

# Спектральные и энергетические характеристики многополосных KrBr-эксилламп барьерного разряда

С.М.Авдеев, М.В.Ерофеев, В.С.Скакун, Э.А.Соснин, А.И.Суслов, В.Ф.Тарасенко, Д.В.Шитц

*Экспериментально исследованы спектральные и энергетические характеристики многополосных KrBr-эксилламп барьерного разряда коаксиальной конструкции в интервале давлений от десятков торр до 0.4 атм. Показано, что увеличение концентрации Br<sub>2</sub> приводит к снижению интенсивности излучения молекул KrBr\* относительно интенсивности излучения молекул Br<sub>2</sub>\* и к снижению общей мощности излучения эксилламп. Это можно объяснить безызлучательным распадом эксиплексных молекул KrBr\* вследствие их тушения молекулярным бромом. В смеси Kr:Br<sub>2</sub> = 400:1 при давлении ~ 230 Торр и разрядном промежутке 8.5 мм мощность и эффективность излучения составили 4.8 Вт и 2.4 % соответственно.*

**Ключевые слова:** эксиллампа, ультрафиолетовое излучение, Br<sub>2</sub>\*, KrBr\*.

1. В последние два десятилетия источники спонтанного ультрафиолетового (УФ) и вакуумного ультрафиолетового (ВУФ) излучения связанно-свободных переходов эксимерных (R<sub>2</sub><sup>\*</sup>, X<sub>2</sub><sup>\*</sup>) или эксиплексных (RX<sup>\*</sup>) молекул, где R – инертные газы (Ar, Kr, Xe), а X – галогены (F, Br, Cl, I), стали объектом многих исследований (см. обзоры [1–4] и ссылки в них). В [5] было предложено называть такие источники эксиллампами. Спектр эксилламп сосредоточен, как правило, в одной сравнительно узкой и интенсивной полосе излучения, полуширина которой для молекул RX<sup>\*</sup> составляет 2–15 нм, для молекул R<sub>2</sub><sup>\*</sup> – до 30 нм. Кроме излучения в полосе B → X, спектр плазмы эксиплексных молекул RX<sup>\*</sup> может содержать полосы переходов D → X, C → A, D → A той же самой молекулы. Однако их вклад в мощность излучения при высоких давлениях газа весьма мал, поэтому при описании характеристик эксилламп обычно имеют в виду излучение полос B → X.

Одним из важных направлений исследования эксимерных и эксиплексных оптических сред является изучение рабочих смесей, в спектрах излучения которых одновременно присутствуют полосы разных и одинаковых молекул. Например, в спектрах люминесценции смеси криптона с молекулярным бромом при умеренных давлениях находятся полосы излучения как молекул Br<sub>2</sub><sup>\*</sup>, так и KrBr<sup>\*</sup>, вклад которых в полную мощность излучения может варьироваться в зависимости от соотношения концентраций газов в смеси. Тем не менее для краткости такую излучающую систему называют KrBr-эксиллампой. Исследования KrBr-эксилламп сравнительно немногочисленны.

В работе [6] при исследовании KrBr-эксилламп продольного тлеющего разряда низкого давления в диапа-

зоне 150–300 нм получены спектры излучения, включающие как линии атома брома (163.3 и 157.6 нм), так и полосы молекул Br<sub>2</sub><sup>\*</sup> и KrBr<sup>\*</sup>. Показано, что с ростом давления смеси от 0.3 до 7.8 Торр вклад последних в излучение увеличивается. Дальнейший рост давления в тлеющем разряде ведет к контракции и погасанию разряда. Вероятно поэтому при более высоких давлениях исследования не проводились. При использовании для возбуждения рабочей смеси барьерного разряда ограничение по давлению снимается. Так, в [7, 8] в планарной KrBr-эксиллампе с площадью окна 4.7 см<sup>2</sup> при общем давлении 285 Торр получен спектр излучения, в котором полоса молекулы KrBr<sup>\*</sup> преобладает, но средняя мощность излучения невелика и составляет 3 мВт.

Средняя мощность излучения была увеличена в коаксиальной эксиллампе [9]. При давлении смеси до 190 Торр удалось получить многополосные спектры излучения. Причем, изменяя парциальные давления криптона и Br<sub>2</sub>, можно было менять и мощность излучения в полосах молекул Br<sub>2</sub><sup>\*</sup> и KrBr<sup>\*</sup>.

В настоящей работе представлены результаты начатых в [9] систематических исследований спектральных и энергетических характеристик коаксиальных эксилламп барьерного разряда на смеси Kr–Br<sub>2</sub>. Поскольку спектр KrBr-эксилламп специфичен, необходимо детальное изучение поведения отдельных полос излучения, т.к. при различных давлениях и величинах разрядного промежутка относительный вклад в среднюю мощность излучения полос молекул KrBr<sup>\*</sup> и Br<sub>2</sub><sup>\*</sup> будет различным. До сих пор такие исследования отсутствовали. Цель работы – достижение наибольших средних мощностей и эффективностей излучения многополосных KrBr-эксилламп.

2. Эксперименты проводились на двух эксиллампах коаксиального типа (рис. 1), изготовленных из плавленого кварца (Fused Quartz, Type 214, General Electric) с пропусканием ~75 % на λ = 200 нм. Лампы имели разные диаметры и длину, что определяло величину разрядного промежутка d и площадь излучающей поверхности S (табл. 1). Внешний электрод имел форму спирали и пропускание более 72 %, сплошной электрод, размещенный во внутренней трубке, был изготовлен из алюминиево-

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

Поступила в редакцию 8 апреля 2007 г., после окончательного оформления 12 ноября 2007 г.

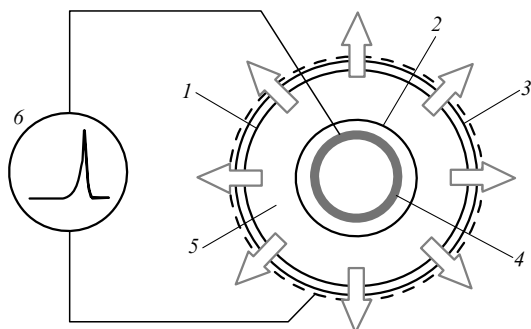


Рис. 1. Поперечное сечение излучателя коаксиальной эксилампы: 1 и 2 – внешняя и внутренняя кварцевые трубки; 3 – внешний перфорированный электрод; 4 – внутренний высоковольтный электрод-отражатель; 5 – газоразрядный промежуток; 6 – импульсный источник питания.

магниевои фольги. Возбуждение газовой среды в промежутке между трубками осуществлялось при подаче на электроды импульсов напряжения с амплитудой до 4 кВ, частотой  $f$  в несколько десятков килогерц и длительностью  $\sim 2$  мкс. Потребляемая эксилампой мощность зависела от амплитуды и частоты следования импульсов напряжения.

Табл. 1. Конструктивные параметры и параметры питания КгВг-эксиламп.

Номер эксилампы	$d$ (мм)	$S$ (см <sup>2</sup> )	$f$ (кГц)
1	11	941	76.3
2	8.5	405	80.8

В экспериментах мощность излучения, вводимая в разряд мощность и спектры излучения, измерялись при изменении давления паров брома и инертного газа Кг. Смеси криптона и брома готовились в рабочем объеме эксилампы. После проведения оптимизации излучатели эксиламп отпаивались и испытывались в автономном режиме. Чтобы обеспечить стабильность работы эксилампы, во время опыта колба охлаждалась вентилятором, расположенным у ее торца.

Мощность излучения лампы определялась фотоприемником H8025-222 (Hamamatsu Photonics К.К.) с максимумом спектральной чувствительности на  $\lambda = 222$  нм. Спектр излучения разряда регистрировался с помощью спектрометра высокого разрешения HR4000 (Ocean Optics B.V.) для регистрации излучения в диапазоне 200–300 нм с решеткой 2400 штрих./мм. Вводимая мощность определялась по осциллограммам импульсов напряжения и тока. Осциллограммы тока и напряжения с токового шунта и делителя напряжения регистрировались осциллографом TDS 224 (Tektronics Inc.).

3. Спектр излучения смеси Кг–Вг<sub>2</sub> определяется полосой В → Х молекулы КгВг\* с максимумом на  $\lambda \sim 207$  нм, слабыми полосами С → А (222 нм), D → А (228 нм) этой же молекулы и континуумом, соответствующим D' → А'-переходу (291 нм) молекулы Вг<sub>2</sub>\* (рис.2). Уменьшение доли брома в смесях Кг:Вг<sub>2</sub> от 100:1 до 400:1 ведет к росту вклада в излучение полос молекулы КгВг\* и к относительно слабому росту интенсивности полос Вг<sub>2</sub>\* (см., напр., рис.2,а). При фиксированном соотношении Кг–Вг<sub>2</sub> в смеси увеличение ее давления всегда ведет к росту вклада в излучение полос молекулы КгВг\*; вклад полосы D' → А' молекулы Вг<sub>2</sub>\* почти не меняется (рис.2,б).

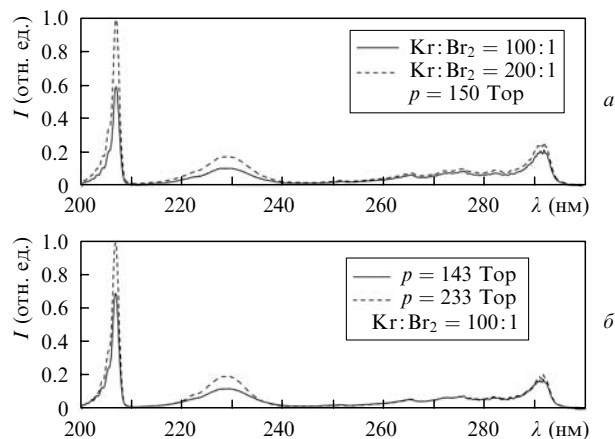
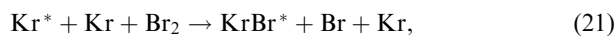
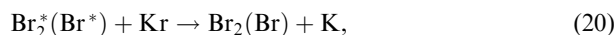
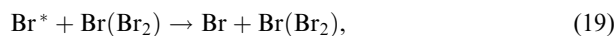
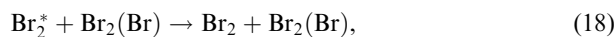
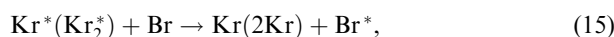
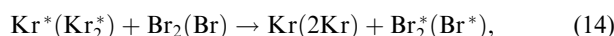
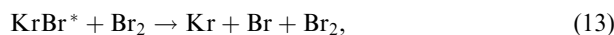
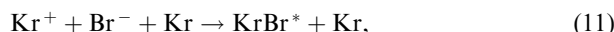
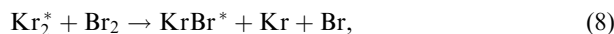
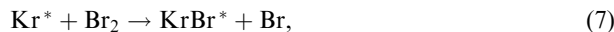
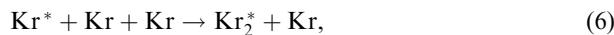
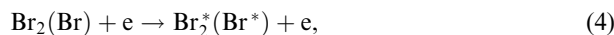
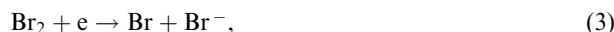


Рис. 2. Спектр излучения КгВг-эксилампы 2 при фиксированном давлении смеси 150 Торр (а) и при двух разных давлениях, но фиксированном отношении Кг:Вг<sub>2</sub> = 400:1 (б).

Поскольку расчет кинетики реакций в настоящей работе не проводился, для качественной интерпретации полученных результатов были проанализированы результаты расчетов для рабочих смесей ХеСl- [10], КгСl- [10], ХеI- [11] и КгI-эксиламп [12] и по аналогии выделен ряд реакций, существенных для образования и гибели молекул Вг<sub>2</sub>\* и КгВг\*:



По аналогии с образованием молекул КгI\* и I<sub>2</sub>\* в КгI-эксилампах [12, 13] можно заключить, что молекулы КгВг\* при умеренных давлениях образуются последовательно в результате формирования электронным ударом

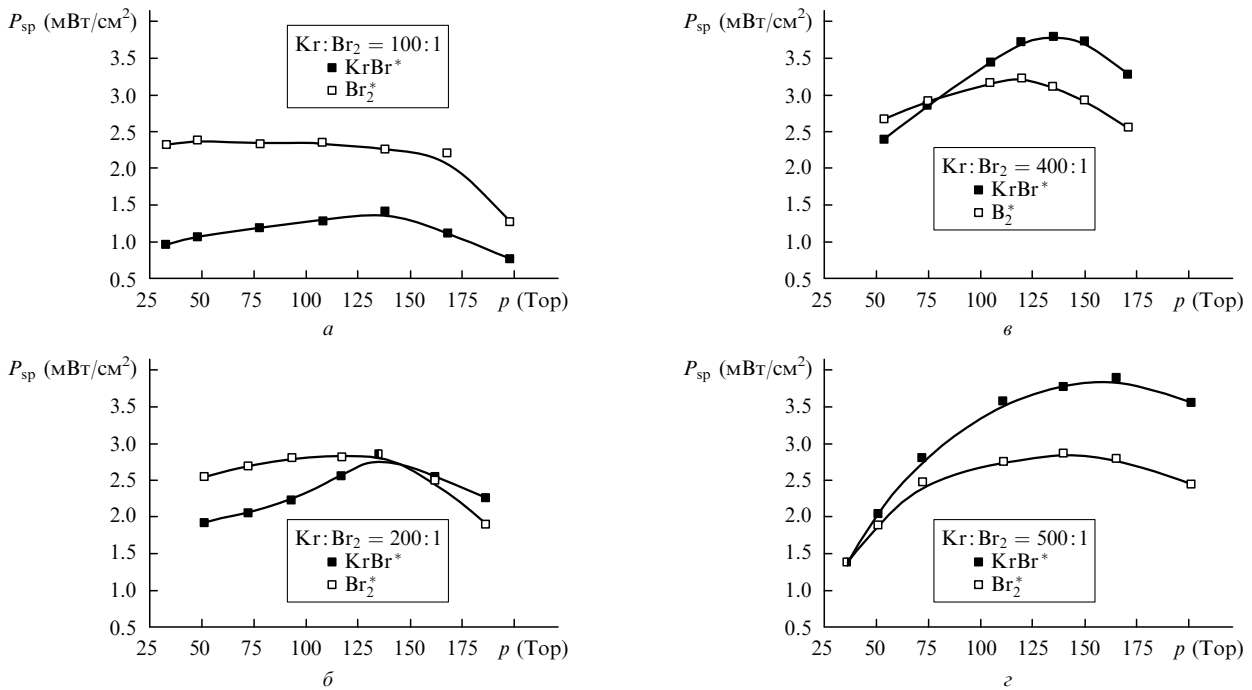


Рис.3. Зависимости светимости эксилампы 1 в полосах излучения молекул KrBr\* и Br<sub>2</sub>\* от давления рабочей смеси при различных отношениях Kr – Br<sub>2</sub>.

возбужденных атомов и ионов криптона (1), (2), и далее в процессах (7), (8), (10), (11), но главным образом в ходе гарпунных реакций (7), (8), (10). Вклад трехчастичных реакций (11) мал, и он остается небольшим при повышении давления до 200 Торр. Каналами гибели эксиплекса являются преддиссоциация (12) [14], а также тушение KrBr\* молекулярным (13) и атомарным бромом. В результате передачи возбуждения молекулам и атомам брома (реакции (14) и (15)) снижается концентрация Kr\* и Kr<sub>2</sub><sup>\*</sup>, чем опосредованно ограничивается образование молекул KrBr\*.

Возможными каналами образования молекул Br<sub>2</sub>\* являются реакции (4), (14), (16), (17) и (22), каналами гибели Br\* и Br<sub>2</sub><sup>\*</sup> – процессы тушения (18)–(20). Кроме того, при-

чиной низкой эффективности излучения Br<sub>2</sub>\* может быть перепоглощение излучения молекулярным бромом.

С увеличением давления суммарная мощность излучения KrBr-эксилампы растет (вначале за счет реакций (7), (8), (4), (14), (16), (17), далее – реакций (11), (21), (22)), достигает максимального значения, а затем начинает снижаться. Причиной снижения мощности излучения при высоких давлениях является увеличение безызлучательного распада эксимеров и эксиплексов, когда число столкновений между ними и нейтральными частицами увеличивается. Такое поведение типично для KrCl-, XeCl-, KrI- и KrBr-эксиламп (см., напр., [2, 8, 10]).

На рис.3 и 4 приведены зависимости светимостей эксиламп 1 и 2 в полосах молекул KrBr\* и Br<sub>2</sub>\* от общего

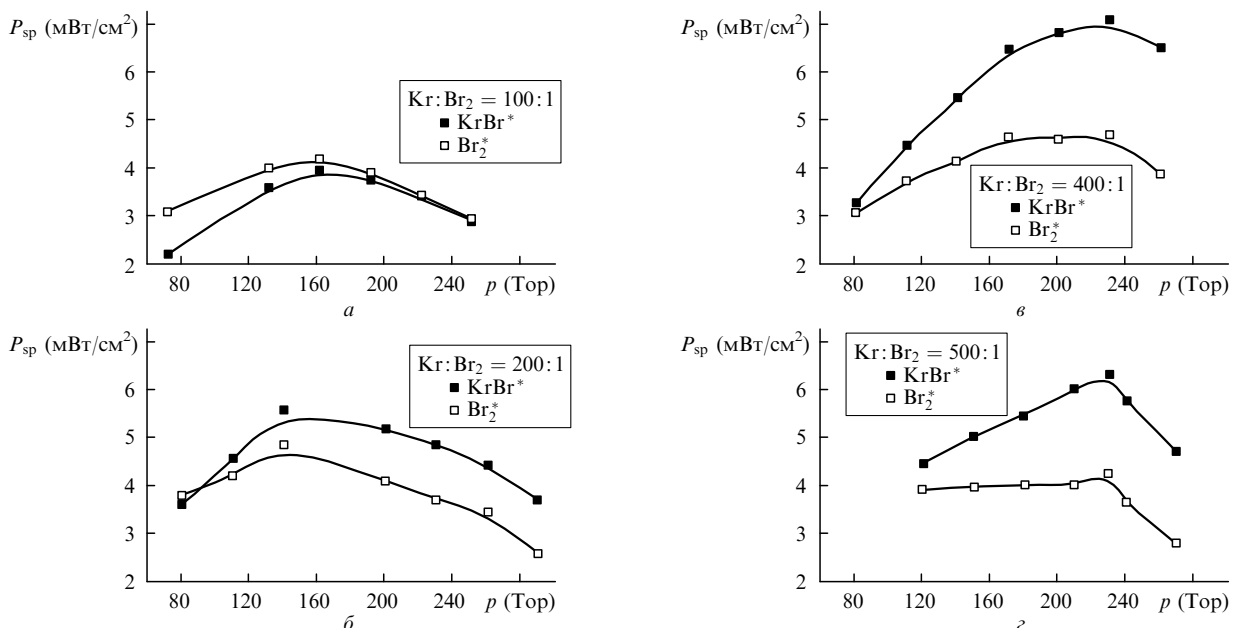


Рис.4. Зависимости светимости эксилампы 2 в полосах излучения молекул KrBr\* и Br<sub>2</sub>\* от давления рабочей смеси при различных отношениях Kr – Br<sub>2</sub>.

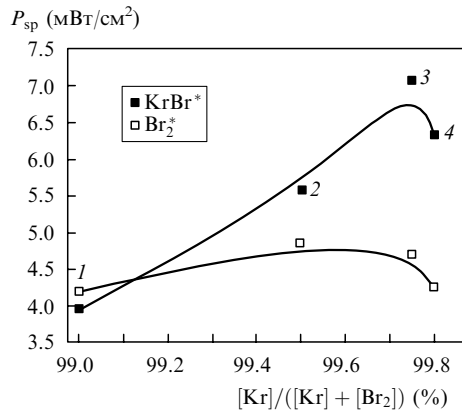


Рис.5. Зависимости светимости эксилампы 2 в полосах излучения молекул  $KrBr^*$  и  $Br_2^*$ , полученные при оптимальных общих давлениях смесей, от доли криптона в смеси  $Kr:Br_2 = 100:1$  (1),  $Kr:Br_2 = 200:1$  (2),  $Kr:Br_2 = 400:1$  (3) и  $Kr:Br_2 = 500:1$  (4).

давления смесей. Видно, что в смесях с большим содержанием брома ( $Kr:Br_2 = 100:1$ ) светимость в полосах молекул  $KrBr^*$  меньше светимости в полосах молекул  $Br_2^*$  либо сопоставима с ней (рис.3,а и 4,а). Это связано с тушением эксиплекса молекулярным бромом. Сравнение интенсивностей полос  $KrBr^*$  и  $Br_2^*$  показывает, что уменьшение концентрации брома в рабочей смеси снижает влияние процессов тушения (13), (18), (19), (20), а гарпунные реакции образования эксиплексных молекул и образования  $Br_2^*$  (7), (16) протекают более эффективно (рис.3,б-г и 4,б-г). В результате при увеличении доли Кг в смеси светимость полос молекул  $KrBr^*$  заметно увеличивается; светимость молекул  $Br_2^*$  тоже увеличивается, но не столь сильно (рис.2,а).

На рис.5 представлены светимости полос молекул  $KrBr^*$  и  $Br_2^*$ , полученные при оптимальных общих давлениях смесей, в зависимости от доли криптона в смеси. Видно, что существует оптимальное отношение  $[Kr]/[Br_2]$ , и снижение доли  $Br_2$  до 0.2 % (рис.5) ведет к уменьшению светимости в полосах как молекул  $KrBr^*$ , так и молекул  $Br_2^*$ .

Итак, рост средней мощности излучения эксилампы с ростом давления и доли Кг в смеси происходит преимущественно за счет роста интенсивности полос молекулы  $KrBr^*$ . Из рис.3 и 4 также видно, что светимость  $P_{sp}$  заметно зависит от величины газоразрядного промежутка  $d$ .

Ранее в опытах работы [8] для КгВг-эксилампы с разрядным промежутком 2 мм в смеси  $Kr:Br_2 = 30:1$  было замечено, что мощность излучения на переходе  $B \rightarrow X$  молекулы  $KrBr^*$  при изменении давления менялась слабо. Это укладывается в наше предположение о сильном тушении  $KrBr^*$  молекулярным бромом и объясняет, почему достигнутая в [8] светимость 0.6 мВт/см<sup>2</sup> ( $f = 20$  кГц) ниже, чем в наших экспериментах.

Из наших измерений следует, что для получения максимальной светимости КгВг-эксилампы необходимо выбирать величину разрядного промежутка  $d_{opt} \sim 8.5$  мм (эксилампа 2). Меньшие промежутки, если сопоставить наши данные с приведенными в [8], дают меньшую мощность. Сравнение эксиламп 1 и 2 возможно, поскольку частоты следования импульсов напряжения  $f$  у них были близки (см. табл.1). В оптимальных по излучаемой мощности условиях в эксилампах 1 и 2 для смесей  $Kr:Br_2 = 400:1$  и давлений 120 и 231 Торр достигнуты светимости

6.95 и 11.8 мВт/см<sup>2</sup> соответственно. Близкая к найденной нами величина  $d_{opt} = 7.5$  мм была получена в работе [15], где ХеВг-эксилампа барьерного разряда исследовалась при  $d = 2.5, 5.5, 7.5$  и 10.5 мм.

Ранее нами было замечено, что наиболее эффективному режиму работы эксилампы соответствует ситуация, когда в разрядном промежутке формируются микроразряды, представляющие собой два конуса, основания которых лежат на поверхностях диэлектриков (стенки кварцевых трубок), а вершины соединены [16]. Под эффективным режимом мы понимаем режим работы, соответствующий высокой средней мощности излучения при КПД, близких к максимальным. Если  $d > d_{opt}$ , то между вершинами конусов появляется нитевидный канал, светимость которого меньше светимости самих конусов, высота которых уменьшается. Фактически в нитевидной части разряд имеет контрагированную форму, а следовательно, малую мощность и низкую эффективность излучения. Поэтому в наших опытах с КгВг-эксилампами при увеличении  $d$  до 11 мм и прочих равных условиях мощность излучения падает – конусообразный микроразряд трансформируется в нитевидный с плоскими «подошвами». При  $d < d_{opt}$  мощность излучения тоже падает, т. к. микроразряды в виде двух конусов сформировать не удастся.

Лучшие результаты по энергетическим характеристикам эксиламп представлены в табл.2. Видно, что мощности излучения  $P$  эксиламп 1 и 2 различаются в 1.5 раза, хотя площадь излучающей поверхности эксилампы 1 больше, чем эксилампы 2, в 2.3 раза (табл.1). Это связано с тем, что отношение светимостей эксиламп  $P_{sp2}/P_{sp1} \sim 1.7$ . Поэтому можно предположить, что, масштабируя эксилампу 2 таким образом, чтобы площадь ее излучающей поверхности стала равной мощности эксилампы 1, можно будет достичь средней мощности  $\sim 11$  Вт. На рис.6 приведены зависимости средней мощности эксилампы 2 и ее эффективности от общего давления газовой смеси при  $Kr:Br_2 = 400:1$ .

Табл.2. Наибольшие мощности излучения эксиламп 1 и 2 и условия их получения.

Номер эксилампы	$P$ (Вт)	$Kr:Br_2$	$p$ (Торр)
1	6.5	400:1	120
2	4.8	400:1	231

4. В настоящей работе проведены экспериментальные исследования спектральных и энергетических характеристик многополосных КгВг-эксиламп барьерного разряда в интервале давлений от десятков торр до 0.4 атм. Используются коаксиальные конструкции КгВг-эксиламп

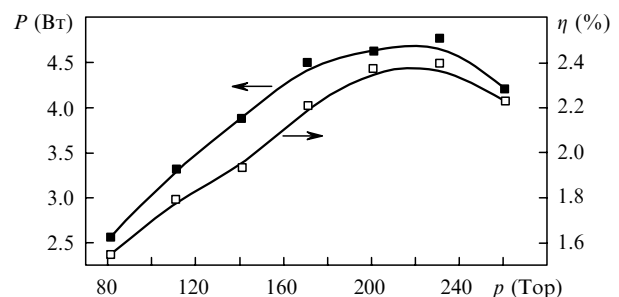


Рис.6. Средняя мощность излучения  $P$  и эффективность  $\eta$  эксилампы 2 для газовой смеси  $Kr:Br_2 = 400:1$ .

различных размеров. Показано, что с точки зрения излучаемой энергии близким к оптимальному является разрядный промежуток 8.5 мм. Изучены условия, в которых происходит перераспределение энергии в полосах молекул  $\text{Br}_2^*$  и  $\text{KrBr}^*$ . При увеличении доли Kr в смеси в целом светимость в полосах молекул  $\text{KrBr}^*$  заметно растет, а светимость в полосах молекул  $\text{Br}_2^*$  хотя и увеличивается, но не столь сильно. Увеличение концентрации  $\text{Br}_2$  приводит к безызлучательному распаду эксиплекса  $\text{KrBr}^*$  вследствие тушения молекулярным бромом. Поэтому снижается интенсивность излучения на переходах  $\text{KrBr}^*$  по сравнению с интенсивностью излучения  $\text{Br}_2^*$  и общая мощность излучения эксилампы.

Максимальные светимость эксилампы и эффективность излучения получены в смеси  $\text{Kr}:\text{Br}_2 = 400:1$  при общем давлении 231 Тор и величине разрядного промежутка 8 мм. Они составили 4.8 Вт и 2.4 % соответственно. Созданные на основе наших исследований эксилампы могут найти применение в технологиях очистки вод от микроорганизмов и органических загрязнителей.

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

1. Gellert B., Kogelschatz U. *Appl. Phys. B*, **52** (1), 14 (1991).
2. Ломаев М.И., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф. *Энциклопедия низкотемпературной плазмы*. Сер. Б, т. XI-4. Под ред. С.И.Яковленко (М.: Физматлит, 2005).
3. Sosnin E.A., Oppenlander T., Tarasenko V.F. *J. Photochem. Photobiol. C: Reviews*, **7**, 145 (2006).
4. Boyd I.W., Zhang J.-Y., Kogelschatz U. *Photo-Excited Processes, Diagnostics and Applications*. Ed. by A. Peled (Netherlands: Kluwer Acad. Publ., 2003).
5. Boichenko A.M., Skakun V.S., Tarasenko V.F., Fomin E.A., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **4** (3), 635 (1994).
6. Шуайбов А.К., Грабовая И.А. *Письма в ЖТФ*, **32** (23), 80 (2006).
7. Feng X., Zhu S., Hou H. *Water SA*, **32** (1), 43 (2006).
8. Feng X., Zhu S. *Phys. Scr.*, **74**, 322 (2006).
9. Соснин Э.А., Авдеев С.М., Кузнецова Е.А., Лаврентьева Л.В. *ПТЭ*, **5**, 114 (2005).
10. Boichenko A. M., Yakovlenko S. I. *Laser Phys.*, **13** (10), 1 (2003).
11. Boichenko A.M., Yakovlenko S.I. *Laser Phys.*, **13** (12), 1461 (2003).
12. Волкова Г.А., Зверева Г.Н. *Оптика и спектроскопия*, **96** (3), 419 (2004).
13. Авдеев С.М., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф. *Оптика и спектроскопия*, **103**, 554 (2007).
14. Zhong D., Setser D.W., Sobczynski R., Gadomski W. *J. Chem. Phys.*, **105** (12), 5020 (1996).
15. Falkenstein Z., J Coogan J. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **30**, 2704 (1997).
16. Sosnin E.A., Skakun V.S., Tarasenko V.F. *Proc. 8th Intern. Conf. on Gas Discharges & their Applications* (Greifswald, 1998, p. 240).