

**ПИТОМІ ВТРАТИ ПОТУЖНОСТІ ГАЗОВОГО РОЗРЯДУ
ТА ЕФЕКТИВНІСТЬ ЗБУДЖЕННЯ ЕКСИПЛЕКСНИХ МОЛЕКУЛ
У СУМІШІ Ar-Kr-Xe-Cl₂**

© Чигінь В., Горун П., 2009

V. Chyhin, P. Gorun

**SPECIFIC LOSSES OF GAS DISCHARGE POWER
AND EFFICIENCY OF EXCIPLEX MOLECULES EXCITATION
IN MIXTURE OF Ar-Kr-Xe-Cl₂**

© Chyhin V., Gorun P., 2009

Проведено чисельне моделювання розряду у чотирикомпонентній газовій суміші Ar-Kr-Xe-Cl₂, ексиплексні молекули якої є джерелом УФ-ВУФ випромінювання смуг 175 нм ArCl(B-X), 222 нм KrCl(B-X), 236 нм XeCl(D-X), і 308 нм XeCl(B-X). Для оптимізації роботи джерела і отримання приблизно однакової яскравості смуг випромінювання обчислені питомі втрати потужності розряду порівнюються з інтенсивністю свічення ексиплексно-галогенної лампи.

Specific losses of gas discharge power and efficiency of exciplex molecules excitation in mixture of Ar-Kr-Xe-Cl₂, by Chyhin Vasyi, Horun Pavlo. The numerical modelling of discharge in four-component gas mixture of Ar-Kr-Xe-Cl₂, exciplex molecules of which are the source of UF-VUF radiation bands of 175 nm of ArCl(B-X), 222 nm of KrCl(B-X), 236 nm of XeCl(D-X), and 308 nm of XeCl(B-X), is conducted. For optimization of the source and to receive an approximately equal brightness of bands of radiation the specific losses of discharge power are calculated and compared with the radiation of exciplex-halogen lamp.

Вступ

Відомо, що в розрядах у сумішах інертних газів і галогенів утворюються ексиплексні молекули типу ArCl, KrCl, XeCl, які є джерелом потужного випромінювання у діапазоні 400–10 нм – ультрафіолетових (УФ) і вакуумних ультрафіолетових (ВУФ) хвиль [1–3]. Такі джерела світла, на відміну від ламп із паром ртуті, є екологічно чистими і широко використовуються у мікроелектроніці, фотохімії, екології, біотехнологіях та медицині. УФ-випромінювання застосовують, зокрема, як антимікробний агент під час дезінфекції води та повітря, стерилізації пакувальних матеріалів для харчових продуктів тощо [4].

Досі досліджувалися і використовувалися переважно ексиплексно-галогенні імпульсні лампи із двокомпонентними газовими сумішами [1, 2, 5–7]. Вони випромінюють, як правило, одну із В-Х смуг молекул RCl (где R – Ar, Kr, Xe). Для калібрування імпульсних фотоприймачів, зондування плазми різними довжинами хвиль в УФ-діапазоні спектра та інших застосувань необхідно надати перевагу багатохвильовим ексиплексно-галогенним випромінювачам. Такий режим роботи ламп досягався, зокрема, під час їх наповнення різними галогеноносіями – SF₆ [8], CF₂Cl₂ тощо [5].

У цій роботі для отримання різних ексиплексних молекул з різними смугами випромінювання розрядну лампу вперше наповнювали трьома інертними газами (Ar, Kr і Xe) і одним галогеноносієм – хлором. Для оптимізації роботи такого багатохвильового джерела УФ-ВУФ-випромінювання та

отримання приблизно однакової яскравості смуг у спектральному діапазоні 175–308 нм провели числове моделювання параметрів газорозрядної плазми. Оскільки розподіл інтенсивності у спектрі випромінювання плазми комплексного складу (три-, чотирьохкомпонентні газові суміші) істотно визначається передачею енергії від метастабільних атомів аргону і криптону атомам ксенону (криптону), які знаходяться в основному стані [1, 2], то для обчислення параметрів плазми враховано ступеневі процеси збудження та іонізації за участю метастабільних атомів інертних газів. Обчислені втрати потужності на окремі процеси збудження якісно порівняно з інтенсивностями свічення окремих ліній ексиплексних молекул ArCl, KrCl і XeCl.

Результати спектральних вимірювань

Поперечний об'ємний розряд (ПОР) запалювався в об'ємі $18 \times 2,2 \times 1,0 \text{ см}^3$ за відстані між електродами 2,2 см. Схема випромінювача, метод дослідження та умови експерименту наведені у

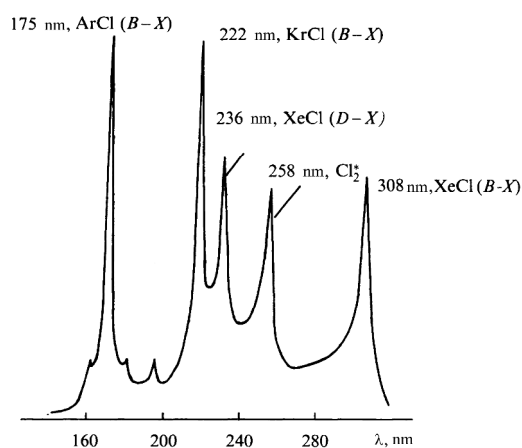


Рис. 1. Спектр випромінювання плазми поперечного об'ємного розряду у суміші Ar-Kr-Xe-Cl₂ за наведеної напруженості поля $E/p=50 \text{ В/(см.жтор)}$

[7]. Спектр випромінювання плазми ПОР на основі суміші Ar-Kr-Xe-Cl₂ у відносних одиницях показано на рис. 1. Він є апаратним, оскільки не враховано чутливості системи “фотопомножувач+монохроматор”.

Основне випромінювання сконцентровано у межах переходів ArCl(B-X), KrCl(B-X), XeCl(B-X,D-X), Cl₂(D'-A'). Поперечний розряд стійко запалюється за напруг, що перевищують 4 кВ. За збільшення прикладеної напруги у діапазоні 4–12 кВ яскравість усіх молекулярних смуг збільшується у 2–5 разів. Для отримання максимальної яскравості сумарного УФ-випромінювання тиск аргону повинен знаходитися у діапазоні 12–15 кПа. Аргон у суміші відіграє роль ексиплексоутворювального газу для молекул ArCl, а для інших молекул він є буферним газом. Отримання сумірних за яскравістю смуг є можливим за

парціальних тисків ксенону і криптону 0.2–0.5 кПа. Оптимальний парціальний тиск хлору при цьому становить 0.2–0.4 кПа.

Числове моделювання

Одним із шляхів отримання інформації про параметри плазми є розв'язання кінетичного рівняння Больцмана для функції розподілу електронів за енергіями (ФРЕЕ). На основі знайденої ФРЕЕ визначають електронні кінетичні коефіцієнти, транспортні характеристики електронів і питомі втрати потужності розряду на основні електронні процеси [9]. У [9, 10] обговорюються результати моделювання ексимерних лазерів у трикомпонентній суміші He-Xe-HCl, але автори не описують методіку числового розв'язання рівняння Больцмана. Доступна з Інтернету версія програми BOLSIG+ для обчислення ФРЕЕ та ЕКК [11, 12] не містить даних про ступеневі процеси збудження та іонізації. Тому, опрацювавши загальні числові методи розв'язування рівнянь, подібних до кінетичного рівняння Больцмана, була складена власна програма для моделювання параметрів газорозрядної плазми. При цьому використано стаціонарне рівняння Больцмана [13]:

$$-\frac{1}{3} \left(\frac{E}{N} \right)^2 \frac{\partial}{\partial e} \left(\frac{e}{\sum_i \frac{N_i}{N} Q_{Ti}} \frac{\partial f_0}{\partial e} \right) - \frac{\partial}{\partial e} \left[2 \sum_i \frac{N_i}{N} \frac{m}{M_i} Q_{Ti} e^2 \left(f_0 + T \frac{\partial f_0}{\partial e} \right) \right] = S_{eN}, \quad (1)$$

де f_0 – функція розподілу електронів за енергіями; e, m – енергія і маса електрона; E – напруженість електричного поля у розглядуваній точці розряду; T – температура газу; $N_i, M_i, Q_{\dot{\alpha}}$ – концентрація атомів і молекул i -компоненти газу, їх маси та ефективні перерізи пружного розсіювання електронів на них; N – повна концентрація частинок робочої суміші за цього тиску p газу.

Права частина рівняння S_{eN} є інтегралом зіткнення, який описує непружні взаємодії електронів з атомами і молекулами:

$$S_{eN} = \sum_i \frac{N_i}{N} [(e + e_i)Q_i(e + e_i)f_0(e + e_i) - eQ_i(e)f_0(e)] - \sum_i \frac{N_{i\dot{\alpha}}}{N} eQ_{i\dot{\alpha}}(e)f_0(e), \quad (2)$$

де Q_i і e_i є відповідно перерізами та енергетичними порогами збудження та іонізації атомів і молекул i -го газу; $Q_{\text{при}}$ – переріз прилипання електрона до молекули i -го електровід'ємного газу із концентрацією $N_{\text{при}}$.

Значення функцій Q_{Ti} , Q_i і $Q_{\text{при}}$ переважно відомі з літератури – їх отримують експериментальним шляхом і задають таблично. Припускаючи, що ці функції є лінійними між заданими значеннями енергії електронів e , отримаємо набір кусково лінійних функцій. Для забезпечення їх диференційовності, необхідно, щоб залежності Q_{Ti} , Q_i і $Q_{\text{при}}$ від e мали хоча б перший порядок гладкості. Для цього задані табличні функції Q_{Ti} , Q_i і $Q_{\text{при}}$ замінили кубічними сплайнами [14, 15].

Методом заміни похідних різницевиими схемами з рівняння (1) отримали систему лінійних алгебраїчних рівнянь з невідомими. Привівши цю систему до триточкового шаблону, розв'язували її методом прогонки [15]. Через наявність у правій частині рівняння (1) аргументів у відхиленнях наближений розв'язок шукали методом послідовних наближень в такий спосіб, що на кожному кроці ітерації використовували знайдене на попередньому кроці значення функції $f_0(e)$ з врахуванням відхилення [16]. Ітераційний процес продовжували доти, доки відносна похибка не почала становити 0,1 %.

ФРЕЕ, ЕКК та інші параметри плазми обчислювали за допомогою програми, складеної відповідно до описаної вище методики. Для температури, рухливості та швидкості дрейфу електронів, а також втрат потужності розряду на різні кінетичні процеси використали співвідношення, наведені в огляді [17]. Крім пружного розсіювання електронів та їх дисоціативного прилипання до молекул хлору, враховано процеси збудження електронних станів атомів інертних газів і молекул хлору ($V^3\Pi_i$, $C^1\Pi_i$, $V^3\Pi_i + C^1\Pi_i$), коливного збудження Cl_2 ($v=1$), а також їх іонізації. Ступеневі процеси збудження та іонізації атомів інертних газів включили з використанням даних [18–20].

Результати моделювання

Комп'ютерне моделювання функції розподілу електронів за енергіями, електронних кінетичних коефіцієнтів і питомих втрат потужності розряду на різні процеси в плазмі провели за задання параметрів поперечного об'ємного розряду однакових з експериментальними. Так, парціальні тиски компонент газів у суміші Ar-Kr-Xe-Cl₂ прийняли такими, що дорівнюють 14:0,6:0,6:0,24 кПа, що відповідає оптимальним параметрам досліджуваної УФ-ВУФ-лампи.

Для порівняння провели розрахунки параметрів розряду з використанням програми BOLSIG+ [11] без включення ступеневих процесів іонізації та збудження атомів інертних газів. Обчислені функції розподілу електронів за енергіями для приведеної напруженості електричного поля в

розряді $E/p = 1$ В/(см·тор) показані на рис. 2. Як бачимо, ФРЕЕ, отримані за нашою методикою, добре узгоджуються з отриманими за допомогою програми BOLSIG+ в широкому діапазоні енергії електронів. Максимальна розбіжність цих функцій спостерігається у принульовій області енергії і становить порядку 4 % за $\varepsilon = 0,2$ eV.

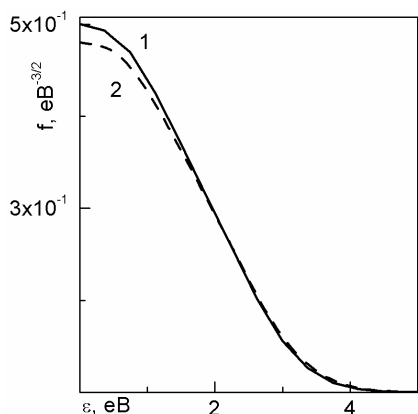


Рис. 2. ФРЕЕ, обчислені для розряду у суміші Ar-Kr-Xe-Cl₂ за $E/p = 1$ В/(см·тор):
1 – наша програма;
2 – з використанням BOLSIG+ [11]

Константи швидкості іонізації K_i атомів аргону ударами електронів, обчислені як за нашою методикою, так і з використанням програми BOLSIG+ [11] без включення ступеневих процесів іонізації та збудження атомів, зображені на рис. 3. Отримані за допомогою нашої програми залежності K_i від приведеної напруженості поля в широкій області E/p незначно відрізняються від відповідних залежностей, отриманих за допомогою BOLSIG+, що підтверджує коректність нашої методики розрахунків.

При додаванні до розглянутих основних процесів збудження, іонізації і прилипання електронів процесів ступеневої іонізації і ступеневого збудження атомів важких інертних газів електронним ударом з використанням даних [18–20] за допомогою нашої програми обчислили питомі втрати потужності η на пружні та непружні електронні процеси. Отримані відповідні залежності η (відносні одиниці) від приведеної напруженості електричного поля E/p в розряді для атомів аргону, криптону і ксенону зображено на рис. 4 і 5.

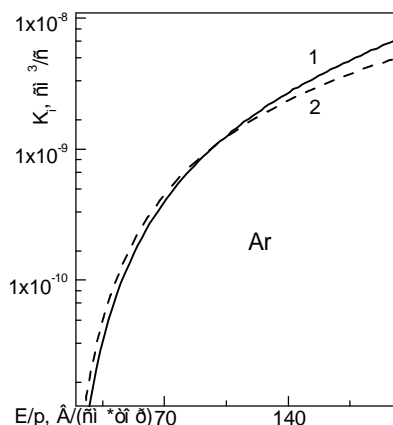


Рис. 3. Обчислені залежності констант швидкості іонізації атомів аргону в розряді у суміші Ar-Kr-Xe-Cl₂ від приведеної напруженості електричного поля E/p :
1 – наша програма; 2 – з використанням BOLSIG+ [11]

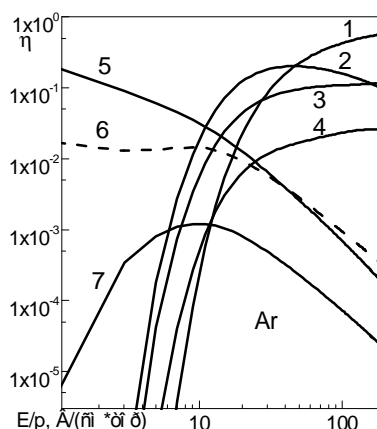


Рис. 4. Питомі втрати потужності розряду на іонізацію і збудження атомів аргону. Цифрами позначено відповідні процеси та їх порогові енергії:
1 – іонізація із основного стану; 2 – збудження 13 заборонених рівнів; 3 – збудження резонансного $4s[3/2]_1^0$ рівня; 4 – збудження заборонених $4s[3/2]_2^0$ і $4s[3/2]_0^0$ рівнів; 5 – ступеневе збудження за схемою $3p^5 4s-3p^5 4p$; 6 – ступенева іонізація метастабільного рівня $4s[3/2]_1^0$; 7 – іонізація збудженого $4s$ рівня

Аналіз констант швидкості непружних процесів у газорозрядній плазмі у суміші Ar-Kr-Xe-Cl₂ = 14–0,6–0,6–0,24 кПа провели за фіксованого значення параметра $E/p = 50$ В/(см·тор). Виявлено, що із процесів непружної взаємодії електронів з атомами Ar, Kr і Xe найбільшими є

константи швидкості ступеневого збудження та іонізації. Із процесів прямого електронного збудження атомів інертних газів найефективнішим є збудження резонансних станів.

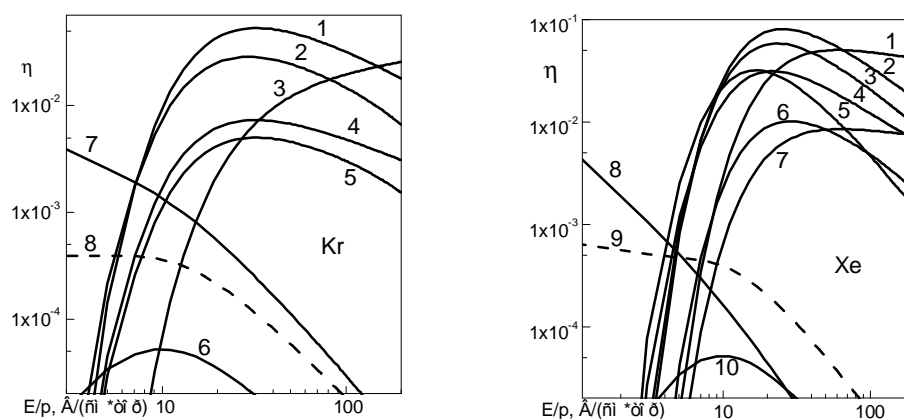


Рис. 5. Питомі втрати потужності розряду на іонізацію і збудження атомів криптону (зліва) і ксенону (справа). Цифрами позначено відповідні процеси та їх порогові енергії: для криптону: 1 – збудження рівня $5p [1/2]^1$; 2 – збудження рівня $5s[3/2]^0_2$; 3 – іонізація з основного рівня; 4 – збудження рівня $5s[3/2]^0_1$; 5 – збудження рівня $5s'[1/2]^0_0$; 6 – ступенева іонізація; 7 – ступеневе збудження резонансного стану; 8 – пружне розсіювання; для ксенону: 1 – іонізація з основного стану; 2 – сумарне збудження $(2s+3d)$ -станів; 3 – сумарне збудження $(6s'[1/2]^0_0+6s'[1/2]^0_0+2p)$ рівнів; 4 – збудження дозволеного $6s[3/2]^0_1$ стану; 5 – збудження резонансного $6s[3/2]^0_2$ стану; 6 – збудження $2p'$ -рівнів; 7 – збудження $Xe^*(3 < n < 9)$; 8 – ступеневе збудження резонансного стану; 9 – пружне розсіювання; 10 – ступенева іонізація

За невеликих E/p (1–5 В/(см·тор)) основний внесок у втрату питомої потужності розряду робить процес збудження метастабільного рівня атома аргону (рис. 4). Із збільшенням E/p до 100 В/(см·тор) значення η для цього процесу зменшується приблизно на три порядки. Під час росту E/p у діапазоні 4–6 В/(см·тор) досягаються пороги збудження високих дозволених і заборонених станів Аг, втрати потужності розряду, які досягають у максимумі приблизно 10–20 % за $E/p = 200$ В/(см·тор). Для ступеневої іонізації атома аргону максимум спостерігається за $E/p = 7$ –10 В/(см·тор), хоча значення питомої втрати на цей процес є незначним (<0,1 %).

Для важчих інертних газів Kr і Xe за $E/p = 1$ –3 В/(см·тор) переважають втрати потужності розряду на процеси ступеневого збудження. За вищих значень E/p (порядку 10 В/(см·тор)) для ксенону основні втрати потужності розряду пов'язані із прямим збудженням атома ($\eta = 90$ –95 %). Як бачимо з рис. 5, розподіли питомих втрат потужності розряду для атомів Kr і Xe є близькими між собою, що добре співвідноситься із приблизно однаковими інтенсивностями свічення окремих смуг у межах переходів $KrCl(B-X)$ і $XeCl(B-X, D-X)$.

Висновки

Показано, що газовий розряд у суміші $Ar-Kr-Xe-Cl_2 = 14-0,6-0,6-0,24$ кПа за приведеної напруженості поля $E/p = 50$ В/(см·тор) випромінює у спектральному діапазоні 160–310 нм систему смуг ексиплексних молекул типу $ArCl$, $KrCl$, $XeCl$ приблизно однакової яскравості. Опрацьовані числовий метод і програма для розв'язування рівняння Больцмана можна використовувати для знаходження функції розподілу електронів за енергіями, електронних кінетичних коефіцієнтів та інших параметрів плазми розряду у багатокомпонентній газовій суміші. Отримані на основі числового моделювання параметри плазми якісно пояснюють розподіл випромінювання у спектрі

газового розряду у суміші Ar-Kr-Xe-Cl_2 і можуть бути використані під час розрахунків вихідних характеристик багатохвильової ексиплексно-галогенної лампи.

1. Шуайбов О.К., Шевера І.В., Шимон Л.Л., Соснін Е.А. Сучасні джерела ультрафіолетового випромінювання: розробка та застосування. – Ужгород–Томськ, 2006. – 223 с.
2. Шуайбов О.К. Оптична діагностика активних середовищ електророзрядних джерел випромінювання на атомах інертних газів та їх галогенідах: Дис... докт.фіз.-мат.наук. – К., 2003. – 491 с.
3. Пат. UA 47626 А. Электроразрядная эксимерная лампа низкого давления / А.К. Шуайбов, Л.Л. Шимон, А.И. Дащенко, И.В. Шевера. – Опубл. 15.07.2002. – Б.І. № 7.
4. Soloshenko I.O., Bazhelov V.Yu., Khotnych V.O., Tsiolko V.V., Potarchenko N.G., Goncharuk V.V., *Ukr.J.Phys.* – 2006. – Т. 51. – С. 11–15.
5. Шуайбов А.К., Шимон Л.Л., Дащенко А.И., Шевера И.В. // *ТВТ.* – 2000. – Т. 38. – № 3. – С. 386–389.
6. Ерофеев М.И., Ломаев М.И., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф. и др. // *ЖТФ.* – 2001. – Т. 71, вып. 10. – С. 137–140.
7. Шуайбов А.К., Шимон Л.Л., Шевера И.В., Малинина А.А., Прик Ж. *Спектроскопия.* – 2008. – Т. 75, № 1. – С. 121–124.
8. Шуайбов А.К. // *ЖТФ.* – 1998. – Т. 68, № 12. – С. 64–67.
9. Калюжна Г.Г. Особенности плазмовой кинетики в жеврюючому розряді на багатокомпонентних газових сумішах: Дис... канд. фіз.-мат. наук. – К., 2006. – 141 с.
10. Багинский В.М., Владимиров В.В., Головинский П.М., Щедрин А.И. Оптимизация и устойчивость разряда в эксимерных лазерах на смеси He/Xe/HCl . – К., 1988. – 40 с.
11. <http://www.siglo-kineta.com>.
12. Hagelaar G.J. and Pitchford L.C. *Plasma Sources and Sci. Technol.* – 2005. – Vol. 14. – P. 722–733.
13. Райзер Ю.П. Физика газового разряда. – М.: Наука, 1987. – 591 с.
14. Самойленко А.М., Ронто Н.И. Численно-аналитические методы в теории краевых задач для ОДУ. – К.: Наук. думка, 1985. – 224 с.
15. Самарский А.А., Николаев Е.С. Методы решения сеточных уравнений. – М.: Наука, 1978. – 592 с.
16. Мышкис А.Д. Линейные дифференциальные уравнения с запаздывающим аргументом. – М.: Наука, 1972. – 352 с.
17. Словецкий Д.И., Дерюгин А.А. // *Химия плазмы: Сб. ст. / Под ред Б.М. Смирнова.* – М.: Энергоатомиздат, 1987. – Вып. 13. – С. 240–277.
18. Нутан Н.А. // *Phys.Rev. A.* – 1978. – Vol. 18, № 2. – P. 441–445.
19. Нутан Н.А. // *Phys.Rev. A.* – 1979. – Vol. 20, № 3. – P. 855–859.
20. Шибкова Л.В., Шибков В.М. Разряд в смесях инертных газов. – М.: Физматлит, 2006. – 200 с.