

04;07;12

Многоволновый электроразрядный излучатель на системе полос $\lambda = 308 \text{ nm XeCl}(B-X)/258 \text{ nm Cl}_2(D'-A')/236 \text{ nm XeCl}(D-X)/222 \text{ nm KrCl}(B-X)/175 \text{ nm ArCl}(B-X)/160 \text{ nm H}_2(B-X)$

© А.К. Шуаибов, Л.Л. Шимон, А.И. Дащенко, И.В. Шевера

Ужгородский государственный университет,
88000 Ужгород, Украина
E-mail: ishev@univ.uzhgorod.ua

(Поступило в Редакцию 31 марта 2000 г.)

Приведены результаты оптимизации характеристик УФ–ВУФ излучателя на хлоридах тяжелых инертных газов и молекулах хлора. Возбуждение рабочих смесей Ar/Kr/Cl₂ и Ar/Kr/Xe/Cl₂ (HCl) происходило в поперечном объемном разряде с искровой предьонизацией при $P = 1 \dots 30 \text{ кПа}$. Исследовались спектры излучения плазмы многокомпонентной активной среды, зависимости интенсивности излучения разряда от давления и состава газовых смесей, величины зарядного напряжения и количества разрядных импульсов. Показано, что данный разряд является источником излучения на полосах $\lambda = 308/256/236/222/175/160 \text{ nm}$. Для одновременного получения примерно равных величин интенсивности полос излучения XeCl(*B, D-X*), Cl₂(*D'-A'*), KrCl(*B-X*), ArCl(*B-X*) и H₂(*B-X*) в области 160...308 nm оптимальными были смеси: [Ar] = 1...20 кПа, [Kr, Xe] = 0.4...0.6 кПа, [Cl₂] = 0.2...0.4 кПа, [HCl] = 0.08 кПа и [H₂] = 0.5...1.0 кПа. Добавки молекул H₂ приводят к падению интенсивности эксимерных полос, увеличению ресурса работы ($\geq 10^4$ импульсов) и расширению диапазона работы источника за счет полос Лаймана H₂ ($\lambda = 158 \dots 161 \text{ nm}$).

Введение

Электроразрядные эксимерные лампы в наше время являются наиболее мощными и селективными источниками спонтанного УФ излучения в области 200...350 nm [1–3], что обуславливает их широкое использование в микроэлектронике, химии высоких энергий, биологии и квантовой электронике [4–6]. В большинстве случаев они работают на одной фиксированной длине волны, изменение которой возможно только при переходе к другой рабочей среде. Для ряда применений в импульсной фотометрии, биохимии, биофизике или медицине перспективным может стать использование многоволновой эксимерной лампы, в спектре излучения которой одновременно присутствуют полосы с разными длинами волн на отдельных *B-X*-переходах галогенидов инертных газов — RX^* (где *R* — Ar, Kr, Xe; *X* — F, Cl). Такой режим важен для калибровки фотоприемников импульсного коротковолнового излучения или для одновременного селективного воздействия на отдельные молекулярные связи химически или биологически активных соединений. Такие эксимерные излучатели (ЭИ) были разработаны нами для $\Delta\lambda = 353 \dots 222 \text{ nm}$. Так, в [7,8] многоволновой режим работы ЭИ на $\lambda = 222 \text{ nm KrCl}/249 \text{ nm KrF}/308 \text{ nm XeCl}/353 \text{ nm XeF}$ достигался путем использования в качестве общего носителя F и Cl молекул CF₂Cl₂, а в [9,10] использовались сложные рабочие смеси (типа He/Kr/Xe/HCl/SF₆), которые включали два тяжелых инертных газа и разные молекулы — галогеноносители. Для увеличения энергии квантов ЭИ перспективным является расширение диапазона работы излучателя в области вакуумного ультрафиолета ($\lambda \leq 190 \text{ nm}$). Первые результаты исследований

подобных ЭИ приведены в [11] на примере источника с $\lambda = 258 \text{ nm Cl}_2^*/175 \text{ nm ArCl}^*$, который работал на смеси He(Ne)/Ar/Cl₂ (HCl).

В данной работе приведены результаты оптимизации многоволнового УФ–ВУФ излучателя, работающего на системе полос с $\lambda = 308/258/236/222/175/160 \text{ nm}$, а его рабочей средой является смесь газов Ar/Kr/Xe/Cl₂(HCl)/H₂.

Техника и условия эксперимента

Эксперименты проводились на ЭИ с накачкой поперечным объемным разрядом (ПОР) и автоматической искровой предьонизацией межэлектродного промежутка. Схема излучателя приведена в [8]. Объем плазмы разряда составлял $18 \times 2.2 \times 1.0 \text{ cm}$, где величина межэлектродного расстояния равна 2.2 cm. Для поджига ПОР использовалась двухконтурная LC-схема с емкостью основного накопительного конденсатора 30 nF и обострительных конденсаторов общей емкостью 9.4 nF (20 шт. конденсаторов КВИ-3, 470 pF, 20 kV). Данные конденсаторы заливались изолирующим компаундом в форме двух блоков и устанавливались вблизи электродов ПОР и разрядников искровой предьонизации внутри разрядной камеры. Низкая индуктивность основной цепи питания ПОР ($L \leq 10 \text{ nG}$), наличие изолятора с высокой диэлектрической проницаемостью (блоки залитых изолятором керамических конденсаторов), установленных между плазмой ПОР и заземленными экранами, и краткая длительность тока ПОР ($t \leq 30 \text{ ns}$) делают данную систему накачки близкой к системе получения высокоскоростных волн ионизации в импульсном

продольном разряде [12–14]. Регистрация излучения плазмы ПОР осуществлялась при помощи полметрового вакуумного монохроматора с дифракционной решеткой на 1200 штрихов на мм. Величина обратной линейной дисперсии спектрофотометра составляла 1.4 nm/mm. Разрядная камера герметично соединялась с монохроматором через окошко из CaF_2 . В качестве фотоприемника применялся фотоумножитель ФЭУ-142 с LiF окном, камера с которым откачивалась (вместе с камерой дифракционной решетки) до остаточного давления воздуха $P \leq 10^{-3}$ Па. Рабочий спектральный диапазон системы "вакуумный монохроматор + ФЭУ-142" составлял 130...350 nm. Относительная калибровка спектрофотометра производилась в области 165...350 nm по непрерывному излучению молекул водорода.

Оптические и ресурсные характеристики

На рис. 1 приведен аппаратный спектр излучения плазмы ПОР на смеси Ar/Kr/Cl_2 . Все УФ–ВУФ излучение сконцентрировано на переходах с $\lambda = 175$ nm $\text{ArCl}(B-X)$, 222 nm $\text{KrCl}(B-X)$ и 258 nm $\text{Cl}_2(D'-A')$. Введение в данную смесь небольших примесей атомов

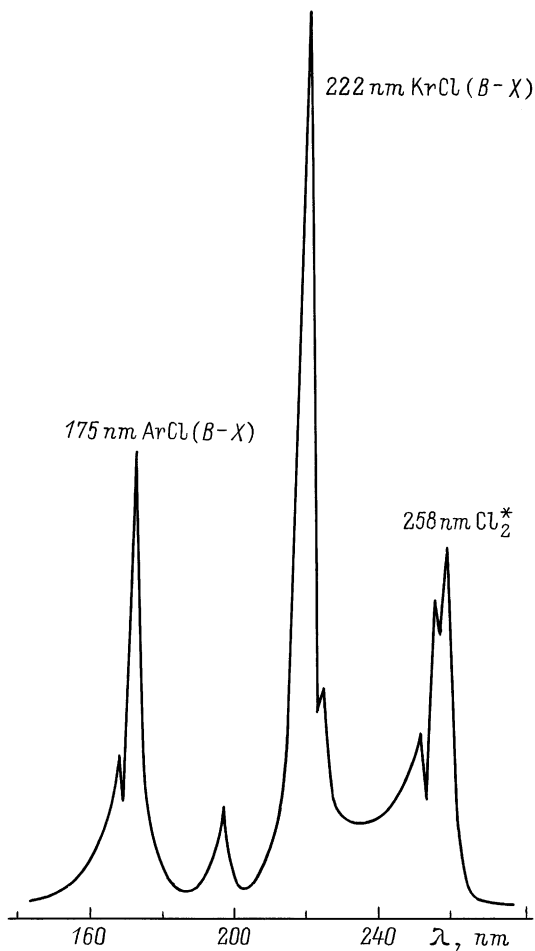


Рис. 1. Спектр излучения плазмы ПОР на смеси $\text{Ar/Kr/Cl}_2 = 13.3/0.6/0.24$ кПа.

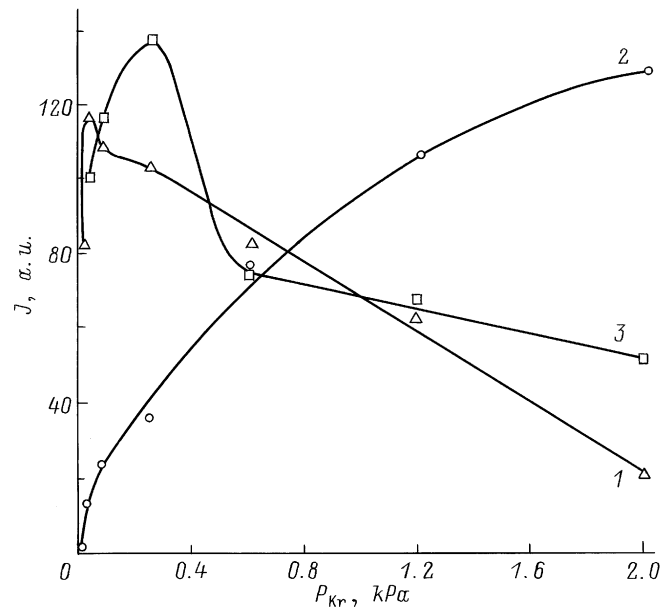


Рис. 2. Зависимость интенсивности излучения полос с $\lambda = 175$ nm ArCl (1), 222 nm KrCl (2), 258 nm Cl_2^* (3) в ПОР на смеси $\text{Ar/Kr/Cl}_2 = 13.3/[\text{Kr}]/0.24$ кПа от содержания криптона ($U = 12.5$ кВ).

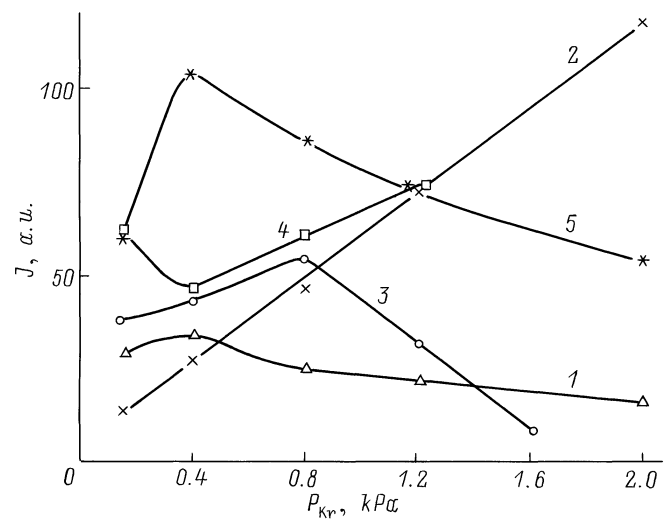


Рис. 3. Зависимость интенсивности излучения полос с $\lambda = 175$ (1), 222 (2), 236 (3), 258 (4) и 308 nm (5) от содержания криптона в ПОР на смеси $\text{Ar/Kr/Xe/Cl}_2 = 13.3/[\text{Kr}]/0.4/0.24$ кПа ($U = 12.5$ кВ).

Хе и молекул водорода дополняет спектр, представленный на рис. 1, полосами с $\lambda = 308$ nm $\text{XeCl}(B-X)$, 236 nm $\text{XeCl}(D-X)$ и 158...161 nm $\text{H}_2(B-X)$ (полосы Лаймана H_2). Для спектра излучения плазмы ПОР на смеси Ar/Cl_2 (HCl) характерны только две полосы: $\lambda = 258$ и 175 nm. Замена молекул Cl_2 на HCl вела к уменьшению интенсивности излучения на переходах $\text{Cl}_2(D'-A')$ и $\text{ArCl}(B-X)$ во всех газовых смесях. Оптимальное (для получения максимальной интенсивности

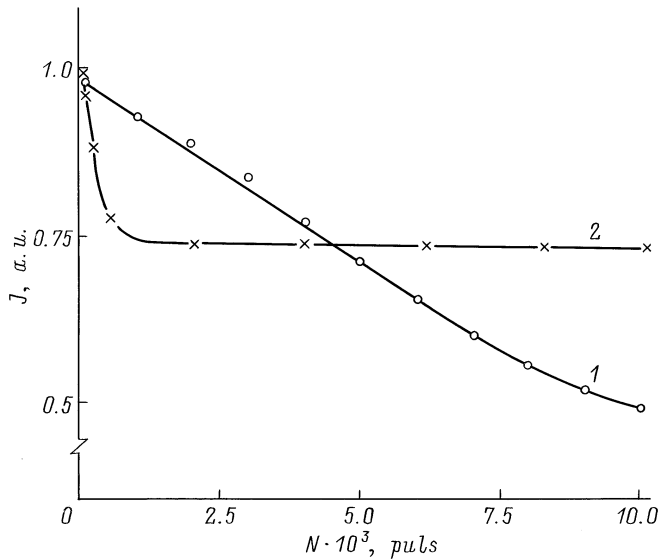


Рис. 4. Зависимость интенсивности излучения полос $\lambda = 222 \text{ nm KrCl}$ в ПОР на смеси $\text{Ar/Kr/Cl}_2 = 13.3/0.4/0.24 \text{ kPa}$ (1) и $\lambda = 175 \text{ nm ArCl}$ (смесь $\text{Ar/Kr/HCl/H}_2 = 13.3/0.4/0.12/0.13 \text{ kPa}$) (2) от количества разрядных импульсов.

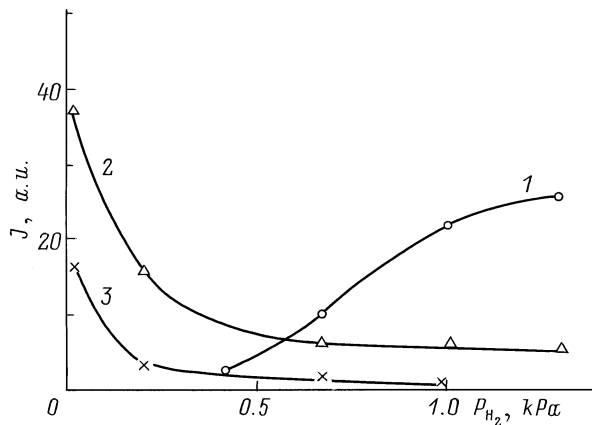


Рис. 5. Зависимость интенсивности излучения полос $\lambda = 160 \text{ nm H}_2(B-X)$ (1), 175 nm ArCl (2) и 258 nm Cl_2^* (3) от содержания молекул водорода в ПОР на смеси $\text{Ar/HCl/H}_2 = 13.3/0.12/[H_2]$, ($U = 12 \text{ kV}$).

на $\lambda = 175 \text{ nm}$) содержание молекул хлора составляет $0.2 \dots 0.4 \text{ kPa}$, а молекул $\text{HCl} - 0.08 \text{ kPa}$, что обусловлено достаточно значительным поглощением молекулами HCl в ВУФ области спектра и отсутствием его для Cl_2 . При умеренных зарядных напряжениях основного накопительного конденсатора системы питания ПОР ($U = 4 \dots 15 \text{ kV}$) в разряде на смеси Ar/Cl_2 оптимальное давление Ar находилось в пределах $8 \dots 15 \text{ kPa}$. Увеличение давления смесей ($P \geq 30 \text{ kPa}$) приводило к формированию неоднородностей ПОР. Рост величины U в пределах $5 \dots 15 \text{ kV}$ приводил к $3 \dots 5$ -разовому линейному возрастанию интенсивности всех исследуемых полос. На

рис. 2 и 3 приведены зависимости интенсивности эксимерных полос и полосы $\text{Cl}_2(D'-A')$ от содержания атомов Kr в ПОР на смесях Ar/Kr/Cl_2 и Ar/Kr/Xe/Cl_2 . Увеличение содержания Kr ($\geq 0.05 \text{ kPa}$) приводит в разряде на тройной смеси к росту интенсивности $\text{KrCl}(B-X)$ и соответственного падению интенсивности $\text{ArCl}(B-X)$. Для полосы $\text{Cl}_2(D'-A')$ наблюдался максимум выхода излучения при $[\text{Kr}] = 0.3 \text{ kPa}$. При парциальном давлении криптона равном 0.6 kPa все три полосы имели близкие по величине интенсивности. Небольшие примеси криптона ($\leq 0.05 \text{ kPa}$) приводили к росту интенсивности $B-X$ полос ArCl (вероятно, за счет изменения параметров разряда типа n_e, T_e). Уменьшение интенсивности полосы $\text{ArCl}(B-X)$ при одновременном возрастании (с той же скоростью) интенсивности $\text{KrCl}(B-X)$ обусловлено реакциями замещения атомов Ar атомами Kr в процессе образования эксимерных молекул. В [15] показано, что наиболее значительной константой реакции передачи $\text{Ar}^* - \text{Kr}$ является константа скорости передачи энергии $\text{Ar}(^3P_2)$ атомам Kr с образованием $\text{Kr}(5p[3/2]_2)$, $k = 5.6 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^3/\text{s}$. Такой процесс эффективно происходит в Ar/Kr плазме при $[\text{Kr}] = 0.1 \dots 1.0 \text{ kPa}$, что полностью согласуется с данными рис. 2. Более сложным является распределение интенсивности эксимерных полос и $\text{Cl}_2(D'-A')$ в разряде на смеси Ar/Kr/Xe/Cl_2 . Увеличение содержания Kr и тут приводит к возрастанию интенсивности полосы $\text{KrCl}(B-X)$, а для полос $\text{XeCl}(B-X)$ и $\text{ArCl}(B-X)$ наблюдались максимум при $P_{[\text{Xe}]} = 0.4 \text{ kPa}$ и спад при большем содержании атомов Xe в смеси. Для $\text{Cl}_2(D'-A')$ наблюдался минимум в зависимости интенсивности от содержания атомов Kr при $P_{[\text{Kr}]} = 0.4 \text{ kPa}$. Такой характер поведения распределения интенсивности излучения обусловлен в основном процессами передачи энергии от $\text{Ar}(^3P_2)$ атомам Kr и Xe [15-17] и особенностями взаимодействия между возбужденными атомами Kr и Xe в Kr-Xe плазме [18,19]. Для ПОР при $P = 1 \dots 30 \text{ kPa}$ в отличие от активной среды электроразрядных эксимерных лазеров и ламп высокого давления ($P \geq 100 \text{ kPa}$) роль реакции рекомбинации типа $\text{Ar}^+ + \text{Cl}_2^- + (\text{Ar}) \rightarrow \text{ArCl}^* + (\text{Ar})$ уменьшается, поскольку ее константа скорости уменьшается при понижении давления буферного газа (от 100 до 10 kPa) на порядок [20]. При этом на начальной стадии разряда основной становится "гарпунная" реакция $\text{Ar}(m) + \text{Cl}_2 \rightarrow \text{ArCl}^* + \text{Cl}$ [21,22], для которой важным является присутствие возбужденных (метастабильных) атомов тяжелых инертных газов в плазме. Скорость такой "гарпунной" реакции образования $\text{ArCl}(B)$ значительна и достигает $7 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ [23]. Интенсивности эксимерных полос и полосы $\text{Cl}_2(D'-A')$, сравнимые между собой по величине в ПОР на смеси $\text{Ar/Kr/Xe/Cl}_2 = 13.3/[\text{Kr}]/0.4/0.24 \text{ kPa}$, достигаются при $[\text{Kr}] = 0.4 \dots 1.2 \text{ kPa}$, что достаточно для использования его в импульсной фотометрии УФ-ВУФ диапазона спектра. На рис. 4 приведена ресурсная характеристика интенсивности излучения $\text{KrCl}(B-X)$ в ПОР на смеси Ar/Kr/Cl_2 . Ресурс излучения (когда интенсивность полосы в зависимости от количества разрядных импуль-

сов уменьшается в два раза) достигал $1 \dots 2 \cdot 10^4$ имп. Исследование ресурса излучения проводилось в газостатическом режиме при пассивном объеме разрядной камеры — 10 л. Ресурс определялся в основном чистотой буферного газа (Ar — “технической” чистоты) и материалами, из которых изготовлена система электродов и разрядная камера (нержавеющая сталь, алюминий, оргстекло, фторопласт и кварц). Использование слабой замены рабочей смеси со скоростью ≤ 0.01 м/с или твердотельного генератора молекул Cl_2 (который периодически включается, когда резко уменьшается интенсивность излучения) и системы регенерации отработанной смеси позволит стабилизировать интенсивность излучения во времени. В [24] было показано, что при введении небольших примесей молекул H_2 ($P \leq 130$ Па) в рабочую среду электроразрядных лазеров на $\lambda = 308$ нм XeCl и 222 нм KrCl (смеси $\text{He}/R/\text{HCl}$ при $P \geq 100$ кПа) их ресурс работы увеличивался на два порядка. Для расширения спектрального диапазона работы ЭИ за счет полос Лаймана H_2 в данной работе проводились также исследования влияния молекул H_2 на оптические характеристики ПОР. На рис. 5 представлена зависимость интенсивности полос ArCl , KrCl , H_2^* и Cl_2^* от содержания водорода в разряде на смеси $\text{Ar}/\text{HCl}/\text{H}_2$. Добавление значительного количества молекул водорода (≥ 0.1 кПа) приводит к значительному снижению интенсивности полос ArCl^* и Cl_2^* , а при парциальном давлении $\text{H}_2 \geq 0.3$ кПа в спектре излучения появляются полосы Лаймана H_2 с $\lambda = 158 \dots 161$ нм. Для $[\text{H}_2] = 0.57$ кПа интенсивности полос ArCl^* и H_2 равны между собой, а при дальнейшем увеличении H_2 в смеси основными в излучении становятся полосы Лаймана H_2 . При введении небольшой примеси H_2 в смесь $\text{Ar}/\text{Kr}/\text{HCl}$ наблюдалось незначительное падение интенсивности $\text{ArCl}(B-X)$ и на ресурсной характеристике формировалось плато (рис. 4, кривая 2). Это указывает на значительное возрастание ресурса работы смеси с малыми примесями H_2 ($N > 10^4$ имп.). Основной причиной падения интенсивности полос RX^* является эффективный процесс передачи энергии от $\text{Ar}(m)$ молекулам H_2 [25] и реакции восстановления молекул HCl при взаимодействии его продуктов распада с H_2 . В ПОР на смесях с H_2 в области 200...400 нм, наблюдался также интенсивный континуум при $[\text{H}_2] \geq 0.5$ кПа, который может быть связан с образованием молекул ArH^* [26] или непрерывным излучением H_2 ($a^3\Sigma_g^+ - b^3\Sigma_u^+$), хотя разделить данные континуумы в нашем эксперименте невозможно. В [27] в продольном импульсном разряде, который развивается в форме высокоскоростной ионизационной волны, показано, что при $[\text{H}_2] \geq 1.33$ кПа и $E/N \geq 100$ Тд такая система служит интенсивным источником УФ континуума водорода, а скорость возбуждения $a^3\Sigma_g^+$ — состояния H_2 составляет $1.3 \cdot 10^{20}$ см³/с. Данные о эффективности возбуждения ВУФ излучения в [27] отсутствуют. Такие процессы также приводят к уменьшению интенсивности эксимерных полос при возрастании содержания молекул H_2 в ПОР на смесях $\text{Ar}/\text{Kr}/\text{HCl}/\text{H}_2$.

Выводы

Таким образом, в данной работе установлено, что плазма поперечного объемного разряда на смесях $\text{Ar}/\text{Kr}/\text{Cl}_2$, $\text{Ar}/\text{Kr}/\text{Xe}/\text{Cl}_2$ является эффективным источником импульсного излучения на переходах с $\lambda = 308$ нм $\text{XeCl}(B-X)/258$ нм $\text{Cl}_2(D'-A')$ /236 нм $\text{XeCl}(D-X)/222$ нм $\text{KrCl}(B-X)/175$ нм $\text{ArCl}(B-X)$. Получение одновременного излучения с примерно равными интенсивностями полос возможно в рабочих средах с составом $[\text{Ar}] = 10 \dots 20$ кПа; $[\text{Kr}, \text{Xe}] = 0.4 \dots 0.6$ кПа; $[\text{Cl}_2] = 0.2 \dots 0.4$ кПа; $[\text{HCl}] = 0.08$ кПа при умеренной величине зарядного напряжения (4...15 кВ). Малые добавки молекул H_2 к рабочей смеси ($\leq 0.1 \dots 0.2$ кПа) приводили к появлению плато на ресурсной характеристике и возрастанию ресурса работы, а при $[\text{H}_2] \geq 0.5 \dots 1.0$ кПа интенсивности полос эксимерных молекул и Cl_2^* понижались на порядок и в спектрах излучения появлялись полосы Лаймана H_2 с $\lambda = 158 \dots 161$ нм. Оптимальный состав рабочей среды многоволнового излучателя определяется процессами передачи энергии $\text{Ar}(m)$ –Kr, Xe, H_2 , $\text{Kr}(m)$ –Xe и образования молекул ArH^* и $\text{H}_2(a^3\Sigma_g^+)$.

Список литературы

- [1] Gerber T., Luthy W., Burkhard P. // Opt. Commun. 1980. Vol. 35. P. 242–244.
- [2] Коваль Б.А., Скакун В.С., Тарасенко В.Ф., Фомин Е.А. // ПТЭ. 1992. № 4. С. 244–245.
- [3] Борисов В.М., Водичиц В.А. и др. // Квантовая электроника. 1998. Т. 25. С. 308–312.
- [4] Баранов В.Ю., Борисов В.М., Степанов Ю.Ю. Электроразрядные эксимерные лазеры на галогенидах инертных газов. М.: Энергоатомиздат, 1988. 216 с.
- [5] Kogelshanz U., Esrom H. // Laser and Optoelectronic. 1990. Vol. 22. P. 55–59.
- [6] Басов Ю.Г. Источники накачки микросекундных лазеров. М.: Энергоатомиздат, 1990. 240 с.
- [7] Шуаибов А.К., Шимон Л.Л., Шевера И.В. // ПТЭ. 1998. № 3. С. 142–144.
- [8] Шуаибов А.К., Шимон Л.Л., Шевера И.В., Миня О.Й. // J. Phys. Studies. 1999. Т. 3. № 2. P. 157–163.
- [9] Шуаибов А.К. // ТВТ. 1998. Т. 36. С. 508–510.
- [10] Шуаибов А.К. // ЖТФ. 1998. Т. 68. Вып. 12. С. 64–67.
- [11] Шуаибов А.К., Шимон Л.Л., Дащенко А.И. и др. // Письма в ЖТФ. 1999. Т. 25. Вып. 11. С. 29–34.
- [12] Асиновский Э.И., Василяк Л.М., Марковец В.В. // ТВТ. 1983. Т. 21. С. 371–381.
- [13] Абрамов А.Г., Асиновский Э.И., Василяк Л.М. // Физика плазмы. 1988. Т. 14. С. 979–986.
- [14] Славин Б.Б., Сопин П.И. // ТВТ. 1992. Т. 30. С. 1–11.
- [15] Piper L.G., Setser D.W. // J. Chem. Phys. 1975. Vol. 63. P. 5018–5028.
- [16] Chen C.H., Judisch J.P., Payne M.G. // J. Phys. B: Atom. Molec. Phys. 1978. Vol. 11. P. 2189–2199.
- [17] Galy J., Aoume K., Birot A., Brunet H. et al. // J. Phys. B. 1993. Vol. 26. P. 477–488.

- [18] Cook J.D., Leicher P.K. // Phys. Rev. A. 1985. Vol. 31. P. 90–98.
- [19] Cook J.D., Leicher P.K. // Phys. Rev. A. 1991. Vol. 43. P. 1614–1617.
- [20] Фланнери М.Р. // Газовые лазеры / Под ред. И. МакДаниеля, У. Нигэна. М.: Мир, 1986. С. 177–215.
- [21] Гордон Е.Б., Егоров В.Г., Михкельсон В.Т. и др. // Квантовая электрон. 1988. Т. 15. С. 285–288.
- [22] Пэст В.Э., Сливинский Е.В., Трещалов А.Б. // Квантовая электрон. 1990. Т. 17. С. 438–443.
- [23] Врублевский Э.М., Гусев А.В., Жидков А.Г. и др. // Химия высоких энергий. 1990. Т. 24. С. 356–361.
- [24] McKee T.J., James D.J., Nip W.S. et al. // Apl. Phys. Lett. 1980. Vol. 36. P. 943–945.
- [25] Лавров Б.П., Мельников А.С. // Опт. и спектр. 1998. Т. 85. С. 729–734.
- [26] Бункин Ф.В., Держиев В.И., Юровский В.А., Яковленко С.И. // Квантовая электрон. 1986. Т. 13. С. 1828–1836.
- [27] Панчешный С.В., Стариковская С.М., Стариковский А.Ю. // Физика плазмы. 1999. Т. 25. С. 435–440.