

## Methods of water decontamination by means of electric discharges

E. A. Azizov, A. I. Emel'yanov, V. A. Yagnov

RF SRC "Troitsk Institute for Innovation and Fusion Research" TRINITI,  
Troitsk, Moscow region, Russia

*The possibilities of utilizing phenomena accompanying various electric discharges in water such as UV radiation, shock wave, ozone formation etc. for water decontamination are analyzed. The results of experimental investigations of a device are presented which show advantages of a new phenomenon observed in electric discharge in submerged water stream for destruction of pathogenic germs.*

УДК 537.525.1

## Импульсно-периодический самоиницирующийся объемный разряд на смеси аргон/элегаз

А. К. Шуаибов, Л. Л. Шимон, И. В. Шевера, А. И. Дашченко  
Ужгородский национальный университет, г. Ужгород, Украина

*Приводятся результаты исследования импульсно-периодического объемного разряда на смеси  $Ar/SF_6$  при давлении  $\leq 1$  кПа. Объемный разряд в системе электродов "сферический анод — плоский катод" с межэлектродным расстоянием 3 см формировался за счет развития прилипательной неустойчивости плазмы. Изучались пространственные и вольт-амперные характеристики разряда, спектры излучения плазмы, ресурсные характеристики излучения полосы с  $\lambda = 193$  нм  $ArF(B-X)$ , а также временные параметры напряжения, тока и суммарного излучения разрядной плазмы в спектральной области 200—700 нм.*

Продольный тлеющий разряд постоянного тока в смесях тяжелых инертных газов с молекулами  $Cl_2$ ,  $HCl$ ,  $F_2$ ,  $NF_3$ ,  $SF_6$  и др. нашел довольно широкое применение для накачки непрерывных эксиламп с цилиндрической рабочей апертурой [1—7]. В таких излучателях используются высоковольтные источники постоянного напряжения ( $U_{ch} \geq 5-10$  кВ), но ресурс их работы в газостатическом режиме является низким. Увеличение объема активной среды и площади рабочей апертуры эксилампы за счет перехода к тлеющему разряду в широких трубах (диаметром  $d \geq 5$  см) ограничено контрагированием тлеющего разряда уже при давлениях порядка 0,5—1,0 кПа. Из активных сред подобных излучателей наименее изучены плазменные среды на основе фторидных малоагрессивных соединений сложного состава (типа элегаза  $SF_6$  или  $CF_4$ ), продукты диссоциации которых в разряде явля-

ются составляющими образования фторидов тяжелых инертных газов с высоким ресурсом излучения полос в области 193 нм ( $ArF$ ), 249 нм ( $KrF$ ) и 353 нм ( $XeF$ ) [8]. Одна из основных причин связывания галогенов в подобных лампах ("жестчание" газовой смеси) — диффузия галогенсодержащих молекул в сильно нагретую разрядом стеклянную оболочку эксилампы и ее электродов (особенно катода в атмосфере ксенона или криптона). Поэтому для устранения этого канала утечки галогенонесителя возможно использование короткого тлеющего разряда, у которого стеклянная оболочка не соприкасается с плазмой объемного разряда. Эксперимент с перфорированным электродом (на примере планарной  $XeCl$ -лампы) показал, что ее эффективность является достаточно высокой ( $\geq 4\%$ ), а величина постоянного напряжения на аноде лампы не превышала 1 кВ [9].

В работе приводятся результаты исследования характеристик короткого импульсно-периодического объемного разряда на смеси аргона с элегазом при низком давлении.

### Техника эксперимента

Объемный разряд в газовой смеси  $Ar/SF_6$  ( $P = 0,1-1,5$  кПа) зажигался в системе электродов типа "сферический анод — плоский катод" (рис. 1). Межэлектродное расстояние и радиус закругления рабочей поверхности анода равнялись, соответственно, по 3 см. Диаметр катода составлял 9 см, а анода — 7 см. Напряжение положительной полярности поступало на анод от источника постоянного напряжения. Для стабилизации разряда и ограничения тока в анодной цепи использовалось сопротивление  $R_0 = 20$  кОм. Источник питания позволял получать ток разряда в диапазоне 1—70 мА.

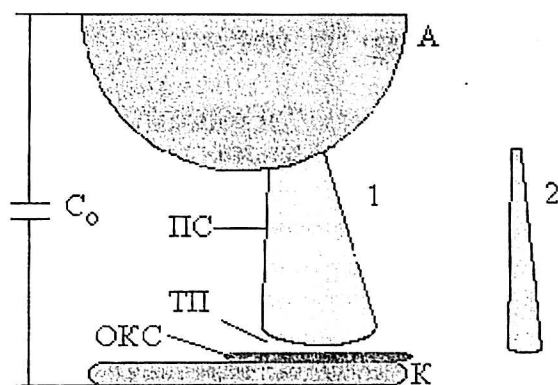


Рис. 1. Система электродов объемного разряда и вид его поперечного сечения при  $P(Ar)/P(SF_6)$ :

1 — 160/120 Па; 2 — 400/360 Па.

А — анод; К — катод; ПС — положительный столб; ТП — темное пространство; ОКС — отрицательное катодное свечение;  $C_0$  — шунтирующий конденсатор

Система электродов крепилась на диэлектрическом фланце разрядной камеры объемом 10 л, которая была пристыкована к полуметровому вакуумному монохроматору с входным окном из фторида лития. Спектральное разрешение монохроматора не превышало 0,7 нм. Излучение плазмы регистрировалось фотоумножителем ФЭУ-142 с LiF окном. Система "вакуумный монохроматор + ФЭУ-142" была прокалибрована по шкале относительной спектральной чувствительности в области 130—350 нм. Точность измерения относительной интенсивности (яркости) УФ-ВУФ излучения составляла 7—10%. В эксперименте регистрировалось также суммарное излучение плазмы в спектральной области 200—700 нм с использованием широкополосного импульсного ФЭУ "Фотон" и импульсного

осциллографа С1-99. Временное разрешение регистрации фототока суммарного излучения плазмы не превышало 10 нс. Частота следования импульсов тока объемного разряда контролировалась с помощью осциллографа С1-99 и частотомера ЧЗ-57. Первичными датчиками при измерении осциллограмм тока и переменной составляющей напряжения на разрядном промежутке были маломиндуктивный шунт ( $r_{ш} = 1-5$  Ом) и емкостной делитель напряжения с коэффициентом деления  $k_d = 400$ . Точность осциллографических измерений составляла 10—12%.

Пространственные характеристики излучения плазмы фиксировались путем фотографирования разряда и дальнейшей обработки фотографий или негативов с использованием сканера и персонального компьютера.

### Пространственные и электрические характеристики

Вид объемного разряда на смесях  $Ar/SF_6$  разного состава и давления показан на рис. 1. Разряд имел форму усеченного конуса с меньшим основанием в области анода  $d(A)$ . Большее основание плазмообразования  $d(K)$  имело сферическую форму. Оно было отделено от плазмы отрицательного катодного свечения (ОКС) темным пространством (ТП) величиной 1—5 мм. Зависимость величины  $d(A)$  и  $d(K)$  плазмообразования на основе смесей  $Ar/SF_6$  приведена на рис. 2.

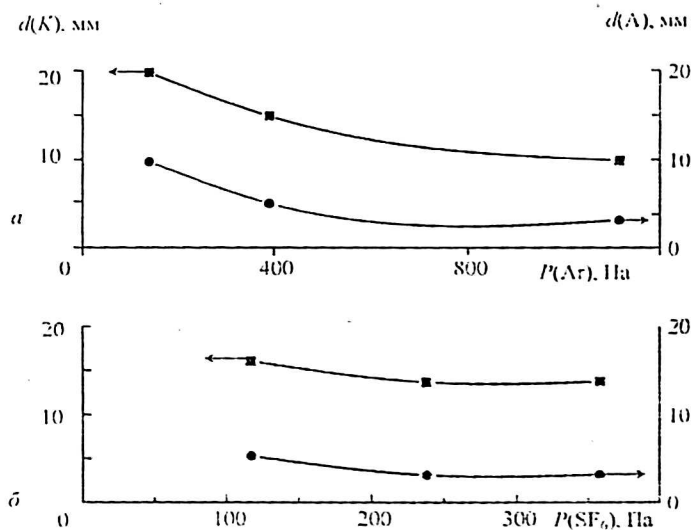


Рис. 2. Зависимости величины диаметров оснований плазмообразования от величины парциального давления элегаза в смеси  $Ar/SF_6$  при  $P(Ar) = 400$  Па (а) и от  $P(Ar)$  при  $P(SF_6) = 120$  Па (б)

Величина  $d(K)$  была в 2—3 раза больше, чем  $d(A)$ . С увеличением парциального давления  $SF_6$  и  $Ar$  величины  $d(A)$  и  $d(K)$  значительно уменьшились. Наиболее сильно (в 3—5 раза) умень-

шался объем плазмы в настоящем эксперименте при увеличении  $P(\text{Ar})$  от 0,1 до 1,3 кПа. Одновременное увеличение  $P(\text{Ar})$  и  $P(\text{SF}_6)$  до 350–400 Па приводило к значительному уменьшению  $d(A)$  и  $d(K)$  и перемещению плазменного столба в периферийную область системы электродов, где реализовались более низкие значения параметра  $E/N$ . При  $P(\text{SF}_6) \leq 1\text{--}2$  кПа разряд начинал хаотически перемещаться по кругу в периферийной области разрядного промежутка.

Вольт-амперная характеристика (ВАХ) объемного разряда представлена рис. 3. Статическая ВАХ (см. рис. 3, а) отражала функциональную зависимость между усредненным по времени напряжением на разрядном промежутке и средним током разряда.

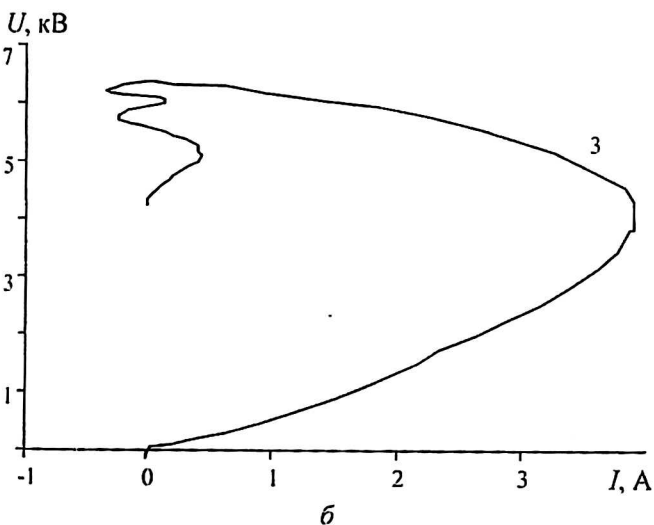
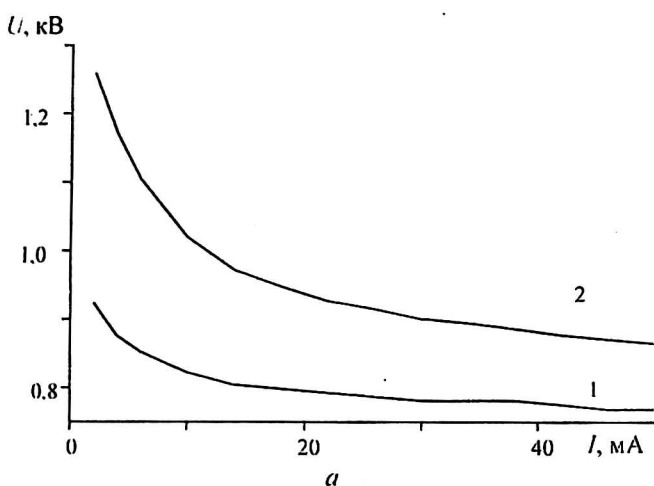


Рис. 3. ВАХ объемного разряда:

- а — статическая на смеси  $P(\text{Ar})/P(\text{SF}_6)$ , равной:
  - 1 — 280/120 Па; 2 — 800/120 Па;
- б — динамическая на смеси  $P(\text{Ar})/P(\text{SF}_6)$ , равной:
  - 3 — 400/120 Па

Она была близка по форме к соответствующим ВАХ тлеющего разряда постоянного тока на смеси  $\text{Kr}/\text{SF}_6$  [10]. В области малых средних токов  $I_{ch} \leq 10\text{--}15$  мА статическая ВАХ соответ-

ствовала поднормальной стадии тлеющего разряда. С увеличением разрядного тока разряд переходил в нормальную стадию горения, когда зависимость величины  $U_{ch}$  от среднего тока была слабой (плато на кривой  $U_{ch} = f(I_{ch})$ ). Увеличение  $P(\text{Ar})$  с 280 до 800 Па при небольшом фиксированном значении  $P(\text{SF}_6)$  приводило к росту напряжения зажигания разряда с 950 до 1250 В и величины среднего квазистационарного напряжения на нормальной стадии с 800 до 950 В.

Другой вид ВАХ был получен, когда брались мгновенные значения тока и напряжения из соответствующих осциллограмм (динамическая ВАХ разряда, см. рис. 3, б). В начальный период времени, когда происходит только формирование плазмы в межэлектродном пространстве, ток разряда увеличивался до 4 А с ростом напряжения на промежутке до 5 кВ (аномальный режим существования тлеющего разряда). В последующие моменты времени ток проходил главный максимум и уменьшался, что приводило к формированию на динамической ВАХ обширной области с отрицательным наклоном. Такие области на ВАХ характерны для плазмы, находящейся в режиме прилипательной неустойчивости [12–14]. После основных максимумов  $U$  и  $I$  их вторичные максимумы давали качественно подобную картину на динамической ВАХ разряда.

### Оптические, временные и ресурсные характеристики

Предварительные исследования яркости суммарного излучения в спектральных областях 190–300 и 300–700 нм, проведенные с помощью наборов светофильтров, показали, что яркость излучения в области 300–700 нм не превышала 10–15 % от полной яркости излучения в области 190–700 нм. Поэтому регистрируемое в эксперименте суммарное излучение может быть отнесено к спектральной области, где основной вклад дает молекула  $\text{ArF}$ . На рис. 4 приведен типичный спектр излучения плазмы на основе смеси  $\text{Ar}/\text{SF}_6$ . Превалирующий вклад в ВУФ-УФ спектры излучения разряда принадлежал полосам 193 нм  $\text{ArF}(B-X)$  и 250 нм  $\text{ArF}(C-A)$ . Из-за применения в эксперименте газов “технической чистоты” на фоне широкой  $C-A$  полосы молекулы  $\text{ArF}$  наблюдались слабые полосы молекул-примесей (преимущественно  $\text{N}_2$ ). Вследствие незавершенности процессов колебательной релаксации внутри  $C$  и  $B$  состояний  $\text{ArF}$  при низких давлениях рабочей смеси [15], полосы  $\text{ArF}(B-X; C-A)$  сильно уширены и, перекрываясь между собой, образуют единую полосу в спектральном диапазоне 150–300 нм. Максимальная

яркость УФ-ВУФ излучения полос  $\text{ArF}(B-X; C-A)$  была получена в разряде на смесях  $P(\text{Ar})/P(\text{SF}_6) = 700-900/80-120$  Па. Увеличение  $P(\text{Ar})$  и  $P(\text{SF}_6)$  выше указанной границы приводило к уменьшению яркости излучения суперпозиции полос  $\text{ArF}(B-X; C-A)$ , уменьшению объема плазмообразования и появлению неустойчивости разряда.

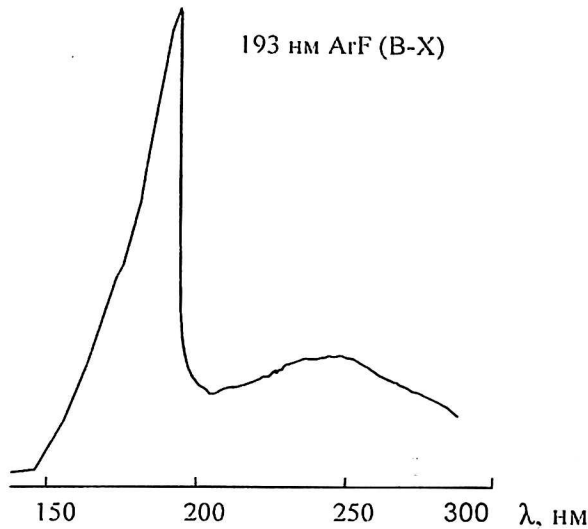


Рис. 4. Спектр излучения плазмы объемного разряда на смеси  $P(\text{Ar})/P(\text{SF}_6) = 800/120$  Па при  $I_{\text{ch}} = 30$  мА

Одним из признаков наличия прилипательной неустойчивости разрядной плазмы (которая генерируется с помощью стационарного источника накачки) является модуляция тока и излучения разряда во времени [11, 12]. Поэтому важным является исследование не только усредненных, но и временных параметров разрядной плазмы. Осциллограммы импульсной составляющей напряжения, тока и суммарного излучения плазмы на смесях  $\text{Ar}/\text{SF}_6$  разных состава и давления приведены на рис. 5. Постоянные составляющие тока и напряжения в исследуемом разряде отсутствовали, сам он существовал в импульсно-периодическом режиме. Амплитуда импульсного напряжения достигала 7–8 кВ, в то время как величина постоянного напряжения на аноде не превышала 1 кВ. Импульс напряжения имел сравнительно короткий передний ( $\tau \leq 150$  нс) и затянутый до 1,5 мкс задний фронт. Импульс тока формировался и достигал максимальной величины на переднем фронте импульса напряжения. При увеличении  $P(\text{Ar})$  со 160 до 1330 Па (для  $P(\text{SF}_6) = 120$  Па) длительность тока по основанию осциллограммы увеличивается со 100 до 250 нс, а амплитуда его главного максимума уменьшалась с 20 до 2,5 А. Яркость суммарного излучения при этом уменьшалась в два раза. Амплитудное значение напряжения на проме-

жутке уменьшалось с 8 до 5 кВ. Увеличение  $P(\text{SF}_6)$  до 360 Па при  $P(\text{Ar}) = 400$  Па приводило к сокращению длительности главного максимума импульса тока до 100 нс и росту его амплитуды до 20 А. Увеличение парциального давления  $\text{Ar}$  и  $\text{SF}_6$  приводило к сдвигу импульса суммарного излучения плазмы с области переднего фронта импульса тока в область его максимума. При этом значительная часть оптического импульса находилась в ближнем послесвечении тока-накачки, что может быть обусловлено рекомбинационным режимом образования возбужденных частиц.

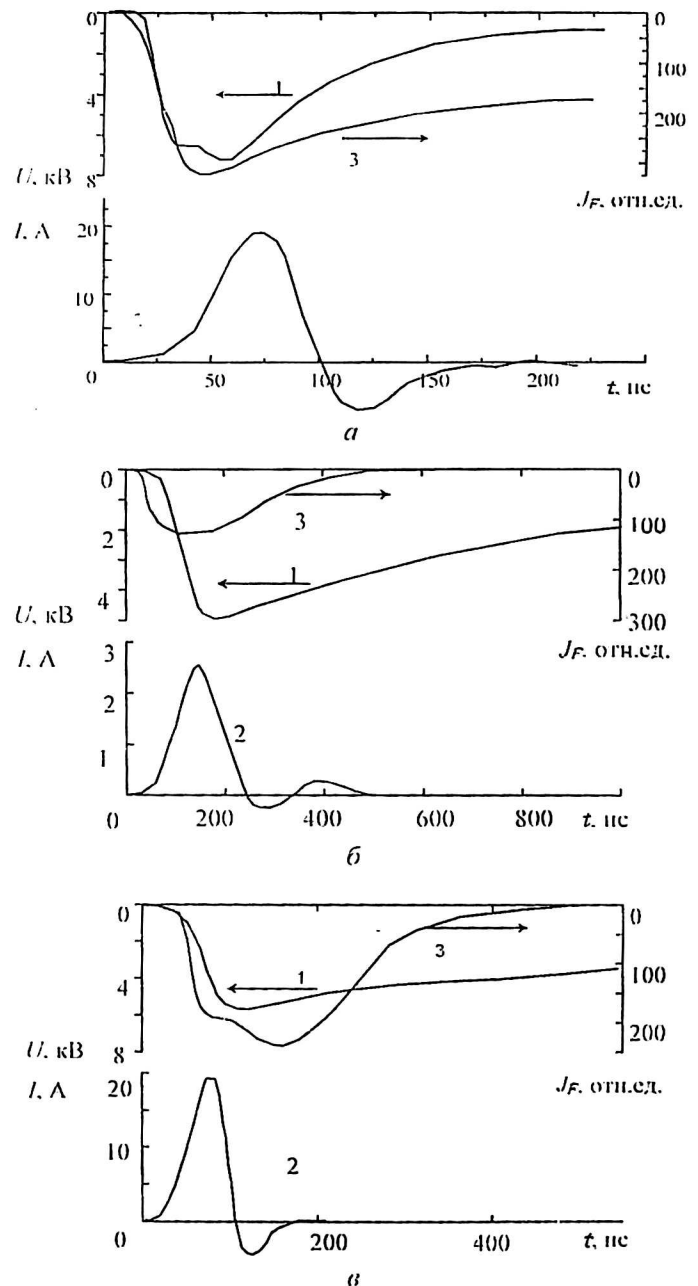


Рис. 5. Осциллограммы импульсной составляющей при  $I_{\text{ch}} = 30$  мА и  $C_0 = 220$  нФ на основе смеси  $P(\text{Ar})/P(\text{SF}_6)$ : а — 160/120 Па; б — 1330/120 Па; в — 400/360 Па; 1 — напряжения на разрядном промежутке; 2 — ток разряда; 3 — суммарное излучение плазмы

Ресурсные характеристики излучения полосы 193 нм  $\text{ArF}(B-X)$  изучались при двух разных значениях среднего тока разряда (рис. 6). При умеренном токе разряда ( $I_{ch} \leq 10$  мА) яркость излучения полосы 193 нм плавно уменьшалась на 60–70 % от своего максимального значения и при  $t = 40$ –50 мин практически выходила на плато, где еще в течение 2–3 ч работы сохранялся уровень яркости (0,2–0,3)  $J_{max}$ . При токе  $I_{ch} \geq 30$  мА в первые 5–10 мин выявлено включение новых каналов образования молекул  $\text{ArF}$ , что может быть обусловлено дополнительными реакциями образования положительных ионов аргона с отрицательно заряженными фрагментами деструкции молекул элегаза в плазме. Возможно также и образование  $\text{ArF}$  в результате “гарпунных” реакций между радикалами типа  $\text{SF}_n$  ( $n = 1$ –3) с метастабильными атомами  $\text{Ar}$ . Для этих каналов характерным является более высокий уровень средней электрической мощности разряда. В диапазоне  $t = 10$ –40 мин величина  $J_{max}$  уменьшается на 60 % и в последующем также выходила на более слабую от времени зависимость. При еще более низком токе разряда ( $I_{ch} = 2$ –4 мА) ресурс излучения лампы на 193 нм  $\text{ArF}$  достигал 4–5 ч. С применением медленной замены отработанной смеси  $\text{Ar}/\text{SF}_6$  ( $v \leq 0,01$  л/мин) возможна устойчивая работа эксилампы и при токах разряда  $4 \leq I_{ch} \leq 30$  мА.

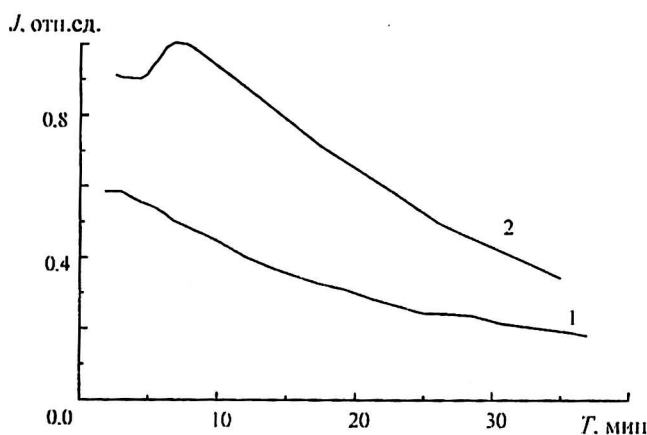
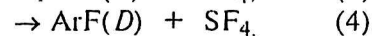
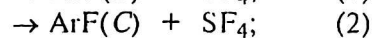


Рис. 6. Зависимость яркости излучения полосы с  $\lambda = 193$  нм  $\text{ArF}(B-X)$  от времени горения разряда в смеси  $P(\text{Ar})/P(\text{SF}_6) = 800/120$  Па при  $I_{ch}$ , равном: 1 – 10 мА; 2 – 30 мА

Оценки величины УФ-ВУФ мощности излучения эксилампы показали, что средняя мощность излучения со всей рабочей поверхности достигает 1–2 Вт при КПД  $\leq 5$  %.

Остановимся кратко на основных процессах формирования молекул  $\text{ArF}(B-X)$  в плазме

низкой плотности на основе смеси  $\text{Ar}/\text{SF}_6$ . По аналогии с микроволновым разрядом низкого давления в смесях  $\text{Kr}(\text{Xe})/\text{SF}_6$  [16], а также учитывая результаты численного моделирования импульсного разряда в смеси инертного газа с молекулами  $\text{SF}_6$  [17], можно предложить следующие реакции образования молекул  $\text{ArF}$  в условиях настоящего эксперимента:



Из реакций (1)–(4) следует, что основной вклад в образование молекул  $\text{ArF}(B, C)$  вносит реакция ион-ионной рекомбинации, для которой константа скорости реакции существенно зависит от типа электронного состояния иона  $\text{Ar}^+$  [16]. Численное моделирование импульсной электроразрядной плазмы на основе элегаза показало, что плотность отрицательных ионов  $\text{SF}_6^-$  примерно на порядок ниже, чем ионов  $\text{SF}_5^-$  [17], поэтому они выбраны в качестве основных отрицательных ионов в реакциях ион-ионной рекомбинации. Импульсная плазма элегаза является ион-ионной, т. е. у нее плотность свободных электронов на 2–3 порядка ниже плотности отрицательных ионов, которые в процессе рекомбинации и приводят к формированию эксимерных молекул.

### Заключение

Исследование самоиницирующегося объемного разряда в смеси аргона с элегазом при низких давлениях показало, что при подаче на разрядный промежуток постоянного напряжения ( $U_{ch} \leq 1$  кВ) разряд существовал в импульсно-периодическом режиме в форме домена; на динамической ВАХ объемного разряда формировался обширный участок с отрицательным наклоном, вызванным развитием прилипательной неустойчивости плазмы; плазма является широкополосным источником излучения в области 150–300 нм, образующейся на основе уширенных полос с максимумами при 193 нм  $\text{ArF}(B-X)$  и 250 нм  $\text{ArF}(C-A)$ . Для получения максимальной яркости УФ-ВУФ излучения плазмы наиболее оптимальными были газовые смеси  $P(\text{Ar})/P(\text{Cl}_2) = 600$ –900/60–120 Па; средняя мощность коротковолнового излучения составляла 1–2 Вт при КПД  $\leq 5$  %; динамика прохождения тока и излучения разряда частично под-

тверждает рекомбинационный канал формирования эксимерных молекул; плазма разряда является ион-ионной, где ее основные составляющие — ионы  $\text{Ar}^+$  и  $\text{SF}_5^-$  в результате рекомбинации формируют молекулы  $\text{ArF}$ ; ресурс работы эксилампы увеличивался с уменьшением среднего тока разряда от от 30 до 2—4 мА и достигал 4—5 ч. В режиме медленной замены рабочей смеси возможна устойчивая работа при  $I_{ch} = 4\text{—}30$  мА; на основе короткого тлеющего разряда возможна разработка безкоммутаторной импульсно-периодической УФ-ВУФ лампы с широким диапазоном применения.

#### Л и т е р а т у р а

1. Головицкий А. П., Кан С. Н.//Оптика и спектроскопия. 1993. Т. 75. С. 604.
2. Панченко А. Н., Тарасенко В. Ф.//Там же. 1998. Т. 84. № 3. С. 389.
3. Бойченко А. М., Панченко А. Н., Тарасенко В. Ф., Яковленко С. И.//Квантовая электроника. 1996. Т. 23. № 1. С. 3.

4. Shuaibov A. K., Shimon L. L., Dashchenko A. I., Shevera I. V.// Journal of Physical Studies. 2001. V. 5. № 2. P. 131.
5. Шуаибов А. К., Даценко А. И., Шевера И. В.// Квантовая электроника. 2001. Т. 31. № 4. С. 371.
6. Шуаибов А. К., Даценко А. И., Шевера И. В.//Оптика и спектроскопия. 2002. Т. 92. № 5. С. 760.
7. Шуаибов А. К., Шимон Л. Л., Даценко А. И., Шевера И. В.// ПТЭ. 2002. Т. 92. № 5. С. 760.
8. Иценко В. Н., Лисицын В. Н., Ражев А. М.//Письма в ЖТФ. 1976. Т. 2. Вып. 18. С. 839.
9. Соснин Э. А., Тарасенко В. Ф.//ЖТФ. 1997. Т. 67. № 12. С. 43.
10. Шуаибов А. К., Шевера И. В.//ЖПС. 2002. Т. 69. № 1. С. 113.
11. Райзер Ю. П.//Физика газового разряда. — М., 1987.
12. Александров В. Л., Кочетов И. В., Мазюков Д. А., Напартович А. П.//Физика плазмы. 1992. Т. 18. Вып. 11. С. 1468.
13. Александров В. Л., Напартович А. П.//УФН. 1993. Т. 163. № 3. С. 1.
14. Голубев В. С., Пашикин С. В.//Тлеющий разряд повышенного давления. — М.: Наука, 1990.
15. Дацюк В. В., Измайлов И. А., Кочелан В. А.//УФН. 1998. Т. 168. № 4. С. 439.
16. Tsuji M., Furusawa M., Nishimura Y.//Journ. Chem. Phys. 1990. V. 92. № 11. P. 6502.
17. Бычков Ю. И., Горохов С. Л., Ястремский А. Г.// Квантовая электроника. 2000. Т. 30. № 8. С. 733.

## Pulse-periodic selfinitiated volume discharge on the mixture argon/elegas

A. K. Shuaibov, L. L. Shimon, I. V. Shevera, A. I. Dashchenko  
Uzhgorod National University, Uzhgorod, Ukraine

*The results of investigation pulse-periodic volume discharge on mixture Ar/SF<sub>6</sub> under the pressure of  $\leq 1$  kPa are presented in this paper. A volume discharge in the system of electrodes "spheric anode — plan cathode" with a interelectrode distance of 3 cm was formed by means of the development of attachment instability of plasma. Space and volt-ampere characteristics of a discharge, spectra of plasma radiation, resource characteristics of radiation band which  $\lambda = 193$  nm ArF(B-X) and temporary parameters of tension, current and summary radiation of discharge plasma in the spectral range 200—700 nm were studied investigated.*