УДК 621.373.826.038.823

#### А.О. МАЛІНІНА, О.К. ШУАІБОВ, О.М. МАЛІНІН

Ужгородський національний університет (Вул. Волошина, 54, Ужгород 88000; e-mail: antonina.malinina@uzhnu.edu.ua)

МЕХАНІЗМ ЗБІЛЬШЕННЯ ПОТУЖНОСТІ ВИПРОМІНЮВАННЯ ГАЗОРОЗРЯДНОЇ ЛАМПИ НА СУМІШАХ ПАРІВ ДИХЛОРИДУ РТУТІ, НЕОНУ ТА АЗОТУ В СИНЬО-ЗЕЛЕНОМУ СПЕКТРАЛЬНОМУ ДІАПАЗОНІ

Встановлено механізм збільшення потужності випромінювання газорозрядної лампи на сумішах парів дихлориду ртуті, азоту та неону в порівнянні з сумішию парів дихлориду ртуті і неону в синьо-зеленому спектральному діапазоні. Встановлено оптичні характеристики, параметри плазми, величину приведеного електричного поля, при якому питома потужність розряду, що вноситься в збудження ексиплексних молекул монохлориду ртуті, максимальна. Результати досліджень можуть бути використані для створення більш ефективної ексиплексної лампи, що випромінює спектральні смуги в синьо-зеленому спектральному діапазоні.

*Ключові слова*: газорозрядна лампа, бар'єрний розряд, випромінювання ексиплексних молекул, параметри плазми, дихлорид ртуті, азот, неон.

## 1. Вступ

Газорозрядна плазма на суміші парів дихлориду ртуті з газами є робочим середовищем ексиплексних джерел когерентного і спонтанного випромінювання в синьо-зеленому спектральному діапазоні з довжиною хвилі в максимумі інтенсивності  $\lambda = 557$  нм [1–12]. Такі джерела можуть бути застосовані в наукових дослідженнях, фотоніці, біотехнології, медицині, у виробництві газорозрядних індикаторних панелей, а також в ефективному світловому керуванні процесами фотосинтезу, росту та розвитку рослин та фітоценозу [13–17]. Ексилампи, на відміну від наявних люмінесцентних ламп, а також теплових джерел володіють рядом переваг, а саме: до 90% і більше від загальної потужності випромінювання може бути зосереджено у відносно вузькій ( $\leq 10$  нм на піввисоті) спектральній смузі молекули монохлориду ртуті,

питомі потужності випромінювання переважають величини, що характерні для ламп низького тиску на резонансних переходах атомів металів [18–20]. За останнє десятиліття значного практичного попирення в синьо-зеленій спектральній області набули світлодіодні лампи, які мають найбільшу світловіддачу серед джерел світла (~100 люмен/Вт). Однак при використанні потужних (>100 Вт) світлодіодних ламп, завдяки необхідності їх охолоджувати (щоб не було втрати їх працездатності), застосування їх обмежене [21]. Таке обмеження відсутнє в ексилампах видимого спектрального діапазону, оскільки у них є можливість масштабування робочої поверхні колби випромінювача без зміни питомих енергетичних характеристик [18, 19].

Створення газорозрядної плазми і збудження компонент робочої суміші в ексиплексних джерелах випромінювання здійснювалося в об'ємному, тліючому, бар'єрному і поверхневому розрядах. У джерелах спонтанного випромінювання в ролі буферного газу в основному застосовувався

<sup>©</sup> А.О. МАЛІНІНА, О.К. ШУАІБОВ, О.М. МАЛІНІН, 2019

O.M. MAJIIHIH, 2019

ISSN 0372-400Х. Укр. фіз. журн. 2019. Т. 64, № 9



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



Рис. 2. Блок схема експериментальної установки: В – випромінювач, ГВН – генератор високовольтної напруги імпульсної-періодичної форми, М –монохроматор, ФП – фотоприймач, П – підсилювач, СП – самописець, ВЩ – вольтметр, О – осцилограф, ПР – пасок Роговського, СВГ – система вакуумного відкачування та газонаповнення, ВП – вимірювач потужності, Л, Д<sub>1</sub>, Д<sub>2</sub>, Ф – лінза, діафрагми і фільтр, відповідно

гелій. Конструкція ламп була коаксіальною, а робочою зоною випромінювання служила бічна поверхня розрядної трубки з кварцу. Для ряду наукових і технологічних застосувань необхідно забезпечувати більшу щільність випромінювання і рівномірність її по перерізу випромінювача та використання в робочій суміші більш "важких" буферних газів, ніж гелій, які мають меншу проникаючу здатність через стінки випромінювача і тим самим, забезпечуючи більший ресурс роботи джерела випромінювання [15, 18, 19]. Потреба у використанні в робочій суміші більш "важких" буферних газів, ніж гелій, стала метою наших досліджень, а саме експериментально виявити закономірності в оптичних характеристиках газорозрядної плазми на сумішах парів дихлориду ртуті з неоном та малою домішкою азоту, визначити парціальні тиски неону і азоту, при яких досягається максимальна потужність випромінювання в синьо-зеленому спектральному діапазоні випромінювача. Числове моделювання параметрів плазми, що досліджувалась, включало розрахунки функцій розподілу електронів за енергіями, транспортні та енергетичні характеристики електронів, питомі втрати потужності електричного розряду на різні елементарні процеси, концентрацію і температуру електронів, а також константи швидкості процесів пружного і непружного розсіювання електронів на компонентах робочої суміші в залежності від величини приведеного електричного поля (E/N-відношення напруженості електричного поля до загальної концентрації компонент робочої суміші). Після цього стало можливим встановити оптимальну величину параметра E/N, при якому спостерігалася максимальна потужність випромінювання лампи. На основі експериментально встановлених емісійних характеристик розряду та розрахункових параметрів плазми, встановлено механізм заселення  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$  стану молекул монохлориду ртуті в умовах роботи газорозрядної лампи з накачуванням бар'єрним розрядом на суміші парів дихлориду ртуті, неону та малої домішки азоту.

# 2. Експериментальна установка і методика досліджень

Газорозрядна плазма на сумішах парів дихлориду ртуті та азоту формувалась за допомогою бар'єрного разряду (БР) в пристрої (випромінювач (В)), наведеному на рис. 1, який виготовлявся з кварцової трубки (1) діаметром 34 мм та мав довжину 200 мм. Вздовж осі газорозрядного випромінювача на відстані 15 мм розміщувались два вольфрамові електроди (3) діаметром 5 мм. Один з електродів був встановлений у кварцовій трубці (2) діаметром 9 мм. Для зменшення виходу парів дихлориду ртуті з лампи в систему відкачування та газонаповнення (СВГ), до її колби приварювався відросток з кварцу (5), в середині якого знаходився капіляр діаметром 0,5 мм.

Дослідження спектральних, часових та енергетичних характеристик випромінювання газорозрядної лампи здійснювалися на експериментальній установці, блок-схема якої наведена на рис. 2. Основними вузлами експериментальної установки були: випромінювач (В), система відкачування та напуску газу (СВГ), генератор імпульсної напру-

ги (ГІН) та система реєстрації випромінювання. Система реєстрації включала в себе: монохроматор (М) СД-7, фотоприймач (ФП) фотоелектронний помножувач ФЕП-106 або електронний лінійний помножувач 14 ЕЛУ-ФС, підсилювач електричних сигналів (У) У5-9, самописець (СП) КСП-4, вольтметр (ВЩ) Щ4300, осцилограф (О) С1-72 та пасок Роговського (ПР).

Збудження робочої суміші в бар'єрному розряді атмосферного тиску здійснювалося джерелом живлення з імпульсно-періодичною формою вихідної напруги (ГІН) з можливістю перебудови частоти в діапазоні 1–20 кГц і амплітуди імпульсів напруги в межах 10–30 кВ.

Робочі суміші готувалися безпосередньо в об'ємі пристрою. Порошок дихлориду ртуті (HgCl<sub>2</sub>) в кількості 60 мг рівномірно насипався всередину газорозрядної кювети. У дослідженнях оптичних характеристик випромінювання газорозрядної плазми парціальні тиски насичених парів дихлориду ртуті створювалися шляхом саморозігріву робочої газопарової суміші за рахунок дисипації енергії розряду. Після завантаження солі здійснювалось зневоднення джерела випромінювання шляхом прогрівання при температурах 50 °C та відкачування протягом двох годин. Значення парціального тиску насичених парів дихлориду ртуті визначалися за температурою найбільш холодної точки випромінювача на підставі інтерполяції довідкових даних роботи [22]. Парціальний тиск азоту вимірювався зразковим мембранним манометром.

Випромінювання розряду реєструвалося в напрямку, перпендикулярному до бічної поверхні кварцової колби випромінювача та аналізувалося в спектральному діапазоні 420–600 нм. Спектр випромінювання реєструвався за допомогою дифракційного монохроматора (решітка 600 штр./мм). Спектральне розділення системи реєстрації становило 2,4 нм. Калібрування системи реєстрації проводилося за допомогою еталонної вольфрамової лампи СІ 8–200 при температурі нитки розжарення T = 2173 К.

Імпульси напруги та струму випромінювача рееструвалися за допомогою осцилографа С1-72, сигнал на який подавався з дільника напруги і інтегруючого ланцюга каліброваного паска Роговського.

Амплітудно-часові характеристики випромінювання визначалися за допомогою лінійного фото-

ISSN 0372-400Х. Укр. фіз. журн. 2019. Т. 64, № 9

помножувача 14 ЕЛУ-ФС, сигнал з якого реєструвався осцилографом C1-72.

Середня потужність випромінювання лампи вимірювалася за допомогою приладу "Кварц-01". Оптичний сигнал після проходження діафрагми площею 0,25 см<sup>2</sup> потрапляв на вимірювальну голівку приладу. Потужність, яка випромінюється всією поверхнею джерела випромінювання, визначалася з виразу [23]:

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

де  $P_{\rm пр.}$  – потужність, що реєструється фотоприймачем;  $\Omega_0$  – еквівалентний тілесний кут (для циліндричної поверхні його значення становить  $\pi^2$ [16]);  $\Omega_{\rm пр.} = S_{\rm пр.}/l_0^2$  – тілесний кут фотоприймача,  $S_{\rm пр.}$  – площа віконця фотоприймача;  $l_0$  – відстань, на якій розташовано фотоприймач від джерела випромінювання.

Імпульсна потужність ( $P_{iмп.}$ ) визначалася на підставі відомої середньої потужності ( $P_{cep.}$ ), тривалості ( $\Delta \tau$ ) та частоти слідування імпульсів (f) з виразу:

$$P_{\rm cep.} = P_{\rm imn.} \,\Delta \tau \, f.$$

# 3. Результати досліджень та їх обговорення

Спектри випромінювання плазми досліджувалися в діапазоні парціальних тисків парів дихлориду ртуті 0,5–2 кПа, неону 5–140 та азоту 1–60 кПа. Напруга, струм та частота слідування імпульсів накачки становили 20–30 кВ, 300–325 А та 10–20 кГц, відповідно.

Характерний спектр випромінювання при частоті слідування імпульсів f = 18 кГц наведено на рис. 3. В спектрі постерігається тільки випромінювання системи електронно-коливальних смуг переходу  $B^2 \Sigma_{1/2}^+ \to X^2 \Sigma_{1/2}^+, v' = 0 - 5, v'' = 9$ –19 молекули монохлориду ртуті (HgCl\*) [24] з максимумом випромінювання на довжині хвилі  $\lambda = 557$  нм, значним зростанням інтенсивності з боку довгохвильової ділянки та повільного спаду інтенсивності випромінювання в короткохвильовій області.

Форма спектральної смуги і її ширина на напіввисоті (15–16 нм) аналогічна спектральним смугам, відповідним переходу  $B^2 \Sigma_{1/2}^+ \to X^2 \Sigma_{1/2}^+$  моногалогенідів ртуті, приведених в роботах, в яких формування бар'єрного розряду на сумішах парів



**Рис. 3.** Спектр випромінювання імпульсного розряду в суміші  $HgCl_2: N_2: Ne = 1,5:20:140$  кПа. Частота слідування імпульсів 18 кГц



**Рис. 4.** Залежність потужності випромінювання спектральної смуги  $\lambda_{\text{макс.}} = 557$  нм молекули HgCl\* від тиску буферного газу неону для розряду в суміші HgCl<sub>2</sub>:N<sub>2</sub>:Ne. Парціальний тиск парів HgCl<sub>2</sub>–1,5 кПа. Амплітуда імпульсів напруги 30 кВ. Частота слідування імпульсів 18 кГц



**Рис. 5.** Залежність потужності випромінювання спектральної смуги  $\lambda_{\text{макс.}} = 557$  нм молекул HgCl\* від парціального тиску азоту в суміші парів дихлориду ртуті, азоту та неону. Парціальний тиск дихлориду ртуті 1,5 кПа, парціальний тиск неону 140 кПа. Амплітуда імпульсів напруги 30 кВ. Частота слідування імпульсів 18 кГц



**Рис. 6.** Осцилограми імпульсів розрядного струму (*a*) та випромінювання (*б*) для спектральної смуги  $\lambda_{\text{макс.}} = 557$  нм молекули HgCl<sup>\*</sup> в розряді на основі суміші HgCl<sub>2</sub> : N<sub>2</sub> : Ne. Парціальний тиск парів HgCl<sub>2</sub> – 1,5 кПа, парціальний тиск азоту – 20 кПа, парціальний тиск неону – 140 кПа. Амплітуда імпульсів напруги становила 30 кВ. Частота слідування імпульсів – 18 кГц

дигалогенідів ртуті та газів здійснювалося у випромінювачах, як великих розмірів, так і малогабаритних. Спостерігалося різке збільшення інтенсивності випромінювання в спектрі з боку ділянки з великими довжинами хвиль і повільне зменшення її в області менших довжин хвиль. Спектри відрізняються швидкістю спаду інтенсивності в ультрафіолетовій частині і широкою смугою випромінювання. Спектр випромінювання для низьких парціальних тисків неону (<40 кПа), в порівнянні з парціальними тисками вище атмосферного, був ширшим та тягнувся далі в ультрафіолетову область.

Результати дослідження інтегральних характеристик – залежності середньої потужності випромінювання від парціальних тисків буферного газу неону та азоту наведені на рис. 4 та рис. 5. Спостерігалось збільшення потужності випромінюванням при збільшенні парціального тиску неону від 28 до 60 мВт/см<sup>3</sup>для розряду в суміші парів дихлориду ртуті та неону, а для плазми на суміші з додаванням азоту потужність випромінювання росте до величини 180 мВт/см<sup>3</sup> при збільшенні парціального тиску з 0 до 20 кПа, а далі вона приходить до насичення і при зростанні парціального тиску в діапазоні 30–60 кПа спостерігалося її різке зменшення.

Результати досліджень часових характеристик газорозрядної плазми наведені на рис. 6. На рис. 6, *а* приведені осцилограми імпульсів струму бар'єрного розряду, а випромінювання — на рис. 6,  $\delta$  для співвідношення компонент суміші, при якому досягався максимум потужності випро-

мінювання. Максимальне значення амплітуди імпульсу струму становило 375 А. Імпульси струму подвійні, різної полярності, затримка між ними в наших експериментальних умовах становила 150 нс. Передній фронт цього імпульсу мав тривалість 10 нс, при загальній його тривалості – 50 нс. Імпульси випромінювання також подвійні із зсувом в часі одного відносно другого на час 150 нс. Їх амплітуди різні за величиною, амплітуда другого імпульсу перевищувала за величиною амплітуду першого. Похибка і відтворюваність результатів осцилографічних вимірювань становили 10% і 90%, відповідно.

З ростом частоти слідування імпульсів середня потужність випромінювання газорозрядної плазми зростала лінійно аж до частот 20 кГц.

Характер розряду був схожим до описаного в роботі [25]. Візуально спостерігалося, що з збільшенням частоти слідування імпульсів накачки інтенсивність випромінювання однорідного розряду зростала, тоді, як інтенсивність ниткоподібних каналів падала. Товщина розрядної області і довжина горіння розряду становили 0,005 м та 0,20 м, відповідно.

### 4. Параметри плазми

Оскільки, експериментальна фізика не володіє задовільними методами діагностики густої газорозрядної плазми, то параметри плазми бар'єрного розряду в оптимальних для одержання максимальної потужності випромінювання електричного розряду на сумішах HgCl<sub>2</sub>-Ne (0,0107-0,9893) при загальному тиску 141,5 кПа та HgCl<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-Ne (0,0093-0,1238-0,8669) при загальному тиску 161,5 кПа визначались чисельно і розраховувались як повні інтеграли функції розподілу електронів за енергіями (ФРЕЕ) на основі рівняння Больцмана в двочленному наближенні [26]. Розрахунки ФРЕЕ проводились з використанням відомої програми "Bolsig+" [27]. На основі одержаних ФРЕЕ були визначені середня енергія електронів, питомі втрати потужності електричного разряду на різні елементарні процеси в плазмі, а також константи швидкостей пружного і не пружного розсіювання електронів на молекулах дихлориду ртуті, азоту і неону в залежності від величини приведеного електричного поля – E/N. Діапазон зміни параметра E/N = 1-150 Тд ( $1 \cdot 10^{-17}$ -15  $\cdot 10^{-16} \text{ В} \cdot \text{см}^2$ ) вклю-

ISSN 0372-400Х. Укр. фіз. журн. 2019. Т. 64, № 9

чав і величини параметра E/N, які були реалізовані в наших експериментах.

Всі розрахунки проводилися для розряду при парціальному тиску першої суміші дихлориду ртуті 1,5 кПа, неону 140 кПа та другої суміші – дихлориду ртуті 1,5 кПа, азоту 20 кПа та неону 140 кПа, при яких досягалася максимальна величина потужності випромінювання в експерименті (рис. 4, рис. 5).

В інтегралі зіткнень електронів з молекулами дихлориду ртуті, азоту та неону в кінетичному рівнянні Больцмана були враховані такі процеси: пружне розсіяння і збудження енергетичних рівнів молекули азоту: обертового -енергія порога 0,020 eB, коливальних рівнів (енергії порога: 0,290 eB, 0,291 eB, 0,590 eB, 0,880, 1,170, 1,470, 1,760, 2,060, 2,350; електронних станів: 6,170 еВ, 7,000 eB, 7,350 eB, 7,360 eB, 7,800 eB, 8,160 eB, 8,400 eB, 8,550 eB, 8,890 eB, 11,03 eB, 11,87 eB 12,25 еВ, 13,00 еВ, іонізація (енергія порога – 15,60 eB), пружне розсіяння, збудження енергетичних рівнів атома Ne з енергією порога, що дорівнювала 16,62 eB, 16,67 eB (1s4), 16,84 eB (1s2), 18,72 eB (2p), 20,0 eB (2s + 3d), 20,65 eB (3p), 4,9 eBта іонізація атома неону, дисоціативне збудження електронних станів монохлориду ртуті  $(B^2 \Sigma_{1/2}^+)$ та іонізація молекул дихлориду ртуті. Дані за абсолютними величинами ефективних перерізів цих процесів, а також їх залежностей від енергії електронів взяті з бази даних [27] та робіт [28, 29].

Напруженість електричного поля на плазмі *Е* розраховувалася за формулою [30]:

$$E = U_{\text{пл.}}/d,$$

де  $U_{\text{пл.}}$  – напруга на плазмі, d – розрядний проміжок.

Напруга на плазмі визначалася за другим правилом Кірхгофа з використанням експериментально вимірюваних величин часового ходу напруги, яка прикладена до електродів 3 (рис. 1) випромінювача U, а також падінням напруги на ємності діелектрика 2 (рис. 1)  $U_{дл.}$  [6, 30]:

$$U_{\text{пл.}} = U - U_{\text{дл.}}.$$

Напруга  $U_{\text{дл.}}$  обчислювалась за переміщенним зарядом Q та ємності діелектричного бар'єра  $C_{\text{д}}$ :

$$U_{\rm дл.} = Q/C_{\rm d}.$$

801



**Рис.** 7. Залежність середньої енергії електронів від параметра E/N: 1 – для розряду в суміші HgCl<sub>2</sub>–Ne (0,0107–0,9893) при загальному тиску 141,5 кПа, 2 – HgCl<sub>2</sub>–N<sub>2</sub>–Ne (0,0093–0,1238–0,8669) при загальному тиску 161,5 кПа



**Рис. 8.** Залежність питомих втрат потужності розряду на дисоціативне збудження електронами  $B^2\Sigma^+_{1/2}$ -стану молекули монохлориду ртуті в розряді на сумішах HgCl<sub>2</sub>– Ne (0,0107–0,9893) (1) при загальному тиску 141,5 кПа і HgCl<sub>2</sub>– N<sub>2</sub>–Ne (0,0093–0,1238–0,8669 (2) при загальному тиску 161,5 кПа і збудження метастабільного стану  $B^3\Pi_g$  молекул азоту від величини параметра E/N (3)

Переміщений у колі заряд визначався інтегруванням струму з урахуванням початкових умов:

$$Q(t) = \int_{0}^{t} I(t)dt + Q_0$$

де  $Q_0 = Q(t = 0).$ 

Для розряду в суміші дихлориду ртуті та неону напруженість електричного поля на плазмі становила величину 2,2 ·  $10^6$  В/м, а приведене електричне поле (E/N) = 100 Тд – для значення

загальної концентрації складових суміші  $(N) = 2,2 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$ , при яких в експерименті спостерігалася максимальна потужність випромінювання в спектральній смузі ( $\lambda_{\text{макс.}} = 557 \text{ нм}$ ) молекули монохлориду ртуті. Напруженість електричного поля для розряду на суміші дихлориду ртуті, азоту і неону на плазмовому проміжку становила величину 2,2 · 10<sup>6</sup> В/м, а приведене електричне поле (E/N) = 90 Тд - для значення загальної концентрації компонент суміші  $(N) = 2,5 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$ , при якій в експерименті спостерігалася максимальна потужність випромінювання в спектральній смузі ( $\lambda_{\text{макс.}} = 557 \text{ нм}$ ) молекули монохлориду ртуті.

Середня енергія електронів розряду в плазмі на основі суміші HgCl<sub>2</sub>-Ne найбільше залежить від величини параметра E/N в діапазоні 1–17 Тд (рис. 6, крива 1). При цьому, вона лінійно збільшується від 2,3 до 7,2 eB. В діапазоні значень параметра E/N = 17-150 Тд середня енергія електронів також збільшується від 7,2 до 15,9 eB, але з меншою швидкістю. Повільніше збільшення середньої енергії електронів в цьому діапазоні параметра E/N пов'язано з втратами енергії швидких електронів на збудження енергетичних станів молекули дихлориду ртуті, а також атома неону. Для розряду в суміші HgCl<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-Ne ceредня енергія електронів плазми найбільше залежить від параметра E/N в діапазоні (1–21,6) Тд (рис. 7, крива 2). При цьому, вона лінійно збільшується від 0,4 до 3,4 eB, а для значень параметра E/N = (21,6-150) Тд, середня енергія електронів збільшується від 3,4 eB до 11,4 eB, але з меншою швидкістю. Більш повільне зростання середньої енергії електронів у цьому діапазоні зміни параметра E/N пов'язано з втратою енергії швидких електронів на збудження енергетичних станів молекули дихлориду ртуті, молекули азоту та атома неону. Для значень приведеного електричного поля 100 і 90 Тд, при яких проводились експериментальні дослідження, середня енергія електронів становила 13,1 і 8,5 eB, а максимальні значення енергії електронів 121 та 80 еВ, швидкість дрейфу  $2,4\cdot10^5$ м/с,  $2,2\cdot10^5$ м/с, концентрація електронів 0,98 $\cdot10^{16}$ м $^{-3},\,1,07\cdot10^{16}$ м $^{-3},$  відповідно, для плазми на сумішах HgCl<sub>2</sub>-Ne та HgCl<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-Ne.

Розподіл питомих втрат потужності розряду на основні елементарні процеси при зміні приведеної напруженості електричного поля в діапазоні E/N = (1-150) Тд наведено на рис. 8. Для проце-

су дисоціативного збудження  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$ -стану молекул монохлориду ртуті електронами питомі втрати потужності розряду збільшуються при збільшенні параметра E/N. Вони досягають максимальних значень 63% та 1,4% при E/N = 1 Тд та 26,7 Тд для розряду на сумішах HgCl<sub>2</sub>–Ne i HgCl<sub>2</sub>–N<sub>2</sub>–Ne, відповідно. При подальшому збільшенні параметра E/N, спостерігається їх зменшення. Питомі втрати потужності розряду для процесу збудження метастабільного стану  $B^3 \Pi_q$  молекули азоту (рис. 7, крива 3) мали аналогічну залежність від приведеної напруженості електричного поля і досягала максимуму 11% при E/N = 37 Тд. Швидкість збільшення і зменшення питомих втрат потужності розряду для цих процесів і їх величини пов'язані з характером залежності ефективних перерізів енергетичних станів, від енергії електронів і їх абсолютних значень, залежності ФРЕЕ при різних значеннях E/N та енергії порога дисоціативного збудження молекули монохлориду ртуті, азоту та атома неону. Для процесу дисоціативного збудження  $B^2 \Sigma^+_{1/2}$ -стану монохлориду ртуті електронами питомі втрати потужності розряду становлять 0.9% і 0.6% в плазмі на сумішах HgCl<sub>2</sub>–Ne і HgCl<sub>2</sub>–N<sub>2</sub>–Ne, відповідно, для приведеного електричного поля E/N = 100 Тд і 90 Тд, (при яких проводились експериментальні дослідження). Для процесу збудження метастабільного  $B^3 \Pi_q$  стану молекули азоту електронами питомі втрати потужності розряду становлять 6,2% для приведеної напруженості електричного поля E/N = 90 Тд.

На рис. 9 наведені результати числового розрахунку констант швидкості процесу дисоціативного збудження електронами  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули монохлориду ртуті електронами (криві 1, 2) та збудження метастабільного стану  $B^3 \Pi_g$  молекули азоту (крива 3). Константи швидкості для першого процесу знаходяться в діапазоні від  $3 \cdot 10^{-25}$ –  $3,4 \cdot 10^{-15}$  м<sup>3</sup>/с (в межах параметра E/N від 1 до 150 Тд). Для приведеного електричного поля E/N = 100 Тд і 90 Тд константа швидкості дисоціативного збудження електронами  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$ стану монохлориду ртуті дорівнює  $3,1 \cdot 10^{-15}$  м<sup>3</sup>/с (HgCl<sub>2</sub>–Ne) та  $2,1 \cdot 10^{-15}$  м<sup>3</sup>/с (HgCl<sub>2</sub>–Ne), відповідно.

Виникнення емісії спектральних смуг з максимумом на довжині хвилі  $\lambda = 557$  нм електронноколивального переходу  $B^2 \Sigma_{1/2}^+ \to X^2 \Sigma_{1/2}^+$  молеку-



**Рис.** 9. Залежність констант швидкості дисоціативного збудження  $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули монохлориду ртуті електронами від параметра E/N в розряді на сумішах: HgCl<sub>2</sub>–Ne (0,0107–0,9893) (1) при загальному тиску 141,5 кПа і HgCl<sub>2</sub>–N<sub>2</sub>–Ne (0,0093–0,1238–0,8669 (2) при загальному тиску 161,5 кПа, а також константи швидкості збудження метастабільного стану  $B^3\Pi_g$  молекул азоту електронами (3)

ли HgCl<sup>\*</sup> в газорозрядній плазмі на сумішах парів дихлориду ртуті з неоном та азотом відбувається внаслідок процесів, що призводять до утворення та руйнування  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$ -стану монохлориду ртуті, основними з яких є [28, 29, 31, 32]:

$$HgCl_{2} + e \rightarrow HgCl_{2}(^{3,1}\Sigma_{u}^{+}) \rightarrow$$
$$\rightarrow HgCl(B^{2}\Sigma_{1/2}^{+}) + \left\langle \begin{array}{c} Cl + e \\ Cl \end{array} \right\rangle, \tag{1}$$

$$\operatorname{HgCl}(B^{2}\Sigma_{1/2}^{+}) \to \operatorname{HgCl}(X^{2}\Sigma_{1/2}^{+}) + h\nu, \qquad (2)$$

 $\lambda_{\text{макс.}} = 557$  нм

$$\operatorname{HgCl}(B^{2}\Sigma_{1/2}^{+}) + M \to \operatorname{HgCl}(X^{2}\Sigma_{1/2}^{+}) + M + \Delta E, (3)$$

де M – концентрації молекул HgCl<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> Ne,  $\Delta E$  – різниця енергії в реакції.

Реакції (1) і (2) є основними джерелами утворення ексиплексних молекул HgCl\* [28, 29]. 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 (2)). У реакції гасіння (3) відбувається електронноколивальний перехід молекули дихлориду ртуті в основний стан без випромінювання. Крім процесів (1)–(3), які призводять до утворення та руйнування  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$ -стану монохлориду ртуті, можливі й процеси:

 $\begin{aligned} \operatorname{HgCl}_{2} + \mathrm{e} &\to \operatorname{HgCl}_{2}(D) \to \\ &\to \operatorname{HgCl}(C^{2}\Pi_{1/2}, D^{2}\Pi_{3/2}) + \operatorname{Cl} + \mathrm{e}, \end{aligned}$ (4)  $\operatorname{HgCl}(C^{2}\Pi_{1/2}, D^{2}\Pi_{3/2}) + \operatorname{HgCl}_{2}(\operatorname{N}_{2}, \operatorname{Ne}) \to \\ &\to \operatorname{HgCl}(B^{2}\Sigma_{1/2}^{+}) + M + \Delta E_{1,2}. \end{aligned}$ (5)

Процес (5) це процес збудження молекул HgCl<sub>2</sub> електронами в стан D [33, 34]. Цей стан молекули дихлориду ртуті є сумою всіх станів, які розташовані між енергією порога (6,4 eB) та енергією іонізації (11,4 eB) [33]. Можна очікувати, що ефективний переріз збудження цього стану електронами для молекули дихлориду ртуті буде близьким до ефективного перерізу збудження *D*-стану молекули диброміду ртуті, значення якого має величину 10<sup>-15</sup> см<sup>2</sup> [34]. З *D*-стану емісія молекули HgCl<sub>2</sub> не спостерігається, внаслідок того, що даний стан переддисоціює з утворенням молекули монохлориду ртуті в (C, D)-станах. Емісія з C і Dстанів молекули монохлориду ртуті в наших умовах експерименту не спостерігається через високу ефективність процесу гасіння (5) [6]. Населеність цього стану передається на  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$ -стан молекул HgCl або в інші не оптичні канали [6, 34].

Різке збільшення інтенсивності з боку ділянки в спектрі з великими довжинами хвиль і повільне її зменшення в області коротких довжин хвиль (рис. 3) пояснюється ходом потенціальних кривих (збуджений  $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стан зміщений в 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 електронноколивальний перехід на основний  $X^2\Sigma_{1/2}^+$ -стан [35, 36].

Хід залежності потужності випромінювання молекул HgCl\* від парціального тиску неону та азоту (рис. 4, рис. 5) викликаний, перш за все, такими процесами: підвищенням концентрації електронів при збільшенні парціального тиску неону або азоту в суміші, зміною частки енергії розряду, яка витрачається на нагрівання робочої суміші; зміною середньої енергії електронів і константи швидкості збудження монохлориду ртуті в залежності від величини параметра E/N, а також процесом гасіння  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули HgCl\* при зіткненні з атомами неону та молекулами азоту [30, 37]. При збільшенні парціального тиску неону або азоту в суміші зменшується значення параметра E/N. Це призводить до підвищення частки потужності розряду, що йде на пружне розсіяння електронів на атомах неону, або молекулах азоту та молекулах дихлориду ртуті і, відповідно, до підвищення парціального тиску парів дихлориду ртуті і потужності випромінювання в спектральній смузі молекул HgCl\*. Крім того, збільшення потужності випромінювання з підвищенням парціального тиску неону та азоту сприяє і підвищенню концентрації електронів, яка зростає зі збільшенням концентрації складових робочої суміші [30]. Наявність насичення величини потужності випромінювання з підвищенням парціального тиску неону визвано врівноваженням процесів збудження та гасіння  $B^2 \Sigma^+_{1/2}$ -стану молекул монохлориду ртуті (процеси (1)–(4)). Наявність максимуму і подальше зменшення потужності випромінювання ексиплексних молекул HgCl\* при підвищенні парціального тиску азоту викликано процесом гасіння  $B^2 \Sigma^+_{1/2}$ -стану молекул монохлориду ртуті при зіткненні їх з молекулами азоту (процес 3) [30, 37]. Константи швидкості цього процессу для гасіння неоном і азотом молекул монохлориду ртуті мають значення  $3,3 \cdot 10^{-20}$  м<sup>3</sup>/с та  $6,1 \cdot 10^{-20}$  м<sup>3</sup>/с, відповідно [31].

Коливальна структура імпульсу струму (рис. 6, *a*) викликана зарядкою і розрядкою ємності діелектрика за час імпульсу напруги з амплітудою, достатньою для пробою розрядного проміжку [25]. Відмінності у формі імпульсів струму на передньому і задньому фронті пов'язані з протилежними напрямками проходження струму через газорозрядний проміжок  $(1,4 \cdot 10^{-2} \text{ м})$  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 та другого імпульсів випромінювання (рис. 6,  $\delta$ ) випливає з таких міркувань. Перший та другий імпульси струму накачування призводять до утворення молекули монохлориду ртуті в  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$  та  $X^2 \Sigma_{1/2}^+$ -станах за рахунок дисоціації

ISSN 0372-400Х. Укр. фіз. журн. 2019. Т. 64, № 9

804

молекули дихлориду ртуті при зіткненні їх з електронами. Другий імпульс накачування, крім того, призводить до додаткового збільшення населеності  $B^2 \Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули монохлориду ртуті за рахунок процесу:

$$\mathbf{e} + \mathrm{HgCl}(X^2 \Sigma_{1/2}^+) \to \mathbf{e} + \mathrm{HgCl}(B^2 \Sigma_{1/2}^+), \tag{6}$$

де  $\operatorname{HgCl}(X^2\Sigma_{1/2}^+)$  молекула монохлориду ртуті в основному стані, і яка не встигла відновитися в трьохатомну молекулу (дихлорид ртуті) протягом міжімпульсного періоду тривалістю 150 нс в реакції [38, 39]:

$$\operatorname{HgCl}(X^{2}\Sigma_{1/2}^{+}) + \operatorname{Cl} + M \to \operatorname{HgCl}_{2} + \operatorname{N}_{2}.$$
 (7)

Параметри плазми, як випливає з результатів розрахунку (рис. 7–9), мало відрізняються в залежності від складу парів газових сумішей (HgCl<sub>2</sub>– Ne або HgCl<sub>2</sub>–N<sub>2</sub>–Ne) для значення приведеної напруженості електричного поля (100 і 90 Тд), при якій проводився наш експеримент. Тому необхідно залучити інші елементарні процеси, які пояснюють значне підвищення потужності випромінювання молекули HgCl ( $B \rightarrow X$ ) у випромінювачі на суміші парів дихлориду ртуті з азотом та неоном в порівнянні з сумішпю без азоту (рис. 4, рис. 5). Такими процесами може бути процес передачі енергії молекулам дихлориду ртуті при зіткненнях з молекулами азоту в метастабільному стані  $B^3\Pi_g$  ( $E_{\text{пор.}} = 7,35$  eB):

$$\begin{aligned} \mathrm{HgCl}_{2} + \mathrm{N}_{2}(B^{3}\Pi_{g}) &\to \mathrm{HgCl}_{2}(D) \to \\ &\to \mathrm{HgCl}(C^{2}\Pi_{1/2}, D^{2}\Pi_{3/2}) + \mathrm{Cl} + \mathrm{e}, \end{aligned} \tag{8}$$

а також процес (5) гасіння  $C^2 \Pi_{1/2}$ ,  $D^2 \Pi_{3/2}$ -стану молекули монохлориду ртуті, молекулами дихлориду ртуті, азоту та атомами неону з безвипромінювальним переходом на  $B^2 \Sigma^+_{1/2}$ -стан. Як випливає з результатів чисельних розрахунків питомих втрат потужності розряду на збудження метастабільного стану  $B^3 \Pi_a$  молекул азоту від величини параметра E/N (рис. 8, крива 3), заселеність метастабільного стану  $B^3 \Pi_q$  молекули азоту при значенні приведеної напруженості електричного поля, яка рівна 37 Тд, є максимальною і, відповідно, буде найбільшою заселеність  $B^2 \Sigma^+_{1/2}$  стану молекул монохлориду ртуті. Це, в свою чергу, забезпечить максимальні енергетичні характеристики випромінювання в спектральній смузі синьо-зеленого діапазону при довжині хвилі в максимумі 557 нм.

ISSN 0372-400Х. Укр. фіз. журн. 2019. Т. 64, № 9

### 5. Висновки

Таким чином, порівняння результатів досліджень параметрів газорозрядної плазми на сумішах HgCl<sub>2</sub>–Ne і HgCl<sub>2</sub>–N<sub>2</sub>–Ne з даними експерименту дало змогу встановити механізм збільшення інтенсивності емісії HgCl ( $B \rightarrow X$ ) в газорозрядній плазмі бар'єрного розряду, який полягає в збільшенні заселеності  $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули монохлориду ртуті за рахунок процесу зіткнення азоту в метастабільному стані  $B^3\Pi_g$ , з молекулами дихлориду ртуті, яка переддисоціює в  $C^2\Pi_{1/2}$ ,  $D^2\Pi_{3/2}$ -стани молекули монохлориду ртуті та безвипромінювальних переходів з них на  $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стан молекулами азоту, дихлориду ртуті та атомами неону.

Результати досліджень встановили величину приведеної напруженості електричного поля, при якій питомий внесок електричної потужності розряду на збудження  $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекул монохлориду ртуті в розряді на суміші HgCl<sub>2</sub>–N<sub>2</sub>–Ne є максимальним, а саме E/N = 37 Tд, що дає змогу підвищити енергетичні параметри ексиплексної лампи, яка випромінює у синьо-зеленому діапазоні довжин хвиль.

- 1. J.H. Parks. Laser action on the  $B^2\Sigma^+_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma^+_{1/2}$  band of HgBr at 5018 Å. Appl. Phys. Lett. **31**, 297 (1977).
- R. Burnliam. Discharge pumped mercuric halide dissociation lasers. Appl. Phys. Lett. 33, 152 (1978).
- И.С. Лакоба, С.И. Яковленко. Активные среды эксиплексных лазеров (обзор). Квантовая электроника 7, 677 (1980).
- R. Burnham, E.J. Schimitschek. High-power blue-green lasers. Laser Focus. 6, 54 (1981).
- С.П. Бажулин, Н.Г. Басов, С.Н. Бугримов, В.С. Зуев, А.С. Камруков, Г.Н. Кашников, Н.П. Козлов, П.А. Овчинников, А.Г. Опекан, В.К. Орлов, Ю.С. Протасов. Зеленый лазер на хлориде ртути с широкополосной оптической накачкой. *Квантовая электроника* 13, 1275 (1986).
- А.М. Бойченко, М.И. Ломаев, А.Н. Панченко и др. Ультрафиолетовые и вакуумно-ультрафиолетовые эксилампы: физика, техника и применение (STT, 2011).
- A.N. Malinin. Excitation of mercury monohalides in the plasma of pulse-periodic discharge in mixtures of mercury dihalides and rare gases. *Laser Physics* 7, 1032 (1997).
- A.N. Malinin. The main characteristics of the plasma of pulse glow discharge in mixtures of mercury dihalides and rare gases. *Laser Physics* 8, 395 (1998).
- 9. М.М. Гуйван, О.М. Малінін, Л.Л. Шимон. Оптимізація компонентного складу газорозрядної HgBr-ексимерної

лампи. Науковий вісник Ужегородського університету 4, 12 (1999).

- А.Н. Малинин, Н.Н. Гуйван, Л.Л. Шимон. Спектры излучения рабочих смесей HgBr/HgCl-эксимерной лампы. Onm. u cnexmp. 89, 905 (2000).
- М.М. Гуйван, О.М. Малінін, Л.Л. Шимон. Оптимізація оптичних характеристик робочих сумішей HgBr та HgCl ексиламп. *Журнал фізичних досліджень* 6, 74 (2002).
- М.М. Гуйван, О.М. Малінін. Дослідження процесу збудження ексимерних молекул моноброміду та монохлориду ртуті в щільній газорозрядній плазмі. УФЖ 47, 24 (2002).
- Ю.И. Посудин. Лазерная фотобиология (Вища школа, 1989).
- В.Д. Романенко. Биотехнология культивирования гидробионтов (Киев, 1999).
- U. Kogelschatz. Fundamentals and Applications of Dielectric-barrier Discharges (ABB Corparate Research Ltd, 5405 Dfden, 2000).
- Т.Е. Кулешова, А.И. Лихачев, Е.С. Павлова и др. Взаимосвязь спектров поглощения пигментов растенийи светодиодного освещения с различным спектральным составом. *ЖТФ* 88, 9, 1285 (2018).
- Г.Б. Попович, А.О. Малініна, І.І. Аксенюк, Р.В. Грицак. Вплив додаткового штучного освітлення на початкові етапи росту та розвитку розсади помідора і огірка. Обочівництво і баштанництво 64, 44 (2018).
- G. Zissis, S. Kitsinelis. State of art on the science and technology of electrical light sources: from the past to the future. J. Phys. D: Appl. Phys. 42, 173001 (2009).
- U. Kogelschatz. Ultraviolet excimer radiation from nonequilibrium gas discharges and its application in photophysics, photochemistry and photobiology. J. Opt. Technol. 79, 484 (2012).
- A.A. Malinina, A.K. Shuaibov, A.N. Malinin. Optical emission of atmospheric-pressure dielectric barrier discharge plasma on mercury diiodide/rare gases mixtures. *IOSR J. Appl. Phys. (IOSR-JAP)* 9, 51 (2017).
- В.Б. Басов. Светодиоды преимущества и недостатки Электро-журнал 6, 34 (2010).
- А.И. Ефимов, Л.П. Белорукова, И.В. Василькова, В.П. Чечев. Свойства неорганических соединений. Справочник (Химия, 1983).
- Р.А. Сапожников. Теоретическая фотометрия (Энергия, 1977).
- R.W. Pears, A.G. Gaydon. The Identification of Molecular Spectra (Chapman @ Hall LTD, 1963).
- 25. Ю.С. Акишев, А.В. Демьянов, В.Б. Каральник и др. Пульсирующий режим диффузной моды барьерного разряда в Не. Физика плазмы 27, 2, 176 (2001).
- G.J.M. Hagelaar, L.C. Pitchford. Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models. *Plasma Sources Sci Technol.* 14, 722 (2005).

- $27. \ https://www.bolsig.laplace.univ-tlse.fr/.$
- V. Kushawaha, M.J. Mahmood. Electron impact dissociation of HgX<sub>2</sub> (X = Cl, Br, I). Appl. Phys. 62, 2173 (1987).
- 29. A.N. Malinin. Excitation of the  $B^2\Sigma^+_{1/2}$  state of mercury monohalides by electron impact. Laser Phys. 7, 1177 (1997).
- 30. Ю.П. Райзер. Физика газового разряда (Наука, 1987).
- A. Mandl, J.J. Parks, C. Roxlo. Collisional quenching kinetics for the HgCl<sup>\*</sup> and HgBr<sup>\*</sup> (B<sup>2</sup>Σ<sup>+</sup><sub>1/2</sub>) state. J. Chem. Phys. **72**, 504 (1980).
- 32. A.N. Malinin. The efficiency of the quenching of the  $B^2\Sigma^+_{1/2}$  state in mercury monohalides by halogencontaining molecules in active media of HgCl, HgBr, and HgJ excimer lasers. *Laser Phys.* **7**, 1177 (1997).
- W.R. Wadt. The electronic structure of HgCl<sub>2</sub> and HgBr<sub>2</sub> and its relationship to photodissociation. J. Chem. Phys. 72, 2469 (1980).
- 34. W.L. Nighan, R.T. Brown. Kinetic processes in the HgBr $(B \rightarrow X)$ /HgBr<sub>2</sub> dissociation laser. J. Appl. Phys. 53, 7201 (1982).
- W.R. Wadt. The electronic structure of HgCl and HgBr. Appl. Phys. Lett. 34, 658 (1979).
- В.В. Дацюк, И.А. Измайлов, В.А. Кочелап. Колебательная релаксация эксимерных молекул. *Усп. физ. наук* 168, 439 (1998).
- 37. И. Мак-Даниель, У. Нигэн. Газовые лазеры (Мир, 1986).
- V.V. Datsyuk, I.A. Izmailov, V.V. Naumov, V.A. Kochelap. Direct electron-impact mechanism of excitation of mercury monobromide in a double-pulse dielectric-barrierdischarge HgBr lamp. *Plasma Sources Sci. Technol.* 25 045020 (2016).
- A.C. Erlandson, T.A. Cool. On the regeneration mechanism of HgBr/2 in HgBr/HgBr<sub>2</sub> dissociation lasers. *Chem. Phys. Lett.* **96**, 685 (1983).
  Одержано 04.04.19

A.O. Malinina, A.K. Shuaibov, O.M. Malinin

MECHANISM ENHANCING THE EMISSION POWER OF GAS-DISCHARGE LAMPS BASED ON MIXTURES OF NEON, NITROGEN, AND MERCURY DICHLORIDE VAPOR IN THE BLUE-GREEN SPECTRAL INTERVAL

#### Резюме

A mechanism enhancing the radiation power of a gas-discharge lamp based on a mixture of neon, nitrogen, and a mercury dichloride vapor in the blue-green spectral interval as compared with that for a lamp based on a mixture of only neon and a mercury dichloride vapor has been determined. The optical characteristics and the plasma parameters, as well as the value of the reduced electric field, at which the specific discharge power introduced into the excitation of exciplex molecules of mercury monochloride is maximum, are found. The research results can be used to create a more efficient exciplex lamp that emits radiation bands in the blue-green spectral interval.