04;07

Ультафиолетовые KrCl эксилампы с накачкой импульсным продольным разрядом

© А.Н. Панченко, Э.А. Соснин, В.Ф. Тарасенко

Институт сильноточной электроники СО РАН, 634055 Томск, Россия

(Поступило в Редакцию 28 сентября 1995 г.)

Приведены результаты экспериментальных исследований KrCl эксиламп с накачкой импульсным продольным разрядом. Проанализированы условия достижения максимальных эффективностей и средних мощностей излучения. В области длин волн < 250 нм получены средняя мощность излучения ~ 60 Вт и КПД ~ 10%. Показано, что максимальные энергетические параметры УФ излучения достигаются при малых мощностях и больших длительностях (> 1 мс) импульсов накачки, а также при использовании донора хлора Cl₂.

Введение

В последнее время возрос интерес к изучению эксиламп с накачкой различными типами разрядов, целью которого является выявление более эффективных условий получения некогерентного ульрафиолетового излучения с высокой средней мощностью, эмиттируемого эксиплексными и эксимерными молекулами [1-10]. Поскольку эксилампы не столь сложны в эксплуатации и работают в более широком, чем лазеры, диапазоне параметров накачки, то их использование в случаях, когда когерентность и плотность мощности излучения неважны, может давать значительные преимущества. Выбор рабочей смеси эксилампы, состоящей из инертных газов или инертных газов и галогенидов, определяет сравнительно узкополосную эмиссию на длинах волн, близких к 126, 146, 172, 193, 222, 250, 308, 350 нм [1-12], которая может оказаться более предпочтительной для стимулирования фотохимических процессов, чем излучение традиционно используемых ртутных ламп. Выбор оптимальных условий накачки позволяет варьировать диапазон рабочих давлений, подобрать более подходящую для пользователя геометрию излучающей полости эксилампы и получать наибольшие мощности и эффективности спонтанного излучения в данной спектральной области.

Однако работы [2,10–12], посвященные изучению характеристик источников УФ излучения с накачкой продольным импульсным разрядом, как правило, велись в рамках фиксированной схемы накачки с минимальной вариацией рабочих параметров или с целью создания эксиплексных лазеров с большой длительностью импульса излучения, а это не позволяет делать заключений о преимуществах предлагаемых решений и режимов. Кроме того, эффективности излучения, полученные для KrCl и XeCl эксиламп [2,10,12] при накачке импульсным продольным разрядом, не превышали 1%, тогда как при накачке непрерывным тлеющим разрядом [4,6] был получен КПД для этих эксиламп до 12% и средняя мощность излучения 9 Вт. В данной работе приведены результаты экспериментальных исследований коаксиальных эксиламп, накачиваемых импульсным продольным разрядом, проведено сравнение их характеристик для различных условий возбужедния и получена максимальная средняя мощность излучения для KrCl эксиламп с накачкой импульсным разрядом.

Экспериментальная установка и методики измерений

Исследования велись на коаксиальных эксилампах, конструкции которых были подобны конструкции эксилампы, описанной нами в [10]. Излучатель эксилампы содержал две коаксиально расположенные трубки из кварцевого стекла высокого качества с пропусканием на $\lambda = 222$ нм более 90%. По торцам трубок устанавливались электроды. Длина межэлектродного зазора варьировалась от 30 до 40 см, а зазор между трубками составлял 2.5–8.5 мм при неизменном внешнем диаметре излучающей полости 60 мм. В ряде случаев для улучшения однородности разряда осуществлялась дополнительная предыонизация за счет установки допольнительных электродов. Для охлаждения излучателя через внутреннюю трубку прокачивалась вода.

Накачка осуществлялась от двух импульсных источников, которые обеспечивали импульсы возбуждения короткой длительности от ~10 до ~500 нс, миллисекундной длительности до 10 мс. Величина напряжения на разрядном промежутке могла изменяться от 1 до 30 кВ, частота повторения от единиц Гц до 2 кГц и энергия накачки в отдельном импульсе от ~ 0.1 до ~ 16 Дж.

При получении излучения вблизи $\lambda \sim 222$ нм использовались как двойные, так и тройные смеси инертного газа Kr с галогеноносителями HCl или Cl₂ и буферными газами He или Ne. Рабочие смеси готовились в отдельном смесителе. Суммарное давление смесей при оптимизации их состава могло меняться

в широких пределах от нескольких Тор до 1.5 атм. Перед напуском рабочей смеси эксилампа откачивалась, продувалась гелием и неоном и тренировалась разрядом при давлении менее 1 Тор.

Временные и амплитудные характеристики излучения в области 200–400 нм определялись с помощью фотодиода ФЭК-22СПУ, сигнал с которого подавался на осцилограф С8-14. Фотодиод предварительно калибровался KrCl лазером. Мощность излучения рассчитывалась с учетом площади излучающей поверхности и распределения плотности мощности излучения по длине и диаметру эксилампы.

Результаты

Амплитудно-временные характеристики излучения подробно исследовались для KrCl эксиплекса $(\lambda \sim 222$ нм) как при коротких (≤ 0.5 мс) длительностях импульса накачки, так и при миллисекундных. Наиболее значимые результаты приведены на рис. 1–3. Первоначально были исследованы тройные рабочие смеси He(Ne)-Kr-HCl с соотношением между компонентами газовой смеси, близким к оптимальным в экспериментах с лампами высокого давления (p = 0.5 - 2.5 атм, соотношение Kr: HCl = 25:1 не зависит от типа буферного газа гелия или неона |3-5|). Ввиду того что продольный размер излучателя данной эксилампы почти на порядок больше, чем в указанной системе высокого давления, надеяться на обеспечение стабильной работы устройства при суммарных давлениях ≥ 1 атм можно было только, используя дополнительную предыонизацию межэлектродного промежутка или сближая рабочие электроды. Однако применение дополнительных электродов для предыонизации и разбиение межэлектродного расстояния надвое (по 14 см) приводили к тому, что даже при коротких длительностях импульса накачки (менее 150 нс) общие давления рабочих смесей в



Рис. 1. Типичная зависимость импульсной мощности излучения от зарядного напряжения накопительного конденсатора. Смесь Ne : Kr : HCl = 456 : 31.5 : 1 Тор, длительность импульсов излучения на полувысоте $\tau_{0.5}$ = 250 нс, частота следования импульсов накачки f = 50 Гц. Штриховая кривая — искровая стадия разряда.



Рис. 2. Зависимости средней мощности УФ излучения $(\lambda < 250 \text{ нм})$ продольного импульсного разряда низкого давления с накачкой короткими импульсами (f = 50 Гц) от давления смеси. $1 - \text{Kr:HCl} = 3:1, 2 - \text{Kr:Cl}_2 = 3:1, 3 - \text{Kr:HCl} = 6:1, 4 - \text{Kr:Cl}_2 = 6:1.$

режимах без заметной контракции были ограничены значениями 0.9 атм.

Оптимальная для получения наибольших значений выходной мощности и одновременно времени жизни смеси Ne:Kr:HCl (530:31.5:1.5 Top) оказалась близкой по отношению криптона к галогеноносителю к указанной для случая высоких давлений. Замена неона на гелий с сохранением концентраций Kr и HCl снижала значение оптимального давления буферного газа с 0.5 до 0.3 атм и уменьшала излучаемые оптимальными смесями мощности в 1.5 раз. При общих давлениях около 0.5 атм были хорошо заметны три стадии разряда: слаботочная, искровая стадия, представляющая собой несколько жгутов, меняющих свое местоположение от импульса к импульсу, и стадия диффузных каналов, занимающих почти весь объем эксилампы. Переход от искровой стадии к диффузной стадии почти на порядок увеличивает среднюю мощность эксилампы, а далее она линейно возрастает. Все эти стадии прослеживаются на рис. 1, где показана зависимость импульсной мощности излучения от зарядного напряжения накопительного конденсатора генератора накачки. Максимальному значению импульсной мощности на рис. 1 соответствует средняя мощность излучения при частоте следования импульсов накачки 50 Гц-250 мВт. Максимальные эффективности УФ излучения в тройных смесях были малы и не превышали ~ 1% относительно энергии, запасаемой в накопительном конденсаторе.

В бинарных смесях Kr с HCl(Cl₂) при накачке короткими импульсами были получены примерно на порядок меньшие средние мощности, что иллюстрирует рис. 2. Понятно, что эффективность генерации этих смесей также на порядок ниже эффективности тройных смесей. Диапазон оптимальных давлений для бинарных смесей ограничен сверху отметкой 25 Тор, за пределами которой в указанной продольной геометрии эксилампы разряд становится неоднородным и далее контрагируется.



Рис. 3. Зависимости тех же величин, что на рис. 2, при накачке миллисекундными импульсами (f = 50 Гц) от мощности накачки при разных давлениях смеси Kr-Cl₂. p, Top: a = 3, b = 6.

Как правило, при короткоимпульсной накачке максимальные мощности излучения достигались при длительностях импульсов тока разряда не более ~ 150 нс, значения импульсной выходной мощности при этом достигали десятков киловатт. Для обеспечения высокого уровня средней мощности необходимо увеличивать частоту следования импульсов накачки [10]. Так, на f = 1000 Гц в оптимальной по составу смеси Ne-Kr-HCl, когда удельная порция энергии одного импульса накачки составляла 4.6 мДж/см^3 , средняя мощность составляла ~ 2.1 Br, а на $f = 2 \ \kappa \Gamma \mu - 4.0 \ B$ т. Однако при больших частотах повторения импульсов начинал сказываться на однородности разряда нагрев излучателя эксилампы. В результате разряд из диффузной стадии переходил в искровую.

Другим способом увеличения средней мощности излучения является изменение параметров импульса накачки. Увеличив длительность импульсов тока через эксилампу до 8 мс (при этом максимумы амплитуды импульсов тока через эксилампу и напряжения не превышали 0.7 А и 5 кВ соответственно, а удельная мощность накачки 10 Bт/см³), на частотах повторения 50 Гц в бинарных смесях нами была получена средняя мощность излучения в УФ области спектра ($\lambda < 250$ нм) до 60 Вт. На рис. 3 приведены зависимости средней мощности и эффективности УФ излучения в бинарных смесях с Cl₂ от мощности накачки. Любые добавки (менее 1 и до 10 Тор) буферного газа неона снижали среднюю мощность в смесях с Cl₂ и с HCl, ухудшая качество разряда, а добавки гелия в тех же количествах в ряде случаев подобного эффекта не вызывали. Оптимальные с точки зрения времени жизни, однородности разряда и средней мощности соотношения газовых компонент Kr-HCl и Kr-Cl₂ смесей составили от 15:1 до 3:1, а оптимум общего давления смеси как с HCl, так и с хлором лежал в диапазоне от 3 до 9 Тор. При этом средняя

мощность излучения Kr-HCl смеси была значительно меньше средней мощности излучения Kr-Cl₂ смеси при одних и тех же мощностях накачки (в диапазоне 300-700 Br). Отметим, что при накачке непрерывным тлеющим разрядом [4] мощность излучения молекул XeCl* в смесях с молекулярным хлором также была существенно выше, чем в смесях с хлористым водородом. При переходе к более низким общим давлениям ≤ 3 Тор разница в мощностях излучения для этих хлороносителей увеличивалась.

Таким образом, в указанных условиях наибольшие средние мощности излучения молекул KrCl* реализуются в бинарных смесях с хлором при больших длительностях и малых мощностях импульсов накачки.

Обсуждение и анализ результатов экспериментов

Образование молекул KrCl* в газоразрядной плазме может происходить в результате ион-ионной рекомбинации

$$\operatorname{Kr}^+(\operatorname{Kr}_2^+) + \operatorname{Cl}^- + M \to \operatorname{Kr}\operatorname{Cl}^* + (\operatorname{Kr}) + M$$
 (1)

и гарпунной реакции

$$\mathrm{Kr}^* + \mathrm{Cl}_2 \to \mathrm{Kr}\mathrm{Cl}^* + \mathrm{Cl},$$
 (2)

где M — третья частица [4,13].

При повышенных давлениях и мощностях накачки $> 100 \text{ kBt/cm}^3$ основной вклад в образование эксиплексных молекул KrCl* дает реакция (1) с участием молекулярных ионов криптона [13]. Гарпунная реакция с хлороносителем HCl имеет малую скорость, так как энергии атома криптона в состоянии 3P_1 не достаточно для образования молекул KrCl*. С Cl₂ гарпунная реакция при определенных условиях может давать основной вклад в образование молекул

XeCl* [4] и KrCl*, однако из-за большого поглощения на длине волны генерации в лазерах молекулярный хлор не используется.

Проанализируем условия, в которых достигаются высокие эффективности излучения KrCl эксилампы. В данных экспериментах при накачке короткими импульсами и давлениях ~ 0.5 атм КПД спонтанного излучения относительно мощности накачки не превышал 1%, тогда как КПД KrCl лазера с поперечной накачкой импульсами соответствующей длительности достигал относительно мощности накачки 2.5% [13], а эффективность получения спонтанного излучения в условиях [13] была еще в два раза выше. Тогда относительно низкие эффективности и средние мощности излучения, получаемые при накачке продольным разрядом и коротких (< 500 нс) мощных $(> 10^3 \,\mathrm{Br/cm^3})$ импульсах возбуждения, можно объяснить двумя основными причинами. Во-первых, неоднородностью накачки, газоразрядная плазма продольного разряда состояла из множества диффузных каналов. При накачке поперечным разрядом с изменяемой интенсивностью предыонизации [13] КПД генерации увеличивался с увеличением интенсивности предыонизации и формированием однородного разряда. И во-вторых, влиянием процессов безызлучательного тушения. Увеличение КПД излучения эксиламп при миллисекундной накачке по сравнению с накачкой короткими импульсами связано с существенным $(> 10^3)$ уменьшением мощности накачки, что приводит к соответственному уменьшению концентрации электронов и других тушащих частиц, образующихся в газоразрядной плазме.

Оценим скорости образования молекул $RX^*(dN_{RX^*}/dt)$ в квазистационарном режиме во время миллисекундного импульса за счет реакций (1) и (2). Так как для XeCl* молекул имеются более надежные константы [14-15], то оценки проведем для XeCl эксилампы, характеристики излучения которой нами также исследовались и были подобны. Плотность электронов $N_e \sim 10^{11} \, {\rm cm}^{-3}$ можно получить используя данные по дрейфовым скоростям при разряде в инертных газах [17] и экспериментально измеренные плотность тока и напряжение на электродах разрядной трубки. При близости концентрации ионов ксенона концентрации отрицательных ионов хлора и концентрации электронов, что характерно для разрядов в подобных смесях [17], скорость образования эксиплексных молекул в результате ион-ионной рекомбинации (1) не превышает $10^{16} - 10^{17} \,\mathrm{cm}^{-3}$. Концентрацию метастабильных атомов ксенона можно оценить как

$$N_{\rm Xe^*} = k_{\rm B} N_{\rm Xe} N_e / k_{\rm r} k_{\rm Cl} \sim 5 \cdot 10^{10} \, {\rm cm}^{-3}, \qquad (3)$$

где $k_{\rm B}$ и $k_{\rm r}$ — константы возбуждения ксенона и гарпунной реакции (2).

Тогда, используя (3) и константу гарпунной реакции, получим скорость процесса (2)

$$dN_{\rm XeCl^*}/dt \sim 10^{18} \, {\rm cm}^{-3},$$

которая существенно больше скорости ион-ионной рекомбинации. Удельная мощность излучения XeCl эксилампы в квазистационарном режиме достигала 1 Bt/cm^3 , что соответствует излучению из 1 cm^3 разрядного объема за 1 с ~ 10¹⁸ молекул XeCl*. Данная оценка показывает, что концентрации образовавшихся и излучивших эксиплексных молекул примерно совпадают, следовательно, скорость безызлучательной релаксации молекул галогенидов благородных газов при малых мощностях накачки низка. Это и позволяет получать высокие эффективности спонтанного излучения. Для увеличения средней мощности излучения при малых мощностях накачки и уменьшения потерь энергии накачки при формировании разряда более выгодно использовать миллисекундный диапазон длительностей импульсов накачки и сравнительно малые ($\sim 10^2 \ \Gamma$ ц) частоты повторения импульсов. Отметим, что равновесная концентрация эксиплексных молекул, реализуемая при миллисекундных импульсах накачки, $\sim 10^{10}\,{
m cm}^3,$ а также эффективность УФ излучения совпадают с полученными в [6] при накачке непрерывным тлеющим разрядом, однако средняя мощность излучения в [4,6] была в 6 раз меньше по сравнению с полученной в нашей работе.

Заключение

Таким образом, в данной работе проведены исследования KrCl эксиламп с накачкой импульсным продольным разрядом. Получены средняя мощность излучения в области длин волн с $\lambda < 250$ нм (максимум на $\lambda \sim 222$ нм) 60 Вт и КПД 11%. Показано, что наибольшие средние мощности излучения достигаются при длительности импульса накачки более 1 мс и использовании донора хлора Cl₂. Основным каналом образования молекул KrCl^{*} в этих условиях является гарпунная реакция.

Авторы благодарят В.С. Скакуна за помощь при проведении данной работы.

Список литературы

- Баюнов В.И., Волкова Г.А., Подмошенский И.В. // ЖПС. 1991. Т. 54. № 1. С. 164–166.
- [2] Taylor R.S., Leopold K.E., Tan K.O. // Appl. Phys. Lett. 1991. Vol. 59. N 5. P. 525–527.
- [3] Коваль Б.А., Скакун В.С., Тарасенко В.Ф. и др. // ПТЭ. 1992. № 4. С. 244-245.
- [4] Головинский А.П. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. В. 8. С. 73–76.
- [5] Boichenko A.M., Skakun V.S., Tarasenko V.F. et al. // Laser Phys. 1993. Vol. 3. N 4. P. 838–843.
- [6] Головинский А.П., Кан В.С. // Опт. и спектр. 1993.
 Т. 75. Вып. 3. С. 604–609.
- [7] Кузнецов А.А., Скакун В.С., Тарсенко В.Ф., Фомин Е.А. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. Вып. 5. С. 1–5.

- [8] Рулев Г.Б., Саенко В.Б. // Письма в ЖТФ. 1993.
 Т. 19. Вып. 21. С. 53-56.
- [9] Furusawa H., Okada S., Obara M. // Appl. Phys. Lett. 1995. Vol. 66. P. 1877–1879.
- [10] Визирь В.А., Скакун В.С., Сморудов Г.В. и др. // Квантовая электрон. 1995. Т. 22. № 5. С. 519-522.
- [11] Gerber T., Luthy, Burkhard P. // Opt. Commun. 1980. Vol. 35. N 2. P. 242-244.
- [12] Kumagai H., Obara M. // IEEE Trans. On Plasma Sci. 1988. Vol. 16. N 4. P. 453–458.
- [13] Panchenko A.N., Tarasenko V.F. // IEEE J. Quant. Electron. 1995. Vol. 31. N 7. P. 1231–1236.
- [14] Бойченко А.М., Держиев В.И., Жидков А.Г. и др. // Тр. ИОФАН. 1989. Т. 21. С. 44–115.
- [15] Зуев В.С., Канаев А.В., Михеев Л.Д. // Квантовая электрон. 1984. Т. 11. № 2. С. 354–356.
- [16] Hokozono H., Midorikava K., Obara M. // J. Appl. Phys. 1984. Vol. 52. N 3. P. 680–690.
- [17] Райзер Ю.П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1987, 592 с.