

ФГУП НПК «Государственный оптический институт им. С.И.Вавилова»

На правах рукописи

Зверева Галина Николаевна

**ИССЛЕДОВАНИЕ И ОПТИМИЗАЦИЯ ИСТОЧНИКОВ ВАКУУМНОГО  
УЛЬТРАФИОЛЕТОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ОСНОВЕ ПЛАЗМЫ  
ИНЕРТНЫХ ГАЗОВ**

01.04.05 - оптика

Автореферат диссертации на соискание ученой степени  
доктора физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2010

Работа выполнена в Федеральном государственном унитарном предприятии «Научно-производственная корпорация «Государственный оптический институт им. С.И.Вавилова»

Научный консультант:

доктор физико-математических наук  
Герасимов Геннадий Николаевич

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, профессор  
Ермолаев Валерий Леонидович

доктор физико-математических наук  
Синянский Анатолий Александрович

доктор физико-математических наук, профессор  
Тимофеев Николай Александрович

Ведущая организация : Институт сильноточной электроники СО РАН (г.Томск)

Защита состоится «\_\_\_»\_\_\_\_\_ 2010 года в «\_\_\_» часов на заседании диссертационного совета Д407.001.01 при ФГУП НПК ГОИ им. С.И.Вавилова по адресу С-Петербург, Биржевая линия-д.12

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФГУП НПК ГОИ им. С.И.Вавилова

Автореферат разослан «\_\_\_»\_\_\_\_\_ 2010 года

Учёный секретарь диссертационного совета,  
к.ф.-м.н.



Журенков А.Г.

# I. ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

## Актуальность работы

Диссертация посвящена исследованию источников света на основе двухатомных эксимерных молекул тяжёлых инертных газов (Ar, Kr, Xe). Данные молекулы образуют устойчивые связи только в возбужденных состояниях, радиационный распад которых приводит к излучению полос лежащих в вакуумном ультрафиолетовом (ВУФ) диапазоне длин волн. Положение полосы зависит от сорта молекулы: максимумам полос излучения гомоядерных эксимерных молекул (димеров)  $Ar_2^*$ ,  $Kr_2^*$ ,  $Xe_2^*$  соответствуют длины волн 126 нм, 146 нм и 172 нм соответственно. В промежутках между полосами димеров лежат полосы излучения гетероядерных эксиплексных молекул  $ArKr^*$ ,  $KrXe^*$ ,  $ArXe^*$ , образующихся при возбуждении смесей инертных газов. Таким образом, область от 120 до 180 нм полностью перекрывается спектрами эксимеров инертных газов. Данная область лежит на границе коротковолнового спектрального диапазона, допускающего использование оконных технологий вывода излучения. Излучательный КПД источников света на основе димеров инертных газов может достигать 60% [1]. Энергия кванта в 1,5-2 раза превышает энергию кванта излучения ртутных ламп, что позволяет инициировать фотопроцессы с более высокими энергетическими порогом. Излучатели, использующие в качестве активных сред инертные газы, экологически чистые и не требуют утилизации после окончания срока использования.

Эксимерные молекулы эффективно образуются в низкотемпературной плазме при давлениях инертных газов более 100 торр. Для получения плазмы и возбуждения свечения в ней эксимеров используются различные способы: применяют безэлектродные разряды барьерного типа [2], тлеющий разряд [1\*], микроволновый разряд [3], возбуждение пучком электронов [4].

Традиционно в качестве источников УФ-ВУФ излучения используется узкий круг ламп, в основном это ртутные лампы низкого давления (185 нм, 254 нм) и ксеноновые импульсные лампы, обладающие широкополосным спектром (190-600 нм). Недостатками ртутных ламп являются: наличие риска загрязнения окружающей среды парами ртути в процессах производства и эксплуатации, необходимость демеркуризации использованных ламп, узкополосный спектр излучения. Основным недостатком ксеноновых импульсных ламп – короткий срок службы, обусловленный распылением электродов и загрязнением рабочего газа.

Указанных недостатков лишены источники света на основе эксимеров инертных газов. Источники данного типа, использующие для возбуждения излучения барьерные разряды, первыми в России были предложены в ГОИ им С.И.Вавилова [2]. В настоящее время в мире ведутся работы по усовершенствованию данных источников и разработке на их основе новых

технологий. Выпуск эксимерных ВУФ ламп начат ведущими мировыми производителями [5]. ВУФ излучение нашло применение в технологиях сухой очистки поверхностей от органических загрязнений [5], в экологии для мониторинга и разрушения загрязняющих веществ (фотоионизация проб в масс-спектрометрах [6]). В стадии разработки находятся технологии, использующие ВУФ излучение для разложения органических соединений: осушки и модификации природного газа [7], фотолиза растворов метанола [8]. Эксперименты указывают на перспективность применения ВУФ ламп в материаловедении: для нанесения кремниевых пленок [9] и напыления материалов с высокими диэлектрическими постоянными [10].

Исследования, связанные с источниками ВУФ излучения на основе плазмы инертных газов, можно отнести к трём направлениям:

- экспериментальные работы, в которых проводится изучение как фундаментальных вопросов, связанных с развитием разряда [2\*,3,11-13], так и прикладных проблем, связанных с оптимизацией источников спонтанного излучения [1,14-17], разработкой источников когерентного излучения [26-28];
- теоретические работы, в которых представлены в основном расчетные исследования [25,32];
- исследования, посвящённые разработке технологий основанных на использовании ВУФ излучения [5-8,10,29,33].

В диссертации представлены результаты, относящиеся к последним двум направлениям: численным расчётам параметров плазмы эксимерных источников света ВУФ диапазона с целью оптимизации их излучательных характеристик и исследованию областей их возможного применения.

### **Цель работы**

Целью диссертации было нахождение физических параметров, определяющих излучательные характеристики в ВУФ области спектра источников на основе плазмы тяжёлых инертных газов, а также разработка основ применения ВУФ излучения для воздействия на органические среды.

Работа включала:

- нахождение физических параметров, определяющих интенсивность, эффективность и ВУФ спектр источников спонтанного излучения на основе низкотемпературной (газоразрядной и пучковой) плазмы инертных газов;
- нахождение физических параметров, обеспечивающих условия достижения порога лазерной генерации на переходах димеров инертных газов в газоразрядной плазме;

- нахождение излучательных характеристик плазмы на основе смесей чистых инертных газов и инертных газов с галогенами;
- создания физических основ применения ВУФ излучения эксимеров для воздействия на ароматические органические соединения (диоксиноподобные вещества и биологические молекулы).

### **Методы исследований**

Исследования проводились расчетным путем. Достоверность полученных результатов проверялось сверкой с имеющимися экспериментальными данными. Для нахождения параметров плазмы использовалась гибридная модель, в которой атомные и молекулярные компоненты описывались в гидродинамическом приближении, а для описания электронной компоненты учитывалось распределение электронов по энергиям. Рассматривались однородные, одномерные и двумерные модели, включающие системы уравнений, описывающих электрическое поле, плазмохимические процессы и процессы переноса частиц, распределение электронов по энергиям, газовую температуру. В расчетах использовались как стандартные численные методы, так и специальные: метод корректирующих потоков [21] и метод контрольных объёмов [22] при решении уравнения непрерывности, жесткие методы решения систем дифференциальных уравнений при решении систем уравнений кинетики плазмы [23]. Программы составлялись на языке FORTRAN.

### **Положения, выносимые на защиту**

На защиту выносятся следующие положения:

1) Результаты исследования барьерных разрядов в тяжёлых инертных газах (Ar, Kr, Xe) средних давлений (сотни торр), которые показывают, что увеличение скорости роста внешнего напряжения по отношению к внутреннему напряжению на плазме ведёт к увеличению интенсивности излучения димеров, уменьшению времени их излучения, снижению пространственной однородности плазмы.

2) Результаты исследования излучательных характеристик плазмы смеси Kr-Xe ( $P > 100$  торр) в ВУФ диапазоне спектра при различных относительных концентрациях компонент, показывающие, что при концентрации Xe более 10% в спектре преобладают полосы димеров Xe, а рост концентрации электронов ведёт к падению эффективности излучения.

3) Результаты исследования излучательных характеристик плазмы смеси Kr-I<sub>2</sub> в ВУФ диапазоне спектра, согласно которыми наблюдается рост интенсивности и эффективности излучения атомов йода (переход  $5p^46s-5p^5$ )  $\lambda \sim 160-190$  нм при уменьшении давления обоих компонент, эффективность достигает значений в 20%.

4) Результаты расчётов излучательных характеристик контрагированного капиллярного разряда в ксеноне ( $P=100-400$  торр), которые показали, что криогенное охлаждение приводит к росту интенсивности излучения димеров, а эффективность излучения достигает значений в 0.4%.

5) Результаты расчётов излучательных характеристик плазмы криптона ( $P=0.5$  атм), возбуждаемой пучком электронов ( $E_b \sim 10$  кэВ) с дополнительным подогревом СВЧ полем ( $W=30-1200$  мВт/см<sup>3</sup>), согласно которым СВЧ подогрев приводит к перераспределению интенсивности ВУФ излучения в полосах димеров и к росту интенсивности излучения в видимом и ИК диапазоне.

6) Результаты расчётов параметров импульсного микросекундного газового разряда в криптоне ( $P \sim 10$  атм), согласно которым достижение концентраций димеров, достаточных для начала лазерной генерации, зависит от уровня предыонизации и формы импульса напряжения.

7) Результаты расчётов концентраций продуктов ВУФ разложения воды в жидкой и газообразной фазах, которые указывают на перспективность использования данного метода в окислительных технологиях для формирования высокореактивных радикалов.

### **Достоверность защищаемых положений**

Достоверность защищаемых расчетных результатов на каждом этапе обусловлена совпадением (качественным и количественным) с результатами физических экспериментов. Расчёты барьерных разрядов, плазмы, возбуждаемой пучком электронов, контрагированного тлеющего разряда и объемных разрядов, используемых для поиска генерации, проводились параллельно экспериментальным исследованиям [1\*, 2\*, 25\*, 28\*]. Результаты расчётов воздействия ВУФ излучения на воду и органические среды контролировались на основе имеющихся в литературе данных [29, 34].

### **Новизна полученных результатов**

1) При исследованиях барьерных разрядов был проведён сравнительный анализ излучательных характеристик плазмы в последовательном ряде инертных газов: Ar, Kr, Xe и получены данные не только для разряда в Xe, но и для менее исследованных источников света на димерах аргона и криптона.

2) Впервые были проведены расчеты импульсных разрядов в смеси Kr-Xe в широком диапазоне относительных концентраций, которые позволили объяснить условия формирования ВУФ спектра и поведение излучательных КПД смесей.

3) Получены результаты расчётов плазмы смеси Kr-I<sub>2</sub> и её излучательных характеристик в районе  $\lambda=160-190$  нм, которые также впервые были представлены автором.

4) Расчет параметров контрагированного столба тлеющего разряда в инертных газах с криогенным охлаждением и нахождение радиальных распределений эксимеров в нем никем ранее не представлялись.

5) Проведены расчеты параметров плазмы инертных газов, возбуждаемой пучком электронов с дополнительным подогревом СВЧ полем, получены данные о влиянии СВЧ поля на распределение интенсивности в ВУФ спектре.

6) Расчеты параметров когерентных источников света на основе газоразрядной плазмы инертных газов объяснили поведение концентраций активных молекул в условиях полученной экспериментально генерации, а также позволили оценить возможность получения генерации в новом виде объемного разряда: в объемном разряде, инициируемом пучком электронных лавин.

7) Рассчитаны концентрации продуктов ВУФ фотолиза молекул воды в газообразной и жидкой фазах, получены численные данные по деструкции водных растворов хлорсодержащих ароматических соединений и биологических молекул (ДНК) под действием ВУФ-излучения.

### **Научная ценность**

1) Получены сравнительные характеристики барьерных разрядов в ряду инертных газов Ar, Kr и Xe, что позволяет понять влияние физических параметров рабочей среды на протекание разряда и формирование эксимеров.

2) Составлены кинетические схемы основных процессов, происходящих в плазме инертных газов с добавками более тяжелых газов и галогенов, а также процессов ведущих к образованию эксимерных и эксиплексных молекул.

3) Численно определены значения концентраций основных компонент и радиальные распределения газовой температуры, влияние радиальной неоднородности компонент на формирование оптических характеристик контрагированного положительного столба тлеющего разряда с криогенным охлаждением.

4) Численно определены характеристики плазмы инертных газов, возбуждаемой пучком электронов с дополнительным подогревом СВЧ полем: получена функция распределения электронов по энергиям, изучено влияние на её формирование СВЧ поля; рассчитаны значения плотностей компонент плазмы.

5) Численно найдены условия, обеспечивающие достижение порога генерации на димерах инертных газов в импульсных разрядах с УФ предыонизацией и в условиях объемного разряда, инициируемого пучком электронных лавин.

6) Рассчитаны концентрации продуктов ВУФ разложения воды в жидкой и газообразной фазах, исследованы условия образования высокореагентного радикала  $\bullet\text{OH}$ ; показана возможность воздействия ВУФ излучения и продуктов ВУФ

разложения воды на хлорсодержащие ароматические соединения и молекулы ДНК в клетке.

### **Практическая значимость**

1) Результаты исследований, проведённые в Главах 2-5, позволяют совершенствовать источники некогерентного излучения ВУФ диапазона на основе инертных газов, возбуждаемых барьерным разрядом, тлеющим разрядом и пучком электронов;

2) Расчетные исследования усилительных свойств плазмы объёмных разрядов в инертных газах вносят вклад в развитие импульсных когерентных источников ВУФ диапазона;

3) Результаты диссертации по исследованию воздействия ВУФ излучения на водные и органические среды способствуют внедрению источников света ВУФ диапазона, в том числе исследуемые в Главах 2-6 диссертации, в экологические, биологические и окислительные технологии.

### **Личный вклад автора**

Все результаты численных расчётов представленные в Главах 2-7 были получены автором лично. Автор самостоятельно формулировал задачи исследований, выбирал соответствующие численные методы, составлял и отлаживал программы, проводил расчеты. При проведении экспериментальных исследований барьерных разрядов (Глава 2) , автор осуществлял общее руководство работой и интерпретацию результатов, экспериментальные измерения проводились Г.А.Волковой (ГОИ им. С.И.Вавилова). Экспериментальные спектры смесей инертных газов ( Глава 3) также регистрировались Г.А.Волковой. Спектры излучения эксимеров в контрагированном капиллярном разряде инертных газов (Глава 4) были получены Г.Н.Герасимовым и Б.Е. Крыловым (ГОИ им. С.И.Вавилова). Экспериментальные спектры излучения эксимеров в пучковой плазме с дополнительным подогревом СВЧ полем , представленные в Главе 5, были получены А.Ульрихом (Технический университет г.Мюнхена). Экспериментальные значения излучательных характеристик димеров в объемном разряде, инициируемом пучком электронных лавин были получены М.И. Ломаевым, Д.В. Рыбкой, В.Ф. Тарасенко (ИСЭ СО РАН).

### **Апробация работы**

Результаты диссертации обсуждались на следующих конференциях и симпозиумах:

На 28-ой Международной конференции Европейской группы по атомной спектроскопии (EGAS), Грац, Австрия, 1996; на XX-ой Международной конференции по электрон-атомным столкновениям (ICPEAC), Вена, 1997; на 8-ом Международном симпозиуме по науке и технологии источников света (LS-8) ,



Грайвсвалд, Германия, 1998; на 4-ой Международной конференции по диссоциативной рекомбинации, Стокгольм, Швеция, 1999; на VII-ом Международном симпозиуме по химии низкотемпературной плазмы высоких давлений (NAKONE VII), Грайвсвалд, Германия, 2000; на Международном семинаре по электронным и атомным столкновениям, Москва, Клязьма, 2001; на XXV Международной конференции по явлениям в ионизованных газах (XXV ICPIG), Нагойя, Япония, 2001; на 9-ом Международном симпозиуме по науке и технологии источников света (LS-9), США, Итака, 2001; на 10-ом Международном симпозиуме по науке и технологии источников света LS-10, Тулуза, Франция, 2004; на V-IX Международных конференциях «Импульсные лазеры на переходах атомов и молекул» (Томск, Россия, 1999, 2001, 2003, 2005, 2007, 2009 годы); на X Международном симпозиуме по химии низкотемпературной плазмы высоких давлений (NAKONE X), Сага, Япония, 2006; на 15-ой Международной конференции по физике вакуумного ультрафиолетового излучения (XV VUV), Берлин, Германия, 2007; на 4-ом Международном конгрессе по холодной плазме атмосферных давлений, источникам и применению (CAPPSA 2009), Гент, Бельгия, 2009; на 9-ом Международном симпозиуме по измерительным технологиям и интеллектуальным инструментам (ISMТII-2009) С-Петербург, Россия, 2009г.; на 12-ом Международном симпозиуме по науке и технологии источников света (LS-12), Эйндховен, Нидерланды, 2010г., на XII-ом Международном симпозиуме по химии низкотемпературной плазмы высокого давления (NAKONE XII), Словакия, 2010; на Международной конференции «Прикладная оптика -2010», С-Петербург, 2010г.

### **Публикации**

По теме диссертации автором опубликовано 20 статей, в том числе 18 из списка ВАК и сделано 22 доклада на международных конференциях, имеется 1 патент.

### **Структура и объем диссертации**

Объем диссертации составляет 237 страниц, в ней представлен 121 рисунок и 15 таблиц, имеется 391 ссылка на литературные источники. Диссертация состоит из введения, 7 глав, заключения, двух приложений и списка литературы.

## II. СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **Введении** обосновывается актуальность исследования эксимерных ламп на основе инертных газов, как новых развивающихся источников света в ВУФ области. Сформулированы цель, научная новизна, практическая значимость, приводятся защищаемые положения.

В **Главе 1** проведён сравнительный анализ источников ВУФ излучения различных типов (когерентных и некогерентных), методов их исследования, оптимизации и применения.

К некогерентным неплазменным источникам относятся *синхротроны*. Синхротронное излучение (СИ) испускают электроны или позитроны, движущиеся с релятивистскими скоростями в магнитном поле. СИ имеет широкий непрерывный спектр с максимумом излучения. Одними из новых быстроразвивающихся источников света являются *светодиоды*. В настоящее время интенсивно идут исследования по созданию светодиодов ВУФ диапазона, однако на данный момент излучения с  $\lambda < 210$  нм получено не было.

Большинство существующих источников некогерентного вакуумного ультрафиолетового излучения использует в качестве рабочего вещества низкотемпературную плазму. Достаточно разработанными являются *резонансные лампы* на переходах  $^1P_1, ^3P_1-^1S_0$  атомов инертных газов, которые излучают в более коротковолновой по сравнению эксимерами области, но имеют меньшую интенсивность, обусловленную низким давлением и реабсорбцией излучения, а также меньший срок службы из-за контакта электродов с плазмой [19]. Основная доля интенсивности излучения *ртутных ламп* приходится на линию 254 нм, и заметно меньшая на 184 нм. Коэффициент преобразования электрической энергии в световую достигает в лампах средней мощности (40 Вт) величин порядка 55 % на длине волны 253,7 нм и 9 % на 184,9 нм [20]. Основным их недостатком является использование токсичной ртути, что требует проведения утилизации ламп по окончании срока службы. *Водородные лампы*, в которых используется излучение возбужденных молекул водорода и дейтерия являются эффективными источниками излучения широкого диапазона ( $\lambda=90 - 500$  нм). По сравнению с эксимерными источниками на молекулах инертных газов водородные лампы в ВУФ области обладают более слабым по интенсивности и более длинноволновым континуумом. Источники ВУФ излучения на *основе димеров* инертных газов используют в качестве рабочей среды низкотемпературную плазму средних давлений ( $P > 100$  торр). В данных условиях идет эффективное образование двухатомных возбужденных молекул, излучающих в ВУФ диапазоне. Одним из самых первых способов, с помощью которого удалось получить ВУФ континуумы инертных газов, являлось возбуждение *микроволновым разрядом* [21]. В экспериментах использовался микроволновый генератор с частотой 2450 МГц и мощностью порядка 100 Вт, давление инертных газов (Ar, Kr, Xe) составляло величину  $P \sim 30-300$

торр. В этих условиях наблюдались континуумы на переходах  $^{1,3}\Sigma_u^+ - ^1\Sigma_g^+$  :  $\text{Ar}_2^*$  ( $\lambda=106-150$  нм),  $\text{Kr}_2^*$  ( $\lambda=126-170$  нм),  $\text{Xe}_2^*$  ( $\lambda=150-200$  нм). В настоящее время интенсивно исследуются возможности получения эксимерного излучения в *микроплазме*, образующейся в газовых разрядах имеющих геометрические размеры, сравнимые с величиной свободного пробега электронов и радиусом Дебая (до 1 мм и менее), при близких к атмосферному давлению [22]. Разрабатываются *струйные* источники непрерывного эксимерного излучения, принцип действия которых основан на возбуждении разрядом расширяющейся струи инертного газа, выходящей со сверхзвуковой скоростью через сопло в вакуумную камеру [23]. Такие источники являются точечными и имеют высокую плотность излучаемой энергии (1-5 Вт/см<sup>2</sup>). По сравнению с лампами БР они имеют сложную конструкцию и низкую эффективность излучения (2%) . Источники на основе *охлаждаемого капиллярного разряда* [1\*] и на основе *пучковой плазмы* инертных газов также позволяют получать непрерывное во времени ВУФ излучение [4]. Наиболее распространёнными источниками ВУФ излучения в настоящее время, благодаря высокой эффективности, интенсивности и простоте конструкции, являются эксимерные лампы на основе *барьерных разрядов* в инертных газах. Их интенсивности достигают величин 1-10 мВт/см<sup>2</sup>, эффективность излучения - 60% [1] .

Наиболее разработанными на данный момент источниками *когерентного* ВУФ излучения являются газоразрядные  $\text{ArF}$  (193 нм) и  $\text{F}_2$  (157 нм) лазеры. Они представляют собой компактные приборы, работающие в частотном режиме ( $f=300-1000$  Гц), с энергией излучения от единиц ( $\text{F}_2$ ) до десятков ( $\text{ArF}$ ) мДж при длительности импульса излучения в несколько наносекунд [24]. В 80-х годах и позднее велись работы по ВУФ генерации на *молекулах водорода* [25]. В результате исследований был создан компактный частотный (100 Гц) лазер на длине волны 160 нм на переходе ( $\text{B}^1\Sigma_u^+ (v'=2, J=2) \Rightarrow \text{X}^1\Sigma_g^+ (v''=9, J=3)$ ), с энергией в 20 мкДж в импульсе. Другим способом получения когерентного ВУФ излучения является использование *нелинейных газовых преобразователей света* [30], позволяющих достигать областей вплоть до мягкого рентгеновского диапазона. Недостатками данного типа лазеров является малая мощность излучения (пВт-нВт), низкий КПД и большие габариты, поэтому в основном они применяются для научных целей.

Возможность получения генерации в ВУФ диапазоне на переходах *димеров инертных газов* привлекает внимание в связи с тем, что их основное состояние является разлётным. Впервые генерация на димерах наблюдалась в жидком ксеноне на длине волны 176 нм при возбуждении пучком электронов с энергией 800 кэВ [26]. В настоящее время ведутся исследования генерации на димерах, образующихся в газоразрядной плазме инертных газов [3\*, 27]. Достижение генерации в ВУФ области на переходах димеров инертных газов является технически сложной задачей из-за малого коэффициента усиления, но перспективы

использования когерентного излучения с высокой энергией фотонов и экологическая чистота активной среды делают актуальным исследование в этой области.

**Глава 2** посвящена исследованию барьерных разрядов в тяжёлых инертных газах. В ней проводится подробный обзор экспериментальных и теоретических работ в данной области. Глава состоит из двух частей. В первой части приводится сравнительный анализ экспериментально полученных характеристик барьерных разрядов (БР) в последовательном ряде тяжёлых инертных газов (Ar, Kr, Xe) ( $P=300$  торр,  $f=600$  Гц и  $15$  кГц,  $U=3.5$  кВ,  $d=4$  мм). Показывается, что наблюдаемое уменьшение амплитуды тока и увеличение числа пиков на токовой кривой при снижении частоты прикладываемого напряжения может быть объяснено более быстрым снижением напряжения на промежутке до величины напряжения прекращения разряда за счет накопления заряда на поверхностях диэлектриков. Существенные различия токовых характеристик БР в Xe по сравнению с Ar и Kr (рис.1) объясняются значительным отличием коэффициентов переноса и коэффициента диссоциативной рекомбинации в Xe от Ar и Kr.

Вторая часть Главы 2 посвящена численным расчётам барьерных разрядов. Численные расчеты плазмы барьерных разрядов важны как для понимания происходящих в ней процессов, так и для нахождения характеристик, которые трудно экспериментально измерить. В диссертации использовалась гибридная одномерная модель, в которой поведение компонент плазмы описывалось уравнениями гидродинамики, а для электронной компоненты дополнительно учитывалось распределение электронов по энергиям. Приводятся результаты расчётов характеристик барьерных разрядов, иллюстрирующие экспериментальные данные. Результаты исследований, изложенные в Главе 2, опубликованы в работах [2\*, 4\*-10\*].

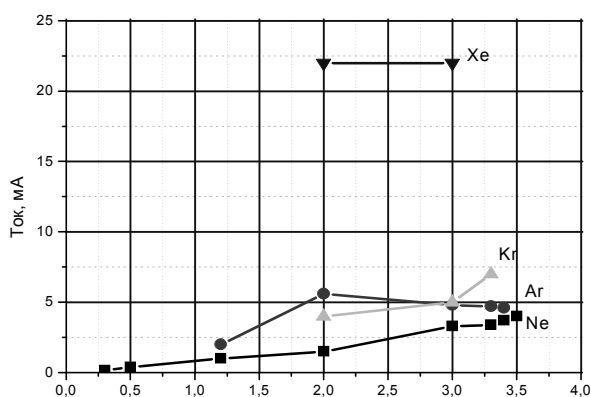


Рис.1 Вольтамперные характеристики барьерных разрядов в инертных газах ( $P=300$  торр). По осям отложены амплитудные значения.

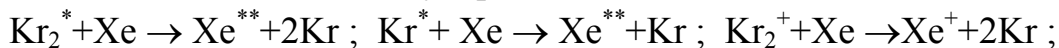
В **Главе 3** проводились исследования излучательных характеристик в ВУФ диапазоне спектра плазмы смесей чистых инертных газов и смесей инертных газов с галогенами.

В первой части Главы 3 на примере смеси Kr-Xe изучались кинетические процессы, проходящие в плазме смесей тяжёлых инертных газов, каналы

образования гомо- и гетероядерных эксимерных молекул, проводился расчёт эффективности их излучения в ВУФ области спектра.

Разряды в смесях инертных газов вызывают интерес по нескольким причинам:

- из-за эффективного механизма передачи энергии возбуждения и заряда от легкого инертного газа к более тяжёлому в реакциях типа:



- в связи с образованием в них гетероядерных эксимерных молекул, радиационные полосы излучения которых лежат между полосами излучения димеров инертных газов, что расширяет ВУФ спектр;

- малые добавки более тяжёлых инертных газов позволяют получать спектр в смесях практически не отличающийся от спектров в чистых инертных газах.

В проводимых расчётах рассматривалась пространственно однородная плазма, возбуждаемая импульсным разрядом. На рис.2 приведены результаты расчётов, характерной особенностью которых является резкое падение интенсивностей излучения донорных, криптоновых компонент в результате процессов передачи энергии возбуждения и заряда.

Проведённые расчёты показывают, что изменение спектра начинается с концентраций Xe  $\delta_0 \approx 0.05\%$ , когда время передачи возбуждения от компонент Kr становится сравнимым со временем радиационного распада эксимеров  $\text{Kr}_2^*$ . Вид

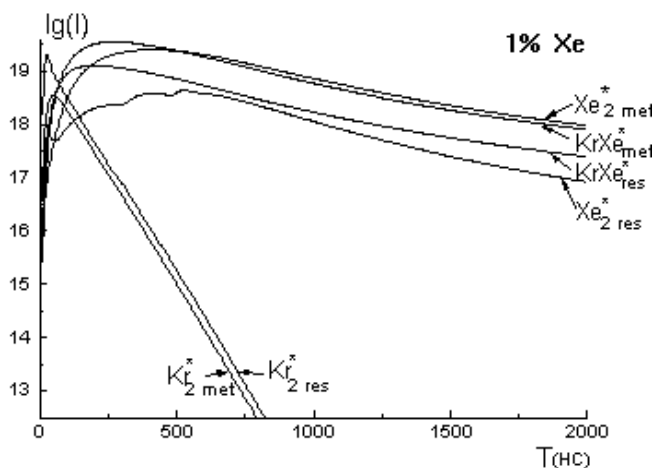


Рис.2 Интенсивность I(отн.ед.) излучения компонент смеси Kr-Xe (1%).

спектра при дальнейшем увеличении концентрации Xe будет определяться соотношением между временами процессов передачи энергии ( $\tau_R$ ) и радиационного распада ( $\tau_I$ ) рис.3: при  $\delta = 0.2\% > \delta_0$  ВУФ континуум  $\text{Kr}_2^*$  сильно деградирует: светит узкополосное излучение в районе атомной линии Xe и гетероядерная молекула  $\text{KrXe}^*$ , дальнейшее повышение концентрации Xe до 1% приводит к полному исчезновению излучения  $\text{Kr}_2^*$  и росту концентраций гомоядерных молекул  $\text{Xe}_2^*$ , а при  $\delta > 10\%$  спектры Kr-Xe смеси при высоких давлениях ( $P > 100$  торр) не отличаются от спектров чистого ксенона.

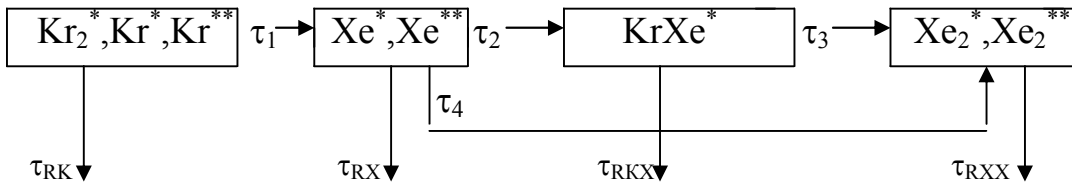


Рис.3 Схема безызлучательных процессов и процессов радиационного распада компонент смеси Kr-Xe.

Проведённый расчёт эффективности выхода ВУФ излучения в широком диапазоне концентраций Хе (рис.4), указывает на наличие плато и резкого спада на кривой КПД, начиная с определённых значений  $E/N$ . Последнее объясняется быстрым ростом концентрации электронов, сопровождающимся увеличением тепловых потерь в реакциях с участием заряженных частиц. Полученные результаты согласуются с данными [11].

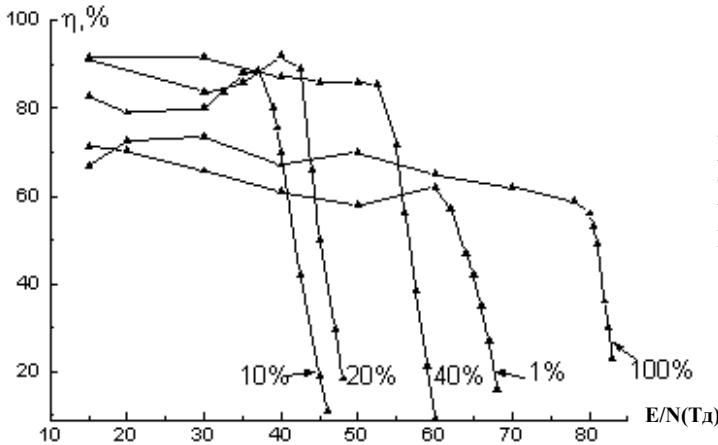


Рис.4 Зависимости эффективности ВУФ излучения при различных концентрациях Хе.

Во второй части Главы 3 проводились исследования излучательных характеристик в ВУФ диапазоне спектра смеси  $Kr-I_2$ .

Плазма смеси  $Kr-I_2$  вызывает интерес в связи с интенсивным излучением в ней атомных линий йода на переходах  $p^4s-p^5$ , что позволяет рассматривать эту смесь как возможный источник ВУФ излучения в районе  $\lambda \sim 160-190$  нм.

В процессе моделирования плазма разбивалась на 15 компонент, учитывалось более 100 химических реакций. Рассматривался однородный в пространстве импульсный разряд. В результате анализа процессов происходящих в плазме была составлена схема образования возбуждённых атомов йода рис.5.

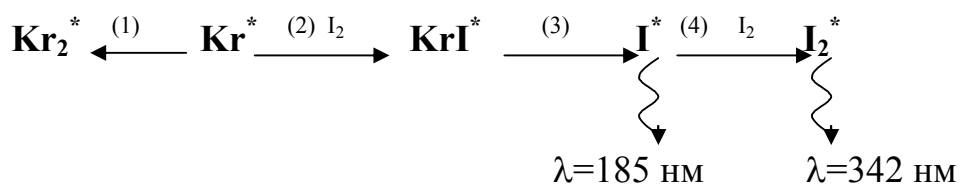


Рис.5 Схема процессов заселения и разрушения атомов йода  $I^*(6s^4P, ^2P)$ .  
 (1) -  $Kr^* + 2Kr \rightarrow Kr_2^* + Kr$ , (2) -  $Kr^* + I_2 \rightarrow KrI^* + I$ , (3) -  $KrI^* \rightarrow Kr + I^*$ , (4) -  $I^* + I_2 \rightarrow I_2^* + I$

Оценки показывают, что интенсивность и эффективность излучения атомных линий йода будут расти с уменьшением концентрации  $I_2$ . Радиационный распад  $I^*$  будет преобладать над тушением (4) начиная с давлений  $I_2$  менее 0.1 торр. Данный вывод подтверждается и экспериментальными исследованиями [31], где при парциальном давлении  $I_2$  менее 0.02 торр в спектре присутствовали только атомные линии. На рис.6 приведены зависимости КПД выхода ВУФ излучения при парциальном давлении  $I_2$  0.1 торр. Падение интенсивности и эффективности излучения на переходах  $I^*(p^4s-p^5)$  с ростом давления можно объяснить преобладанием ухода  $Kr^*$  в реакции (1) по сравнению с реакцией (2).

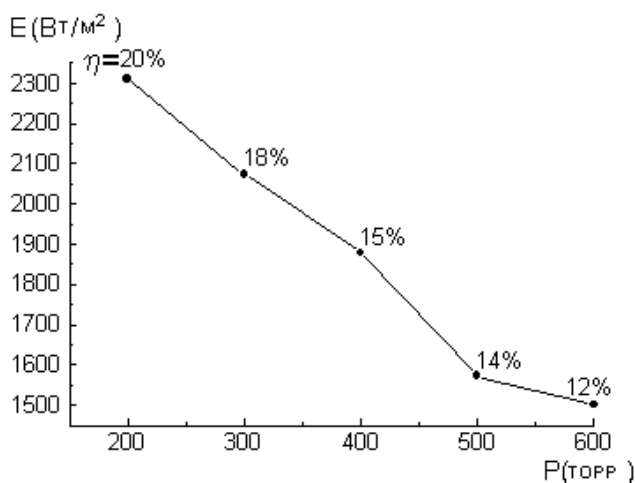


Рис.6 Зависимость плотности мощности излучения разрядной трубки  $E$  (Вт/м<sup>2</sup>) на переходах  $I(p^4s-p^5)$  от давления  $P$  (торр), давление  $I_2 - P_1=0.1$  торр, удельная мощность разряда 5 Вт/см<sup>3</sup> (цифрами указана эффективность излучения).

Результаты, полученные в Главе 3, изложены в работах [11\* -20\*].

В Главе 4 проводились численные исследования излучательных характеристик плазмы контрагированного разряда в инертных газах околоатмосферных давлений. Преимущество тлеющего разряда постоянного тока по сравнению с барьерным разрядом состоит в возможности получения непрерывного во времени ВУФ излучения. Разряд в рассматриваемых условиях является контрагированным, с сильной неоднородностью температуры газа  $T_g(r)$  и концентрации электронов  $N_e(r)$  по сечению шнура [1\*].

Вычисления проводились для ксенона, при давлениях  $P=100-400$  торр, токах  $I=5-20$  мА, радиусе капилляра  $R=0.75$  мм, в условиях криогенного охлаждения капилляра и без него. Были найдены радиальные распределения концентраций компонент плазмы и газовой температуры, рассчитаны интенсивность и КПД выхода ВУФ излучения.

Для нахождения концентраций компонент плазмы в заданных точках радиуса капилляра решалась система стационарных кинетических уравнений совместно с уравнением квазинейтральности плазмы. Радиальные зависимости газовой температуры  $T_g(r)$  находились при помощи стационарного уравнения теплопроводности. На рис.7 и 8 приведены основные результаты расчётов.

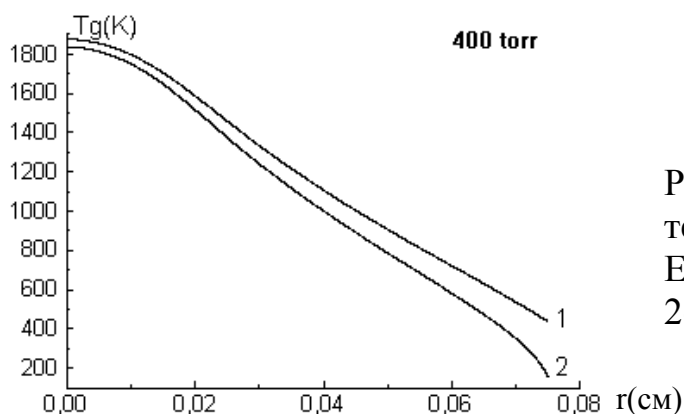


Рис.7 Радиальные распределения температуры газа в трубке. P=400 торр, E/N(0)=2.7 Тд, I=14.5 мА, 1- $T_g(R)=430$  К, 2-  $T_g(R)=160$  К.

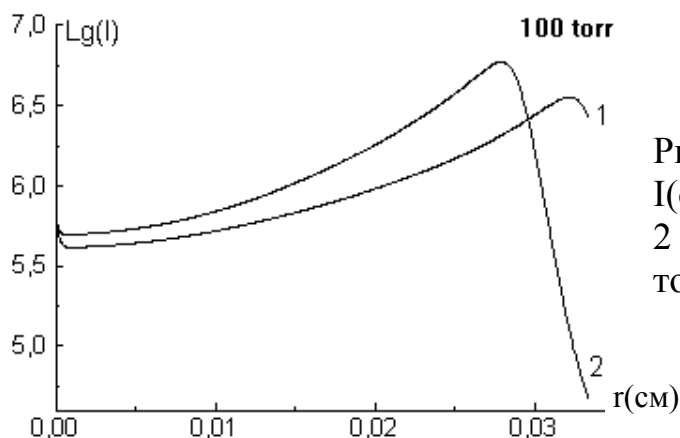


Рис.8 Интенсивности свечения эксимеров I(отн.ед.) 1-без криогенного охлаждения, 2 - с криогенным охлаждением, P=100 торр.

Вычисления показали, что концентрация эксимеров ксенона достигает максимума на границе шнура и повышается до 2 раз (P=100 торр) при криогенном охлаждении. Данное поведение можно объяснить увеличением концентрации нормальных атомов и соответствующим ростом потока образования эксимеров при столкновительной ассоциации.

Анализ каналов плазмохимических реакций показывал, что основным каналом превращения энергии частиц в тепловую являются упругие электрон-атомные столкновения. Основным каналом наработки заряженных частиц - ступенчатая ионизация возбуждённых атомов и молекул.

Расчётная интегральная ВУФ эффективность разряда  $\eta = 2\pi \int I_{ВУФ}(r) r dr / 2\pi \int E j(r) r dr$  в случае криогенного охлаждения при P=400 торр составила величину  $\eta=0.16\%$ , а при P=100 торр -  $\eta=0.38\%$ , что много меньше эффективности барьерного разряда (10-60%).

Основные результаты Главы 4 изложены в работах [1\*, 21\*-23\*].

**Глава 5** диссертации посвящена расчётам характеристик источников ВУФ излучения на основе плазмы инертных газов возбуждаемой пучком электронов [4] и исследованию влияния на них дополнительного подогрева СВЧ полем. По сравнению с газоразрядными источниками излучения, пучковые источники обладают такими преимуществами как: высокая плотность излучения - единицы



ватт на  $\text{см}^2$ , стабильность (отсутствуют неустойчивости свойственные газовым разрядам), однородность (отсутствуют стримеры, нет контракции разряда).

Расчеты проводились для криптона при атмосферных давлениях, возбуждаемого пучком электронов с энергией  $E_b \sim 10$  кэВ, дополнительный подогрев осуществлялся высокочастотным полем мощностью  $W=100-1200$  мВт/ $\text{см}^3$  и частотой  $f \sim 1000$  МГц.

Была рассчитана функция распределения электронов по энергиям на основе уравнения Больцмана для пучковой плазмы с добавлением члена, описывающего воздействие СВЧ поля. Достоверность вычислений проверялась сравнением рассчитанных и известных из литературы средних значений энергий рождения электрон-ионной пары  $U_i$ .

На рис.9 приведена функция распределения электронов по энергиям  $f(\epsilon)$ . Видно, что основное влияние СВЧ поле оказывает на электроны с низкой энергией (плазменные электроны) приводя ФРЭЭ к виду характерному для газоразрядной плазмы: с максимумом распределения в области единиц электрон вольт, тем самым увеличивая скорости реакций с малым энергетическим порогом (рис.10).

Расчёты показывают, что концентрации возбужденных атомов и молекул при этом увеличиваются в зависимости от вклада в заселение ступенчатых процессов: чем большую роль играют ступенчатые процессы среди других каналов заселения, тем на большую величину (до 2-3 раз) может возрасти концентрация. В ВУФ спектрах наблюдается перераспределение интенсивности в сторону 1-го континуума, связанное с ростом заселённости верхних колебательных уровней эксимеров и с уменьшением заселённости нижних уровней из-за увеличения времени колебательной релаксации в результате разогрева газа.

Основные результаты работы представленные в Главе 5 опубликованы в [24\*,25\*].

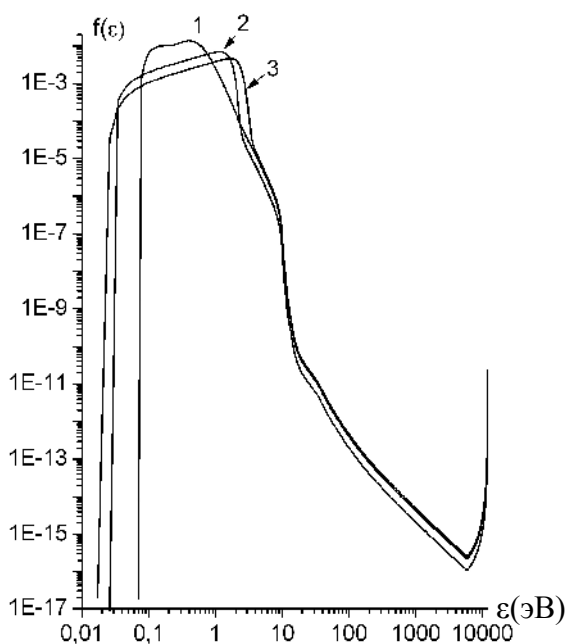


Рис.9 Функция распределения электронов для случаев :

- 1 - отсутствия СВЧ поля,
- 2 - при СВЧ поле мощностью  $W=100$  мВт/ $\text{см}^3$ ,
- 3 - при СВЧ поле мощностью  $W=700$  мВт/ $\text{см}^3$ .

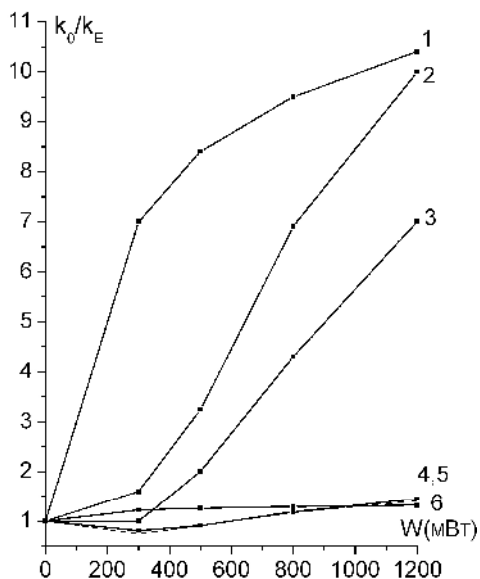


Рис.10 Относительное изменение скоростей реакций при наложении СВЧ поля:

1-  $Kr^* + e \rightarrow Kr^{**} + e$ , 2-  $Kr_2^{**} + e \rightarrow Kr_2^+ + 2e$ ,  
 3-  $Kr^{**} + e \rightarrow Kr^+ + 2e$ , 4-  $Kr + e \rightarrow Kr^+ + 2e$ ,  
 5-  $Kr + e \rightarrow Kr^* + e$ , 6-  $Kr^{**} + e \rightarrow Kr^* + e$ ,  
 ( $k_0$ - скорость без СВЧ поля,  $k_E$ - с СВЧ полем)

В Главе 6 численно исследовалась возможность создания когерентных источников ВУФ излучения на основе димеров инертных газов. В качестве активных сред рассматривалась газоразрядная плазма криптона с двумя типами предыонизации: с помощью УФ излучения и пучками электронных лавин.

Проводилось исследование влияния формы импульса прикладываемого напряжения и степени предыонизации на достижение пороговых концентраций димеров. Плазма представлялась состоящей из 11 компонент, нижние метастабильное и резонансное состояния димеров представлялись двумя компонентами, соответствующими нижним ( $Kr_2^{* \text{ low met}}$ ,  $Kr_2^{* \text{ low res}}$ ) и верхним колебательным состояниям. В расчётах использовались условия экспериментальной работы [28]: рассматривался разряд в криптоне при давлении  $P=10$  атм,

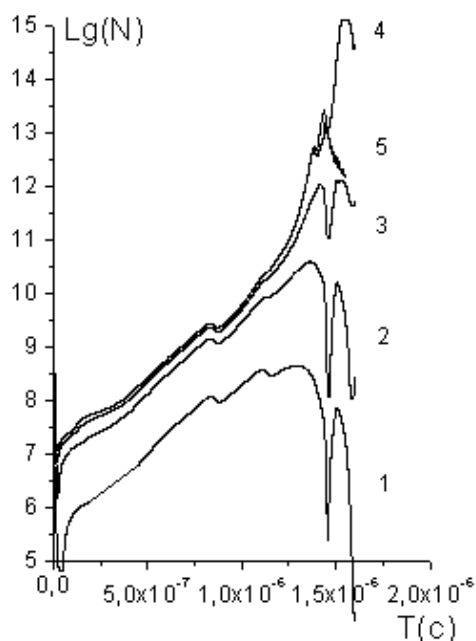


Рис.11 Концентрация  $Kr_2^{* \text{ low res}}$  рассчитанная для различных  $N_e(0)$  (катодная область):  
 1-  $N_e(0) = 10^8 \text{ см}^{-3}$ , 2-  $N_e(0) = 10^9 \text{ см}^{-3}$ ,  
 3-  $N_e(0) = 1.5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$ , 4-  $N_e(0) = 1.7 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$ ,  
 5-  $N_e(0) = 1.7 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$  (при отсутствии вторичных пиков напряжения)

межэлектродном расстоянии  $d=0.5$  см, форма импульса прикладываемого напряжения  $U(t)$  состояла из основного и вторичных импульсов длительностью в единицы микросекунд и амплитудами 30 и 10 кВ соответственно. Совместно решалась система уравнений непрерывности относительно неизвестных концентраций компонент плазмы и уравнение для определения величины электрического поля. Результаты расчётов (рис. 11) показали, что при использовании уровня предыонизации обеспечивающего начальную концентрацию электронов  $N_e(0) > 10^9 \text{ см}^{-3}$  и формы импульса напряжения с несколькими пиками уменьшающейся амплитуды, возможно достижение значений концентраций димеров необходимых для начала генерации -  $N=10^{15} \text{ см}^{-3}$ . При этом, максимум в интенсивности ВУФ излучения, как и в [28], достигается в послесвечении.

В Главе 6 также были проведены численные исследования временных зависимостей интенсивности излучения димеров в плазме инертных газов высоких давлений ( $P \sim 10-20$  атм), возбуждаемых короткими высоковольтными импульсами напряжения ( $\Delta t_{\text{и}} \sim 100-200$  нс,  $U \sim 10-20$  кВ,  $d \sim 1-2$  мм). Найдены факторы, определяющие появление двух пиков на кривых излучения димеров. Появление первого пика объяснялось процессами прямого возбуждения атомов, второго – релаксационными процессами с высоколежащих атомных и молекулярных состояний. Разделение на пики усиливается разрушением димеров в промежуточной по времени стадии в ступенчатых процессах возбуждения и ионизации электронами.

Были проведены расчёты усилительных свойств плазмы объемного наносекундного разряда, инициируемого пучком электронных лавин, формируемого при повышенных давлениях в криптона. Расчеты проводились для давлений криптона  $P=1-9$  атм, межэлектродных расстояний  $d=0.2 - 1.2$  см, импульсов прикладываемых напряжений амплитудой  $U=100-110$  кВ и шириной  $\Delta t_{\text{и}} = 1.5$  нс. Результаты показали возможность применения данного типа разрядов для получения генерации на димерах криптона: при давлении газа более 6-7 атмосфер расчётный коэффициент усиления составил величину  $k=0.1 \text{ см}^{-1}$ , достаточную для достижения порога генерации на длине волны  $\lambda=146$  нм.

Основные результаты Главы 6 изложены в работах [26\*-28\*].

В Главе 7 проводилось исследование фотохимического воздействия ВУФ излучения. Была численно рассмотрена возможность разложения молекул воды ВУФ излучением с целью наработки высокореактивных продуктов фотолиза и воздействия данных продуктов на органические соединения: полихлорированные бифенилы и молекулы ДНК.

Коэффициент поглощения жидкой воды в ВУФ области имеет высокую величину ( $10^3 - 10^4 \text{ см}^{-1}$ ), что ограничивает толщину поглощающего слоя до единиц микрон. Для увеличения облучаемого объёма рассматривалась движущаяся со скоростью  $v$  от излучающей поверхности вода.

На рис.12 представлены результаты расчётов концентраций компонент разложения воды при облучении источником с длиной волны  $\lambda=172$  нм и интенсивностью  $I=100$  мВт/см<sup>2</sup>.

Пары воды имеют меньший коэффициент поглощения, что позволяет рассматривать облучение в стационарных режимах. Расчёты для стационарных насыщенных паров воды, облучаемых при температуре  $T=300$  К ВУФ источником с интенсивностью  $I=10$  мВт/см<sup>2</sup> дал значения концентрации высокореактивных радикалов  $\bullet\text{OH}$  порядка  $N=10^{13}$  см<sup>-3</sup>.

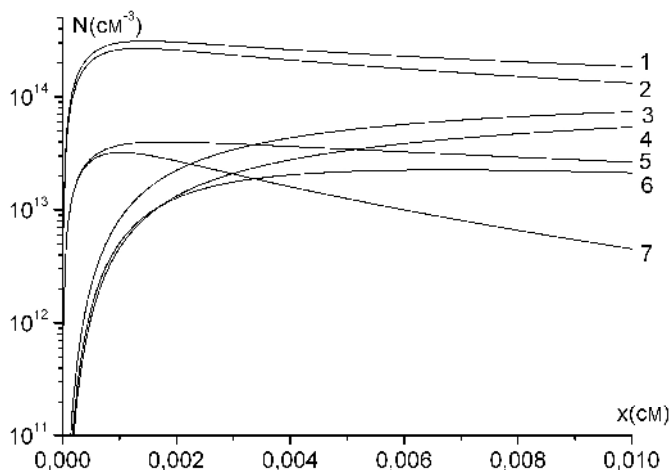


Рис.12 Пространственное распределение концентраций  $N(\text{см}^{-3})$  продуктов ВУФ разложения жидкой воды: 1-  $\bullet\text{OH}$ , 2-  $\text{H}\bullet$ , 3-  $\text{H}_2$ , 4-  $\text{H}_2\text{O}_2$ , 5-  $\text{H}^+$ , 6-  $\text{OH}^-$ , 7-  $e_{\text{aq}}^-$ , скорость среды-  $v=100$  см/с.

Одним из способов деструкции органических загрязнителей является их окисление продуктами разложения воды. Численные исследования окисления ароматических хлорсодержащих веществ, проведённые на примере полихлорированных бифенилов продемонстрировали уменьшение их концентрации более чем в 10 раз при облучении источником с длиной волны  $\lambda=172$  нм и интенсивностью  $I=1000$  мВт/см<sup>2</sup> раствора, движущегося с относительной скоростью  $v=20$  см/с.

Анализ литературы, посвящённой воздействию ВУФ излучения на биологические молекулы, указывает на эффективную деструкцию нуклеиновых кислот под действием продуктов разложения воды в присутствии кислорода [29]. В диссертации приведены результаты расчётов деструкции поверхностного слоя ДНК в ядре клетки под действием продуктов ВУФ-фотолиза молекул воды цитоплазмы.

Результаты Главы 7 изложены в работах [29\*-32\*].

В **Заключении** сформулированы основные результаты диссертации.

В **Приложениях** приведены данные по реакциям, происходящим в плазме инертных газов, и представлены детали расчета функции распределения электронов по энергиям.

### III. ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

1. Проведён сравнительный анализ характеристик барьерных разрядов (БР) в тяжёлых инертных газах (Ar, Kr, Xe) ( $P=300$  торр,  $f=600$  Гц и  $15$  кГц,  $U=3.5$  кВ,  $d=4$  мм).

1.1 Показано, что наблюдаемое в экспериментах уменьшение амплитуды тока и увеличение числа пиков на токовой кривой при снижении частоты прикладываемого напряжения может быть объяснено более быстрым снижением напряжения на промежутке до величины напряжения прекращения разряда за счет накопления заряда на поверхностях диэлектриков;

1.2 Показано, что существенные различия БР в Xe по сравнению с Ar и Kr могут быть объяснены значительным отличием коэффициентов переноса и коэффициента диссоциативной рекомбинации в Xe от Ar и Kr.

1.3 Проведён расчёт характеристик барьерных разрядов, иллюстрирующий экспериментальные данные.

2. Проведены численные исследования излучательных характеристик плазмы смесей чистых инертных газов и смесей инертных газов с галогенами в ВУФ диапазоне спектра.

2.1 Составлена кинетическая схема процессов в плазме смеси Kr-Xe и проведён расчёт изменения её ВУФ КПД в зависимости от концентрации Xe. Создана схема трансформации ВУФ спектра плазмы при изменении относительных концентраций газов в смеси Kr-Xe, согласно которой вид спектра определяется соотношением между временами процессов передачи энергии и радиационного распада : существенно видоизменяется начиная с концентрации Xe  $\delta \sim 0.05\%$  , при  $\delta \sim 1\%$  излучение эксимеров Kr практически исчезает , присутствуют континуумы  $Xe_2^*$  и  $KrXe^*$  , начиная с  $\delta > 10\%$  в спектре преобладает излучение молекулы  $Xe_2^*$  , причём параллельно начинается образование эксимеров при прямом возбуждении Xe компонент.

2.2 Рассчитаны значения КПД выхода ВУФ излучения в зависимости от величины приведенного электрического поля  $E/N$  и относительных концентраций газов, кривые КПД  $\eta(E/N, \delta)$  имеют плато, за которым следует резкое падение, обусловленное повышением концентрации электронов за счёт ступенчатой ионизации. У смесей с большим значением коэффициента ионизации КПД падает при меньших значениях  $E/N$ .

2.3 На примере смеси Kr-I<sub>2</sub> составлена кинетическая схема процессов в смесях тяжёлых инертных газов с галогенами для случая преддиссоциации нижних возбуждённых состояний молекул галогенидов инертных газов. Проведены расчёты компонент плазмы при давлениях инертного газа  $P=100-600$  торр и малой добавки I<sub>2</sub> ( $0.1-15$  торр) , образующейся в импульсном однородном в пространстве разряде . Найдено, что интенсивность и эффективность излучения атомов йода  $I(p^4s-p^5)$

в смеси Kr-I<sub>2</sub> увеличиваются с уменьшением давления обоих компонент. Максимальные расчётные значения излучательных КПД составили величину 20%.

3. Проведены численные исследования плазмы контрагированного тлеющего разряда в инертных газах высоких давлений. Найдены радиальные распределения концентраций компонент плазмы и газовой температуры в шнуре капиллярного тлеющего разряда в ксеноне при давлениях P=100-400 торр, токах I=10-20 мА, радиусе капилляра R=0.75 мм в условиях криогенного охлаждения и без него. Установлено, что :

3.1 газовая температура в канале тлеющего разряда ксенона при давлениях в несколько сотен торр и токах около десяти миллиампер составляет величину 1000-2000°K. Основным каналом превращения электрической энергии в тепловую являются упругие электрон-атомные столкновения;

3.2 концентрация димеров ксенона в рассматриваемых условиях достигает максимума на границе шнура и составляет величину порядка  $10^{10}$ - $10^{11}$  см<sup>-3</sup>. Основным каналом образования димеров является столкновительная ассоциация  $\text{Xe}^+ + 2\text{Xe} = \text{Xe}_2^+ + \text{Xe}$ , основным каналом разрушения - радиационный распад. Повышение концентрации димеров при криогенном охлаждении можно связать с увеличением концентрации нормальных атомов, приводящей к увеличению потока образования димеров при столкновительной ассоциации;

3.3 эффективность выхода ВУФ излучения в рассматриваемых условиях составляет величину порядка  $\eta=0.1$ - $0.4\%$ . Повышение ВУФ КПД возможно путем увеличения эффективности образования димеров и уменьшения упругих потерь при электрон-атомных столкновениях.

4. Проведены исследования эксимерных источников света, возбуждаемых пучком электронов, с дополнительным подогревом СВЧ полем, которые показали, что:

4.1 дополнительный подогрев СВЧ полем мощностью  $W=0$ - $1200$  мВт/см<sup>3</sup> плазмы криптона (P=0.5 атм) , возбуждаемой пучком электронов с энергией E<sub>b</sub>=10 кэВ приводит к сдвигу максимума функции распределения электронов и увеличению средней энергии электронов на величину Δε порядка единиц электронвольт;

4.2 возрастание средней энергии электронов Δε при СВЧ подогреве приводит к увеличению на порядок скоростей процессов, имеющих энергетические пороги, сравнимые с Δε, рост концентраций компонент при СВЧ нагреве зависит от относительного вклада в их заселение ступенчатых процессов: чем большую роль играют ступенчатые процессы по отношению к другим каналам заселения, тем на большую величину возрастает концентрация.

4.3 СВЧ подогрев приводит к росту газовой температуры, в результате заселённость колебательных уровней эксимеров изменяется : заселённость верхних уровней растёт, нижних – падает, что приводит к перераспределению интенсивности излучения в полосах димеров.

5. Численно исследованы условия достижения порога генерации лазерного излучения в газоразрядной плазме инертных газов высоких давлений.

5.1 Показано, что достижение в импульсном микросекундном газовом разряде в криптона при давлениях в  $P \sim 10$  атм концентраций эксимеров достаточных для начала генерации ( $10^{15} \text{ см}^{-3}$ ) может быть обеспечено несколькими факторами: высоким уровнем предыонизации газа  $N_e(0) > 10^9 \text{ см}^{-3}$ ; формой импульса напряжения, имеющего несколько пиков уменьшающейся амплитуды, обеспечивающих наработку активных частиц за счет ступенчатой ионизации.

5.2 Объяснено наличие двух пиков на кривых излучения эксимеров в плазме инертных газов высоких давлений ( $P \sim 10-20$  атм), возбуждаемых короткими высоковольтными импульсами напряжения ( $\Delta t_{\text{и}} \sim 100-200$  нс,  $U \sim 10-20$  кВ,  $d \sim 1-2$  мм). Появление первого пика связывается с процессами прямого возбуждения атомов, второго – с релаксационными процессами с высоколежащих атомных и молекулярных состояний. Разделение на пики также усиливается разрушением эксимеров в промежуточной по времени стадии в ступенчатых процессах возбуждения и ионизации электронным ударом. Как во время первого, так и второго пиков достигаются концентрации эксимеров, достаточные для начала генерации.

5.3 Показана возможность применения объемного разряда, инициируемого пучком электронных лавин (ОРИПЭЛ) для получения генерации на димерах криптона: при давлении газа более 6-7 атмосфер получен расчётный коэффициент усиления ( $k = 0.1 \text{ см}^{-1}$ ), достаточный для достижения порога генерации на длине волны 146 нм.

6. Проведены исследования фотохимического воздействия ВУФ излучения на водные среды и органические соединения.

6.1 Расчетным путем показана возможность наработки высокореагентных продуктов разложения воды при воздействии ВУФ излучения на потоки воды и на стационарные объемы с парами глубиной до  $d = 1$  см, рассчитаны концентрации продуктов разложения воды, составившие для радикалов  $\bullet\text{ОН}$  значения порядка  $N = 10^{14} \text{ см}^{-3}$  для жидкой воды, для паров воды -  $N = 10^{13} \text{ см}^{-3}$  (при облучении источником  $\lambda = 172$  нм, интенсивностью соответственно  $100 \text{ мВт/см}^2$  и  $10 \text{ мВт/см}^2$ ).

6.2 Проведён анализ литературы посвящённой методам разложения полихлорированных бифенилов (ПХБ), позволяющий сделать вывод о перспективности использования ВУФ излучения для деструкции ПХБ, в частности

их водных растворов. Численно показана возможность деструкции молекул ПХБ, находящихся в водном растворе, облучаемом ВУФ источником ( $\lambda=172$  нм,  $I=1000$  мВт/см<sup>2</sup>), приводящая к уменьшению их концентрации более чем в 10 раз.

6.3 Проведён анализ литературы, посвящённой воздействию ВУФ излучения на биологические молекулы (нуклеиновые кислоты, белки) и вирусы, позволяющий сделать вывод о возможности использования ВУФ излучения как для прямого воздействия на указанные объекты, так и для их разрушения с помощью продуктов ВУФ фотолиза воды. Проведены численные расчёты, показавшие возможность деструкции поверхностного слоя ДНК в ядре клетки под действием продуктов ВУФ фотолиза молекул воды цитоплазмы толщиной  $r=10^{-4}$  см при облучении источниками с длиной волны  $\lambda=172$  нм, интенсивностью  $I=10$  мВт/см<sup>2</sup> и  $100$  мВт/см<sup>2</sup>. Характерные времена деструкции составили  $t=2$  с и  $0.05$  с соответственно.

Таким образом, в ходе выполнения работы расчётным путём были определены физические параметры, ответственные за формирование эффективного и интенсивного излучения источников ВУФ диапазона спектра на основе низкотемпературной (газоразрядной и пучковой) плазмы инертных газов, найдены характеристики, описывающие воздействие ВУФ излучения эксимеров на жидкую и газообразную воду, диоксиноподобные вещества и биологические молекулы.

Результаты работы способствуют совершенствованию нового класса источников ультрафиолетового излучения и развитию на их основе новых фотохимических технологий.



## Список цитируемой литературы:

- [1] F.Vollkommer and L.Hitzschke, Dielectric barrier discharge// Proceedings of the 8<sup>th</sup> International Symposium on the Science and Technology of Light Sources (LS-8), Greifswald, Germany, pp.51-60, (1998).
- [2] Г.А.Волкова, Н.Н. Кириллова, Е.И.Павловская и А.В.Яковлева, ВУФ лампы на барьерных разрядах в инертных газах// ЖПС, т.XLI, вып.4, сс.691-695, (1984).
- [3] Y.Tanaka and M.Zelikoff, Continuous Emission Spectrum of Xenon on the Vacuum Ultraviolet Region// J.Opt.Soc.Am., v.44, p.254, (1954).
- [4] J.Wieser, D.E.Murnick, A.Ulrich, H.A.Huggins, A.Liddle and W.L.Brown, Vacuum ultraviolet rare gas excimer light source// Rev.Sci.Instrum, v.68, N3, pp.1360-1364, (1997).
- [5] <http://www.ushio.co.jp/>
- [6] F.Muhlberger, J.Wieser, A.Ulrich and R.Zimmermann, Single Photon Ionization (SPI) via Incoherent VUV-Excimer Light: Robust and Compact Time-of-Flight Mass Spectrometer for On-Line, Real-Time Process Gas Analysis// Anal. Chem., v.74, pp.3790-3801, (2002).
- [7] Ю.В.Медведев, В.Г.Иванов, Н.И.Середа, Ю.И.Полыгалов, В.И.Ерофеев, С.Д.Коровин, М.В.Ерофеев, Э.А.Соснин, А.И.Суслов, В.Ф.Тарасенко, В.А.Истомин, Воздействие мощного ультрафиолетового излучения на поток природного газа в проточном фотореакторе // Наука и техника в газовой промышленности, №3, сс.83–87, (2004).
- [8] Э.А.Соснин, М.В.Ерофеев, В.Ф.Тарасенко, Фотоминерализация метанола в Хе<sub>2</sub>-фотореакторе ( $\lambda \sim 172$  нм) с аэрированием раствора// Известия вузов. Физика, №10, сс.95-97, (2006).
- [9] S.Kubodera, Y.Taniguchi, A.Hosotani, M.Katto, A.Yokotani, N.Miyanaga and K.Mima, Subpicosecond vacuum ultraviolet laser system for advanced material processing // Proc. Of SPIE, v.6452, p.645216, (2007).
- [10] I.W.Boyd, J.-Y. Zhang and U. Kogelschatz, Development and Applications of UV Excimer Lamps, Photo-Excited Processes, ed. by A. Peled, Kluwer A.P., Boston, pp.161-199, (2003).
- [11] B.Eliasson and U.Kogelshatz, UV Excimer Radiation from Dielectric-Barrier Discharge// Appl. Phys. B, v.46, pp.299-303, (1988).
- [12] K.V.Kozlov, P.A.Tatarenko and V.G.Samoilovich, Radiation kinetics and chemical reactivity of barrier discharges in humid argon // Proceedings of 10<sup>th</sup> International Symposium on High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry (HAKONE X), Saga, Japan, pp.47-50, (2006).
- [13] F.Adler and S.Muller, Formation and decay mechanisms of excimer molecules in dielectric barrier discharges // J.Phys. D: Appl. Phys., v.33, pp.1705-1725, (2000).

- [14] Г.А.Волкова, Глубина излучающего слоя и конструктивные решения ламп барьерного разряда //Оптический журнал, т.64, №7, сс.31-33, (1997).
- [15] М.И.Ломаев, В.С.Скакун, Э.А.Соснин, В.Ф.Тарасенко, Д.В.Шитц и М.В.Ерофеев, Эксилампы - эффективные источники спонтанного УФ- и ВУФ-излучения // УФН, т.173, №2, сс.201-217, (2003).
- [16] S.Okazaki, M.Kogoma, M.Uehara and Y.Kimura, Appearance of stable glow discharge in air, argon, oxygen and nitrogen at atmospheric pressure using a 50 Hz source //J. Phys.D:Appl. Phys., v.26, pp.889-892, (1993).
- [17] F.Massines, N.Gherardi, N.Naude and P.Segur, Glow and Townsend dielectric barrier discharges in various atmosphere//Plasma Phys. Control. Fusion , v.47, pp.B577-B588, (2005) .
- [18] A.Oda, Y.Sakai, H.Akasi and H.Sugawara, One-dimensional modeling of low-frequency and high-pressure Xe barrier discharges for the design of excimer lamps // J.Phys. D: Appl. Phys., v.32, pp.2726-2736, (1999).
- [19] Г.А.Волкова, Л.П.Шишацкая, С.А.Яковлев, Принципы построения и основные характеристики маломощных ламп для вакуумной ультрафиолетовой области спектра// Оптический журнал, №3, сс.66-70, (1995).
- [20] Рохлин Н.Г., Разрядные источники света, М:Энергоатомиздат,1991,720 с.
- [21] P.G.Wilkinson and E.T.Byram, Rare Gas Light Sources for the Vacuum Ultraviolet// Appl. Optics, v.4, N5, pp.581-588, (1965).
- [22] К.Н.Becker,К.Н. Schoenbach and J.G.Eden , Microplasmas and applications // J.Phys.D:Appl. Phys., v.39, pp.R55-R70, (2006).
- [23] Г.Н.Герасимов, Б.Е.Крылов, А.В.Логинов, С.А.Щукин, Вторые ВУФ континуумы ксенона, криптона, аргона, излучаемые сверхзвуковой струей при возбуждении постоянным разрядом// Оптика и спектроскопия, т.73, вып.6, сс. 1075-1080, (1992).
- [24] С.К.Вартапетов, А.А.Жигалкин, К.Э.Лапшин, А.З.Обидин, В.Ю.Хомич и В.А.Ямщиков, Исследование электроразрядного ВУФ лазера на молекулярном фторе// Квант. эл., т.36, №5, сс.393-398, (2006).
- [25] J.E.M.Goldsmith and I.N.Knyazev, A simple compact high-repetition-rate hydrogen VUV laser for scientific applications //J.Appl. Phys., v.48 (12), pp.4912-4921, (1978).
- [26] Н.Г.Басов, В.А.Данилычев и Ю.М.Попов, Вынужденное излучение в области вакуумного ультрафиолета // Квантовая электроника, т.1, №1, сс.29-34, (1971).
- [27] Г.А.Волкова, Г.Н.Герасимов, Усиление ВУФ континуума барьерного разряда в ксеноне//Оптический журнал, т.65, №4, сс.15-20, (1998).
- [28] W. Sasaki , T.Shirai, S.Kubodera, J.Kawanaka, T.Igarashi, Observation of vacuum-ultraviolet  $Kr_2^*$  laser oscillation pumped by a compact discharge device // Optics Letters,v.26, pp. 503-505, (2001).

- [29] B.Ohtani, H.Nagasaki, S. Nishimoto, K.Sakano and T.Kagiya, Far ultraviolet induced decomposition of thymine in deaerated and aerated aqueous solutions// *Can. J. Chem.*, v.64, pp.2297-2300, (1986).
- [30] В.Г.Архипкин, А.К.Попов, Нелинейное преобразование света в газах, Новосибирск, «Наука», 142 с., (1987).
- [31] Casassa M.P., Golde M.F., Kvaran A. , Emission spectra of the noble-gas halides: the B(1/2)-A(1/2) system // *Chem. Phys. Lett.*, v.59, N1, p.51, (1978).
- [32] Автаева С.М. Барьерный разряд. Исследование и применение, Бишкек: Изд-во КРСУ, 290 с., (2009).
- [33] Sosnin E.A., Sokolova I.V., Tarasenko V.F., Development and Applications of Novel UV and VUV Excimer and Exciplex Lamps for the Experiments in Photochemistry , In Book: *Photochemistry Research Progress* (Eds. by A. Sanchez, S.J. Gutierrez), Nova Science Publishers, pp. 225–269 , (2008).
- [34] Heit G., Neuner A., Saugy P.-Y., Braun A.M., Vacuum-UV (172 nm) Actinometry. The Quantum Yield of the Photolysis of Water // *J. Chem. Phys. A*, №102, pp.5551-5561, (1998).

#### **Основные публикации по теме диссертации:**

- [1\*] Г.Н.Герасимов, Б.Е.Крылов, **Г.Н.Зверева**, Р.Халлин, А.Арнесен, Ф.Хайкеншольд, ВУФ спектр эксимеров криптона, возбуждаемых в охлаждаемом разряде постоянного тока// **Оптика и спектроскопия**, т. 81, №6, сс.935-943, (1996).
- [2\*] Г.А.Волкова, **Г.Н.Зверева**, Токовые характеристики БР в инертных газах ( Ar, Kr, Xe)// **Оптика и спектроскопия**, т.106, №5, сс.718-722, (2009).
- [3\*] G.Gerasimov, R.Hallin, B.Krylov, A.Treshchalov, A.Morozov, A.Lisovski, **G.Zvereva** and A.Arnesen, The VUV narrow band emission from an inert gas mixture discharge// *Proc. Of SPIE*, v.6263, p.626311, (2006).
- [4\*] И.И.Галактионов, **Г.Н.Зверева**, Исследование неравновесного заселения колебательных уровней состояния  $d^3\Pi_g$  молекулы  $C_2$  // **Оптика и спектроскопия**, т.73, вып. 1 , сс.111-113, (1992).
- [5\*] Г.Н.Герасимов, **Г.Н.Зверева**, Численное моделирование барьерного разряда в Хе// **Оптика и спектроскопия**, т.90, №3, сс.376-383, (2001).
- [6\*] Г.А.Волкова, Г.Н.Герасимов, **Г.Н.Зверева**, Б.Е.Крылов, Лампа барьерного разряда// Патент RU 2 385 515 С2. Приоритет 20.11.2007г. Рег.№ заявки 2007142993/28, 20.11.2007.Опубл. 27.03.2010.Бюл. №9.

- [7\*] **G.Zvereva**, G.Volkova, G.Gerasimov, Electric characteristics of rare gases barrier discharges//, Proceedings of 10<sup>th</sup> International Symposium on High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry (NAKONE X), Saga, Japan, pp.193-196, (2006).
- [8\*] Г.А.Волкова, **Г.Н. Зверева**, С.В.Автаева, Э.Б.Кулумбаев, Н.Ж.Кайрыев, А.В.Скорняков Исследование и моделирование барьерных разрядов с целью оптимизации эксимерных ламп // **Научно-технический вестник Санкт-Петербургского государственного университета информационных технологий, механики и оптики**, №43, сс.161 -169, (2007).
- [9\*] **G.Zvereva**, G.Gerasimov, Calculations of Xe barrier discharge parameters// Contributed Papers of VII International Symposium on High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry, v.1, pp.134-138, Greifswald, Germany, (2000).
- [10\*] **G.Zvereva**, M.Maaspuro, Investigations of DBD power supplier optimization//, Proceedings of 10<sup>th</sup> International Symposium on High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry (NAKONE X), Saga, Japan, p.188, (2006).
- [11\*] Г.Н.Герасимов, Г.А.Волкова, **Г.Н.Зверева**, Р.Халлин, Ф.Хайкеншельд, ВУФ спектр барьерного разряда в смеси криптона и ксенона // **Оптика и спектроскопия**, т. 88, №6, сс.897-902, (2000).
- [12\*] **Г.Н.Зверева**, А.В.Логинов, Передача возбуждения в плазме барьерного разряда в смеси криптон-ксенон // **Оптика и спектроскопия**, т.90, №4, сс.570-576, (2001).
- [13\*] **Г.Н.Зверева**, Расчет параметров ВУФ излучения эксимеров смеси Kr-Xe в плазме барьерного разряда // **Оптика и спектроскопия**, т. 94, №2, сс. 220-227, (2003).
- [14\*] Г.А.Волкова, **Г.Н.Зверева**, Исследование параметров барьерного разряда в смесях Kr-I<sub>2</sub>, Xe-I<sub>2</sub> // **Оптика и спектроскопия**, т.96, №3, сс. 403-411, (2004).
- [15\*] С.М.Авдеев, **Г.Н.Зверева**, Э.А.Соснин, Исследование условий эффективной люминесценции I<sub>2</sub>\* (342 нм) в барьерном разряде в смеси Kr-I<sub>2</sub> // **Оптика и спектроскопия**, т.103, №6, сс. 949-955, (2007).
- [16\*] **G.Zvereva**, Calculations of Rare Gas-Iodine Mixtures Barrier Discharges Parameters// Proceedings of the 10<sup>th</sup> International Symposium on the Science and Technology of Light Sources (LS-10), Toulouse, France, pp.539-540, (2004).
- [17\*] **G.N.Zvereva**, G.A.Volkova, Investigations of Kr-I<sub>2</sub> Barrier Discharge// Proceedings of the XXV International Conference on Phenomena in Ionized Gases (XXV ICPIG), Nagoya, Japan, pp.329-330, (2001).
- [18\*] **G.Zvereva** and G.Volkova, Investigations of Rare Gas-Iodine Barrier Discharge Efficiency// Proceedings of the XXVI International Conference on Phenomena in Ionized Gases (XXVI ICPIG), Greifswald, Germany, (2003).

- [19\*] G.N.Gerasimov, G.A.Volkova, **G.N.Zvereva**, VUV spectrum of barrier discharge in Xe-Kr mixture // Proceedings of the 8<sup>th</sup> International Symposium on the Science and Technology of Light Sources (LS-8), Greifswald, Germany, pp.248-249, (1998).
- [20\*] **G.Zvereva**, G.Gerasimov, Calculations of Kr-Xe mixture barrier discharge parameters// Proceedings of The 9<sup>th</sup> International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, Ithaca, USA, pp.427-428, (2001).
- [21\*] Г.Н.Герасимов, **Г.Н.Зверева**, Численное моделирование процессов в плазме разряда в криптоне // **Оптический журнал**, т.64, №1, сс.20-24, (1997).
- [22\*] G.Gerasimov, B.Krylov, A.Loginiv, **G.Zvereva**, R.Hallin, A.Arnesen, F.Heijkenskjold, The vacuum ultraviolet spectrum of krypton and xenon excimers excited in a cooled dc discharge // **Appl. Phys. B**, v.66, pp.81-90, (1998).
- [23\*] **Г.Н.Зверева**, Расчет параметров эксимерных источников света на основе положительного столба тлеющего разряда // **Оптика и спектроскопия**, т.109, №3, pp.554-560, (2010).
- [24\*] **Г.Н.Зверева**, Расчет параметров плазмы криптона возбуждаемой пучком электронов с дополнительным подогревом высокочастотным электрическим полем// **Оптика и спектроскопия**, т.108, №1, сс.8-15, (2010).
- [25\*] **G.Zvereva**, T.Ottenthal, R.Krucken, A.Morozov and A.Ulrich, Numerical simulation of electron beam sustained rf discharges//Abstracts of VIII-th International Conference for Atomic and Molecular Pulsed Lasers (AMPL -2007), Tomsk, p.82, (2007).
- [26\*] А.А.Великин, И.И.Галактионов, **Г.Н.Зверева** и М.А.Канатенко, Использование анизотропно-резистивных электродов в CO<sub>2</sub> лазерах высокого давления// **Кв. электроника**, т.20, с.628, (1990).
- [27\*] **Г.Н.Зверева**, Исследование усилительных свойств газоразрядной плазмы криптона // **Оптика и спектроскопия**, т.100, №6, сс.896-903, (2006).
- [28\*] **Г.Н.Зверева**, М.И.Ломаев, Д.В.Рыбка, В.Ф.Тарасенко, О возможности применения объемного разряда, инициируемого пучком электронных лавин, для создания лазера на димерах криптона // **Оптика и спектроскопия**, т.102, №1, сс.36-43, (2007).
- [29\*] **Г.Н.Зверева**, Исследование разложения воды вакуумным ультрафиолетовым излучением// **Оптика и спектроскопия**, т.108, №6, сс.787-794, (2010).
- [30\*] **G.Zvereva**, E.Senenko, Investigation of liquid and vapor water photolysis by means of VUV excimer lamps emission// Proceedings of 4<sup>th</sup> International Congress on Cold Atmospheric Pressure Plasmas: Sources and Applications (CAPPSSA 2009), Ghent, Belgium, pp.168-171, (2009).

[31\*] **G.Zvereva**, Investigations of water photolysis by means of vacuum ultraviolet emission of excimer lamps// Abstracts of VII-th International Conference for Atomic and Molecular Pulsed Lasers (AMPL-2009), Tomsk, p.88, (2009).

[32\*] **G.Zvereva**, Investigation of water photolysis by means of VUV excimer lamps, Proceedings of The 12th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, Eindhoven, Netherlands, pp.319-320, (2010).