

04;07;12

Оптические характеристики стационарной плазмы продольного разряда на смеси гелий/фреон-12

© А.К. Шуайбов, А.И. Дащенко, И.В. Шевера

Ужгородский национальный университет,
88000 Ужгород, Украина
e-mail: ishev@univ.uzhgorod.ua

(Поступило в Редакцию 28 сентября 2001 г.)

Исследовано излучение плазмы контрагированного продольного разряда постоянного тока на смеси $\text{He}/\text{CF}_2\text{Cl}_2$ в спектральной области 130–300 nm. Показано, что электроразрядная плазма является источником излучения в диапазоне 150–260 nm, сформированного на основе широких полос молекул Cl_2 и однозарядных ионов хлора. Проведена оптимизация ультрафиолетового и вакуумного ультрафиолетового (УФ–ВУФ) излучения плазмы в зависимости от давления и состава рабочей среды, тока разряда и времени работы на одной смеси в газостатическом режиме. Полученные результаты представляют интерес для разработки стационарного источника УФ–ВУФ излучения для применений в микроэлектронике, фотохимии и медицине.

Тлеющий разряд постоянного тока на смесях Хе, Кг и Аг с молекулами хлора успешно используется в качестве источника УФ–ВУФ излучения хлоридов инертных газов со средней мощностью излучения 3–20 W и КПД 8–23% [1–3]. В работе [2] было также установлено, что смесь He/Cl_2 может применяться в электроразрядной лампе низкого давления на $\lambda = 258 \text{ nm}$ $\text{Cl}_2(D'-A')$, которая по своим выходным характеристикам приближается к соответствующим эксимерным лампам. Преимуществом подобных источников УФ излучения является отсутствие в составе их рабочей среды дорогостоящих инертных газов типа Хе или Кг. Это открывает возможности перевода лампы в режим продольной прокачки рабочей среды, для которого снимается вопрос ресурса работы газовой смеси. При этом в подобного типа лампах увеличивается мощность излучения и их эффективность. В [4] нами проведена оптимизация оптических характеристик малогабаритного излучения на смеси He/Cl_2 с накачкой продольным разрядом постоянного тока, где было установлено, что спектр излучения такой лампы может быть расширен в область 200/195 nm за счет использования полос $\text{Cl}_2(1\Sigma-1\Pi_u)$ и применения внешней оболочки лампы, прозрачной в диапазоне $\lambda \leq 200 \text{ nm}$. Для некоторых применений в медицине и промышленных технологиях (стерилизация медицинских инструментов, консервация продовольствия) требуются мощные источники коротковолнового излучения в области 220–170 nm. Поэтому с целью дальнейшего продвижения в ВУФ область спектра важным является продолжение экспериментов [4] с другим галогеносителем (фреон-12), продукты диссоциации которого излучают в области 150–180 nm. Исследование излучения плазмы поперечного объемного разряда на смесях He/Cl_2 и $\text{Al}/\text{CF}_2\text{Cl}_2$ выявило наличие подобного ВУФ излучения продуктов диссоциации молекул хлора и фреона-12 [5,6], что может использоваться и

при разработке излучателя постоянного тока на смеси $\text{He}/\text{CF}_2\text{Cl}_2$.

В настоящей работе представлены результаты исследования УФ–ВУФ излучения плазмы продольного разряда на смеси $\text{He}/\text{CF}_2\text{Cl}_2$ низкого давления.

Продольный разряд постоянного тока зажегся в кварцевой трубке с межэлектродным расстоянием 100 mm и внутренним диаметром 5 mm. Цилиндрические электроды из никелевой фольги устанавливались внутри разрядной трубки с открытыми торцами. Разрядная трубка помещалась в суферную камеру объемом 10 l, которая была соединена с полуметровым вакуумным монохроматором через окно из LiF. Открытый торец разрядной трубки находился напротив входной щели вакуумного монохроматора. Калибровка вакуумного спектрометра проводилась по непрерывному излучению водорода в диапазоне 165–350 nm и путем аппроксимации полученной зависимости до $\lambda = 130 \text{ nm}$. Система регистрации характеристик продольного разряда была аналогична приведенной в наших работах [3,4].

В эксперименте измерялись вольт-амперные характеристики (ВАХ), мощность вкладываемая в плазму продольного разряда, спектры излучения в области 130–300 nm, зависимости яркости излучения полос от давления и состава рабочей смеси, зависимости максимума интенсивности излучения отдельных полос от тока разряда и ресурсные характеристики излучения. Под яркостью излучения полосы понималась площадь под соответствующей кривой на диаграммной ленте самописца, исправленной с учетом относительной спектральной чувствительности вакуумного спектрометра. Продольный разряд постоянного тока в фреоне-12 и смесях $\text{He}/\text{фреон-12}$ при парциальном давлении фреона-12, превышающем 0.1 kPa, является контрагированным. Диаметр плазменного шнура (оторванного от внутренних стенок разрядной трубки) уменьшался с ростом парциального давления фреона-12 и общего давления смеси

He/фреон-12 от 2 до 1 мм. Контрагирование разряда хотя и приводит к уменьшению рабочей поверхности цилиндрического излучателя, все же представляет определенный интерес для увеличения его ресурса работы на одной смеси. Это связано с тем, что ресурс работы хлорсодержащих газоразрядных приборов сильно зависит от коэффициента диффузии хлора в стекло, который значительно увеличивается с ростом температуры разрядной трубки [7]. Контрагированный продольный разряд является наиболее простым способом реализации излучателя с плазменной средой, не соприкасающейся с рабочей оболочкой из стекла и подобный в этом отношении эксимерной лампе с СВЧ накачкой [8]. Получение чисто тлеющего разряда постоянного тока в фреонсодержащих средах, при их парциальном давлении, превышающем 100 Па, является проблематичным. В [9] сообщалось о получении подобного разряда в парах CCl_4 , но только при возбуждении газовой среды продольной высокоскоростной волной ионизации. Дополнительный интерес к изучению свойств контрагированных разрядов в электроотрицательных газах связан с тем, что такая плазма является ион-ионной и значительно отличается от обычной электрон-ионной плазмы [10,11]. Оптические характеристики ион-ионной плазмы на основе молекул фреона-12 в коротковолновой области спектра не изучались, что сдерживает разработку стационарных источников УФ–ВУФ излучения.

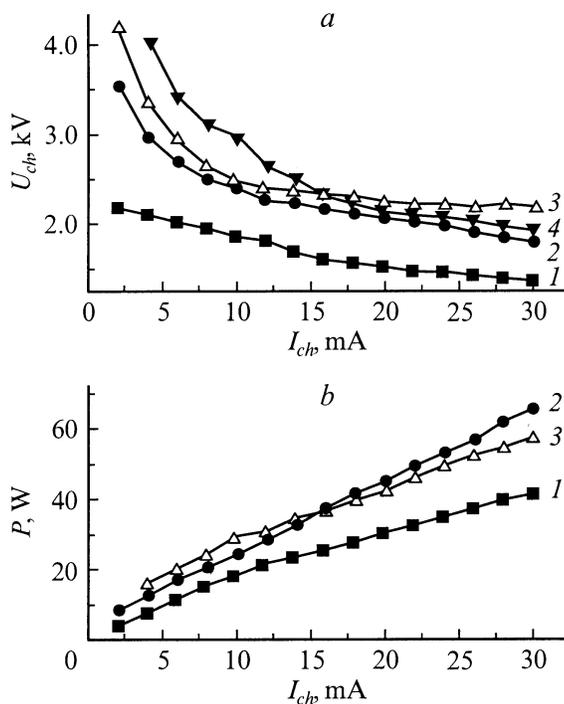


Рис. 1. Вольт-амперные характеристики продольного разряда постоянного тока с смесях $\text{He}/\text{CF}_2\text{Cl}_2 = 1.33/0.13$ (1), $1.33/0.40$ (2), $1.33/0.67$ (3) и $6.70/0.40$ (4) кПа (a) и зависимость мощности вкладываемой в плазму от величины разрядного тока в смесях $\text{He}/\text{CF}_2\text{Cl}_2 = 1.33/0.13$ (1), $1.33/0.67$ (2) и $6.70/0.40$ (3) кПа (b).

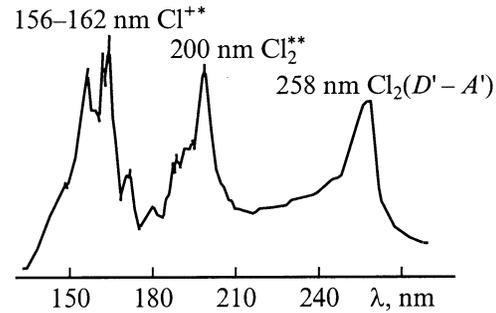


Рис. 2. Спектр УФ–ВУФ излучения стационарной электроразрядной плазмы на смеси $\text{He}/\text{CF}_2\text{Cl}_2$.

На рис. 1, a представлены ВАХ продольного разряда на смеси He/фреон-12. В области разрядных токов $I_{ch} = 1\text{--}15$ mA наблюдалась обратно пропорциональная зависимость спада напряжения на электродах (U_{ch}) от величины разрядного тока, соответствующая поднормальной стадии разряда [12]. При $I_{ch} \geq 15$ mA продольный разряд переходил в нормальный режим горения, когда величина U_{ch} оставалась практически постоянной при увеличении тока. С увеличением содержания фреона-12 и давления смеси He/фреон-12 наблюдался резкий рост потенциалов зажигания разряда и величины квазистационарного напряжения U_{ch} в нормальном режиме (рис. 1, a). Величина мощности, вкладываемая в плазму разряда, увеличивалась с ростом общего давления смеси, содержания фреона-12 в ней и достигала 30–65 W (рис. 1, b).

Спектр излучения плазмы, исправленный с учетом относительной чувствительности системы регистрации, представлен на рис. 2. Как и в продольном разряде на смеси He/ Cl_2 [4], основным было излучение молекул хлора с $\lambda = 200$ и 258 nm. Кроме того, на фоне ВУФ полос излучения Cl_2^{+} в области 140–170 nm наблюдается интенсивное излучение спектральных линий однозарядных ионов хлора. Результаты отождествления линейчатого спектра излучения приведены в таблице. Группа неразрешенных спектральных линий Cl^{+} формирует наиболее коротковолновую часть спектра с $\Delta\lambda = 156\text{--}162$ nm. В плазме поперечного разряда на смеси $\text{Ar}/\text{CF}_2\text{Cl}_2$ [6] излучение ионов хлора в диапазоне 155–165 nm не регистрировалось, что может быть связано с значительной ролью гелия в образовании возбужденных ионов хлора и специфическими свойствами плазмы контрагированного продольного разряда.

Результаты оптимизации яркости УФ–ВУФ излучения плазмы в зависимости от парциального состава смеси $\text{He}/\text{CF}_2\text{Cl}_2$ приведены на рис. 3. Оптимальное парциальное давление фреона-12 при низком давлении смеси находилось в области 0.3–0.5 кПа. При дальнейшем увеличении содержания фреона-12 в смеси наблюдался спад яркости для большинства полос излучения и суммарной яркости в диапазоне 130–280 nm. Наиболее чувствительным к содержанию фреона-12 в смеси было

Составляющие спектра ВУФ излучения ионов хлора в плазме на смеси He/CF₂Cl₂

λ , nm Cl II	E_H , eV	E_B , eV	Переход
156.5	13.67	21.60	$3d^5D_{0,1,2,3,4}^0 - 5f^5F_{1,2,3,4,5}$
156.6	11.70	19.61	$3p^5^3P_0^0 - 4p'^3S_1$
160.4 (5)	14.85	22.58	$3d^3D_{2,3}^0 - 4f'^3G_{3,4}$
161.1	15.71	23.41	$4s'^5D_2^0 - 5p''^3D_2$
161.9	13.67	21.33	$3d^5D_3^0 - 6p^5P_2$
161.9	13.67	21.33	$3d^5D_4^0 - 6p^5P_3$
173.1	14.85	22.01	$3d^3D_3^0 - 5p'^3D_3$
178.7	11.65	18.59	$3p^5^3P_1^0 - 4p'^3P_1$
178.9	15.65	22.58	$3d'^3F_3^0 - 4f'^3G_4$
179.2	11.65	18.57	$3p^5^3P_1^0 - 4p'^3P_2$
179.3	15.68	22.59	$3d'^3F_4^0 - 4f'^3G_5$
179.4	15.68	22.59	$3d'^3F_4^0 - 4f'^3H_5$
179.7	11.70	18.59	$3p^5^3P_0^0 - 4p'^3P_1$
185.7	13.67	20.35	$3d^5D_{0,1,2,3,4}^0 - 4f^5F_{1,2,3,4,5}$
188.7	11.58	18.14	$3p^5^3P_2^0 - 4p'^3D_2$
192.3	11.70	18.14	$3p^5^3P_0^0 - 4p'^3D_1$
193.7	13.38	19.77	$4s'^5S_2^0 - 5p^5P_3$
199.6	16.39	22.60	$3d'^3G_4^0 - 4f'^1H_5$
199.7	16.39	22.60	$3d'^3G_5^0 - 4f'^3H_6$
199.8	16.39	22.59	$3d'^3G_3^0 - 4f'^3H_4$
199.9	16.39	22.59	$3d'^3G_4^0 - 4f'^3H_5$

излучение ионов хлора (рис. 3, *a*). В зависимости от парциального давления He яркость на участке, где превалирует излучение ионов Cl⁺, характеризовалась узким максимумом при $P(\text{He}) = 1.3\text{--}1.4$ кПа и широким максимумом при $P(\text{He}) = 5\text{--}6$ кПа. Излучение полосы с $\lambda = 258$ nm Cl₂(D'-A') характеризовалось широким максимумом при $P(\text{He}) = 4$ кПа, а яркость полосы с максимумом при $\lambda = 200$ nm Cl₂* слабо увеличивалась с ростом $P(\text{He})$. В области низких давлений гелия превалировало ВУФ излучение ионов хлора. Суммарная яркость излучения в диапазоне 130–280 nm также увеличивается с ростом парциального давления гелия. Оптимальное содержание гелия в смеси находилось в пределах 5–6 кПа. Такой характер зависимости яркости УФ–ВУФ излучения от величины $P(\text{He})$ для ион-ионной плазмы контрагированного разряда может быть связан со значительным вкладом процессов передачи энергии от метастабильных атомов и молекул гелия молекулам фреона-12 и основным продуктам его диссоциации в плазме (Cl₂, Cl⁺ и др.), а также эффективным протеканием рекомбинации ионов Cl⁺ и Cl⁻ с образованием молекул Cl₂(D') и Cl₂*.

Увеличение тока в диапазоне 2–30 мА приводило к росту яркости излучения молекул и интенсивности излучения ионов хлора (рис. 4). При этом скорость роста яркости наиболее коротковолнового участка спектра в зависимости от величины I_{ch} была примерно в два раза выше, чем для излучения молекул хлора. Увеличение парциального давления гелия с 0.67 до 4.00 кПа так-

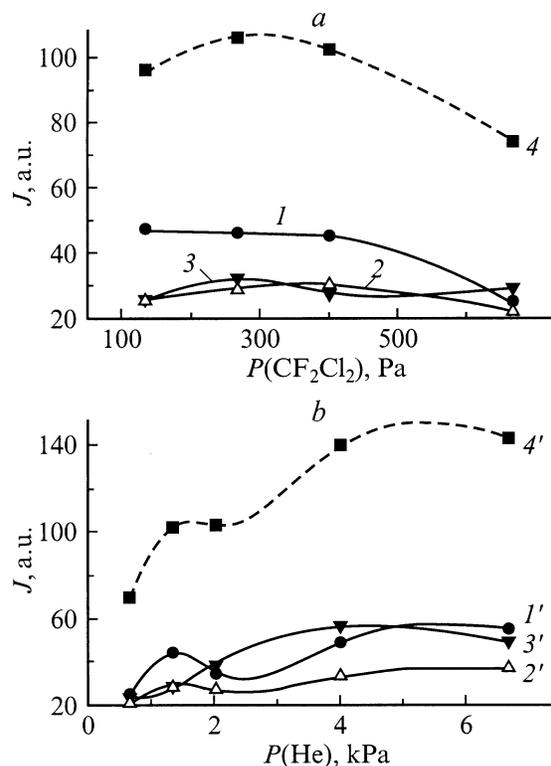


Рис. 3. Зависимость яркости излучения продольного разряда на смеси He/CF₂Cl₂ от парциального давления фреона-12 при $P(\text{He}) = 1.33$ кПа (*a*) и парциального давления гелия при $P(\text{CF}_2\text{Cl}_2) = 0.40$ кПа (*b*) в спектральных диапазонах 130–175 (*I*, *I'*), 175–215 (*2*, *2'*), 215–280 nm (*3*, *3'*) и суммарной яркости в области 130–280 nm (*4*, *4'*).

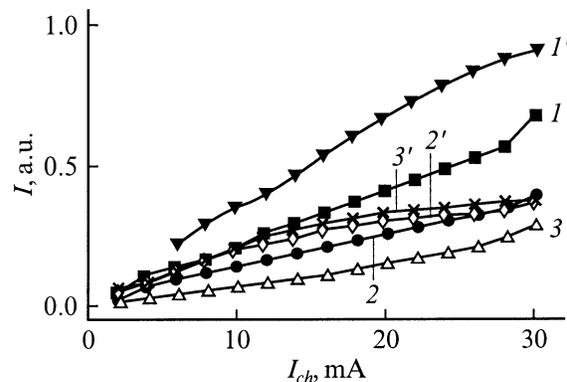


Рис. 4. Зависимость максимума интенсивности излучения на $\lambda = 162$ (*I*, *I'*), 200 (*2*, *2'*) и 258 nm (*3*, *3'*) от величины разрядного тока в смесях He/CF₂Cl₂ = 0.67/0.40 (*I*–*2*) и 4.00/0.40 кПа (*I'*–*3'*).

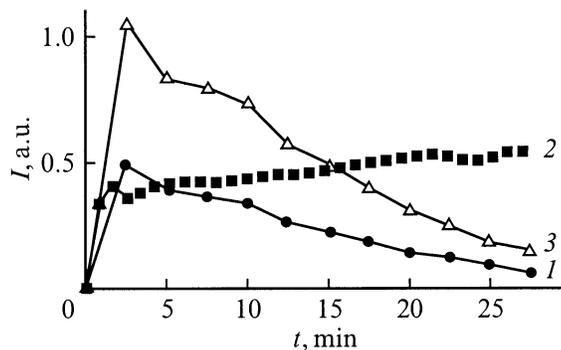


Рис. 5. Зависимость максимума излучения при $\lambda = 258$ (1), 200 (2) и 162 нм (3) от времени горения разряда в смеси He/CF₂Cl₂.

же приводило к увеличению скорости роста яркости наиболее коротковолнового участка спектра примерно в 1.5 раз. При охлаждении трубки только рабочей газовой средой исследуемого контрагированного разряда насыщение яркости УФ–ВУФ излучения при токах $I_{ch} \leq 30$ мА не наблюдалось. Для излучателя на основе тлеющего разряда в смеси Ar/Cl₂ (рабочей для лампы на системе полос 175 нм ArCl/258 нм Cl₂(D'–A')) при близких условиях накачки спад яркости излучения наблюдался уже при $I_{ch} \geq 22$ мА.

Ресурсные характеристики УФ–ВУФ излучателя с накачкой контрагированного продольным разрядом при работе в газостатическом режиме с буферным объемом 10 л представлены на рис. 5. Каждая кривая на рис. 5 получена при работе излучателя на новой смеси He/фреон-12 = 1.33/0.4 кПа при $I_{ch} = 20$ мА. Ресурс излучателя (или время, за которое яркость излучения уменьшается в два раза) для излучения с $\lambda = 162$ и 258 нм не превышало 15 мин, а для полосы с $\lambda = 200$ нм ресурс превышал 60 мин. Из этого следует, что для работы в газостатическом режиме наибольший интерес представляет излучение полосы 200 нм Cl₂^{**}. Для излучения на $\lambda = 258$ нм и на переходах ионов хлора перспективно использование режима медленной замены рабочей смеси в разрядной трубке. Скорость прокачки смеси He/CF₂Cl₂ может находиться в пределах 0.3–1.0 литра в минуту. Средняя мощность излучения в области 130–280 нм не превышает 1–15 Вт, КПД излучателя составляет 2–3%.

Таким образом, исследование оптических характеристик контрагированного продольного разряда на смеси He/CF₂Cl₂ показало, что при вводимой в разряд мощности величиной 20–60 Вт он является источником излучения в диапазоне 130–280 нм, которое возникает при спонтанном распаде продуктов диссоциации молекулы фреона-12 и включает: полосу 258 нм Cl₂(D'–A'), максимум континуума хлора при $\lambda = 200$ нм и излучение ионов Cl⁺ в спектральной области 130–175 нм; оптимальное парциальное давление фреона-12 находится в диапазоне 0.3–0.5 кПа, а гелия — 5–6 кПа; увеличение

разрядного тока от 2 до 30 мА приводит к росту яркости всего УФ–ВУФ излучения без признаков насыщения; наибольший ресурс работы наблюдался для полосы 200 нм; суммарная мощность излучения достигает 1.5 Вт при КПД $\leq 3\%$; активной средой излучателя является ионная плазма, что представляет значительный интерес для проведения ее диагностики с целью изучения механизмов образования возбужденных ионов и молекул хлора, а также численного моделирования; перспективным является перевод работы исследуемого источника УФ–ВУФ излучения в импульсно-периодический режим работы с накачкой продольной высокоскоростной волной ионизации (продольным наносекундным разрядом низкого давления).

Список литературы

- [1] Головицкий А.П., Лебедев С.В. // Опт. и спектр. 1997. Т. 82. № 2. С. 251–255.
- [2] Ломаев М.И., Панченко А.Н., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф. // ЖТФ. 1998. Т. 68. Вып. 2. С. 64–68.
- [3] Шуаилов А.К., Дащенко А.И., Шевера И.В. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 8. С. 121–124.
- [4] Шуаилов А.К., Дащенко А.И., Шевера И.В. // ТВТ. 2001. Т. 39. № 4.
- [5] Шуаилов А.К. // ЖТФ. 2000. Т. 70. Вып. 10. С. 117–119.
- [6] Шуаилов А.К., Шимон Л.Л., Дащенко А.И., Шевера И.В. // ТВТ. 2000. Т. 38. № 3. С. 386–389.
- [7] Светцов В.И., Куприяновская А.Л., Марышев А.Б. // ЖПС. 1981. Т. 35. Вып. 2. С. 205–208.
- [8] Головицкий А.П. // Письма в ЖТФ. 1998. Т. 24. Вып. 6. С. 63–67.
- [9] Василяк Л.М., Костюченко С.В., Красночуб А.В., Кузьменко М.Е. // ЖПС. 1998. Т. 65. № 2. С. 302–305.
- [10] Бычков Ю.И., Горохов С.Л., Ястремский А.Г. // Квантовая электрон. 2000. Т. 30. № 8. С. 733–737.
- [11] Кудрявцев А.А., Куранов А.Л., Мишаков В.Г., Ткаченко Т.Л. и др. // ЖТФ. 2001. Т. 71. Вып. 3. С. 29–36.
- [12] Райзер Ю.П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1987. 592 с.