

М.И. Ломаев, А.Н. Панченко, В.С. Скакун, Э.А. Соснин, В.Ф. Тарасенко

МОЩНЫЕ ИСТОЧНИКИ СПОНТАННОГО УФ-ИЗЛУЧЕНИЯ С НАКАЧКОЙ ИМПУЛЬСНЫМИ И НЕПРЕРЫВНЫМИ РАЗРЯДАМИ

Приведены конструкции и характеристики мощных источников спонтанного УФ-излучения (эксиламп) на молекулах галогенидов благородных газов ArF^* ($\lambda = 193$ нм), KrCl^* ($\lambda = 222$ нм), KrF^* (248 нм), XeCl^* (308 нм), XeF^* (353 нм) и молекулах Cl_2^* (258 нм) с накачкой импульсными барьерным и продольным разрядами, а также непрерывным тлеющим разрядом низкого давления. Получены наибольшие для эксиламп средние мощности излучения, достигающие на $\lambda = 258; 222$ и 308 нм соответственно 40; 130 и 110 Вт и кпд до 10 – 20%.

Введение

Источники спонтанного излучения в УФ- и ВУФ-областях спектра могут найти широкое применение при проведении различных фотостимулированных процессов. Такие источники в эксплуатации гораздо проще и дешевле, чем лазеры, и излучают большой набор длин волн. Наиболее эффективными среди источников спонтанного излучения являются источники, излучающие на переходах димеров R_2^* и галогенидов RX^* инертных газов [1–12], поэтому подобные излучатели обычно называют эксилампами.

Для накачки эксиламп используются импульсные барьерный [1, 5, 13–16], поперечный с УФ-предыонизацией [6, 10, 12, 17–19], продольный [16, 20], микроволновой [2, 3, 21, 22] и искровой [11] разряды. В [7, 8] обнаружен высокий выход излучения молекул RX^* в тлеющем разряде низкого давления. Наибольшая средняя мощность эксиламп получена при микроволновой накачке и не превышает десятков ватт при кпд до 10%.

Экспериментальные установки и методики измерений

В экспериментах использовались эксилампы, конструкции которых приведены на рис. 1. Лампы изготавливались из кварцевых труб высокого качества с пропусканьем на $\lambda = 222$ нм не менее 80%. Диаметр внешней трубы обычно составлял 60 мм, зазор между трубами менялся в пределах 2,5 – 8 мм, длина разряда не превышала 40 см. В лампе с продольным разрядом использовались также два разрядных промежутка по 15 см каждый. Для облегчения зажигания продольного разряда во внутреннюю трубу вставлялся металлический электрод, связанный с источником импульсного напряжения. При накачке тлеющим разрядом данный электрод не использовался, а основные электроды подключались к источнику постоянного тока, обеспечивающему ток разряда до 0,5 А при напряжении до 10 кВ. Через внутреннюю трубу для охлаждения прокачивалась вода.

Накачка барьерным и продольным разрядами осуществлялась с помощью двух генераторов импульсов. Первый был собран по двухконтурной схеме с накопительной и обострительной емкостями и тиратронами «Экстра-2» или «Экстра-3» в качестве коммутаторов. Величины накопительного и обострительного конденсаторов могли меняться в пределах 0,1–12 и 0 – 6 нФ соответственно. Генератор работал с частотой до 2 кГц. Второй генератор подавал на эксилампу импульсы переменного напряжения с частотой следования 2–15 кГц и амплитудой до 15 кВ.

Рабочие газовые смеси, состоящие из инертных газов (He, Ne, Xe, Kr) и галогенов (F_2 , NF_3 , HCl , Cl_2), готовились в отдельном смесителе. Чистота газов была не менее 99,9%. В эксилампах с импульсной накачкой использовались тройные смеси He(Ne)–Xe(Kr)–галоген при давлении до 1–2 атм. Тлеющий разряд исследовался в основном в смесях Xe(Kr)–HCl(Cl_2) при давлениях до 30 мм рт. ст.

Для регистрации электрических параметров использовались омические шунты и делители, сигналы с которых подавались на осциллограф С8-14, а также миллиамперметр и киловольтметр постоянного тока. Форма импульсов излучения определялась фотодиодом ФЭК-22СПУ и осциллографом С8-14. Для регистрации средней мощности излучения использовались калориметр ИМО-2Н или фотодиод ФЭК-22СПУ. Измерения проводились следующим образом. Вплотную к эксилампе устанавливалась диафрагма с отверстием 1 см^2 . На расстоянии $L = 20 \text{ см}$ от диафрагмы располагался приемник излучения. Излучающая площадка считалась точечным источником света, равномерно излучающим в телесный угол 4π рад. Доля излучения k , попадающая в фотоприемник, в этом случае составляла:

$$k = \sin^{-2} \alpha / 2, \quad (1)$$

где $\alpha = \arctg A/2L$, A – апертура приемника излучения. Средняя мощность излучения рассчитывалась с учетом площади излучающей поверхности и распределения излучения по длине и окружности эксилампы.

Спектры спонтанного излучения фотографировались спектрографом ИСП-30 на пленку РФ-3 или регистрировались монохроматором МДР-23 с решеткой 1200 штрихов на 1 мм, снабженным фотоумножителем ФЭУ-100, сигнал с которого через усилитель подавался на графопостроитель.

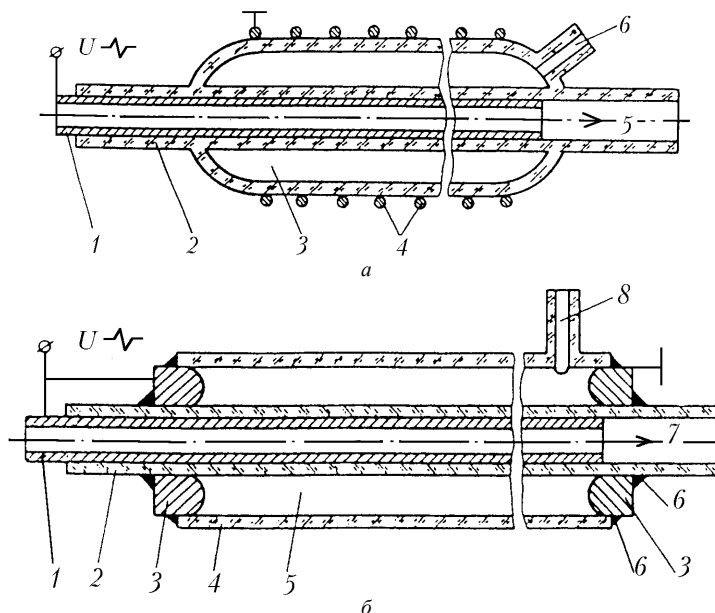


Рис. 1. Конструкция коаксиальных эксиламп с накачкой барьерным (*a*), продольным импульсным и непрерывным тлеющим (*б*) разрядами. 1 – металлическая трубка (отражатель), 2 – коаксиальная лампа, 3 – газовый объем, 4 – внешний сетчатый электрод, 5 – направление течения воды, 6 – газовый ввод (*a*); 1 – металлическая трубка, 2 – внутренняя кварцевая труба, 3 – электроды, 4 – внешняя кварцевая труба, 5 – газовый объем, 6 – уплотнения, 7 – направление течения воды, 8 – газовый ввод (*б*)

Результаты экспериментов и их обсуждение

В спектре излучения тлеющего разряда низкого давления подобно [4, 7, 8] преобладают полосы $B-X$ и $D-X$ молекул RX^* , на долю которых приходится до 80% излучаемой мощности. Кроме того, в излучении смеси $Kr-Cl_2$ (HCl) присутствует полоса ${}^3P_{2g} - {}^3P_{2u}$ молекулы Cl_2^* ($\lambda = 258 \text{ нм}$). В тройных смесях высокого давления интенсивность полосы $D-X$ уменьшалась. Уменьшалась также и ширина полосы $B-X$, что свидетельствует о быстрой колебательной релаксации в таких смесях. Спектры излучения смесей с F_2 или NF_3 имели подобный характер.

На рис. 2 представлены зависимости импульсной мощности излучения $KrCl^*$ - и KrF^* - эксиламп с накачкой барьерным разрядом от величины накопительной емкости C_0 и зарядного напряжения U_0 . Увеличение C_0 и U_0 ведет к росту мощности излучения, но эффективность эксилампы при этом не увеличивается, по-видимому, из-за снижения доли запасаемой в C_0 энергии.

М.И. Ломаев, А.Н. Панченко, В.С. Скакун и др.

гии, вкладываемой в плазму разряда. Барьерный разряд горит в виде ярких каналов небольшой толщины, хаотично перемещающихся от импульса к импульсу на фоне слабого объемного свечения. Длительность импульса излучения в наших экспериментах изменялась в пределах 20 – 30 нс при длительности тока разряда не более 200 нс. Вероятно, ток барьерного разряда идет в основном в каналах, плотность тока в которых достигает $\sim 1 \text{ кА/см}^2$ [14]. При такой плотности тока эффективность высвечивания молекул RX^* низка из-за быстрого их тушения электронами, что снижает эффективность работы эксилампы данного типа. Отметим, что такие условия накачки более оптимальны для образования димеров инертных газов R_2^* и кпд R_2^* -эксиламп при накачке барьерным разрядом может достигать 10% [14].

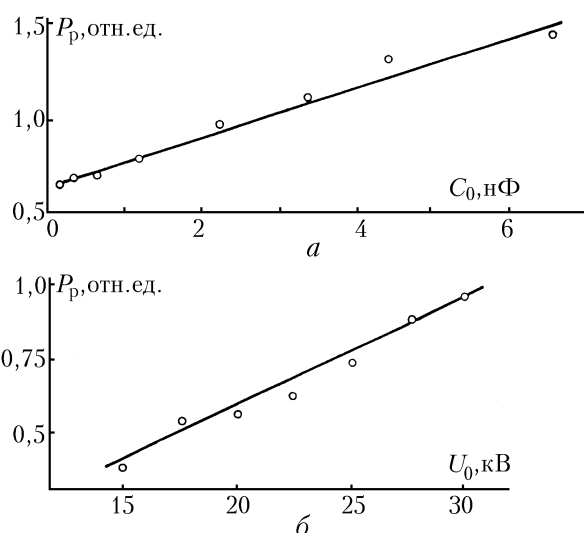


Рис. 2. Зависимости импульсной мощности эксилампы с барьерным разрядом от величины накопительной емкости C_0 (а) и зарядного напряжения U_0 (б), смесь He-Kr-HCl, $U_0 = 20 \text{ кВ}$ (а), He-Kr-F₂ и $C_0 = 1,1 \text{ нФ}$ (б)

На рис. 3 приведена зависимость средней мощности излучения KгCl*-эксилампы с барьерным разрядом от частоты следования импульсов. При использовании для накачки генератора импульсов противоположной полярности линейный рост средней мощности излучения продолжался до частоты следования импульсов 10 кГц. Частота следования импульсов может увеличиваться и дальше, так как перегрева эксилампы не наблюдалось. Максимальная средняя мощность эксиламп с накачкой барьерным разрядом составила 0,6 и 1,0 Вт при работе на молекулах KгCl* и KгF*. Отметим большой ресурс смеси в эксилампах данного типа. Так, при кратковременном включении лампы в течение 400 ч (общая наработка $> 10^6$ имп) средняя мощность излучения на $\lambda = 222 \text{ нм}$ практически не изменялась.

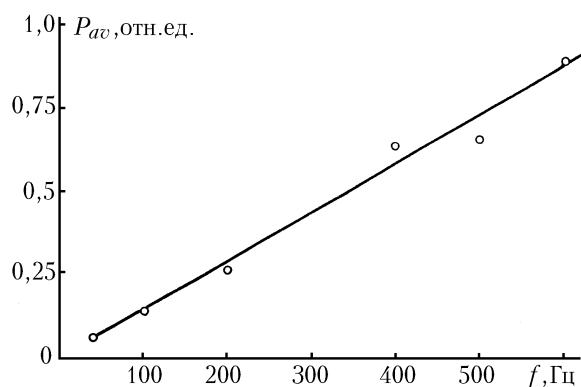


Рис. 3. Зависимость средней мощности излучения эксилампы с барьерным разрядом от частоты следования импульсов, смесь He-Kr-HCl, $U_0 = 20 \text{ кВ}$, $C_0 = 1,1 \text{ нФ}$

На рис. 4 приведены зависимости импульсной мощности излучения на $\lambda = 222 \text{ нм}$ от зарядного напряжения накопителя U_0 при накачке эксиламп с одним и двумя зазорами продоль-

ным импульсным разрядом. С ростом зарядного напряжения наблюдался очень резкий рост мощности излучения, менялся также характер свечения самого разряда. При низком U_0 разряд был совершенно однородным, при $U_0 < 20$ кВ он горел в виде диффузного канала, который скачками перемещался внутри трубки, и при $U_0 > 20$ кВ разряд снова становился объемным, но на фоне объемного свечения наблюдались многочисленные яркие нити, перемыкающие разрядный промежуток. Длительность импульса излучения в последнем случае составляла ~ 250 нс, а энергия излучения в импульсе не превышала 5 мДж. Как и в случае накачки барьерным разрядом, кпд лампы оставался низким. Возможной причиной этого также может являться неоднородность продольного разряда.

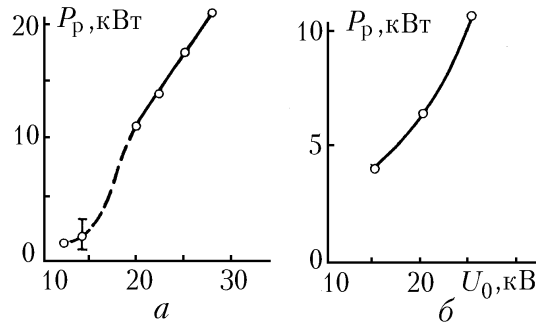


Рис. 4. Зависимость импульсной мощности излучения эксилампы с продольным разрядом от зарядного напряжения накопительной емкости, смесь Ne-Kr-HCl, $C_0 = 4,4$ нФ, $C_1 = 4,7$ нФ, эксилампа с одним разрядным промежутком (а); $C_0 = C_1 = 1,1$ нФ, эксилампа с двумя разрядными промежутками (б)

Линейный рост средней мощности излучения эксиламп с накачкой продольным разрядом наблюдался до частоты следования импульсов 800 Гц. Дальнейшее увеличение частоты импульсов накачки приводило к быстрому перегреву эксилампы и деградации газовой смеси, хотя при кратковременном включении при $f = 2$ кГц средняя мощность излучения достигала 4 Вт.

Наибольшие средняя мощность излучения и эффективность эксиламп были получены при накачке двойных смесей Xe(Kr)-HCl (HCl₂) низкого давления непрерывным тлеющим разрядом. Тлеющий разряд в наших экспериментах устойчиво зажигался при давлениях газовой смеси до 20 – 30 мм рт. ст. и подобно [7, 8] имел две стадии горения. Для первой стадии разряда характерны напряжение горения $U_r \geq 6$ кВ и ток не более $I_p \approx 2 - 3$ мА. При увеличении тока разряд скачком переходил во вторую стадию, в которой U_r падало примерно в два раза, а I_p определялся мощностью источника питания и мог достигать 0,5 А.

В первой стадии разряда наблюдалось очень однородное свечение всего объема эксилампы без падения его интенсивности вблизи катода. Подобные исследования работы эксилампы с накачкой тлеющим разрядом в данной фазе проводились на оптимальной газовой смеси Kr:HCl(Cl₂) = 10:1 при давлении 6 мм рт. ст. Мощность излучения на $\lambda = 222$ нм достигала $\sim 2,5$ Вт при кпд до 10 – 15%. Смеси с HCl и Cl₂ в отличие от смесей в [7, 8] давали примерно одинаковую мощность излучения. Добавки в двойную смесь гелия увеличивали излучаемую эксилампой мощность примерно в два раза. Так, на смеси He:Kr:Cl₂ = 20:10:1 при $P = 6$ мм рт. ст. получена мощность излучения на $\lambda = 222$ нм до 5 Вт при кпд $\sim 20\%$. Эксилампа с тлеющим разрядом в первой стадии могла работать достаточно длительное время без падения излучаемой мощности и перегрева. При активном объеме эксилампы $V = 200$ см³ удельная мощность излучения составляет $P_{уд} = 25$ мВт/см³. При увеличении V излучаемая мощность может быть легко увеличена. Так, например, для 100 Вт эксилампы необходим активный объем V , равный 4 л, для 1 кВт – 40 л.

Для первой стадии разряда характерны высокие значения E/P на промежутке, что можно связать с большой скоростью убыли электронов в плазме разряда за счет прилипания к галогену. В пользу этого говорит присутствие в смесях с Cl₂ и HCl свечения молекул Cl₂^{*} примерно одинаковой интенсивности, т.е. в разряде очень быстро происходит диссоциация молекул HCl и Cl₂ с образованием ионов хлора и последующим возникновением Cl₂^{*}. Рождение электронов в плазме разряда в данной стадии при $E/P = 30$ В/(см·мм рт. ст.) должно происходить за счет

прямой ионизации инертного газа электронным ударом [28]. Образование излучающих молекул поэтому должно происходить в процессе ион-ионной рекомбинации:



Увеличение мощности излучения при добавках гелия, по-видимому, связано с дополнительным образованием эксиплексных молекул в реакции



Как отмечалось выше, при переходе тлеющего разряда во вторую фазу ток накачки эксилампы возрастает примерно на два порядка. Также примерно в 100 раз увеличивается и мощность излучения. Зависимости средней мощности излучения и кпд XeCl^* - и KrCl^* -эксиламп от тока разряда приведены на рис. 5.

Получены максимальные на сегодняшний день мощности излучения, достигающие на $\lambda = 308 \text{ нм}$ 110 Вт, а на $\lambda = 222 \text{ нм}$ – 130 Вт при кпд до 14%. Отметим, что разряд в этой стадии горел только в части активного объема эксилампы, оставаясь однородным и диффузным. Это могло приводить к локальному перегреву эксилампы и снижению излучаемой мощности. Время работы эксилампы на одной порции газовой смеси из-за этого не превышало 1 ч. Для увеличения времени жизни газовой смеси необходимо лучшее охлаждение эксилампы. Ширина разряда в наших экспериментах возрастала с ростом тока разряда и в смесях с ксеноном. Последнее обусловлено разной дрейфовой скоростью электронов в газовых смесях с ксеноном и криптоном [28].

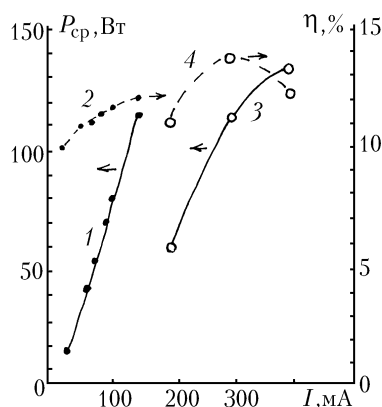


Рис. 5. Зависимость средней мощности излучения (1, 3) и кпд (2, 4) эксилампы с непрерывно тлеющим разрядом от тока разряда; 1, 2 – смесь Хе- $\text{Cl}_2 = 3-1$, $P=3$ мм рт. ст.; 3, 4 – смесь Кг- $\text{Cl}_2 = 10-1$, $P=6$ мм рт. ст.

Для получения излучения на $\lambda = 258 \text{ нм}$ использовался чистый Cl_2 при давлении 3 мм рт. ст. или смесь $\text{He}:\text{Cl}_2 = 1:1$ при давлении 6 мм рт. ст. Добавка гелия увеличивала мощность излучения в два раза. Получена мощность излучения Cl_2^* -эксилампы до 40 Вт при кпд ~ 5%. Улучшение работы Cl_2^* -эксилампы при добавках гелия также связано с увеличением скорости образования молекул Cl_2^* в трехчастичной реакции [25]



Отметим также, что при работе Cl_2^* -эксилампы появляется сильный запах озона, т.е. в спектре эксилампы присутствует излучение с $\lambda < 200 \text{ нм}$, соответствующее переходам из высоковозбужденных состояний молекулы Cl_2^* [26].

Во второй стадии тлеющего разряда замена в смеси Cl_2 на HCl подобно [7, 8] снижает мощность излучения эксилампы в несколько раз, а в спектре свечения падает интенсивность полосы Cl_2^* . Это говорит о снижении скорости образования в плазме тлеющего разряда ионов

хлора (см. реакцию (4)). Кроме того, при уменьшении E/P на промежутке в плазме возрастает скорость образования метастабилей инертного газа. На основании этого можно сделать вывод о преобладании гарпунного канала в образовании излучающих молекул во второй фазе тлеющего разряда:



Оценим скорости образования молекул $RX^* \frac{dN_{RX^*}}{dt}$ в тлеющем разряде постоянного тока в процессах (3) и (5) на примере XeCl^* с учетом констант соответствующих реакций [25, 27]. Плотность электронов $N_e \sim 10^{11} \text{ см}^{-3}$ можно оценить по плотности тока разряда и данным по дрейфовой скорости электронов в инертных газах [28]. Поскольку плазма тлеющего разряда квазинейтральна, концентрации ионов ксенона N_{Xe^+} и хлора N_{Cl^-} в ней связаны соотношением $N_{\text{Xe}^+} = (N_{\text{Cl}^-} + N_e)$. Концентрации положительных и отрицательных ионов в тлеющем разряде в электроотрицательных газах могут быть достаточно близкими [28]. Поэтому если принять, что $N_{\text{Cl}^-} \sim N_e$, то скорость образования эксиплексных молекул в процессе (3) не превысит $\frac{dN_{\text{XeCl}^*}}{dt} \sim 10^{16} - 10^{17} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$.

Концентрацию метастабилей инертного газа N_{Xe^*} можно оценить из соотношения

$$N_{\text{Xe}^*} = K_b \times N_{\text{Xe}} \times N_e / K_r \times N_{\text{Cl}_2} \sim 5 \times 10^{10} \text{ см}^{-3}, \quad (6)$$

где K_b и K_r – константы возбуждения ксенона электронным ударом и гарпунной реакции (5). Отсюда скорость процесса (5) $\frac{dN_{\text{XeCl}^*}}{dt} \sim 10^{18} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ будет значительно больше скорости реакции (3). Равновесная концентрация молекул XeCl^* в разряде при данной $\frac{dN_{\text{XeCl}^*}}{dt}$ составит $N_{\text{XeCl}^*} \sim 10^{10} \text{ см}^{-3}$, что совпадает с данными эксперимента [7, 8].

Удельная мощность излучения XeCl^* -эксилампы при накачке тлеющим разрядом во второй стадии достигает 1 Вт/см^3 , что соответствует высвечиванию в 1 см^3 в $1 \text{ с} \sim 10^{18}$ молекул XeCl^* . Совпадение скоростей рождения и высвечивания эксиплексных молекул в плазме тлеющего разряда говорит о низкой скорости их безызлучательной релаксации, с чем и связана столь высокая эффективность эксиламп с накачкой разрядом данного типа. Отметим, что активный объем 1 кВт эксилампы при использовании для накачки второй стадии тлеющего разряда составит примерно 1 л.

Заключение

Итак, в статье сообщается о создании коаксиальных эксиламп с накачкой различными видами разрядов. Наибольшие средняя мощность излучения и КПД эксиламп получены при использовании непрерывного тлеющего разряда низкого давления. Достигнут уровень средней мощности излучения свыше 100 Вт при эффективности более 10%. Высокие характеристики эксиламп с тлеющим разрядом связаны с низкой скоростью безызлучательной релаксации рабочих молекул в плазме тлеющего разряда и его высокой однородностью по сравнению с импульсными разрядами высокого давления. При увеличении активного объема эксиламп коаксиальной конструкции может быть достигнут уровень их мощности до 1 кВт, а использование газовых смесей другого состава позволит существенно расширить диапазон излучаемых длин волн.

1. Буйнов В. И., Волкова Г. А., Подмошенский И. В. // ЖПС. 1991. Т. 54. № 1. С. 164–166.
2. Natakaeyama T., Kaunari F., and Obaga M. // Appl. Phys. Lett. 1991. V. 46. № 6. P. 387–389.
3. Kumagai H. and Toyoda K. // Appl. Phys. Lett. 1991. V. 59. № 22. P. 2811–2813.
4. Михельсоо В. Т., Трещалов А. Б., Пезт В. А. и др. // Квантовая электроника. 1987. Т. 14. № 7. С. 1404–1406.
5. Gellert V. and Kogelschatz U. // Appl. Phys. B. 1991. V. 52. № 1. P. 14–21.
6. Коваль Б. А., Скакун В. С., Тарасенко В. Ф. и др. // ПТЭ. 1992. № 4. С. 244–245.
7. Головицкий А. П. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 18. № 8. С. 604–609.
8. Головицкий А. П., Кан С. Н. // Оптика и спектроскопия. 1993. Т. 75. № 3. С. 604–609.
9. Бойченко А. М., Тарасенко В. Ф., Фомин Е. А. и др. // Квантовая электроника. 1993. Т. 23. № 1. С. 3–25.
10. Кузнецов А. А., Скакун В. С., Тарасенко В. Ф. и др. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. № 5. С. 1–5.
11. Рунев Г. В., Саенко В. Б. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. № 21. С. 53–56.
12. Boichenko A. M., Skakun V. S., Tarasenko V. F. // Laser Physics. 1993. V. 3. № 4. P. 838–843.

13. Волкова Г. А., Кириллова Н. Н., Павловская Е. Н. и др. // ЖПС. 1984. Т. 41. С. 681–695.
14. Eliasson B., Kogelschatz U. // Pure and Appl. Chem. 1990. V. 62. № 9. P. 1667–1674.
15. Kogelschatz U., Ersom H. // Laser and Optoelectronics. 1990. V. 22. P. 55–59.
16. Визирь В. А., Скакун В. С., Смородов Г. В. и др. // Квантовая электроника. 1995. Т. 22. № 5. С. 541–545.
17. Скакун В. С., Тарасенко В. Ф., Фомин Е. А. // ЖПС. 1992. Т. 56. № 2. С. 331–333.
18. Бойченко А. М., Скакун В. С., Тарасенко В. Ф. и др. // Квантовая электроника. 1993. Т. 23. № 6. С. 532–534.
19. Кузнецов А. А., Скакун В. С., Тарасенко В. Ф. и др. // Оптика атмосферы и океана. 1993. Т. 6. № 6. С. 694–698.
20. Gerber T., Luthy W. and Burkhard P. // Opt. Commun. 1980. V. 35. № 2. P. 242–244.
21. Kumagai H. and Obara M. // Appl. Phys. Lett. 1989. V. 54. № 26. P. 2619–2621.
22. Kumagai H. and Obara M. // Appl. Phys. Lett. 1989. V. 55. № 15. P. 1583–1584.
23. Excimer Lasers / Ed. by Rhodes Ch. K., Springer Verlag, Heidelberg, New York, 1979.
24. Герасимов Г. Н., Крылов Б. Е., Логинов А. В. и др. // УФН. 1992. Т. 162. С. 123–159.
25. Бойченко А. М., Держиев В. И., Жидков А. Г. и др. // Труды ФИАН. 1989. Т. 21. С. 44–115.
26. Зуев В. С., Канаев А. В., Михеев Л. Д. // Квантовая электроника. 1984. Т. 11. № 2. С. 354–365.
27. Hozono H., Midorikawa K., Obara M., et al. // J. Appl. Phys. 1984. V. 52. № 3. P. 680–690.
28. Райзер Ю. П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1987. 592 с.

Институт сильноточной электроники СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
31 августа 1995 г.

M. I. Lomaev, A. N. Panchenko, V. S. Skakun, E. A. Sosnin, V. F. Tarasenko.
High Energy Sources of Spontaneous UV Radiation Pumped by Pulse and Continuous Discharges.

Design and operating parameters of high energy rare-gas halide excilamps, radiating at $\lambda = 193$ nm (ArF^*), $\lambda = 222$ nm (KrCl^*), $\lambda = 248$ nm (KrF^*), $\lambda = 308$ nm (XeCl^*), $\lambda = 353$ nm (XeF^*) and Cl_2^* excilamp ($\lambda = 258$ nm) are presented. Pulse longitudinal and barrier discharges and low pressure continuous glow discharges were used to generate spontaneous UV radiation. The greatest excilamp average radiation power up to 40 W at $\lambda = 258$ nm, 130 W at $\lambda = 222$ nm, 110 W at $\lambda = 308$ nm and efficiency up to 10–20% were obtained.