

04:07:09

Исследование оптических характеристик цилиндрических эксиплексных и эксимерных ламп с сверхвысококачественным возбуждением

© Э.А. Соснин,^{1,2} А.А. Пикулев,³ В.Ф. Тарасенко^{1,2}

¹ Институт сильноточной электроники СО РАН,
634055 Томск, Россия
e-mail: badik@loi.hcei.tsc.ru

² Томский государственный университет,
634050 Томск, Россия

³ Российский федеральный ядерный центр, Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики,
607190 Саров, Нижегородская область, Россия
e-mail: pikulev@expd.vniief.ru

Исследованы оптические характеристики Br_2 -, Cl_2 -, XeBr - и XeCl -эксиплексных ламп, возбуждаемых сверхвысококачественным излучением. Для определения мощности сверхвысококачественного разряда использованы данные по скачку давления в колбах ламп. Найдены условия эффективного образования эксиплексов XeCl^* и XeBr^* в цилиндрических эксиплексных лампах, в которых достигнуты значения эффективности 7.2 и 7.8%.

Введение

Эксиплексные и эксимерные лампы (эксиплексные лампы) продемонстрировали большой потенциал для применения в различных технологиях [1]. Наибольшее распространение для возбуждения эксиплексных ламп сегодня получил барьерный разряд на частотах до сотен килогерц [1,2], особенно такой, которой называют безэлектродным, поскольку в нем прибор и обеспечивает чистоту спектров излучения [3]. Безэлектродный разряд также осуществляют, используя сверхвысококачественное (СВЧ) возбуждение, что обеспечивает отмеченные преимущества. В этом случае для возбуждения эксиплексных ламп, например, используют разряд индукционного типа [4] или разряд в диэлектрической полости, помещенной в СВЧ резонатор [5,6]. В работе [5] по СВЧ возбуждению в резонаторе (1998 г.) акцент был сделан на оптимизации параметров резонатора, а оптические характеристики излучения не указаны. Детальное исследование спектрального состава и энергетических характеристик приведено только для фторсодержащих эксиплексных ламп ArF^* и KrF^* [6,7] (см. таблицу). К сожалению, к настоящему времени большая часть эксиплексных рабочих сред остается не исследованной, почти нет данных о спектральных и энергетических характеристиках излучения, не описаны методики измерения мощности и эффективности излу-

чения, которые для каждого вида возбуждения должны иметь свою специфику.

В настоящей работе сделан акцент на экспериментальном определении условий эффективного образования эксиплексов XeCl^* и XeBr^* в цилиндрических эксиплексных лампах с возбуждением от СВЧ резонатора. До сих пор таких исследований не проводилось.

Методика проведения экспериментов

Эксперименты проводились на установке, принципиальная схема которой представлена на рис. 1. Колба эксиплексной лампы 3 имела форму цилиндра, была выполнена из кварцевых трубок марки KV-2 (ООО „Технокварц“) и размещалась в полости резонатора так, чтобы один ее торец выходил наружу. Этот торец при измерениях экранировался сеткой из нержавеющей стали с характерной величиной ячейки, меньшей, чем половина длины волны поля в резонаторе. Трубки имели диаметр 3 см с толщиной стенки 1.5 мм. Часть трубки, размещенная непосредственно в резонаторе, имела длину $L = 9$ см. Разряд осуществлялся при подаче энергии от магнетрона 2 с частотой поля 2.54 GHz. Регистрацию параметров излучения проводили фотоприемником 5 и спектрофотометром 7. Величину давления фиксировали по вакуумметру 8. Смеси для ламп готовились в газовом посту и подавались в систему через вентиль напуска 9.

Обзорный спектр излучения разряда регистрировался через оптоволокно 6 с известным спектром пропускания спектрометром StellarNet EPP2000-C25 (StellarNet Inc.) на основе многоканальной ПЗС-линейки Sony ILX511 (приборы с зарядовой связью: рабочий диапазон 200–850 nm, спектральная полуширина его аппаратной функции не превышает 1.5 nm).

Литературные данные о параметрах эксиплексных ламп с возбуждением в СВЧ резонаторе

Частота поля, GHz	Рабочая молекула (максимум излучения)	Мощность излучения, W	Эффективность излучения, %	Ссылка
2.54	ArF^* (193 nm)	29	4.4	[6]
2.54	KrF^* (248 nm)	53	8.3	[7]

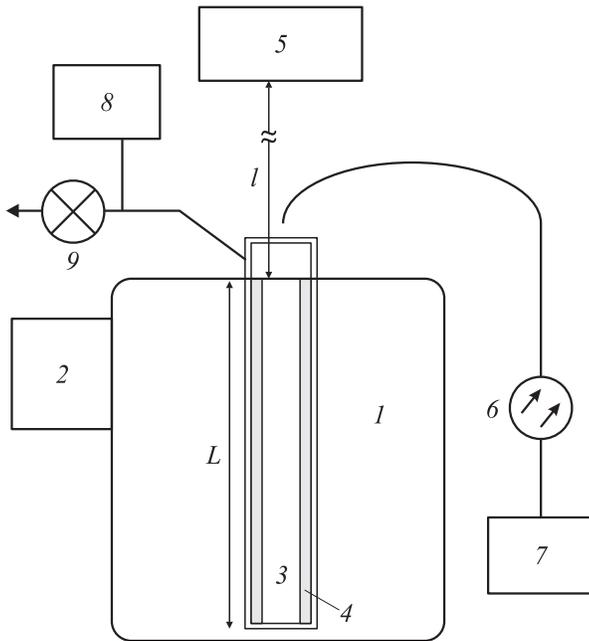


Рис. 1. Экспериментальная установка: 1 — резонатор; 2 — магнетрон; 3 — цилиндрическая колба лампы; 4 — зона горения разряда (в разрезе); 5 — фотоприемник; 6 — оптоволокно; 7 — спектрофотометр; 8 — вакуумметр; 9 — отвод к вакуумному посту.

Мощность излучения лампы в диапазоне $\lambda = 200\text{--}350\text{ nm}$ определялась с помощью фотоприемника 5 НАМАМАТСУ Н8025-222 (с максимумом спектральной чувствительности на 222 nm). Приемник располагался на оси симметрии кюветы напротив отшлифованного торца лампы на расстоянии $l = 19\text{ cm}$, т.е. таким, что $2l > L$, где $L = 9\text{ cm}$ — длина зоны горения разряда (в этом случае в фотоприемник не попадает излучение, отраженное от стенок кюветы). Поскольку толщина разряда $\Delta \leq 1.5\text{ mm}$ во всех случаях была существенно меньше радиуса кюветы $r_0 = 1.5\text{ cm}$ ($\Delta \ll r_0$), полную мощность излучения P_{rad} лампы можно найти по формуле

$$P_{\text{rad}} = \frac{4\pi LP_f}{S_f} \left\{ \frac{1}{(l^2 + r_0^2)^{1/2}} - \frac{1}{[(l+L)^2 + r_0^2]^{1/2}} \right\}^{-1}, \quad (1)$$

где P_f — мощность излучения на фотоприемнике с учетом его спектральной чувствительности; S_f — площадь светочувствительного элемента фотоприемника.

Эксилампы, использованные в экспериментах, имели значительное удлинение, т.е. $r_0 \ll L$. В этом случае справедливо неравенство $r_0 \ll l$ и формула (1) упрощается

$$P_{\text{rad}} \approx \frac{4\pi P_f}{S_f} l(l+L). \quad (2)$$

Мощность излучения эксиламп определялась по формуле (2). Достоверность результатов проверяли на эк-

силампах емкостного разряда [8], имеющих цилиндрическую геометрию и мощность которых оценивали как по (2), так и по излучению ламп через боковую поверхность, например, так, как описано в [9]. Расхождения в измерениях в этом случае не превышали 5%.

Определение мощности разряда

Для определения мощности СВЧ разряда использовался разработанный ранее метод, который состоит в измерении амплитуды быстрой части скачка давления (характерное время $\sim 10\text{--}100\text{ ms}$), возникающего в кювете эксилампы при ее включении. Этот метод ранее был использован нами для коаксиальных эксиламп барьерного разряда [10] и адаптирован для рассматриваемого случая, а именно для цилиндрической колбы, в которой после подачи СВЧ поля загорается разряд в форме пристеночного свечения.

Методика основана на пропорциональности между скачком давления Δp и увеличением средней температуры $\langle \Delta T \rangle$ в герметичной кювете — в случае, если $\Delta p \ll P_0$ и $\langle \Delta T \rangle \ll T_0$, то справедливо следующее соотношение [10]:

$$\frac{\Delta p}{P_0} \approx \frac{\langle \Delta T \rangle}{T_0}, \quad (3)$$

где P_0, T_0 — начальные значения давления и температуры газа в кювете.

Отметим, что в случае СВЧ разряда, когда $\Delta \ll r_0$, формула (3) справедлива не только при $\Delta p \ll P_0$ и $\langle \Delta T \rangle \ll T_0$, но и для значений Δp и $\langle \Delta T \rangle$, сравнимых по величине с начальным давлением P_0 и температурой T_0 .

Скачок температуры $\langle \Delta T \rangle$, со своей стороны, пропорционален средней мощности разряда. Действительно, если считать, что разряд локализован в области толщиной Δ около плоской стенки, находящейся при постоянной температуре, то скачок температуры вне этого слоя ΔT_∞ можно найти по формуле

$$\Delta T_\infty = \alpha \frac{r_0 W \Delta}{\lambda V}, \quad (4)$$

где λ — коэффициент теплопроводности; W — мощность разряда; V — внутренний объем кюветы; α — некоторая постоянная (порядка единицы).

Значение α существенно зависит от распределения энерговклада в зависимости от расстояния от стенки x . Так, для ступенчато-однородного распределения энерговклада (энерговклад постоянен в пристеночной области $0 \leq x \leq \Delta$ и равен нулю для $x > \Delta$) $\alpha = 1/4$. В случае экспоненциального распределения энерговклада $w = w_0 \exp(-x/\Delta)$ (где w — плотность мощности энерговклада) $\alpha = 1/2$.

Если толщина области разряда Δ существенно меньше поперечных размеров кюветы (в нашем случае — радиуса кюветы r_0), то $\langle \Delta T \rangle \approx \Delta T_\infty$.

Можно показать, что в случае цилиндрической кюветы при любых Δ ($\Delta \leq r_0$) для среднего скачка температуры в кювете справедливо следующее соотношение (в случае ступенчато-однородного энерговклада):

$$\langle \Delta T \rangle = \frac{W\Delta}{8\lambda V} (2r_0 - \Delta) = \Delta T_\infty \left(1 - \frac{\Delta}{2r_0}\right). \quad (5)$$

С помощью формулы (3) и соотношения (5) несложно получить связь между скачком давления и мощностью разряда

$$W = \frac{8\lambda VT_0 \Delta p}{P_0 \Delta (2r_0 - \Delta)}. \quad (6)$$

В случае экспоненциального распределения энерговклада выражение для $\langle \Delta T \rangle$ с учетом членов до второго порядка малости по Δ/r_0 имеет вид:

$$\begin{aligned} \langle \Delta T \rangle &\approx \frac{r_0 W \Delta}{2\lambda V} \left(1 - \frac{2\Delta}{r_0} + \frac{2\Delta^2}{r_0^2}\right) \\ &= \Delta T_\infty \left(1 - \frac{2\Delta}{r_0} + \frac{2\Delta^2}{r_0^2}\right). \end{aligned} \quad (7)$$

Формулы (5), (6) при $\Delta \ll r_0$ переходят в $\langle \Delta T \rangle \approx \Delta T_\infty$.

Поскольку в экспериментах наблюдалось однородное свечение разряда в пристеночной области, для определения мощности СВЧ разряда в эксилampe использовалась формула (6), полученная в приближении ступенчато-однородного энерговклада. В приближении экспоненциального распределения получаются примерно в 2 раза более низкие значения мощности разряда (если принять в качестве Δ толщину области разряда).

При проведении расчетов мощности разряда в смесях Xe/Cl₂ и Xe/Br₂ бралось значение коэффициента теплопроводности чистого ксенона, поскольку доля галогеносителя в оптимальных с точки зрения эффективности смесях была в 10 и более раз ниже, чем ксенона, и слабо влияла на термодинамические свойства смеси.

Экспериментальная часть

Как отмечалось выше, СВЧ разряд в трубке горел в тонком слое, прилегающем к внутренней поверхности трубки. Его толщину определяли фотографически. При этом, в зависимости от состава смеси и давления, после зажигания разряда фиксировался скачок давления, который не превышал в наших опытах 3.5 Торг.

Разряда в хлоре и бrome в форме однородного светящегося слоя существовал только при давлении не более 1 Торг. Средняя мощность излучения в этом случае не превышала 0.5 W. При повышении давления до 2–3 Торг разряд переходил в форму тонких шнуров, хаотически перемещающихся по внутренней поверхности трубки.

На рис. 2 приведены спектры излучения СВЧ разряда в хлоре и бrome в случае однородного свечения слоя.

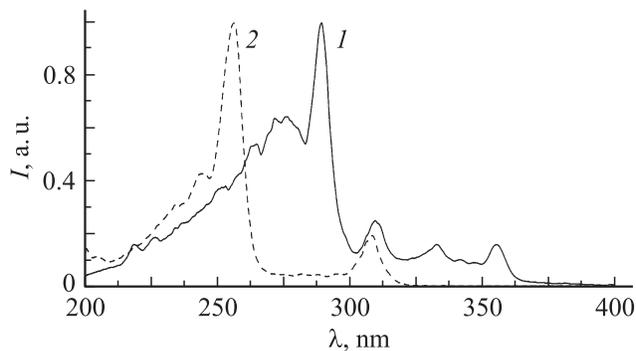


Рис. 2. Спектры излучения микроволновых эксилamp Br₂ (1) и Cl₂ (2) при давлении 1 Торг.

В спектре плазмы наиболее выраженными были интенсивная полоса $D' \rightarrow A'$ молекулы Cl₂^{*} с максимумом на 256.4 nm и $2^3P_{2g} \rightarrow 2^3\Sigma_{2u}$ полоса Cl₂^{*} с максимумом на 305.7 nm, что соответствует переходам, наблюдавшимся в хлоре при возбуждении тлеющим разрядом [11] или барьерным разрядом низкого давления [12]. При давлении 1 Торг полуширина полосы $D' \rightarrow A'$ молекулы Cl₂^{*} составляла ~ 10 nm. Br₂-эксилamp низкого давления имела богатый спектр излучения с наиболее интенсивной полосой $D' \rightarrow A'$ молекулы Br₂^{*} (291.6 nm), полуширина которой составляла ~ 10 nm.

На рис. 3 приведены типичные спектры излучения ХеBr- и ХеCl-эксилamp с СВЧ возбуждением. Все наблюдаемые полосы люминесценции являются относительно широкополосными в сравнении со спектрами излучения эксилamp барьерного разряда, что связано с низким рабочим давлением смесей, в которых формируется плазма разряда, — давление пробоя не превышает нескольких Торг.

Наиболее интенсивными являются полосы излучения $B \rightarrow X$ экиплексов ХеBr^{*} и ХеCl^{*} с максимумами на $\lambda = 283$ и 308 nm. Спектры также включают сравнительно слабые полосы $D' \rightarrow A'$ люминесценции молекул Cl₂^{*} и Br₂^{*}, о которых упоминалось выше. Их интенсивность была тем выше, чем больше доля галогена в смеси.

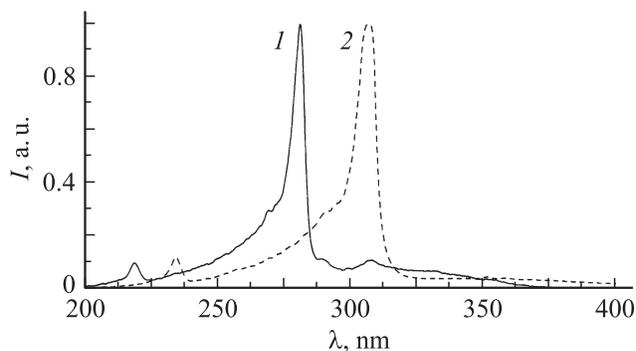


Рис. 3. Спектры излучения микроволновых (2) эксилamp ХеBr (1) и ХеCl при давлении 1 Торг и парциальном соотношении смесей Хе/Br₂(Cl₂) = 50/1.

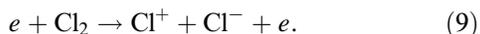
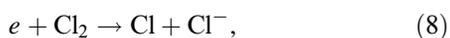
Во всех спектрах хорошо выражены полосы люминесценции $D \rightarrow X$ с максимумом на 221 и 236 nm для молекул XeBr^* и XeCl^* соответственно. Длинноволновая часть спектра обусловлена переходами $C \rightarrow A$ и $D \rightarrow A$ [2].

В наших экспериментах давление смеси не превышало 12 Torr. С ростом давления рабочих смесей вклад полос люминесценции $D \rightarrow X$, $B \rightarrow A$, $C \rightarrow A$ эксиплексных молекул и излучения Cl_2^* несколько падает, а интенсивность полосы $B \rightarrow X$ растет. Таким образом, полученные спектры эксиплексных ламп СВЧ разряда низкого давления состоят из множества молекулярных полос как эксиплексной молекулы, так и дигалогена, подобные спектрам емкостного и тлеющего разрядов [13], и они шире, чем спектры излучения эксиламп барьерного разряда [2].

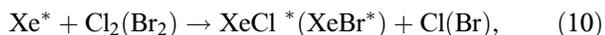
Экспериментально была выявлена еще одна особенность разряда, он не горел непрерывно: после зажигания происходило монотонное падение величины мощности излучения вплоть до погасания за время от десятков до сотен секунд. Затем, спустя некоторое время (от десятков секунд до минут), разряд вновь зажигался и цикл повторялся. Поэтому измерение энергетических параметров проводилось в режиме накопления дозы облучения, а средняя мощность излучения определялась как отношение дозы ко времени, пока лампа находилась во включенном состоянии.

Чем объяснить эффект погасания?

В атомарном газе расстояние r_a , на которое может продиффундировать электрон за характерное время прилипания из объема, τ_a составляет $r_a \approx (D_a \tau_a)^{1/2}$. В наших опытах разряд горит в тонком пристеночном слое, что дополнительно увеличивает потери электронов на стенке. Добавка электроотрицательного газа, такого, например, как хлор, приводит к появлению еще двух каналов диссоциации молекулярного хлора



При величине T_e примерно до 4 eV в хлоре канал (9) является более слабым, чем прилипание (8) [14]. Было замечено: чем больше доля галогеноносителя в разряде, тем дольше период горения разряда. Поэтому эффект погасания можно связать с быстрым обеднением зоны разряда молекулярным хлором или бромом за счет реакции (8). Между тем именно молекулы Cl_2 и Br_2 участвуют в гарпунной реакции



являющейся основной для формирования эксиплексных молекул в условиях низких давлений. После исчерпания молекулярного хлора (брома) и излучающем слое разряд гаснет, затем требуется время на диффузию „свежего“ молекулярного хлора (брома) к стенке, после чего вновь становится возможным процесс (10).

Как показали эксперименты и расчеты по формулам (2) и (6), наибольшие значения эффективности и мощности излучения плазмы СВЧ разряда достигаются в смесях $\text{Xe}-\text{Br}_2 = 50-1$ ($p = 6$ Torr) и $\text{Xe}-\text{Cl}_2 = 25-1$ ($p = 6$ Torr). Они составили 7.2 и 7.8%, 3.6 и 3.9 W соответственно. Это примерно в два раза меньше, чем значения эффективности, полученные в цилиндрических XeCl -эксилампах тлеющего разряда [15], однако потенциальный ресурс работы эксиламп СВЧ разряда безэлектродного типа должен быть выше. То, что эффективность ниже, по-видимому, связано с тем, что разряд сосредоточен у стенки и быстро обедняется галогеноносителем в молекулярной форме.

С другой стороны, в расчетах мощности, вкладываемой в разряд, авторы исходили из предположения об однородном вкладе энергии по слою. В будущем необходимо определить правильность этого допущения. Например, если мощность разряда неоднородно распределена по толщине слоя разряда, в частности, имеет экспоненциальное распределение, то оценка эффективности эффективности дает величину \sim в 2 раза выше приведенной. И в этом случае значение эффективности излучения эксиламп с СВЧ возбуждением будут примерно равны величинам для эксиплексных ламп тлеющего разряда [15].

Анализ результатов проведенных исследований позволяет нам предположить, что для повышения мощности и эффективности ультрафиолетового (УФ) излучения эксиламп, накачиваемых СВЧ разрядом, представляется перспективным использовать возбуждение не квазинепрерывным СВЧ полем, а возбуждение пачками СВЧ импульсов, с паузами между ними, позволяющими восстанавливать концентрацию молекул Cl_2 и Br_2 в пристеночной области, достаточную для эффективного протекания реакции (10).

Заключение

В цилиндрических эксилампах, наполненных чистыми галогенами Cl_2 и Br_2 , а также смесями Xe/Cl_2 и Xe/Br_2 низкого давления и возбуждаемых в СВЧ резонаторе, получены характерные для этих сред спектры излучения. Предложены и апробированы методы оценки мощности УФ излучения через торец эксилампы и мощности, вкладываемой в разряд. Метод определения мощности СВЧ разряда основан на измерении быстрой составляющей скачка давления в приближении ступенчатоднородного энергоклада. Наибольшие значения мощности и эффективности излучения достигнуты в смесях $\text{Xe}-\text{Br}_2 = 50-1$ и $\text{Xe}-\text{Cl}_2 = 25-1$, что составляет 3.6 и 3.9 W 7.2 и 7.8% соответственно. Обсуждается эффект погасания разряда, для предотвращения которого предложено возбуждать эксилампы пачками СВЧ импульсов, с паузами между ними.

Авторы благодарят М.А. Померанцева за предоставленные для исследований кварцевые колбы.

Работа выполнена при финансовой поддержке ФЦП „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“ г/к № 02.740.11.0562.

Список литературы

- [1] *Sosnin E.A., Sokolova I.V., Tarasenko V.F.* // Photochemistry Research Progress / Ed. by A. Sanchez, S.J. Gutierrez. Nova Science Publishers, 2008. P. 225–269.
- [2] *Eliasson B. and Kogelschatz U.* // Appl. Phys. B. 1988. Vol. B46. P. 299–303.
- [3] *Авдеев С.М., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф.* // Оптич. журн. 2010. Т. 77. № 1. С. 54–57.
- [4] *Головицкий А.П.* // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24. Вып. 6. С. 63–67.
- [5] *He Z., Prelas M.A., Meese J.M., Lin L.-T.* // Laser and Particle beams. 1998. Vol. 16. N 3. P. 509–524.
- [6] *Kitagai H. and Obara M.* // Appl. Phys. Lett. 1989. Vol. 55. P. 1583–1584.
- [7] *Nakamura I., Kannari F. and Obara M.* // Appl. Phys. Lett. 1990. Vol. 57. P. 2057–2059.
- [8] *Соснин Э.А., Ерофеев М.В., Тарасенко В.Ф., Шитц Д.В.* // ПТЭ. 2002. № 6. С. 118–119.
- [9] *Falkenstein Z., Coogan J.J.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 1997. Vol. 30. N 19. P. 2704–2810.
- [10] *Цветков В.М., Пикулев А.А., Соснин Э.А., Авдеев С.М., Тарасенко В.Ф.* // ЖТФ. 2010. Т. 80. Вып. 6. С. 53–57.
- [11] *Ефремов А.М., Куприяновская А.П., Светцов В.И.* // ЖПС. 1993. Т. 59. № 3–4. С. 221–225.
- [12] *Авдеев С.М., Ерофеев М.В., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф.* // Квант. электрон. 2008. Т. 38. № 8. С. 791–793.
- [13] *Sosnin E.A., Erofeev M.V., Lisenko A.A., Lomaev M.I., Shitz D.V., Tarasenko V.F.* // Proc 34th EGAS. Sofia, Bulgaria, 2002. P. 345–346.
- [14] *Головицкий А.П.* // ЖТФ. 2000. Т. 70. Вып. 5. С. 12–16.
- [15] *Головицкий А.П., Кан С.Н.* // Опт. и спектр. 1993. Т. 75. № 3. С. 604–609.