

04; 07
©1993 г.

РАДИАЦИОННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ НЕПРЕРЫВНОГО ПЛАЗМОХИМИЧЕСКОГО ИСТОЧНИКА СВЕТА

*А.А.Алехин, В.А.Барин, Ю.В.Герасько, О.Ф.Костенко,
Ф.Н.Любченко, А.В.Тюкавкин*

Исследованы физические процессы в зоне плазмохимических реакций, образованной при вдуве галогеноносителей в струю плазмы инертных газов. Получена мощность люминесценции эксимерных молекул $1.5 \cdot 10^2 - 4 \cdot 10^3$ Вт. Построена модель кинетических процессов в зоне плазмохимических реакций.

Введение

Первые эксперименты по наблюдению непрерывной люминесценции эксимерных молекул проводились в проточных системах низкого давления, в которых молекулы галогенидов инертных газов образовывались в реакциях гарпунного типа в аргоновой плазме [1,2]. В качестве источника метастабильного аргона использовалась проточная разрядная система с полым катодом. Аргон при давлении 0.5 – 5 мм рт.ст. возбуждался в маломощном (200 В, 1 мА) разряде постоянного тока и затем поступал в область наблюдения, где подмешивались газы N_2O , O_3 , Cl_2 , CCl_4 .

В работе [3] на аналогичной установке исследовались процессы образования молекулярных соединений ксенона с атомами галогенов. Была зарегистрирована люминесценция молекул $XeCl^*$, $XeBr^*$, XeF^* , XeI^* . Концентрация эксимерных молекул, достигнутая в работах [1-3], была, по-видимому, чрезвычайно мала, поскольку регистрация осуществлялась в режиме счета фотонов.

В работе [4] зарегистрировано образование молекул AgF^* , KrF^* , XeF^* и др. в непрерывном режиме в зоне плазмохимических реакций, формируемой при взаимодействии встречных потоков плазмы и молекулярного газа. Скорость истечения плазмы из сопла плазмотрона при суммарном расходе газов до 2 г/с варьировалась в пределах $1.5 \dots 2 \cdot 10^5$ см/с.

В работах [5,6] образование эксимерных молекул было зарегистрировано при смешении потоков плазмы инертных газов Хе и Кг с SF_6 в предсопловой камере плазмотрона постоянного тока. Достигнутые плотности эксимерных молекул XeF^* и KrF^* при потребляемой мощности плазмотрона 7 кВт составили $N^* \simeq 10^{10}$ см⁻³.

В работе [7] экспериментально исследована возможность получения эксимерных молекул $XeCl^*$ при раздельном возбуждении газовых смесей He-Xe и He-HCl(He-Cl₂) в двух разрядах непрерывного действия с по-

следующим их смешением. Концентрация молекул XeCl^* в зоне реакции в смеси $\text{He}:\text{Xe}:\text{HCl}=94:5:1$ составила 10^{11} см^{-3} . При мощности разряда 50 Вт полная мощность спонтанного свечения в эксимерных полосах из зоны смешения составляла 0.6 Вт/см^3 , что соответствовало эффективности плазмохимической реакции 1 %.

В работах [8-10] ввод галогенонесителя в поток плазмы инертных газов производился на значительном ($L \geq 100 \text{ мм}$) удалении от среза сопла генератора плазмы. Для этой схемы смешения компонентов была зарегистрирована люминесценция молекул XeCl^* и KrF^* при смешении плазменных потоков Xe и Kr с CCl_4 [8], NaCl [9] и SF_6 [10].

Эффективность такой схемы смешения также отмечалась в работе [11], где достигнуты концентрации $\text{KrF}^* \approx 5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$.

В данной работе исследовались спектральные, энергетические и яркие характеристики излучения из зоны плазмохимических реакций, образованной при смешении сверхзвукового плазменного потока Xe или Kr с перпендикулярно вдуваемым в него дозвуковым потоком галогенонесителя (CCl_4 , SF_6 , NaCl).

Экспериментальная установка

Исследования образования эксимерных молекул в ходе плазмохимических реакций производились на установке (рис. 1), в которой в качестве плазмогенератора использовался магнитоплазодинамический ускоритель плазмы (МПДУ), создающий сильноионизованный плазменный поток. Для получения слабоионизованного плазменного потока на выходе МПДУ устанавливалась конусная заглушка с выходным отверстием в виде прямоугольника с сечением $25 \times 120 \text{ мм}$. Цилиндрическая рабочая камера 1 диаметром 1200 мм и длиной 5000 мм, снабженная водоохлаждаемой рубашкой, подключалась к вакуумной станции. Уровень создаваемого разрежения достигал $\approx 0.1 \text{ Па}$ и контролировался вакууметром 2. На боковой поверхности рабочей камеры имелись 4 кварцевых окна 3. На торце камеры располагался МПДУ 4, снабженный системой охлаждения водой и подключенный к тиристорному источнику питания 5. Управление плазмотроном производилось с пульта 6.

Плазмообразующее вещество (газы аргон, ксенон, криптон с содержанием примесей не более $7 \cdot 10^{-4} \%$) через ресивер 7 емкостью 0.17 м^3 и тарированный расходомер 8 подавалось на вход МПДУ, где формировался плазменный поток 9. Ввод галогеносодержащего компонента в поток осуществлялся через плоское сопло 10. Это сопло устанавливалось на координатном устройстве 11, позволяющем в ходе эксперимента плавно перемещать сопло вдоль оси потока. Соответственно перемещалась вдоль оси и зона плазмохимических реакций 12.

Газообразные галогенонесители подавались через ресивер 13, а жидкие — через ресивер 14. Расходы компонентов контролировались расходомерами 15. Емкость 14 имела подогреватель мощностью 500 Вт. Твердые галогенонесители перед экспериментом помещались внутрь тугоплавного сопла 10 и при абляции и кипении расплава инжигировались в плазменную струю.

Система регистрации оптической информации включала светосильный дифракционный монохроматор 16 марки МДР-12, двойной монохроматор 17 с фокусным расстоянием 250 мм и спектрограф со скрещенной

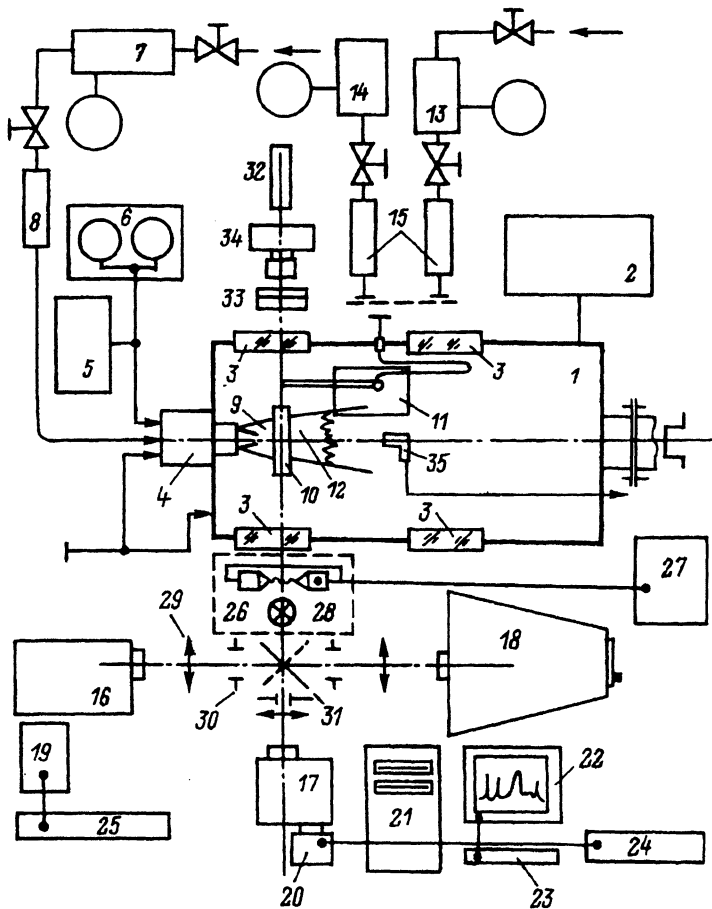


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

дисперсией СТЭ-1 18. Спектры регистрировались фотоэлектрическим способом (фотоприемники 19, линейная 500-канальная диодная матрица 20) и фотографировались на фотопленку $T = 42$. Затем информация поступала на управляющую консоль 21, дисплей 22, принтер 23, графопостроители 24 или 25. Для калибровки спектральных приборов использовалась ртутная лампа ДРШ 26, а также источник возбуждения спектров ИВС-28 27 с железными электродами 28. Для юстировки оптической системы, включающей кварцевые линзы 29, диафрагмы 30, поворотное алюминиевое зеркало 31, использовался лазер ЛГ-52 32. Изображение реакционной зоны в различных спектральных диапазонах с помощью набора светофильтров 33 и кварцевого объектива фокусировалось фотоаппаратом 34.

Энергетическая калибровка измерительной системы производилась при энергетической тарировке кривой спектральной чувствительности измерительного тракта в двух точках с использованием монохроматических источников света — обычно He-Ne и He-Cd лазеров.

Концентрация ионов и электронов измерялась зондами, вводимыми в плазменный поток. Температура ионов плазмы определялась оптически-

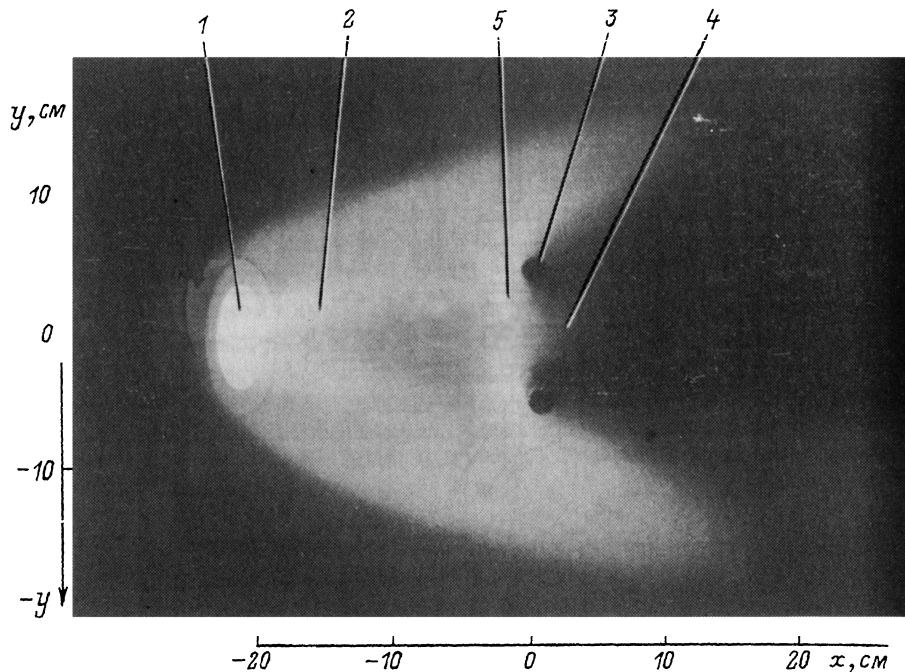


Рис. 2. Картина смешения плазменного потока ксенона и CCl_4 .

$L = 200$ мм, $T_i = 2200$ К, $T_e = 1.5$ эВ, $N_{\text{Xe}} = 5 \cdot 10^{14}$ см $^{-3}$, $v = 5 \cdot 10^5$ см/с, $G[\text{Xe}] = G[\text{CCl}_4] = 2$ г/с; 1 — плазматрон, 2 — плазменный поток, 3 — цилиндрические щелевые сопла, 4 — зона плазмохимических реакций, 5 — скачок плотности. Съемка производилась в видимом диапазоне спектра.

ми методами, а также зондовыми измерениями. Температура электронов рассчитывалась по относительной интенсивности линий атомов и ионов инертных газов. Скорость потока плазмы рассчитывалась по экспериментально измеренным значениям статического и динамического давления в потоке. Концентрация плазмы рассчитывалась по известному расходу инертного газа, геометрии анода и экспериментально измеренным значениям скорости плазменного потока.

Параметры потока МПДУ могли варьироваться в следующих диапазонах: скорость ядра потока — $1 \dots 50$ км/с; плотность плазмы — $10^{12} \dots 10^{17}$ см $^{-3}$; степень ионизации — до 100%; температура ионов — $1.5 \cdot 10^3 \dots 1.5 \cdot 10^4$ К; температура электронов — $0.2 \dots 2$ эВ; рабочие газы — азот, аргон, ксенон и другие инертные газы и их смеси. Расходы инертных газов менялись в диапазоне $0.1 \dots 5$ г/с, галогеносителей — $0.1 \dots 2$ г/с. Время непрерывной работы МПДУ не менее 3000 с.

Экспериментальные результаты

Исследования образования эксимерных молекул при смешении потоков Хе или Кг и галогеносителя (рис. 2) проводились в двух режимах работы установки: поток плазмы имел высокую степень ионизации, концентрация ионов составляла $N_1 = 10^{14} \dots 10^{15}$ см $^{-3}$, $T_i = 2000 \dots 3000$ К, $T_e = 1 \dots 2$ эВ; инертный газ имел низкую степень ионизации, концентрация потока $N = 10^{14} \dots 10^{15}$ см $^{-3}$, $T_i = T_e = 1500 \dots 2000$ К.

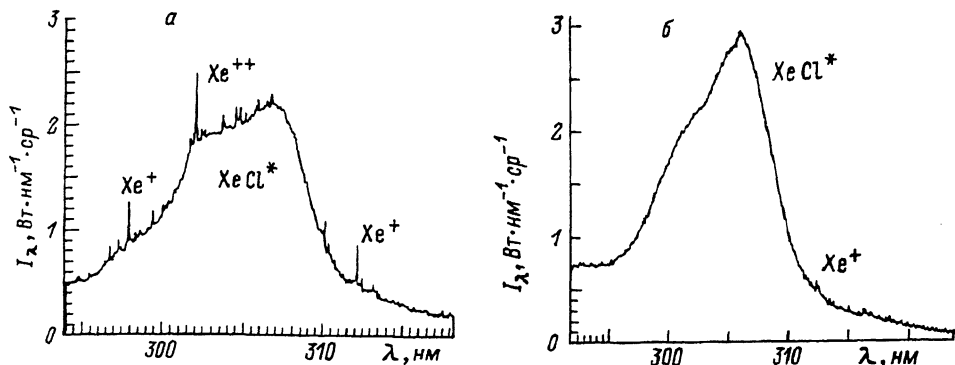


Рис. 3. Спектр люминесценции XeCl^* в зоне смешения плазменного потока Xe и CCl_4 . $N_{\text{Xe}} = 10^{15} \text{ см}^{-3}$, $N_{\text{CCl}_4} = 10^{14} \text{ см}^{-3}$; а — $T_i = 3 \text{ кК}$, $T_e = 1 \text{ эВ}$; б — $T_i = T_e = 1.8 \text{ кК}$.

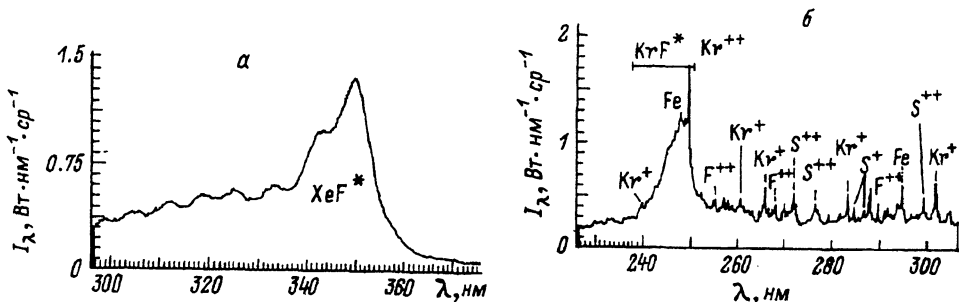


Рис. 4. Спектр люминесценции эксимерных молекул XeF^* и KrF^* в зоне смешения плазменного потока инертного газа и галогеноносителя SF_6 . а — $N_{\text{Xe}} = 5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$, $N_{\text{SF}_6} = 10^{14} \text{ см}^{-3}$, $T_i = 2.2 \text{ кК}$, $T_e = 1.4 \text{ эВ}$; б — $N_{\text{Kr}} = 5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$, $N_{\text{SF}_6} = 10^{14} \text{ см}^{-3}$, $T_i = 2.5 \text{ кК}$, $T_e = 1.5 \text{ эВ}$.

Анализ спектра свечения ксеноновой плазмы в области длин волн 293...318 нм на различных расстояниях от среза анода плазматрона показал, что в первом режиме степень ионизации потока слабо меняется по потоку плазмы. Наличие в плазменном потоке возбужденных нейтральных атомов ксенона контролировалось спектральными измерениями в областях 461...502 и 753...888 нм, которые показали малую их концентрацию (менее 1%) в потоке.

Вдун в плазменный поток галогеноносителя производился на расстоянии $L = 200 \text{ мм}$ от среза анода плазматрона с двух сторон через два щелевых сопла длиной 150 мм, расположенных симметрично относительно оси плазменного потока и перпендикулярно ему (рис. 2). Расстояние между щелевыми соплами составляло 70 мм.

Во всех режимах работы МПДУ за скачком плотности 5 (рис. 2) наблюдалось излучение молекул XeCl^* $\lambda = 306.5 \text{ нм}$ (рис. 3, а, б), XeF^* $\lambda = 351 \text{ нм}$, KrF^* $\lambda = 248 \text{ нм}$ (рис. 4 а, б). Максимум люминесценции эксимерных молекул (рис. 5) при больших расходах вдуваемого галогеноносителя располагался вверх по потоку плазмы относительно сечения вдува. При уменьшении расхода галогеноносителя максимум люминесценции смещался вниз по потоку плазмы.

Во всех режимах работы МПДУ (рис. 3, а, б) максимум интенсивности люминесценции XeCl^* зафиксирован при $\lambda = 306.5 \text{ нм}$. Ширина по-

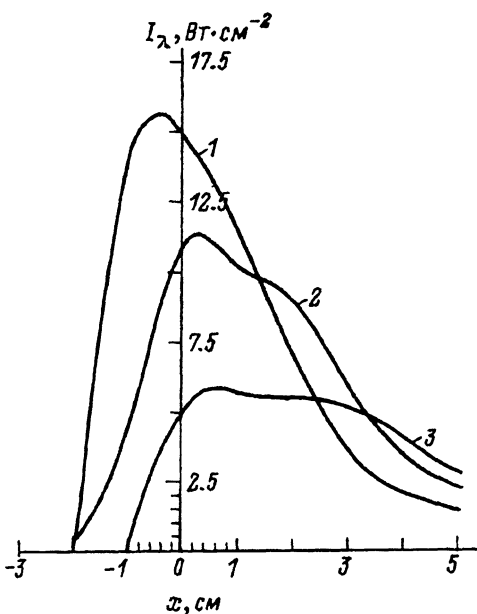


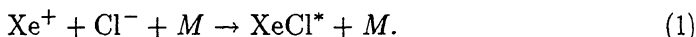
Рис. 5. Распределение интенсивности люминесценции молекул XeF^* ($\lambda = 351 \text{ нм}$) по потоку ксеноновой плазмы с поверхности области плазмохимических реакций для различных расходов SF_6 .

Координаты точки вдува соответствуют нулевой отметке на оси ординат. Энерговклад в плазматрон — 57 кВт. Расход ксенона — 5 г/с, $N_{\text{Xe}} = 5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, $T_i = 2 \text{ кК}$, $T_e = 1 \text{ эВ}$. $G[\text{SF}_6]$, г/с: 1 — 2.0, 2 — 1.0, 3 — 0.5.

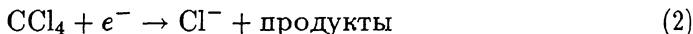
досы излучения молекулы XeCl^* составила $\approx 10 \text{ нм}$. Это связано с тем, что в области плазмохимической реакции при малых давлениях среды ($p \leq 25 \text{ Па}$) столкновительная релаксация в отличие от обычных эксимерных сред [12] не успевает опустошить верхние колебательные уровни [13].

В случае сильно ионизованного плазменного потока при фиксированном энерговкладе в плазматрон (125 кВт) и расходе Xe (1 г/с) интенсивность свечения XeCl^* практически линейно возрастает при увеличении расхода CCl_4 . Одновременно уменьшается интенсивность сильных линий Xe^+ и Xe^{++} . Насыщения в свечении XeCl^* при росте расхода CCl_4 не наблюдалось. При росте энерговклада в сильноионизованную плазму интенсивность свечения молекул XeCl^* также растет.

Это может быть связано с тем, что в случае высокой степени ионизации плазменного потока молекулы XeCl^* образуются в основном за счет реакции ион-ионной рекомбинации

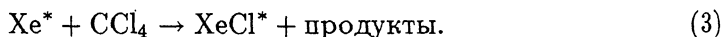


Образование Cl^- происходит за счет реакции диссоциативного прилипания



в самом начале зоны смешения. Константа этого процесса составляет $k \approx 10^{-8} \text{ см}^3/\text{с}$, и реакция (2) проходит на расстояниях $\approx 1 \text{ см}$ с образованием Cl^- со средней концентрацией $\approx 2 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$.

В случае слабо ионизованной плазмы со значительной концентрацией возбужденных нейтралов Xe^* при росте энерговклада в поток интенсивность свечения XeCl^* падает. Это может быть связано с тем, что в данном случае основным каналом образования XeCl^* служит гарпунная реакция



Максимальная достигнутая мощность люминесценции XeCl^* в смеси $\text{Xe} - \text{CCl}_4$ составляла 350 Вт при концентрации $\text{XeCl}^* 5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-3}$, что соответствует спектральной яркости источника 3 Вт/ср · нм. Для смеси $\text{Kt} - \text{SF}_6$, $\text{Xe} - \text{SF}_6$ максимальные достигнутые мощности составили 150 и 270 Вт, спектральные яркости 2.0 и 1.5 Вт/ср · нм соответственно. Порлный КПД процесса составлял от 0.2 до 0.7% при всех типах смешиваемых компонентов.

Максимальные энергетические характеристики излучения достигнуты при смещении плазменного потока Xe с парами NaCl , где мощность люминесценции достигала значений ~ 4 кВт при спектральной яркости излучения $\simeq 60$ Вт/с р · нм и полном КПД $\simeq 4\%$.

Модель кинетических процессов

С целью определения зависимости выхода ультрафиолетового излучения от свойств смешиваемых потоков плазмы и галогеноносителей была рассчитана эффективность основных каналов образования эксимерных молекул в разреженных потоках.

Модель расчета плазмохимических реакций [14,15] строилась в приближении мгновенного смешения плазмы и галогеноносителя. Практически смешение может происходить аналогично смешению топлива и окислителя в химических лазерах [16,17] путем диффузии одного потока в другой за времена, меньшие характерных времен газокинетических реакций.

При проведении расчетов учитывалось, что время максвеллизации электронов, ионов, а также время упругих столкновений нейтральных атомов много меньше характерного времени протекания кинетических процессов.

В модели учитывались следующие процессы: ударная ионизация атомов электронами и реакции ионизации типа пеннинговской; рекомбинация электронов и ионов; возбуждение и девозбуждение метастабильных уровней инертных газов; реакция диссоциативного прилипания электрона к галогену; образование эксимерных молекул по "гарпунному" и ионному каналу; реакции с излучением и реакции тушения эксимерных молекул, проходящие со скоростью

$$R(\alpha) = k_f(\alpha)\Pi_i[X_i]^{\mu_i} - k_r(\alpha)\Pi_i[X_i]^{\nu_i}, \quad (4)$$

где X_i — концентрация компонента i ; k_f, k_r — константы скорости прямой и обратных реакций;

$$\sum_i \mu_i(\alpha)X_i \xrightleftharpoons[k_r]{k_f} \sum_i \nu_i(\alpha)X_i, \quad (5)$$

μ_i, ν_i — стехиометрические коэффициенты.

При расчете констант реакций принимались во внимание зависимость сечений неупругих процессов от энергии электронов. Решались уравнения непрерывности типа

$$v \frac{\partial [X_i]}{\partial z} = \sum_{\alpha} R(\alpha) \{ \nu_i(\alpha) - \mu_i(\alpha) \}, \quad (6)$$

при этом считалось, что гидродинамическая скорость v вдоль потока одинакова для всех компонентов. В уравнениях (6) выделялся вклад в

образование эксимеров гарпунной реакции и трехчастичной ион-ионной рекомбинации.

Для определения заселенностей метастабильных уровней инертных газов в рекомбинационно-неравновесной плазме совместно с уравнениями непрерывности решалось уравнение для температуры электронов T_e

$$\operatorname{div} \mathbf{F} = -\frac{3}{2} n_e k (T_e - T_i) \nu_{ei} + Q, \quad (7)$$

где n_e — концентрация электронов, ν_{ei} — частота электрон-ионных столкновений.

Плотность потока энергии электронов \mathbf{F} складывается из гидродинамического потока энтальпии и потока теплопроводности

$$\mathbf{F} = \frac{5}{2} n_e k T_e \mathbf{v} - \lambda_e \nabla T_e, \quad (8)$$

где λ_e — электронная теплопроводность.

Как показывают оценки, поток теплопроводности при рассматриваемых условиях составляет не более 10% от потока энтальпии и им можно пренебречь. Первый член в правой части уравнения (7) описывает потери энергии электронами в кулоновских столкновениях с ионами Kt^+ и F^- . Слагаемое Q учитывает изменение температуры электронов при неупругих и сверхупругих столкновениях электронов с атомами и ионами. При этом считалось, что электроны рекомбинируют и рождаются с энергией, близкой к нулевой.

Граничные условия для потока плазмы рассчитывались из принципа детального равновесия при заданной из эксперимента температуре и концентрации электронов.

Расчеты проводились для различных компонентов смешиваемых потоков плазмы и галогеносителей и показали качественное согласие с результатами экспериментов. Например, для одной из наиболее эффективных и изученных эксимерных сред $\text{Kt} - \text{F}_2$ максимальная концентрация молекул KtF^* составила $6.4 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$ при начальных концентрациях $\text{F}_2 \simeq 10^{13} \text{ см}^{-3}$, $\text{Kt} \simeq 10^{16} \text{ см}^{-3}$ и температуре электронов 1 эВ. С увеличением концентрации F_2 до $\simeq 10^{14}$ и 10^{15} см^{-3} максимальная концентрация эксимерных молекул возрастала до $6.7 \cdot 10^{10}$ и $7.6 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$ соответственно. При этом длина области люминесценции в первых двух случаях равнялась $\simeq 3$ см, а в последнем $\simeq 5$ см. Это увеличение длины, по-видимому, связано с уменьшением скорости реакции диссоциативного прилипания электронов к F_2 вследствие повышения температуры электронов до $\simeq 1.5$ эВ за счет этой реакции.

Согласно расчетам, образование эксимерных молекул при указанных параметрах смешиваемых потоков идет в основном в реакциях ион-ионной рекомбинации (концентрация KtF^* , возникающего в гарпунных реакциях, составляла менее 0.1% от общего количества KtF^*). Аналогичный вывод был сделан в работе [11] на основе анализа зависимости интенсивности излучения KtF^* и F^* от давления SF_6 в смеси.

Отметим, что в разреженных плазменных потоках эффективность реакции ион-ионной рекомбинации падает с уменьшением давления буферного газа. Кроме того, скорость образования эксимерных молекул в этой реакции пропорциональна концентрации отрицательных атомов галогена, которые являются основным компонентом, поглощающим излучение

эксимеров. Поэтому достижение положительного коэффициента усиления излучения в таких системах затруднительно. Выход может быть найден либо в создании специальных условий для протекания гарпунной реакции (например, за счет дополнительного охлаждения электронов [14,15]), либо в поиске новых сред, в которых образование эксимерных молекул происходило бы в результате других эффективных двухчастичных реакций.

Заключение

В результате проведенных исследований радиационных характеристик области смешения плазменных потоков инертных газов с галогенонесителями в непрерывном режиме получены выходные энергии люминесценции эксимерных молекул, позволяющие считать перспективными работы по созданию технологических источников узкополосного ультрафиолетового излучения. Такие источники обладают рядом положительных особенностей: узкая полоса излучения $\Delta\lambda = 4 \dots 15$ нм, возможность облучения сравнительно больших объемов и поверхностей, непрерывный режим работы, относительная простота конструкции.

Список литературы

- [1] Gold M.F., Truck B.A. // Chem. Phys. Lett. 1974. Vol. 29. N 4. P. 486-489.
- [2] Velazco J.E., Setser D.W. // J. Chem. Phys. 1975. Vol. 62. N 5. P. 1990-1998.
- [3] Campbell E.M., Jaskowsky W.F., Clark K.E., Jahn B.C. AIAA Paper. 1975. N 75-852. 16 p.
- [4] Андреев Ю.Ю., Горская Н.М., Сухов Б.Г., Юценкова Н.И. // Молекулярная газовая динамика. Сб. науч. тр. СО АН СССР. Новосибирск, 1980. С. 108-113.
- [5] Богачева С.П., Верешь М.Ф., Запесочный И.П. и др. // УФЖ. 1985, Т. 30. № 2. С. 186-192.
- [6] Роголич В.С., Стародуб В.П., Шевера В.С. // Письма в ЖТФ. 1986. Т. 12. Вып. 10. С. 606-609.
- [7] Микхельсоо В.С., Трещалов Ф.Б., Пест В.Э. и др. // Квантовая электрон. 1987. Т. 14. № 7. С. 1404-1410.
- [8] Алетин А.А., Герасько Ю.В., Денисов Ю.Н. и др. // Тез. докл. I Всесоюз. симпозиума по радиационной плазмодинамике. М.: Энергоатомиздат, 1989. Т. 2. С. 101-103.
- [9] Алетин А.А., Баринов В.А., Герасько Ю.В. и др. // Тез. докл. II Всесоюз. симпозиума по радиационной плазмодинамике. М., 1991. Ч. 2. С. 5-6.
- [10] Алетин А.А., Баринов В.А., Герасько Ю.В., Любченко Ф.Н. // Тез. докл. II Всесоюз. симпозиума по радиационной плазмодинамике. М., 1991. Ч. 3. С. 59-60.
- [11] Роголич В.С., Стародуб В.П., Шевера В.С. // Опт. и спектр. 1990. Т. 69. Вып. 4. С. 756-758.
- [12] Эксимерные лазеры. Сб. статей / Под ред. Ч.Роудза. М.: Мир, 1981. 245 с.
- [13] Dreiling T.D., Setser D.W. // J. Chem. Phys. 1981. Vol. 75. N 9. P. 4360-4378.
- [14] Костенко О.Ф., Тюкавкин А.В. Теоретические и экспериментальные исследования вопросов общей физики. Калининград, 1991. С. 3-9.
- [15] Костенко О.Ф., Тюкавкин А.В. // Тез. докл. II Всесоюз. симпозиума по радиационной плазмодинамике. М., 1991. Ч. 3. С. 74-75.
- [16] Аблеков В.К., Денисов Ю.Н. Проточные химические лазеры. М.: Энергоатомиздат, 1987. 176 с.
- [17] Оран Э., Борис Дж. Численное моделирование реагирующих потоков. М.: Мир, 1990. 662 с.

Центральный научно-исследовательский
институт машиностроения
Калининград
Московская область

Поступило в Редакцию
29 декабря 1991 г.