

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

Ужгородський національний університет

(Вул. Волошина, 54, Ужгород 88000; e-mail: ant.malinina@yandex.ua)

**МЕХАНІЗМ ЗБІЛЬШЕННЯ ІНТЕНСИВНОСТІ
ВИПРОМІНЮВАННЯ ГАЗОРОЗРЯДНОЇ ПЛАЗМИ
НА СУМІШАХ ПАРІВ ДИЙОДИДУ РТУТІ,
КСЕНОНУ ТА НЕОНУ В ФІОЛЕТОВО-СИНЬОМУ
СПЕКТРАЛЬНОМУ ДІАПАЗОНІ**

УДК 621.373.826.038.823

Встановлено механізм збільшення інтенсивності випромінювання газорозрядної плазми на сумішах парів дийодиду ртуті, ксенону та неону в порівнянні з сумішшю парів дийодиду ртуті і неону в фіолетово-синьому спектральному діапазоні. Встановлені параметри плазми, величина приведенного електричного поля, при якому питома потужність розряду, що вноситься в збудження ексиплексних молекул моноїодиду ртуті, максимальна. Результати досліджень можуть бути використані для створення більш ефективної ексиплексної лампи, що випромінює спектральні смуги в фіолетово-синьому діапазоні.

Ключові слова: газорозрядна плазма, випромінювання ексиплексних молекул, параметри плазми, дийодид ртуті, ксенон, неон.

1. Вступ

Газорозрядна плазма на суміші парів дийодиду ртуті з газами є робочим середовищем ексиплексних джерел когерентного і спонтанного випромінювання (лазери і ексилампи) в фіолетово-синьому спектральному діапазоні з довжинами хвиль в максимумі інтенсивності $\lambda = 441,4, 443, 444, 445$ нм [1–7]. 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 і фітоценозу [8–13]. Ексилампи, на відміну від наявних люмінесцентних ламп, а також теплових джерел, володіють рядом переваг, а саме спектром випромінювання. До 90% і більше від загальної потужності випромінювання може бути зосереджено в відносно вузькій (≤ 10 нм

на піввисоті) спектральній смузі ексиплексної молекули моноїодиду ртуті. При цьому, питомі потужності випромінювання перевершують величини, що характерні для ламп низького тиску на резонансних переходах атомів [8–10, 14]. За останнє десятиліття значного практичного поширення в синьо-фіолетовій спектральній області набули світлодіодні лампи, які мають більшу світловіддачу серед джерел світла (~ 100 люмен/Вт). Однак при використанні потужних (> 100 Вт) світлодіодних ламп завдяки необхідності охолодження їх (щоб не було втрати їх працездатності) застосування їх обмежене [15]. Такого обмеження немає у ексилампах видимого спектрального діапазону, оскільки у них є можливість масштабування випромінюючої поверхні без зміни питомих енергетичних характеристик [8, 9].

У наших дослідженнях, що представлені у посиланні [14], виявлена одночасна емісія ексиплексних молекул моноїодиду ртуті у фіолетово-синьому та ультрафіолетовому спектральних діапазонах

© А.О. МАЛІНІНА, О.К. ШУАІБОВ,
О.М. МАЛІНІН, 2017

($B^2\Sigma_{1/2}^+ \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}^+$, $C^2\Pi_{1/2} \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}^+$), йодиду ксенону ($B^2\Sigma_{1/2}^+ \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}^+$, $D_{1/2} \rightarrow A^2\Pi_{1/2}$) і йоду ($D' \rightarrow A'$) в газорозрядній плазмі бар'єрного розряду на суміші парів дйодиду ртуті, ксенону і неону, а також було встановлено, що найбільш інтенсивне випромінювання спостерігається в спектральній смузі ($B \rightarrow X$) з максимумом потужності на довжині хвилі $\lambda = 443$ нм, інтенсивність якого в 1,6 разів більша, ніж у плазмі на суміші парів дйодиду ртуті лише з неонем. Створення ефективних ексиплексних джерел такої одночасної емісії в фіолетово-синьому і ультрафіолетовому спектральних діапазонах може бути використано для активації процесу фотосинтезу з одночасним руйнуванням вірусів і бактерій, а також є важливим для вирішення технічних проблем збереження енергоресурсів планети і удосконалення "штучного" фотосинтезу [16–18].

Дослідження, що були проведені нами і представлені в статті [14], не визначили в достатній мірі причину збільшення інтенсивності випромінювання в спектральній смузі електронно-коливного переходу $B^2\Sigma_{1/2}^+ \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}^+$ ексиплексних молекул моноіодиду ртуті, яке дає випромінювання в фіолетово-синьому спектральному діапазоні, що і послужило метою для проведення досліджень з встановлення механізму збільшення інтенсивності випромінювання у плазмі на сумішах парів дйодиду ртуті, ксенону та неону в фіолетово-синьому спектральному діапазоні. Цей механізм встановлювався теоретичним методом, а саме, порівнянням та систематизацією даних параметрів плазми та результатів експериментального дослідження.

2. Методика визначення параметрів плазми

Внаслідок того, що експериментальна фізика ще не має задовільних методів діагностики щільної газорозрядної плазми, параметри плазми бар'єрного розряду визначалися чисельно на основі функцій розподілу електронів за енергіями (ФРЕЕ) в розряді [19]. ФРЕЕ визначалася шляхом розв'язку кінетичного рівняння Больцмана в двочленному наближенні з використанням відомої програми "Bolsig+" [20]. На основі ФРЕЕ були розраховані: середня енергія і рухливість електронів, питомі втрати потужності розряду та константи швидкостей пружного і непружного розсіювання електро-

нів на молекулах дйодиду ртуті і атомів неону залежно від величини приведенного електричного поля (E/N , E – напруженість електричного поля, N – загальна концентрація складових газової суміші). Діапазон зміни параметра $E/N = 1\text{--}100$ Тд ($1 \cdot 10^{-17}\text{--}1 \cdot 10^{-15}$ В·см²) включав величини параметрів E/N , які були реалізовані в нашому експерименті.

Всі розрахунки проводилися для парціальних тисків компонент сумішей, при яких досягалася максимальна величина інтенсивності випромінювання в експерименті [14], а саме парціальному тиску парів дйодиду ртуті 0,6 кПа і неону 110 кПа для суміші парів дйодиду ртуті лише з неонем та парціального тиску дйодиду ртуті 0,7 кПа, ксенону 10 кПа і неону 100 кПа для суміші парів дйодиду ртуті, ксенону та неону (при яких досягалася максимальна інтенсивність випромінювання плазми).

В інтегралі зіткнень електронів з атомами неона і молекулами дйодиду ртуті враховані такі елементарні процеси: пружне розсіювання, збудження енергетичних рівнів атома ксенону з енергією порога – 3,4 еВ, 8,31 еВ, 8,44 еВ, 9,69 еВ, 10,0 еВ, 11,0 еВ, 11,7 еВ, іонізація атомів ксенону; пружне розсіювання, збудження енергетичних рівнів атома Ne з енергією порога – 16,62 еВ, 16,67 еВ ($1s^4$), 16,84 еВ ($1s^2$), 18,72 еВ ($2p$), 20,0 еВ ($2s + 3d$), 20,65 еВ ($3p$), 4,9 еВ, іонізація атома неона; іонізація молекули дйодиду ртуті, дисоціативне збудження електронного $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану моноіодиду ртуті. Абсолютні величини ефективних перерізів цих процесів, а також їх залежності від енергії електронів взяті з робіт [21, 22]. Із використанням формул, що приведені в роботі [23] було обчислено приведене електричне поле (E/N , де E – напруженість поля на плазмі, N – загальна концентрація компонент робочої суміші плазми), при якому проводились експериментальні дослідження, які представлені в роботі [14], і отримано значення 46 і 49 Тд для суміші HgI₂–Ne і HgI₂–Xe–Ne, відповідно.

3. Результати дослідження параметрів плазми

На рис. 1 наведено характерний вигляд ФРЕЕ при зміні параметра E/N в діапазоні 1–100 Тд. Збільшення параметра E/N приводить до зроста-

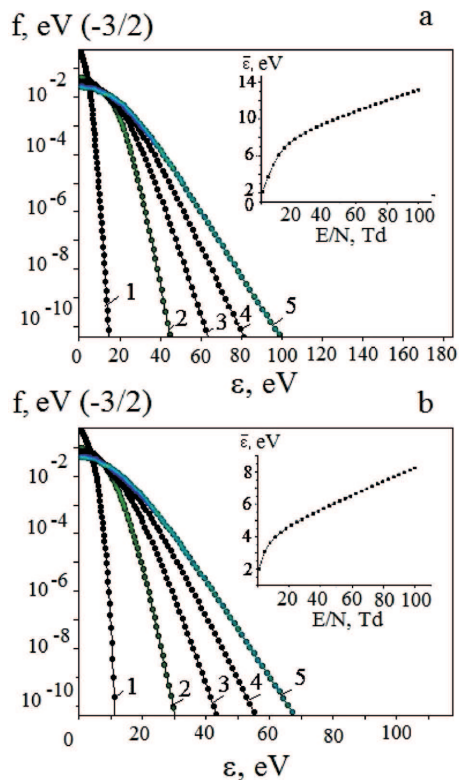


Рис. 1. Функції розподілу електронів за енергіями в розряді на суміші $\text{HgI}_2\text{-Ne} = 0,54\text{-}99,46\%$ (а) і в суміші $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne} = 0,64\text{-}9,03\text{-}90,33\%$ (b) для різних значень параметра E/N : 1 (1), 25,8 (2), 50,5 (3), 75,3 (4), 100 (5); в правій верхній частині рисунка наведена залежність середньої енергії електронів від параметра E/N

ння кількості “швидких” електронів у розряді і зменшення густини електронів у діапазоні роботи випромінювача. Максимальні значення енергії електронів для плазми на основі газових сумішей $\text{HgI}_2\text{-Ne}$ (рис. 1, а) та $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne}$ (рис. 1, б) мали значення 114 еВ та 76,2 еВ для $E/N = 100$ Тд. Середня енергія електронів розряду в плазмі на суміші $\text{HgI}_2\text{-Ne}$ найбільше залежить від параметра E/N в діапазоні 1–14,7 Тд. При цьому, вона лінійно збільшується від 2,1 до 6,8 еВ. В діапазоні значень параметра $E/N = 14,7\text{-}100$ Тд середня енергія електронів також збільшується від 6,8 до 13,1 еВ, але з меншою швидкістю. Повільніше збільшення середньої енергії електронів в цьому діапазоні параметра E/N пов’язано з витратами енергії швидких електронів на збудження енергетичних станів молекул дйодиду ртуті і атомів неона. Для розряду в суміші $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne}$ середня енергія електро-

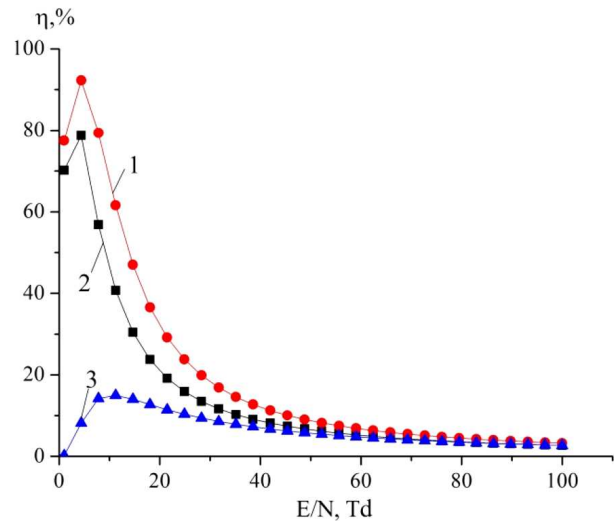


Рис. 2. Залежність питомих втрат потужності розряду на дисоціативне збудження електронами $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули моноїодиду ртуті в плазмі на сумішах $\text{HgI}_2\text{-Ne} = 0,54\text{-}99,46\%$ (1) і $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne} = 0,64\text{-}9,03\text{-}90,33\%$ (2) і збудження метастабільного стану 3P_2 атомів ксенону від величини параметра E/N

нів плазми найсильніше залежить від параметра E/N в діапазоні 1–11 Тд. При цьому, вона лінійно збільшується від 2,0 до 4,0 еВ, а для значень параметра $E/N = 11\text{-}100$ Тд, середня енергія електронів збільшується від 4,0 еВ до 8,2 еВ, але теж з меншою швидкістю. Повільніший ріст середньої енергії електронів в цьому діапазоні зміни параметра E/N пов’язаний з втратою енергії швидких електронів на збудження енергетичних станів молекул дйодиду ртуті і атомів, ксенону і неону. Для значень приведенного електричного поля 46 і 49 Тд, при яких проводились експериментальні дослідження, середня енергія електронів становила 9,8 еВ і 6,0 еВ, відповідно, для плазми на сумішах $\text{HgI}_2\text{-Ne}$ і $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne}$.

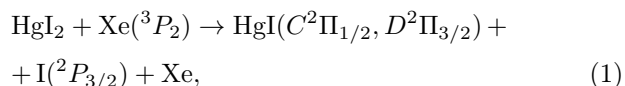
Розподіл питомих втрат потужності розряду на основні елементарні процеси при зміні приведенної напруженості електричного поля в діапазоні $E/N = 1\text{-}100$ Тд наведено на рис. 2. Для процесу дисоціативного збудження $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули моноїодиду ртуті питомі втрати потужності розряду збільшуються при збільшенні параметра E/N . Вони досягають максимальних значень 92% і 79% при $E/N = 4,4$ Тд для плазми на сумішах $\text{HgI}_2\text{-Ne}$ і $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne}$, відповідно. За подальшого збільшення параметра E/N , спостерігається

їх зменшення. Питомі втрати потужності розряду для процесу збудження метастабільного стану 3P_2 атомів ксенону (рис. 2, крива 3) мають аналогічну залежність від приведеної напруги електричного поля, досягають максимуму 15% при $E/N = 11,2$ 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 молекул моноїодиду ртуті і атомів ксенону. Для процесу дисоціативного збудження $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану моноїодиду ртуті питомі втрати потужності розряду становлять значення 10% і 7% в плазмі на сумішах $\text{HgI}_2\text{-Ne}$ і $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne}$, відповідно, для приведеного електричного поля $E/N = 46$ Тд і 49 Тд, (при яких проводились експериментальні дослідження).

На рис. 3 наведені результати числового розрахунку констант швидкостей для процесу дисоціативного збудження електронами $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекул моноїодиду ртуті електронами (криві 1, 2) і збудження метастабільного стану 3P_2 атомів ксенону (крива 3). Константи швидкості для першого процесу, знаходяться в діапазоні від $1 \cdot 10^{-16}$ – $3,5 \cdot 10^{-14}$ м³/с (в межах параметра E/N від 1 до 100 Тд). Для приведеного електричного поля $E/N = 46$ Тд і 49 Тд, константа швидкості дисоціативного збудження електронами $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану моноїодиду ртуті дорівнює $2,2 \cdot 10^{-14}$ м³/с ($\text{HgI}_2\text{-Ne}$) і $1,2 \cdot 10^{-14}$ м³/с ($\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne}$), відповідно.

Таким чином, ці параметри плазми мало відрізняються в залежності від складу газових сумішей ($\text{HgI}_2\text{-Ne}$ або $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne}$). Тому необхідно залучити інші елементарні процеси, які пояснюють значне підвищення інтенсивності випромінювання молекули HgI ($B \rightarrow X$) в плазмі на суміші парів дийодиду ртуті з ксеноном і неонем в порівнянні з сумішшю без ксенону.

Такими процесами може бути процес передачі енергії молекулам дийодиду ртуті при зіткненнях з атомом ксенону в метастабільному стані (3P_2):



а також процес гасіння $C^2\Pi_{1/2}, D^2\Pi_{3/2}$ -станів молекули моноїодиду ртуті атомами ксенону з без-

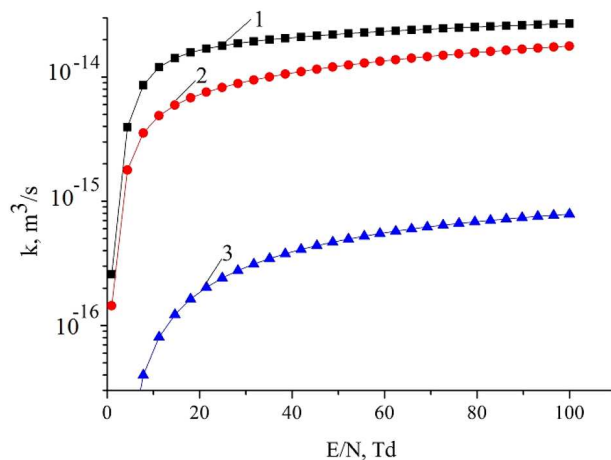
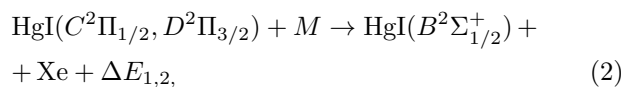


Рис. 3. Залежність констант швидкості дисоціативного збудження $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули моноїодиду ртуті електронами від параметра E/N в розряді у сумішах: $\text{HgI}_2\text{-Ne} = 0,54\text{-}99,46\%$ (1) і $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne} = 0,64\text{-}9,03\text{-}90,33\%$ (2), а також константи швидкості збудження метастабільного стану 3P_2 атомів ксенону електронами

випромінювальним переходом на $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стан:



де M – концентрації молекул або атомів ($\text{HgI}_2, \text{Xe}, \text{Ne}$), що гасять $C^2\Pi_{1/2}, D^2\Pi_{3/2}$ -стани молекули моноїодиду ртуті, $\Delta E_{1,2}$ – різниця енергій $C^2\Pi_{1/2}, D^2\Pi_{3/2}$ і $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -станів.

Процес (2) був виявлений в експериментах з фотодисоціації дийодиду ртуті [24, 25], а також в наших експериментах в умовах бар'єрного розряду на суміші парів дийодиду ртуті, ксенону і гелію [23].

4. Висновки

Таким чином, порівняння результатів досліджень параметрів газорозрядної плазми на сумішах $\text{HgI}_2\text{-Ne}$ і $\text{HgI}_2\text{-Xe-Ne}$ з даними експерименту дало змогу встановити вперше механізм збільшення інтенсивності емісії $\text{HgI}(B \rightarrow X)$ в газорозрядній плазмі бар'єрного розряду на суміші з домішками ксенону, який полягає в збільшенні заселеності $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекули моноїодиду ртуті за рахунок безвипромінювальних переходів з розміщених вище енергетичних станів $C^2\Pi_{1/2}, D^2\Pi_{3/2}$ при гасінні їх атомами ксенону.

Результати досліджень встановили величину приведеної напруженості електричного поля, при якій питомий внесок електричної потужності розряду на збудження $B^2\Sigma_{1/2}^+$ -стану молекул моноїодиду ртуті є максимальним, а саме $E/N = 4,4$ Тд. Це дає змогу підвищити енергетичні параметри ексиплексної лампи, яка випромінює в фіолетово-синьому діапазоні довжин хвиль.

- R. Burnham. Discharge pumped mercuric halide dissociation lasers. *Appl. Phys. Lett.* **33**, 152 (1978).
- Yu.E. Gavrilova, V.S. Zrodnikov, A.D. Klenentov, A.S. Podsonny. Excimer HgJ* laser excited by an electric discharge. *Quant. Electron.* **7**, 2495 (1980).
- A.N. Konoplev, V.A. Kelman, V.S. Shevera. Investigation into pulse discharge emission in ZnI₂, CdI₂ and HgI₂ mixtures with helium and neon. *J. Appl. Spectrosc.* **39**, 315 (1983).
- A.N. Malinin. Excitation of mercury monohalides in the plasma of pulse-periodic discharge in mixtures of mercury dihalides and rare gases. *Laser Phys.* **7**, 1032 (1997).
- A.N. Malinin, A.V. Polyak, N.N. Guivan, N.G. Zubrilin, L.L. Shimon. Coaxial HgI-excilamps. *Quant. Electron.* **32**, 155 (2002).
- A. Malinina. Diagnostics of optical characteristics and parameters of gas-discharge plasma based on mercury diiodide and helium mixture. *Open J. Appl. Sci.* **5**, 826 (2015).
- A.A. Malinina, A.N. Malinin. Optical characteristics of a gas discharge plasma based on a mixture of mercury diiodide vapor, nitrogen, and helium. *J. Appl. Spectrosc.* **83**, 592 (2016).
- 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* **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.M. Бойченко, М.И. Ломаев, А.Н. Панченко и др. *Ультрафиолетовые и вакуумно-ультрафиолетовые эксцилamps: физика, техника и применение* (СТТ, 2011).
- Ю.И. Посудин. *Лазерная фотобиология* (Вища школа, 1989).
- В.Д. Романенко. *Биотехнология культивирования гидробионтов* (Ин-т гидробиол. НАН Украины, 1999).
- Э.А. Соснин, П.А. Гольцова, В.А. Панарин, Д.С. Печеницын, В.С. Скакун, В.Ф. Тарасенко, Ю.В. Чудинова, И.А. Викторова. Перспективы применения ХеСI-эксиламп в сельском хозяйстве. *Инновации в сельском хозяйстве* **3**, No. 24, 7 (2017).
- 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.* **9**, 51 (2017).
- В.Б. Басов. Светодиоды – преимущества и недостатки. *Электро* **6**, 35 (2010).
- M. Sugii, K. Sasaki. Improved performance of the discharge pumped HgBr and HgCl lasers by adding SF₆. *Appl. Phys. Lett.* **48**, 1633 (1986).
- A.J. Berry, C. Whitehurst, T.A. King. Multihalide operation of mercury halide lasers. *J. Phys. D* **21**, 39 (1988).
- M.M. Matthias, H.-J. Lewerenz, D. Lackner, F. Dimroth, Th. Hannappel. Efficient direct solar-to-hydrogen conversion by in situ interface transformation of a tandem structure. *Nature Commun.* **6**, 8286 (2015).
- J.M. Hagelaar, L.C. Pitchford. Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models. *Plasma Sourc. Sci. Technol.* **14**, 722 (2005).
- BOLSIG+*, *Electron Boltzmann equation solver* [http://www.bolsig.laplace.univ-tlse.fr/].
- A.N. Malinin, A.K. Shuaibov, V.S. Shevera. Dissociative excitation of the $B^2\Sigma_{1/2}^+$ states of mercury monohalides by electron impact. *Quant. Electron.* **10**, 1495 (1983).
- V. Kushawaha, M.J. Mahmood. Electron impact dissociation of HgX₂ (X = Cl, Br, I). *J. Appl. Phys.* **62**, 2173 (1987).
- A.A. Malinina, A.N. Malinin. Experimental and theoretical characterization of dielectric barrier discharge in mercury diiodide vapor, xenon and helium gaseous mixture. *Am. J. Opt. Photon* **4**, 14 (2016).
- C. Roxlo, A. Mandl. Quenching kinetics for the HgBr* ($B^2\Sigma_{1/2}$) and HgI* ($B^2\Sigma_{1/2}$, $C^2\Pi_{1/2}$) states. *J. Chem. Phys.* **72**, 541 (1980).
- S.P. Bazhulin, N.G. Basov, S.N. Bugrimov et al. Blue-violet HgI/HgI₂ laser with wide-band optical pumping by a linearly stabilized surface discharge. *Sov. J. Quant. Electron.* **16**, 663 (1986).

Одержано 25.01.17

A.A. Malinina, A.K. Shuaibov, A.N. Malinin

MECHANISM OF GROWTH OF THE INTENSITY OF RADIATION EMITTED IN THE BLUE-VIOLET SPECTRAL INTERVAL BY GAS-DISCHARGE PLASMA GENERATED IN THE MIXTURES OF MERCURY DIIODIDE VAPOR, XENON, AND NEON

S u m m a r y

A mechanism allowing the intensity of radiation emitted in the blue-violet spectral interval by gas-discharge plasma created in the mixtures of mercury diiodide vapor, xenon, and neon to be increased in comparison with the intensity of radiation from gas-discharge plasma in the mixtures of mercury diiodide vapor and neon is established. The plasma parameters and the reduced electric field, at which the specific discharge power spent for the excitation of mercury moniodide exciplex molecules is maximum, are determined. The research results can be used for the creation of a more efficient exciplex lamp with bands emitted in the blue-violet spectral interval.