ОПТИМІЗАЦІЯ ОПТИЧНИХ ХАРАКТЕРИСТИК РОБОЧИХ СУМІШЕЙ HgBr ТА HgCl ЕКСИЛАМП

М. М. Гуйван, О. М. Малінін, Л. Л. Шимон
Ужгородський національний університет,
вул. Підгірна, 46, 88000, Ужгород
(Отримано 9 липня 2001 р.)

Досліджено оптичні характеристики HgBr та HgCl ексиламп у сумішах HgX_2:R (X = Br, Cl, R = He, Ne, Xe, N_2) залежно від парціяльних тисків буферних газів, парів дигалогенідів ртуті та тривалости роботи. Виявлено оптимальні умови люмінесценції ексимерних молекул $HgBr^*$ та $HgCl^*$ при збудженні бар'єрним розрядом із частотою повторення імпульсів накачки 1000 Гц. Дано рекомендації щодо отримання тривалої роботи ($\sim 10^7$ імпульсів) ексимерних ламп.

Ключові слова: ексимерна лампа, випромінювання, монобромід ртуті, монохлорид ртуті, оптимальні умови.

PACS number(s): 42.72.Bj, 33.50.Dq, 52.80.Tn

I. ВСТУП

Останнім часом значно збільшився інтерес до вивчення газорозрядних некогерентних джерел випромінювання, які працюють на електронно-коливних переходах ексимерних молекул, а саме, ексимерних ламп [1–4]. Це пов'язано насамперед з їхньою можливістю давати потужне (~ 75 кВт) випромінювання великої площі (~ 100 см^2) з ККД більшим, ніж 10 процентів, що вже знайшло застосування в різних галузях науки й техніки [3–5]. У видимому діяпазоні досить перспективним є використання випромінювання ексимерних молекул моноброміду та монохлориду ртуті ($HgBr^*$ та $HgCl^*$) з довжинами хвиль $\lambda = 502$ нм і $\lambda = 557$ нм відповідно. Джерела випромінювання на основі цих молекул можна застосовувати для накачки твердотільних лазерів, лазерів на органічних барвниках, активних середовищ на основі забарвлених полімерів, в аґрофізиці для збільшення ефективности збудження молекул хлорофілу.

Теоретичні розрахунки [6] виявили, що ККД збудження моногалогенідів ртуті в суміші "дигалогенід ртуті-інертний газ" може досягати 20 процентів. Однак існують труднощі, що не дозволяють отримати вказане значення ККД. Зокрема втрата потужности зовнішнього джерела для створення необхідного парціяльного тиску парів дигалогенідів ртуті, невизначеність у можливостях підбору найефективнішого компонентного складу робочих сумішей за інтенсивністю випромінювання ексимерних молекул. Розв'язання вказаних проблем можливе шляхом оптимізації збудження моноброміду та монохлориду ртуті в умовах плазми високочастотного розряду на сумішах дигалогенідів ртуті з інертними та іншими газами. Слід відзначити, що задача оптимізації середовища за складом та загальним тиском є однією з найважливіших та найскладніших [7].

У цій праці подано дослідження залежностей інтенсивности випромінювання ексимерних молекул HgBr та HgCl від парціяльних тисків компонентів робочих сумішей HgX_2:R (X = Br, Cl, R = He, Ne, Xe, N_2) та кількости імпульсів накачки. На основі цих даних виявлено оптимальні умови збудження моногалогенідів ртуті залежно від компонентного складу та тривалости роботи ексимерних HgBr та HgCl ламп $\sim 10^7$ імпульсів.

II. ТЕХНІКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Збудження робочих сумішей HgBr і HgCl ексимерних ламп здійснювали розрядом через діелектрик-кварцове скло. Він дозволяє мати значну площу однорідного випромінювання й отримувати інтенсивні молекулярні смуги ексимерних молекул [8,9]. Ексимерна лампа (рис. 1) виготовлена з кварцової трубки *2* діяметром 34 мм і довжиною 200 мм. Уздовж оси трубки *2* на відстані 15 мм розміщені два вольфрамові електроди *4* діяметром 5 мм. Один із них (заземлений) поміщений у кварцову трубку *3* діяметром 9 мм. Для утримання високовольтного електрода в нерухомому стані в торці трубки *2* була приварена кварцова трубка діяметром 9 мм. Ґенератор наносекундних високовольтних імпульсів (ГІН) з'єднали з високовольтним електродом *4* за допомогою вводу *1*, яким був електрод лампи ПРК-4. Патрубок *6* із кварцового скла, усередині якого є капіляр діяметром 0.5 мм, що зменшував вихід парів дигалогенідів ртуті з робочого об'єму *5* в систему відкачки і газонаповнення, слугував для відкачування ексилампи та напуску газів.

Накачку ексимерної лампи здійснював ГІН, що був зібраний на основі тиратронного комутатора ТГИ2-130/10 [10]. Питомий енерґовнесок у робочий об'єм розряду $0.2\times1.5\times20$ см дорівнював 55 мДж/см^3. Вихідна напруга ґенератора становила 30-40 кВ при тривалості імпульсів та частоті повторення 50 нс і 1000 Гц відповідно.

Дослідження залежности інтенсивности випромінювання від компонентного складу середовища, параметрів накачки та ресурсу роботи суміші проводили за допомогою системи реєстрації, у яку входили: спектральний монохроматор ЗМР-3, фотоелектронний помножувач ФЭУ-79, підсилювач електричних сигналів У1-2 [11].

Парціяльний тиск парів диброміду та дихлориду ртуті визначали за температурою найхолоднішої точки газорозрядної кювети лінійною інтерполяцією довідкових даних праці [12].

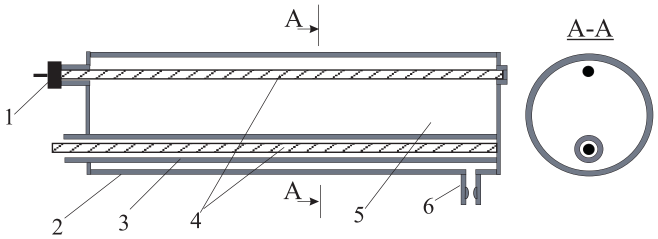

Рис. 1. Газорозрядна кювета: *1* — високовольтний ввід; *2* — кварцова трубка $\emptyset$ 34 мм; *3* — кварцова трубка $\emptyset$ 9 мм; *4* — робочі електроди; *5* — об'єм з робочою сумішшю; *6* — патрубок для відкачки та напуску газів.

III. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Дослідження залежности випромінювання молекул $HgBr^*$ і $HgCl^*$ від умісту компонентів суміші та тривалости роботи потрібні для оптимізації оптичних, енерґетичних характеристик випромінювання газорозрядних джерел, робочим середовищем яких є суміші парів $HgBr_2$, $HgCl_2$, інертних газів та азоту.

Експерименти проводили так: спектральний монохроматор настроювали на довжину хвилі $\lambda = 502$ нм або $\lambda = 557$ нм, при цьому розміри щілин вибирали з розрахунку реєстрації практично всієї інтенсивности системи спектральних смуг випромінювання. Діяпазон зміни тисків інертних газів, азоту та парів дигалогенідів ртуті: 4–140 кПа, 4–110 кПа, 13.3–4000 Па відповідно. При таких умовах значення параметра E/p (E — напруженість електричного поля, p — загальний тиск суміші) оптимальні для проходження збудження ексимерів у газорозрядній плазмі на робочих сумішах [6]. Відносна похибка вимірів інтенсивности випромінювання становила 5 процентів.

На рис. 2, 3 подано результати експериментальних досліджень залежности інтенсивности випромінювання ексимерів $HgBr^*$ та $HgCl^*$ від умісту компонентів суміші. Як видно з рис. 2, інтенсивне випромінювання молекул $HgBr^*$ і $HgCl^*$ спостерігаємо в широкій ділянці парціяльних тисків гелію та неону 60–105 кПа (залежності 1, 2, 4, 5), а в ділянці великих тисків ксенону та азоту інтенсивність помітно зменшується (залежності 3, 6). Максимум випромінювання в сумішах із ксеноном та азотом помічаємо в межах діяпазону парціяльних тисків 10–40 кПа. Найбільшу інтенсивність випромінювання ексимерних молекул $HgBr^*$ та $HgCl^*$ зауважуємо в сумішах парів $HgBr_2$ або $HgCl_2$ з буферним газом гелієм.

При збільшенні парціяльних тисків дигалогенідів ртуті інтенсивности випромінювання спочатку зростають, досягають насичення, а потім спадають. Ділянка максимальної інтенсивности випромінювання знаходиться для $HgBr^*$ при 0.4–0.9 кПа, а для $HgCl^*$ у межах 0.7–3.5 кПа (рис. 3).

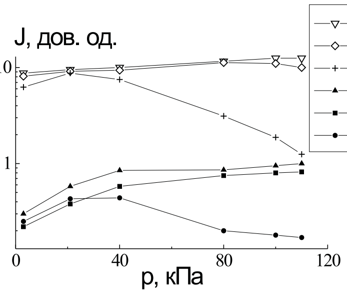

Рис. 2. Залежності інтенсивности випромінювання ексимерних молекул $HgBr^*(\lambda = 502$ нм) і $HgCl^*(\lambda = 557$ нм) від парціяльного тиску буферного газу при $f = 1000$ Гц для сумішей: 1 — $HgBr_2$:He; 2 — $HgBr_2$:Ne; 3 — $HgBr_2$:Xe; 4 — $HgCl_2$:He; 5 — $HgCl_2$:Ne; 6 — $HgCl_2$:N_2. Тиск насичених парів $HgBr_2$ — 0.6 кПа, $HgCl_2$ — 1 кПа.

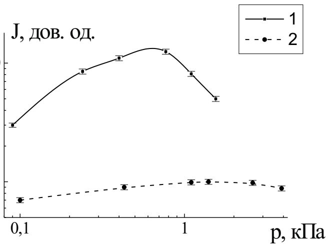

Рис. 3. Залежності інтенсивности випромінювання ексимерних молекул $HgBr^*(\lambda = 502$ нм) і $HgCl^*(\lambda = 557$ нм) від парціяльного тиску насичених парів $HgBr_2$ та $HgCl_2$ при $f = 1000$ Гц: 1 — суміш $HgBr_2$:He; 2 — суміш $HgCl_2$:He. Тиск гелію — 110 кПа.

Поведінку залежностей інтенсивности випромінювання розряду від парціяльних тисків гелію, неону, ксенону та азоту пояснюємо так.

Інтенсивність спонтанного випромінювання $J_{v'v''}$ за відсутности поглинання пропорційна заселеності $N_{v'}$ верхнього рівня та ймовірності переходу (квадрата абсолютного значення матричного елемента дипольного моменту $R_{v'v''}$) [13]:

$$J_{v'v''} \sim N_{v'} \mid R_{v'v''} \mid^2, \qquad (1)$$

де $R_{v'v''} = \int \mathbf{\Psi}_{v'} \mathbf{P} \mathbf{\Psi}_{v''} dr$, $\mathbf{\Psi}_{v'}$,$\mathbf{\Psi}_{v''}$ — власні хвильові функції станів з енерґіями $E_{v'}$ та $E_{v''}$, $\mathbf{P}$ — дипольний момент системи.

Заселеність $N_{v'}$ залежить від процесів заселення, спустошення рівня й параметра E/p. Ефективність процесів заселення та гасіння $B^2\Sigma^+_{1/2}$ — стану ексимерних молекул HgBr і HgCl — визначаємо константами швидкости $k_д$ і $k_г$ відповідно. Значення $k_д$ для сумішей дигалогенідів ртуті з гелієм у діяпазоні E/p, який збігається з експериментом, більші, ніж для сумішей з неоном [6]. Процес гасіння люмінесценції молекул HgBr* та HgCl* інертними газами слабо впливає на заселеність, тому що константи швидкости відповідного процесу мають малі значення $\approx\ 10^{-13}-10^{-14}$ см^3/с [14,15]. Унаслідок цього заселеність верхнього рівня, а отже й інтенсивність випромінювання для сумішей з гелієм, буде більша при однаковому енерґовнеску. Окрім того, як показують результати чисельного розрахунку [6] для сумішей з гелієм та неоном, внесок потужности розряду в канал збудження залежить від значень параметра E/p, що в підсумку приводить до перерозподілу заселености $B^2\Sigma^+_{1/2}$-стану ексимерних молекул HgBr і HgCl.

Більші затрати енерґії електронів на збудження та йонізацію ксенону, збудження численних коливних рівнів молекули азоту [16], а також більші значення констант швидкости гасіння $B^2\Sigma^+_{1/2}$-стану ксеноном і молекулярним азотом [17] приводять до відмінности в поведінці інтенсивностей випромінювання в сумішах з Xe та N_2 щодо інтенсивности випромінювання в сумішах з He та Ne.

Залежності інтенсивности випромінювання ексимерних молекул від парціяльного тиску диброміду або дихлориду ртуті (рис. 3) можна пояснити так. При зростанні парціяльного тиску парів дигалогенідів ртуті збільшується концентрація молекул HgBr* та HgCl* у збудженому $B^2\Sigma^+_{1/2}$-стані. Це зумовлює збільшення інтенсивности випромінювання. Потім хід залежностей пояснюється тим, що ефективніше відбувається процес гасіння люмінесценції ексимерних молекул дигалогенідами ртуті [18], для якого константи швидкости мають значення $\approx\ 10^{-10}$ см^3/с:

$$\mathrm{Hg}X^* + \mathrm{Hg}X_2 \longrightarrow \mathrm{Hg}X + \mathrm{Hg}X_2 + \Delta\varepsilon, \qquad (2)$$

де X = Br, Cl; $\Delta\varepsilon$ — енерґія, яка не витрачається на випромінювання електронно-коливного переходу $B \to X$ молекул HgBr* та HgCl*.

Дослідження ресурсних характеристик робочих сумішей виявили, що при загальному тиску сумішей ~ 120 кПа протягом $9\cdot10^6$ імпульсів практично не відбувалася деґрадація диброміду чи дихлориду ртуті, а при малих загальних тисках ($p \leq 15$ кПа) спостерігаємо незначний ресурс роботи газорозрядної кювети ($\sim\ 10^4$ імпульсів). При малому тиску буферного газу збільшується час між зіткненнями і відповідно більше залишається моногалогенідів ртуті в основному стані. При наступних зіткненнях з повільними електронами це приводить до дисоціяції молекул HgX на атоми ртуті й галогену. Деґрадація робочої суміші проходить унаслідок порушення рівноваги між кількістю молекул дигалогенідів ртуті, що дисоціюють, та кількістю молекул моногалогенідів ртуті, що асоціюють у процесах [19]

$$\begin{aligned} &\mathrm{Hg}X(X^2\Sigma^+_{1/2}) + X + R \longrightarrow \mathrm{Hg}X_2 + R, \qquad (3)\\ &\mathrm{Hg}X(X^2\Sigma^+_{1/2}) + X_2 \longrightarrow \mathrm{Hg}X_2 + X, \end{aligned}$$

де R — буферний газ.

IV. ВИСНОВКИ

У результаті дослідження залежности інтенсивности випромінювання ексимерних молекул моноброміду та монохлориду ртуті від парціяльних тисків буферних газів і парів диброміду та дихлориду ртуті встановлено оптимальні умови збудження молекул моноброміду та монохлориду ртуті, при яких інтенсивність випромінювання цих молекул найбільша (частота повторення імпульсів накачки $f = 1000$ Гц).

Різницю в поведінці інтенсивности випромінювання розряду від парціяльних тисків буферних газів і дигалогенідів ртуті пояснюємо залежністю заселености верхнього рівня ($B^2\Sigma^+_{1/2}$) ексимерних молекул HgBr* та HgCl* від констант швидкости процесів заселення та гасіння, а також різним внеском потужности розряду в процес збудження залежно від параметра E/p.

Для отримання тривалої роботи ($>\ 10^7$ імпульсів) HgBr, HgCl ексиламп потрібно використовувати робочі суміші при загальному тиску ≥ 120 кПа.

[1] А. А. Кузнецов, В. С. Скакун, В. Ф. Тарасенко, Е. А. Фомин, Письма журн. тех. физ. **19**, 5, 1 (1993).

[2] H. Furusawa, S. Okada, M. Obara, Appl. Phys. Lett. **66**, 1877 (1995).

[3] В. М. Борисов, В. А. Водчиц, А. В. Ельцов, О. Б. Христофоров, Квант. электрон. **25**, 4, 308 (1998).

[4] В. А. Визирь, В. С. Скакун, Г. В. Сморудов, Э. А. Соснин, В. Ф. Тарасенко, Е. А. Фомин, В. В. Червяков, Квант. электрон. **22**, 5, 519 (1995).

[5] В. К. Беликова, Л. И. Мац, *Изменение иммунологических реакций организма. УФ излучение. Сб. 3* (Медгиз, Москва, 1960).

[6] A. N. Malinin, Laser Phys. **8**, 2, 395 (1998).

[7] И. С. Лакоба, С. И. Яковленко, Квант. электрон. **7**, 677 (1980).

[8] Г. А. Волкова, Н. Н. Кирилова, Е. Н. Павловская, А. В. Яковлева, Журн. прикл. спектроскоп. **41**, 4, 691 (1984).

[9] В. Н. Ищенко, В. Н. Лисицин, А. А. Сорокин, Квант. электрон. **5**, 4, 788 (1978).

[10] A. N. Malinin, Laser Phys. **7**, 5, 1032 (1997).

[11] А. Н. Малинин, Н. Н. Гуйван, Л. Л. Шимон, Опт. спектроскоп. **89**, 905 (2000).

[12] А. И. Ефимов, Л. П. Белорукова, И. В. Василькова,

В. П. Чечев, *Свойства неорганических соединений.* (Химия, Ленинград, 1983).
[13] М. А. Ельяшевич, *Атомная и молекулярная спектроскопия* (Гос. изд. физ. мат. лит., Москва, 1962).
[14] J. G. Eden, Appl. Phys. Lett. **33**, 6, 495 (1978).
[15] C. Roxlo, A. Mandl, J. Chem. Phys. **72**, 1, 541 (1980).
[16] Л. М. Биберман, В. С. Воробьев, И. Т. Якубов, *Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы* (Наука, Москва, 1982).
[17] A. Mandl, J. J. Parks, C. Roxlo, J. Chem. Phys. **72**, 1, 504 (1980).
[18] А. Н. Малинин, А. К. Шуаибов, Опт. спектроскоп. **52**, 3, 487 (1982).
[19] A. C. Erlandson, T. A. Cool, Chem. Phys. Lett. **96**, 6, 685 (1983).

OPTIMIZATION OF THE OPTICAL CHARACTERISTICS OF THE WORKING MIXTURES HgBr AND HgCl EXCILAMPS

M. M. Guivan, A. N. Malinin, L. L. Shimon
Uzhgorod National University
46 Pidgirna Str., Uzhgorod, 88000, Ukraine
E-mail: guivan@iss.univ.uzhgorod.ua

The optical characteristics of the HgBr and HgCl excilamps in the $\mathrm{Hg}X_2{:}R$ ($X = \mathrm{Br}$, Cl, $R = \mathrm{He}$, Ne, Xe, $\mathrm{N_2}$) mixtures depending on partial pressures of buffer gases, mercury dihalides vapors and time of the performance are investigated. The optimal conditions of luminescence of the HgBr^* and HgCl^* excimer molecules have been revealed at excitation by barrier discharge with the pump pulse repetition frequency of $f = 1000$ Hz. The guidelines concerning obtaining a long-duration operation ($\sim 10^7$ pulses) of excimer lamps are given.