilizálta a HgI_2 adalékot tartalmazó kisülési csövet, s a hőmérséklet függvényében vizsgálta az U_{cs} feszültség csucs felfutását. A kisülési cső felmelegedésének kezdeti szakaszában a kisülési áram nullaátmeneteinél az elektronegativ jód elektronbefogó hatása következtében lecsökken a plazma vezetőképessége, s a következő félperiódusban a megfelelő vezetőképesség biztosításához nagy ujragyújtási feszültségre van szükség. A falhőmérséklet növelésével egyre nagyobb mennyiségű HgI_2 párolog be a rendszerbe, s így egyre nagyobb a nullaátmenetben fellépő vezetőképesség csökkenés -- egyre nagyobb a szükséges ujragyújtási feszültség.

A falhőmérséklet növekedésével azonban növekszik a kisülési csőben a Hg-gőz parciális nyomása is, s ennek következtében nő a rendszer közepes termikus energiája. Egy kritikus falhőmérsékleten /kb. 200°C /, s így egy kritikus Hg-gőz nyomáson túl a kisülési plazma termikus

energiája már elegendő arra, hogy a tápfeszültség nulla-átmeneteiben a részecskék közötti ütközések során az ütközési energia leszakítsa a befogott elektronokat a negatív jód ionokról, s így a továbbiakban már mérséklődik a feszültség nulla-átmeneteiben fellépő vezetőképesség-csökkenés -- az ujragyújtási feszültség görbe a továbbiakban csökkenő tendenciát mutat.

Amennyiben a 15. ábrán az egyes HgI_2 adalék mennyiségekhez tartozó $U_{cs}/t/$ görbék maximumait ábrázoljuk a kisülési csőbe bevitt adalék mennyiségének függvényében, akkor a 16. ábrán látható parabolikus görbéhez jutunk.



16. ábra

Az $U_{cs}/t/$ karakterisztikák maximális értékei a kisülési csőbe bevitt HgI_2 mennyiség függvényében

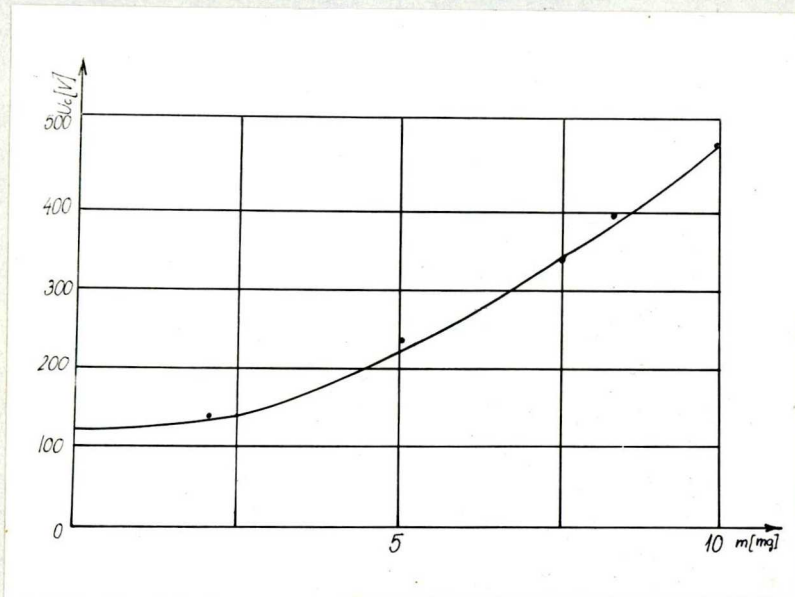
A 16. ábrából közvetlenül leolvasható, hogy mekkora az a HgI_2 mennyiség, amelynél a kisülési cső ujragyújtását az adott előtét rendszer még biztosítani tudja. Ez a görbe ugyanakkor alkalmas arra is, hogy az adott kisülési cső geometriai viszonyai mellett megállapítsuk a reális fémhaloid adalékos lámpákban a kikapcsolást követő lehülés során kialakuló HgI_2 mennyiségét.

További vizsgálatok szükségesek azonban annak megállapítására, hogy a 15. ábrán látható $U_{cs}/t/$ feszültség felfutási görbék kezdeti értékei miért növekszenek az egyes kisülési csövekbe bevitt HgI_2 adalék mennyiséggel; az egyes kisülési csövekbe általunk bevitt HgI_2 mennyiségek ugyanis szobahőmérsékleten telített gőznyomást biztosítanak a csőben, s így a kezdeti időpillanatban a gázternek azonos parciális nyomással rendelkező komponensekből kellene állnia.

Nyilvánvaló, hogy itt két alapvető effektus jöhet szóba: magas elektród kilépési munka, illetve valamilyen gáztérszennyező jelenléte. Ezen kérdés eldöntése érdekében kapacitív átütési vizsgálatokat folytattunk, a fentiekben megadott adalékokat tartalmazó kisülési csövek-nél.

A méréseket a /³²/ hivatkozásban leírt mérőberendezés és módszer segítségével végeztük el oly módon, hogy

a kapacitív szondákat a kisülési cső falának olyan részeinél helyeztük el, ahol a fal belső oldala mentes volt a lerakódott adalékoktól. A kapacitív átütési feszültség mérésének eredményeit a 17. ábrán mutatjuk be.



17. ábra

A kapacitív átütési feszültség változása a kisülési csőbe bevitt HgI_2 mennyiség függvényében $d = 10 \text{ mm}$

A mérési eredmények azt mutatják, hogy a növekvő HgI_2 adalék mennyiséggel növekszik a kapacitív átütési feszültség; a korábbi megfontolásokat figyelembe véve, ez csak azt jelentheti, hogy növekszik valamely átütési szí-



lárdságot növelő gázszennyezés koncentrációja a gáztérben.

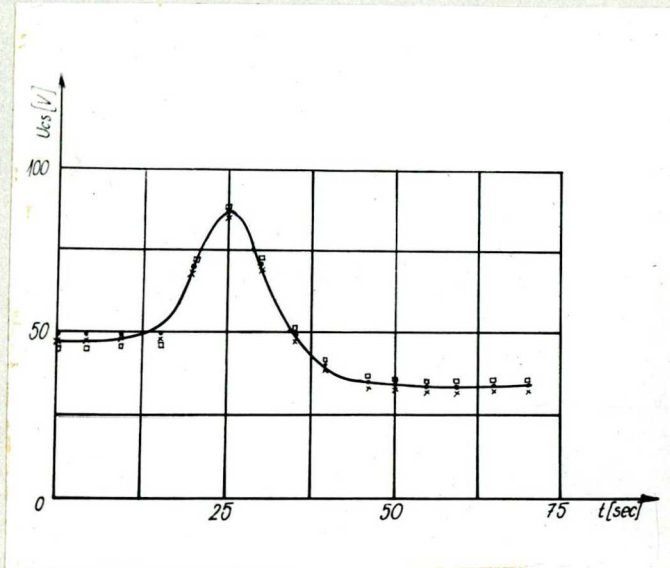
A gáztérszennyezés azonosítására irányuló vizsgálatink során kvalitatív spektrális méréseket végeztünk, amelyek alapján megállapítottuk, hogy a bevitt HgI_2 mennyiséggel arányosan növekszik az egyes kisülési csövekben az azonosított H_2 szennyezés koncentrációja. Ebből arra a következtetésre jutottunk, hogy adott esetben a H_2 szennyezés a HgI_2 bevitele során -- a vegyület higroszkóposága következtében -- H_2O formájában került a kisülési csövekbe. A kisülés első begyújtásakor azután a H_2O molekulák disszociáltak, az O_2 többnyire lekötődött az elektrodokon, a hidrogén pedig H_2 vagy HI formájában visszamaradt a kisülési térben; ennek tudható be a 15. ábrán tapasztalható kezdeti kapocsfeszültség eltolódás.

Felvetődik a kérdés, hogy a jelenlevő H_2 szennyezés az ismert gyújtásfeszültség növelésén illetve nagyobb koncentráció esetén, gyújtásképtelenség előidézésén kívül, milyen natással van a fentiekben tárgyalt ujragyújtási csúcspontfeszültség görbe maximumára, azaz mennyiben befolyásolja az ismerttetett módszerrel történő HgI_2 mennyiség meghatározásának pontosságát.

Ezzel kapcsolatban rámutatunk arra, hogy a még elfo-

gadhstó gyújtási feszültséggel rendelkező kisülési csövekben a H_2 szennyezési szint nem haladja meg a 10^{-2} torr nyomást, így a magasabb falhőmérsékleteknél /kb. 180-220 °C/, azaz az ujragyújtási feszültségcsucs görbéjének maximuma környékén a H_2 vagy HI említett parciális nyomása elhanyagolható a Hg és HgI_2 parciális nyomásához viszonyítva /kb. 8 illetve 17 torr/. Erős nemlineáris effektusokra itt nem számíthatunk, mivel elektronegativitás szempontjából a HI és HgI_2 közeli tulajdonságokat mutatnak. Ezen feltevésünket igazolták egyébként a különböző beviteli eljárásokkal készült -- tehát különböző H_2 szennyezésű --, egyébként azonos mennyiségű HgI_2 -t tartalmazó kisülési csövek mérési eredményei is, amelyeknél a kapacitiv átütési feszültség értékek 200-500 V között szórtak /10 mm szondatávolságnál/, s ugyanakkor az ujragyújtási feszültség csucskok 10 %-on belül azonosnak adódtak.

Kiemeljük, hogy változatlan üzemi körülmények között, azonos kikapcsolási feltételek mellett az ujragyújtási feszültség karakterisztikák jól reprodukálhatók, mint azt a 18. ábra is mutatja, ahol egy 400 W-os Hg:TlI:DyI₃ adalékos fémhaloid lámpa ujragyújtási feszültség görbéjét vettük fel a 100 órás égetést követő első, második és harmadik órában. Az egyes mérési görbék felvétele között két órás lehülési időt biztosítottunk.



18. ábra

A csúcsfeszültség felfutási karakterisztika reprodukálhatósága 400 W-os, Hg:TlI:DyI₃ adalékos kisülési rendszerben

- - a 100 órás égetést követő első órában
- x - a 100 órás égetést követő második órában
- - a 100 órás égetést követő harmadik órában

A 18. ábráról az is leolvasható, hogy kb. 8 mg HgI₂ maradt vissza a kisülési csőben a kisülés kikapcsolása után, amely mintegy 4,5 mg I₂ felesleget jelent, holott a HgI₂/Dy arány eredetileg 4:1 volt -- ez felel meg közelítőleg a Dy/I₂ sztöchiometriai aránynak. Természetesen a reális kisüléssel fényforrásokban nem várható, hogy a

sztöchiometriának megfelelő fém/halogén aránynál teljes mértékben lejátszódik a fém és a halogén elem között a reakció, már csak azért sem, mivel kikapcsolás után a rendszer lehülése nemegyensúlyi állapotokon keresztül valósul meg.

Éppen ezért fontos egy olyan diagnosztikai módszer kidolgozása, amely passzív módon, a kisülési rendszer perturbálása nélkül biztosítja a fém/halogén arány ellenőrzését, illetve segítséget nyújt a megfelelő arány beállításához.

Végezetül felvetődhet még a kérdés, hogy a 15. ábrán látható görbék maximumai miért tolódnak el a kisebb értékek felé az idő-tengelyen a növekvő HgI_2 , illetve az említett szennyezési szint függvényében.

Utaltunk már arra, hogy a szobahőmérsékletnek megfelelő falhőmérsékleten a Hg és HgI_2 parciális gőznyomása /telített gőznyomás/ az egyes kisülési csövekben azok mennyiségétől függetlenül azonos, s így azonosnak kell lennie az egységnyi idő alatt a kisülési cső által disszipált energiának is; a gyorsabb parciális nyomás növekedést, s így a gyorsabb csucsfeszültség felfutást eredményező nagyobb teljesítmény disszipáció nagy valószínűséggel a szennyezőként jelenlevő különböző H_2 mennyisé-

geknek tudható be, amelyet a H_2 -vel szennyezett kisülési csöveknél tapasztalható kb. 30-60 V-os kezdeti kapocsfeszültség is igazol, szemben a tiszta Hg-gőz kisülések kb. 20 V-os induló feszültségével.

VI. ÖSSZEFOGLALÓ ÉRTÉKEELÉS

Mint a bevezetőben említettük, célunk az volt, hogy az optikai és elektromos paraméterek felmelegedési szakaszban bekövetkező változásának egyidejű vizsgálata alapján nyomon kövessük az egyensúly beálltáig lejátszódó fizikai és kémiai folyamatokat, s egyuttal könnyen elvégezhető és gyors mérési módszert dolgozzunk ki a kisülésben jelenlevő adalékok helyes arányának és sztöchiometriájának beállítására valamint ellenőrzésére.

Ezen vizsgálatokat a gyakorlati szempontból igen fontos, 400 W-os Hg:TlI:DyI₃ adalékos nagynyomású gázkisülési csöveken végeztük, s kidolgozva a kisülésre alkalmazható vizsgálati módszereket, elemeztük a felmelegedési tartományban lejátszódó fizikai és kémiai folyamatokat.

Ennek során először az ivfeszültség/atomi vonalintenzitás egyidejű vizsgálata alapján megállapítottuk, hogy az \bar{U}/t karakterisztika jellegzetes töréspontjaiért az egyes fémadalékok koncentrációjában bekövetkező változá-

sok felelősek, de nem hanyagolható el az elektronegativ jódinak a kisülési paraméterekre gyakorolt hatása sem.

A továbbiakban már egyszerűen az $\bar{U}/t/$ karakterisztika alapján következtetni lehet a vizsgált típusu kisülési csőben jelenlevő fémadalékok arányára, amely a jelenleg használt bonyolult gyártmány ellenőrzési módszerrel szemben is lényeges egyszerűsítést jelent.

A kisülés indítását követő 20-50 s időintervallumban jelentkező ujragyújtási csúcsfeszültségek vizsgálata arra a következtetésre vezetett, hogy a módszer jól alkalmazható a teljes, 3 adalékos kisülési csőben a kioltás után visszamaradó Hg-halogenidek meghatározására, amennyiben előzőleg megfelelő hitelesítő méréseket végzünk egy adott csőtipusra. Ennek a módszernek elsősorban az új adalékösszetételű fémhaloid kisülések kutatásában van szerepe, mivel az ilyen új rendszerek sztöchiometriáját nem lehet előre meghatározni, ugyanis az egyes halogén vegyületek kialakulása nemegyensúlyi állapotokon keresztül valósul meg a kisülés kioltása után.

A vizsgálatok során feltárultak a továbbfejlesztés lehetséges utjai is -- elsősorban a még jobb spektrális intenzitáseloszlással és a kisülési csövek hosszabb élettartamával kapcsolatban -- amelyek megvalósítását meg-

könnyíti az általunk eddig értelmezett folyamatok ismerete, és a javasolt egyszerű mérési módszerek használata.

KÖSZÖNETNYILVÁNITÁS

Befejezésül szeretnék köszönetet mondani dr. Bitó Jánosnak, a műszaki tudományok doktorának a téma felvételéért és a gyakori diszkusszióért, valamint dr. Bolla István tudományos osztályvezetőnek a folyamatok értelmezésében nyújtott segítségéért.

IRODALOMJEGYZÉK

- /¹/ Martt, E.C. - Smialek, L.J. - Green, A.C.:
Ill. Eng., 62. 204 /1967/
- /²/ Waymouth, J.F. - Gungle, W.C. - Harris, J.M. - Koury, F.:
Ill. Eng., 60. 85 /1965/
- /³/ Decker, W.J. - Unglert, M.C.: Ill. Eng., 64. 40 /1969/
- /⁴/ Edwards, E.F.: Light. Res. and Tech., 4. 117 /1972/
- /⁵/ Koury, F. - Waymouth, J.F. - Gungle, W.C.:
J. of the IES, 216 /1972/
- /⁶/ Odell, A. C. - Wharmby, D.C.: "Eleventh International
Conference on Phenomena in Ionized Gases, 1973"
Contributed Papers, 229
- /⁷/ Seehaver, J. - Zauter, M.: "Eleventh"
Contr. Papers, 233
- /⁸/ Funk, W. - Kloss, H.G. - Serick, F.: "Eleventh"
Contr. Papers, 230
- /⁹/ Koury, F.C. - Gungle, W.C. - Waymouth, J.F.:
J. of the IES, 106 /1975/
- /¹⁰/ Lake, W.H. - Kramel, L.F.: Ill. Eng., 62. 631 /1967/
- /¹¹/ Franke, A. - Gungle, W.C. - Ring, J.F. - Waymouth, J.F.:
Ill. Eng., 62. 204 /1967/
- /¹²/ Emeleus, K.G. - Sayers, J.: Proc. of the RIA, 24A.
87 /1936/
- /¹³/ Emeleus, K.G. - Gray, E.W. - Coulter, R.M. - Woolsey,
G.A.: Int. J. Electron., 25. 367 /1968/

- /14/ Emeleus, K.G. - Catchart, E.B. - Minnis, C.M.:
Proc. of the RIA, 24A. 11 /1937/
- /15/ Breslin, A.C. - Emeleus, K.G.: Int. J. Electron.,
22. 429 /1967/
- /16/ Stewart, R.S. - Woolsey, G.A. - Brown, J.M. -
McCloskey, J.J.G. - Emeleus, K.G.: Proc. of the RIA,
64A. 85 /1965/
- /17/ Waymouth, J.F.: "Electric discharge lamps"
M.I.T. Press, London 1971
- /18/ Loeb, L.B.: "Basic processes of gaseous electronics"
Univ. of California Press, Berkeley and Los Angeles
1961
- /19/ Howatson, A.M.: "An introduction to gas discharges"
Pergamon Press, London 1965
- /20/ Elenbaas, W.: "High pressure mercury vapour lamps"
N.V.Philips, Eindhoven, 1965
- /21/ Rokosz, F. - Decker, W.J. - Fraser, H.D.:
Ill. Eng., 62. 626 /1967/
- /22/ Larson, D.A. - Fraser, H.D. - Cushing, W.V. -
Unglert, M.C.: Ill. Eng., 58. 434 /1963/
- /23/ Reiling, G.H.: J. Opt. Soc. Am., 54, 532 /1964/
- /24/ Dobrusskin, A.: Lichttechnik, Nr. 8/1971, 447
- /25/ Dobrusskin, A.: Lichttechnik, Nr. 3/1971, 135
- /26/ Dobrusskin, A.: Lichttechnik, Nr. 4/1975, 49
- /27/ Dobrusskin, A.: Light. Res. and Tech., 3. /1971/

/²⁸/ Conway, J.G. - Worden, E.F.: J. Opt. Soc. Am., 61.
704 /1971/

/²⁹/ -----: C. R. Acad. Sci. Ser. B., 273, 763 /1971/

/³⁰/ Griffin, D.C.: J. Opt. Soc. Am., 62. 571 /1972/

/³¹/ Neiger, M.: Z. Naturforsch. 30a. 474 /1975/

/³²/ Bitó, J. - Antal, K.G.: Acta Tech., 76. 65 /1974/