Краткие сообщения

04;07;12

Ультрафиолетовая газоразрядная лампа на молекулах иода

© А.К. Шуаибов, А.Й. Миня, З.Т. Гомоки, А.Г. Калюжная, А.И. Щедрин

Ужгородский национальный университет, 88000 Ужгород, Украина e-mail: shuaibov@univ.uzhgorod.ua; ashched@iop.kiev.ua

(Поступило в Редакцию 29 сентября 2009 г.)

Приведены результаты исследования эмиссионных характеристик импульсно-периодического ультрафиолетового источника излучения, который возбуждался при помощи импульсно-периодического емкостного разряда на смесях гелия, неона и криптона с парами иода в спектральном диапазоне 200-450 nm. Показано, что основная часть мощности излучения плазмы сконцентрирована в спектральной линии 206.2 nm атома иода и D'-A'-полосе молекулы иода с максимумом при 342 nm. Проведена оптимизация яркости излучения лампы в зависимости от парциального давления инертных газов.

Выполнены расчеты параметров плазмы разряда на смесях паров иода с атомами Не и Хе, представляющие интерес для моделирования кинетики процессов и выходных характеристик УФ-излучателя на молекулах иода, иодида ксенона и атома иода.

Излучение газоразрядных ламп на смесях тяжелых инертных газов с молекулами иода сконцентрировано преимущественно в спектральном диапазоне 180-260 nm и находит широкое применение в фотобиологии, фотохимии и микроэлектронике [1-6]. Существует, однако, ряд технологических процессов, в которых необходимо использовать более длинноволновое ультрафиолетовое излучение из спектрального диапазона 390-300 nm. При этом наличие излучения из спектрального диапазона 180-300 nm может быть нежелательным. Такие источники излучения могут быть разработаны на основе молекул монофторида ксенона (353, 311 nm) или D'-А'-полосы молекулы воды (342 nm). Рабочие смеси лампы на основе молекул XeF* включают сильно агрессивные молекулы фтора, что приводит к уменьшению ресурса работы излучателя в газостатических условиях. Поэтому более перспективным является применение в подобных лампах излучения молекул иода. Но оболочка таких ламп должна быть изготовлена из непрозрачного материала в спектральном диапазоне 180-260 nm. Такие лампы представляют интерес для применения в технологических линиях по отвердению лаков и красок на полимерной основе [7], а также фотолитического окисления [8]

В работах [9,10] приведены результаты оптимизации УФ-источников излучения на основе импульсного емкостного и тлеющего разрядов в смесях инертных газов с парами иода, которые излучали на спектральных переходах атома иода (183.0, 187.6 и 206.2 nm). Оптимальные характеристики молекулярной импульсной лампы емкостного разряда оставались не исследованными. Параметры плазмы и кинетика процессов в таких УФизлучателях ранее не изучались, что сдерживает проведение численного моделирования их выходных характеристик и оптимизации режимов работы в различных рабочих средах.

В настоящей работе приводятся результаты экспериментального и теоретического исследования характеристик лампы с накачкой импульсным емкостным разрядом, которая работает на смесях He, Ne, Kr с молекулами иода и излучает на полосе 342 nm $I_2(D'-A')$.

Исследование оптических характеристик емкостного разряда в смесях He, Ne, Ar, Kr с парами иода проводилось в газоразрядной трубке из кварца марки "КВ", через который не проходило УФ-излучение с длиной волны менее 250 nm и такой же трубки, прозрачной до 180 nm (кварц марки "КУ"). Емкостной разряд зажигался в трубке длиной 40 cm с внутренним диаметром 1 cm. Межэлектродное расстояние составляло 6 ст. Электроды были изготовлены в форме колец из листового никеля шириной 2 cm и устанавливались на внешней поверхности разрядной трубки. Импульсный источник питания позволял получать на разрядном промежутке цуг затухающих импульсов амплитудой до 25-30 kV. Общая длительность цуга достигала 400 ns, а длительность отдельного импульса напряжения составляла 30-40 ns. Частота следования импульсов напряжения регулировалась в диапазоне 10-100 Hz. Излучение емкостного разряда исследовалось в спектральном диапазоне 200-450 nm с использованием монохороматора МДР-2 и фотоумножителя ФЭУ-106. Импульсы разрядного тока и напряжения на электродах регистрировались при помощи малоиндуктивного шунта, емкостного делителя и скоростного осциллографа 6ЛОР-04. Регистрация импульсного излучения разряда проводилась с использованием электронного линейного умножителя ЭЛУ-14 ФС. Более детально экспериментальная установка описана в [11,12].



Рис. 1. Спектр излучения лампы емкостного разряда с оболочкой из кварца марки "КУ" на смеси $p(\text{Ne})-p(\text{I}_2) = 12\,000-(100-200)$ Ра; сплошная кривая — аппаратный спектр, пунктир — спектр, приведенный к $k(\lambda)$.

На рис. 1 представлен спектр излучения емкостного разряда, который не приведен к относительной спектральной чувствительности системы регистрации — $k(\lambda)$ (сплошная кривая) и приведенный к $k(\lambda)$ (кривая в виде отдельных точек). В трубке из кварца "КУ" основная часть ультрафиолетового излучения сосредоточена в спектральной линии атома иода 206.2 nm и полосе 342 nm молекулы иода. При замене оболочки лампы на кварц марки "КВ" в спектре излучения лампы наблюдалась только полоса молекулы иода. При этом терялась примерно половина мощности ультрафиолетового излучения емкостного разряда, которая связана с излучением спектральной линии 206.2 nm атома иода (и других более коротковолновых спектральных линий атома иода из диапазона 150–190 nm [10]).

Зависимость яркости излучения спектральной полосы $342 \text{ nm } I_2(D'-A')$ (при одинаковых условиях возбуждения разряда и примерно равном парциальном давле-



Рис. 2. Зависимость яркости излучения спектральной полосы молекулы иода с максимумом при 342 nm от парциального давления неона (1), гелия (2) и криптона (3) в лампе емкостного разряда при $p(I_2) = 100-200$ Pa.

нии паров иода в лампе) от парциального давления буферных инертных газов приведена на рис. 2. Для работы лампы на полосе $342 \text{ nm I}_2(D' - A')$ наиболее оптимальными инертными газами являются гелий и неон при давлении 15-20 kPa, а при использовании тяжелых и, как правило эксиплексообразующих инертных газов, мощность излучения лампы на полосе молекулы иода уменьшается примерно на порядок. Для излучения лампы на спектральной линии иода наименее эффективными буферными газами были аргон и криптон.

В связи с тем, что в мощном импульсном емкостном разряде значительная часть молекул иода диссоциирует на атомы, при решении кинетического уравнения Больцмана для функции распределения электронов по энергии (ФРЭЭ) предполагалось, что галогеноноситель в смесях представлен молекулами $I_2(50\%)$ и атомами I(50%), которые находятся в основном состоянии. Расчет ФРЭЭ в разряде на смесях $p(\text{He})-p(\text{I}_2)-p(\text{I}) = 800-50-50$ Ра и $p(Xe)-p(I_2)-p(I) = 800-50-50$ Ра при различных значениях параметра E/N (50-300 Td) показал, что по мере перехода от гелийсодержащих к ксенонсодержащим смесям происходит снижение доли электронов с высокими энергиями в разряде. Это связано с тем, что пороги возбуждения и ионизации атомов ксенона (8.3 и 12.1 eV соответственно) существенно ниже, чем для атома гелия (19.8 и 22.5 eV), поэтому "обрезание хвоста" ФРЭЭ в смеси на основе ксенона происходит при более низких энергиях. Скорость дрейфа электронов в разряде на основе смеси He-I2-I линейно увеличивалась в диапазоне $(1-5) \cdot 10^7$ cm/s, а в разряде на смеси $Xe-I_2-I$ — в диапазоне $(2-8) \cdot 10^6$ cm/s при увеличении параметра E/N от 50 до 300 Td. При этом средняя энергия электронов возрастала от 5.3 до 8.8 eV (смесь $He-I_2-I$) и от 4.2 до 7.5 eV (смесь $Xe-I_2-I$). Максимальные средние значения энергии электронов наблюдались в разряде на основе гелия благодаря ярко выраженному высокоэнергетическому хвосту на ФРЭЭ. Замена в рабочих смесях гелия на ксенон приводила к резкому обрезанию ФРЭЭ при энергиях, близких к порогу возбуждения атома ксенона, и соответственному уменьшению средней энергии электронов.

Наибольшие скорости дрейфа электронов также наблюдались в разряде на смеси $\text{He}-I_2-I$, что обусловлено более интенсивным рассеянием электронов на атомах ксенона (сечение транспортного рассеяния электронов на атомах Xe в интервале значений энергий до 25 eV на 1-2 порядка превышает аналогичное сечение для атома гелия). Более интенсивное рассеяние электронов в разряде на ксенонсодержащей смеси приводит к уменьшению направленной скорости движения электронов в этой среде по сравнению с гелийсодержащей смесью.

В табл. 1 представлено распределение мощности, вкладываемой в разряд, по наиболее важным электронным процессам. Такими процессами являются возбуждение и ионизация инертных газов, атомов и молекул галогена, а также диссоциация и диссоциативное прилипание электронов к молекулам иода. Процессы

Таблица 1. Удельные потери мощности разряда (%) на электронные процессы в смесях $p(\text{He}) - p(\text{I}_2) - p(\text{I}) = 800 - 50 - 50$ Ра и $p(\text{Xe}) - p(\text{I}_2) - (\text{I}) = 800 - 50 - 50$ Ра

E/N, Td	Возбуждение Не	Ионизация Не	Возбуждение І2	Прилипание І2	Диссоциация І2	Ионизация І2	Возбуждение І	Ионизация І
50 150 300	0.45 2.72 3.30	$\begin{array}{c} 8.28 \cdot 10^{-5} \\ 7.55 \cdot 10^{-4} \\ 9.51 \cdot 10^{-4} \end{array}$	12.9 6.37 5.6	$\begin{array}{c} 9.56\cdot 10^{-2} \\ 2.08\cdot 10^{-2} \\ 1.59\cdot 10^{-2} \end{array}$	42 29 27	9.14 20 21.6	10 6.72 6.16	25.1 35 36

E/N, Td	Возбуждение Хе	Ионизация Хе	Возбуждение І ₂	Прилипание І ₂	Диссоциация І2	Ионизация І ₂	Возбуждение І	Ионизация І
50	58	0.163	17	0.44	17.6	$1.12\cdot 10^{-2}$	6.52	0.48
150	72	6.8	4.75	$5.05\cdot 10^{-2}$	10.7	0.33	3.0	2.22
300	68.6	17.3	2.09	$1.31 \cdot 10^{-2}$	6.56	0.78	1.66	2.94

Таблица 2. Константы скорости электронных процессов (cm^3/s) в смесях $He-I_2-I$ и $Xe-I_2-I$

E/N, Td	50	150	300					
$p(\text{He}) - p(\text{I}_2) - p(\text{I}) = 800 - 50 - 50 \text{ Pa}$								
Возбуждение Не	$9.91 \cdot 10^{-13}$	$2.73 \cdot 10^{-11}$	$4.44 \cdot 10^{-11}$					
Ионизация Не	$1.62 \cdot 10^{-16}$	$6.66 \cdot 10^{-15}$	$1.13 \cdot 10^{-14}$					
Возбуждение I ₂	$1.77\cdot 10^{-9}$	$3.97\cdot 10^{-9}$	$4.69 \cdot 10^{-9}$					
Ступенчатая ионизация I ₂	$3.46 \cdot 10^{-8}$	$8.37\cdot 10^{-8}$	$9.94\cdot 10^{-8}$					
Прилипания I ₂	$6.71\cdot10^{-10}$	$6.61 \cdot 10^{-10}$	$6.80 \cdot 10^{-10}$					
Диссоциация I ₂	$3.57\cdot 10^{-9}$	$1.12\cdot 10^{-8}$	$1.39\cdot 10^{-8}$					
Ионизация I ₂	$5.35\cdot 10^{-10}$	$5.25\cdot 10^{-9}$	$7.70\cdot 10^{-9}$					
Возбуждение I	$1.08\cdot 10^{-9}$	$3.16 \cdot 10^{-9}$	$3.88 \cdot 10^{-9}$					
Ионизация I	$1.69\cdot 10^{-9}$	$1.07\cdot 10^{-8}$	$1.49\cdot 10^{-8}$					
Ступенчатая ионизация І	$7.54\cdot 10^{-8}$	$1.18 \cdot 10^{-7}$	$1.30 \cdot 10^{-7}$					
$p(Xe) - p(I_2) - (I) = 800 - 50 - 50 Pa$								
Возбуждение Хе	$7.42 \cdot 10^{-11}$	$7.33 \cdot 10^{-10}$	$2.52\cdot 10^{-9}$					
Ионизация Хе	$1.44 \cdot 10^{-13}$	$4.76 \cdot 10^{-11}$	$4.37 \cdot 10^{-10}$					
Ступенчатая ионизация Хе	$2.30\cdot10^{-7}$	$2.92\cdot 10^{-7}$	$3.39 \cdot 10^{-7}$					
Возбуждение I ₂	$5.71\cdot10^{-10}$	$1.26\cdot 10^{-9}$	$2.00 \cdot 10^{-9}$					
Ступенчатая ионизация I ₂	$7.91\cdot 10^{-9}$	$2.25\cdot 10^{-8}$	$3.93\cdot 10^{-8}$					
Прилипание I ₂	$7.51 \cdot 10^{-10}$	$6.84 \cdot 10^{-10}$	$6.41 \cdot 10^{-10}$					
Диссоциация I ₂	$3.66 \cdot 10^{-10}$	$1.76\cdot 10^{-9}$	$3.88 \cdot 10^{-9}$					
Ионизация I ₂	$1.59 \cdot 10^{-13}$	$3.69 \cdot 10^{-11}$	$3.17 \cdot 10^{-10}$					
Возбуждение I	$1.65\cdot 10^{-10}$	$6.01\cdot 10^{-10}$	$1.2\cdot 10^{-9}$					
Ионизация I	$7.82 \cdot 10^{-12}$	$2.88 \cdot 10^{-12}$	$1.37 \cdot 10^{-9}$					
Ступенчатая ионизация І	$4.47\cdot 10^{-8}$	$6.61 \cdot 10^{-8}$	$8.4\cdot 10^{-8}$					

ступенчатой ионизации инертных газов и иода не принимались во внимание. Это связано с тем, что, вопервых, концентрация возбужденных атомов и молекул существенно зависит от времени горения разряда и, вовторых, их значения на несколько порядков ниже, чем концентрации исходных компонент смеси (He, Xe, I₂, I).

Видно, что в связи со слишком высокими порогами возбуждения и ионизации атомов гелия подавляющая часть мощности в смеси He–I₂–I расходуется на реакции с участием галогена. Незначительные затраты мощности на процесс прилипания электронов к галогену объясняются очень низким порогом этого процесса, близким к нулю. Увеличение электрического поля приводит к росту числа быстрых электронов в разряде и возрастанию роли процессов ионизации иода, возбуждения и ионизации гелия.

В смеси на основе ксенона затраты мощности на возбуждение и ионизацию инертного газа существенно выше. Сравнимые пороги процессов с участием ксенона и иода приводят к тому, что при низких полях мощность распределяется между ними примерно поровну. По мере увеличения электрического поля доля энергии, расходуемой на реакции с участием инертного газа, возрастает.

Значения скоростей основных электронных процессов в рассмотренных смесях в зависимости от величины параметра E/N представлены в табл. 2. Максимальными постоянными значениями скорости обладают процессы с наименьшими порогами — ступенчатая ионизация ксенона и атомарного и молекулярного иода, минимальными — реакции возбуждения и ионизации атомов гелия. Для всех процессов характерен рост значений скорости по мере увеличения электрического поля. Единственным исключением является процесс диссоциативного прилипания электронов к молекулам иода, обладающий практически нулевым порогом и соответственно не зависящий от числа быстрых электронов в разряде.

Таким образом, установлено, что импульсный емкостной разряд субмикросекундной длительности на смесях инертных газов с парами иода наиболее эффективно излучает на полосе 342 nm $I_2(D'-A')$ при использовании в качестве буферных газов неона и гелия при давлении 15–20 kPa и парциальном давлении паров иода в диапазоне 100–200 Pa. На основе исследованного разряда может быть разработана лампа для обработки поверхностей, на которые нанесен слой лака или краски на полимерной основе и фотолитического окисления.

Рассчитанные транспортные характеристики электронов и константы скоростей электронных процессов в разряде на смесях гелия и ксенона с парами иода могут быть использованы для численного моделирования выходных характеристик лампы импульсного емкостного разряда.

Список литературы

- Lomaev M.I., Tarasenko V.F. // SPIE. 2002. Vol. 4747. P. 390–398.
- [2] Ломаев М.И., Скакун В.С., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф. и др. // УФН. 2003. Т. 173. № 2. С. 201–217.
- [3] Sosnin E.A., Oppenlander T., Tarasenko V.F. // J. Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Rev. 2006. Vol. 7, P. 145–163.
- [4] Шуаибов А.К., Грабовая И.А. // Оптич. журн. 2005. Т. 72. № 7. С. 52–56.
- [5] Шуаибов А.К., Грабовая И.А. // Опт. и спектр. 2006. Т. 100. № 1. С. 223–227.
- [6] Шуаібов О.К., Шевера І.В. Шимон Л.Л., Соснин Е.А. // Сучасні джерела ультрафіолетового випромінювання: розробка і застосування. Ужгород–Томськ. Видавництво УжНУ "Говерла", 2006. 223 с.
- [7] Баталов Э.М., Прочухан Ю.А. // Вестн. Башкирского унта. 2000. № 1. С. 56–60.
- [8] Advanced oxidation processes for water and wasterwater treatment / Ed. by S. Parsons. Cornwall, UK: IWA Publishing, 2004. 346 p.
- [9] Шуаибов А.К., Миня А.Й., Гомоки З.Т., Ласлов Г.Е. // Письма в ЖТФ. 2008. Вып. 17. С. 83–87.
- [10] Шуаибов А.К., Грабовая И.А., Миня А.Й., Гомоки З.Т. // Опт. и спектр. 2008. Т. 105. № 5. С. 750–754.
- [11] Шуайов О.К., Миня О.Й., Гомокі З.Т., Шимон Л.Л. Імпульсна бактерицидна лампа. Патен № 34794. 26.08.2008. Бюл. № 16.
- [12] Шуаибов А.К., Миня А.Й., Гомоки З.Т., Ласлов Г.Е. // ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 1. С. 147–151.