



ВИПРОМІНЮВАЛЬНІ ХАРАКТЕРИСТИКИ ТА ПАРАМЕТРИ ГАЗОРОЗРЯДНОЇ ПЛАЗМИ НА СУМІШІ ПАРІВ ДИХЛОРИДУ РТУТІ З АЗОТОМ

А. О. Малініна , О. К. Шуайбов 
Ужгородський національний університет,
пл. Народна, 3, Ужгород, 88000, Україна

(Отримано 22 лютого 2019 р.; в остаточному вигляді — 01 лютого 2020 р.; прийнято до друку — 04 лютого 2020 р.; опубліковано онлайн — 03 квітня 2020 р.)

Подано результати досліджень оптичних характеристик та параметрів газорозрядної плазми бар'єрного розряду на суміші парів дихлориду ртуті з азотом, що була робочим середовищем ексиплексного газорозрядного випромінювача, конструкція якого відрізнялася від коаксіальної. Установлено: функції розподілу електронів за енергіями, транспортні характеристики, питомі втрати потужності розряду на електронні процеси, концентрацію й температуру електронів, а також константи швидкостей процесів пружного і непружного розсіювання електронів на компонентах робочої суміші залежно від величини зведеної напруженості електричного поля. Константа швидкості процесу, що приводить до утворення ексиплексних молекул монохлориду ртуті, становить величину $2.3 \cdot 10^{-15} \text{ м}^3/\text{с}$ для зведеного електричного поля $E/N = 4.57 \cdot 10^{-15} \text{ В}\cdot\text{см}^2$ при якому в умовах експерименту спостерігалася максимальна потужність випромінювання в синьо-зеленій спектральній ділянці ($\lambda_{\text{макс.}} = 557 \text{ нм}$).

Ключові слова: газорозрядна плазма, випромінювання ексиплексних молекул, видимий спектральний діапазон, функція розподілу електронів за енергіями, константа швидкості процесу, суміші парів дигалогенідів ртуті з газами.

DOI: <https://doi.org/10.30970/jps.24.1401>

I. ВСТУП

Газорозрядна плазма на суміші парів дихлориду ртуті з газами є робочим середовищем джерел когерентного і спонтанного випромінювання в синьо-зеленій спектральній ділянці з довжиною хвилі в максимумі інтенсивності ($\lambda_{\text{макс.}}$) 557 нм. Створення газорозрядної плазми і збудження компонент робочої суміші джерел випромінювання здійснювалося за атмосферного тиску в об'ємному, тліючому, бар'єрному й поверхневому розрядах [1–12]. Досліджували оптичні характеристики у випромінювачі з робочими об'ємами $\geq 200 \cdot 10^{-6} \text{ м}^3$ та $\sim 1 \cdot 10^{-6} \text{ м}^3$. Такі об'єми необхідні для створення джерел випромінювання в синьо-зеленій спектральній ділянці з великими й малими значеннями потужності випромінювання, які використовують для розв'язання різних наукових і прикладних задач [13, 14]. У джерелах спонтанного випромінювання як буферний газ здебільшого застосовували гелій. Їхня конструкція була коаксіальною, а випромінювальною зоною служила бічна поверхня. Для ряду наукових і технологічних застосувань необхідно забезпечувати більшу густину випромінювання й рівномірність її по перерізу випромінювача та використовувати в робочій суміші “важчі”, ніж гелій, буферні гази, які мають меншу проникальну здатність через стінки випромінювача і тим самим забезпечують більший ресурс роботи джерела випромінювання [15].

Метою дослідження було виявити закономірності в оптичних характеристиках газорозрядної плазми на суміші парів дихлориду ртуті з азотом, визначити парціальний тиск буферного газу азоту, за якого досягається максимальна потужність випромінювання

в синьо-зеленому спектральному діапазоні у випромінювачі, конструкція якого відрізнялася від коаксіального. Крім того, метою дослідження було визначити параметри плазми: функцію розподілу електронів за енергіями, транспортні та енергетичні характеристики, внески потужності розряду в електронні процеси, концентрацію та температуру електронів, а також константи швидкостей процесів пружного та непружного розсіювання електронів на компонентах робочої суміші залежно від величини зведеного електричного поля (E/N — відношення напруженості електричного поля до загальної концентрації компонент робочої суміші), а також установити їхні величини для значення E/N , за якого спостерігалася максимальна потужність випромінювання в експерименті.

II. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА УСТАНОВКА ТА МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ

Газорозрядну плазму на сумішах парів дихлориду ртуті та азоту створювали бар'єрним розрядом (БР) у пристрої (випромінювач (В)), зображеному на рисунку 1, який виготовлено з кварцової трубки (1) діаметром 34 мм і довжиною 200 мм. Уздовж осі газорозрядного випромінювача на відстані 15 мм розташовано два електроди (3) діаметром 5 мм, які виготовлені з вольфраму. Один з електродів був у кварцовій трубці (2) діаметром 9 мм. Для зменшення виходу парів дихлориду ртуті з випромінювача в систему відкачування й газонаповнення (СВГ) до випромінювача приварюють відросток (5), у середині якого є капіляр діаметром 0.5 мм.



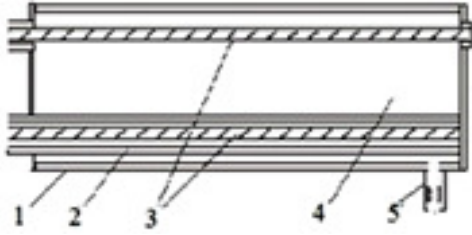


Рис. 1. Конструкція випромінювача (В): 1 — зовнішня кварцова трубка, 2 — внутрішня кварцова трубка, 3 — електроди, 4 — робочий об'єм, 5 — відросток для відкачки та напуску азоту.

Досліджували спектральні, часові та енергетичні характеристики випромінювання газорозрядної плазми на експериментальній установці, блок-схема якої зображена на рис. 2.

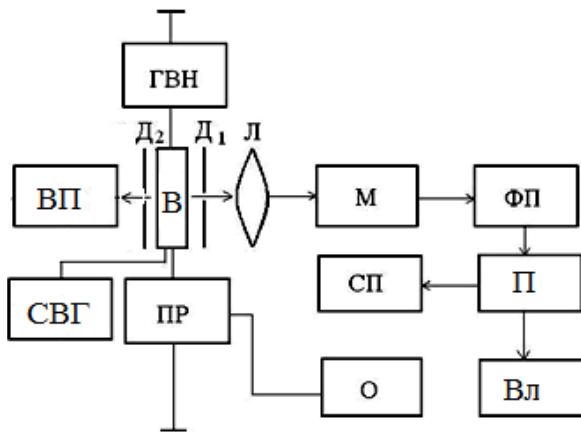


Рис. 2. Блок-схема експериментальної установки: В — випромінювач, ГВН — генератор високовольтної напруги імпульсно-періодичної форми, М — монохроматор, ФП — фотоприймач, П — підсилювач, СП — самописець, Вл — вольтметр, О — осцилограф, ПР — пояс Роговського, СВГ — система вакуумного відкачування й газонаповнення, ВП — вимірювач потужності, Л, Д₁, Д₂, Ф — лінза, діафрагми і фільтр відповідно.

Основними вузлами експериментальної установки були: випромінювач (В), система відкачування і газонаповнення (СВГ), генератор високовольтної напруги імпульсно-періодичної форми (ГВН) та система реєстрації випромінювання. Реєструвальна система включала: монохроматор (М) СД-7, фотоприймач (ФП), фотоелектронний помножувач ФЕП-106 або електронний лінійний помножувач 14 ЕЛУ-ФС, підсилювач електричних сигналів (П) У5-9, самописець (СП) КСП-4, вольтметр (Вл) Ш4300, осцилограф (О) С1-72 та пояс Роговського (ПР).

Збуджували робочу суміш у бар'єрному розряді атмосферного тиску джерелом живлення з імпульсно-періодичною формою вихідної напруги (ГІН) з можливістю перебудови частоти в діапазоні 1–20 кГц й амплітуди імпульсів напруги в межах 10–30 кВ.

Робочі суміші готували безпосередньо в об'ємі пристрою. Порошок дихлориду ртуті (HgCl₂) в кількості

60 мг рівномірно насипали всередину газорозрядної кювети. У дослідженнях оптичних характеристик випромінювання газорозрядної плазми парціальні тиски насичених парів дихлориду ртуті створювалися саморозігрівом робочої суміші за рахунок дисипації енергії розряду. Після завантаження солі проводили зневоднення джерела випромінювання прогріванням за температури 50° С і відкачування протягом 2 год. Значення парціального тиску насичених парів дихлориду ртуті визначали за температури найхолоднішої точки випромінювача на основі інтерполяції довідкових даних роботи [16]. Парціальний тиск азоту вимірювали зразковим мембранним манометром.

Випромінювання розряду реєстрували в напрямку, перпендикулярному до бічної поверхні кварцової трубки випромінювача, й аналізували в спектральному діапазоні 420–600 нм. Спектр випромінювання реєстрували за допомогою дифракційного монохроматора (ґратка 600 штр./мм). Спектральне розділення системи реєстрації становило 2.4 нм. Калібрували систему реєстрації за допомогою еталонної вольфрамової лампи СІ 8-200 за температури нитки накалу $T = 2173$ К.

Імпульси напруги і струму випромінювача реєстрували за допомогою осцилографа С1-72, сигнал на який подавали з дільника напруги та інтегрального ланцюга каліброваного пояса Роговського.

Амплітудно-часові характеристики випромінювання визначали за допомогою лінійного фотопомножувача 14 ЕЛУ-ФС, сигнал з якого реєстрував осцилограф С1-72.

Середню потужність випромінювання джерела вимірювали за допомогою приладу “Кварц-01”. Оптичний сигнал після проходження діафрагми площею 0.25 см² потрапляв на вимірювальну головку приладу. Потужність, яку випромінює всією поверхнею джерела випромінювання, визначали з виразу [17]:

$$P_{\text{вип.}} = \Omega_0 P_{\text{пр.}} / \Omega_{\text{пр.}},$$

де $P_{\text{пр}}$ — потужність, що реєструється фотоприймачем; Ω_0 — еквівалентний тілесний кут (для циліндричної поверхні його значення становить π^2 [16]); $\Omega_{\text{пр}} = S_{\text{пр}} / l_0^2$ — тілесний кут фотоприймача, $S_{\text{пр}}$ — площа віконця фотоприймача; l_0 — відстань, на якій розташовано фотоприймач від джерела випромінювання.

Імпульсну потужність ($P_{\text{імп.}}$) визначали на основі відомої середньої потужності ($P_{\text{сер.}}$), тривалості ($\Delta\tau$) і частоти проходження імпульсів (f) з виразу:

$$P_{\text{сер.}} = P_{\text{імп.}} \Delta\tau f.$$

ІІІ. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Спектри випромінювання газорозрядної плазми досліджували в ділянці парціальних тисків парів дихлориду ртуті 0.5–2 кПа і азоту 10–130 кПа. Напруга, струм і частота проходження імпульсів накачки

становили 20–30 кВ, 300–325 А і 10–20 кГц відповідно. Характерний спектр випромінювання за частоти проходження імпульсів $f = 18$ кГц зображено на рис. 3. Спостерігалось тільки випромінювання системи електронно-коливальних смуг переходу $B \rightarrow X$, $v' = 0 - 5$, $v'' = 14 - 30$ молекул монохлориду ртуті ($HgCl^*$) з максимумом випромінювання на довжині хвилі $\lambda = 557$ нм, крутим зростанням інтенсивності з боку довгохвильової ділянки та повільного спаду в короткохвильовій ділянці. Розшифрували спектр випромінювання за довідковими даними праць [18].

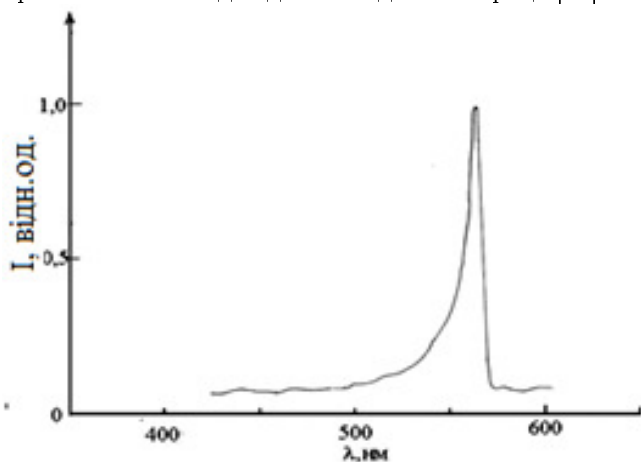


Рис. 3. Спектр випромінювання імпульсного розряду в суміші $HgCl_2:N_2 = 1.5 : 40$ кПа.

Форма смуги та її ширина на напіввисоті (15–16 нм) аналогічна смугам, відповідним переходу $B \rightarrow X$ моногалогенідів ртуті, наведених у працях, в яких створення бар'єрного розряду на сумішах парів дигалогенідів ртуті, гелію та інших газів здійснювалося в кварцових трубках як великих розмірів, так і малогабаритних джерел випромінювання. Спостерігалось різке збільшення інтенсивності випромінювання в спектрі з боку ділянки з великими довжинами хвиль і повільне зменшення її в ділянці менших довжин хвиль.

Результати досліджень інтегральних характеристик (залежності середньої потужності випромінювання від парціальних тисків буферного газу азоту) наведені на рис. 4.

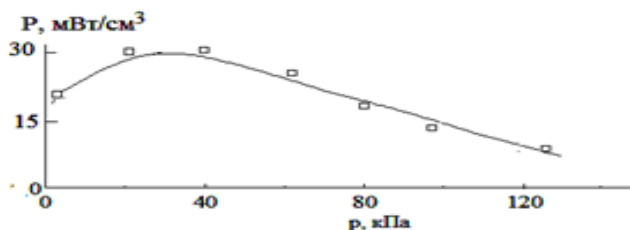


Рис. 4. Залежність потужності випромінювання спектральної смуги $\lambda_{\text{макс.}} = 557$ нм молекул $HgCl^*$ від тиску буферного газу азоту для суміші $HgCl_2:N_2$. Тиск насичених парів $HgCl_2 = 1.5$ кПа.

Максимальна питома потужність випромінювання 30 мВт/см^3 досягається за парціальних тисків азоту

й пари дихлориду ртуті 30 кПа і 1.5 кПа відповідно.

Результати досліджень часових характеристик газорозрядної плазми наведено на рис. 5. Зокрема, на рис. 5,а зображено осцилограми імпульсів струму бар'єрного розряду, а випромінювання — на рис. 5,б для співвідношення компонент суміші, при якому досягнуто максимум потужності випромінювання. Максимальні значення амплітуди імпульсу струму становлять 325 А. Імпульси струму подвійні, різної полярності, затримка між ними в наших експериментальних умовах дорівнювала 150 нс. Передній фронт становив 10 нс, тривалість — 50 нс. Імпульси випромінювання також подвійні із зсувом за часом стосовно один одного на 150 нс. Їхні амплітуди різні за величиною, амплітуда другого імпульсу перевищує за величиною амплітуду першого. Похибка осцилографічних вимірювань становила 10 %, а відтворюваність їх становила величину 90%.

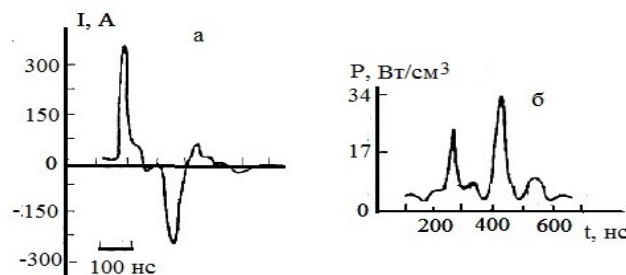


Рис. 5. Осцилограми імпульсів розрядного струму (а) та випромінювання (б) для спектральної смуги $\lambda_{\text{макс.}} = 557$ нм молекул $HgCl^*$ в суміші $HgCl_2:N_2$. Парціальний тиск насичених парів $HgCl_2 = 1.5$ кПа, парціальний тиск азоту 30 кПа.

Зі збільшенням частоти проходження імпульсів середня потужність випромінювання газорозрядної плазми зростає лінійно аж до частот 20 кГц.

Характер розряду був схожий на типовий для бар'єрного розряду [2, 7, 13, 14]. Зі збільшенням частоти проходження імпульсів наскільки інтенсивність випромінювання однорідного розряду зростала, тоді, як інтенсивність ниткоподібних каналів спадала. Товщина розрядної ділянки й довжина горіння розряду становили 0.005 м і 0.20 м, відповідно.

З огляду на те, що експериментальна фізика не має задовільних методів діагностики щільної газорозрядної плазми, параметри плазми бар'єрного розряду в оптимальних для отримання максимальної потужності випромінювання суміші $HgCl_2-N_2$ (0.04762–0.95238) при загальному тиску 31.5 кПа (рис. 4) визначали чисельно й розраховували як повні інтеграли функції розподілу електронів за енергіями (ФРЕЕ) в розряді. ФРЕЕ знаходили чисельно розв'язком кінетичного рівняння Больцмана у двочленному наближенні [19]. Розраховували ФРЕЕ з використанням програми [20]. На основі отриманих ФРЕЕ визначено середню енергію електронів, питомі втрати потужності електричного розряду на різні елементарні процеси в плазмі, а також константи швидкостей пружного та непружного розсіювання електронів на мо-

лекулах дихлориду ртуті й азоту залежно від величини зведеного електричного поля (відношення напруженості електричного поля (E) до загальної концентрації молекул дихлориду ртуті та молекул азоту (N)). Діапазон змін параметра $E/N = 1\text{--}500$ Тд ($1 \cdot 10^{-17} \text{--} 5 \cdot 10^{-15} \text{ В}\cdot\text{см}^2$) включав величини параметру E/N , що були реалізовані в експерименті.

Всі розрахунки проводили для парціального тиску дихлориду ртуті 1.5 кПа і азоту 30 кПа, за яких досягнуто максимальної величини потужності випромінювання в експерименті (рис. 4).

В інтегралі зіткнень електронів із молекулами азоту й дихлориду ртуті в кінетичному рівнянні Больцмана враховано такі процеси: пружне розсіяння і збудження енергетичних рівнів молекул азоту: обертального — енергія порога 0.020 еВ, коливальних (енергії порога: 0.290 еВ, 0.291 еВ, 0.590 еВ, 0.880 1.170, 1.470, 1.760, 2.060, 2.350; електронних: 6.170 еВ, 7.000, 7.350, 7.360, 7.800, 8.160, 8.400, 8.550, 8.890, 11.03, 11.87, 12.25, 13.00, йонізація (енергія порога — 15.60 еВ), дисоціативне збудження електронних станів монохлориду ртуті ($B^2\Sigma_{1/2}^+$) та йонізація молекул дихлориду ртуті. Дані за абсолютними величинами ефективних перерізів цих процесів, а також їхніх залежностей від енергій електронів узято з бази даних [20] і праць [21, 22].

Концентрацію електронів (N_e) розраховано за відомою формулою [23]:

$$N_e = j/eV_{др.},$$

де j — густина струму в розряді, e — заряд електрона, $V_{др.}$ — швидкість дрейфу електронів.

Швидкість дрейфу електронів визначено з виразу [23]:

$$V_{др.} = \mu_e E,$$

де μ_e — рухливість електронів, E — напруженість електричного поля на плазмі.

Напруженість електричного поля на плазмі E розраховано за формулою:

$$E = U_{пл.}/d,$$

$U_{пл.}$ — напруга на плазмі, d — розрядний проміжок.

Напругу на плазмі визначено за другим правилом Кірхгофа з використанням експериментально вимірюваних величин часового ходу напруги, яка прикладена до електродів газорозрядної кювети U , а також падіння напруги на ємності діелектрика $U_{дл.}$ [24]:

$$U_{пл.} = U - U_{дл.}$$

Напругу $U_{дл.}$ обчислено за переміщенням заряду Q і ємності діелектричного бар'єра $C_d = Q/C_d$.

Переміщений у ланцюзі заряд визначено інтеграцією струму з урахуванням початкових умов:

$$Q(t) = \int_0^t I(t) dt + Q_0,$$

де $Q_0 = Q(t=0)$.

У результаті напруженість електричного поля на плазмовому проміжку становила величину $2.2 \cdot 10^6$ В/м, а зведене електричне поле $E/N = 4.57 \cdot 10^{-15}$ В·см² — для значення загальної концентрації компонент суміші $N = 4.9 \cdot 10^{24}$ м⁻³, за якої в експерименті спостерігали максимальну потужність випромінювання в спектральній смузі ($\lambda_{\text{макс.}} = 557$ нм) молекул монохлориду ртуті.

На рис. 6 зображено характерний вигляд ФРЕЕ за зміни параметра E/N у діапазоні $(1\text{--}5) \cdot 10^{-15}$ В·см². Збільшення параметру E/N приводить до зростання кількості “швидких” електронів у розряді. Середня енергія електронів розряду повільно збільшується від 0.32 до 2.1 еВ зі збільшенням параметра E/N . Від $1 \cdot 10^{-17}$ В·см² до $8.7 \cdot 10^{-16}$ В·см². Вона найрізкіше зростає від 2.1 до 4.25 еВ в діапазоні параметра $E/N = (8.7\text{--}15.6) \cdot 10^{-16}$ В·см². Із подальшим зростанням приведенного електричного поля швидкість збільшення середньої енергії електронів сповільнюється і досягає значення 10.2 еВ для $E/N = 50 \cdot 10^{-16}$ В·см². Величина зведеного електричного поля та середня енергія електронів, за яких в експерименті досягається максимальна потужність випромінювання, мають значення $4.57 \cdot 10^{-15}$ В·см² та 9.5 еВ відповідно.

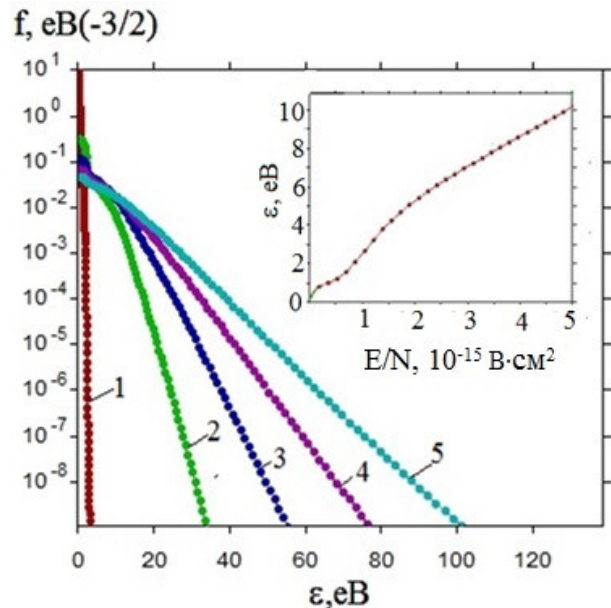


Рис. 6. Функції розподілу електронів за енергіями для суміші (ФРЕЕ) : $\text{HgCl}_2 : \text{N}_2 = 0.04762 : 0.95238$ при загальному тиску суміші $P = 31.5$ кПа для значень параметру E/N : $1 \cdot 10^{-17}$ В·см² (1), $1.26 \cdot 10^{-15}$ В·см² (2), $2.5 \cdot 10^{-15}$ В·см² (3), $3.75 \cdot 10^{-15}$ В·см² (4), $5 \cdot 10^{-15}$ В·см² (5); на вставці — залежність середньої енергії електронів від параметру E/N .

Температуру електронів у газорозрядній плазмі випромінювача визначено за відомою формулою [23]:

$$\varepsilon = \frac{3}{2} \cdot kT,$$

де ε — середня енергія електронів, k — стала Больцмана, T — температура в градусах Кельвіна.

Вона збільшується від 3712 до 118320 К зі збільшенням параметра E/N від 1 до 500 Тд. Для зведеного електричного поля (457 Тд), за якого в експерименті досягається максимальна потужність випромінювання, вона становить значення 110200 К.

Добуток рухливості електронів на густину, що впливає з даних чисельного розрахунку, дорівнює $0.8294 \cdot 10^{24}$ N (1/м/В/с) для параметра $E/N = 4.57 \cdot 10^{-15}$ В·см², що дає значення швидкості дрейфу електронів $7.5 \cdot 10^4$ м/с відповідно, за напруженості поля на плазмі $2.2 \cdot 10^6$ В/м та значенні концентрації електронів $2.9 \cdot 10^{16}$ м⁻³ за густини струму $3.5 \cdot 10^5$ А/м².

На рис. 7 показано залежність питомих утрат потужності розряду на процеси зіткнення електронів із компонентами робочої суміші випромінювача.

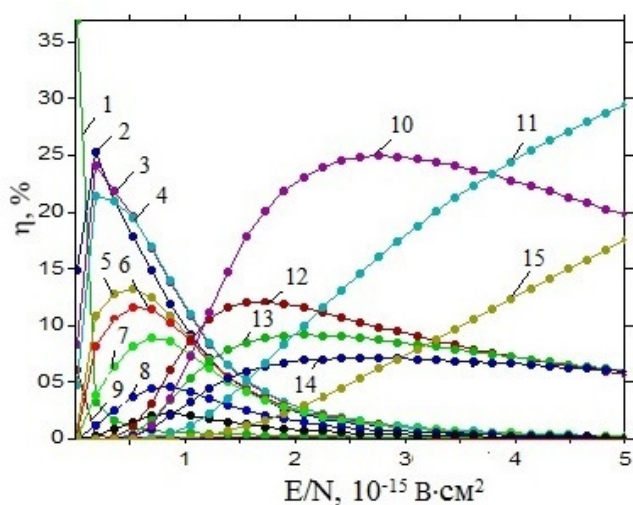


Рис. 7. Залежність питомих утрат потужності розряду на процеси зіткнень електронів з молекулами азоту та дихлориду ртуті від параметра E/N для суміші $N_2:HgCl_2 = 0.95238:0.04762$ при загальному тиску суміші $P = 31.5$ кПа: збудження коливальних рівнів основного стану ($X^2\Sigma_g^+$) молекул азоту: $\nu=1$, $E_{пор.}=0$, 129 (1); $\nu=1$, $E_{пор.}=0$, 1291 (2); $\nu=2$ (3); $\nu=3$ (4); $\nu=4$ (5); $\nu=5$ (6); $\nu=6$ (7); $\nu=7$ (8); $\nu=8$ (9); пружне розсіяння електронів на молекулах азоту (10); збудження суми синглетних станів молекули азоту (11); збудження електронних станів молекули азоту $B^3\Pi_g$ (12); W^3 (13); a^1 (14); йонізація молекул азоту (15).

В ділянці низьких значень зведеної напруженості електричного поля (<100 Тд) основний внесок потужності розряду (до 25%) спостерігається для коливальних рівнів основного стану молекул азоту $X^2\Sigma_g^+$, $\nu = 1 - 7$ (залежності 1–8, рис. 7). За високих значень зведеної напруженості електричного поля (> $1 \cdot 10^{-15}$ В см²) переважний внесок потужності розряду відбувається для електронних станів молекул азоту і їх йонізації (залежності 12–15, 18–26, рис. 7) за винятком збудження коливального рівня енергії $\nu = 8$ основного стану ($X^2\Sigma_g^+$) молекул азоту.

На рис. 8 наведено (у збільшеному масштабі) розподіл питомих утрат потужності розряду на процеси зіткнень електронів із молекулами дихлориду ртуті

та азоту, які йдуть на процеси дисоціативного збудження електронного стану $B^2\Sigma_{1/2}^+$ моноклориду ртуті (крива 1), збудження метастабільного електронного стану $A^3\Sigma_u^+$, $\nu = 0 - 4$ молекул азоту (2), збудження метастабільного електронного стану $B^3\Pi_g$ молекул азоту (3). Вони збільшуються зі зростанням зведеної напруженості поля E/N , досягають максимуму 0.9%, 0.7%, 12% за значень параметра E/N , що дорівнюють $1.56 \cdot 10^{-15}$ В·см², $1.9 \cdot 10^{-15}$ В·см², $1.73 \cdot 10^{-15}$ В·см², відповідно. Із подальшим зростанням параметра E/N вони зменшуються і для зведеного електричного поля $4.57 \cdot 10^{-15}$ В·см², за якого в експерименті досягається максимальна потужність випромінювання, їхня величина становить 0.41%, 0.42% і 6.42%, відповідно.

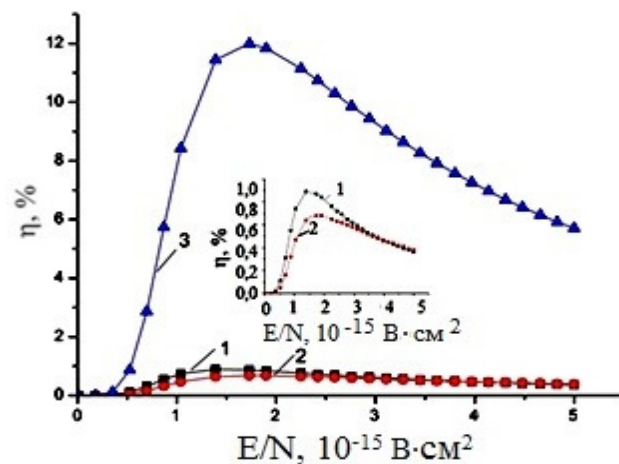


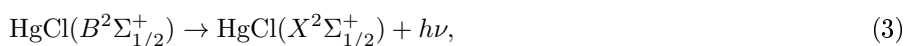
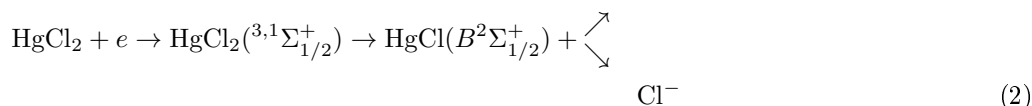
Рис. 8. Залежність питомих утрат потужності розряду на процеси зіткнень електронів з молекулами дихлориду ртуті та молекул азоту від параметра E/N для суміші $HgCl_2:N_2 = 0.04762 : 0.95238$ при загальному тиску суміші $P = 31.5$ кПа: дисоціативне збудження електронного стану $B^2\Sigma_{1/2}^+$ моноклориду ртуті (1), збудження метастабільного електронного стану $A^3\Sigma_u^+$, $\nu = 0 - 4$ молекул азоту (2), збудження метастабільного електронного стану $B^3\Pi_g$ молекул азоту (3).

Швидкості зростання та падіння частки потужності розряду, що йдуть на ці процеси, і їхні величини пов'язані з характером залежності ефективних перерізів збудження конкретних станів від енергій електронів, їхніх абсолютних величин, залежності функції розподілу електронів для різних значень параметру E/N , від величини енергії порогу [23].

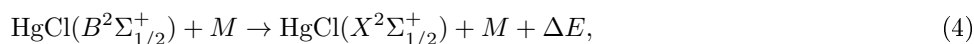
На рис. 9 наведено результати чисельного розрахунку констант швидкостей для дисоціативного збудження електронного стану $B^2\Sigma_{1/2}^+$ моноклориду ртуті та збудження електронного стану $B^3\Pi_g$ та $A^3\Sigma_u^+$, $\nu = 0 - 4$ під час зіткнення електронів з молекулами дихлориду ртуті та азоту в робочій суміші випромінювача, які є кількісною мірою ефективності цих процесів [25]. Ефективність процесу дисоціативного збудження електронного стану $B^2\Sigma_{1/2}^+$ моноклориду ртуті вища від ефективності збудження метастабільних електронних станів $B^3\Pi_g$ та $A^3\Sigma_u^+$, $\nu = 0 - 4$ молекул азоту, що викликано вищим значенням абсолютного ефективного перерізу цього процесу порівняно

з даними для збудження молекул азоту [26–30]. Значення константи швидкості (k) для нього перебувають у діапазоні $1.0 \cdot 10^{-19}$ – $2.4 \cdot 10^{-15}$ м³/с за зміни параметра E/N від $1.82 \cdot 10^{-16}$ В·см² до $5 \cdot 10^{-15}$ В·см². Для зведеного електричного поля $4.57 \cdot 10^{-15}$ В·см², за якого в експерименті досягається максимальна потужність випромінювання, вона має величину $2.3 \cdot 10^{-15}$ м³/с, а для метастабільних електронних станів $B^3\Pi_g$ та $A^3\Sigma_u^+$, $v = 0 - 4$ молекул азоту — $1.6 \cdot 10^{-15}$ м³/с та $1.2 \cdot 10^{-16}$ м³/с відповідно.

Виникнення емісії спектральних смуг з максимумом на довжині хвилі $\lambda = 557$ нм електронно-коливального переходу $B^2\Sigma_{1/2}^+ \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}^+$ молекул HgCl^* в газорозрядній плазмі на суміші парів дихлориду ртуті з азотом відбувається внаслідок процесів, що приводять до утворення та руйнування $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану моноклориду ртуті, основними з яких є [21, 22, 26, 27]:



$\lambda_{\text{макс.}} = 557$ нм



де M — концентрації молекул HgCl_2 і N_2 , ΔE — різниця енергії в реакції.

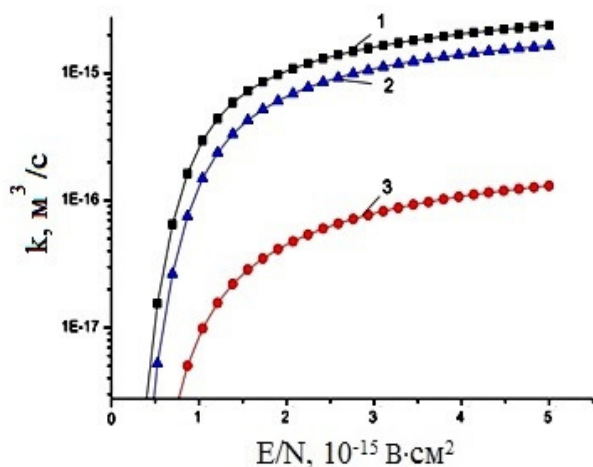


Рис. 9. Залежність констант швидкостей зіткнень електронів із молекулами дихлориду ртуті та азоту від параметра E/N в газорозрядній плазмі на суміші $\text{HgCl}_2:\text{N}_2 = 0.04762: 0.95238$ при загальному тиску суміші $P = 31.5$ кПа: 1 — дисоціативне збудження електронного стану $B^2\Sigma_{1/2}^+$, моноклориду ртуті, 2 — збудження електронного стану $B^3\Pi_g$ молекул азоту, 3 — збудження електронного стану $A^3\Sigma_u^+$, $v = 0 - 4$ молекул азоту.

Реакції (1) і (2) є основними джерелами утворення ексиплексних молекул HgCl^* [21, 22]. Електронно-коливальні переходи $B^2\Sigma_{1/2}^+ \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}^+$ молекул HgCl^* призводять до емісії спектральних смуг з максимальною інтенсивністю на довжині хвилі $\lambda_{\text{макс.}} = 557$ нм (реакція 3). У реакції гасіння (4) відбувається електронно-коливальний перехід молекул дихлориду

ртуті в основний стан без випромінювання.

Кінетичне рівняння для населеності $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекул HgCl^* :

$$\frac{d[\text{HgBr}^*]}{dt} = k_D[\text{HgCl}_2][N_e] - \tau_p^{-1}[\text{HgCl}^*] - k_r[\text{HgCl}^*][M], \tag{5}$$

де k_D — константа швидкості дисоціації молекул HgCl_2 електронним ударом, τ_p — радіаційний час життя $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану HgCl^* , k_r — константа швидкості гасіння $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану HgCl^* ; $[\text{HgCl}^*]$, $[\text{HgCl}_2]$, $[N_e]$, $[M]$ — концентрації молекул HgCl^* , HgCl_2 , електронів та гасячих молекул (HgCl_2 , N_2) відповідно.

Для квазістаціонарного випадку з рівняння (5) інтенсивність емісії:

$$I_{\text{HgCl}^*}^{-1} = \alpha(1 + k_r\tau_p[M]), \tag{6}$$

де

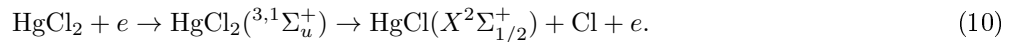
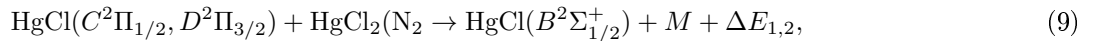
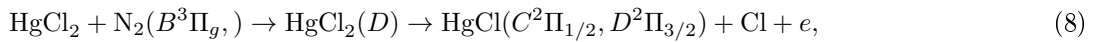
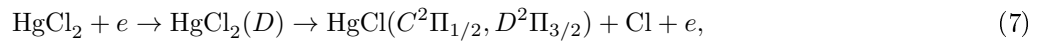
$$\alpha = (k_D h\nu[\text{HgCl}_2][N_e])^{-1}.$$

Константи швидкості процесів, що призводять до утворення й загибелі молекул HgCl^* для зведеного електричного поля (E/N) = 457 Тд, а також тривалість життя $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану HgCl^* , наведено в таблиці 1.

Процес	Константа швидкості процесу	Джерело
	Час життя $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану HgCl^*	
$\text{HgCl}_2 + e \rightarrow \text{HgCl}^* + \text{Cl} + e$	$2.3 \cdot 10^{-15} \text{ м}^3/\text{с}$	$E/N = 4.57 \cdot 10^{-15} \text{ В см}^2, \text{ розр.}$
$\text{HgCl}^* \rightarrow \text{HgCl} + h\nu$	22.2 нс	[28]
$\text{HgCl}^* + \text{N}_2 \rightarrow \text{HgCl} + \text{N}_2 + \Delta E$	$6.1 \cdot 10^{-20} \text{ м}^3/\text{с}$	[26]
$\text{HgCl}^* + \text{HgCl}_2 \rightarrow \text{HgCl} + \text{HgCl}_2 + \Delta E$	$5.5 \cdot 10^{-17} \text{ м}^3/\text{с}$	[27]

Таблиця 1. Константи швидкості процесів, що спричиняють утворення та загибель молекул HgCl^* для зведеного електричного поля $(E/N) = 457 \text{ Тд}$, а також тривалість життя $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекул HgCl^* .

Крім процесів 1–4, які призводять до утворення та руйнування $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану моноклориду ртуті, можливі і такі процеси:



Процес 7 — це збудження молекул HgCl_2 електронами в стан D [29, 30]. Цей стан молекул дихлориду ртуті є сумою всіх станів, які розташовані між енергією порога (7 еВ) та енергією йонізації (11.4 еВ) [29]. Можна очікувати, що ефективний переріз збудження цього стану електронами для молекул дихлориду ртуті близько до ефективного перерізу збудження D -стану молекул дибромиду ртуті, значення якого має величину 10^{-15} см^2 [30].

Збудження D станів молекул HgCl_2 можливо і під час зіткнення їх з молекулами азоту, які перебувають у метастабільних станах $B^3\Pi_g$ (процес 8), тривалість життя, якого має значення 10 мкс, поріг енергії збудження 7.35 еВ [31]. Імовірність збудження стану молекул моноклориду ртуті молекулами азоту в метастабільних станах $A^3\Sigma_u^+$, $v = 0-4$ молекул азоту незначна у зв'язку з тим, що реакція ендотермічна більш ніж на 0.5 еВ для її збудження [32].

Емісії з D -станів молекул HgCl_2 не спостережено внаслідок того, що цей стан переддисоціює з утворенням молекул моноклориду ртуті в (C, D) станах. Емісії з C - і D -станів молекул HgCl^* в наших умовах експерименту не спостерігаємо через високу ефективність гасіння (9) [6].

Внесок процесів 7–9 у населеність стану молекул моноклориду ртуті й, відповідно, у потужність випромінювання в синьо-зеленому спектральному діапазоні будемо визначати в наступних дослідженнях.

Населеність цих станів передається на $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стан молекул HgCl або в інші, не оптичні канали [6, 30]. Реакція зіткнення молекул дихлориду ртуті з електро-

нами (10) є каналом утворення молекул моноклориду ртуті в основному стані, константа швидкості якого має значення $8 \cdot 10^{-15} \text{ м}^3/\text{с}$ [33].

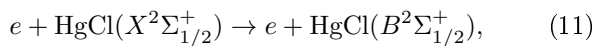
Різке збільшення інтенсивності з боку ділянки в спектрі з великими довжинами хвиль і повільне її зменшення в ділянці коротких довжин хвиль (рис. 3) пояснюється ходом потенціальних кривих (збуджений $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стан зміщений у бік великих між'ядерних відстаней відносно $X^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану) та процесами релаксації заселеності верхніх коливальних рівнів збудженого електронного стану, які відбуваються швидше, ніж електронно-коливальний перехід на основний $X^2\Sigma_{1/2}^+$ -стан [32, 34].

Хід залежності потужності випромінювання молекул HgCl^* від парціального тиску азоту (рис. 4) викликаний передусім такими процесами: підвищенням концентрації електронів зі збільшенням парціального тиску азоту в суміші, зміною частки енергії розряду, яка витрачається на нагрівання робочої суміші; зміною середньої енергії електронів і константи швидкості збудження моноклориду ртуті залежно від значень параметра E/N , а також процесом гасіння $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули HgCl^* під час зіткнення з молекулами азоту [23, 25]. Зі збільшенням парціального тиску азоту в суміші зменшується значення параметра E/N . Це приводить до підвищення частки потужності розряду, що йде на пружне розсіяння електронів на молекулах азоту та молекулах дихлориду ртуті (рис. 7, 8) (нагрівання суміші) і, відповідно, до підвищення парціального тиску парів дихлориду рту-

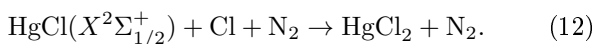
ті й потужності випромінювання в спектральній смузі молекул HgCl^* . Крім того, збільшення потужності випромінювання з підвищенням парціального тиску азоту сприяє і підвищенню концентрації електронів, яка зростає зі збільшенням концентрації компонент робочої суміші [23]. Наявність максимуму й подальше зменшення потужності випромінювання ексиплексних молекул HgCl^* за підвищення парціального тиску азоту викликано гасінням $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекул монохлориду ртуті під час зіткнення їх з молекулами азоту (процес 4) [25, 26].

Коливальна структура імпульсу струму (рис. 5,а) викликана зарядкою й розрядкою ємності діелектрика за час імпульсу напруги з амплітудою, достатньою для пробою розрядного проміжку [35]. Відмінність у формі імпульсів струму на передньому й задньому фронтах пов'язана з протилежними напрямками проходження струму через газорозрядний проміжок ($1.4 \cdot 10^{-2}$ м) і, внаслідок цього, неоднаковими умовами розсмоктування заряду на внутрішній поверхні діелектрика в умовах однобар'єрного розряду, який використовується в нашому експерименті.

Закономірність різниці величин амплітуд першого і другого імпульсів випромінювання (рис. 5,б) пояснюємо так. Перший і другий імпульси накачування (струму) утворюють молекули монохлориду ртуті в $B^2\Sigma_{1/2}^+$ та $X^2\Sigma_{1/2}^+$ -станах за рахунок дисоціації молекул дихлориду ртуті під час зіткнення з електронами. Другий імпульс накачування (струму), крім того, спричиняє додаткове збільшення населеності $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекул монохлориду ртуті за рахунок процесу:



де $\text{HgCl}(X^2\Sigma_{1/2}^+)$ — молекули монохлориду ртуті в основному стані, які не встигли відновитися в трьохатомну молекулу (дихлорид ртуті) у міжімпульсний період (150 нс) в процесі [36]:



IV. ВИСНОВКИ

Конструкція газорозрядного джерела випромінювання забезпечувала дифузний і однорідний характер розряду, переріз якого становив величину $(5 \times 14) \cdot 10^{-6}$ м², а протяжність 0.2 м. Газорозрядне

джерело випромінювання на суміші парів дихлориду ртуті та азоту дає емісію спектральної смуги ексиплексної молекули монохлориду ртуті в синьо-зеленій спектральній ділянці ($\lambda_{\text{макс.}} = 557$ нм). Максимальні питомі потужності випромінювання, середня та імпульсна, мали значення 30 мВт/см³ та 34 Вт/см³ відповідно. Установлено, що двохімпульсний режим накачування робочої суміші дозволяє збільшувати потужність випромінювання джерела в синьо-зеленій спектральній ділянці за рахунок наявності додаткового збільшення населеності $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану монохлориду ртуті, а саме: зіткнення електронів із молекулами монохлориду ртуті, що перебувають в основному $X^2\Sigma_{1/2}^+$ -стані. Установлено параметри плазми робочого середовища випромінювача: функції розподілу електронів за енергіями, транспортні характеристики, питомі втрати потужності розряду на електронні процеси, а також константи швидкостей процесів: пружного й непружного розсіювання електронів на компонентах робочої суміші залежно від величини зведеного електричного поля; максимальні значення концентрації електронів $2.9 \cdot 10^{16}$ м³ під час зміни величини параметра $E/N = 4.57 \cdot 10^{-15}$ В·см². Температура електронів збільшувалася від 3712 до 118320 К з підвищенням параметра E/N Від $1 \cdot 10^{-17}$ В·см² до $5 \cdot 10^{-15}$ В·см². Частка потужності розряду, що йде на процес дисоціативного збудження електронами молекул монохлориду ртуті досягала максимуму 0.9%, за значень параметра E/N , рівних $1.56 \cdot 10^{-15}$ В·см² для електронних станів $B^2\Sigma_{1/2}^+$. Константа швидкості процесу, що приводить до утворення молекул монохлориду ртуті, становить величину $2.3 \cdot 10^{-15}$ м³/с для зведеного електричного поля $E/N = 4.57 \cdot 10^{-15}$ В·см², за якого в умовах експерименту спостерігалася максимальна потужність випромінювання в синьо-зеленій спектральній ділянці ($\lambda_{\text{макс.}} = 557$ нм).

Газорозрядне джерело випромінювання синьо-зеленого спектрального діапазону, робочим середовищем якого була плазма бар'єрного розряду на суміші парів дихлориду ртуті та азоту, може бути застосовано в наукових дослідженнях у галузі біотехнології, фотоніки, медицини, а також для створення лазера та індикаторних газорозрядних панелей.

Подяка. Висловлюємо подяку проф. О. М. Малініну за допомогу в обговоренні результатів досліджень.

[1] J. H. Parks, Appl. Phys. Lett. **31**, 297 (1977); <https://doi.org/10.1063/1.89867>.
 [2] R. Burnham, Appl. Phys. Lett. **33**, 152 (1978); <https://doi.org/10.1063/1.90290>.
 [3] И. С. Лакоба, С. И. Яковленко, Квант. электрон. **7**, 677 (1980).
 [4] R. Burnham, E. J. Schimitschek, Laser Focus **6**, 54 (1981).

[5] С. П. Бажулин и др., Квант. электрон. **13**, 1275 (1986) [Sov. J. Quantum Electron. **16**, 836 (1986)]; <https://doi.org/10.1070/QE1986v016n06ABEH006928>.
 [6] А. М. Бойченко и др., Ультрафиолетовые и вакуумно-ультрафиолетовые эксимеры: физика, техника и применение (СТТ, Томск, 2011).
 [7] A. N. Malinin, Laser Phys. **7**, 1032 (1997).
 [8] A. N. Malinin, Laser Phys. **8**, 395 (1998).

- [9] М. М. Гуйван, О. М. Малінін, Л. Л. Шимон, *Наук. вісн. Ужгород. ун-ту* **4**, 12 (1999).
- [10] A. N. Malinin, N. N. Guivan, L. L. Shimon, *Opt. Spectroscopy* **89**, 829 (2000); <https://doi.org/10.1134/1.1335029>.
- [11] M. M. Guivan, A. N. Malinin, L. L. Shimon, *J. Phys. Stud.* **6**, 74 (2002).
- [12] М. М. Гуйван, О. М. Малінін, *Укр. фіз. журн.* **47**, 24 (2002).
- [13] Ю. И. Посудин, *Лазерная фотобиология* (Вища школа, Київ, 1989).
- [14] В. Д. Романенко, *Биотехнология культивирования гидробионтов* (Ин-т гидробиологии НАНУ, Киев, 1999).
- [15] U. Kogelschatz, Fundamentals and applications of dielectric-barrier discharges, in: *NAKONE VII International Symposium on High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry* (Greifswald, Germany, 2000).
- [16] А. И. Ефимов, Л. П. Белорукова, И. В. Василькова, В. П. Чечев, *Свойства неорганических соединений. Справочник* (Химия, Ленинград, 1983).
- [17] Р. А. Сапожников, *Теоретическая фотометрия* (Энергия, Москва, 1977).
- [18] R. W. Pears, A. G. Gaydon, *The Identification of Molecular Spectra* (Chopman Holl LT, London, 1963).
- [19] G. J. M. Hagelaar, L. C. Pitchford, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14**, 722 (2005); <https://doi.org/10.1088/0963-0252/14/4/011>.
- [20] <http://www.siglo-kinema.com>.
- [21] V. Kushawaha, M. Mahmood, *J. Appl. Phys.* **62**, 2173 (1987); <https://doi.org/10.1063/1.339518>.
- [22] A. N. Malinin, *Laser Phys.* **7**, 1168 (1997).
- [23] Ю. П. Райзер, *Физика газового разряда* (Наука, Москва, 1987).
- [24] M. I. Lomaev *et al.*, *Phys.-Uspekhi* **46**, 193 (2003); <https://doi.org/10.1070/PU2003v046n02ABEH001308>.
- [25] И. Мак-Даниеля, У. Нигэна, *Газовые лазеры* (Мир, Москва, 1986).
- [26] A. Mandl, J. J. Parks, C. Roxlo, *J. Chem. Phys.* **72**, 504 (1980); <https://doi.org/10.1063/1.438934>.
- [27] A. N. Malinin, *Laser Phys.* **7**, 1177 (1997).
- [28] R. W. Waynant, J. G. Eden, *Appl. Phys. Lett.* **33**, 708 (1978).
- [29] W. R. Wadt, *J. Chem. Phys.* **72**, 2469 (1980); <https://doi.org/10.1063/1.439442>.
- [30] W. L. Nighan, R. T. Brown, *J. Appl. Phys.* **53**, 7201 (1982); <https://doi.org/10.1063/1.331616>.
- [31] <http://www.lxcat.laplace.univ-tlse.fr>;
<http://www.lxcat.laplace.univ-tlse.fr>.
- [32] W. R. Wadt, *Appl. Phys. Lett.* **34**, 658 (1979); <https://doi.org/10.1063/1.90627>.
- [33] V. V. Datsyuk, I. A. Izmailov, V. V. Naumov, V. A. Kochelap, *Plasma Sources Sci. Technol.* **25** 045020 (2016); <https://doi.org/10.1088/0963-0252/25/4/045020>.
- [34] V. V. Datsyuk *et al.*, *Phys.-Uspekhi* **41**, 379 (1998); <https://doi.org/10.1070/PU1998v041n04ABEH000384>.
- [35] Yu. S. Akishev, A. V. Dem'yanov, V. B. Karal'nik, M. V. Pan'kin, N. I. Trushkin, *Plasma Phys. Rep.* **27**, 164 (2001) **27**, 176 (2001); <https://doi.org/10.1134/1.1348495>.
- [36] A. C. Erlandson, T. A. Cool, *Chem. Phys. Lett.* **96**, 685 (1983); [https://doi.org/10.1016/0009-2614\(83\)80074-8](https://doi.org/10.1016/0009-2614(83)80074-8).

EMITTING CHARACTERISTICS AND PARAMETERS OF GAS-DISCHARGE PLASMA ON A MIXTURE OF MERCURY DICHLORIDE VAPOR WITH NITROGEN

A. O. Malinina, O. K. Shuaibov
Uzhhorod National University,
3, Narodna Sq., Uzhhorod, UA-88000, Ukraine

The article presents the results of the studies of optical characteristics and parameters of a gas-discharge barrier-discharge plasma on a mixture of mercury dichloride vapor with nitrogen, which was the working medium of an exciplex gas-discharge emitter. The purpose of the study was to identify the regularities in the optical characteristics of a gas-discharge plasma on a mixture of mercury dichloride vapor with nitrogen; to determine the partial pressure of a buffer gas nitrogen at which the maximum radiation power in the blue-green spectral range in the emitters is reached; to determine the plasma parameters depending on the value of the reduced electric field (E/N is the ratio of the electric field strength to the total concentration of the components of the working mixture) and also establish their values for the E/N value at which the maximum radiation power was observed in the experiment. The working mixture in the atmospheric-pressure barrier discharge was excited by a power source with a pulse-periodic output voltage with the possibility of frequency tuning in the range of 1–20 kHz and amplitude of voltage pulses within 10–30 kV. Plasma parameters were determined numerically based on the electron energy distribution function (EEDF) in discharge. EEDF was determined by solving the kinetic Boltzmann equation in two-terms approximation using the well-known program “Bolsig +”. It was found that the double-pulse excitation mode of the working mixture allows for an increase in the radiation power of the source in the blue-green spectral region due to the presence of an additional process of increasing the population of the $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -state of mercury monochloride, namely the collision of electrons with mercury monochloride molecules, which are in the ground $X^2\Sigma_{1/2}^+$ -state. The rate constant of the process, which leads to the formation of mercury monochloride molecules, is $2.3 \cdot 10^{-15} \text{ m}^3/\text{s}$ for a reduced electric field $E/N = 4.57 \cdot 10^{-15} \text{ V cm}^2$, at which, under the experimental conditions, the maximum radiation power was observed in the blue-green spectral region ($\lambda_{\text{max}} = 557 \text{ nm}$).

The gas-discharge source of radiation of the blue-green spectral range can be used in research in the field of biotechnology, photonics, medicine, as well as for the creation of a laser and indicator gas-discharge panels.