

Излучение молекул Cl_2^* в барьерном разряде

С.М.Авдеев, М.В.Ерофеев, Э.А.Соснин, В.Ф.Тарасенко

Экспериментально исследованы энергетические и спектральные характеристики излучения барьерного разряда в хлоре и его смесях с инертными газами. Барьерный разряд в хлоре был однородным при давлениях до ~ 9 Тор, а его спектр содержал полосы ${}^3P_{2g} \rightarrow {}^3P_{2u}$, ${}^3P_{2g} \rightarrow {}^3\Sigma_{2u}^+$ и ${}^1\Sigma_u^+ \rightarrow {}^1\Sigma_g^+$ молекулы Cl_2^ . При добавках инертного газа основной вклад в спектр давала полоса ${}^3P_{2g} \rightarrow {}^3P_{2u}$ с максимумом на длине волны 257.8 нм. Наибольшие эффективность и мощность Cl_2 -эксилампы получены для смеси хлора с аргоном и составили 0.7% и 1.3 Вт соответственно.*

Ключевые слова: эксилампа, ультрафиолетовое излучение, возбужденный димер Cl_2^* .

Спонтанное УФ и ВУФ излучение на связанно-свободных переходах галогенидов RX^* и димеров R_2^* инертных газов стало объектом внимания исследователей [1, 2] и находит применение в научных экспериментах [3]. В работе [4] системы, излучающие за счет распада эксимерных или эксиплексных молекул, было предложено называть эксилампами. К настоящему времени хорошо изучены условия получения эффективной люминесценции димеров инертных газов (например, Xe_2^* , Kr_2^*) и галогенидов инертных газов (например, $XeCl^*$, $KrCl^*$, $XeBr^*$, XeI^* и др.), но почти нет исследований условий получения наиболее эффективной люминесценции димеров галогенов X_2^* в барьерном разряде.

Первоначально спектры этих молекул изучались в рамках исследований, направленных на идентификацию электронных состояний, ответственных за лазерное излучение в эксимерных лазерах. В результате было установлено, что зарегистрированным при исследовании молекул Br_2^* , I_2^* , F_2^* и Cl_2^* интенсивным полосам излучения отвечают переходы ${}^3P_{2g} \rightarrow {}^3P_{2u}$ (которые также обозначают $D' \rightarrow A'$) [5, 6]. В условиях работы эксимерных лазеров излучение в полосе ${}^3P_{2g} \rightarrow {}^3P_{2u}$ димеров галогенов при давлениях свыше 1.5 атм обусловлено релаксацией энергии в молекулах I_2^* , Cl_2^* , Br_2^* с верхних уровней при столкновениях с молекулами буферного газа. Эффективность столкновительной релаксации зависит от давления и сорта буферного газа [7].

Позднее спонтанное излучение димеров галогенов X_2^* было получено в различных условиях: в тлеющем [8] и поперечном объемном [9] разрядах, а также при возбуждении синхротронным излучением [10]. Исследования плазмы барьерного разряда специально не велись, за исключением нескольких работ. Так, в работе [11] было получено, что основной вклад в излучение плазмы давало излучение в полосе ${}^3P_{2g} \rightarrow {}^3P_{2u}$ молекулы I_2^* , а максимальные эффективность и плотность мощности излуче-

ния составили $\sim 1\%$ и 1.8 мВт/см² соответственно. В [12] был зарегистрирован спектр димера Cl_2^* . Однако для плазмы барьерного разряда в хлоре энергетические характеристики и эффективность излучения не были определены. Целью настоящей работы является восполнение указанных пробелов.

Эксперименты проводились в колбах, конструкция которых подобна описанной нами в [11]. Колбы были выполнены из двух коаксиально расположенных кварцевых трубок с различными зазорами d между ними – от 2 до 11 мм. Один электрод располагался на внешней трубке, имел форму спирали и пропускание свыше 93%. Сплошной электрод, размещенный во внутренней трубке, был изготовлен из алюминиево-магниевого фольги. Использовались трубки из плавленного кварца (Fused Quartz, Type 214, General Electric), имеющие пропускание $\sim 75\%$ на длине волны $\lambda = 200$ нм. Длина рабочей области лампы составляла 31 см. Возбуждение газовой среды в промежутке между трубками осуществлялось от двухполярного генератора импульсов напряжения с амплитудой до 5 кВ и длительностью 1.8 мкс. Частота следования импульсов f могла варьироваться от 40 до 108 кГц. Вводимая в плазму электрическая мощность зависела от амплитуды и частоты следования импульсов напряжения, а также от давления и состава смеси и при максимальной частоте достигала 230 Вт. Примеры осциллограмм тока и напряжения на эксилампе приведены на рис. 1.

В экспериментах варьировались давление паров галогена и добавляемого к ним инертного газа (He, Ne, Ar), измерялись мощность излучения, а также вводимая в разряд мощность и регистрировались спектры излучения. Чтобы обеспечить условия стабильной работы эксилампы, во время опыта колба охлаждалась радиальным вентилятором, расположенным у ее торца.

Мощность излучения лампы определялась фотоприемником НАМАМАТСУ Н8025-222 с максимумом спектральной чувствительности на $\lambda = 222$ нм, а спектр излучения разряда регистрировался с помощью аппаратного комплекса, состоявшего из двух спектрометров HR4000 (Ocean Optics B.V.), перекрывающих диапазон 200–350 нм, с решетками 2400 штр./мм. Вводимая мощ-

С.М.Авдеев, М.В.Ерофеев, Э.А.Соснин, В.Ф.Тарасенко. Институт сильноточной электроники СО РАН, Россия, 634055 Томск, просп. Академический, 2/3; e-mail: badik@loi.hcei.tsc.ru

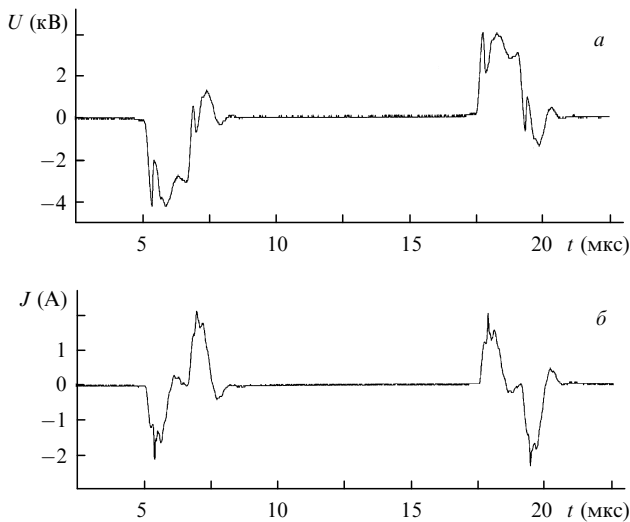


Рис.1. Осциллограммы импульсов напряжения U на Cl_2 -эксилampe (а) и тока через нее J (б) для смеси $\text{Ar}:\text{Cl}_2 = 400:1$ при давлении 300 Тор, $f = 80$ кГц и $d = 8.5$ см.

ность определялась по осциллограммам импульсов напряжения и тока, которые регистрировались осциллографом TDS 224 (Tektronics Inc.).

Барьерный однородный разряд в хлоре горел при давлениях до ~ 9 Тор. В спектре плазмы барьерного разряда в этих условиях наиболее выраженными были полосы ${}^3\text{P}_{2g} \rightarrow {}^3\text{P}_{2u}$, ${}^3\text{P}_{2g} \rightarrow {}^3\Sigma_{2u}^+$ и ${}^1\Sigma_u^+ \rightarrow {}^1\Sigma_g^+$ молекулы Cl_2^* с максимумами на $\lambda = 256.4$, 307.4 и 200 нм соответственно (рис.2). Эти же полосы наблюдались ранее в тлеющем разряде [6, 13] и поперечном объемном разряде в хлоре [9]. При давлении 1 Тор полуширина полосы ${}^3\text{P}_{2g} \rightarrow {}^3\text{P}_{2u}$ молекулы Cl_2^* составляла 10 нм.

Добавка инертных газов He, Ne или Ar к хлору ускоряет процесс столкновительной релаксации молекулы Cl_2^* с верхних состояний в состояния ${}^3\text{P}_{2g}$ и затем в результате радиационных переходов в состояния ${}^3\text{P}_{2u}$ [14]. Поэтому с ростом давления инертного газа излучение в полосе ${}^3\text{P}_{2g} \rightarrow {}^3\text{P}_{2u}$ становится доминирующим, а его максимум сдвигается и находится на $\lambda = 257.8$ нм.

Наибольшая интенсивность излучения в этой полосе получена при добавлении Ar к хлору, что обеспечивало однородное свечение в разрядном промежутке при удельных энергозкладах в среду до 0.9 Вт/см³. С дальнейшим

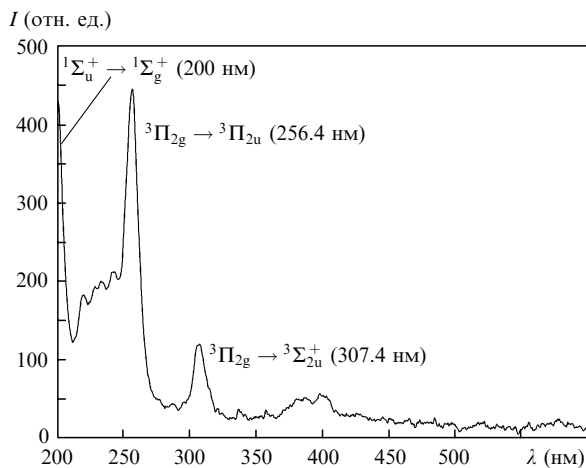


Рис.2. Спектр излучения Cl_2 -эксилampe барьерного разряда в чистом хлоре при давлении 6 Тор.

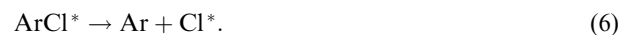
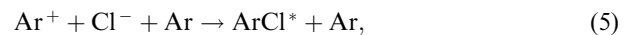
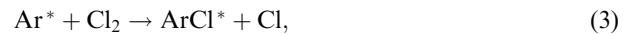
ростом энергозклада на фоне объемного свечения появляются микроаряды. В смеси хлора с Kг при давлениях свыше 500 Тор энергозклад в среду снижается, что приводит к уменьшению средней мощности и эффективности излучения. В смесях хлора с Ar этого не происходит при давлениях вплоть до 1 атм.

С ростом давления аргона от 3.5 до 609 Тор в смеси $\text{Ar}:\text{Cl}_2 = 400:1$ полуширина полосы ${}^3\text{P}_{2g} \rightarrow {}^3\text{P}_{2u}$ молекулы Cl_2^* уменьшалась от 8.2 до 2.9 нм, что связано с ускорением колебательной релаксации состояния ${}^3\text{P}_{2g}$. Характерный спектр излучения представлен на рис.3.

Основным каналом образования димеров X_2^* при умеренных давлениях является реакция передачи возбуждения от X^* к X_2 [15], а для нашего случая – реакция



Ей предшествуют реакции [14, 16]



Вклад излучательного распада ArCl^* в люминесценцию плазмы невелик [17] в силу преддиссоциации (6) этой молекулы [18].

Уменьшение доли хлора в смеси $\text{Ar} - \text{Cl}_2$ вело к увеличению мощности излучения молекулы Cl_2^* в полосе ${}^3\text{P}_{2g} \rightarrow {}^3\text{P}_{2u}$. Наибольшая мощность была получена в смеси $\text{Ar}:\text{Cl}_2 = 400:1$. С уменьшением концентрации хлора в смеси от 0.01 % до 0.005 % максимум интенсивности излучения смещается в область больших давлений.

На рис.4 представлены зависимости мощности и эффективности излучения Cl_2 -эксилampe от давления смеси для двух разрядных промежутков: $d = 8.5$ и 10 мм. Наибольшая средняя мощность и эффективность излучения составили 1.3 Вт и 0.76 % при давлении около 300 Тор, $d = 8.5$ мм и $f = 80$ кГц. Увеличение d до 10 мм привело к почти двукратному снижению мощности и эффективности. При $d = 2$ мм средняя мощность излучения Cl_2 -эксилampe уменьшалась почти на порядок. Рост частоты сле-

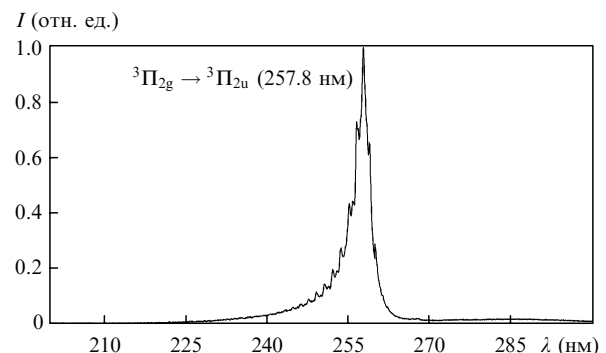


Рис.3. Спектр излучения Cl_2 -эксилampe барьерного разряда в смеси $\text{Ar}:\text{Cl}_2 = 200:1$ при давлении 240 Тор. Полуширина полосы ${}^3\text{P}_{2g} \rightarrow {}^3\text{P}_{2u}$ молекулы Cl_2^* составляет 2.9 нм.

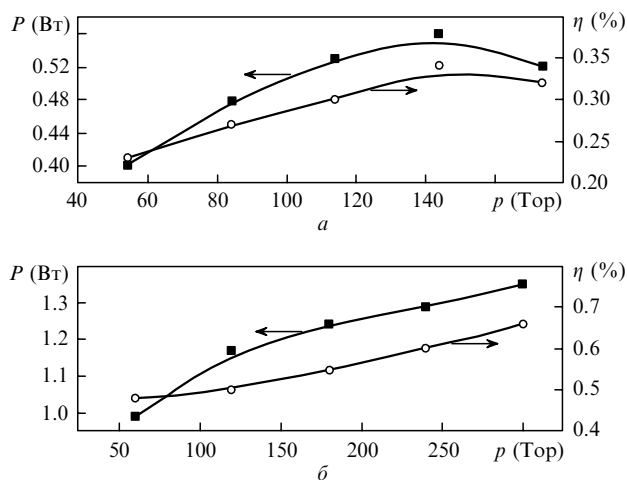


Рис.4. Зависимость средней мощности P и эффективности η излучения Cl_2 -эксилампы от давления p смеси $\text{Ar}:\text{Cl}_2 = 400:1$ при $f = 80$ кГц, $d = 10$ (а) и 8.5 мм (б).

дования импульсов от 40 до 80 кГц сопровождался увеличением мощности излучения и эффективности. При дальнейшем росте f мощность излучения выходит на насыщение, а эффективность падает.

Таким образом, в настоящей работе показано, что в диапазоне давлений смеси $\text{Ar}:\text{Cl}_2 = 400:1$ от десятков торр до 1 атм в спектре доминирует излучение в полосе $^3\text{P}_{2g} \rightarrow ^3\text{P}_{2u}$ молекулы Cl_2^* с мощностью и эффективностью 1.3 Вт и 0.76 % соответственно. В оптимальных по мощности и эффективности условиях при использовании аргона разряд был однородным, что отличает его от разряда в эксилампах барьерного разряда на эксиплексных молекулах. В силу того что парциальное давление хлора в оптимальных по мощности и эффективности условиях близко к давлению хлора в XeCl - и KrCl -эксилампах,

можно ожидать, что срок службы рабочих смесей Cl_2 -эксилампы будет близок к сроку службы XeCl - и KrCl -эксиламп (несколько тысяч часов [19]).

Авторы выражают свою признательность Д.В.Щитцу и В.С.Скакуну за техническую поддержку.

Работа выполнена при финансовой поддержке МНТЦ (проект № 3583р).

1. Kogelschatz U. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **5483**, 272 (2004).
2. Ломаев М.В., Скакун В.С., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф., Шитц Д.В., Ерофеев М.В. *УФН*, **173**, 201 (2003).
3. Sosnin E.A., Oppenländer T., Tarasenko V.F. *J. Photochem. Photobiol. C: Reviews*, **7**, 145 (2006).
4. Boichenko A.M., Skakun V.S., Tarasenko V.F., Fomin E.A., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **4**, 635 (1994).
5. Tellinghuisen J.B. *Chem. Phys. Lett.*, **49**, 485 (1977).
6. Mulliken R.S. *J. Chem. Phys.*, **55**, 288 (1971).
7. Зуев В.С., Михеев Л.Д., Широких А.П. *Квантовая электроника*, **9**, 573 (1982).
8. Ломаев М.И., Панченко А.Н., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф. *ЖТФ*, **68**, 64 (1998).
9. Шуайбов А.К. *ЖТФ*, **70**, 117 (2000).
10. Moeller T., Jordan B., Gürtler P., Zimmerer G., Haaks D., Le Calve J., Castex M.-C. *Chem. Phys.*, **76**, 259 (1983).
11. Авдеев С.М., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф. *Квантовая электроника*, **37**, 107 (2007).
12. Gellert V., Kogelschatz U. *Appl. Phys. B*, **52**, 14 (1991).
13. Ефремов А.М., Куприяновская А.П., Светцов В.И. *ЖЛС*, **59**, 221 (1993).
14. Möler T., Jordan B., Zimmerer G., Haaks D., Le Calve J., Castex M.-C. *Z. Phys. D*, **4**, 73 (1986).
15. Волкова Г.А., Зверева Г.Н. *Оптика и спектроскопия*, **96**, 419 (2004).
16. Bassett N.L., Economou D.J. *J. Appl. Phys.*, **75**, 1931 (1994).
17. Шевера В.С., Шуайбов А.К. *ЖТФ*, **50**, 728 (1980).
18. Tsuji M., Ide M., Muraoka T., Nishimura Y. *J. Chem. Phys.*, **99**, 1710 (1983).
19. Tarasenko V.F., Chernov E.B., Panchenko A.N., Skakun V.S., Sosnin E.A. *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, **3618**, 425 (1999).