

UNIVERZITET U BEOGRADU

FIZIČKI FAKULTET

Jelena D. Marjanović

**PROBOJ I OSOBINE NERAVNOTEŽNIH DC
PRAŽNJENJA NA NISKOM PRITISKU U
PARAMA TEČNOSTI**

Doktorska disertacija

Beograd, 2020

UNIVERSITY OF BELGRADE

FACULTY OF PHYSICS

Jelena D. Marjanović

**BREAKDOWN AND CHARACTERISTICS OF
NON-EQUILIBRIUM LOW-PRESSURE DC
DISCHARGES IN VAPOURS OF LIQUIDS**

Doctoral Dissertation

Belgrade, 2020

MENTOR:

dr Dragana Marić, naučni savetnik, Univerzitet u Beogradu – Institut za fiziku

ČLANOVI KOMISIJE:

akademik Zoran Lj. Petrović, Srpska akademija nauka i umetnosti

prof. dr Srđan Bukvić, redovni profesor, Univerzitet u Beogradu – Fizički fakultet

prof. dr Milorad Kuraica, redovni profesor, Univerzitet u Beogradu – Fizički fakultet

DATUM ODBRANE:

Doktorska disertacija pod naslovom „**Proboj i osobine neravnotežnih DC pražnjenja na niskom pritisku u parama tečnosti**” je u celosti urađena u Laboratoriji za neravnotežne procese i primenu plazme (ranije Laboratorija za gasnu elektroniku) Instituta za fiziku u Beogradu, pod mentorstvom dr Dragane Marić. Dr Marić je rukovodila izradom disertacije, odabirom teme i metode izučavanja, kao i fizičkim tumačenjem rezultata.

Prvenstveno želim da se zahvalim svom mentoru dr Dragani Marić na pomoći pri odabiru teme, definisanju pravca i vođenju istraživanja, prenetom znanju, savetima i detaljnim uputstvima vezanim kako za pisanje same disertacije, tako i za analizu rezultata, odabir odgovarajuće literature, uspešnom prevazilaženju problema tokom eksperimentalnih merenja, vremenu i strpljenju.

Veliku zahvalnost dugujem akademiku Zoranu Lj. Petroviću koji mi je dao priliku da se okušam i uđem u svet nauke i fizike neravnotežnih električnih pražnjenja, naelektrisanih čestica i plazme, na obezbeđivanju uslova za rad, prenetom znanju, svestranoj pomoći pri definisanju teme i metode istraživanja, analizi i fizičkim tumačenjima dobijenih rezultata, savetima, vremenu i energiji utrošenoj u nesebičnoj pomoći i instrukcijama oko pisanja ove disertacije.

Posebno mi je zadovoljstvo da se zahvalim i

dr Nikoli Škoru na nesebičnoj pomoći tokom eksperimentalnih merenja u vodenoj pari, savetima, konsultacijama i smernicama u obradi i analizi eksperimentalnih rezultata,

laboratorijskim tehničarima Vladimiru Saviću i Vladimiru Dragojloviću na pruženoj pomoći i uspešnoj realizaciji svih tehničkih detalja vezanih za eksperimentalnu aparaturu,

svim kolegama iz Laboratorije za neravnotežne procese i primenu plazme na svakodnevnom druženju, interesovanju i podršci,

porodici i prijateljima na razumevanju, podršci i strpljenju.

Beograd, 2020.

Jelena Marjanović

Naslov disertacije: „Proboj i osobine neravnotežnih DC pražnjenja na niskom pritisku u parama tečnosti”

Sažetak:

Poslednjih godina raste interesovanje za plazme koje nastaju u parama tečnosti, na granici gas–tečnost i u samoj tečnosti. Ovo je posledica velikog broja raznovrsnih primena koje ove plazme nalaze u biomedicini, nanotehnologiji, industriji goriva, sintezi i obradi materijala, zaštiti životne sredine i tretmanu otpadnih voda. Sve navedene primene koriste neravnotežne plazme koje rade, kako na niskom tako i atmosferskom pritisku, bilo u tečnosti, u višefaznom okruženju (u mehurićima gasa unutar tečnosti) ili gasu/pari. Ipak, nedovoljno poznavanje osnovnih procesa kao i mali broj dostupnih podataka, posebno o koncentracijama reaktivnih vrsta u pražnjenjima u mehurićima i pražnjenjima unutar tečnosti, još uvek predstavljaju jedan od glavnih problema.

Ova doktorska disertacija daje pregled eksperimentalno ispitivanih osobina neravnotežnih niskotemperaturnih DC pražnjenja u jednostavnoj plan–paralelnoj elektrodnoj geometriji u parama tečnosti. Eksperiment korišćen u ovom radu omogućava razumevanje osnovnih procesa u gasu/pari i mehanizama sekundarne emisije, kako u slabostrujnim tako i u jakostrujnim neravnotežnim pražnjenjima. Dodatno, poznavanje ovih procesa u jednostavnoj plan–paralelnoj geometriji elektroda i u uslovima tinjavog pražnjenja, kao najjednostavnijeg režima, omogućiće da se dobijeni rezultati prošire i na geometriju i na uslove pražnjenja u mnogo složenijim sistemima koji se koriste u raznim primenama. Prikazani rezultati obuhvataju proučavanje DC proboja u parama tečnosti, snimanja strujno–naponskih karakteristika, spektralno razloženih prostornih raspodela emisije svetlosti iz pražnjenja kao i vremenski razložena snimanja prostorne strukture pražnjenja tokom formiranja jakostrujnog (abnormalnog) režima. Cilj ovde izloženog istraživanja jeste da omogući prelaz sa gasnih pražnjenja na pražnjenja u tečnostima.

Dodatno, važno je napomenuti da se naša merenja preklapaju sa oblašću visokih vrednosti redukovanog električnog polja gde se javljaju „runaway” elektroni i joni. Ova oblast je izuzetno zanimljiva sa stanovišta mogućeg proboja u samoj tečnosti pod dejstvom brzih nanosekundnih visokonaponskih impulsa. Uz to, značaj ovde izloženih rezultata je podržan time što se smatra da na granici gasovite i tečne faze postoje dve međuoblasti (engl. *interface*), pa su shodno tome, naši kvantitativni podaci relevantni za deo oblasti gasovite faze gde je koncentracija pare dominantna u odnosu na okolni gas. Može se reći da ova disertacija u neku ruku predstavlja sponu između pražnjenja u parama tečnosti (gasna pražnjenja) i u samim tečnostima, i u tu svrhu daje pregled podataka neophodnih za razumevanje procesa koji određuju osobine proboja i pražnjenja u parama/tečnostima, konkretno u vodenoj pari i parama alkohola: metanolu, etanolu, izopropanolu i n-butanolu na niskim pritiscima u širokom opsegu struja.

Ključne reči: DC proboj, Pašenove krive, vodena para, alkoholi, strujno–naponska karakteristika, emisioni profili

Naučna oblast: Fizika

Uža naučna oblast: Fizika jonizovanog gasa i plazme, Električni proboj u gasovima

UDK broj: 537.5

Title: "Breakdown and characteristics of non-equilibrium low-pressure DC discharges in vapours of liquids"

Abstract:

In recent years there has been a growing interest in plasmas generated in vapours of liquids, at the gas-liquid interface and in the liquid itself. This is the consequence of a large number of diverse applications that these plasmas have in biomedicine, nanotechnology, the fuel industry, material synthesis and processing, environmental remediation, and wastewater treatments. All of these applications use non-equilibrium plasmas that operate at both low and atmospheric pressure, either in a liquid, in a multiphase environment (in gas bubbles within a liquid) or in a gas/vapour. However, currently the main problem within the field is insufficient understanding and lack of available data, especially on concentration of reactive species in discharges in bubbles and in the liquid itself.

This doctoral dissertation provides an overview of the experimentally investigated properties of nonequilibrium low-temperature DC discharges in a simple plan-parallel electrode geometry in vapours of water and alcohols. The experiment used in this work allows us to understand the basic processes in gas/vapours and the mechanisms of secondary electron emission, both in low-current and high-current nonequilibrium discharges. Additionally, knowledge of these processes in a simple plan-parallel electrode geometry and in conditions of glow discharge, as the simplest mode, will allow the obtained results to be extended to both geometry and discharge conditions at more complex systems used in various applications. The presented results include the study of DC breakdown in vapours of liquids, recording of Volt-Ampere characteristics, spectrally resolved spatial distributions of light emission from discharge as well as time resolved recordings of spatial structure of discharge during formation of high-current (abnormal) regime. The aim of the presented research is to enable the transition from gas discharges to discharges in liquids.

It is important to note that our measurements overlap with the region of high values of the reduced electric field E/N where "runaway" electrons and ions occur. This area is extremely interesting from the point of view of a possible breakdown in the liquid itself, created by a fast nanosecond high-voltage pulses. Generally, it is considered that gas-liquid interface consists of three regions of interest, liquid phase, gas phase and an intermediary layer where vapour concentration is significantly higher than that of the background gas. The significance of the results presented here is that they describe and are quantitatively relevant for the part of the gas phase where the vapor concentration exceeds the surrounding gas. Therefore, it can be said that this dissertation in a way represents a link between discharges in vapours of liquids (gas discharges) and in liquids, and for this purpose provides an overview of the data necessary to understand the processes that determine the properties of breakdown and discharges in vapors/liquids, specifically in water vapor and in vapors of alcohols: methanol, ethanol, isopropanol, and n-butanol at low pressures for a wide range of currents.

Key words: DC breakdown, Paschen curve, water vapour, alcohols, Volt-Ampere characteristics, emission profiles

Scientific field: Physics

Scientific subfield: Physics of ionized gas and plasma, Electrical breakdown in gases

UDC number: 537.5

Sadržaj

UVOD	1
1. FENOMENOLOGIJA FIZIKE GASNIH PRAŽNJENJA	7
1.1 TAUNZENDOVA TEORIJA	8
1.2 PAŠENOV ZAKON	11
1.3 SAMOSTALNO PRAŽNJENJE NA NISKOM PRITISKU	12
1.3.1 STRUJNO–NAPONSKA KARAKTERISTIKA I PROSTORNA STRUKTURA PRAŽNJENJA	12
1.3.2 ZAKONI SLIČNOSTI (SKALIRANJA)	16
1.4 MODELI PRAŽNJENJA U GASOVIMA NA NISKOM PRITISKU	19
1.5 PRAŽNJENJA U I U KONTAKTU SA TEČNOSTIMA I NJIHOVIM PARAMA	27
2. EKSPERIMENT	29
2.1 OPIS EKSPERIMENTALNE APARATURE	31
2.1.1 VAKUUMSKI SISTEM	31
2.1.2 KOMORA ZA PRAŽNJENJE	32
2.1.3 SISTEM ZA ELEKTRIČNU POBUDU PRAŽNJENJA	34
2.1.4 SISTEM ZA DETEKCIJU SIGNALA	35
2.2 PRIPREMA I NAČIN MERENJA	38
2.2.1 PRIPREMA UZORKA TEČNOSTI I DOBIJANJE PARE	38
2.2.2 PRIPREMA POVRŠINE ELEKTRODA	39
2.2.3 MERENJE PROBOJNOG NAPONA PRAŽNJENJA	40
2.2.4 MERENJE NAPONSKIH I STRUJNIH SIGNALA	42
2.2.5 SNIMANJE PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA	44
3. PROBOJ I PRAŽNJENJA U PARAMA ALKOHOLA	50
3.1 METANOL CH_3OH	51
3.1.1 MERENJE PROBOJNOG NAPONA – PAŠENOVE KRIVE	51
3.1.2 PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA	52
3.1.3 SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA	55
3.1.4 ODREĐIVANJE JONIZACIONOG KOEFICIJENTA α I KOEFICIJENTA SEKUNDARNE EMISIJE ELEKTRONA γ	58
3.1.5 STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I PROSTORNA STRUKTURA PRAŽNJENJA	61
3.1.6 ZAKLJUČAK	66
3.2. ETANOL $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$	67
3.2.1 MERENJE PROBOJNOG NAPONA – PAŠENOVE KRIVE	68
3.2.2 PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA	69
3.2.3 SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA	70
3.2.4 ODREĐIVANJE JONIZACIONOG KOEFICIJENTA α I KOEFICIJENTA SEKUNDARNE EMISIJE ELEKTRONA γ	74
3.2.5 STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I PROSTORNE RASPODELE PRAŽNJENJA	76
3.2.6 ZAKLJUČAK	82
3.3 IZOPROPANOL (2–PROPANOL) $\text{CH}_3\text{CHOHCH}_3$	83

3.3.1	MERENJE PROBOJNOG NAPONA – PAŠENOVE KRIVE.....	84
3.3.2	PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA.....	85
3.3.3	SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA.....	86
3.3.4	ODREĐIVANJE JONIZACIONOG KOEFICIJENTA α I KOEFICIJENTA SEKUNDARNE EMISIJE ELEKTRONA γ	90
3.3.5	STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I PROSTORNE RASPODELE PRAŽNJENJA	92
3.3.6	ZAKLJUČAK.....	96
3.4	n–BUTANOL $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OH}$	97
3.4.1	MERENJE PROBOJNOG NAPONA – PAŠENOVE KRIVE.....	98
3.4.2	PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA.....	99
3.4.3	SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA.....	101
3.4.4	ODREĐIVANJE JONIZACIONOG KOEFICIJENTA α I KOEFICIJENTA SEKUNDARNE EMISIJE ELEKTRONA γ	106
3.4.5	STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I PROSTORNE RASPODELE PRAŽNJENJA	107
3.4.6	ZAKLJUČAK.....	110
4.	VODENA PARA.....	111
4.1	SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA.....	112
4.2	STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I VREMENSKI RAZVOJ ABNORMALNOG PRAŽNJENJA.....	115
4.3	ANALIZA VREMENA PRELETA JONA U SLABOSTRUJNOM DC PRAŽNJENJU U VODENOJ PARI.....	119
4.4	MIKROPRAŽNJENJE U VODENOJ PARI.....	124
4.5	ZAKLJUČAK.....	128
5.	ANOMALNA PONAŠANJA ISPITIVANIH PRAŽNJENJA.....	130
5.1	VIŠESTRUKI KANALI PRAŽNJENJA U VODENOJ PARI.....	130
5.2	NAGLA PROMENA REŽIMA PRAŽNJENJA U OBLASTI JAKIH STRUJA U PARAMA ALKOHOLA.....	134
5.3	ZAKLJUČAK.....	141
6.	ZAKLJUČAK.....	143
	LITERATURA.....	147

UVOD

Za razliku od površine Zemlje gde se materija pretežno nalazi u čvrstom, tečnom i gasovitom agregatnom stanju, u svemiru to nije slučaj – procenjuje se da je 99% vidljive materije u svemiru¹ u stanju plazme (jonizovanog gasa) (Gurnett i Bhattacharjee, 2005). Zvezde, zvezdani i ekstragalaktički mlazevi, međuplanetarni i međuzvezdani prostori su primeri astrofizičkih plazmi. S druge strane, u atmosferi Zemlje (niži slojevi) najčešći oblici postojanja plazme su munje (standardne i loptaste munje koje spadaju u ređe prirodne pojave) i aurora koja se može videti u pojasu oko Arktika i Antarktika. Na nadmorskim visinama od 100 km pa do nekoliko stotina kilometara, Zemlju okružuje pojas guste plazme koji se naziva jonosfera. Iznad jonosfere, Zemlja je okružena regionom magnetizovane plazme tzv. magnetosferom. Smatra se da se mnogi plazma procesi za koje se veruje da se javljaju čak i na neutronske zvezdama, dešavaju u planetarnim magnetosferama.

Ljudi su, nakon dugog vremenskog perioda pukog posmatranja ovih prirodnih gasnih pražnjenja kojima su bili svakodnevno okruženi, odlučili da pokušaju veštački da ih stvore i da nauče da ih kontrolišu. To je omogućeno tek u XVIII veku, kada je elektricitet fizički objašnjen i shvaćen, i kada je konstruisan prvi kondenzator za skladištenje naelektrisanja – Lajdenova boca (eng. *Leyden jar*), čiji je tvorac 1745. godine bio E. G. fon Klajst² (*Ewald Georg von Kleist*). Dalji pomak u proučavanju i dobijanju pražnjenja je omogućen pronalaskom elektrohemijske baterije 1800. godine od strane Volte³ (*Alessandro Giuseppe Antonio Anastasio Volta*) (Anders, 2003), dok je sredinom XIX veka pravi tehnički proboj napravljen Rumkorfovom⁴ (*Heinrich Daniel Ruhmkorff*) otkrićem indukcionog kalema i Gajslеровom⁵ (*Heinrich Geissler*) tehnikom zatapanja platinumskih elektroda u/kroz staklenu cev, čime je omogućen dalji napredak u istraživanjima (Hirish i Oskam, 1978).

¹ Astrofizičari prave razliku između posmatranog (eng. *observable*) i vidljivog (eng. *visible*) Univerzuma. Posmatrani Univerzum uključuje signale od početka kosmološke ekspanzije (Velikog praska) koji su imali vremena da stignu do Zemlje i u fizičkom smislu je ograničen samom brzinom svetlosti. Kako ni jedan signal ne može putovati brzinom većom od brzine svetlosti može se reći da posmatrani Univerzum sadrži sve objekte čija svetlost (ili neki drugi signal) je trebalo da putuje kraće od 13.7 milijardi svetlosnih godina da bi došla do nas (starost univerzuma se procenjuje na $13.799 \pm 0.021 \cdot 10^9$ godina po modelu Lambda-CDM (*Lambda-ColdDarkMatter model*) (Planck Collaboration, 2015). S druge strane, Vidljivi Univerzum uključuje samo signale emitovane od trenutka rekombinacije – epoha u kojoj su naelektrisani elektroni i protoni počeli da se vezuju i formiraju atome vodonika i koja se odigrala oko 378 000 godina nakon Velikog Praska (eng. *Big Bang*). Poluprečnik vidljivog univerzuma je oko $45.7 \cdot 10^9$ svetlosnih godina ili $4.32 \cdot 10^{26}$ m (Gott *et al*, 2005). Pored toga u kosmosu je praćenjem efekata gravitacije (obrtanje galaksija) ustanovljeno da postoji i takozvana tamna materija i takođe tamna energija. Ni jedan ni drugi oblik materije ne vidimo, za sada, pa ova dva dela kosmosa uzimaju 68% i 27% masa–energije, dok na vidljivi kosmos otpada svega 5%.

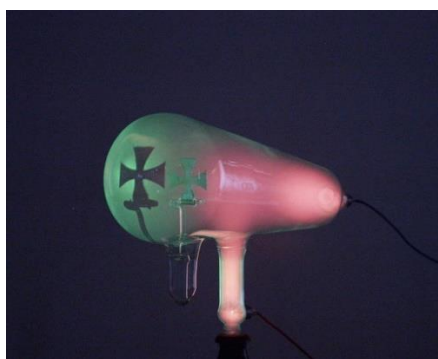
² Ewald Georg von Kleist, 1700-1748, bio je nemački pravnik, luteranski sveštenik i fizičar. Tvorac prvog električnog kondenzatora – Klajstova boca ili Lajdenova boca. Radilo se o boci delimično napunjenoj vodom, kroz čiji je čep bio provučen metalni šiljak i koja je mogla da postigne napon od nekoliko desetina kV. Tokom ranog razdoblja proučavanja elektricitea to je bio jedini dovoljno pouzdan, snažan i trajan izvor električnog napona, tako da je imao ulogu otprilike jednaku današnjem akumulatoru ili električnoj bateriji.

³ Alessandro Volta, 1745-1827, italijanski fizičar i hemičar. Gas metan je otkrio 1777. godine, a 1800. je napravio Voltin elektrostatički stub, preteču moderne baterije, koji se sastojao od naizmenično poređanih ploča bakra i cinka. Sedamdeset godina nakon njegove smrti – 1897. po njemu je nazvana SI jedinica za napon – Volt (V).

⁴ Heinrich Daniel Ruhmkorff, 1803-1877, bio je nemački proizvođač električnih uređaja i komercijalizovao je indukcioni kalem. Naime, prvi tvorac indukcionog kalema je bio Nikolas Kalan (eng. *Nicholas Callan*) 1836. godine. Prvi Rumkorfov kalem je patentiran 1851. a 1857. je poboljšao prvobitnu verziju kalema koristeći staklenu izolaciju i druge inovacije, kako bi proizveo varnice duže od 30 cm.

⁵ Heinrich Geissler, 1814-1879, nemački staklo-duvač i fizičar. U Bonu je imao prodavnicu za pravljenje naučne i laboratorijske aparature. Tehniku za pravljenje staklenih cevi sa metalnim elektrodama koje su zatopljene sa staklom je razvio 1858. godine. Dizajnirao je živinu vakuumsku pumpu 1855. koja je radila na principu pomeranja tečne žive umesto mehaničkih klipova što mu je omogućilo da postigne pritiske od oko 0.1 mmHg (0.1Torr).

Tako već 1858. godine Pliker⁶ (*Julius Plücker*) prvi zapaža katodne zrake – „kathodenstrahlen” i pokazuje da oni dovode do fluorescencije stakla, šljunka i drugih materijala, uporedo proučavajući i kako magnetno polje utiče na njih. Ubrzo Hitorf⁷ (*Johann Wilhelm Hittorf*) 1869. otkriva da katodni zraci prave senke kada im se na put nađu objekti koji su manji od katode (slika 1), a 1879. Kruks⁸ (*William Crookes*) iznosi teoriju da su ovi zraci u stvari naelektrisane čestice izbačene sa katode velikom brzinom pod pravim uglom. Iste godine u Šefildu, na sastanku Britanske asocijacije za naučna dostignuća (eng. *British Association for Advancement of Science*), publici iznosi sledeće: „*So distinct are these phenomena from anything which occurs in air or gas at the ordinary tension, that we are led to assume that we are here brought face to face with Matter in a Fourth state or condition, a condition so far removed from the State of gas as a gas is from a liquid*” (Crookes, 1879), ili u prevodu: „Ovi fenomeni se toliko razlikuju od bilo čega što se dešava u vazduhu ili gasu na običnom pritisku, da smo prinuđeni da se suočimo sa činjenicom da je pred našim očima Četvrto stanje materije, stanje koje je toliko udaljeno od gasovitog stanja koliko je gasovito stanje udaljeno od tečnog” (Hirish i Oskam, 1978). Kruksov eksperimentalni rad i predavanja uticali su tada na mnoge naučnike koji su istraživali i proučavali različite oblike električnih gasnih pražnjenja od tinjavih, preko lučnih pražnjenja, varnica itd.



Slika 1. Fluorescencija stakla usled udara katodnih zraka i senka koja nastaje kada im se predmet nađe na putu. (Sándor, 2002).

Električna gasna pražnjenja su odigrala značajnu ulogu u napretku spektroskopije omogućivši dobijanje spektara mnogih atoma i molekula. Izučavanje ovih spektara i njihova sistematizacija utrla je put postavljanju prvih teorija o strukturi atoma. U smislu današnje moderne nomenklature, reč „elektron” je uvedena pre otkrića same čestice, od strane profesora Stonija⁹ (*G. Johnstone Stoney*) 1891. godine, koji je jasno napisao da to nisu čestice već samo naelektrisanja, bez mase i inercije. Dugo vremena je postojao sukob u mišljenjima o tome da li se katodni zraci sastoje od naelektrisanih čestica ili su oni samo poremećaji koji se prostiru kroz „etar”¹⁰. Dilema je razrešena kada je Perin¹¹ (*Jean Baptiste Perrin*) 1895. godine u svom eksperimentu posmatrao snop katodnih zraka u Faradejevom cilindru i primetio da oni nose negativno naelektrisanje (Perrin, 1895). Nakon

⁶ Julius Plücker, 1801-1868, nemački matematičar i fizičar, izučavao je fenomene koji nastaju pod delovanjem magnetnog polja, magnetno skretanje katodnih zraka i prema tvrdnjama Hitorfa prvi je identifikovao tri linije iz spektra vodonika.

⁷ Johann Wilhelm Hittorf, 1824-1914, bio je nemački fizičar, postavio je koncept transportnog broja – deo električne struje koju nosi svaka jonska vrsta, proučavao je svetlosne spektre gasova i para i osobine katodnih (elektronskih) zraka.

⁸ William Crookes, 1832-1919, britanski hemičar i fizičar koji se bavio spektroskopijom. Tvorac je vakuumskih cevi (Kruksova cev) i sočiva za naočare koja 100% blokirju ultraljubičasto zračenje, pronašao je talijum 1861. godine.

⁹ George Johnstone Stoney, 1826-1911, irski fizičar, dao je značajan doprinos proučavanju svetlosnog spektra, dao je procenu broja molekula u kubnom milimetru gasa, na atmosferskom pritisku i sobnoj temperaturi na osnovu podataka dobijenih iz kinetičke teorije gasova.

¹⁰ Etar (od grčke reči αιθηρ, što znači „gornji vazduh” ili „čist, svež vazduh”) u fizici korišćen da označi supstancu koja ispunjava prostor ili polje, za koju se smatralo da je neophodna kao prenosni medijum za prostiranje elektromagnetne ili gravitacione sile.

¹¹ Jean Baptiste Perrin, 1870-1942, francuski fizičar, nosilac Nobelove nagrade iz 1926, proučavao je Braunovo kretanje sitnih čestica suspendovanih u tečnostima (potvrdio Ajnštajново objašnjenje ove pojave) i dokazao atomsku prirodu materije.

toga su Dž. Dž. Tomson¹² (*Sir Joseph John Thomson*) i Kaufman¹³ (*Walter Kaufmann*) zaključili da su ove čestice iste za sve elemente i da se razlikuju od elektrolitičkih jona na osnovu činjenice da odnos naelektrisanja i mase katodnih zraka (redukovano na nultu brzinu) ne zavisi od pritiska, prirode gasa i materijala katode (von Engel, 1965). Dakle, otkrili su subatomske čestice, koja je bila hiljadu puta lakša od vodonika i Tomson ju je nazvao „korpuskula” (eng. *corpuscle*) – najsitnija čestica. Lord Kelvin¹⁴ (*William Thomson, 1st Baron Kelvin*) je želeo da se ona nazove „elektrion”, dok je holandski fizičar H. A. Lorenc¹⁵ (*Hendrik Antoon Lorentz*) predložio proširenje Stonijevog „elektrona” kako bi uključio i samu česticu i na taj način se izborio da se naziv elektron zadrži.

Tomsonova dva najbolja studenta Raderford¹⁶ (*Ernest Rutherford*) i Taunzend¹⁷ (*Sir John Sealy Edward Townsend*) su svoje naučne karijere nastavili odvojenim putevima, prvi se posvetio izučavanju radioaktivnosti, dok je drugi, u Oksfordu, formirao laboratoriju koja će postati vodeća u svetu na polju proučavanja „elektriciteta u gasovima”. Taunzend je postao priznat kao lider na polju izučavanja električnih gasnih pražnjenja zahvaljujući jasnoj identifikaciji prirode elementarnih naelektrisanih čestica: elektrona, pozitivnog i negativnog jona, i sa svojim učenicima je iznedrio impresivnu količinu podataka, koeficijenata i parametara za opisivanje „prolaska električne energije kroz gasove” (Hirish i Oskam, 1978).

Za svo vreme postojanja, nešto više od sto godina, oblast gasne elektronike je nekoliko puta drastično menjala svoje ime. Dž. Dž. Tomson 1893. je prvi uveo naziv „prolazak elektriciteta kroz gasove” (eng. *passage of electricity through gases*) koji se godinama koristio paralelno sa nazivom „električna pražnjenja u gasovima” (eng. *electrical discharges in gases*). Vremenom je naziv skraćen na fiziku „gasnog pražnjenja” (eng. *gas discharge*). Reč *pražnjenja* je zaživela jer je postalo jasno da se kondenzatori prazne u atmosferi tako što ova provodi elektricitet. Tokom i nakon Drugog svetskog rata rasla je popularnost elektronike, pa je polje ponovo promenilo naziv u „gasna elektronika” (eng. *gaseous electronics*). Korišćenje termina *elektronika* ima suštinski veći značaj od praćenja modnih trendova. Naime, elektronika je po definiciji nauka o kretanju elektrona, te se može govoriti o vakuumskoj elektronici, gasnoj elektronici i elektronici čvrstih materijala.

Danas se termin „plazma fizika” ponekad koristi kao sinonim za „gasnu elektroniku”, zbog široke oblasti primena plazme u nauci, tehnici, medicini i svakodnevnom životu. Međutim, treba imati u vidu da je plazma znatno uži termin od gasne elektronike, jer za plazmu mora da budu zadovoljeni

¹² Sir Joseph John Thomson, 1856-1940, britanski fizičar koji je otkrio elektron. Dobio je Nobelovu nagradu za fiziku 1906. za svoja eksperimentalna i teorijska istraživanja provođenja elektriciteta kroz gasove. Zaslužan za prvi dokaz postojanja izotopa 1913, u okviru njegovih istraživanja kanalnih zraka (pozitivnih jona). U ovim istraživanjima je prvi koristio masenu spektrometriju što je dovelo do razvoja masenog spektrografa.

¹³ Walter Kaufmann, 1871-1947, nemački fizičar poznat po tome što je prvi (eksperimentalno) dokazao zavisnot brzine od relativističke mase elektrona čime je jako doprineo razvoju savremene fizike, kao i specijalne teorije relativnosti.

¹⁴ William Thomson, 1st Baron Kelvin, 1824-1907, škotsko-irski fizičar i inženjer, dosta je uradio na polju matematičke analize elektriciteta i formulacije prvog i drugog zakona termodinamike. Osmislio je kompletan sistem za rad podmorskog telegrafa koji je slao karaktere na svake 3.5 s. U njegovu čast uvedena je jedinica kelvin (K) za apsolutnu temperaturu.

¹⁵ Hendrik Antoon Lorentz, 1853-1928, holandski fizičar, 1902. dobio Nobelovu nagradu za otkriće i teorijsko objašnjenje Zemanovog efekta. Takođe je izveo transformacione jednačine (Lorentzove transformacije) koje čine podlogu Ajnštajnovе specijalne teorije relativnosti.

¹⁶ Ernest Rutherford, 1871-1937, novozelandski fizičar britanskog porekla, začetnik nuklearne fizike, otkrio je koncept vremena poluraspada, radioaktivni element radon, alfa i beta zračenje, dao model atoma (Raderfordov model atoma) i otkrio proton. Nobelovu nagradu za hemiju je dobio 1908. Hemijski element raderfordium (element 104) je 1997. nazvan po njemu.

¹⁷ Sir John Sealy Edward Townsend, 1868-1957, irski fizičar koji je utemeljio put u proučavanju električne provodnosti gasova i prvi direktno izmerio jedinično naelektrisanje elektrona (e). 1901. otkriva da se molekuli gasa mogu jonizovati sudarima sa jonima, bavio se proučavanjem osobina rojeva elektrona (eng. *electron swarms*), izveo verovatnoću preseka za sudare, otkrio da srednji slobodni put elektrona zavisi od njihove energije, otkrio da pri nekim energijama elektroni prolaze kroz atome bez rasejanja (Ramzauer-Taunzendov efekat – eng. *Ramsauer–Townsend effect*). Jedinica za redukovano električno polje je po njemu nazvana Taunzend (Td).

određeni veoma dobro definisani uslovi koji zahtevaju veliku gustinu naelektrisanih čestica. Mnogo širi pojam koji može da bude pandan gasnoj elektronici je fizika jonizovanog gasa koja uključuje i plazme, ali i slabije jonizovan gas koji ne zadovoljava uslov da bude definisan kao plazma.

Naziv plazma (od grčke reči $\pi\lambda\alpha\sigma\mu\alpha$ – oblikovati, modelirati) u fiziku gasnih pražnjenja, 1928. godine uvodi I. Langmir¹⁸ (*Irving Langmuir*) u svom radu „Oscilacije u jonizovanim gasovima” (eng. *Oscillations in Ionized Gases*) gde kaže: „*Except near the electrodes, where there are sheaths containing very few electrons, the ionized gas contains ions and electrons in about equal numbers, so that the resultant space charge is very small. We shall use the name plasma to describe this region containing balanced charges of ions and electrons*”, ili u prevodu: „Izuzev u blizini elektroda, gde postoje oblasti sa malo elektrona, jonizovani gas sadrži približno jednak broj jona i elektrona, tako da je rezultujuće prostorno naelektrisanje jako malo. Mi ćemo koristiti naziv plazma kako bi smo opisali ovaj prostor u kome postoji ravnoteža u naelektrisanjima jona i elektrona” (Langmuir, 1928). Dakle, plazma je jonizovani gas koji pored neutralnih čestica sadrži slobodne elektrone, kao i pozitivno i negativno naelektrisane jone. Za razliku od drugih materijala, kod kojih je dinamika kretanja određena silama između njihovih susednih regiona, kod plazme (jonizovanog gasa) su njena jedinstvena svojstva posledica razdvajanja naelektrisanja između elektrona i jona, čime dolazi do rasta električnih polja, dok kretanje naelektrisanih čestica dovodi do porasta struja i magnetnih polja, što rezultira u „akciji na daljinu”¹⁹ i nizu fenomena zapanjujuće složenosti koji imaju značajne praktične primene.

U današnje vreme se oblast primena plazmi svakodnevno povećava, od industrije (gde se koriste za modifikaciju površina, osvetljenje, lasere, sintezu i obradu materijala itd.), preko biomedicine (litotripsija, ablacija tkiva, sterilizacija, zaceljivanje rana, plazma skalpel, koagulacija i dr.) do zaštite životne sredine (dezinfekcija, tretman voda itd.). Međutim, dalje usavršavanje postojećih i razvoj novih primena zavisi od poznavanja i razumevanja osnovnih fizičkih i hemijskih procesa koji određuju osobine plazme. Dakle, za razumevanje ponašanja same plazme, ali i kompleksne međusobne interakcije čestica u gasu i sa površinama, neophodno je izvršiti sistematska i precizna merenja, čiji će rezultati moći da se koriste u realnim i sveobuhvatnim modelima. Naime, jedan od ciljeva ovog istraživanja je dobijanje eksperimentalnih rezultata koji će se upotrebiti za formiranje baze referentnih podataka, neophodnih za modelovanje plazmi u parama tečnosti.

Istraživanja u okviru ove teze predstavljaju nastavak rada na osnovnim osobinama neravnotežnih gasnih pražnjenja koja je započeo Felps (*Arthur V. Phelps*) i Zoran Lj. Petrović sa saradnicima na JILA fizičkom institutu, Univerziteta Kolorado u Bolderu (Petrović i Phelps, 1993; Petrović i Phelps, 1997; Phelps i Petrović, 1999), a koji je nastavljen u Laboratoriji za gasnu elektroniku Instituta za fiziku u Beogradu (magistarske teze i/ili doktorske disertacije dr Ilije Stefanovića, mr Jelene Živković, mr Svetlane Živanov, dr Dragane Marić i dr Nikole Škora). Ova istraživanja su se bavila pražnjenjima u najjednostavnijoj, plan–paralelnoj geometriji centimetarskih dimenzija, što je omogućilo bolje razumevanje osnovnih mehanizama probuja i održavanja pražnjenja i obezbedilo obimnu bazu podataka za modelovanje. Istraživanja prikazana u disertaciji dr Nikole Škora su dodatno obuhvatila rad na mikropražnjenjima i pražnjenjima sa šupljom katodom, kao i sam početak rada na pražnjenju u vodenoj pari.

Ova teza predstavlja nastavak rada na probuju i pražnjenjima u parama tečnosti, bazirajući se na pražnjenjima u organskim tečnostima, konkretno u izabranim primarnim i sekundarnim alkoholima,

¹⁸ Irving Langmuir, 1881-1957, američki hemičar i fizičar, za otkrića i istraživanja u oblasti hemije površina 1932. dobija Nobelovu nagradu za hemiju. Njegovo naučno istraživanje, koje je trajalo više od 50 godina, obuhvatalo je hemijske reakcije, termičke efekte, električno pražnjenje u gasovima, atomsku strukturu i proučavanje fenomena koji nastaju na površinama u vakuumu. Uveo naziv plazma 1928. za jonizovane gasove.

¹⁹ Akcija na daljinu – fizički koncept da se interakcija između dva objekta može izvršiti bez stvarnog fizičkog kontakta (za razliku od mehaničkog kontakta) tj. to je nelokalna interakcija objekata koji su odvojeni u prostoru.

ali ujedno uključujući i nastavak istraživanja pražnjenja u vodenoj pari. Cilj ovog rada je obezbeđivanje podataka neophodnih za razumevanje procesa koji određuju osobine proboja i pražnjenja u parama tečnosti (parama metanola, etanola, izopropanola, n-butanola i vodenoj pari) na niskim pritiscima za široki opseg struja. Dakle, ova disertacija predstavlja sponu između pražnjenja u parama tečnosti (gasnih pražnjenja) i u tečnostima i treba da omogući prelaz sa pare na tečnost.

Ova teza obuhvata dva osnovna pravca istraživanja:

(A) Formiranje baze referentnih podataka za proboj i pražnjenja u parama vode i izabranih primarnih i sekundarnih alkohola, pri čemu je posebna pažnja usmerena ka podacima neophodnim za modelovanje i ka podacima neophodnim za normiranje preseka za rasejanje elektrona, jona i brzih neutrala u parama tečnosti;

(B) Detaljno proučavanje fenomena koje smo uočili u ovim pražnjenjima, kao što su pojava višestrukih kanala pražnjenja i nagle promene režima pražnjenja u oblasti jakih struja, praćene promenama u električnim i emisionim osobinama.

Struktura ove doktorske disertacije je sačinjena iz sledećih delova:

- Prvi deo je posvećen fenomenologiji gasnih pražnjenja na niskim pritiscima. Opisane su osnovne osobine kretanja naelektrisanih čestica u gasu u prisustvu električnog polja i data je Taunzendova teorija (eng. *Townsend's theory*) proboja i slabostrujnih pražnjenja u gasu. Predstavljene su i opisane karakteristike različitih modova tinjavog pražnjenja, takođe je i prikazana veza između prostorne strukture pražnjenja i strujno-naponskih karakteristika. Dati su zakoni skaliranja kao i njihovo izvođenje. Na kraju su opisani neki od savremenih pristupa u modelovanju neravnotežnih gasnih pražnjenja, koji su bitni za razumevanje fenomenologije i osnovnih procesa u pražnjenjima proučavanim u ovom radu
- U drugom delu je opisana aparatura koju smo koristili, tehnika i postupak eksperimentalnih merenja. Detaljno je objašnjen postupak dobijanja pare iz ispitivane tečnosti i procedura tretmana katode pre svakog merenja. Opisani su problemi koji se mogu javiti prilikom merenja, kao i načini za njihovo prevazilaženje i rešavanje.
- Treći deo prikazuje rezultate merenja probojnih napona, električnih i emisionih osobina pražnjenja u parama alkohola (metanola, etanola, izopropanola i n-butanola). Dakle, ovaj deo sadrži optičke emisije spektre pražnjenja u parama alkohola koji su snimani da bi se na osnovu njih izabrali odgovarajući optički filteri za spektralno razložena snimanja emisije iz pražnjenja. Pašenove krive dobijene za dve vrednosti međuelektrodnog rastojanja ($d = 1.1$ i 3.1 cm) u pražnjenju u parama alkohola, zatim odgovarajuće prostorne raspodele emisije svetlosti iz pražnjenja dobijene integracijom u celom vidljivom spektru i na izabranim talasnim dužinama korišćenjem filtera, izmerene i izračunate koeficijente za jonizaciju i emisiju sekundarnih elektrona u ovim pražnjenjima i snimljene strujno-naponske karakteristike i prostorne raspodele emisije pražnjenja u svim režimima rada (Taunzendovom, normalnom i abnormalnom tinjavom režimu).
- Četvrti deo daje pregled rezultata vezanih za pražnjenje u vodenoj pari koji se nadovezuju na rezultate prikazane u Doktorskoj disertaciji dr Škora (2012). U okviru ove disertacije merenja su proširena spektralno razloženim snimanjima pražnjenja u vodenoj pari, kao i snimanjima probojnog napona na malim rastojanjima (visokim pritiscima) u uslovima kada može doći do formiranja kapljica. Urađeno je skaliranje strujno-naponskih karakteristika parametrom j/p^2 , prilikom čega je objašnjen značaj uzimanja realne efektivne površine pražnjenja za računanje gustine struje. Prikazana su vremena preleta jona dobijena iz prigušenih oscilacija primenom modela Felps, Petrović i Jelenković (1993). Ova vremena preleta jona su poslužila za izračunavanje brzine drifta tih jona u vodenoj pari.
- U petom delu je dat pregled netipičnog (anomalnog) ponašanja ispitivanog neravnotežnog pražnjenja na niskim pritiscima u parama metanola, etanola i vode. Tokom

snimanja strujno-naponske karakteristike pražnjenja u vodenoj pari ($pd = 0.60$ Torr cm; $d = 0.5$ cm) uočeno je postojanje dvostrukih kanala pražnjenja u Taunzendovom i normalnom tinjavom režimu. Prikazane su odgovarajuće aksijalne raspodele emisije iz pražnjenja koje odgovaraju glavnom i sekundarnom kanalu pražnjenja kao i odgovarajuće 2D slike pražnjenja dobijene snimanjem ICCD kamerom. Takođe su date i radijalne raspodele emisije i 2D slike pražnjenja dobijene snimanjem kroz transparentnu anodu. Drugi anomalni efekat je primećen u ponašanju pražnjenja u parama alkohola metanola i etanola na visokim strujama, na kojima je opaženo postojanje prelaznog režima (moda) pražnjenja u toku trajanja jednog primenjenog naponskog impulsa tokom stabilnog rada pražnjenja. Bez propratnih nestabilnosti ili oscilacija i bez značajnih promena u posmatranoj spoljašnjoj prostornoj strukturi, pražnjenje se prebacuje iz jednog u drugi stabilni mod rada prelazeći sa više na nižu struju i sa nižeg na viši napon u toku jednog impulsa. Dati su snimci aksijalnih prostornih raspodela emisije svetlosti iz pražnjenja pre i posle prelaza (manifestovanog stepenikom u strujnom i naponskom signalu). Aksijalne raspodele emisije su dobijene integracijom u celom vidljivom spektru i upotrebom optičkih filtera, odnosno integracijom u određenom intervalu talasnih dužina u zavisnosti od korišćenog filtera.

- Šesti deo daje rezime rezultata i zaključaka proisteklih iz istraživanja urađenog u sklopu ove disertacije i ukazuje na neke od mogućih pravaca budućeg rada u oblasti neravnotežnih pražnjenja u parama tečnosti, pre svega organskih tečnosti, zbog raznovrsnosti primena u različitim oblastima – od nanotehnologije, preko biomedicine do borbe protiv zagađenja životne sredine.

1. FENOMENOLOGIJA FIZIKE GASNIH PRAŽNENJA

Plazma je jonizovani gas koji se sastoji od slobodnih pozitivno i negativno naelektrisanih čestica sa približno jednakim gustinama naelektrisanja, tako da je u srednjem elektroneutralna. Kada se kaže jonizovan gas to podrazumeva da se bar jedan elektron odvojio, odnosno pripojio atomu ili molekulu formirajući u prvom slučaju pozitivan jon i slobodan elektron, odnosno negativan jon u drugom. Prema stepenu jonizacije (odnos gustine naelektrisanih čestica i neutralnih molekula gasa u plazmi) plazme se dele na jako i slabo jonizovane. Slabo jonizovane plazme su dominantno sudarne plazme. Dodatno, potrebno je napraviti razliku između neravnotežne ili nisko-temperaturne plazme, koja je proizvod sudarne jonizacije slobodnih elektrona pod dejstvom spoljašnjeg polja i kod koje je energija elektrona mnogo veća od energije jona i okolnog neutralnog gasa, i termalne plazme koja nastaje termalnom jonizacijom neutralnih molekula gasa. Kako neravnotežne plazme nastaju i rade u režimu u kome su dominantni sudari između čestica, to ih čini jako pogodnim za razne tehnološke primene, jer je moguće promenom parametara pražnjenja uticati na osobine čestica (atoma ili molekula) radnog gasa (Makabe i Petrović, 2006). Najzastupljenije su u obradi materijala, tretmanu i modifikaciji površina, mikroelektronici, plazma nanotehnologiji za dobijanje nanotuba, biomedicini, u industriji goriva gde se koriste za optimalnije dobijanje vodonika i u zaštiti životne sredine.

Za usavršavanje i dodatnu optimizaciju postojećih, ali i za razvoj novih potencijalnih primena potrebno je dobro poznavanje i razumevanje mehanizama proboja i režima rada ovih neravnotežnih nisko-temperaturnih gasnih pražnjenja. Predmet istraživanja ove doktorske disertacije su upravo neravnotežne (nisko-temperaturne) plazme i u okviru ovog poglavlja biće predstavljeni i objašnjeni osnovni procesi koji dovode do proboja u gasu i koji su neophodni za rad pražnjenja u različitim režimima. Potrebno je posebno naglasiti da postoje precizni uslovi da bi se nešto nazvalo plazma i oni uključuju da postoji elektroneutralnost u glavnom delu zapremine, da postoji određeni odnos između srednje dužine slobodnog puta, Debajevog poluprečnika i veličine suda. Kada je Debajev poluprečnik mnogo manji od suda (zapremine plazme) ostvaruju se uslovi da plazma bude dominantno elektroneutralna u celoj zapremini. Kada je koliziorna frekvencija veća od plazma učestanosti onda imamo pretežno sudarne plazme. Međutim, širok spektar jonizovanih gasova ne zadovoljava definicione uslove za plazmu tako što pre svega Debajev poluprečnik postaje uporediv sa dimenzijama suda pa i znatno veći. Tu se onda ne može govoriti o dominaciji elektrostatičke interakcije, već dominiraju sudari slobodnih naelektrisanih čestica i molekula gasa. Prednost izučavanja slabo jonizovanog gasa u odnosu na formiranu plazmu je u tome da se sudari mogu egzaktno opisivati i na taj način dobiti podaci o ulozi sudarnih procesa u nastanku jonizovanog gasa i formiranju same plazme. Većina praktično primenjenih neravnotežnih plazmi predstavlja kombinaciju rada u režimu jonizovanog gasa (prielektrodne oblasti) i elektroneutralne neravnotežne plazme. Sva takva pražnjenja moraju da prvo prođu kroz režim jako salbo jonizovanog gasa (poznatijeg kao rojevi naelektrisanih čestica – eng. *Swarm*) da bi prešli u režim formirane plazme. Sam proboj gasa se dešava u režimu rojeva dok se pri prelasku u formirano pražnjenje realizuju režimi rada sa plazmom, ali i sa izraženim prielektrodnim oblastima koje utiču na samu plazmu. U ovoj disertaciji mi pratimo nastanak takvih pražnjenja, zadržavajući se posebno na samom proboju u režimu rojeva pa sve do prelaska u formirano samostalno gasno pražnjenje. Imajući to u vidu, detaljno će biti opisani i sami radni režimi pražnjenja, njihove osnovne osobine, elementarni procesi i karakteristične pojave.

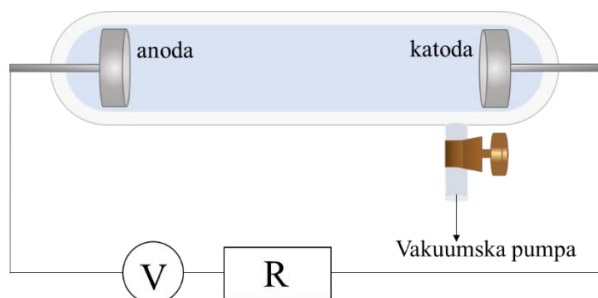
1.1 TAUNZENDOVA TEORIJA

Procesi nastajanja naelektrisanih čestica u gasu su: jonizacija (usled sudara elektrona, jona ili atoma velike energije sa atomom gasa, zračenja, zagrevanja), procesi na elektrodama – fotoelektrični efekat, sekundarna emisija elektrona, termoelektronska emisija i emisija pod uticajem jakog električnog polja, dok su osnovni procesi nestajanja naelektrisanih čestica: rekombinacija, difuzija i gubici na elektrodama.

Gas je sam po sebi izolator, odnosno predstavlja neprovodnu sredinu. Dakle, proticanje električne struje kroz gas je uslovljeno postojanjem slobodnih naelektrisanih čestica i prisustvom spoljašnjeg električnog polja, koje uzrokuje njihovo usmereno kretanje. Tako se na već postojeću haotičnu komponentu brzine kretanja elektrona i jona superponira usmerena komponenta kretanja duž električnog polja (drift). Pored drifta, na naelektrisane čestice utiče i difuzija koja dovodi do njihovog fluksa usled gradijenta koncentracije koji je prisutan u graničnim oblastima, kao na primer u blizini zidova.

Električni proboj u gasu je osnovni proces u fizici gasnih pražnjenja i fizici plazme, koji karakteriše prelazak gasa iz stanja izolatora u provodno stanje primenom dovoljno jakog električnog polja. Taunzend je već početkom dvadesetog veka dao teoriju koja opisuje električni proboj u gasu. Iako je pojam elektrona tek kasnije uveo u svoje radove, on je od početka bio svestan prirode naelektrisanih čestica koje su odgovorne za jonizaciju neutralnih atoma. U nizu eksperimenata je pokazao da se elektroni oslobođeni sa negativno naelektrisane ploče ravanskog kondenzatora, delovanjem X-zraka ili UV svetlosti, multipliciraju (umnožavaju) u gasu dok se kreću u električnom polju. On je prvi odredio koeficijent multiplikacije – kasnije po njemu nazvan Taunzendov prvi jonizacioni koeficijent, čiju je zavisnost od električnog polja dao u formi semi – empirijske formule (jednačine (1.3) i (1.4)) (von Engel, 1957). Formula koju je dao važi samo u određenim uslovima, pokazano je da ne važi na jako malim, kao ni na visokim vrednostima redukovanog električnog polja i da totalno pada u slučaju odedenih gasova (Marić, Radmilović–Rađenović i Petrović, 2005). Takođe, primena te jednostavne formule zavisi od opsega vrednosti E/N (karakteristično električno polje normirano na gustinu gasa) koji je korišćen za fitovanje i ne sme se koristiti van tih opsega.

Za objašnjenje osnovnih procesa koji dovode do proboja najčešće se koristi jednostavan eksperiment, koji se sastoji iz dve metalne plan-paralelne elektrode smeštene unutar staklene cevi i povezane na DC naponski izvor (slika 1.1). Cev je napunjena gasom koji se nalazi na pritisku obično nižem od atmosferskog (Raizer, 1991).

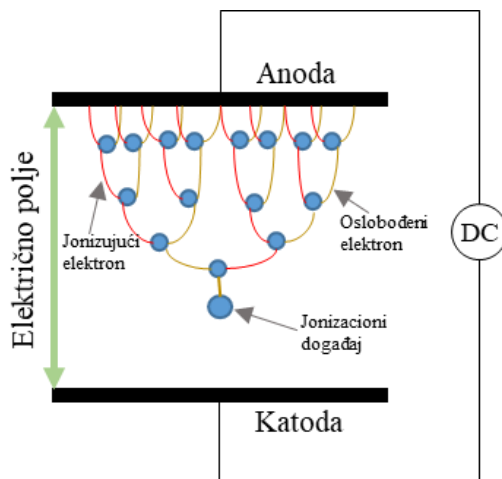


Slika 1.1 Šematski prikaz eksperimenta za dobijanje jednosmernog pražnjenja u gasu na niskom pritisku.

Kada se na elektrode dovede mali napon, reda veličine desetak volti, on neće dovesti ni do kakvog vidljivog efekta, mada bi dovoljno osetljivi merni instrument mogao da zabeleži proticanje slabe struje reda 10^{-15} A. Kako usled delovanja kosmičkog zračenja ili prirodne radioaktivnosti gas sadrži mali broj naelektrisanih čestica primenjeno polje će delovati na njih tako što će ih usmeriti ka elektrodama i tako dati struju. Ukoliko se cev izloži UV, radioaktivnom ili rendgenskom zračenju doći će do proticanja struje i do 10^{-6} A (1 μ A), ali usled male jonizacije i dalje neće biti vidljive

emisije svetlosti iz cevi, a struja će proticati samo dok postoji spoljašnji izvor jonizacije. Ovaj tip pražnjenja se naziva nesamostalno pražnjenje.

Sa daljim povećanjem napona raste i struja, sve dok na nekoj vrednosti napona V ne dođe do naglog porasta struje, što je praćeno emisijom svetlosti iz cevi za pražnjenje. Ovo predstavlja proboj u gasu, jedan od najvažnijih procesa u pražnjenju. Od ovog trenutka pražnjenje može da postane samostalno. Energija elektrona raste dok se kreće u polju i dostiže vrednost dovoljnu za jonizaciju atoma. U sudarima elektrona sa atomima gasa nastaju novi elektroni, koji bivaju ubrzani od strane polja, i prethodno opisan ciklus se opet ponavlja. Rezultat ovoga je elektronska lavina (eng. *avalanche*) i multiplikacija (umnožavanje) elektrona (slika 1.2). Taunzend je ove procese okarakterisao koeficijentom jonizacije α , definisanim kao broj jonizacija koje izvrši jedan elektron po jedinici dužine puta u pravcu dejstva električnog polja.



Slika 1.2 Prikaz elektronske lavine (multiplikacija elektrona ili Taunzendova lavina).

Dakle, ukoliko se napon na elektrodama poveća biće veća i energija elektrona koji se kreću u polju, pa će kod većeg broja elektrona biti dovoljna za jonizaciju. Kretanje naelektrisanih čestica u gasu u staklenoj cevi je kombinacija termalnog kretanja, koje se dešava podjednako u svim pravcima (difuzija) i usmerene komponente – drifta usled električnog polja između elektroda. Ako jedan elektron proizvede u nekoj tački između elektroda α elektrona i α pozitivnih jona po jedinici dužine puta u pravcu polja. Prema tome, jedan elektron sa katode na putu dužine d napravi αd jonizujućih sudara. Kako se jonizacija vrši kontinualno kroz ceo prostor, porast broja jonskih parova na elementu puta dx iznosi αdx po elektronu, pa za $N(x)$ elektrona u tački x dobijamo:

$$dN = N(x) \alpha dx \quad (1.1)$$

Ako gornji izraz integralimo u granicama od 0 do d , gde je d rastojanje između elektroda, dobijamo za broj elektrona N u tački d ili za struju i u tački d :

$$\frac{N}{N_0} = \frac{i}{i_0} = \exp(\alpha d) \quad (1.2),$$

gde je N_0 broj elektrona na početku, a i_0 inicijalna struja. Eksponencijalni faktor predstavlja koeficijent multiplikacije elektrona. Taunzend je jonizacioni koeficijent predstavio semi – empirijskom analitičkom formulom oblika:

$$\alpha = Ap \exp\left(\frac{-Bp}{E}\right) \quad (1.3),$$

gde su A i B konstante karakteristične za određeni gas, p je pritisak i E jačina električnog polja. U literaturi se ovaj izraz naziva Taunzendova formula (von Engel, 1965), a često se predstavlja u nešto savremenijem obliku:

$$\frac{\alpha}{N} = A_0 \exp\left(\frac{-B_0}{\frac{E}{N}}\right) \quad (1.4),$$

gde A_0 i B_0 predstavljaju konstante normalizovane na temperaturu $T_0 = 273$ K. U formuli (1.3) električno polje i koeficijenti A i B su normalizovani na pritisak p u torima ($1 \text{ Torr} = 133.3224 \text{ Pa}$), ali se već poslednjih 40 godina u fizici rojeva naelektrisanih čestica (Huxley i Crompton, 1974) koriste veličine normalizovane na koncentraciju čestica gasa N . U fizici gasnih pražnjenja veličina E/N se naziva redukovano električno polje i izražava se u jedinicama Taunzend (Td) ($1 \text{ Td} = 10^{-21} \text{ Vm}^2$). Bitno je naglasiti da formule (1.3) i (1.4) dobro opisuju jonizaciju u vrlo ograničenom opsegu vrednosti redukovano električnog polja E/N ukoliko se koeficijenti odrede fitovanjem merenih vrednosti jonizacionog koeficijenta, odnosno porasta naelektrisanja, ali samo u opsegu E/N u kome su određeni eksperimentalni podaci. Pošto je formula (1.3) dobijena korišćenjem Boltzmanove formule ona implicitno pretpostavlja Maksvel–Boltzmanovu funkciju raspodele za čestice visokih energija iznad praga za jonizaciju. Kako Maksvel–Boltzmanova raspodela gotovo nikada ne važi u plazmama i jonizovanom gasu, posebno, to je ova formula samo jednostavan oblik zavisnosti za fitovanje eksperimentalnih podataka kako bi se dobile analitičke formule za uslov proboja. No bez obzira, ako nema porasta naelektrisanja u lavini elektrona kad svi elektroni stignu na površinu katode pražnjenje će utihniti.

Kao što je ranije rečeno, prema Taunzendovoj fenomenologiji u procesu jonizacije nastaju pozitivni joni koji se kreću u električnom polju ka katodi (negativnoj elektrodi), gde u procesu sekundarne emisije oslobađaju elektrone sa površine elektrode. Koeficijent koji opisuje ovaj proces se naziva koeficijent sekundarne emisije γ i predstavlja verovatnoću nastanka jednog sekundarnog elektrona po jednom upadnom jonu. Dakle, svaki elektron koji krene od katode proizvede $\exp(\alpha d)$ elektrona koji stignu na anodu i $\exp(\alpha d) - 1$ jona (prvi elektron oslobođen sa katode nije praćen pozitivnim jonom) koji stignu na katodu. Ovi joni će proizvesti $\gamma (\exp(\alpha d) - 1)$ novih (sekundarnih) elektrona koji će se multiplicirati u procesima elektronske lavine i dati nove jone što će dovesti do cikličnog ponavljanja procesa povratne sprege. Ukupna gustina struje j može biti izračunata na sledeći način:

$$\begin{aligned} j &= j_0 [1 + [\gamma (\exp(\alpha d) - 1)] + [\gamma (\exp(\alpha d) - 1)]^2 + \dots] = \\ &= j_0 \frac{\exp(\alpha d)}{1 - \gamma (\exp(\alpha d) - 1)} \end{aligned} \quad (1.5),$$

gde je j_0 početna gustina struje nastala delovanjem spoljašnjeg izvora jonizacije, d – rastojanje između elektroda, α je koeficijent jonizacije, a γ je koeficijent sekundarne emisije elektrona. Nakon proboja dolazi do naglog porasta struje tj. može se uzeti da $j \rightarrow \infty$ i iz jednačine (1.5) se tada dobija uslov za proboj tzv. Taunzendov uslov za proboj u gasu:

$$\gamma [\exp(\alpha d) - 1] = 1 \quad (1.6)$$

Ovaj izraz se može koristiti u uslovima sličnim probouju i kod slabostrujnih pražnjenja za izračunavanje koeficijenta sekundarne emisije γ kada su poznati eksperimentalni podaci za koeficijente jonizacije $\alpha/N(E/N)$ i probojne napone $V_b(pd)$, odnosno $E/N(Nd)$. Sekundarna emisija elektrona je jedan od ključnih mehanizama za proboj u DC poljima i za rad pražnjenja. Taunzend je u svoju teoriju uključio samo sekundarnu emisiju elektrona sa katode indukovanu pozitivnim jonima, međutim elektronska emisija sa površine katode može biti indukovana različitim vrstama čestica prisutnim u gasnim pražnjenjima, kao što su brzi atomi, fotoni i metastabilni atomi

(metastabili). Koja će od ovih vrsta čestica imati dominantnu ulogu u nastanku sekundarnih elektrona zavisiće prvenstveno od vrednosti redukovano električnog polja E/N (npr. emisija sekundarnih elektrona indukovana fotonima predstavljaće dominantan proces u domenu malih vrednosti E/N od nekoliko desetina Td) (Phelps i Petrović, 1999; Marić *et al.*, 2003). Takođe, zavisnost koeficijenta sekundarne emisije od uslova na površini katode je često značajnija od samog materijala katode. Tako na primer, postojanje oksidnih slojeva, adsorbovanih molekula i drugih nečistoća na površini katode veoma utiču na vrednosti koeficijent γ i unose znatnu razliku u odnosu na njegove vrednosti dobijene sa čistim (posebno tretiranim) katodnim površinama.

Važno je napomenuti da se po navici koeficijent sekundarne emisije normalizuje na fluks jona, jer je tako to urađeno u osnovnoj Taunzendovoj teoriji (mada je on eksperimentisao i sa korišćenjem takozvanog β koeficijenta, koji bi reprezentovao produkciju elektrona u sudarima jona u gasnoj fazi). Na taj način se formira efektivni koeficijent sekundarne emisije koji često može da značajno odstupa od direktno merenih (u binarnim eksperimentima jon–površina) koeficijenata (Phelps i Petrović, 1999). U principu, dokle god važi linearnost i proporcionalnost između svih flukseva (sa fluksom elektrona) primena ovakvog efektivnog koeficijenta daje dobre rezultate u modelovanju plazme (Marić *et al.*, 2003). Međutim, kad postoje nelinearni procesi (sudari tri tela) ili vremenski zavisne plazme, onda se efekti fotona, metastabila i brzih neutrala moraju posebno modleovati (Phelps i Petrović, 1999.). Treba napomenuti da je Artur Felps opravdano insistirao da se γ ne naziva terminom koeficijent već da se koristi termin prinos, što je mnogo opravdanije. Nažalost ova važna distinkcija u terminologiji nije jednostavno prihvaćena pa ćemo se i mi prikloniti dominantnoj terminologiji.

1.2 PAŠENOV ZAKON

Pašenov zakon (eng. *Paschen law*) predstavlja jednačinu koja daje probojni napon, odnosno napon potreban za dobijanje pražnjenja tj. za električni proboj u gasu između dve elektrode u funkciji od pritiska i međuelektrodnog rastojanja. Ime je dobio po Fridrihu Pašenu (*Louis Carl Heinrich Friedrich Paschen*)²⁰ koji ga je empirijski otkrio 1889. godine. Izjednačavanjem uslova za proboj (jednačina (1.6)) sa Taunzendovom formulom za jonizacioni koeficijent (jednačina (1.3)) dobija se izraz za napon neophodan za ostvarivanje proboja u gasu tzv. Pašenov zakon (jednačina (1.8)) (Paschen, 1889):

$$Apd \exp\left(\frac{-Bp}{E}\right) = \ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right) \quad (1.7)$$

Ako homogeno električno polje napišemo u sledećem obliku $E = \frac{V_b}{d}$, a zatim zamenimo u gornjem izrazu i ceo izraz logaritmujeemo dobijamo:

$$V_b = \frac{Bpd}{\ln(Apd) - \ln\left[\ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right)\right]} \quad (1.8)$$

Iz gornje formule, koja daje analitički oblik Pašenovog zakona, vidi se da probojni napon (V_b) zavisi samo od parametra pd (p – pritisak, d – međuelektroдно rastojanje) koji je jedan od

²⁰ Louis Carl Heinrich Friedrich Paschen, 1865-1947, nemački fizičar koji se bavio izučavanjem električnih pražnjenja. Poznat je po Pašenovoj seriji – nizu spektralnih vodonikovih linija u infracrvenoj oblasti koje je prvi otkrio 1908. godine. On je zaslužan za sada već široko korišćenu Pašenu krivu, a 1916. je pomogao u objašnjenju efekta šuplje katode.

karakterističnih parametara skaliranja (sličnosti) (pored E/N i j/p^2) za slabostrojna pražnjenja na niskim pritiscima. Pri određenoj vrednosti proizvoda pd , za svaki gas postoji minimalna vrednost probojnog napona V_b tzv. Pašenov minimum. U delu Pašenove krive levo od minimuma opada vrednost proizvoda pd koji je proporcionalan broju sudara u gasu, pa je potreban veći napon da bi se ostvario dovoljan broj jonizacija neophodnih za proboj. U delu krive desno od minimuma raste pritisak, dolazi do povećanja pd tj. raste broj sudara elektrona sa atomima gasa. Usled velikog broja čestica gasa i uzastopnih sudara elektroni ne stižu da dobiju dovoljno energije od polja za procese jonizacije što dovodi do porasta vrednosti probojnog napona.

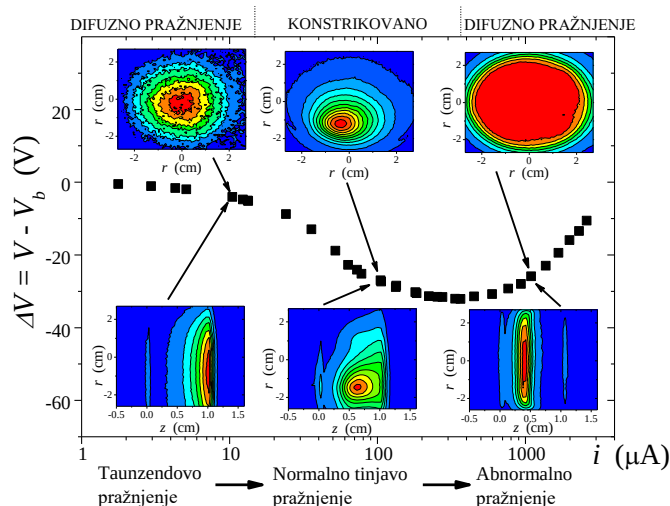
Treba posebno napomenuti da je Pašenov zakon obično prikazan kroz analitičku formulu (1.8) koja uključuje veoma približnu reprezentaciju za zavisnost koeficijenta za jonizaciju od E/N . Ukoliko međutim, samo posmatramo grafički prikaz merenih vrednosti proboja mi dobijamo Pašenov zakon u mnogo generalnijem obliku kao krivu „U” oblika u zavisnosti probojnog napona od pd (proizvod pritiska i razmaka između elektroda). Mi ćemo ovo drugu verziju Pašenovog zakona koristiti u argumentima i u diskusiji osim, kada se iz merenih podataka određuju koeficijenti sekundarne emisije.

1.3 SAMOSTALNO PRAŽNJENJE NA NISKOM PRITISKU

Do prelaska iz nesamostalnog u samostalno pražnjenje dolazi u trenutku proboja u gasu tj. kada je zadovoljen Taunzendov uslov za proboj $\gamma[\exp(\alpha d) - 1] = 1$ (jednačina (1.6)) čime je omogućeno da struja kroz gas teče nezavisno od spoljašnjeg izvora jonizacije. Iako ovaj uslov predviđa neograničeni porast struje prilikom prelaska iz nesamostalnog u samostalni režim rada, u realnosti nije tako, jer je vrednost struje pražnjenja ograničena otpornošću spoljašnjeg električnog kola.

1.3.1 STRUJNO–NAPONSKA KARAKTERISTIKA I PROSTORNA STRUKTURA PRAŽNJENJA

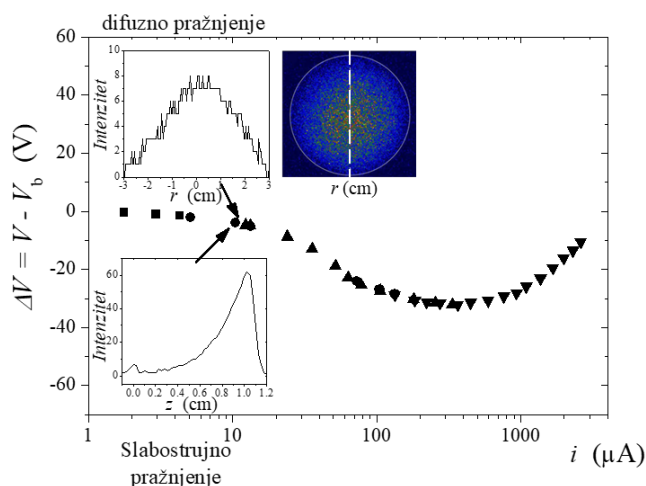
U toku rada pražnjenja, dolazi do promena u vrednosti struje tj. menja se gustina struje usled čega se pražnjenje različito ponaša i prolazi kroz različite režime rada. Na slici 1.3 je prikazana strujno-naponska karakteristika samostalnog pražnjenja na niskom pritisku sa tipičnim režimima pražnjenja i odgovarajućim prostornim raspodelama intenziteta emisije pražnjenja (Marić *et al.*, 2009).



Slika 1.3 Tipičan izgled strujno-naponske karakteristike pražnjenja na niskom pritisku. Karakteristika, intenziteti radijalnih profila (gore) i aksijalnih profila pražnjenja (dole) snimljeni u argonu (Marić *et al.*, 2009).

➤ SLABOSTRUJNO DIFUZNO PRAŽNJENJE (TAUNZENDOVO PRAŽNJENJE)

Da bi pražnjenje radilo u slabostrujnoj oblasti strujno–naponske karakteristike potrebno je da postoji velika otpornost u električnom kolu koja će omogućiti realizaciju Taunzendovog tamnog – slabostrujnog difuznog pražnjenja (slika 1.3). Ovakvo pražnjenje emituje svetlost veoma slabog intenziteta koju je ponekad čak i nemoguće detektovati golim okom. Na slici 1.4 su date aksijalne raspodele emisije svetlosti koje pokazuju eksponencijalni porast intenziteta emisije od katode prema anodi, dok je u radijalnom smeru pražnjenje difuzno i raspodela emisije odgovara obliku Beselove funkcije²¹ prve vrste nultog reda. Prema Taunzendovoj teoriji slabostrujnih pražnjenja, ovaj deo strujno–naponske karakteristike opisuje napon pražnjenja koji je konstantan za široki interval struja i koji je jednak probojnom naponu V_b . Jedna od osnovnih pretpostavki teorije je da je električno polje u pražnjenju homogeno. Naime to je i ispunjeno pri vrlo slabim strujama kada je koncentracija naelektrisanih čestica mala i kada polje, koje one generišu, ne perturbuje spoljašnje homogeno električno polje. Međutim, sa porastom struje pražnjenja raste i koncentracija naelektrisanih čestica odnosno, količina prostornog naelektrisanja koja nastaje usled razdvajanja elektrona od znatno sporijih jona. Električno polje koje je generisano naelektrisanim česticama narušava homogenost spoljašnjeg električnog polja tj. spoljašnje polje je zaklonjeno.



Slika 1.4 Strujno-naponska karakteristika i intenziteti radijalnog profila (gore) i aksijalnog profila (dole) Taunzendovog tamnog (slabostrujnog difuznog) pražnjenja snimljeni u argonu (Marić, 2006).

Preraspodela potencijala između elektroda dovodi do blagog povećanja polja u oblasti ispred katode (Phelps *et al.*, 1993; Živanov *et al.*, 2000) što utiče i na povećanje energije jona koji udaraju u katodu. Posledica ovoga je povećana efikasnost sekundarne emisije elektrona sa katode i smanjenje napona pražnjenja. Dodatno, sa malim povećanjem električnog polja u zoni ispred katode dolazi do znatnog povećanja jonizacije, usled eksponencijalnog porasta koeficijenta jonizacije sa povećanjem jačine električnog polja. Ovime se kompenzuje smanjenje jonizacije u znatno široj oblasti, zbog opadanja jačine polja u ostatku međuelektrodnog prostora. Tako napon potreban za održavanje pražnjenja opada što se ogleda u negativnom nagibu strujno–naponske karakteristike (slika 1.4).

Jednačina koja opisuje ovaj deo strujno–naponske karakteristike se može predstaviti u sledećem obliku:

$$V = V_b + R_D I \quad \wedge \quad R_D < 0 \quad (1.9),$$

²¹ Beselove (eng. Bessel) funkcije je prvi definisao matematičar Danijel Bernuli i generalizovao Fridrih Besel. One su partikularna rešenja Beselove diferencijalne jednačine, koja predstavlja matematički model prenosa toplote, oscilacija, elektrostatičkih polja itd. u sistemima cilindrične geometrije i imaju formu beskonačnih stepenih redova.

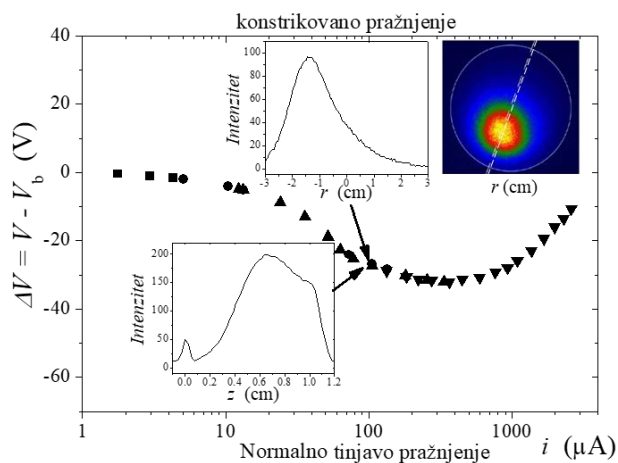
gde je V napon pražnjenja, V_b probojni napon, a veličina R_D je negativna diferencijalna otpornost. Postojanje negativne diferencijalne otpornosti je karakteristika samostalnih gasnih pražnjenja na niskim pritiscima za interval struja pre prelaska u oblast normalnog tinjavog pražnjenja. Često se u literaturi pojava negativne diferencijalne otpornosti u oblasti tamnog Taunzendovog pražnjenja i ne pominje, a ovaj deo karakteristike se prikazuje pravom horizontalnom linijom. Međutim, eksperimentalna potvrda postojanja negativne diferencijalne otpornosti u oblasti tamnog pražnjenja ukazala je na potrebu da se osnovna Taunzendova teorija revidira (Petrović i Phelps, 1993; Phelps *et al.*, 1993; Phelps i Petrović, 1999).

Petrović i Phelps (Petrović i Phelps, 1993) su u svojoj reviziji Taunzendove teorije pokazali da se ceo opseg pre prelaska u normalno tinjavo pražnjenje (slabostrujno difuzno pražnjenje, koje obuhvata Taunzendovo tamno i subnormalno pražnjenje) može prikazati jedinstvenom fenomenologijom uz izvesne izmene postojeće teorije. Naime, u teoriju je bilo neophodno uključiti promene prostorne raspodele električnog polja koje nastaju kao posledica prostornog naelektrisanja (Phelps *et al.*, 1993) i uvesti zavisnost koeficijenta sekundarne emisije od struje zajedno sa inkorporacijom promene fenomenologije sekundarne emisije koja pored efekta pozitivnih jona uključuje i efekte fotona, metastabila, brzih neutrala i rasejanih elektrona (Phelps i Petrović, 1999). Praktično, više nema potrebe uvoditi oblast *subnormalnog tinjavog pražnjenja*, jer je fizika ista u celom opsegu slabostrujnog pražnjenja pre prelaska u režim konstriktovanog normalnog tinjavog pražnjenja. Ovo je jednostavno oblast u kojoj, zbog porasta struje, član $R_D I$ u jednačini (1.9) daje značajan doprinos naponu pražnjenja, što se može opaziti i relativno grubim eksperimentom. Shodno ovome bi adekvatan naziv za pražnjenja u oblasti negativnog nagiba strujno-naponske karakteristike bio – **slabostrujna difuzna pražnjenja**. U ovom režimu se ostvaruju uslovi za fiziku rojeva uz mali dodatni efekat prostornog naelektrisanja koji samo utiče na sekundarnu emisiju. Tako se ovaj režim može egzaktno opisati stacionarnim Taunzendovim teorijama odnosno, eksperimentima sa rojevima čestica.

➤ NORMALNO TINJAVO PRAŽNJENJE

Prelaz iz oblasti slabostrujnog difuznog u oblast normalnog tinjavog pražnjenja karakteriše formiranje katodnog pada u pražnjenju i izrazita nehomogenost električnog polja, što je posledica uticaja nastalog prostornog naelektrisanja. Električno polje je najveće na katodi, a zatim približno linearno opada. Položaj na kom električno polje dostiže vrednost nula, naziva se granica katodnog pada. Tokom formiranja katodnog pada na aksijalnim raspodelama emitovanog svetla iz pražnjenja primećuje se oblast intenzivne emisije – tzv. oblast negativnog svetljenja iz pražnjenja (slike 1.3 i 1.5). Položaj maksimuma emisije odgovara položaju granice katodnog pada (Marić *et al.*, 2002). To govori da je produkcija naelektrisanih čestica najintenzivnija u oblasti u kojoj je električno polje najniže, što ukazuje na nehidrodinamičko ponašanje elektrona tj. na prostornu nelokalnost ovog režima pražnjenja.

U normalnom tinjavom režimu dolazi do razvoja konstrikcije pražnjenja – prelaz iz difuznog režima električnog pražnjenja u režim u kome se pražnjenje odvija u suženom kanalu, koji se polako sa porastom struje pražnjenja ponovo proširuje sve dok ne zauzme celu površinu elektrode – abnormalni režim. Mehanizam nastanka konstriktovanog pražnjenja koji će ukratko biti opisan u nastavku dali su Petrović i Phelps (Petrović i Phelps, 1996, 1997; Petrović *et al.*, 1997; Živanov *et al.*, 2000).



Slika 1.5 Strujno-naponska karakteristika i intenziteti radijalnog profila (gore) i aksijalnog profila (dole) normalnog tinjavog pražnjenja snimljeni u argonu (Marić, 2006).

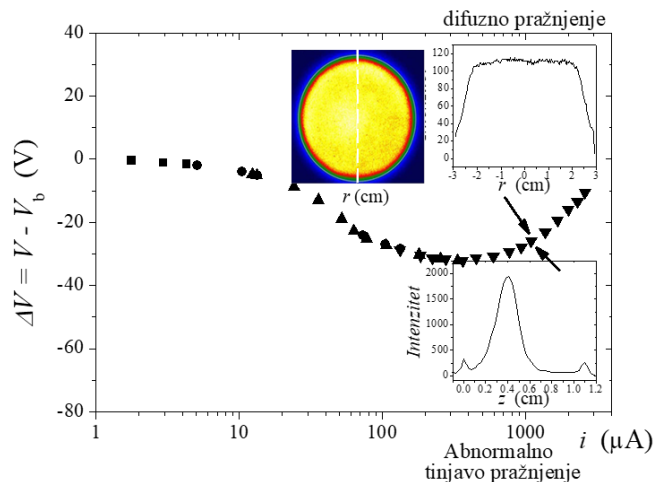
Za objašnjenje mehanizma nastanka konstrikcija, prvo treba poći od uslova homogenog električnog polja i eksponencijalnog porasta koncentracije elektrona karakterističnog za pražnjenja na niskim pritiscima. U ovim uslovima pražnjenje je difuzno. Kada struja raste dolazi do sve značajnijeg uticaja prostornog naelektrisanja usled kojeg polje opada u blizini anode, a raste u blizini katode. Ako pretpostavimo da u nekom trenutku u jednom od kanala pražnjenja, na polovini rastojanja između elektroda ($z = d/2$), postoji količina prostornog naelektrisanja dovoljna da u potpunosti ekranira spoljašnje električno polje, onda će do kompletnog pada napona doći na jednoj polovini međuelektrodnog rastojanja. Na osnovu izraza za napon: $V = Ed$, može se videti da će vrednost ovog električnog polja biti dvostruko veća od vrednosti homogenog polja. Dalje, usled porasta redukovano električnog polja doći će do znatnog povećanja i koeficijenta jonizacije elektrona u posmatranom kanalu (u većem delu E/N domena jonizacioni koeficijent raste eksponencijalno sa poljem, dakle brže nego linearno). Zahvaljujući većoj efikasnosti multiplikacije naelektrisanih čestica pražnjenje može nesmetano da radi i na dosta nižem naponu. Ovakav kanal pražnjenja, koji radi na nižem naponu, usloviće gašenje ostalih kanala jer će provesti veću struju. Kao posledica povećanja struje pad napona na spoljašnjem otporniku će spustiti radni napon na elektrodama, što će samo kanal sa nehomogenim električnim poljem moći da podnese dok će se ostali kanali ugasiti. Sada sva struja prolazi kroz jedan kanal.

Mehanizam nastanka konstrikcija je i eksperimentalno potvrđen detaljnim proučavanjem vremenski razloženog razvoja prostorne strukture konstrikovanog pražnjenja (Marić, 2006; Marić *et al.*, 2009). U konstrikovanom pražnjenju radijalna prostorna raspodela pražnjenja je sužena i zauzima samo deo elektrodne površine (slika 1.5). Daljim povećanjem jačine struje dolazi do širenja provodnog kanala sve dok ne zauzme celu površinu elektrode. Za ovo vreme napon pražnjenja ostaje približno konstantan, dok se proizvodnja naelektrisanih čestica obezbeđuje radijalnim širenjem pražnjenja pri konstantnoj gustini struje (Škoro *et al.*, 2008; Petrović i Phelps, 1997; Raizer, 1991). Važno je napomenuti da se konstrikovani mod pražnjenja javlja kada postoji izrazito brz porast jonizacionog koeficijenta sa električnim poljem. U intervalu visokih vrednosti električnog polja, odnosno redukovano električnog polja E/N , gde jonizacioni koeficijent blago raste, nema jasno izražene konstrikcije na prelazu iz slabostrujnog difuznog u normalno tinjavo pražnjenje. Dodatno, širina provodnog kanala pražnjenja direktno zavisi od karakteristične dužine difuzije – od srednjeg slobodnog puta elektrona. Ovo je glavni razlog zašto konstrikcija nije jasno izražena na niskim pritiscima gasa. Takođe, u ovim uslovima je i oblast normalnog tinjavog pražnjenja vrlo uska.

➤ ABNORMALNO TINJAVO PRAŽNJENJE

Dakle, u normalnom tinjavom režimu sa povećanjem struje pražnjenje se širi dok ne zauzme celu površinu katode, nakon toga dalji rast struje je moguć samo povećanjem napona. U ovoj oblasti

je moguće strujno–naponsku karakteristiku aproksimirati pravom sa pozitivnim koeficijentom pravca (usled naglog porasta struje i napona) i ova oblast odgovara abnormalnom tinjavom pražnjenju (jakostrujno difuzno pražnjenje) (slike 1.3 i 1.6). Pražnjenje u abnormalnom tinjavom režimu ponovo postaje difuzno (slika 1.6).



Slika 1.6 Strujno-naponska karakteristika i intenziteti radijalnog profila (gore) i aksijalnog profila (dole) abnormalnog tinjavog pražnjenja snimljeni u argonu (Marić, 2006).

Za razliku od ostalih režima pražnjenja, u abnormalnom tinjavom pražnjenju može doći do niza novih efekata koji određuju njegove osobine. U ovim uslovima jakih struja, dominantan je efekat prostornog naelektrisanja koji dovodi do smanjenja širine katodnog pada. Dakle, pad napona se odvija na sve kraćem rastojanju, dok polje na katodi postaje sve veće kako bi obezbedilo potrebnu jonizaciju. U ovim uslovima se mogu javiti efekti sudara elektrona sa već pobuđenim česticama gasa (stepena jonizacija), grejanje gasa, međusobni sudari pobuđenih čestica i reakcije između jona i molekula koje postaju značajne zbog velike struje koja protiče. Dodatno, ovde postaju značajni i efekti zagrevanja katode. Zbog proticanja struje velike jačine dolazi do značajnog zagrevanja katode i do nastajanja elektrona na njenoj površini mehanizmom termoelektronske emisije. Proces termoelektronske emisije je veoma efikasan u produkciji elektrona i može da dovede do pada napona pražnjenja, usled koga se na prelazu iz abnormalnog tinjavog u lučno pražnjenje ponovo javlja negativna diferencijalna otpornost (odnosno dolazi do nagle promene režima u uslovima u kojima je nemoguće obezbediti stabilan rad na opadajućoj naponskoj karakteristici).

1.3.2 ZAKONI SLIČNOSTI (SKALIRANJA)

Naelektrisane čestice stvaraju prostorno naelektrisanje koje utiče na raspodelu električnog polja i dolazi do formiranja katodnog pada. Dužina katodnog pada se skraćuje sa porastom struje pražnjenja. Na nastajanje naelektrisanih čestica, a samim tim i na električno polje, pored osnovnih, utiče čitav niz procesa kao što su ekscitacija i jonizacija atoma u sudarima sa teškim česticama, procesi stepenaste ekscitacije i jonizacije, sudari ekscitovanih čestica, rekombinacija elektrona i jona i efekti grejanja gasa i elektroda. Sa porastom struje ovi procesi postaju sve značajniji, pa je potrebno pronaći načine za identifikaciju uslova gde se uključuje još neki proces. To je moguće uraditi uz pomoć zakona skaliranja (sličnosti), čija osnova leži na definisanju parametara koji su nepromenljivi (invarijantni) i mogu se koristiti za opisivanje identičnih osobina u različitim pražnjenjima. Felps je dao ideju za izvođenje zakona skaliranja, koje će ovde biti prikazano, koristeći aproksimaciju lokalnog polja ili fluidni model kretanja elektrona i jona (Phelps, 2001) koji je u velikoj meri specifikacija i generalizacija teorije razvijene u radu Felpsa i saradnika (Phelps *et al.*, 1993).

Potrebno je krenuti od jednačina kontinuiteta za fluks elektrona (jednačina (1.10)) i fluks pojedinačnog jona (jednačina (1.11)) (Phelps i Petrović, 1999), gde su zanemareni efekti jonizacije nastali sudarima teških čestica sa atomima gasa ili sa katodom:

$$\frac{d\Gamma_e}{dz} = \alpha_{ei}\Gamma_e + \alpha_{ii}\Gamma_i + \alpha_{ai}\Gamma_a \quad (1.10),$$

$$\frac{d\Gamma_i}{dz} = -\alpha_{ei}\Gamma_e - \alpha_{ii}\Gamma_i - \alpha_{ai}\Gamma_a \quad (1.11),$$

gde su α_{ei} , α_{ii} i α_{ai} prostorni jonizacioni koeficijenti za jonizaciju atoma argona elektronima, jonima i brzim atomima, respektivno, a z predstavlja rastojanje od katode. Gornje jednačine su pojednostavljene uvođenjem bezdimenzionog rastojanja $\rho = z/d$, gde je d – rastojanje između elektroda, a z – rastojanje od katode. U ravnotežnom stanju diferencijalna jednačina za fluks elektrona $\Gamma_e(z)$ normalizovana sa ukupnim fluksom čestica Γ_t ili $j_e(\rho) = \Gamma_e(z)/\Gamma_t$, se može napisati kao:

$$\frac{dj_e(\rho)}{d\rho} = \left(\frac{\alpha_{ei}}{N}\right) Ndj_e(\rho) \quad (1.12),$$

gde je α_{ei} prostorni ili Taunzendov koeficijent jonizacije atoma elektronima, a N je koncentracija čestica. U slučaju kada važi aproksimacija lokalnog polja može se uzeti da redukovani koeficijent jonizacije α_{ei}/N zavisi jedino od redukovanog električnog polja E/N (Druyvesteyn i Penning, 1940). Dodatno, fluks pozitivnih jona opada sa povećanjem rastojanja od katode, odnosno ako se pogleda sa pozicije anode fluks raste kao posledica jonizacije atoma brzim elektronima kako se povećaa rastojanje od nje. Jednačina za normalizovani fluks jona $j_i(\rho) = \Gamma_i(z)/\Gamma_t$ je data u sledećem obliku:

$$\frac{dj_i}{d\rho} = -\left(\frac{\alpha_{ei}}{N}\right) Ndj_e(\rho) \quad (1.13),$$

i smatra se da su distribucija energije jona i drift brzina određene lokalnim električnim poljem E/N . Granični uslovi koji važe za ove jednačine su takvi da je

- na katodi $j_e(0) = -\gamma_i j_i(0) + j_{e0}$
- na anodi $j_i(1) = 0$, pa je $j_e(1) = 1$.

Pretpostavlja se da su energije jona, pa samim tim i γ_i na katodi, određene jačinom redukovanog električnog polja E/N na katodi. Efekti reflektovanih elektrona sa anode i pojava obrnutog polja (eng. *field reversal*) usled toka pozitivnih jona ka anodi su zanemareni. Uzima se da je početni fluks elektrona j_{e0} dobijen delovanjem spoljašnjeg izvora. U okviru veličina γ_i i j_{e0} sadržana je parcijalna verovatnoća gubljenja elektrona (eng. *fractional escape probability*) koja zavisi od vrednosti redukovanog električnog polja E/N na katodi (Druyvesteyn i Penning, 1940; Francis, 1956; Phelps i Petrović, 1999). Dodatno, u opštem slučaju γ_i zavisi od energije jona i redukovanog električnog polja E/N na katodi (Phelps i Petrović Z, 1999). U slučaju prostorno uniformnog električnog polja, za dovoljno male gustine naelektrisanih čestica, gornje jednačine mogu poslužiti za predviđanje proboja. Na osnovu gore datih jednačina može se videti da porast struje i uslov za proboj zavise jedino od E/N i Nd odnosno, ako postoji promena u temperaturi gasa, od E/p_0 i p_0d . Alternativno se mogu koristiti promenljive $V_b = E/N \times Nd$ i Nd (ili p_0d) kao u Pašenovom zakonu za proboj, gde je pritisak p_0 normalizovan na temperaturu $T = 273$ K (Druyvesteyn i Penning, 1940).

Kada je reč o većim strujama i većim gustinama naelektrisanih čestica u katodnom padu kod abnormalnog tinjavog pražnjenja, potrebno je uzeti u obzir električna polja koja su posledica

postojanja prostornog naelektrisanja, a koja su opisana Poasonovom jednačinom²². Ova jednačina za napon $V(\rho)$ normalizovan na napon pražnjenja V_d , $v(\rho) = V(z)/V_d$, gde je z rastojanje od katode, daje:

$$\frac{d^2 v(\rho)}{d\rho^2} = -\frac{(J_t/N^2)(Nd)^2}{V_d \epsilon_0} \left[\frac{j_i(\rho)}{\omega_i(E/N)} - \frac{j_e(\rho)}{\omega_e(E/N)} \right] \quad (1.14),$$

gde su ω_i i ω_e drift brzine jona i elektrona koje su funkcije jedino od lokalnog redukovano električnog polja E/N . Takođe, J_t predstavlja ukupnu gustinu struje, a ϵ_0 je dielektrična konstanta (permitivnost) vakuuma. Elektronski član $(\frac{j_e(\rho)}{\omega_e(E/N)})$ u gornjoj jednačini se u većini slučajeva može zanemariti. Dobijeni odnos između gradijenta električnog polja na katodi i koncentracije pozitivnih jona ekvivalentan je odnosu između struje pozitivnih jona i njihove drift brzine na katodi, i dobro opisuje većinu situacija u kojima se javlja katodni pad. Lokalno redukovano električno polje E/N , koje određuje vrednosti α_i/N , ω_e i ω_i , se može napisati kao:

$$\frac{E}{N} = -\frac{V_d}{Nd} \frac{dv_\rho}{d\rho} \quad (1.15)$$

Pod pretpostavkom da se jačina električnog polja linearno menja duž rastojanja koje je jednako dužini katodnog pada d_c tj. $E(z) = 2(V_d/d_c)(1-z/d_c)$, dobija se odnos između gustine struje na katodi i napona katodnog pada. Zanemarivanjem gustine elektrona u blizini katode tj. usvajanjem pretpostavke da ih u ovoj oblasti nema, na osnovu jednačine (1.14) dobija se:

$$J_t/p_0^2 = 2\epsilon_0 V_d \omega_i (1 + \gamma_i)/(p_0 d_c)^2 \quad (1.16)$$

Jednačine (1.12)-(1.16) daju rešenja koja su izražena preko parametara skaliranja E/N , J_t/N^2 i Nd . Ako se zanemari grejanje gasa, parametri skaliranja su E/p_0 , J_t/p_0^2 i Np_0 , jer je p_0 normalizovan na $T = 273$ K. Do istih rezultata je došao i Fransis (Francis, 1956) koristeći se pri tom, mnogo dužim i opštijim pristupom u opisivanju transporta i sudara elektrona i jona. U oba slučaja dobijeni zakoni skaliranja direktno zavise od izabranog modela, tj. od pretpostavki i primenjenih aproksimacija. Veličina E/N odnosno E/p_0 se može povezati sa energijom koju elektron dobije između sudara, Nd odnosno $p_0 d$ je povezana sa brojem sudara čestica u gasu, dok je j/N^2 tj. j/p^2 (jd^2) vezana za gustinu naelektrisanja u prostoru.

Dodavanje efekata vezanih za kinetiku i procese indukovane teškim česticama (Phelps i Petrović, 1999) kao što su jonizacija brzim jonima i atomima i produkcija elektrona na katodi brzim atomima, ne menja zakone skaliranja. Međutim, uključivanje procesa kao što su elektron-jonska rekombinacija i jonizacija ekscitovanih (pobuđenih) atoma nameće uvođenje dodatnih parametara skaliranja, kao što je kvadrat gustine struje (Phelps, 2001). Modeli koji opisuju katodni pad u abnormalnom tinjavom pražnjenju (Phelps *et al*, 1999; Hartman *et al*, 2000; Donko, 2000) uzimaju u obzir i uključuju promene u prinosu sekundarnih elektrona po jonu γ_i sa energijom jona, koje se javljaju na svim energijama u slučaju realnih metalnih katoda (neočišćene površine) i na visokim energijama > 300 eV za „čiste” metalne katode (Phelps i Petrović, 1999). Ovi modeli su pokazali da uključivanje ovih efekata ne narušava i ne menja zakone skaliranja. Treba napomenuti da su Stefanović i Petrović (Stefanović i Petrović, 1997) definisali skaliranje negativne diferencijalne

²² Siméon Denis Poisson, 1781-1840, francuski matematičar, inženjer i fizičar, dao poznatu generalizaciju Laplasove diferencijalne jednačine drugog reda za potencijal, poznatu pod nazivom Poasonova jednačina.

otpornosti u domenu slabostrujnog difuznog pražnjenja i proverili je eksperimentalno, što predstavlja prvi korak ka uvođenju reprezentacije efekata prostornog naelektrisanja.

1.4 MODELI PRAŽNJENJA U GASOVIMA NA NISKOM PRITISKU

Istraživačka aktivnost na polju plazma fizike i plazma hemije sa fokusom ne samo na fundamentalna istraživanja već i na industrijske primene je poslednjih par godina, može se reći, doživela eksponencijalni rast. To je pre svega posledica širokog polja primena gasnih pražnjenja od izvora svetlosti, lasera, plazma displeja, preko poluprovodničke industrije, tehnologije materijala, analitičke hemije, biotehnologije i zaštite životne sredine (Bogaerts *et al.*, 2002, Petrović *et al.*, 2010). Dalji napredak, usavršavanje i proširenje oblasti primena zahteva bolji uvid u procese koji se odvijaju u plazmi.

Kako su plazma sistemi jako kompleksni za njihovu potpunu karakterizaciju neophodni su i dobri eksperimenti i verifikovani numerički modeli. Najčešće korišćene numeričke simulacione tehnike u modelovanju plazme uključuju fluidne, kinetičke i hibridne modele. Ovi simulacioni modeli se međusobno značajno razlikuju u pogledu uslova, prednosti i ograničenja važenja. Ovde će biti opisani neki od savremenih pristupa u modelovanju neravnotežnih gasnih pražnjenja, koji su bitni za razumevanje fenomenologije i osnovnih procesa u pražnjenjima proučavanim u ovom radu.

Elementarni podaci dobijeni iz eksperimenata sa rojevima i osnovne transportne jednačine pružaju osnovu za modelovanje niskoteperaturnih neravnotežnih plazmi (Makabe i Petrović, 2006; Kushner, 2009; Samukawa *et al.*, 2012; Petrović *et al.*, 2017). Roj (engl. *swarm*) se definiše kao ansambl naelektrisanih čestica koje se slobodno kreću (nezavisno jedne od drugih) kroz pozadinski gas, dobijajući energiju od spoljašnjeg električnog polja i gubeći je samo u sudarima sa neutralnim atomima i molekulima gasa. Takođe važi pretpostavka da su efekti prostornog naelektrisanja zanemarljivi. Ako pražnjenje radi u slabostrujnom limitu može se posmatrati kao roj naelektrisanih čestica u neutralnom gasu. Za opisivanje ponašanja roja čestica koje se kreću kroz pozadinski gas koriste se transportni parametri – brzina drifta, koeficijent difuzije, koeficijent jonizacije, karakteristična energija. Ove transportne parametre je moguće izračunati ako znamo funkciju raspodele energije elektrona (engl. *Electron Energy Distribution Function – EEDF*) za datu vrednost redukovano električnog polja (E/N).

Svorm ili model roja (engl. *swarm model*) predstavlja model baziran na Boltzmanovoj jednačini (Dujko *et al.*, 2008; White i Robson, 2011; Robson, 2006), Monte Karlo simulaciji (engl. *Monte Carlo simulation – MCS*) (Stojanović i Petrović, 1998; Raspopović *et al.*, 1999; Ristivojević i Petrović, 2012) ili na pojednostavljenim jednačinama kao što je to u teoriji prenosa impulsa (engl. *Momentum Transfer Theory – MTT*) (Robson, 1986; Vrhovac i Petrović, 1996; White *et al.*, 2012; Jovanović *et al.*, 2004). Za sve navedene modele postoje uslovi u kojima svaki od njih predstavlja odgovarajući izbor u modelovanju plazme. Neki od potrebnih uslova su da je:

- jonizovani gas sa malom gustinom naelektrisanja
- pražnjenje koje radi u uslovima pre samog proboja kada je za multiplikaciju elektrona neophodno postojanje spoljašnjeg polja, ali ne dolazi do uspostavljanja samoodrživog režima
- proboj u početnoj fazi i pri prelasku u samoodrživi režim u kome se čestice mogu posmatrati kao roj (engl. *swarm*)
- gasni dielektrik
- trap sa gasom (npr. Pening–Malmberg–Surko trap za pozitrone)

- detektor elementarnih čestica sa relativno malim stepenom jonizacije (npr. Vilsonova komora, Gajgerov brojač), drift komora, detektor sa otporničkim pločama – RPC detektori (engl. *Resistive Plate Chambers detectors*)
- slabostrujno difuzno pražnjenje (Taunzendovo pražnjenje) koje radi u slabostrujnom limitu (nema efekata prostornog naelektrisanja), čak i u uslovima kada se javljaju efekti prostornog naelektrisanja oni se unose kao perturbacija u model roja (Phelps *et al.*, 1993; Petrović *et al.*, 1997; Živanov *et al.*, 2000)
- afterglows (naknadno pražnjenje) nakon nestanka spoljašnjeg polja, odnosno nakon nestanka ambipolarnog polja

U proučavanju proboja, pražnjenje postaje samoodrživo kada proizvodnja naelektrisanih čestica premaši gubitke, odnosno kada je brzina jonizacije v_i veća od brzine rekombinacije v_{att} (engl. *attachment*), drugim rečima kada je efektivni koeficijent multiplikacije ($v_i - v_{att}$) nula (u slučaju Taunzendovih koeficijenata $(\alpha - \eta) = 0$). Zapravo multiplikacija treba da bude veća od nule kako bi kompenzovala i gubitke zavisne od geometrije. Taunzendov model (Taunzendova teorija) proboja se bazira na lavinama indukovanim elektronima u sprezi sa sekundarnom emisijom tj. nastankom novih elektrona na površini katode usled udara jona. Dodatno, osnovne pretpostavke Taunzendove teorije su da je polje između elektroda homogeno i da su isključivo joni odgovorni za sekundarnu emisiju elektrona sa katode. Međutim, ispostavilo se da pored jona značajnu ulogu u sekundarnoj emisiji imaju fotoni na malim vrednostima E/N , brzi neutrali na visokim vrednostima E/N i metastabili na svim vrednostima E/N . Dakle, u Taunzendovu teoriju je bilo neophodno uključiti efekte prostornog naelektrisanja i sve moguće mehanizme za dobijanje sekundarnih elektrona kako bi se objasnile osobine slabostrujnih pražnjenja na niskim pritiscima.

MODEL FELPS – PETROVIĆ (Phelps i Petrović, 1999)

Ovaj model, koji je u suštini tip svorm modela (model roja), daje proširenje Taunzendove teorije slabostrujnih pražnjenja na niskim pritiscima u slučaju koeficijenta sekundarne emisije. Naime, on pored jona u procese sekundarne emisije elektrona uključuje više vrsta čestica, kao što su fotoni, brzi neutrali i metastabili. Model pokazuje da vrednost koeficijenta sekundarne emisije značajno zavisi od vrednosti redukovanog električnog polja E/N i od stanja katode tj. uslova na njenoj površini. U eksperimentima koeficijent sekundarne emisije elektrona γ se može meriti na dva načina:

1. bombardovanjem katodne površine monoenergijskim snopovima čestica različitih vrsta – tehnika binarnih sudara
2. eksperiment sa rojevima – Taunzendova tehnika (koeficijent sekundarne emisije elektrona se računa na osnovu vrednosti probojnog napona na fiksnim vrednostima proizvoda pritiska i međuelektrodnog rastojanja)

Za određivanje koeficijenta γ prvo su korišćeni eksperimenti sa rojevima koji su dali obimnu bazu podataka, ali ovako dobijeni rezultati se nisu slagali sa rezultatima dobijenim u binarnim sudarima u vakuumu. Jedan od razloga neslaganja rezultata binarnih eksperimenata sa rezultatima dobijenim Taunzendovom tehnikom jeste taj što je većina autora uzimala u obzir samo sekundarnu emisiju indukovanu jonima. Dodatno objašnjenje za neslaganje rezultata se može naći u nepoznavanju uslova na samoj površini katode i dominantnih procesa koji dovode do sekundarne emisije. Tehnika binarnih sudara je pokazala da postoji razlika u rezultatima dobijenim bombardovanjem „čistih” i „neočišćenih” katodnih površina. „Čiste” katodne površine su najčešće dobijane na dva načina: zagrevanjem površine katode do temperature od 2000 K u uslovima dobrog vakuuma ili skidanjem (spaterovanjem) katodnog površinskog sloja bombardovanjem jonima. S druge strane, „neočišćene” katodne površine predstavljaju metalne površine koje su tretirane standardnim hemijskim i mehaničkim tehnikama i potom izložene laboratorijskim uslovima radi dodatne kontaminacije.

Felps i Petrović radije koriste termin tretirane i netretirane elektrode, jer nije jasno da li se tretmanom površina čisti ili se samo obezbeđuje da je preostali sloj na površini stabilniji u odnosu na sekundarnu emisiju.

Nastajanje sekundarnih elektrona u pražnjenju je posledica sledećih osnovnih procesa: elektronske emisije sa površine katode indukovane pozitivnim jonima, brzim neutralima, fotonima i metastabilima; sudarne jonizacije elektronima koji su reflektovani sa anode; sudarne jonizacije brzim jonima i elektronima koji su nastali u ranijim lavinama i fotojonizacije gasa fotonima nastalim u ranijim lavinama. Model Felps–Petrović je analitički aproksimativni model koji opisuje transport elektrona, Ar^+ jona, brzih Ar atoma, metastabila i fotona u prostorno homogenom električnom polju u pražnjenju u argonu. Korišćenjem ovog modela mogu se dobiti vrednosti koeficijenta γ (efektivne vrednosti), koncentracije pojedinih vrsta čestica i uvid u povezanost procesa sekundarne emisije sa vrednošću redukovanoeg električnog polja. Rezultati dobijeni primenom ovog modela:

- I) omogućavaju poređenje eksperimentalnih podataka sa proračunatim vrednostima koeficijenta γ u kojima su uključeni svi relevantni procesi
- II) prikazuju prostorno razložene flukseve i koncentracije pojedinih čestica
- III) ilustruju zavisnost pojedinačnih procesa sekundarne emisije elektrona od vrednosti redukovanoeg električnog polja
- IV) ukazuju na relativan značaj različitih procesa proizvodnje sekundarnih elektrona

Model se zasniva na sledećim pretpostavkama:

a) gustina fluksa elektrona koji napuštaju katodu data je sa:

$$\Gamma_e(0) = f_{es}[\gamma_i\Gamma_i(0) + \gamma_{i2}\Gamma_{i2}(0) + \gamma_a\Gamma_a(0) + \gamma_m\Gamma_m(0) + \gamma_{ph}\Gamma_{ph}(0)] \quad (1),$$

gde su Γ_i , Γ_{i2} , Γ_a , Γ_m i Γ_{ph} procenjene vrednosti flukseva gustina elektrona Ar^+ jona, Ar_2^+ jona, brzih Ar atoma, Ar metastabila i fotona na katodi ($z = 0$); f_{es} predstavlja gubitak elektrona emitovanih sa katode u gas, a $\gamma_{i,i2,a,m,ph}$ su odgovarajući koeficijenti sekundarne emisije indukovane gore navedenim česticama. Važno je napomenuti da uslov za proboj i održanje slabostrujnog pražnjenja podrazumeva da je suma flukseva elektrona koji su nastali u raznim procesima na katodi jednaka fluksu elektrona koji napuštaju katodu;

b) fluksevi elektrona, jona i brzih atoma su dati sledećim diferencijalnim jednačinama:

$$\frac{d\Gamma_e}{dz} = \alpha_{ei}\Gamma_e + \alpha_{ii}\Gamma_i + \alpha_{ai}\Gamma_a \quad (2),$$

$$\frac{d\Gamma_i}{dz} = -\alpha_{ei}\Gamma_e - \alpha_{ii}\Gamma_i - \alpha_{ai}\Gamma_a \quad (3),$$

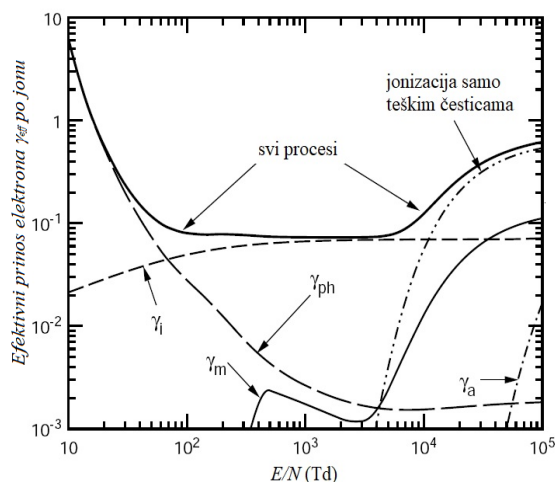
$$\frac{d\Gamma_a}{dz} = -\alpha_{ct}\Gamma_i + (\alpha_{aa} + \alpha_{ai} + \alpha_{ar} + \alpha_{am})\Gamma_a \quad (4),$$

gde α_{ei} , α_{ii} i α_{ai} predstavljaju prostorne jonizacione koeficijente za jonizaciju argonovih atoma elektronima, Ar^+ jonima i brzim Ar atomima, tim redom, dok su α_{ct} , α_{aa} , α_{ar} i α_{am} prostorni reakcioni koeficijenti za: simetričan prenos naelektrisanja, sudare u kojima dolazi do gubitka energije i sudare u kojima dolazi do ekscitacije rezonantnog i metastabilnog stanja, respektivno. Pretpostavka je da brzi argonovi atomi nastaju u simetričnim sudarima sa prenosom naelektrisanja (engl. *charge transfer collisions*) između Ar^+ jona i Ar atoma i da potom, tako nastali brzi atomi Ar imaju istu energiju i pravac kretanja kao i Ar^+ joni. Ove jednačine se rešavaju analitički primenom Laplasove transformacije (Phelps i Petrović, 1999);

- c) procesi gubitaka (npr. elektron–jonska rekombinacija) i nastajanja elektrona (npr. u sudarima elektrona i pobuđenih atoma) su zanemarljivi za opseg slabih struja. Takođe, zbog slabih struja zanemaren je i uticaj prostornog naelektrisanja na homogeno električno polje;
- d) u modelu je zanemareno nastajanje Ar_2^+ jona u sudarima tri čestice, kao i njihova disocijacija u sudarima sa Ar atomima. Ovakvo pojednostavljivanje u modelu je opravdano samo ukoliko vrednosti redukovano električnog polja E/N nisu previše male (nisu manje od 100 Td);
- e) radijalni gubici svih vrsta čestica su zanemareni u ovom jednodimenzionalnom modelu.

Rezultati modela se mogu svrstati u dve grupe: rezultati za „čiste” i rezultati za „neočišćene” katodne površine. Kao što je gore rečeno, model omogućava računanje koeficijenta γ za flukseve različitih pojedinačnih vrsta čestica na osnovu kojih je moguće dobiti efektivni koeficijent sekundarne emisije elektrona γ_{eff} .

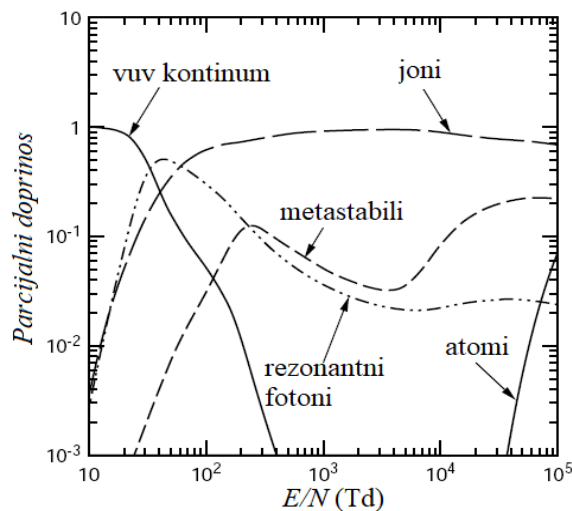
Rezultati za „čiste” katodne površine Ako se razmatraju tzv. granični slučajevi zavisnosti efektivnog koeficijenta sekundarne emisije γ_{eff} od redukovano električnog polja E/N , to podrazumeva da pojedinačne čestice ili fotoni proizvode sve sekundarne elektrone neophodne za proboj ili održavanje pražnjenja (slika 1.6). Puna linija na slici predstavlja vrednosti γ_{eff} kada su uključeni svi procesi indukovanja sekundarne emisije elektrona. Isprekidana linija označava izračunate vrednosti koeficijenta γ_{eff} u slučaju kada je vrednost $\gamma_i = 0.07$, dok su svi ostali preseki za sudare teških čestica i prinosi sekundarnih elektrona izjednačeni sa nulom. Ova kriva odstupa od pretpostavljene (merene u binarnom eksperimentu) vrednosti γ_i ($\gamma_i = 0.07$) za opseg redukovano električnog polja $E/N < 1000$ Td usled efekta rasejanja elektrona po oslobađanju sa katode (povratna difuzija). Dugo, isprekidana kriva predstavlja vrednost koeficijenta γ_{eff} kada je u model uključena samo sekundarna emisija indukovana fotonima. Model pokazuje da su fotoelektrični procesi dominantni u delu gde je $E/N < 50$ Td.



Slika 1.6 Efektivni koeficijent sekundarne emisije γ_{eff} za „čiste” katodne površine za različite granične uslove: γ_i – emisija sa katode indukovana Ar^+ jonima bez ekscitacije ili jonizacije teškim česticama; γ_a – emisija sa katode indukovana brzim Ar atomima bez ekscitacije ili jonizacije teškim česticama; jonizacija samo teškim česticama – bez produkcije elektrona na katodi; γ_{ph} – emisija sa katode indukovana VUV fotonima uz ekscitaciju rezonantnih atoma teškim česticama; γ_m – emisija sa katode indukovana Ar metastabilima uz ekscitaciju metastabila teškim česticama i svi procesi – sve emisije sa katode i procesi ekscitacije i jonizacije teškim česticama (Phelps i Petrović, 1999).

S druge strane, na visokim vrednostima E/N efektivni koeficijent sekundarne emisije, kao i probojni naponi, su određeni emisijom indukovanom procesima jonizacije teškim česticama, pre nego proizvodnjom sekundarnih elektrona na katodi. U slučaju procesa sekundarne emisije indukovanih isključivo brzim atomima γ_a i metastabilima γ_m vrednosti za γ_{eff} su male. Treba napomenuti da slika 1.6 pokazuje koji su procesi u produkciji sekundarnih elektrona dominantni u određenim opsezima vrednosti redukovano električnog polja, ali ona ipak ne daje uvid u doprinose različitih procesa

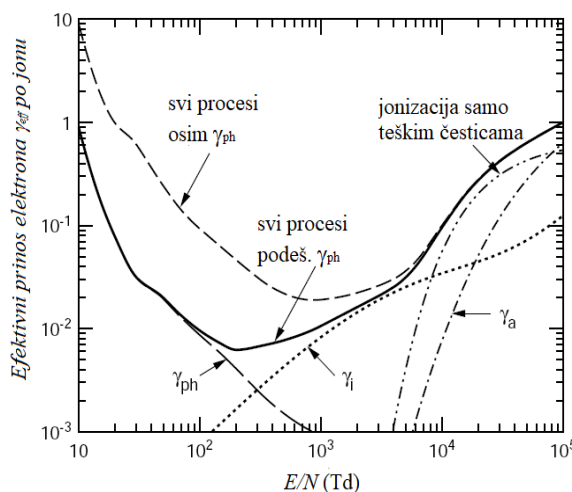
proizvodnje elektrona na katodi. Ovi doprinosi su prikazani na slici 1.7 gde krive predstavljaju doprinose različitih procesa indukovanih pojedinačnim česticama. U oblasti vrednosti redukovanog električnog polja $E/N \geq 60$ Td dominantan izvor elektrona na katodi predstavljaju Ar^+ joni. Što se tiče rezonantnih fotona oni su glavni izvor elektrona neophodnih za proboj na vrednostima E/N oko 40 Td. Na nižim vrednostima E/N (< 40 Td) emisija indukovana nerezonantnim VUV fotonima je dominantna.



Slika 1.7 Izračunati parcijalni doprinosi različitih procesa u proizvodnji elektrona na katodi za Ar, za „čiste“ površine u uslovima proboja (Phelps i Petrović, 1999).

Kako je poznato da je jonizacija teškim česticama vrlo značajna na visokim E/N , treba voditi računa i ne tumačiti pogrešno krive sa slike 1.7 koje odgovaraju procesima indukovanim metastabilima i brzim atomima, a koje ovde pokazuju da je proizvodnja sekundarnih elektrona udarom jona u katodu dominantan proces na visokim energijama redukovanog električnog polja.

Rezultati za „neočišćene“ katodne površine Takođe i u slučaju „neočišćenih“ katodnih površina razmatrani su granični slučajevi zavisnosti efektivnog koeficijenta sekundarne emisije γ_{eff} od redukovanog električnog polja E/N (slika 1.8). Tačkasta linija γ_i predstavlja vrednosti za γ_{eff} koje su izračunate tako što su podaci dobijeni iz binarnih eksperimenata sa „neočišćenim“ površinama za Ar^+ jone prvo fitovani, a zatim usrednjeni po raspodeli energija Ar^+ jona.

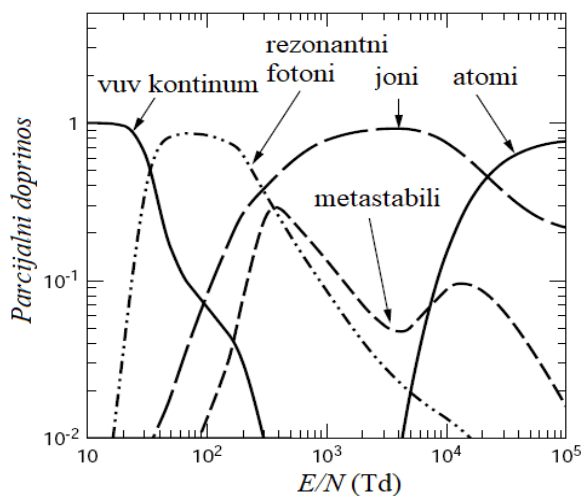


Slika 1.8 Efektivni koeficijenti sekundarne emisije elektrona po upadnom jonu γ_{eff} izračunati na osnovu modela Phelps-Petrović (Phelps i Petrović, 1999) za „neočišćene“ katodne površine sa graničnim uslovima kao u slučaju „čistih“ površina: γ_i i γ_a emisija indukovana respektivno Ar^+ jonima i Ar atomima bez ekscitacije ili jonizacije teškim česticama; jonizacija samo teškim česticama – isključuje produkciju elektrona na katodi; γ_{ph} – emisija indukovana VUV fotonima uz ekscitaciju rezonantnih atoma teškim česticama; svi procesi – računati korišćenjem različitih aproksimacija za γ_{ph} .

Poređenjem ove krive i krive γ_i za „čiste” površine (isprekidana linija sa slike 1.6) uočava se da su vrednosti za γ_{eff} za „neočišćene” površine dosta niže u oblasti $E/N < 10$ kTd. Kriva γ_a daje izračunate vrednosti γ_{eff} u slučaju kada je prinos brzih atoma Ar jednak vrednostima dobijenim fitovanjem podataka za brze Ar atome iz binarnih eksperimenata.

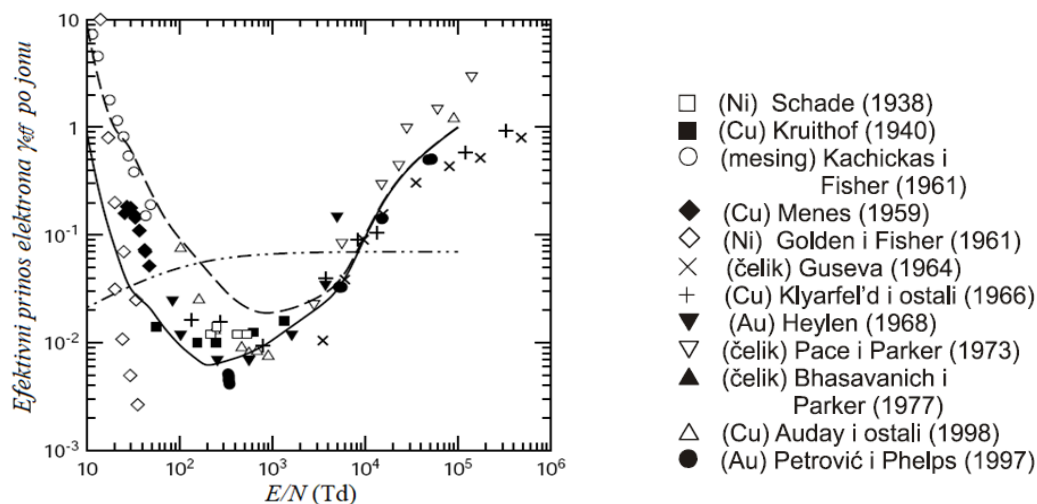
Brzi porast vrednosti efektivnog koeficijenta γ_{eff} usled uticaja brzih Ar atoma, u odnosu na uticaj jona, na visokim E/N je posledica velike proizvodnje brzih atoma usled prenosa naelektrisanja u sudarima između Ar^+ jona i Ar atoma. Na osnovu rezultata dobijenih u binarnim eksperimentima primećeno je da su brzi atomi Ar, za razliku od „čistih” površina, dosta efikasniji u slučaju „neočišćenih” površina. Procesi jonizacije teškim česticama (Ar^+ jonima i brzim Ar atomima) postaje značajan izvor sekundarnih elektrona na vrlo visokim vrednostima redukovanog električnog polja. U ovim uslovima, kada je doprinos jonizacije teškim česticama jako veliki, teško je iz podataka za proboj, odrediti prinose sekundarnih elektrona dobijenih udarima jona i brzih atoma u katodu. Što se tiče doprinosa sekundarne emisije indukovane fotonima ona je slična kao i kod čistih površina, s tim što je na višim vrednostima E/N za neočišćene površine γ_{ph} veće usled niže vrednosti γ_i .

Na slici 1.9 prikazani su relativni doprinosi različitih procesa proizvodnje sekundarnih elektrona na katodi. Na vrednostima E/N većim od 400 Td, joni i brzi atomi predstavljaju dominantne izvore elektrona na površini katode. Rezonantni fotoni proizvode većinu elektrona neophodnih za proboj za vrednosti redukovanog električnog polja između 40 i 1000 Td. Dok na nižim vrednostima E/N dominantni izvor elektrona predstavljaju nerezonantni fotoni koje emituju ekscitovani Ar_2 molekuli nastali od rezonantnih Ar atoma.



Slika 1.9 Izračunati parcijalni doprinosi različitih procesa u proizvodnji elektrona na katodi za Ar za „neočišćene” površine u uslovima proboja (Phelps i Petrović, 1999).

Poređenjem rezultata modela i različitih binarnih eksperimenata na „neočišćenim” katodnim površinama (slika 1.10) može se zaključiti da je model adekvatan. Dodatno, uslovi na katodi koji se stvaraju u toku rada realnih pražnjenja odgovaraju uslovima binarnih eksperimenata sa „neočišćenim” katodama. S druge strane, rezultati binarnih eksperimenata sa „čistim” katodama nisu primenjivi u modelovanju laboratorijskih pražnjenja, zbog značajne razlike u prinosu sekundarnih elektrona. Takođe, u eksperimentima se javlja problem nepreciznog određivanja jonizacionog koeficijenta i koeficijenta sekundarne emisije elektrona u oblastima malih vrednosti redukovanog električnog polja, što dovodi do toga da se pojedini rezultati razlikuju i za red veličine.



Slika 1.10 Efektivni koeficijenti sekundarne emisije elektrona po upadnom jonu, za različite neočišćene katodne površine. Oznake: simboli – predstavljaju efektivni koeficijenti sekundarne emisije elektrona po upadnom jonu, za različite neočišćene katodne površine; linije - predstavljaju γ_{eff} izračunat na osnovu modela Felps-Petrović (Phelps i Petrović, 1999): puna i isprekidana linija - svi procesi sekundarne emisije na površini katode i u gasnoj fazi sa različitim doprinosima γ_{ph} , crta-tačka: proračun sa konstantnom vrednošću za $\gamma_i = 0.07$.

MODEL FELPS – PETROVIĆ – JELENKOVIĆ (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993)

Ovo je model slabostrujnog difuznog pražnjenja koji se bazira na činjenici da u toku pražnjenja dolazi do narušavanja homogenosti spoljašnjeg električnog polja, usled stvaranja i akumulacije prostornog naelektrisanja. Naime, postojanje prostornog naelektrisanja perturbuje spoljašnje električno polje i dovodi do porasta vrednosti električnog polja u blizini katode, dok u ostatku međuelektrodnog prostora polje opada. Dakle na ovaj način model uvodi modifikaciju Taunzendove teorije koja se bazira na pretpostavci o homogenosti polja. Dodatno, porast električnog polja u blizini katode uzrokuje porast koeficijenta jonizacije, a samim tim i povećanu efikasnost procesa sekundarne emisije tj. povećanu multiplikaciju elektrona. Model uvodi dve pretpostavke: 1) prostorna raspodela naelektrisanja je takva da je perturbacija spoljašnjeg polja mala i 2) koeficijenti α i γ su lokalno određeni – koeficijent jonizacije je određen vrednošću lokalnog polja (prostorna raspodela elektrona ima eksponencijalni oblik), dok je koeficijent sekundarne emisije određen poljem na katodi. Model Felps–Petrović–Jelenković obuhvata fenomenološki i fizički model.

Fenomenološki model fizičkim veličinama pridružuje parametre efektivnog električnog kola pražnjenja i primenjuje se za opis vremenske zavisnosti struje i napona pražnjenja u prelaznom režimu. Ovim modelom je moguće opisati fenomene prigušenih i samostalnih oscilacija struje i napona i predvideti vrednosti parametara pražnjenja i električnog kola, koje određuju granice za nastanak samostalnih oscilacija. Glavna ideja ovog modela je da se koeficijent sekundarne emisije elektrona može predstaviti kao linerana funkcija struje i napona:

$$\gamma = \gamma_p + k_V V + k_I I \quad (5),$$

gde je γ_p tzv. „potencijalno izbacivanje” elektrona, k_V predstavlja „kinetičko izbacivanje” elektrona tj. opisuje zavisnost efektivnog γ od redukovanog električnog polja E/N , a k_I opisuje zavisnost raspodele električnog polja u međuelektrodnoj oblasti od prostornog naelektrisanja tj. zavisnost koeficijenta sekundarne emisije od lokalnog polja ispred katode koje je modifikovano prostornim naelektrisanjem pri promeni intenziteta struje. Upravo strujna zavisnost koeficijenta sekundarne emisije predstavlja suštinu fizičkih mehanizama posmatranih pojava. Takođe, model uvodi i pretpostavku da su vremena u kojima se dešavaju značajne promene u električnom polju duga u poređenju sa vremenima preleta (T) jona i elektrona. Rešavanjem sistema diferencijalnih jednačina

(Phelps, Petrović i Jelenković, 1993) za promenu struje i napona za kolo pražnjenja, korišćenjem raznih aproksimacija, mogu se dobiti izrazi za ugaonu učestanost ω i faktor prigušenja k oscilacija:

$$\omega^2 = \frac{I_{ss}}{R_s C} \frac{\partial g / \partial V}{T} (R_s + R_m + R_D) \quad (6),$$

$$k = \frac{1}{2 R_s C} + \frac{I_{ss}}{2} \frac{\partial g / \partial V}{T} (R_m + R_D) \quad (7),$$

gde su R_s serijski otpor u kolu, R_m otpornik koji služi za merenje struje pražnjenja, C ukupna parazitna kapacitivnost u kolu, T vreme preleta jona, I_{ss} stacionarna vrednost struje (engl. *steady state current*), g je faktor umnožavanja (multiplikacije) elektrona i R_D je negativna diferencijalna otpornost. Izrazi se odnose na granični slučaj kada $I_{ss} \rightarrow 0$ i $\omega^2 \gg k^2$. Takođe, može se videti da neće doći od pojave prigušenih oscilacija (faktor prigušenja k je pozitivan) ako je zadovoljen uslov $|R_D| < R_m$. Negativna diferencijalna otpornost se može dobiti iz sledećeg izraza:

$$R_D = - \frac{k_I}{\gamma_{ss} \partial g / \partial V} \quad (8),$$

gde je γ_{ss} vrednost koeficijenta γ koja odgovara probojnom naponu V_b . Iz izraza se vidi da je negativna diferencijalna otpornost upravo posledica strujne zavisnosti koeficijenta sekundarne emisije elektrona.

S druge strane, u fizičkom modelu se makroskopski parametri pražnjenja dovode u vezu sa transportnim koeficijentima: jonizacionim koeficijentom α i koeficijentom sekundarne emisije γ . Ovaj model daje raspodelu električnog polja, promenu vrednosti električnog polja na katodi i odgovarajuću promenu napona.

U slučaju međuelektrodne oblasti jasno je da je jačina električnog polja u njoj određena i spoljašnjim izvorom napona i naelektrisanim česticama koje se formiraju u toku pražnjenja. Formiranje novih naelektrisanja zavisi od veličina koje su funkcije jačine električnog polja, pa se s toga problem određivanja raspodele električnog polja svodi na problem rešavanja samousaglašenog polja primenom perturbacionog metoda, pod uslovom da su struje male (slabe struje) i da je prostorno naelektrisanje malo. Dakle, određivanje raspodela naelektrisanja u polju pomoću perturbacionog metoda podrazumeva da se one mogu izračunati korišćenjem jednačina koje važe za uniformno (homogeno) električno polje (polazeći od gustine elektrona i jona u homogenom električnom polju).

Komponenta električnog polja koja je posledica prisustva prostornog naelektrisanja može se dobiti polazeći od jednodimenzionalne Poasonove jednačine. Dodatno, kako je promena napona na elektrodama direktna posledica promene jačine električnog polja, može se doći do izraza za normalizovanu negativnu diferencijalnu otpornost R_N koja zavisi od promene koeficijenta sekundarne emisije elektrona na katodi, što je posledica promene koeficijenta jonizacije usled postojanja prostornog naelektrisanja. Koristeći izraze za negativnu diferencijalnu otpornost (fenomenološki model) i za normalizovanu negativnu diferencijalnu otpornost (fizički model) može se izračunati vrednost koeficijenta k_I koji daje strujnu zavisnost koeficijenta sekundarne emisije γ .

1.5 PRAŽNJENJA U I U KONTAKTU SA TEČNOSTIMA I NJIHOVIM PARAMA

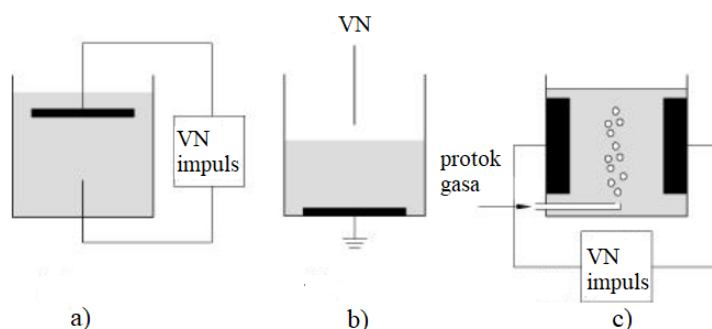
Zadnjih par godina postoji trend porasta interesovanja za plazme koje nastaju u parama tečnosti, na granici gas-tečnost i u samoj tečnosti. Fokus proučavanja interakcije plazme sa tečnostima se proširio na razna polja primene, uključujući električne prekidače (Martin, 1996), analitičku hemiju (Webb i Hieftje, 2009; Smoluch *et al.*, 2016), zaštitu životne sredine (tretman voda i dezinfekcija) (Foster *et al.*, 2012), sintezu materijala (nanočestice) (Mariotti *et al.*, 2012), obradu materijala (uklanjanje fotorezista, funkcionalizacija polimera, plazma-poliranje) (Ishijima *et al.*, 2013; Friedrich *et al.*, 2008), hemijsku sintezu (H_2O_2 , H_2) (Bruggeman i Locke, 2013), sterilizaciju i medicinske primene (zaceljivanje rana indukovano plazmom, ablacija tkiva, koagulacija, litotripsija) (Sato *et al.*, 1996; Fridman *et al.*, 2008). Trenutno je najveće interesovanje naučnika usmereno na istraživanja vezana za plazme koje nastaju u vodi i organskim tečnostima, prvenstveno alkoholima.

Voda je jedan od najrasprostranjenijih molekula u svemiru, prisutna je u atmosferama planeta i satelita, na kometama i pri formiranju zvezda. U Solarnom sistemu je detektovana u atmosferama Marsa, Venere, Merkura, Jupitera, Neptuna i Urana, kao i u atmosferi patuljaste planete Ceres, gde je pored vodene pare detektovano i prisustvo leda (Tereszchuk *et al.*, 2002; Bernath, 2002). Pražnjenja u vodenoj pari su veoma interesantna sa strane problema dekontaminacije i kontrole zagađenja, kao i u vidu alata za različite modifikacije površina, recimo za povećanje otpornosti na koroziju (Suzuki *et al.*, 2006), aktivaciju polimera (Steen *et al.*, 2001; Steen *et al.*, 2002; Weikart i Yasuda, 2000), izvora UV zračenja (Oh *et al.*, 2009) i sterilizaciju (uništavanje mikroorganizama) (Hayashi *et al.*, 2008). Front istraživanja interakcije plazmi i vode i posebno pražnjenja u vodi prikazan je detaljno u radu Bruggemana i saradnika (Bruggeman *et al.*, 2016).

Pored istraživanja pražnjenja u vodi, u žiži interesovanja su i proučavanja pražnjenja u organskim tečnostima, koja su takođe interesantna sa aspekta primena. Tu se na prvom mestu izdvajaju pražnjenja u alkoholima. Ona svoju primenu mogu naći u industriji goriva, za proizvodnju vodonika, koji se smatra gorivom budućnosti (biogoriva, PEMFC gorive ćelije – engl. *Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell*) (Petitpas *et al.*, 2007; Sekine *et al.*, 2004), u nanotehnologiji za brz rast nanografena (Hagino *et al.*, 2012) i dobijanje ugljeničnih nanotuba visoke čistoće (Suda *et al.*, 2009; Maruyama *et al.*, 2002; Matsushima *et al.*, 2013), u biomedicini (Puač *et al.*, 2015), kontroli zagađenja, za razvoj različitih detektora čestica i senzora (Fonte *et al.*, 2010). Sve ove primene koriste neravnotežne plazme koje rade, kako na niskom tako i atmosferskom pritisku, bilo u tečnosti ili gasu/pari. Raznovrsnost ovih plazmi kao i široki dijapazon njihovih primena sa sobom je doneo pitanja koja zahtevaju multidisciplinarni pristup problemima. Iako su prva istraživanja vezana za plazme unutar i u kontaktu sa tečnostima započeta pre više od jednog veka, još nije postignuto puno razumevanje fizičkih i hemijskih procesa u ovim plazmama. Glavna problematika kod ovih neravnotežnih plazmi je kontrola i stabilizacija režima rada, jer je u pitanju neravnotežni sistem koji se realizuje i u gasu i u tečnosti. U slučajevima kada je jedna od elektroda tečnost imamo elektrodu koja se deformiše i isparava u isto vreme. Ovo doprinosi dodatnoj složenosti problema u poređenju sa relativno inertnim metalnim elektrodama koje se koriste kod nearvnotežnih plazmi u gasovima. Ključni izazovi u ovoj oblasti, a ujedno i neki od glavnih uzroka za trenutno ograničen osnovni uvid u fiziku ovih plazmi, su nedovoljno poznavanje transportnih procesa, hemije, dostupnost (ili nedostatak) elementarnih podataka o brzinama reakcija i sudarnim presecima, kao i mali broj dijagnostičkih metoda koje se primenjuju.

Pražnjenja unutar tečnosti i u kontaktu sa njima se mogu svrstati u tri grupe (slika 1.12): a) pražnjenja u tečnoj fazi; b) pražnjenja u gasnoj fazi iznad površine tečnosti, uključujući i slučaj

kada je bar jedna od elektroda tečnost; i na kraju c) pražnjenja u višefaznom okruženju – pražnjenja u mehurićima u tečnostima (Bruggeman i Locke, 2013).



Slika 1.12 Tipovi pražnjenja unutar i u kontaktu sa tečnostima, VN – visoki napon (Bruggeman i Leys, 2009).

Zajedničko kod poslednja dva tipa pražnjenja (slika 1.12b) i 1.12c)) jeste to što se u oba slučaja pražnjenje odvija u gasovitoj fazi tj. gasnoj smeši para koje nastaju isparavanjem tečnosti. Prema tome, ova dva tipa pražnjenja su u suštini predstavnici neravnotežnih pražnjenja u parama tečnosti ili u smešama gasova koje sadrže pare tečnosti. Čak i u tečnoj fazi 1.12c) se pod uticajem jakog električnog polja i usled grejanja gasa prvo formiraju mehurići pare, a zatim do proboja dolazi u mehuriću; dok se direktan proboj u tečnoj fazi može ostvariti samo primenom izuzetno brzog i visokog naponskog impulsa. Shodno tome, prvi korak u ispitivanju složenih sistema pražnjenja u tečnostima treba da bude ispitivanje neravnotežnih gasnih pražnjenja u širokom opsegu parametara pražnjenja, što je bila i osnovna ideja ove disertacije. Postojeći eksperimentalni podaci o pražnjenjima u parama alkohola i vodenoj pari, koji se odnose na proboj, su nepotpuni i prilično zastareli (Prasad i Craggs, 1960; Hackam, 1971). S druge strane, u dostupnim bazama radova, koliko je nama poznato, nema rezultata merenja strujno-naponskih ($V-I$) karakteristika jednosmernih pražnjenja. Sa aspekta modelovanja, svi ovi podaci su neophodni za uvid u osnovne procese koji se dešavaju u neravnotežnom pražnjenju.

Uz pomoć eksperimenta korišćenog u ovom radu moguća su sistematska merenja napona proboja i električnih karakteristika pražnjenja u gasu, u kontrolisanim uslovima. Pažljiva i dobro definisana merenja u oblasti tamnog Taunzendovog pražnjenja (engl. *Townsend discharge*) omogućavaju detaljnu analizu uticaja različitih mehanizama sekundarne proizvodnje elektrona u probiju i u održavanju samostalnih pražnjenja (Phelps i Petrović, 1999; Petrović i Phelps, 1993; , Petrović i Phelps, 1996; Petrović i Phelps, 1997). Takođe, ovakvi eksperimenti omogućavaju razumevanje osnovnih procesa u gasu i mehanizama sekundarne emisije kako u slabostrujnim tako i u jakostrujnim neravnotežnim pražnjenjima. Na kraju, poznavanje ovih procesa u jednostavnoj planparalelnoj geometriji elektroda i u uslovima tinjavog pražnjenja, kao najjednostavnijeg režima, omogućiće da dobijene rezultate proširimo i na geometriju i na uslove pražnjenja u mnogo složenijim sistemima koji se koriste u raznim primenama.

Navedeni modeli se odnose pre svega na slabostrujni limit kojim su se bavili naši eksperimenti. Naravno postoji i niz modela koji opisuju pražnjenja većih gustina naelektrisanja kao što su fluidni modeli, PIC (eng. *Particle In Cell*) modeli i globalni modeli. Mi nemamo prostora da se bavimo prikazom ovih modela, iako oni imaju veliku korist od podataka koji se dobijaju u našem eksperimentu i u sličnim eksperimentima.

2. EKSPERIMENT

Ovaj rad je posvećen proučavanju proboja, električnih i emisionih osobina neravnotežnog pražnjenja u parama tečnosti na niskim pritiscima i na različitim međuelektrodnim rastojanjima. Eksperimenti u kojima se proučavaju gasna pražnjenja na niskom pritisku pred istraživače postavljaju niz problema vezanih za obezbeđivanje stabilnih uslova, pouzdanosti i reproducibilnosti rezultata merenja. Kao primer navešćemo radove nađene u literaturi u kojima su izučavana pražnjenja za najjednostavniju, plan-paralelnu geometriju elektroda. Rezultati merenja probojnog napona i strujno-naponskih karakteristika se mogu drastično razlikovati (što se može videti i na primeru rezultata dobijenih za merenja u argonu: Menes, 1959; Klyarfel'd *et al.*, 1966; Stefanović i Petrović, 1997; Auday *et al.*, 1998; Phelps i Petrović, 1999; Donkó, 1999; Phelps, 2001). Navedene razlike su, u prvom redu, posledica različitog stanja katodne površine tj. različitih vrednosti koeficijenata sekundarne emisije elektrona sa površine katode (Phelps i Petrović, 1999; Phelps, 2001), jer je upravo glavni mehanizam formiranja i održavanja jednosmernih pražnjenja na niskom pritisku sekundarna emisija elektrona sa površine katode.

Iz ovog razloga je izuzetno važno ostvariti stabilne uslove na površini katode tokom celog perioda merenja, što će omogućiti dobijanje pouzdanih i reproducibilnih rezultata merenja. Dakle, neophodno je da se nagomilavanje nečistoća i zagrevanje gasa i katodne površine tokom rada pražnjenja svedu na najmanju moguću meru. Poseban problem predstavljaju pražnjenja u ugljovodoničnim jedinjenjima zbog mogućeg formiranja polimera, u vidu tankih slojeva (tankih filmova) ili čestica prašine na površinama ili u gasnoj fazi (Stefanović *et al.*, 2006). Osnovne merene veličine u ovakvim eksperimentima su pre svega probojni napon, koji se u funkciji proizvoda pritiska i rastojanja između elektroda predstavlja kao grafički oblik Pašenovog zakona. Potom tu je strujno-naponska karakteristika koja otkriva najviše raznih fizičkih procesa, poput rada u homogenom polju, prelaska na rad u nehomogenom polju pomoću formiranja zone povećanog prostornog naelektrisanja, formiranje pa nestanak konstrikcije zone pražnjenja i prelazak na termalnu emisiju sa katode pri tranziciji iz tinjavog u lučno pražnjenje. Na ova merenja se nadovezuju i merenja zona i osobina indukovanih i samostalnih oscilacija, efektivne negativne diferencijalne otpornosti, prostorne raspodele emisije kao indikacije anatomije pražnjenja i mnoga druga merenja.

Pojave konstriktovanog pražnjenja i oscilacija u struji i naponu unose dodatne nestabilnosti u rad pražnjenja i otežavaju merenja probojnih napona, strujno-naponskih karakteristika i prostornih raspodela intenziteta emisije. Što se tiče samih uslova na katodi, rad sa neravnotežnim pražnjenjima na niskom pritisku na većim strujama (u normalnom i abnormalnom režimu tinjavog pražnjenja) može dovesti do raspršivanja deponovanih nečistoća na katodi, raspršivanja i redukcije hemisorbovanih oksida i drugih jedinjenja sa površine katode, pa čak i raspršivanja katodnog materijala u pražnjenje, usled bombardovanja površine katode česticama velikih energija. Usled bombardovanja može doći i do lokalnog zagrevanja površine katode koja utiče na gustinu gasa u blizini, pa i na E/N (E –električno polje a N –gustina čestica gasa) u kojem se ubrzavaju joni ka katodi.

Treba imati na umu da na pouzdanost, kvalitet i reproducibilnost eksperimentalnih rezultata veoma utiču i parametri spoljašnjeg električnog kola – otpornost, kapacitivnost, kvalitet veza između elemenata aparature itd. Na primer, pri snimanju vremenskog razvoja strukture pražnjenja potrebno je detaljno analizirati odziv električnog kola na prelazna stanja u impulsnom režimu rada, odrediti parazitivnu kapacitivnost kola (sistema), izmeriti i eliminisati vremena kašnjenja u različitim elementima kola i njihovim vezama i na taj način obezbediti kvalitetna i ispravna merenja

naponskih i strujnih signala, kako bi se dobile pouzdane fizičke veličine koje su osnova za modelovanje i opis samih pražnjenja.

Laboratorija za gasnu elektroniku Instituta za fiziku u Beogradu je već dugi niz godina prepoznata u svetu po rezultatima rada na proučavanju proboja i neravnotežnih pražnjenja u gasovima. Razvijene su tehnike merenja probojnih napona, strujno–naponskih karakteristika, prostorno i vremenski razložene strukture pražnjenja koje daju dobro definisane, pouzdane i reproducibilne rezultate. Ovi rezultati su, pre svega zbog svoje pouzdanosti i precizne definicije mogli da budu osnov za detaljnu reviziju postojeće Taunzendove teorije i za objašnjenje fenomena kao što su konstrikcije i oscilacije u neravnotežnim gasnim pražnjenjima (Petrović i Phelps, 1993; 1996; 1997; Phelps i Petrović, 1999; Marić, 2003; Marić, 2006; Živanov, 2000; Stefanović, 1998). Međutim, rad sa tečnostima, odnosno parama tečnosti na niskim pritiscima zahteva prilagođavanje i proširenje postojećeg eksperimentalnog uređaja (Škoro, 2012). U ovom radu, u domenu konstrukcije aparature i tehnike merenja, postavljeni su sledeći ciljevi:

- provera i prilagođenje postojećih eksperimentalnih tehnika radu sa tečnostima, odnosno sa parama tečnosti
- obezbeđivanje stabilnih uslova, pouzdanosti i reproducibilnosti rezultata merenja
- nadogradnja eksperimentalnog uređaja za spektralno razložena merenja prostorne strukture pražnjenja
- prilagođenje eksperimentalnog uređaja za merenja u oblasti pritiska većih od pritiska pare

Ovaj deo daje detaljan opis korišćene merne aparature, tehnike merenja, zajedno sa primerima gore pomenutih problema koji se mogu javiti u eksperimentalnom radu sa neravnotežnim gasnim pražnjenjima, kao i opis primenjenih metoda i tehnika kojima su uspešno prevaziđeni. Bazična postavka eksperimenta je ista kao i ona opisana u disertacijama dr Dragane Marić (2006) i dr Nikole Škora (2012) sa tom razlikom što je ovde eksperimentalni uređaj nadograđen kako bi se uspešno sprovela spektralno razložena merenja prostorne strukture pražnjenja.

2.1 OPIS EKSPERIMENTALNE APARATURE

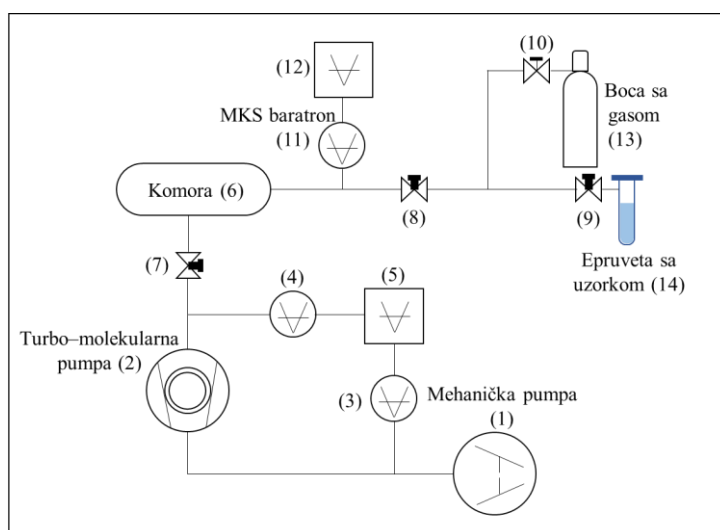
Eksperimentalna aparatura koja je korišćena za merenja u ovom radu se sastoji iz sledećih delova:

- 1) vakuumskog sistema,
- 2) komore za pražnjenje,
- 3) sistema za električnu pobudu pražnjenja i
- 4) sistema za detekciju signala.

2.1.1 VAKUUMSKI SISTEM

Vakuumski sistem (slika 2.1) koji je korišćen za vakuumiranje komore čine sledeći delovi:

- vakuumske pumpe (mehanička i turbo–molekularna),
- vakuumska merila,
- komora za pražnjenje,
- ventili za regulaciju protoka i pritiska gasa,
- kapacitivni merač pritiska,
- sigurnosni i reducir ventil na boci sa komprimovanim gasom,
- boca sa komprimovanim gasom u ovom slučaju sa vodonikom i
- epruveta sa uzorkom tečnosti.



Slika 2.1. Šema vakuumskog sistema : (1) i (2) – sistem vakuumskih pumpi, (3)–(5) – jonizaciono merilo pritiska sa kontrolerom, (6) – komora za pražnjenje, (7)–(9) – igličasti ventili, (10) – sigurnosni i reducir ventil na boci sa komprimovanim gasom, (11) i (12) – kapacitivno merilo pritiska sa kontrolerom, (13) – boca sa komprimovanim gasom i (14) – epruveta sa uzorkom tečnosti

Sistem vakuumskih pumpi se sastoji iz: (1) mehaničke pumpe (Pfeifer, DUO 20M) i (2) turbo–molekularne pumpe (Leybold-Heraeus, Turbovac 450). Mehanička pumpa služi da obezbedi pred-vakuum reda 10^{-3} Torr koji je neophodan za pravilan rad turbo–molekularne pumpe. Ovakav vakuumski sistem obezbeđuje vakuum reda veličine od 10^{-6} do 10^{-7} Torr. Kontrola vakuuma na ulazu u mehaničku pumpu (3) i na ulazu u turbo-molekularnu pumpu (4) je omogućena upotrebom jonizacionih merila sa „vrućom katodom” – BALZERS, tip IMR 110 i tip IMR 125 respektivno. Merila su povezana sa kontrolerom (5) – BALZERS, tip IMG 060B. Za merenje pritiska u komori za pražnjenje koristi se kapacitivni manometar MKS Baratron 122AAX-00100AB. Pomoću ventila (8) sa finim podešavanjem (igličasti ventil) kontroliše se protok i pritisak gasa koji se dovodi u

komoru (sistem). Korišćena vakuumaska instalacija omogućava priključivanje nekoliko boca sa komprimovanim gasom. Za merenja sa parama tečnosti postavljena je vakuumaska grana sa posebno adaptiranom epruvetom (14), u koju se sipa uzorak ispitivane tečnosti. Igličasti ventil (9) služi za kontrolu protoka i pritiska pare u sistemu.

Pre svakog merenja i upuštanja radnog gasa/pare u komoru za pražnjenje, vrši se vakuumiranje sistema dok se ne postigne vakuum od 10^{-6} Torr, što je preduslov za obezbeđivanje odgovarajuće čistoće gasa/pare. Međutim, gumeni prstenovi za zaptivanje komore i sastavnih delova vakuumske sistema, nisu u stanju da potpuno spreče postepeni ulazak vazduha iz atmosfere u vakuumski sistem tokom dužeg vremena rada, što pored kontaminacije radnog gasa za posledicu ima i nepovoljan uticaj na stanje katodne površine (stvaranje oksidnog sloja) i na karakteristike samog pražnjenja. Zato se tokom merenja igličastim ventilima (7) i (8) održava mali i konstantan protok gasa/pare u sistemu, koji ne utiče na osobine pražnjenja, ali omogućava kontinuirano uklanjanje nečistoća. Na ovaj način je obezbeđena i održana potrebna čistoća gasa/pare tokom dužih perioda merenja.

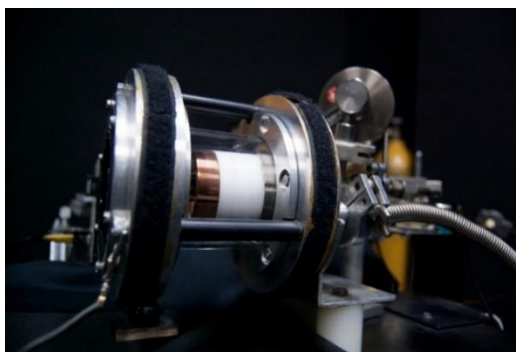
2.1.2 KOMORA ZA PRAŽNJENJE

U eksperimentalnim merenjima su korišćene dve komore za pražnjenje: „standardna“ komora (za pražnjenja centimetarskih dimenzija) sa paralelnim elektrodama i „mikro“ komora (za pražnjenja mikrometarskih dimenzija). Komore su osmišljene i konstrukcijski izvedene tako da obezbeđuju:

- ostvarivanje dovoljno visokog vakuuma – prisustvo nečistoća u sistemu svedeno na najmanju moguću meru,
- stabilan rad pražnjenja u protočnom režimu gasa – protok ne utiče na pražnjenje i izbegnuto je nagomilavanje nečistoća u komori u toku merenja,
- sprečavanje proboja i paljenja pražnjenja u prostoru iza elektroda – omogućen stabilan rad pražnjenja na nižim pritiscima (levo od minimuma na Pašenovoj krivoj)
- stabilne uslove na površini katode tokom dužeg perioda rada pražnjenja
- visok stepen paralelnosti elektroda

Prva komora omogućava snimanje i aksijalnih i radijalnih raspodela emisije iz pražnjenja, dok je kod komore za mikrometarska pražnjenja moguće snimati samo radijalne raspodele emisije.

Komora za pražnjenja centimetarskih dimenzija je prikazana na slikama 2.2 i 2.3, a čine je plan-paralelni elektrodni sistem, konstrukcijski delovi za učvršćivanje elektroda i delovi za povezivanje sa vakuumskim sistemom.

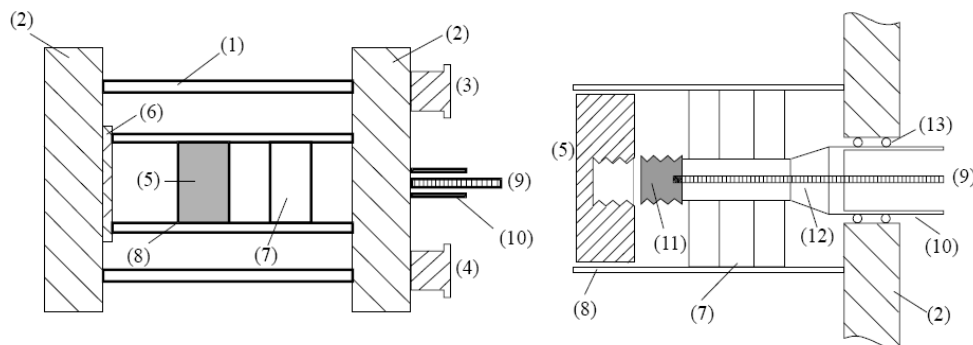


Slika 2.2 Komora za pražnjenja centimetarskih dimenzija

Elektrodni sistem je sastavljen iz dve paralelne elektrode, kružnog oblika čiji je prečnik 5.4 cm. Rastojanje između elektroda može da se menja od 0.5 do 3.1 cm. Elektrodni sistem je smešten

unutar cilindra od kvarcnog stakla (slika 2.3, oznaka 8) koji služi da spreči formiranje pražnjenja ka metalnim delovima kućišta.

Bakarna katoda (slika 2.3, oznaka 5) je od metalnog kućišta odvojena teflonskim prstenovima (slika 2.3, oznaka 7) koji služe za podešavanje rastojanja između elektroda, ali i kao izolacija kućišta od visokog napona. Dodatno, ovi prstenovi služe kao veza za bočne konstrukcione elemente (slika 2.3, oznaka 2) i obezbeđuju dobru paralelnost elektroda.



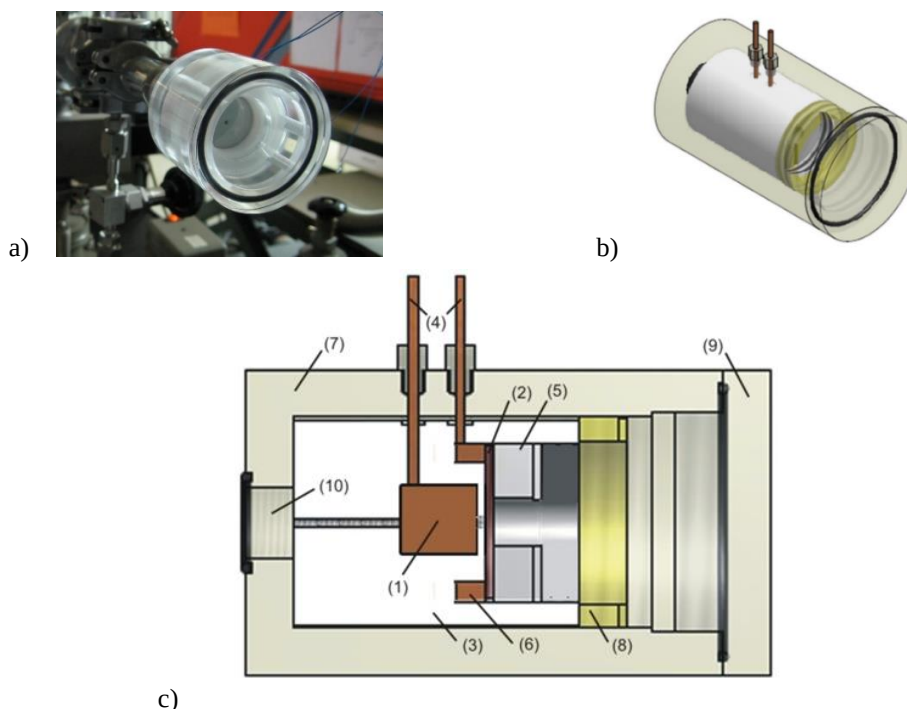
Slika 2.3 Šematski prikaz poprečnog preseka komore za pražnjenja centimetarskih dimenzija. Označeni delovi komore: 1-cilindar od kvarcnog stakla, 2-konstrukcioni elementi, 3-uvodnik za vakuum, 4-uvodnik radnog gasa, 5-katoda, 6-anoda, 7-teflonski prstenovi, 8-cilindar od kvarcnog stakla, 9-visokonaponski uvodnik, 10-staklena cev, 11-bakarni navoj, 12-spoj staklo metal, 13-gumeni prstenovi za zaptivanje.

Katoda je napajana elektroda na koju se dovodi visoki (negativan) napon. Električni kontakt između katode i izvora visokog napona obezbeđuje visokonaponski uvodnik (slika 2.3, oznaka 9). Uvodnik se preko bakarnog navoja (slika 2.3, oznaka 11) spaja sa katodom što obezbeđuje dobar električni kontakt. Kako bi se onemogućio električni proboj ka metalnim delovima kućišta, uvodnik je smešten unutar staklene cevi (slika 2.3, oznaka 10) koja naleže na bakarni navoj, i na taj način obezbeđuje potrebnu električnu izolaciju. Gumeni prstenovi (slika 2.3, oznaka 13) koji se nalaze između staklene cevi i metalnog dela kućišta komore obezbeđuju zaptivanje komore.

Anoda (slika 2.3, oznaka 6) je kvarcna ravna ploča kružnog oblika, na koju je deponovan tanak, transparentan, provodni sloj platine, tako da omogućava (bočno- end on) snimanje radijalnih raspodela emitovanog zračenja iz pražnjenja. Naneseni film je dovoljne debljine da omogući prolazak svetlosti emitovane iz pražnjenja (transparentnost $> 30\%$), a da pri tom zadrži dobre elektroprovodne osobine (otpornost $< 100 \Omega$). Anoda je preko metalnog zida komore (slika 2.3, oznaka 2) uzemljena – nalazi se na nultom potencijalu. Konstrukcioni elementi (slika 2.3, oznaka 2) koji se nalaze na bočnim stranama komore, su izrađeni od aluminijuma i služe za učvršćivanje i spajanje komore za pražnjenje sa ostatkom vakuumskeg sistema (slika 2.3, oznake 3 i 4). Spoljni cilindar (slika 2.3, oznaka 1) je izrađen od kvarcnog stakla čime je omogućeno snimanje raspodela emitovanog zračenja duž ose komore.

Komora za pražnjenja mikrometarskih dimenzija je prikazana na slici 2.4. U okviru ovog rada, mikropražnjenja su proučavana kako bi se analizirao uticaj formiranja kapljica na proboj – na pritiscima većim od pritiska pare. Da bi se sprečila pojava strimera koja je bila neizbežna u centimetarskim dimenzijama (pri većim vrednostima parametra pd), bilo je neophodno smanjiti dimenzije pražnjenja. Zahvaljujući zakonima skaliranja, na ovaj način je bilo moguće ostvariti proboj na većim pritiscima u oblasti Pašenovog minimuma (Petrović *et al.*, 2008) Osnovna postavka i tehnika merenja su opisani u doktorskoj disertaciji dr Nikole Škora (Škoro, 2012), a u okviru ovog rada je eksperiment prilagođen radu sa parama tečnosti. Komora je osmišljena tako da se potpuno onemogući proboj izvan međuelektrodnog prostora, što je posebno važno u levoj grani Pašenove krive (Marić *et al.*, 2012). Svi konstrukcioni delovi su izrađeni od dielektričnih materijala. Elektrode su kružnog poprečnog preseka i međusobno su odvojene dielektrikom u obliku prstena

koji ujedno ograničava zapreminu u kojoj se realizuje pražnjenje. Međuelektrodno rastojanje može kontinualno da se menja. Kućište za elektrode (slika 2.4, oznaka 3) je napravljeno od teflona i istovremeno sprečava proboj oko i iza elektroda, obezbeđuje paralelnost elektroda i fiksira elektrodni sistem. Efektivni prečnik elektroda koji je izložen pražnjenju je 2 mm.



Slika 2.4 Komora za pražnjenja mikrometarskih dimenzija: a) fotografija komore; b) crtež komore i c) poprečni presek komore sa označenim konstrukcijskim delovima: (1) – katoda od nerđajućeg čelika; (2) – transparentna anoda; (3) – kućište za elektrode; (4) – visokonaponski uvodnici; (5) – prsten za učvršćivanje anode; (6) – metalni kontakt-prsten; (7) – spoljni cilindar od pleksiglasa; (8) – prsten za učvršćivanje kućišta za elektrode; (9) – providni poklopac komore i (10) – uvodnik za vezu sa vakuumskim sistemom.

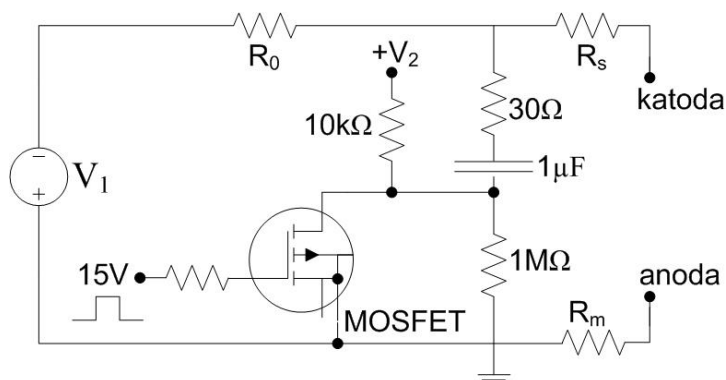
Katoda od nerđajućeg čelika (slika 2.4, oznaka 1) je postavljena u centralni deo kućišta za elektrode, a sa visokonaponskim uvodnikom (slika 2.4, oznaka 4) je u kontaktu preko metalne osnove. Anoda (slika 2.4, oznaka 2) je od stakla sa tankim, provodnim i transparentnim slojem indijum-oksida (ITO sloj) (*engl. Indium Tin Oxide*), čija je otpornost $20 \pm 5 \Omega$, debljina sloja je 400 – 700 nm, dok je transparentnost $> 70\%$. Preko prstena za učvršćivanje (slika 2.4, oznaka 5), anoda je u kontaktu sa metalnim prstenom (slika 2.4, oznaka 6) koji je povezan sa visokonaponskim uvodnikom.

Na kućištu sa elektrodama se nalaze žljebovi koji olakšavaju vakuumiranje i dovođenje radnog gasa. Elektrodni sistem i kućište su smešteni unutar spoljnog cilindra od pleksiglasa (slika 2.4, oznaka 7) i učvršćeni teflonskim prstenom (slika 2.4, oznaka 8). Spoljni cilindar komore za pražnjenje je sa prednje strane zatvoren providnim poklopcem (slika 2.4, oznaka 9) na kome se nalazi gumeni zaptivač. Ovakav dizajn komore za pražnjenje dozvoljava snimanje radijalnih raspodela intenziteta zračenja iz pražnjenja. Na suprotnoj strani cilindra (zadnja strana) nalazi se otvor za povezivanje sa vakuumskim sistemom (slika 2.4, oznaka 10). Svi otvori na spoljnom cilindru imaju gumene zaptivače čija je funkcija da obezbede ostvarivanje visokog vakuuma u komori, odnosno da spreče ucurivanje vazduha iz atmosfere u unutrašnjost komore za pražnjenje.

2.1.3 SISTEM ZA ELEKTRIČNU POBUDU PRAŽNJENJA

U ovom radu korišćen je identičan sistem za električnu pobudu pražnjenja kao i u doktorskim disertacijama dr Marić (2006) i dr Škora (2012). Sistem obezbeđuje stabilan rad

pražnjenja u jednosmernom slabostrujnom režimu, a rad na većim strujama je omogućen primenom dodatnog kratkog (< 5 ms) naponskog impulsa na elektrode. Primenom kratkog naponskog impulsa izbegnuto je kondicioniranje površine katode i zagrevanje u režimu jakih struja. Šema električnog kola za pobudu pražnjenja, kao i njegovi osnovni elementi prikazani su na slici 2.5.



Slika 2.5 Šema električnog kola za pobudu pražnjenja

Osnovni elementi koji čine električno kolo su:

- ♦ izvori visokog napona V_1 i V_2
- ♦ prekidačko kolo (MOSFET)
- ♦ sistem otpornika R_0 , R_s i R_m
- ♦ kondenzator $C = 1 \mu\text{F}$
- ♦ komora za pražnjenje

Kao izvor DC napona za proboj i slabostrujni režim pražnjenja, korišćen je visokonaponski napajač V_1 (BERTAN, tip 230–10R) koji ima naponsku i strujnu regulaciju do 10 kV, odnosno 1.5 mA. Naponski impulsi su dobijeni korišćenjem visokonaponskog izvora V_2 . Pri tome je za finu regulaciju napona (korak od 1 – 2 V) do 40 V (strujna regulacija do 3 A), korišćen izvor HP, tip 6265B, dok je za veće vrednosti napona – naponska regulacija do 3 kV, strujna regulacija do 5 mA – korišćen BERTAN, tip 230–03R.

MOSFET tranzistor, sistem odgovarajućih otpornika i generator impulsa čine prekidačko kolo sistema. Generator impulsa (TEKTRONIX, tip PG 507) služi da obezbedi impulse četvrtastog oblika, amplitude 15 V i promenljive dužine trajanja, koji prevode MOSFET tranzistor iz neprovodnog u provodno stanje. Kondenzator C ($1 \mu\text{F}$) služi za sprežanje pražnjenja i naponskih impulsa i za postizanje konstantne vrednosti napona u generisanom impulsu.

Otpornik R_0 određuje konstantnu struju pražnjenja, a kako su u pitanju male struje reda veličine $\sim 1 \mu\text{A}$, potrebno je da njegova vrednost bude velika (korišćen je otpornik vrednosti $3 \text{ M}\Omega$). Intenzitet struje pražnjenja u impulsu (radna tačka) se podešava pomoću otpornika R_s – u radu su korišćeni otpori od $15 \text{ M}\Omega$, $10 \text{ M}\Omega$, $1.2 \text{ M}\Omega$, $560 \text{ k}\Omega$, $250 \text{ k}\Omega$, $150 \text{ k}\Omega$ i $20 \text{ k}\Omega$. Tako su dobijene struje pražnjenja u intervalu vrednosti od nekoliko mikroampera do nekoliko miliampera. Struja pražnjenja je određena padom napona na otporniku R_m i u merenjima su korišćene vrednosti otpornika od $10 \text{ k}\Omega$, $100 \text{ k}\Omega$, $500 \text{ k}\Omega$, $1 \text{ M}\Omega$ i $10 \text{ M}\Omega$.

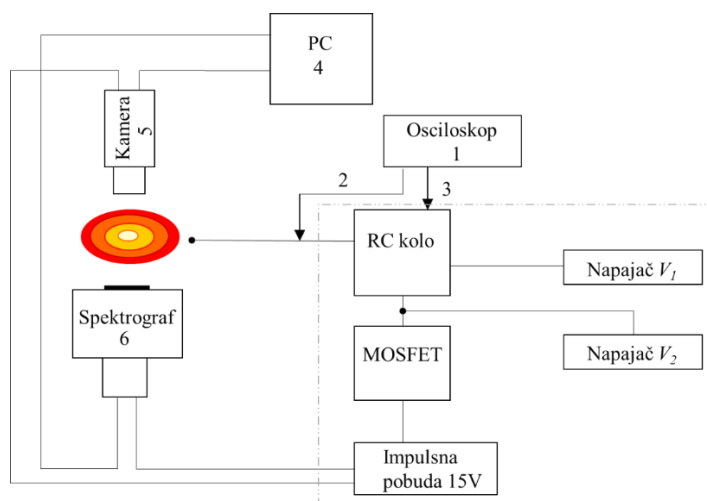
2.1.4 SISTEM ZA DETEKCIJU SIGNALA

Sistem za detekciju (i optičkog i električnog) signala (slika 2.6) čine sledeći elementi:

- digitalni memorijski osciloskop
- sonde za merenje napona

2. Eksperiment

- kompjuter (PC)
- ICCD kamera (engl. *Intensified Charge Coupled Device*)
- spektrograf



Slika 2.6 Blok šema sistema za detekciju signala: 1 – digitalni memorijski osciloskop; 2 i 3 – naponske sonde; 4 – kompjuter (PC); 5 – ICCD kamera i 6 – spektrograf. Isprekidanom linijom je uokviren sistem za električno napajanje.

Digitalni memorijski osciloskop (slika 2.6, oznaka 1) – Keysight Technologies tip DSO9104A – omogućava merenje, snimanje i memorisanje signala u opsegu do 1 GHz, sa brzinom uzorkovanja (engl. *sample rate*) od 20 GSa/s. Povezivanje sa kompjuterom je omogućeno korišćenjem standardnog USB i LAN interfejsa što dozvoljava prenos snimljenih vremenskih signala struje i napona u .csv formatu i njihovu dalju obradu u programskom paketu *ORIGIN*.

Visokonaponska sonda (slika 2.6, oznaka 2) – Tektronix tip P6915 – služi za merenje napona na katodi. Sonda ima ulaznu otpornost od 100 M Ω , koja je znatno veća od vrednosti svih ostalih otpornosti u električnom kolu, pa se stoga struja kroz sondu može zanemariti. Maksimalna dozvoljena vrednost ulaznog napona iznosi 20 kV, za maksimalnu dozvoljenu učestanost signala 100 kHz.

Naponska sonda (slika 2.6, oznaka 3) – Tektronix tip P6106A – meri napon na otporniku R_m iz koga dobijamo struju pražnjenja. Ulazna otpornost ove sonde je 10 M Ω pa i ovde možemo zanemariti struju koja protiče kroz sondu kada je $R_m \ll 10$ M Ω . Za merenje struje većih intenziteta korišćena je naponska sonda Agilent, tip 10076A kod koje je ulazna otpornost 66.7 M Ω .

ICCD kamera (slika 2.6, oznaka 5) – Andor, tip iStar DH720-18U-03 (slika 2.7) – je korišćena za snimanje raspodela emitovane emisije iz pražnjenja. Kamera ima sledeće tehničke karakteristike:

- rezolucija – 1024 x 256 piksela
- veličina slike – 18 x 6.7 mm
- efektivna veličina piksela (veličina elementa slike) – 26 μ m
- opseg talasnih dužina koji može da se detektuje i snimi – od 180 do 850 nm
- maksimalna kvantna efikasnost ICCD fotokatode – 18%
- minimalno vreme ekspozicije – 2 ns
- brzina učitavanja signala na kontrolersku karticu – 32 μ s po pikselu.



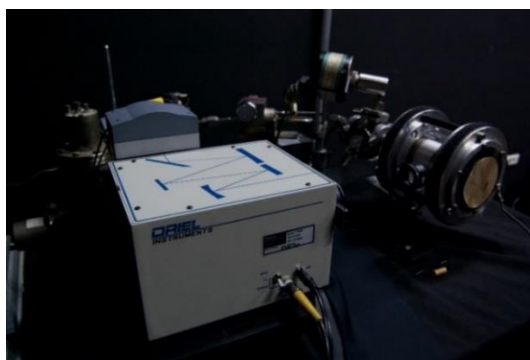
Slika 2.7 ICCD kamera Andor, iStar DH720-18U-03 (levo) i kamera sa montiranim objektivom Nikkor Lens 50 mm f/1.4D (desno).

Kamera ima ugrađen pojačavač svetlosti (*engl. image intensifier*) koji može višestruko pojačati intenzitet upadnog svetla, sa vrlo kratkim vremenom odziva (< 2 ns). Pored pojačavača svetlosti, kamera sadrži i digitalni generator kašnjenja (*engl. Digital Delay Generator – DDG*) impulsnog signala koji pruža mogućnost sinhronizacije snimanja kamere sa osciloskopom i električnim kolom za pobudu pražnjenja.

U eksperimentu je za snimanje korišćen fotografski objektiv Nikkor 50 mm (Nikkor Lens 50 mm f/1.4D) sa staklenom optikom, tako da nije bilo moguće snimati emisiju zračenja čije su talasne dužine manje od 400 nm.

Veza sa računarom je ostvarena preko odgovarajuće kontrolerske kartice, a uz pomoć softvera *ANDOR SOLIS* omogućeno je upravljanje načinom snimanja, podešavanje vremenskih parametara snimanja i dalja obrada dobijenih podataka. Dobijeni podaci se dalje obrađuju pomoću posebno napisane skripte u programskom paketu *MATLAB* i zatim, kao *ASCII* fajlovi, eksportuju u programski paket *ORIGIN* radi dalje obrade.

Spektrograf (slika 2.6, oznaka 6) – Oriel MS127iTM 1/8 m (slika 2.8) – je korišćen za snimanje emisijonih spektara ispitivanih pražnjenja. Spektrograf ima ugrađenu blendu (*engl. shutter*) koja je smeštena iza upadnog otvora – slita, koja sprečava ulazak svetlosti u MS127i. Minimalno vreme otvaranja blende je 0.2 s i radi na brzinama do 0.5 Hz. Difrakciona rešetka koja se nalazi u spektrografu ima sledeće karakteristike: broj proreza po jedinici dužine (*engl. line density*) 1200 l/mm, spektralnu rezoluciju 0.22 nm, primarni opseg talasnih dužina (opseg talasnih dužina gde je efikasnost difrakcione rešetke 20%) od 200 do 1200 nm i gornju graničnu talasnu dužinu od 1200 nm.



Slika 2.8 Spektrograf Oriel MS127iTM 1/8 m (levo) spektrograf montiran na ICCD kameru, postavka u eksperimentu (desno).

Tehničke karakteristike spektrografa MS127iTM 1/8 m su:

- ulazna žižna daljina – 127 mm
- izlazna žižna daljina – 138.5 mm
- F/# instrumenta (ovaj broj predstavlja efikasnost skupljanja svetla optičke komponente) – F/3.7

- opseg talasnih dužina koji može da se detektuje i snimi u zavisnosti od izabrane difrakcione rešetke – od 180 nm do 25 μm
- rezolucija – 0.22 nm
- tačnost skale talasnih dužina – 1 nm
- reproducibilnost skale talasnih dužina (reproducibilnost kalibracije talasne dužine celog sistema, spektrograf plus detektor) – 0.1 nm

2.2 PRIPREMA I NAČIN MERENJA

Kada govorimo o proučavanju proboja i neravnotežnih pražnjenja od interesa za ovaj rad, treba imati na umu da je u standardnim, centimetarskim geometrijama neophodno da radni pritisak bude reda veličine 1 Torr (zato što je optimalno pd za pražnjenje $pd = 1$ Torr cm i njemu odgovara najniži probojni napon). Dakle, neophodno je vakuumski sistem osmisлити tako da obezbedi zaštitu vakuumske pumpe od koncentracije pare veće od deklarisanе i da istovremeno onemogući nagomilavanje nečistoća u sistemu u toku rada. Pokazalo se da se ovi uslovi mogu obezbediti radom u vrlo sporom protočnom režimu. Para se u eksperimentu dobija isparavanjem uzorka tečnosti iz epruvete, koja je posebno adaptirana tako da se može povezati sa vakuumskim sistemom preko ventila, koji opet omogućavaju da se u komori regulišu protok i pritisak. Da bi se obezbedio konstantan pritisak tokom rada, pre početka svakog merenja, neophodno je površine unutar sistema saturisati parom. Osnovni elementi tehnike korišćene u merenjima u okviru ovog rada biće opisani u ovom poglavlju.

2.2.1 PRIPREMA UZORKA TEČNOSTI I DOBIJANJE PARE

U eksperimentu su pare dobijene isparavanjem tečnih uzoraka bi-distilovane dejonizovane vode, metanola čistoće 99.8%, etanola čistoće 95%, izopropanola (2 – propanola) čistoće 99.5% i n – butanola čistoće 99.5%. Tečni uzorak se nalazi u epruveti koja je povezana na vakuumski sistem preko igličastog ventila, koji služi za kontrolu pritiska i protoka pare u komori (slika 2.9).



Slika 2.9 Epruveta sa uzorkom i ventil za kontrolu pritiska - levo, epruveta i traka za odgrevanje sistema – desno.

Pri radu sa tečnostima potrebno je obezbediti da dobijena para bude odgovarajuće čistoće. Prisustvo nečistoća može biti kritično u dva slučaja: prvo, proboj u atomskim gasovima je osetljiv na prisustvo molekulskih nečistoća zbog značajnih vibracionih gubitaka energije koje unose molekularni gasovi i drugo, vezivanje elektrona za nečistoće može značajno uticati na pražnjenje u gasovima koji nisu podložni procesu elektronskog zahvata (engl. *attachment*). U tom pogledu prisustvo rastvorenog kiseonika u tečnosti, i kasnije u pari bi predstavljalo najvažniju nečistoću.

Jedan od najzastupljenijih načina odstranjivanja nečistoća iz uzorka koji se može sresti u literaturi, jeste procedura koja se zasniva na zamrzavanju uzorka i uklanjanju zaostalih gasova i njegovom laganom otapanju (engl. *Pump-Freeze-Thaw procedure*) (Lavin i Stewart, 1929; Hackam, 1971; Petrović, 1986). Ovaj ciklus se ponavlja veći broj puta kako bi se obezbedilo oslobađanje nečistoća koje prelaze u tečno ili čvrsto stanje na temperaturama ispod tačke zamrzavanja tečnosti koja se izučava. Ovaj postupak je u neku ruku sličan frakcionoj destilaciji. Zamrzavanje se može postići na dva načina bilo primenom tečnog azota bilo naglim pumpanjem komore u kojoj je tečnost gde se zbog naglog isparavanja tečnost dramatično ohladi. Međutim, u našem slučaju nije bilo moguće primeniti ovu proceduru što zbog korišćene aparature i gumenih prstenova koji sprečavaju ucuring vazduha u sistem, to i zbog održavanja konstantnog protoka gasa u sistemu.

U našem eksperimentu smo koristili proceduru koja je prethodno bila predstavljena u disertaciji dr Škora (2012). Naime, nakon otvaranja igličastog ventila između epruvete sa uzorkom i ostatka sistema, dolazi do ključanja tečnosti usled razlike pritiska gasova rastvorenih u uzorku i pritiska ostatka sistema, koji je na 10^{-6} Torr. Ključanjem se iz uzorka odstranjuju isparljive rastvorene supstance koje su u njemu prisutne. Kada ključanje prestane, uzorak se ostavlja još par sati na niskom pritisku i malom protoku, kako bi se uklonile sve isparljive materije. Ventilima se održava mali protok pare u sistemu, kako bi pritisak pare u vakuumskim pumpama bio ispod deklarisanе granice za uređaj.

Para se zatim upušta u komoru pod višim pritiskom (ali ispod vrednosti pritiska pare²³ (engl. *vapour pressure*) za ispitivani uzorak) i sistem se zatvara na 60 – 90 min. Ovako dolazi do saturacije (zasićenja) površine elektroda i zidova komore parom, što omogućava da radni pritisak bude stabilan tokom merenja. Sama merenja se obavljaju sa protokom gasa.

Po pitanju sastava, korišćene tečnosti u eksperimentalnim merenjima su komercijalnog tipa i zadovoljavaju propisane standarde, dok je samo bi–destilovana dejonizovana voda dobijena u Institutu za fiziku. Što se tiče čistoće uzoraka tečnosti moramo napomenuti sledeće. Procedura prečišćavanja je, u eksperimentima sličnim ovom, razvijena za potrebe eksperimenta sa rojem na nultom polju (Petrović, 1986; Petrović, 1985) u uslovima gde ne postoji zahvat u osnovnom gasu (vodena para u ovom slučaju) i gde bi i najmanja količina kiseonika pokvarila pouzdanost merenja za vodu. Mi u ovom radu izučavamo proboj, dakle rojeve elektrona (i jona) u uslovima u kojima je jonizacioni koeficijent nadjačao koeficijent za zahvat osnovnog gasa (koji bar u slučaju vode postoji na višim energijama od termalne) pa samim tim i svih nečistoća. U merenjima sa vodom (Škoro *et al.*, 2011; Škoro, 2012) nisu primećene razlike u rezultatima između uzoraka vode dobijenih prečišćavanjem destilovane i dejonizovane vode, dobijenih iz standardne destilovane vode i dobijenih iz gradskog vodovoda bez daljeg prečišćavanja i frakcione destilacije. To je zato što u ovim uslovima dominira jonizacija osnovnog gasa i količina nečistoća mora da bude značajna i sa dramatično drugačijim osobinama da bi uticala na rezultate. U slučaju alkohola, koji su predmet analize ovog rada, ne postoji nijedan razlog da se posumnja na opasnost od nečistoća, ali mi smo i dalje primenjivali proceduru frakcione destilacije da bismo obezbedili što čistiji uzorak po svim parametrima.

2.2.2 PRIPREMA POVRŠINE ELEKTRODA

Rad sa parama alkohola je nametnuo potrebu za redovnijim kontrolama radnih uslova i stanja na površini elektroda i otvaranjem komore, zbog formiranja i adsorpcije ugljovodoničnih nečistoća u sistemu. Svako odstupanje od kontrolnih uslova zahteva otvaranje sistema, detaljno

²³ Pritisak pare predstavlja pritisak na kome je para posmatrane supstance u tremodinamičkoj ravnoteži sa svojim kondenzovanim stanjem. Na pritiscima višim od pritiska pare dolazi do kondenzacije.

čišćenje i poliranje elektroda, a zatim i proveru uslova. Osnovni parametar za kontrolu je probojni napon, jer implicitno sadrži efekat promene sastava gasa kroz jonizacioni koeficijent, kao i efekat promene uslova na površini katode kroz koeficijent sekundarne emisije elektrona (Phelps i Petrović, 1999).

Ključni problem u eksperimentalnim proučavanjima proboja i pražnjenja u jednosmernim električnim poljima je činjenica da je sekundarna emisija elektrona sa katode osnovni mehanizam u produkciji novih elektrona potrebnih za samostalno pražnjenje. Zavisnost koeficijenta sekundarne emisije od uslova na površini katode je često značajnija od samog materijala katode. Ovi uslovi se razlikuju od eksperimenta do eksperimenta, a i u toku samog rada se mogu menjati zbog bombardovanja jonima i brzim neutralima, kao i zbog povećanja temperature katode i gasa pri jačim strujama. Stoga je posebna pažnja posvećena pripremi elektroda. Pre svakog merenja, elektrode se tretiraju pražnjenjem u vodoniku – proces skidanja oksidnog i adsorbovanog sloja nečistoća sa površine katode, čime se dobija elektroda sa stabilnim i nepromenljivim uslovima na površini. Tretiranje površine katode pražnjenjem u vodoniku traje oko 30 min na struji od 30 μA . Zbog svoje male mase vodonik vrlo malo raspršuje materijal same katode, a istovremeno je jako efikasan u hemijskom uklanjanju oksidnih slojeva sa površine. Tokom tretiranja elektrode prati se promena struje i napona, a proces se prekida kada dalje tretiranje ne dovodi do promene probojnog napona. Takođe je ustanovljeno da se posle ovakvog tretmana dobijene vrednosti probojnog napona i drugih parametara slažu i kada su merenja izvršena posle većih perioda pauze i kada su u prethodnom periodu korišćeni gasovi različitih osobina.

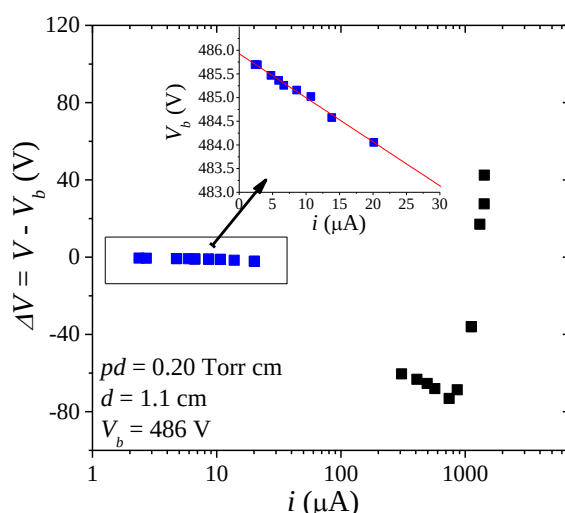
Efekti promene osobina (kondicioniranja) površine katode u toku rada, značajno su smanjeni održavanjem pražnjenja na slabim strujama, dok se za opseg jakih struja, gde efekat zagrevanja ima značajnu ulogu, koristi superponiranje kratkotrajnih (do 5 ms) visokonaponskih impulsa.

2.2.3 MERENJE PROBOJNOG NAPONA PRAŽNJENJA

Iako se proboj u gasovima proučava već više od 100 godina, i iako su eksperimentalne tehnike značajno napredovale, još uvek se u literaturi mogu naći brojne nesuglasice u rezultatima i metodama merenja. U Laboratoriji za gasnu elektroniku, Instituta za fiziku razvijena je merna aparatura kao i sam postupak merenja probojnih napona – Pašenovih kriva (engl. *Paschen curves*), koji obezbeđuju pouzdane i reproducibilne rezultate. Pri tom je za snimanje Pašenove krive omogućeno da pražnjenje radi stabilno levo i desno od minimuma, bez pojave proboja gasa prema metalnim delovima kućišta. Sistematske greške merenja su svedene na najmanju moguću meru.

Tradicionalno, u praksi se najčešće koristi najmanje sofisticirana metoda merenja probojnih napona beleženjem vrednosti napona neposredno pre naglog povećanja struje (Lisovski, 2015). Međutim, pokazalo se da ta vrednost može biti dosta veća od probojnog napona (engl. *overvoltage*), zato što je moguće da inicijalni elektroni ne nastaju dovoljnom frekvencijom (mada se dodavanjem radioaktivnog izvora statistička komponenta proboja usled nastanka inicijalnog elektrona može izbeći). Tako se može otići iznad probojnog napona čekajući da se konstatuje proboj koji nije nastao, jer nije bilo početnog slobodnog naelektrisanja. Metoda merenja korišćena u ovom radu je bazirana na određivanju napona pražnjenja u limitu malih struja (Jelenković., Rózsa i Phelps, 1993; Petrović i Phelps, 1993; Stefanović, 1998; Marić, Malović i Petrović, 2009; Marić *et al.*, 2012), odnosno na ekstrapolaciji strujno – naponske karakteristike pražnjenja do nulte struje. Iako ova metoda daje daleko pouzdanije rezultate, ona je i donekle ograničena zato što zahteva stabilan rad pražnjenja u Taunzendovom režimu. Na slici 2.10 je prikazana strujno–naponska karakteristika, a na ubačenom grafiku je data uveličana slabostrujna oblast pražnjenja (limit malih struja) radi ilustracije određivanja probojnog napona. Treba voditi računa i dobiti linearnu ekstrapolaciju sa jako malim promenama napona od tačke sa najnižom strujom do granice sa nultom strujom. Obično

se za ograničenje oblasti ekstrapolacije uzimaju struje ispod $10 \mu\text{A}$. Struja pražnjenja se određuje merenjem pada napona na otporniku R_m (električno kolo je dato na slici 2.12 u odeljku 2.2.4).



Slika 2.10 Ilustracija određivanja probojnog napona (data na ubačenom grafiku) na primeru strujno-naponske karakteristike pražneinija u pari etanola za $p_d = 0.20$ Torr cm na $d = 1.1$ cm (Sivoš et al., 2019).

U principu najbolja i najpreciznija tehnika za određivanje probojnog napona je praćenje porasta struje ispod praga za proboj (u nesamostalnom pražnjenju) (Crompton, Dutton i Haydon, 1955). U svom inicijalnom delu kriva porasta struje prati porast određen koeficijentom jonizacije (koji se tako može meriti) ali potom počne da raste brže od eksponencijalne krive usled efekta sekundarne emisije (koja se tako može određivati i analizirati). Ovom tehnikom su na primer, identifikovani efekti usled metastabila na proboj u azotu. Međutim, kako ova tehnika ne dopire do samostalnog pražnjenja njome ne dobijamo informacije koje se mogu dobiti iz strujno-naponske karakteristike (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993; Petrović i Phelps, 1993; Stefanović i Petrović, 1997; Živanov *et al.*, 2000; Nikolić *et al.*, 2003; Marić *et al.*, 2008) pa mi preferiramo tehniku sa ekstrapolacijom struje u Taunzendovom režimu. Pored toga naša tehnika ima prednost jer je relevantnija za stanje katode i njene efekte u samostalnim pažnjenjima.

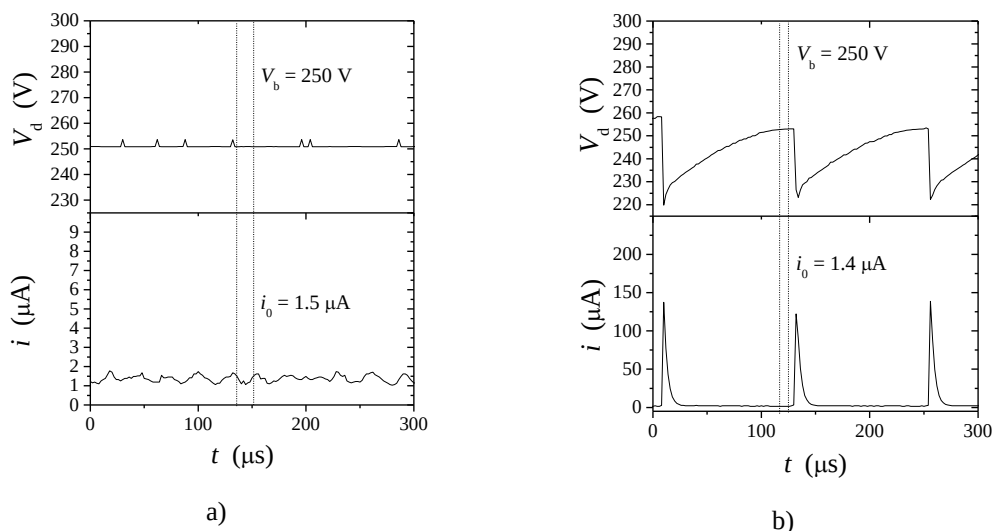
U merenju strujno-naponskih karakteristika dolazi do pojave oscilacija. Mnogi istraživači to nisu ni priemtili, jer su snimali sa uređajima za merenje struje i napona, a bez osciloskopa. Takva pojava čini sva snimanja gde nije praćeno da li je bilo oscilacija netačnim. Međutim, ukoliko se indukovane i samostalne oscilacije prate, iz oscilacija se mogu dobiti brojni značajni podaci o razvoju gasnih pražnjenja (Marić, Malović i Petrović, 2007; Marić, Malović i Petrović, 2009). Pojava oscilacija u slabostrujnim neravnotežnim pražnjenjima je detaljno proučavana u radovima Felpsa i saradnika (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993; Petrović i Phelps, 1993; Jelenković, Rózsa i Phelps, 1993), kao i naše laboratorije (Stefanović, 1998; Petrović *et al.*, 1997, Živanov *et al.*, 2000; Marić, Malović i Petrović, 2007; Stefanović *et al.*, 2010; Stefanović *et al.*, 2011). Poznato je da pojava i režim oscilovanja zavise od vrste gasa, materijala od kog je načinjena katoda, pritiska, dimenzija pražnjenja, negativne diferencijalne otpornosti, elemenata električnog kola. Prema fizičkom i fenomenološkom modelu koji su razvili Felps i saradnici, što je i eksperimentalno potvrđeno, promenom elemenata električnog kola moguće je suzbiti ili ograničiti oscilacije kroz povećanje faktora prigušenja (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993; Petrović i Phelps, 1993) u najmanjoj strujnoj petlji koja sadrži komoru za pražnjenje.

U slučaju pražnjenja u parama tečnosti često nije bilo moguće prigušenje oscilacija promenom parametara kola, u granicama koje obezbeđuju pouzdane rezultate merenja. Stoga je primenjena metoda određivanja probojnog napona u režimu relaksacionih oscilacija (Marić, 2006; Marić *et al.*, 2009). Ukoliko su relaksacione oscilacije takve da u toku jednog perioda oscilovanja, struja kratkotrajno prolazi kroz jakostrujni režim i brzo se vraća u slabostrujni Taunzendov režim rada,

2. Eksperiment

probojni napon se može proceniti iz dela perioda koji odgovara najnižim vrednostima struje (slika 2.11 b). Ovaj način procene probojnog napona je analogan metodi ekstrapolacije strujno – naponske karakteristike u stacionarnom režimu. Korišćenjem dovoljno velike serijske otpornosti u električnom kolu, moguće je ostvariti pražnjenje u odgovarajućem režimu relaksacionih oscilacija.

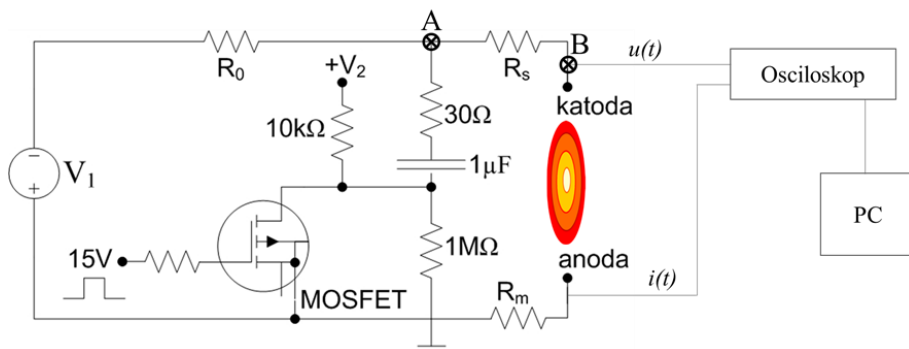
Reproducibilnost i pouzdanost ove tehnike za određivanje probojnog napona iz relaksacionih oscilacija testirana je u uslovima u kojima je bilo moguće promenom elemenata električnog kola dobiti proboj i u stacionarnim uslovima i u oscilacijama, za slične parametre pražnjenja (slika 2.11) (Škoro, 2012).



Slika 2.11 Signali struje i napona pražnjenja snimljeni za istu vrednost parametra p_d sa različitim serijskim otpornicima u električnom kolu, za: a) Stabilni režim pražnjenja i b) režim relaksacionih oscilacija. (Škoro, 2012).

2.2.4 MERENJE NAPONSKIH I STRUJNIH SIGNALA

Poznavanje strujno – naponske (V-A) karakteristike predstavlja prvi korak u razumevanju procesa koji se javljaju u pražnjenju. Električno kolo u eksperimentu omogućava paljenje pražnjenja u slabostrujnom DC režimu korišćenjem dovoljno velike otpornosti (R_0) (slika 2.12). Rad na višim strujama omogućen je impulsnim kolom tj. primenom naponskog impulsa koji je superponiran na već uključeno pražnjenje koje stabilno radi (na niskoj struji od 1 μA do nekoliko μA).

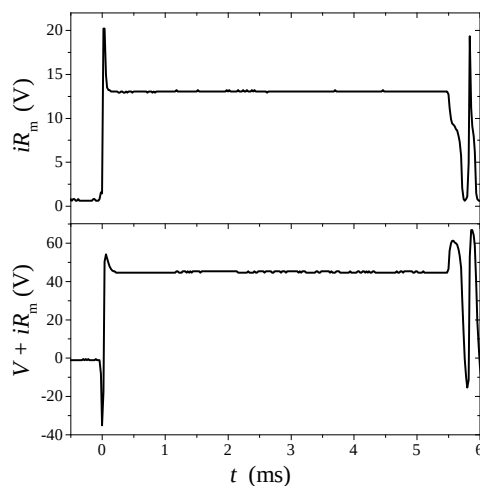


Slika 2.12 Šema električnog kola za napajanje i impulsnu pobudu sa sistemom za merenje vremenskih signala napona i struje.

Prekidačko kolo se dovođenjem pravougaonog impulsa od 15 V na MOSFET tranzistor prevodi u provodni režim rada (Jelenković. *et al.*, 1993; Petrović i Phelps, 1997; Marić *et al.*, 2002 Marić *et al.*, 2003) čime se kondenzator $C = 1$ μF priključen na drugi visokonaponski napajatelj V_2 , spaja sa

nultim potencijalom (uzemljenjem). Tako se u tački A (slika 2.12) proizvodi pravougaoni negativni naponski impuls, čime dolazi do povećanja amplitude ukupnog napona koji se dovodi na katodu (slika 2.13).

Napon koji se meri pomoću visokonaponske sonde kao razlika potencijala između tačke B i uzemljenja (slika 2.12), jednak je zbiru napona pražnjenja (V) i pada napona na otporniku R_m . Vrednost struje pražnjenja (i) se određuje posredno, merenjem pada napona na otporniku R_m . Tokom merenja najčešće se otpornost R_m bira tako da je pad napona iR_m zanemarljiv u odnosu na napon koji se meri u tački B, kako bi se izbeglo unošenje dodatnih grešaka zbog oduzimanja dva velika broja. Ukoliko to nije slučaj, u toku obrade podataka se vrši korekcija.



Slika 2.13 Izgled naponskog (dole) i strujnog (gore) signala na osciloskopu u pražnjenju u vodenoj pari nakon primene naponskog impulsa (početak impulsa je u $t = 0$ ms; dužina trajanja = 5.5 ms). Sa $V + iR_m$ je obeležen napon koji je izmeren visokonaponskom sondom između tačke B i uzemljenja.

Opseg vrednosti struja u impulsu određen je izborom otpornika R_s preko koga je prekidački deo kola povezan sa katodom, a u okviru svakog opsega se podešava promenom napona V_2 . Za dostizanje jačih struja pražnjenja koriste se serijski otpornici manje otpornosti. U tom slučaju treba voditi računa da vremenska konstanta kondenzatora C bude dovoljno velika da napon u generisanom impulsu ostane konstantan (da se izbegne značajno pražnjenje kondenzatora tokom trajanja impulsa). Ukoliko to nije slučaj, potrebno je ili koristiti kondenzator veće kapacitivnosti C ili skratiti trajanje impulsa.

VREMENSKI RAZLOŽENA MERENJA

Prelazni režim rada kola za električnu pobudu pražnjenja

Nakon primene visokonaponskog impulsa javlja se prelazni odziv električnog kola usled postojanja parazitivne kapacitivnosti u kolu (kapacitivnost osnovnog voda prema komori za pražnjenje, sonde za merenje napona, osciloskopu, otporniku i vezama između pojedinih komponenata). Od ove kapacitivnosti zavisi oblik naponskog impulsa koji se dovodi na elektrode, a takođe ona je delom uzrok postojanja struje pomeraja, jer i da nema parazitivne kapacitivnosti bilo bi struje pomeraja usled same kapacitivnosti komore. U našem eksperimentu, parazitivna kapacitivnost kola C_p se određuje na osnovu strujnih i naponskih impulsa izmerenih kada je komora za pražnjenje pod vakuumom, odnosno kada je izmerena struja jednaka struji pomeraja. Odsustvom radnog gasa, eliminiše se mogućnost formiranja pražnjenja tokom impulsa, kao i mogućnost promena dielektrične konstante u komori zbog mogućih varijacija u pritisku gasa. Postupak određivanja parazitivne kapacitivnosti detaljnije je opisan u doktorskim disertacijama dr Ilije Stefanovića (1998) i dr Dragane Marić (2006).

Struja koju merimo u eksperimentu jednaka je zbiru struje pražnjenja (struja provođenja) i struje pomeraja. Kako struja pomeraja (i_{pom}) nije realna struja, već je posledica vremenske promene napona u kolu koje sadrži kapacitivnost, snimljeni strujni signali se koriguju prilikom obrade eksperimentalnih rezultata.

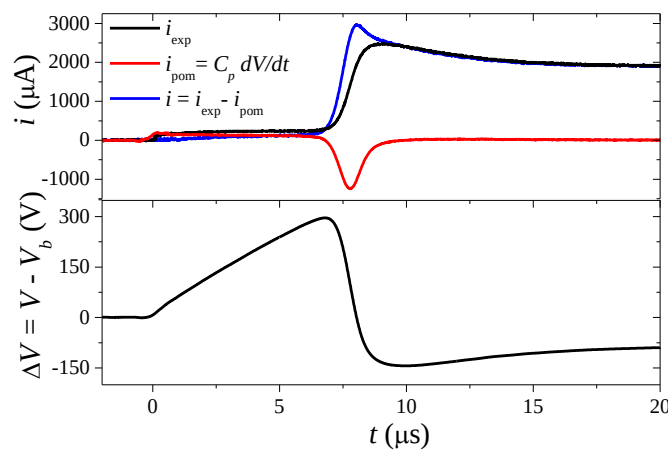
Struja pomeraja i_{pom} se dobija diferenciranjem naponskog signala u vremenu i množenjem sa prethodno određenom parazitnom kapacitivnošću C_p :

$$i_{pom} = C_p \frac{dV}{dt}, \quad (2.1)$$

dok se struja pražnjenja i zatim dobija kao:

$$i = i_{exp} - i_{pom}, \quad (2.2)$$

gde i_{exp} predstavlja struju izmerenu pomoću sonde.



Slika 2.14 Korekcija strujnog signala za vremenski razvoj abnormalnog pražnjenja u vodenoj pari. Signali gore: (crna linija) – struja izmerena u eksperimentu (i_{exp}), (crvena linija) – struja pomeraja (i_{pom}) i (plava linija) – struja pražnjenja (i); signal dole: napon u pražnjenju nakon dovođenja impulsa.

Slika 2.14 ilustruje postupak korigovanja strujnog signala i pokazuje razliku između izmerenog strujnog signala i korigovane struje pražnjenja. Korekcija signala je važna za dalju analizu rezultata vremenski razloženih merenja.

2.2.5 SNIMANJE PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA

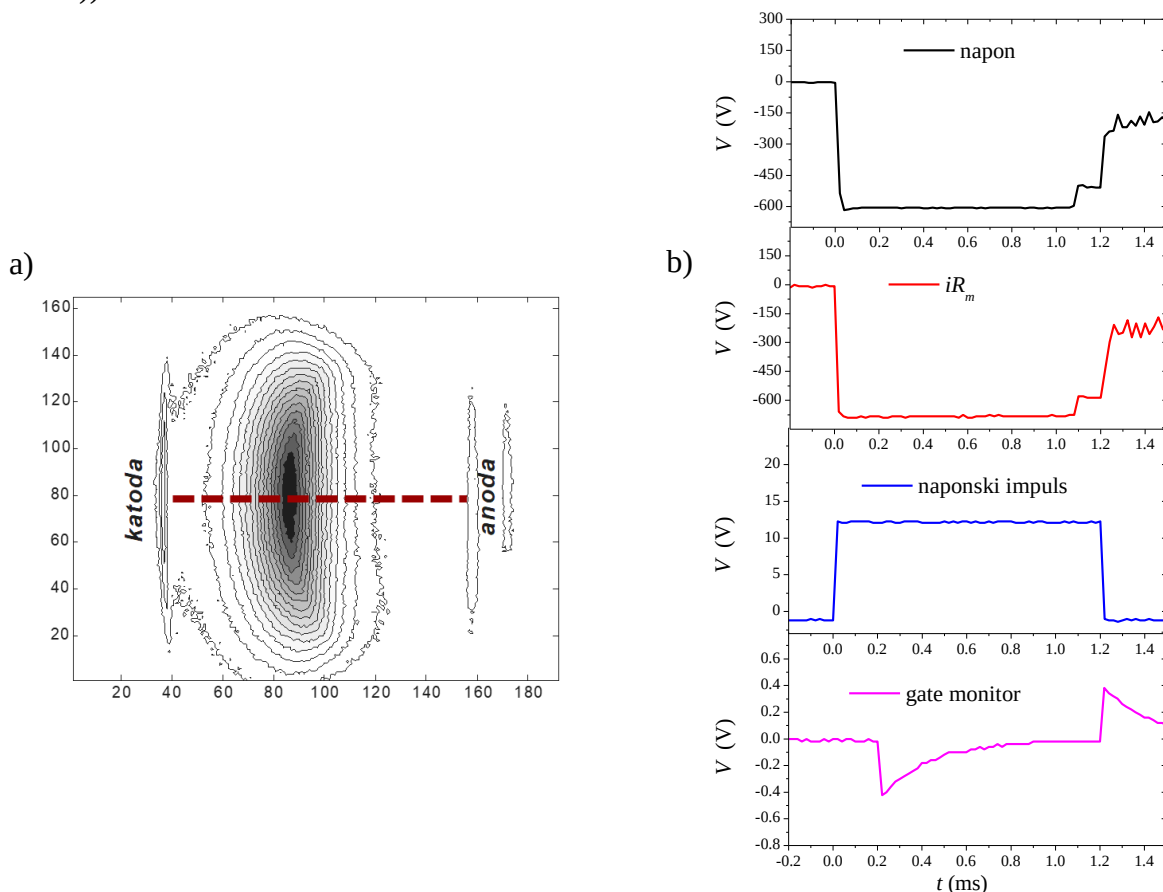
Snimanja prostornih raspodela emisije svetlosti iz pražnjenja urađena su korišćenjem ICCD kamere sa fotografskim objektivom. Na taj način snimanjem je obuhvaćen celokupan prostor između elektroda i dobijena je ukupna prostorna raspodela intenziteta zračenja iz pražnjenja. Za snimanje je korišćen Nikonov fotografski objektiv Nikkor 50 mm (Nikkor Lens 50 mm f/1.4D). Otvor blende je bio maksimalan čime je omogućen prolazak veće količine svetla kroz objektiv, ali to za posledicu daje užu dubinu polja (malu dubinsku oštrinu), a samim tim i manju integraciju emisije zračenja duž pravca snimanja profila. Dodatno, prilikom podešavanja objektiva za tačku izoštravanja (fokusiranja) je izabran položaj predmeta koji se nalazi približno na osi komore, i taj položaj je uvek bio isti.

Tokom snimanja emitovane svetlosti slabog intenziteta javlja se tzv. „struja mraka” – signal koji se registruje i kada je blenda na kameri potpuno zatvorena. Iako je pomoću sistema za hlađenje (Peltierov hladnjak) CCD senzora kamere „struja mraka” svedena na vrlo nizak nivo, ona je u toku

2. Eksperiment

svakog merenja snimana i u softveru za kameru oduzimana od snimljenih raspodela intenziteta emisije čime je omogućeno dobijanje realne slike pražnjenja.

Iz snimljenih slika pražnjenja moguće je dobiti aksijalne raspodele intenziteta zračenja (duž ose komore) (Marić, 2002). Slika pražnjenja se na računaru snima kao numerički podatak u obliku matrice dimenzija 1024 x 256, što omogućava dalju obradu podataka korišćenjem odgovarajućih skripti u *MATLAB* programskom paketu. Na slici 2.15 je data konturna slika pražnjenja koja se dobija bočnim snimanjem tj. snimanjem normalno na osu komore za pražnjenje. Ova slika, u stvari predstavlja matricu intenziteta zračenja, gde svakom elementu matrice odgovara jedan element slike – piksel (engl. *pixel*). Aksijalna raspodela intenziteta zračenja se dobija izdvajanjem vektora intenziteta duž pravca ose komore za pražnjenje (ilustrovano crvenom isprekidanom linijom na slici 2.15a)).



Slika 2.15 a) Ilustracija načina određivanja aksijalnih profila emisije iz snimaka kamerom sa strane (normalno na osu komore za pražnjenje) (Marić, 2002) i b) izgled signala na osciloskopu: crna linija – mereni napon, crvena linija – struja pražnjenja, plava linija – naponski impuls koji prevodi MOSFET tranzistor u provodno stanje i magenta linija – gate monitor koji prati odgovor fotokatode, odnosno omogućava praćenje početka (negativan pik) i kraja (pozitivan pik) gate impulsa u vremenu. Prikazani gate monitor signal pokazuje da je trajanje Gate Pulse Width = 1ms, odnosno da je ICCD senzor snimao optički signal tokom 1 ms, a Gate Pulse Delay = 200 μ s govori da je snimanje počelo 200 μ s nakon početka impulsnog signala na MOSFET-u (TTL signala).

Tokom rada sa pražnjenjima u parama na niskim pritiscima često se dešava da je intenzitet svetlosti iz pražnjenja jako slab, što postaje veliki problem kada su vremena ekspozicije snimanja kratka. ICCD kamera ima mogućnost višestrukog pojačanja intenziteta merenog signala, koje se može regulisati pomoću softvera za kameru. Međutim, u pojedinim slučajevima čak ni ovo nije bilo dovoljno za dobijanje dovoljno jasne slike, pa je korišćena tehnika snimanja u akumulativnom modu (engl. *accumulation mode*), kako bi se usrednjavanjem signala popravio odnos signala i šuma.

Navedena tehnika merenja omogućila je posmatranje razvoja proboja i formiranja pražnjenja u vremenu.

Vremenski razvoj strukture pražnjenja prati se snimanjem emisije iz pražnjenja sa izuzetno kratkim vremenskim prozorom (ekspozicijom) kamere i to sukcesivno (uzastopno) u vremenu, od proboja do trenutka uspostavljanja kvazistacionarnog režima ili oscilacija. Snimanje emitovane svetlosti iz pražnjenja je sinhronizovano sa razvojem pražnjenja i merenjem struje i napona. Naime, start signal (TTL signal) se generiše unutar kamere i šalje na ulaz generatora impulsa. Sa generatora impulsa se signal istovremeno šalje na MOSFET tranzistor u kolu i na osciloskop. Generator kašnjenja (engl. *Digital Delay Generator – DDG*) ugrađen u kameru, omogućava da se početak i trajanje snimanja kamerom nezavisno definišu u odnosu na start signal. Drugim rečima, generator impulsa definiše paljenje i trajanje pražnjenja, dok generator kašnjenja definiše početak i trajanje snimanja (slika 2.15b)), uz sinhronizaciju pomoću start signala. Takođe da bi sinhronizacija bila što preciznija, potrebno je testirati komponente kola koje mogu uneti dodatno vremensko kašnjenje (kablovi, MOSFET tranzistor, otpornici, elektronika ugrađena u samu kameru, sonde). Ispostavilo se da u našem eksperimentu najveće kašnjenje unosi MOSFET (~ 100 ns). U našim merenjima je sve gore navedeno uzeto u obzir kako bi dobili dobru sinhronizaciju detekcionog sistema (kamere) sa posmatranim događajem u pražnjenju. Ove korekcije postaju izuzetno važne u slučajevima kada je definisani vremenski interval za snimanje uporediv sa vremenskim kašnjenjem samih komponenti kola.

SPEKTRALNO RAZLOŽENA SNIMANJA EMISIJE

Tokom rada na ovoj disertaciji osnovni eksperiment je prilagođen i proširen spektralno razloženim merenjima ispitivanih pražnjenja, u cilju detaljnije analize elementarnih procesa koji definišu osobine pražnjenja u parama tečnosti. U okviru ovih merenja snimljeni su optički emisioni spektri na osnovu kojih su identifikovani intervali talasnih dužina sa dominantnom emisijom. Ovako snimljeni spektri su poslužili za izbor odgovarajućih optičkih filtera, koji su korišćeni za spektralno razložena snimanja prostorne raspodele emisije iz pražnjenja. Dakle, treba naglasiti da nam cilj nije bio snimanje detaljnih emisionih spektara, već više uvid u oblasti sa dominantnom emisijom za šta su poslužili i ovako „grubi” emisioni spektri. Za spektralna merenja korišćen je sistem spektrograf (Oriel MS127i™ 1/8 m) – ICCD kamera (Andor, tip iStar DH720-18U-03) kojim su snimljeni optički emisioni spektri ispitivanih pražnjenja.

Detekcioni sistem spektrograf–ICCD kamera je pre merenja kalibrisan u opsegu od 264 – 965 nm korišćenjem standardne lampe Osram Wf WI 41/G sa temperaturom boje (engl. *Color temperature*²⁴) $T_c = 2856$ K. Treba naglasiti da urađena apsolutna kalibracija sistema. Na slici 2.16 prikazana je idealna Plankova kriva (spektralna radijansa²⁵ (engl. *spectral radiance*) površine apsolutno crnog tela po jedinici talasne dužine) $B_\lambda(\lambda)$ koja odgovara temperaturi boje od 2850 K korišćene standardne lampe. Ova kriva je dobijena na osnovu Plankovog zakona, korišćenjem formule:

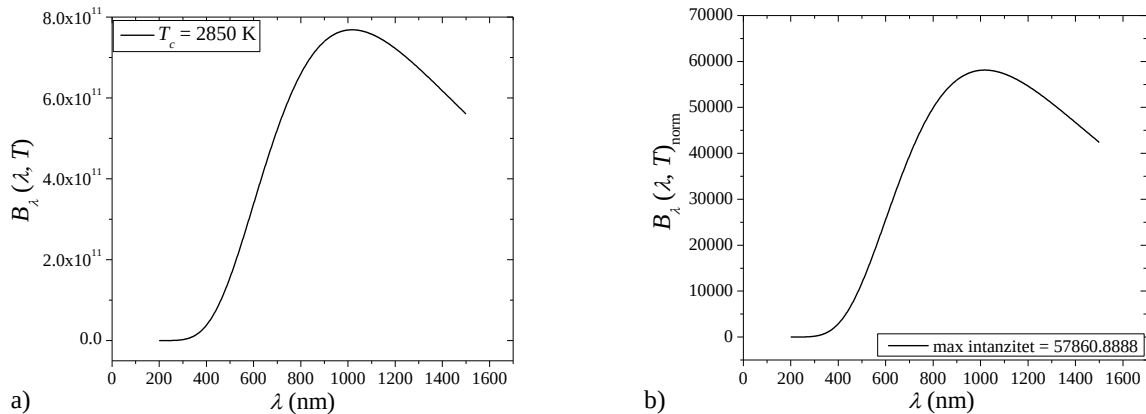
$$B(\lambda, T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda k_B T}\right) - 1}, \quad (2.3)$$

²⁴ Color temperature – temperatura boje svetlosnog izvora je temperatura idealnog crnog tela koje zrači svetlost uporedive boje sa bojom svetlosti posmatranog izvora.

²⁵ Radijansa ili sjajnost izvora zračenja L definiše se kao fluks zračenja po jedinici površine i po jediničnom prostornom uglu i izražava se u jedinicama $Wm^{-2}sr^{-1}$. Spektralna radijansa L_λ predstavlja radijansu površine po jediničnoj talasnoj dužini, ako je spektar dat u zavisnosti od talasne dužine, a jedinica je $Wsr^{-1}m^{-3}$ ili $Wsr^{-1}m^{-2}nm^{-1}$.

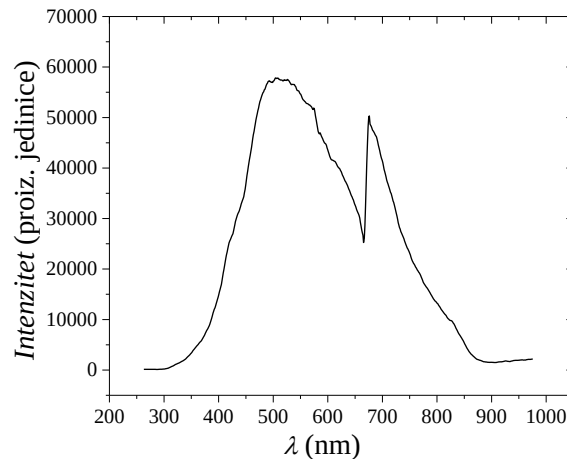
2. Eksperiment

gde je h – Plankova konstanta (6.626×10^{-34} J s), c je brzina svetlosti (2.9979246×10^8 m s⁻¹), k je Boltzmanova konstanta (1.3806×10^{-23} J K⁻¹), T je apsolutna temperatura (K) i λ je talasna dužina. Tako dobijena kriva je normirana na maksimalni intenzitet odziva spektrografa (slika 2.17).



Slika 2.16 Spektralna radijansa (sjajnost izvora) B_λ : a) apsolutno crnog tela koja odgovara temperaturi boje korišćene standardne lampe Osram WI 41/G (karakteristika lampe) i b) normirana na maksimalni intenzitet.

Slika 2.17 daje izgled spektra standardne lampe dobijenog korišćenjem našeg detekcionog sistema.



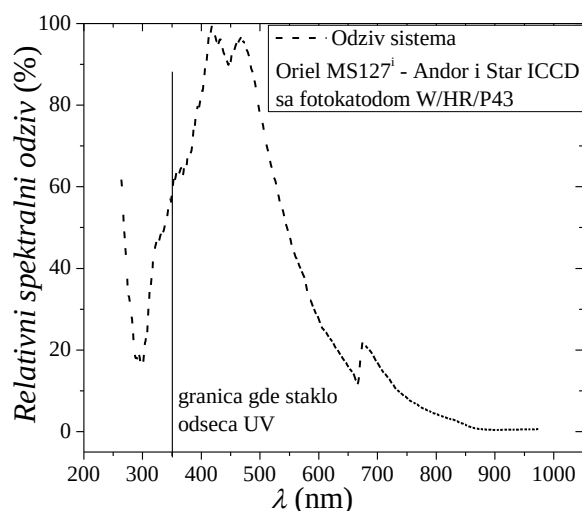
Slika 2.17 Spektar standardne lampe Osram WI 41/G snimljen korišćenjem sistema spektrograf Oriel MS127i™ 1/8 m – ICCD kamera Andor, tip iStar DH720-18U-03.

Kada imamo snimljeni spektar lampe, kao i odgovarajuću Plankovu krivu za istu temperaturu boje $T_c = 2850$ K, možemo da izračunamo funkciju spektralnog odziva (engl. *spectral response function*) $F(\lambda)$ našeg sistema:

$$F(\lambda) = \frac{R(\lambda)}{I(\lambda)}, \quad (2.4)$$

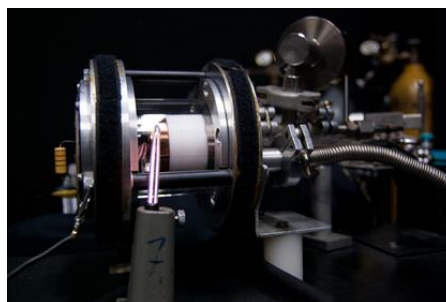
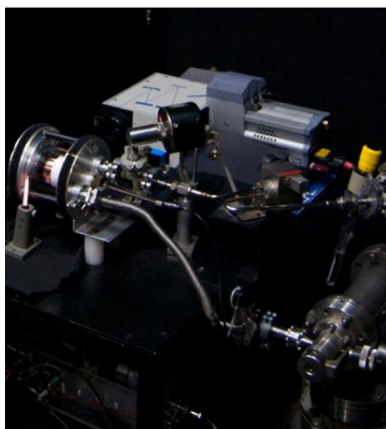
gde su $R(\lambda)$ i $I(\lambda)$ izmereni odziv spektrografa i spektralna iradijansa²⁶ (engl. *spectral irradiance*) crnog tela, respektivno, a λ je talasna dužina (Harilal i Harilal, 2002). Na slici 2.18 je prikazan izračunat relativni odziv sistema spektrograf-ICCD kamera koji smo koristili u našim eksperimentalnim merenjima. Spektralni odziv je snimljen u opsegu talasnih dužina od 264–974 nm. Za vrednosti talasnih dužina < 264 nm nije sniman odziv sistema usled slabe emisije lampe u ovom regionu.

²⁶ Iradijansa E je gustina fluksa svetlosnog zračenja koje dolazi na jediničnu površinu sa drugog izvora i izražava se u jedinicama Wm⁻². Spektralna iradijansa E_λ predstavlja iradijansu površine po jediničnoj talasnoj dužini, ako je spektar dat u zavisnosti od talasne dužine, a jedinica je Wm⁻³ ili Wm⁻²nm⁻¹.



Slika 2.18 Kriva relativnog spektralnog odziva sistema spektrograf Oriel MS127i™ 1/8 m – ICCD kamera Andor, tip iStar DH720-18U-03. Punom linijom je označena talasna dužina na kojoj staklo odseca UV oblast u slučaju korišćenja optike koja je izrađena od stakla.

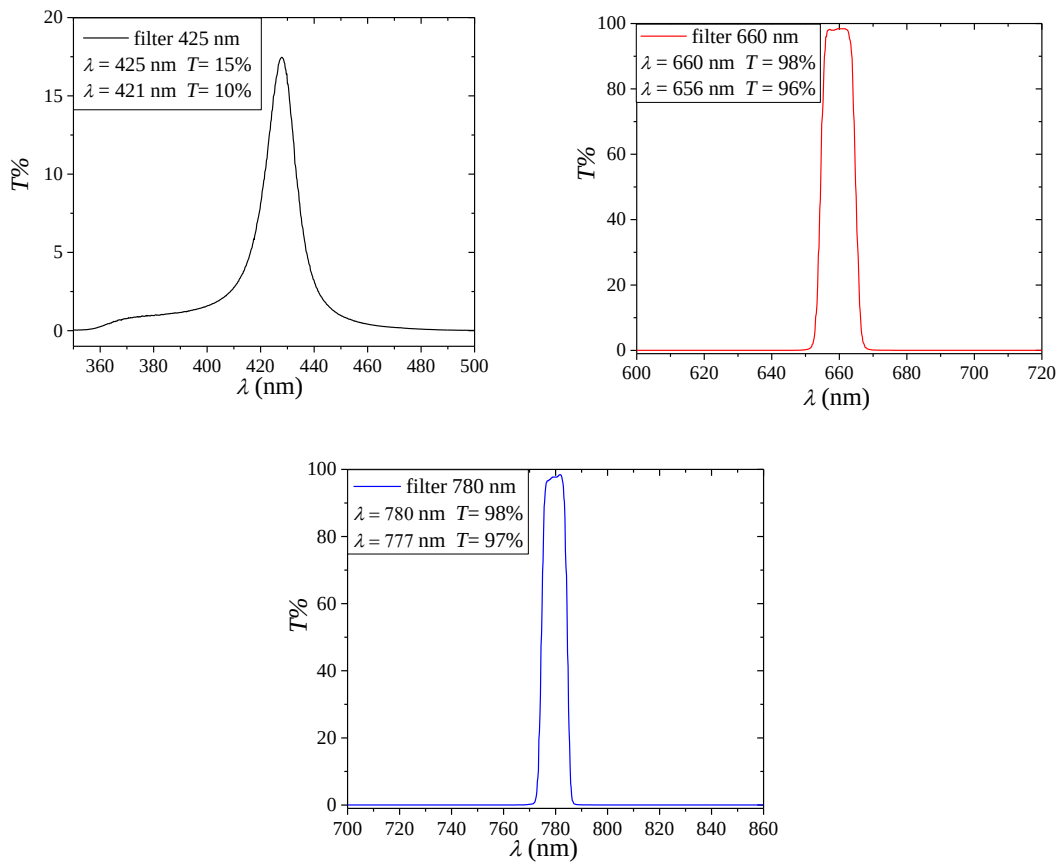
Za snimanja spektara iz pražnjenja korišćene su i dve kalibracione lampe: živa-argon (Newport Spectral Calibration Lamp Hg(Ar) 18±5 mA) i kripton (Newport Spectral Calibration Lamp Kr 10 mA), koje su služile za kalibraciju talasnih dužina spektrografa.



Slika 2.19 Postavka eksperimenta za snimanje emisionih spektara ispitivanih pražnjenja (levo) i kalibraciona lampa korišćena za kalibraciju intervala talasnih dužina spektrografa (desno).

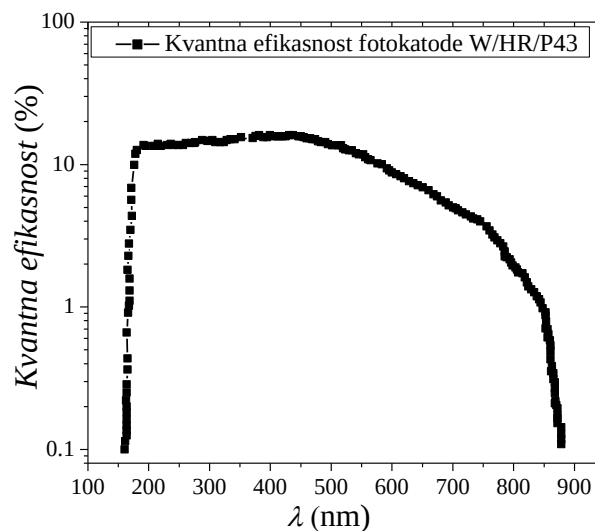
Emisioni spektri ispitivanih pražnjenja su snimani na sledeći način: prvo je sniman spektar kalibracione lampe, bez uključenog pražnjenja, za određeni opseg talasnih dužina, a nakon toga je za isti opseg snimana emisija iz pražnjenja. Prilikom obrade podataka koji su dobijeni snimanjem emisionih spektara uračunat je i spektralni odziv korišćenog detekcionog sistema na datoj talasnoj dužini. Postavka eksperimenta korišćena za snimanje emisionih spektara pražnjenja ispitivanih para tečnosti je prikazana na slici 2.19.

Pored prostornih profila emisije iz pražnjenja koji su snimani integracijom u vidljivom delu spektra, snimanje emisije je urađeno i korišćenjem optičkih filtera. Za izvođenje ovih snimanja izabrani su sledeći optički filteri: Carl Zeiss Jena 425 nm i Thorlabs 660 nm i 780 nm. Na slici 2.20 su prikazane izmerene transparentnosti ovih filtera. Merenja su urađena u Institutu za fiziku u Beogradu.



Slika 2.20 Transparentnost optičkih filtera korišćenih u eksperimentu.

Prilikom obrade izmerenih eksperimentalnih podataka uračunate su i transparentnosti filtera, kao i odgovarajuća kvantna efikasnost fotokatode (engl. *Quantum efficiency of photocathode*) kamere za date talasne dužine. Slika 2.21 prikazuje kvantnu efikasnost fotokatode ICCD kamere (Andor, tip iStar DH720-18U-03).



Slika 2.21 Kvantna efikasnost fosforne fotokatode (model W/HR/P43) korišćene ICCD kamere.

3. PROBOJ I PRAŽNJENJA U PARAMA ALKOHOLA

Alkoholi su organska jedinjenja koja sadrže bar jednu hidroksilnu grupu vezanu za atom ugljenika. U zavisnosti od toga za koji je ugljenik alkilne grupe vezana hidroksilna grupa, alkoholi se mogu svrstati u primarne, sekundarne ili tercijarne. Većina alkohola je bezbojna i na sobnoj temperaturi je u tečnom ili u čvrstom stanju. Alkoholi koji imaju malu molekulsku masu su dobro rastvorljivi u vodi, dok sa njenim povećanjem postaju manje rastvorljivi. Imaju široku upotrebu, između ostalog koriste se u proizvodnji sredstava za higijenu, zatim farmaceutskih proizvoda, u industriji parfema, za dobijanje raznih specijalnih smola, antifrizi i u industriji goriva. Često se koriste kao posrednici u sintezi drugih jedinjenja i spadaju u jednu od najčešće proizvedenih organskih hemikalija u industriji.

Poslednjih godina, sa porastom svesti o potrebi zaštite životne sredine i smanjenju emisije gasova staklene bašte u borbi protiv globalnog zagrevanja, veliku pažnju privlače ekološki i obnovljivi izvori energije. Prvo mesto zauzima vodonik, kao jedno od najperspektivnijih goriva i čistih izvora energije, jer je proizvod njegovog sagorevanja voda. Međutim, glavni problem predstavlja skladištenje vodonika, zbog njegove male gustine, tako da je rešenje njegovo direktno dobijanje na licu mesta iz drugih jedinjenja. Alkoholi su se pokazali kao posebno privlačni i pogodni za dobijanje vodonika korišćenjem nisko-temperaturne neravnotežne plazme (Petitpas *et al.*, 2007; Sobacchi *et al.*, 2002). Prvenstveno su našli primenu u razvoju alkoholnih gorivih ćelija (engl. *Direct Alcohol Fuel Cells*, *PEMFC fuel cell*) koje bi se koristile u automobilima, ali i u drugoj prenosnoj potrošačkoj elektronici (Dillon *et al.*, 2004; Kamarudin *et al.*, 2013).

S druge strane, ugljenički nanomaterijali, kao što su nanotube i grafen su vrlo zanimljivi zbog svojih jedinstvenih električnih, fizičkih i morfoloških svojstava. Naime, jedna od najistaknutijih karakteristika grafena je visoka provodnost, tako da je nanografen privlačan kao materijal za kanale u sledećoj generaciji ultra-brzih tranzistora, ali i u vidu transparentnih elektroda u solarnim ćelijama. Mnoga sprovedena istraživanja su pokazala da se kao dobar izvor ugljenika mogu koristiti plazme u alkoholima (Maruyama *et al.*, 2002; Matsushima *et al.*, 2013; Ando *et al.*, 2018). Ispostavilo se da su hidroksilne grupe i atomi kiseonika, koji nastaju u plazmi iz alkohola, ključni prekursori za kristalizaciju i formiranje strukture nanografena.

Još jedna od važnih primena para alkohola je u detektorima elementarnih čestica i jonizujućeg zračenja, gde se ove pare koriste kao kvenčeri²⁷ (engl. *quenchers*) (Charpak i Sauli, 1979; Liebson, 1947; Grey, Sood i Manchanda, 2004; Bošnjaković *et al.*, 2014). U pojedinim slučajevima alkoholi se primenjuju da spreče tzv. starenje detektora i njihovo propadanje tokom rada (Va'vra, 2003). Iako su alkoholi u gasnim detektorima prisutni u malim količinama (svega par procenata), kao mešavina sa atomskim baferskim (pozadinskim) gasom, oni ipak imaju veliki uticaj na oblik funkcije raspodele energije elektrona i transportne koeficijente, zbog velikih preseka za vibracionu ekscitaciju (Cottrell i Walker, 1965; Marić *et al.*, 2005).

Jedna od glavnih prednosti primena plazme u alkoholima/parama alkohola je jednostavnost eksperimentalnog dizajna, što omogućava brz razvoj i pojavu novih uređaja. Ipak, razvoj primena se ne može zasnivati samo na tehničkom napretku u dizajnu uređaja. Ključno znanje koje je potrebno za dalji napredak leži u razumevanju pražnjenja u alkoholima i njihovim parama i u posedovanju

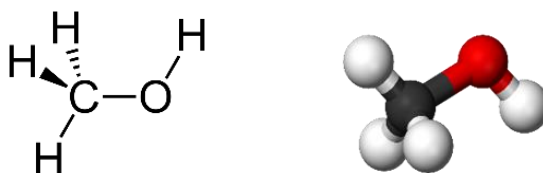
²⁷ *Quenchers* (oni koji gase, okončavaju, prekidaju) – su višeatomski gasovi sa sposobnošću da apsorbuju fotone nastale u višestrukim sudarima ili u disocijaciji molekula, čime se sprečava pojava sekundarnih efekata u pražnjenju. U ovu svrhu se najčešće koriste ugljovodoni npr. metan i izobutan, zatim alkoholi, dimetiletar, ugljen-dioksid i drugi.

informacija o elementarnim procesima koji učestvuju u pražnjenju. Posebno je važno poznavati proboj i karakteristike proboja jer probojni napon određuje radnu tačku za gasna pražnjenja, a prisustvo alkohola u smešama sa drugim gasovima može da značajno promeni radnu tačku i uslove pražnjenja.

U ovoj glavi su dati rezultati vezani za elementarne osobine pražnjenja u parama ispitivanih primarnih i sekundarnih alkohola koji se odnose na izmerene zavisnosti probojnog napona V_b od proizvoda pritiska i rastojanja između elektroda pd , odnosno snimljene su Pašenove krive u širokom intervalu pd vrednosti, zajedno sa odgovarajućim aksijalnim raspodelama intenziteta emisije iz pražnjenja. Snimljeni su odgovarajući emisijski spektri, na osnovu kojih su izabrani optički filteri korišćeni za snimanja spektralno razloženih prostornih raspodela emisije iz pražnjenja. Iz profila slabostrujnog pražnjenja su određeni jonizacioni koeficijenti α i koeficijenti sekundarne emisije elektrona γ u zavisnosti od vrednosti redukovano električnog polja E/N . Za vrednost pd parametra u minimumu i levoj grani Pašenove krive, snimljene su strujno-naponske karakteristike u širokom opsegu struja, zajedno sa aksijalnim raspodelama intenziteta emisije (aksijalni emisijski profili) iz različitih režima pražnjenja.

3.1 METANOL CH_3OH

Metanol ili metil alkohol (slika 3.1) je najjednostavniji predstavnik grupe alkohola i sastoji se iz metil grupe (CH_3) na koju je vezana hidroksilna grupa (OH). Ovaj alkohol je bezbojna, lagana, isparljiva i zapaljiva polarna tečnost sa mirisom sličnim etanolu i daleko toksičnijim dejstvom. U prirodi je metanol prisutan u malim količinama. On se proizvodi u anaerobnom metabolizmu raznih vrsta bakterija, ali je detektovan i u ljudskom izdahu u količini od 4.5 ppm (Turner *et al.*, 2006). Stoga, atmosfera sadrži malu količinu pare metanola koji se usled delovanja sunčeve svetlosti oksiduje u ugljen-dioksid i vodu. S druge strane, u svemiru je prisutan u ogromnim količinama u regionima formiranja zvezda i zato u astronomiji služi kao marker takvih oblasti. Detektuje se preko svojih spektralnih emisijskih linija (najčešće korišćena linija za detekciju je na 6.66852 GHz $\leftrightarrow$ 44956.37 μm).

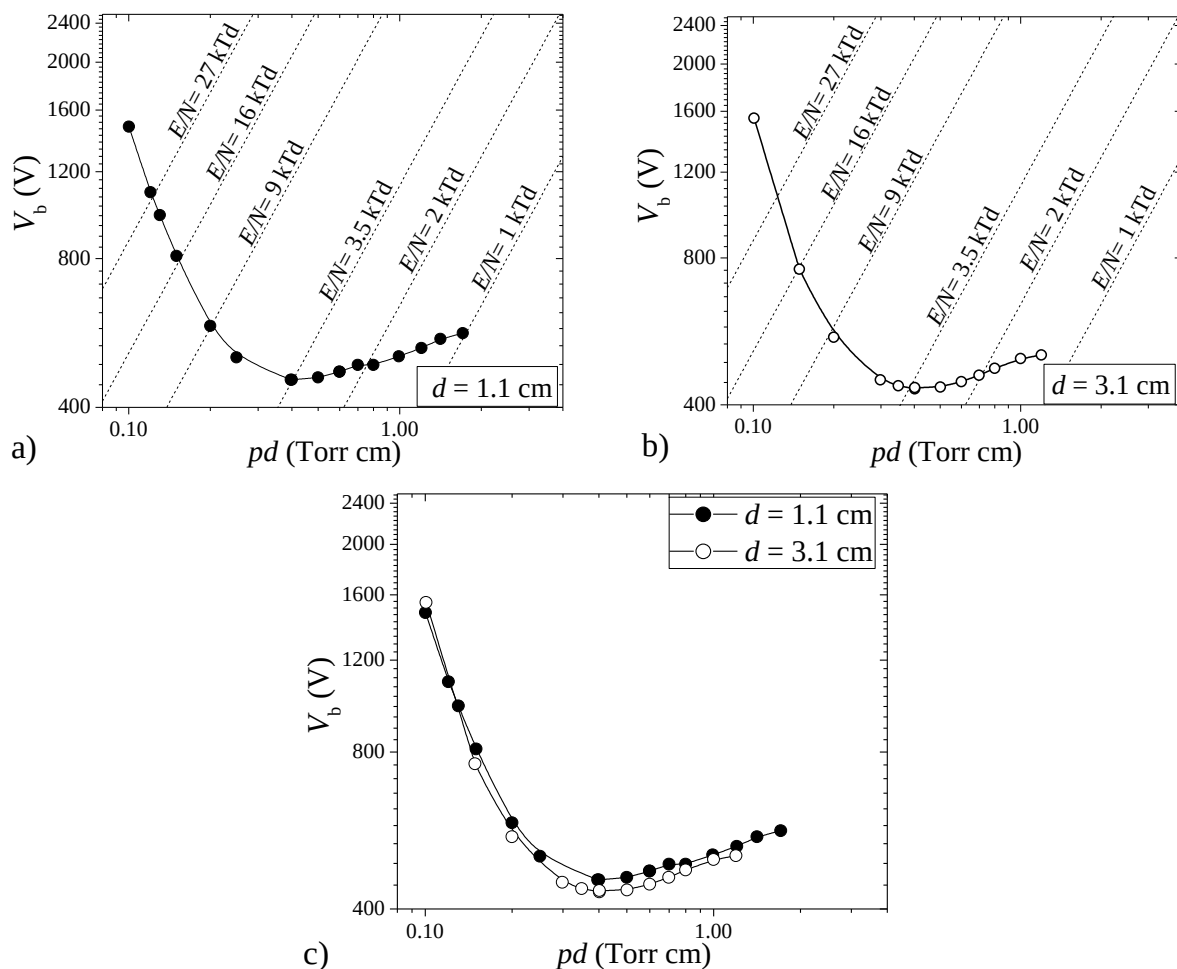


Slika 3.1 Metanol: levo – strukturna formula i desno – model molekula.

U eksperimentalnim merenjima, u okviru ovog rada, za dobijanje pare korišćen je metanol čistoće 99.8%. Pritisak pare metanola na sobnoj temperaturi ($T = 25\text{ }^\circ\text{C}$) je 126.87 Torr (1 Torr = 133.322 Pa).

3.1.1 MERENJE PROBOJNOG NAPONA – PAŠENOVE KRIVE

Snimljene Pašenove krive za paru metanola prikazane su na slici 3.2. Isprekidanim linijama na graficima su obeležene vrednosti redukovano električnog polja E/N ($1\text{ Td} = 10^{-21}\text{ Vm}^2$). Veličine pd i E/N predstavljaju ključne parametre za proboj u gasu, gde je pd proporcionalan broju sudara, a E/N je proporcionalan energiji koju naelektrisane čestice dobijaju od polja između sudara.



Slika 3.2 Pašenove krive za paru metanola na međuelektrodnim rastojanjima od a) 1.1 cm, b) 3.1 cm i c) na oba međuelektrodna rastojanja.

Merenja su rađena na dva međuelektrodna rastojanja: 1.1 cm (slika 3.2 a)) i 3.1 cm (slika 3.2 b)). Radni uslovi su obuhvatili opseg pd vrednosti od 0.10 Torr cm do ~ 1.70 Torr cm. Minimum se u oba slučaja javlja na $pd = 0.40$ Torr cm, pri vrednostima probojnog napona od 455 V za $d = 1.1$ cm i 433 V za $d = 3.1$ cm, a što odgovara vrednosti redukovanog električnog polja $E/N \approx 3500$ Td.

Snimljene krive su standardnog oblika, koji je tipičan za neravnotežna pražnjenja, sa naglim porastom napona u delu krive levo od minimuma i znatno sporijim porastom napona desno od minimuma. Pražnjenje radi stabilno do $pd = 0.70$ Torr cm, a na većim vrednostima parametra pd ulazi u relaksacione (uređene) oscilacije iz kojih je moguće odrediti probojni napon pomoću procedure opisane u poglavlju 2.2.3 Merenje probojnog napona pražnjenja (Marić, 2006; Marić *et al.*, 2009). Iznad vrednosti $pd = 1.70$ Torr cm, odmah nakon proboja pražnjenje ulazi u režim slobodnih oscilacija iz kojih je nemoguće proceniti probojne napone. Naime, u ovoj oblasti uslova pražnjenja, strujno-naponska karakteristika je previše strma (prevelika vrednost negativne diferencijalne otpornosti) da bi se oscilacije suzbile promenom elemenata električnog kola. U toku merenja, korišćene su kombinacije otpornika različitih otpornosti R_s i R_m ($R_s = 560$ k Ω , 1.2 M Ω i 5 M Ω i $R_m = 20$ k Ω , 100 k Ω , 1 M Ω , 2 M Ω i 10 M Ω) kako bi se pražnjenje stabilisalo nakon proboja.

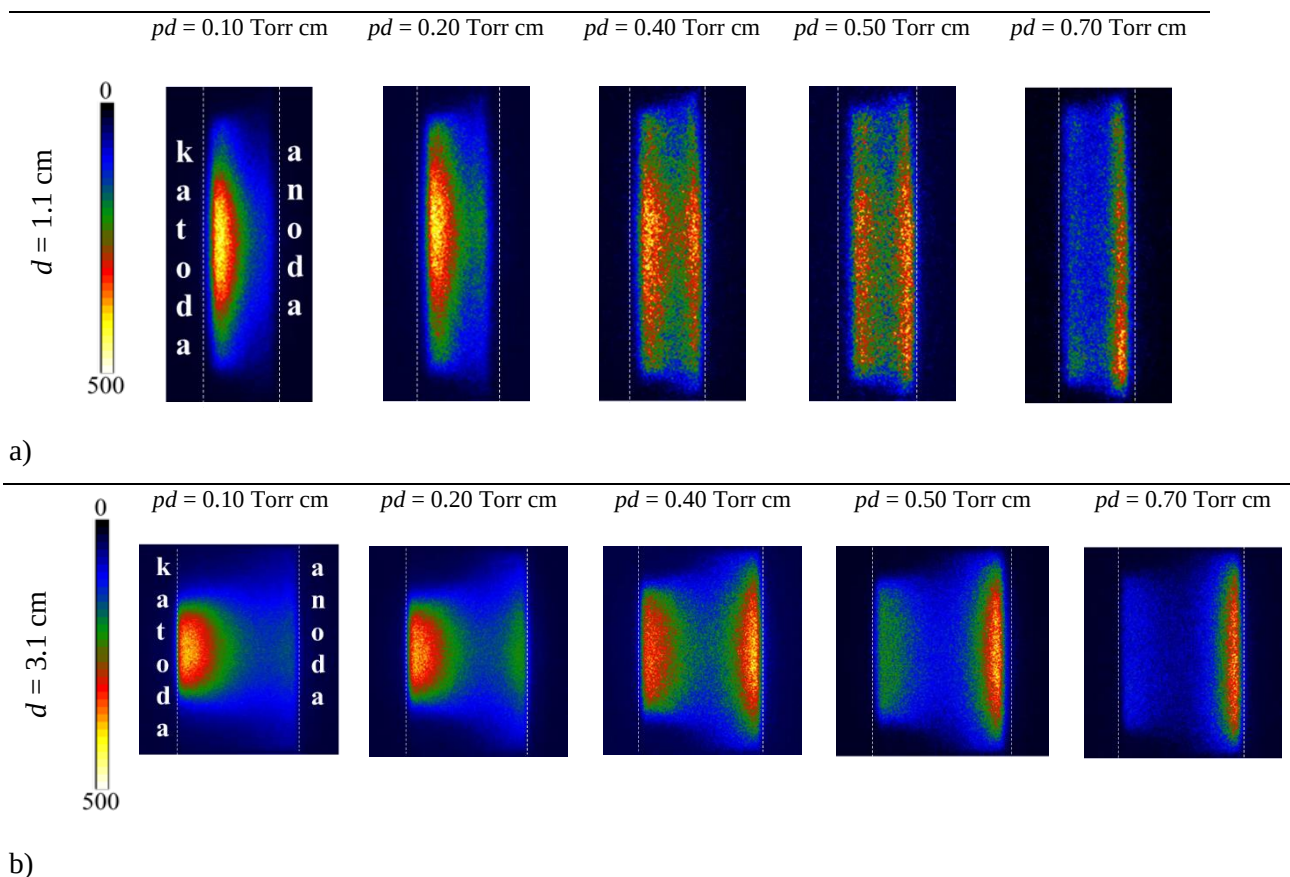
3.1.2 PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA

U toku snimanja Pašenovih krivih u pari metanola, istovremeno su snimane i 2D raspodele intenziteta emitovane svetlosti iz pražnjenja. Snimanje strukture pražnjenja nam omogućava

3. Proboj i pražnjenja u parama alkohola

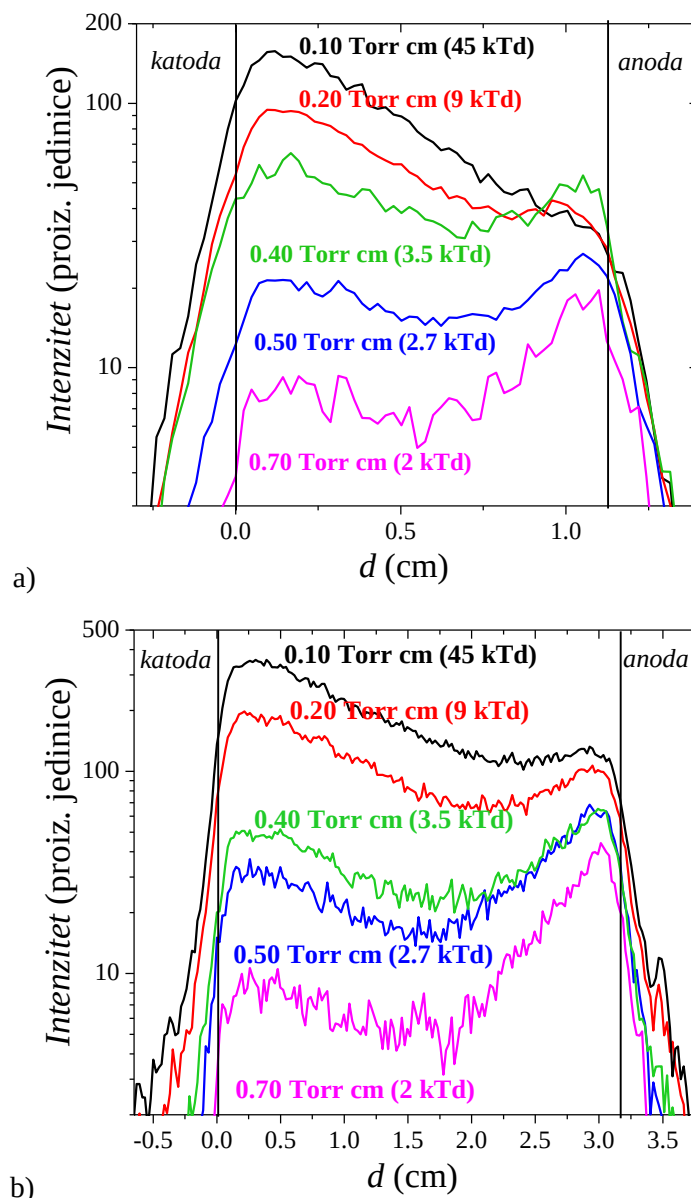
verifikaciju i kontrolu režima pražnjenja koji se uspostavlja nakon proboja, odnosno pruža dokaz da se u trenutku proboja pražnjenje zaista nalazi u Taunzendovom režimu rada. Takođe, profili emisije nam daju uvid u osnovne procese koji se dešavaju u gasu. Aksijalne raspodele intenziteta emitovane svetlosti iz pražnjenja su snimljene ICCD kamerom koja je postavljena bočno, normalno na osu komore, čime je snimljen prostorni izgled pražnjenja između katode i anode.

Karakteristične 2D raspodele emitovane svetlosti iz slabostrujnog pražnjenja za različite vrednosti parametra pd na Pašenovoj krivoj, integrisane u vremenu i celom vidljivom spektru, prikazane su na slici 3.3 a) za međuelektrodno rastojanje $d = 1.1$ cm i 3.3 b) za $d = 3.1$ cm.



Slika 3.3 2D raspodele emitovane svetlosti iz slabostrujnog pražnjenja u pari metanola a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm.

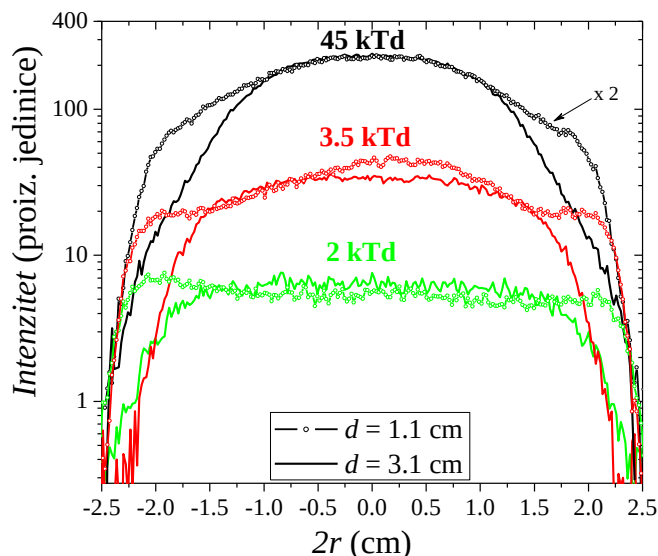
U slučaju malih vrednosti parametara $pd = 0.10$ i 0.20 Torr cm, odnosno velikih vrednosti redukovano električnog polja E/N (slike 3.3 i 3.4), uočava se maksimum intenziteta emisije ispred katode (na 2D slikama je to oblast maksimalnog svetljenja) koji je posledica ekscitacije i jonizacije teškim česticama (jonima i brzim neutralima) u ovoj oblasti (Petrović *et al.*, 1992; Petrović i Phelps, 2009). Za $pd = 0.40$ i 0.50 Torr cm, maksimum intenziteta emisije ispred katode opada dok intenzitet emisije ispred anode raste, aksijalna raspodela emisije postaje zaravnjena usled izjednačavanja uticaja ekscitacije teškim česticama i ekscitacije elektronima u gasu (slike 3.3 i 3.4). Na 0.70 Torr cm, odnosno na malim vrednostima E/N , aksijalna raspodela emisije ima gotovo eksponencijalni porast od katode prema anodi, što je posledica pretežnog uticaja procesa elektronske ekscitacije (slike 3.3 i 3.4).



Slika 3.4 Aksijalne raspodele intenziteta emisije slabostrujnog pražnjenja u pari metanola za a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm, koje odgovaraju 2D raspodelama emitovane svetlosti sa slike 3.3 a) i 3.3 b), respektivno. Na graficima je u zagradama naznačena vrednost redukovano električnog polja (E/N) na datom pd .

Pri međuelektrodnom rastojanju od 3.1 cm (slike 3.3b) i 3.4b)), aksijalna raspodela emisije za različite vrednosti pd je identična kao i za rastojanje od $d = 1.1$ cm (slike 3.3a) i 3.4a)). Razlika je u radijalnim širinama pražnjenja, u slučaju rastojanja od 3.1 cm ova širina je manja usled većih difuzionih gubitaka, pa pražnjenje ne zauzima celu površinu elektroda (slika 3.5). Ova razlika je najuočljivija na malim pritiscima, odnosno na velikim vrednostima redukovano električnog polja E/N (slika 3.5 raspodele intenziteta emisije koje odgovaraju vrednosti $E/N = 45$ kTd). U svom radu Donko i saradnici (Donkó *et al.*, 1999) su ispitivali uticaj promene prečnika elektroda na površinu koje pražnjenje zauzima na katodi i modelovali su raspodelu električnog polja između elektroda. Razlika između njihovog i našeg eksperimenta je u tome što su oni radili sa komorom za pražnjenje čiji su metalni zidovi držani na različitim plivajućim potencijalima (eng. *floating-potential walls*) dok su u našem slučaju u pitanju dielektrični zidovi. Međutim, u oba slučaja na pražnjenje utiču efekti zidova (raspodela potencijala na zidovima). Takođe, u blizini krajeva katode dolazi do formiranja radijalnog električnog polja koje utiče na raspodelu elektrona, a samim tim i na raspodelu jona u toj oblasti. Pokazano je da se efekti na krajevima katode pojačavaju sa smanjenjem pritiska i da se ne skaliraju sa pd . Dakle, posledica ovoga jeste smanjenje broja elektrona u ovoj oblasti, odnosno smanjenje multiplikacije elektrona što utiče na nastajanje jona, a samim tim i na izgled

radijalne raspodele emisije uz katodu. Drugim rečima, u našem slučaju na većim rastojanjima dolazi do povećanja radijalnih gubitaka naelektrisanih čestica (elektrona i jona), posebno u oblasti oko krajeva katode, pa se usled toga smanjuje površina koju pražnjenje zauzima na katodi.



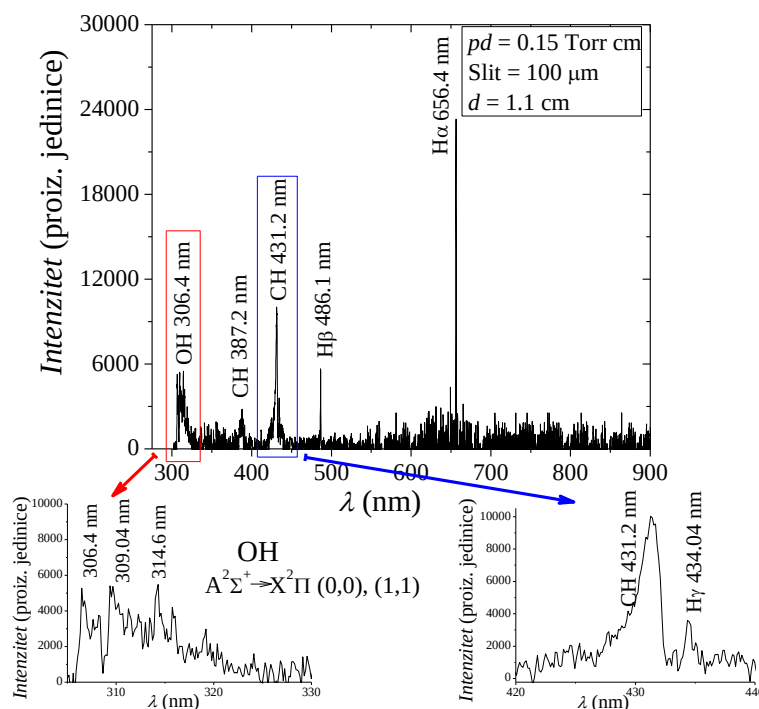
Slika 3.5 Radijalne raspodele intenziteta emisije slabostrujnog pražnjenja u pari metanola za $d = 1.1$ cm i 3.1 cm na tri vrednosti pd parametra: 0.10 Torr cm (crna boja), 0.40 Torr cm (crvena boja) i 0.70 Torr cm (zeleno). Na x -osi je dat prečnik elektroda (katode i anode) koji iznosi 5.4 cm. Raspodele su dobijene iz 2D slika pražnjenja prikazanih na slici 3.3. Radijalni profili su dobijeni izvlačenjem vektora intenziteta u oblasti ispred katode (emisija indukovana teškim česticama), a izvlačenje intenziteta je odrađeno za istu udaljenost x od katode na oba međuelektrodna rastojanja. Intenzitet profila za $E/N = 45$ kTd na 1.1 cm (crna linija–simbol) je pomnožen faktorom 2 radi lakšeg poređenja sa odgovarajućim profilom na 3.1 cm (crna linija).

3.1.3 SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA

Optički emisijski spektar pražnjenja u pari metanola (slika 3.6) dobijen je snimanjem u levoj grani Pašeneve krive na $pd = 0.15$ Torr cm za uslove Taunzendovog režima pražnjenja ($i \sim 1 \mu A$). Snimanja su urađena za opseg talasnih dužina od 300 nm do 900 nm.

Sa snimljenog optičkog emisijonog spektra može se videti da najintenzivnije emisije pripadaju OH i CH radikalima i H atomima (Balmerova serija). Detektovane emisije potiču od pobuđenih čestica nastalih disocijativnom ekscitacijom polaznog (roditeljskog) molekula, koji daje vodonikove atome i neke teže ekscitovane fragmente disocijacije (OH, CH ili C_xH_y) (Manukonda *et al.*, 1995; Donohue, Schiavone i Freund, 1977; Poncin-Epaillard i Aouinti, 2002; Reyes *et al.*, 2016). Emisija na 306.4 nm potiče od OH radikala (Liu *et al.*, 2007; Stocer *et al.*, 2001; Mašláni i Sember, 2014; Donohue, Schiavone i Freund, 1977). S druge strane, emisija CH radikala potiče od dva dominantna sistema: 1) sistema $A^2\Delta \rightarrow X^2\Pi$ sa čelom trake na 431.2 nm i 2) sistema $B^2\Sigma^- \rightarrow X^2\Pi$ čije je čelo trake na 387.2 nm (Gaydon, 1974; Malović G, 1999).

Na osnovu snimljenog spektra izabrani su odgovarajući optički filteri za spektralno razložena snimanja emisije iz pražnjenja u pari metanola. Kako je emisija iz pražnjenja najintenzivnija na 656.4 nm (H_α) i 431.2 nm (CH) za spektralno razložena snimanja su korišćeni Thorlabs 660 nm (H_α filter) i Carl Zeiss Jena 425 nm (CH filter) optički filteri.

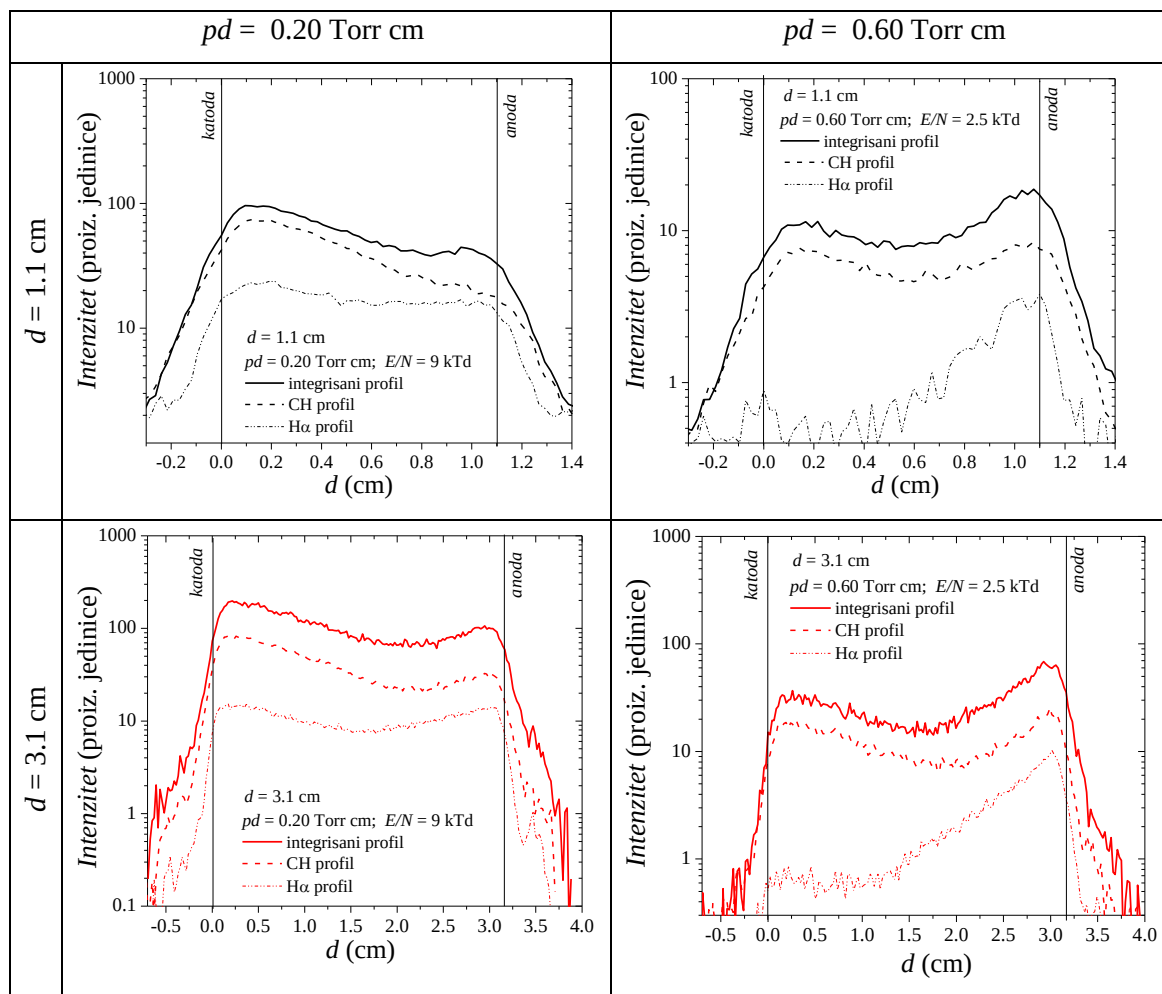


Slika 3.6. Optički emisijski spektar pražnjenja u pari metanola. Na ubačenim graphicima su prikazani obeleženi delovi spektra koji su dodatno uvećani.

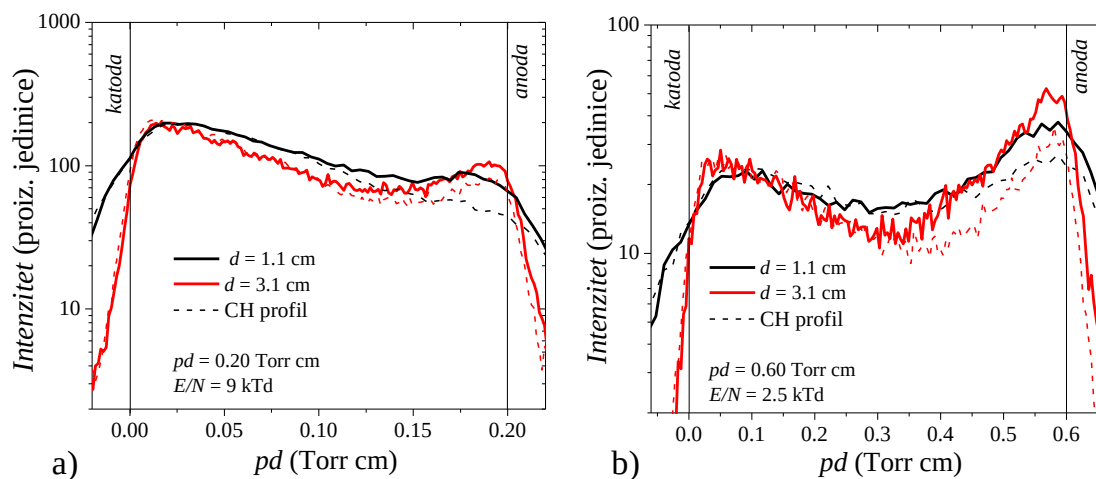
Na slici 3.7 su prikazane aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisijski profili) zajedno sa spektralno razloženim raspodelama emisije iz pražnjenja u pari metanola na maloj struji (Taunzendov režim). Prikazani su rezultati za dve vrednosti pd parametra 0.20 Torr cm (leva grana Pašenove krive) i 0.60 Torr cm (desna grana Pašenove krive) na različitim međuelektrodnim rastojanjima 1.1 i 3.1 cm. Raspodele emisije su skalirane po parametru pd (d je rastojanje od katode) tako da je omogućeno poređenje raspodela intenziteta emisije na različitim rastojanjima elektroda/pritiscima tj. različitim vrednostima redukovanog električnog polja E/N (slika 3,8).

Slike 3.7 i 3.8 ilustruju kako promena pd parametra, odnosno promena E/N , utiče na strukturu i osnovne procese u pražnjenju. Na malim vrednostima pd i veoma visokim E/N , teške čestice, joni i neutrali, dobijaju dovoljno energije da bi vršili ekscitaciju, pa čak i jonizaciju. Na $pd = 0.20$ Torr cm procesi indukovani teškim česticama dominiraju nad elektronskim procesima, što se ogleda u emisijom profilu čiji je maksimum ispred katode (slike 3.7 (0.20 Torr cm) i 3.8 a)). Uzrok tako visoke emisije u katodnoj oblasti su najverovatnije laki joni i neutrali, najverovatnije brzi vodonikovi atomi. Istraživanja u drugim molekulima počev od H_2 i CH_4 potvrdili su da su najefikasniji u ekscitaciji brzi vodonikovi atomi koji nastaju u prenosu naelektrisanja od jona vodonikovog atoma (Petrović i Phelps, 2009; Phelps, 2009).

U desnoj grani Pašenove krive, na $pd = 0.60$ Torr cm, primetna su dva pika u intenzitetu emisije, manji ispred katode i veći ispred anode koji ukazuje na procese ekscitacije usled delovanja elektrona (slike 3.7 (0.60 Torr cm) 3.8 b)). Emisioni pik koji se nalazi ispred katode je posledica procesa indukovanih teškim česticama, što se može videti i kod CH raspodele intenziteta emisije (slika 3.7 i 3.8 b)). U slučaju H_α raspodele intenziteta emisije (slika 3.7) primećuje se tipični eksponencijalni porast intenziteta emisije od katode ka anodi, što je posledica elektronske ekscitacije, sa uočljivim nehidrodinamičkim (neravnotežnim) regionom u blizini katode (Marić *et al.*, 2014; Malović *et al.*, 2003). Rezultati prikazani na slici 3.8 takođe ukazuju na to da osnovni procesi koji regulišu proboj i slabostrujna pražnjenja ostaju isti za iste vrednosti pd , za opseg rastojanja između elektroda koji je ovde prikazan, pa samim tim ostaje nepromenjena i sama struktura pražnjenja.



Slika 3.7. Aksijalne raspodele intenziteta emisije Taunzendovog pražnjenja u pari metanola snimljene na $pd = 0.20$ Torr cm i $pd = 0.60$ Torr cm za dve vrednosti međuelektrodnog rastojanja 1.1 i 3.1 cm. Zajedno sa integrisanim raspodelama snimljene su i spektralno razložene emisije pražnjenja dobijene korišćenjem optičkih filtera za CH i H_{α} emisiju.



Slika 3.8. Aksijalne raspodele intenziteta emisije Taunzendovog pražnjenja u pari metanola snimljene u a) levoj grani Pašenove krive ($pd = 0.20$ Torr cm) i b) desnoj grani Pašenove krive ($pd = 0.60$ Torr cm).. Na x - osi prikazan je proizvod rastojanja katode d i pritiska p kako bi se omogućilo poređenje raspodela koje su snimljene na istom pd , ali na različitim međuelektrodnim rastojanjima. Punim linijama su prikazane raspodele emisije integrisane u vidljivom delu spektra, a isprekidanom linijom su prikazane raspodele emisije snimljene upotrebom CH optičkog filtera, koje su normirane na maksimum intenziteta ispred katode.

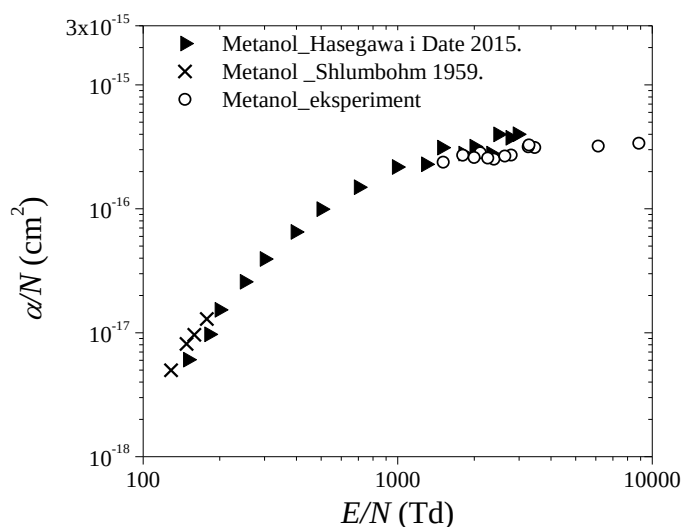
Dobijeni rezultati uz apsolutnu kalibraciju, ali i koristeći postojeće relativno skalirne mogu da posluže za određivanje ekscitacionih koeficijenata za elektrone (i teške čestice) u pari metil alkohola. Na taj način se mogu fiksirati direktni kanali za disocijativnu ekscitaciju prelaza koji su opaženi i mogu se dobiti precizniji setovi preseka.

3.1.4 ODREĐIVANJE JONIZACIONOG KOEFICIJENTA α I KOEFICIJENTA SEKUNDARNE EMISIJE ELEKTRONA γ

Za bolje razumevanje i dublji uvid u mehanizme i osnovne procese u pražnjenjima u parama tečnosti neophodno je dobiti podatke o binarnim sudarima unutar same gasne faze i sudarima sa površinama. Ovi podaci se mogu dobiti u eksperimentima sa rojevima (engl. *swarm experiments*) i u slabostrujnim pražnjenjima koja rade u najnižem limitu struja. Naime, slabostrujna pražnjenja, u blizini proboja, predstavljaju granični slučaj roja naelektrisanih čestica, pod uslovaom da je električno polje između elektroda homogeno, odnosno da su efekti prostornog naelektrisanja zanemarljivi. (Phelps i Petrović, 1999; Phelps *et al.*, 1993; Nikolić *et al.*, 2003). Pod ovim uslovima, emisioni profil (raspodela intenziteta emisije) odražava multiplikaciju elektrona između elektroda. Nagib profila emisije u semi-logaritamskoj skali tada predstavlja jonizacioni koeficijent, što je osnov tzv. „optičke metode” (Malović, 1999) primenjene u našem eksperimentu.

U slučaju pare metanola, određivanje koeficijenta jonizacije α je jedino bilo moguće u intervalu redukovano polja E/N oko minimuma Pašenove krive, jer su na većim vrednostima E/N efekti ekscitacije teškim česticama zaklanjali profil elektronske ekscitacije. Dodatno, u desnoj grani Pašenove krive, odnosno na višim pritiscima (nižim E/N), nije bilo moguće dobiti pražnjenje u stabilnom slabostrujnom režimu, pa se ni ovi aksijalni emisioni profili nisu mogli koristiti za određivanje koeficijenta α . Usled ovakvih ograničenja, u našem eksperimentu je bilo moguće odrediti jonizacione koeficijente samo u opsegu redukovano polja od 1.5 kTd do 8.8 kTd.

Na slici 3.9 je praznim krugovima prikazana zavisnost efektivnog jonizacionog koeficijenta α/N od redukovano polja E/N . Takođe su prikazani i rezultati za jonizacioni koeficijent u metanolu iz literature (Hasegawa i Date, 2015; Schlumbohm, 1959), koji obuhvataju oblast znatno nižih vrednosti redukovano polja E/N od 130 Td do 2.9 kTd. Rezultati za jonizacioni koeficijent koji su dobijeni u našem eksperimentu su nešto niži od rezultata Hasegave i Datea, a razlog za ovo može biti vezan za neznatne razlike u čistoći pare, ali i u tehnikama merenja.

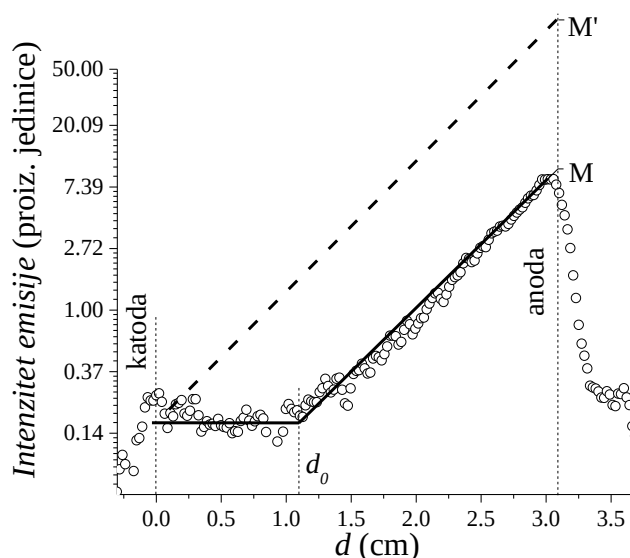


Slika 3.9. Zavisnost efektivnog jonizacionog koeficijenta (α/N) od jačine redukovano polja (E/N) u pari metanola.

Poznavanje koeficijenta jonizacije i probojnog napona na različitim vrednostima redukovano električnog polja omogućava izračunavanje efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona γ . Polazeći od uslova za proboj (jednačina 1.6), dobija se:

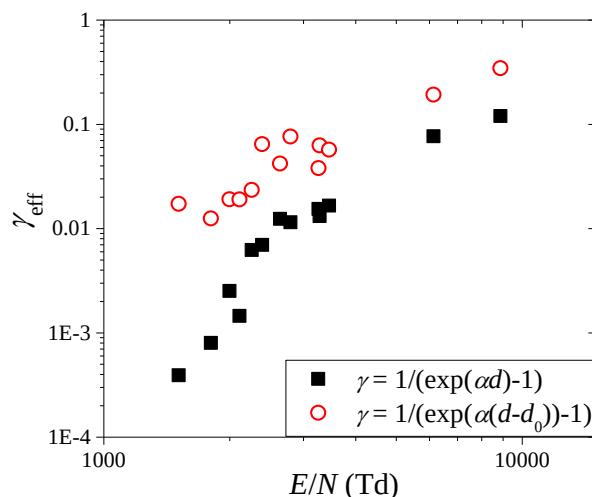
$$\gamma_{\text{eff}} = \frac{1}{\exp(\alpha(d - d_0)) - 1}, \quad (3.1)$$

gde je α jonizacioni koeficijent, d_0 je dužina uravnoteženja tj. rastojanje od katode nakon koga se multiplikacija elektrona može odrediti na osnovu ravnotežnog, hidrodinamičkog člana i d je rastojanje između elektroda (Phelps i Petrović, 1999). Dakle, vrlo je važno odrediti dužinu uravnoteženja, odnosno uticaj neravnotežne oblasti na vrednost koeficijenta γ . Ako se pogleda emisioni profil sa slike 3.10, može se videti da elektroni u početku nemaju dovoljno energije za jonizaciju, pa je potrebno da pređu određeni put kako bi stekli potrebnu energiju. Nakon pređenog rastojanja d_0 , elektroni stiču neophodnu energiju za procese jonizacije, odnosno koeficijent jonizacije postaje jednak hidrodinamičkoj (ravnotežnoj) vrednosti. Kao što je prikazano na slici 3.10, d_0 se može dobiti kao presek ekstrapolacija eksponencijalnog porasta emisije i neravnotežne oblasti u kojoj elektroni nemaju dovoljno energije za jonizaciju – plato u blizini katode (Živanov, 2000). Zanimarivanje postojanja neravnotežne oblasti za posledicu ima veliku razliku u faktorima multiplikacije ($M = \exp(\alpha d)$) M' (kada je zanemareno postojanje d_0) i M (realna multiplikacija, uračunato d_0) (slika 3.10).



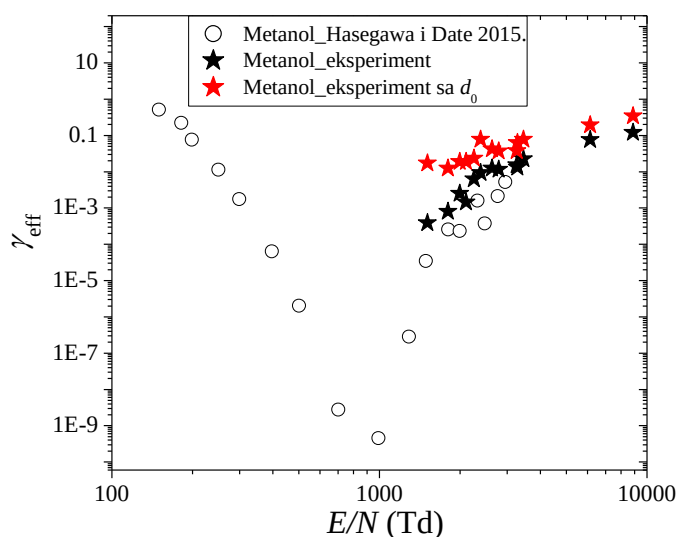
Slika 3.10. Aksijalna raspodela intenziteta emisije (aksijalni emisioni profil) snimljen u pražnjenju u pari metanola na $d = 3.1$ cm, $pd = 0.70$ Torr cm. $V_b = 460$ V i $E/N = 2$ kTd. Prikazano je poređenje realne multiplikacije M sa multiplikacijom M' koja bi se dobila da elektroni od trenutka nastanka imaju hidrodinamički koeficijent jonizacije, odnosno da ne postoji oblast u kojoj elektroni još uvek nemaju dovoljno energije za procese jonizacije tzv. oblast uravnoteženja dužine d_0 .

Na slici 3.11 prikazane su vrednosti efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona u pari metanola za interval E/N od 1.5 kTd do 8.8 kTd, koje su dobijene na osnovu rezultata merenja u našem eksperimentu. Na grafiku su date vrednosti koeficijenta γ_{eff} bez i sa uračunatom dužinom uravnoteženja d_0 . Može se primetiti da ne uračunavanje dužine d_0 u koeficijent sekundarne emisije elektrona, za posledicu ima značajnu razliku u vrednostima koeficijenta γ , odnosno dovodi do velike greške, jer se d_0 nalazi u eksponentu. Koeficijent sekundarne emisije elektrona je jako osetljiv na materijal katode, ali je pokazano da je čak osetljiviji na stanje površine katode (Phelps i Petrović, 1999), odnosno na primenjeni tretman čišćenja površine katode. Moramo napomenuti da se ovde radi o efektivnom koeficijentu vezanom za fluks jona. Naime mi smo doprinose svih drugih energičnih čestica pripisali jonima (Phelps i Petrović, 1999).



Slika 3.11. Zavisnost efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona γ_{eff} od redukovanog električnog polja E/N u pražnjenju u pari metanola (bakarna katoda).

Koliko je nama poznato u literaturi nema podataka vezanih za koeficijent sekundarne emisije elektrona u metanolu. U radu Hasegave i Datea iz 2015. godine nema rezultata za koeficijent sekundarne emisije elektrona γ u pražnjenju u metanolu. Zato smo na osnovu njihovih rezultata za α/N i naših Pašenovih krivih za metanol izračunali vrednosti za koeficijent γ . Hasegava u radu navodi da je pritisak menjan u intervalu od 0.4 do 9 Torr, a rastojanje između elektroda od 0.2 do 1.5 cm. Za razliku od našeg eksperimenta u kome je katoda od bakra, u njihovom eksperimentu je korišćena katoda u čijoj sredini se nalazi ugrađena kvarcna ploča na koju je naparen tanak sloj od zlata (debljine 50 nm) (Hasegawa *et al.*, 1985).



Slika 3.12. Zavisnost efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona γ_{eff} od jačine redukovanog električnog polja E/N u pražnjenju u pari metanola. Poređenje rezultata : (prazni krugovi) – γ_{eff} iz rada Hasegave i Datea (2015) izračunati na osnovu naše Pašeneve krive za metanol; (crne zvezdice) – γ_{eff} iz našeg eksperimenta bez uračunavanja dužine nehidridinamičke oblasti d_0 i (crvene zvezdice) – γ_{eff} iz našeg eksperimenta sa uračunatim d_0 .

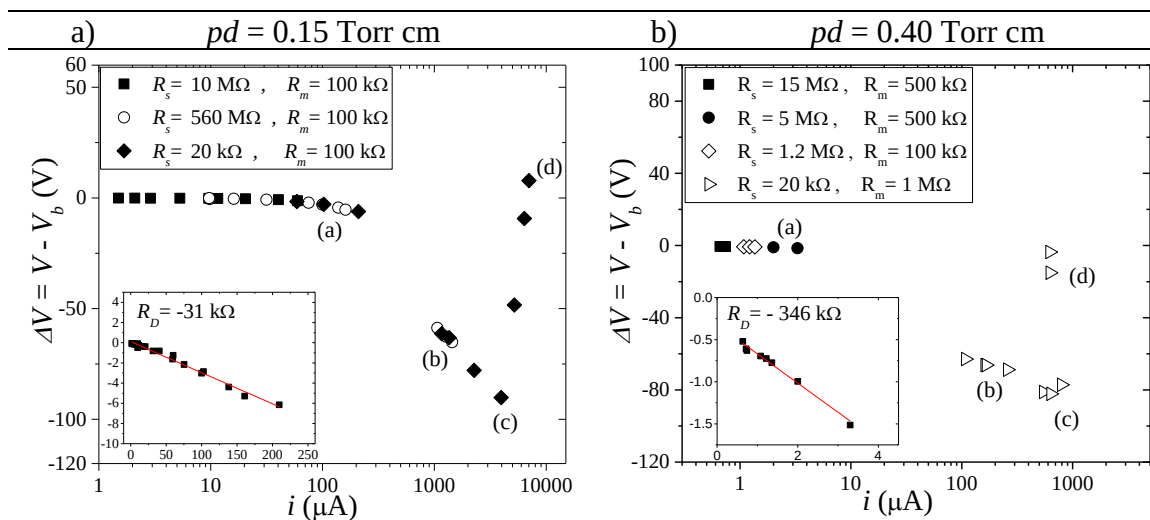
Različiti materijali korišćenih katoda utiču na razlike u sekundarnoj emisiji elektrona u ova dva eksperimenta, a dodatni uticaj ima i način tretmana površine katode, međutim on nije naveden u radu Hasegave i saradnika (Hasegawa i Date, 2015; Hasegawa *et al.*, 1985). Vrednosti za koeficijent γ dobijene na osnovu podataka Hasegave i Datea (2015) su upoređene sa rezultatima iz našeg eksperimenta i prikazane na slici 3.12. U intervalu jačina redukovanog električnog polja od 1.5 do 2.5 kTd rezultati Hasegave i Datea se menjaju u opsegu koji je približno dva puta manji od naših rezultata (crne zvezdice), dok za E/N oko 3 kTd dolazi do poklapanja rezultata. Treba napomenuti da se ovo odnosi na poređenje vrednosti koeficijenta sekundarne emisije elektrona koje su dobijene

bez uračunavanja dužine nehidrodinamičke oblasti d_0 . Na grafiku (slika 3.12) su prikazane i vrednosti koeficijenta sekundarne emisije elektrona sa uračunatim d_0 , čime se lepo ilustruje koliko razliku pravi zanemarivanje ove dužine u izračunavanju γ_{eff} .

3.1.5 STRUJNO – NAPONSKE KARAKTERISTIKE I PROSTORNA STRUKTURA PRAŽNJENJA

Kada su u pitanju merenja strujno – naponskih karakteristika (V - I karakteristika) u oblasti niskih pritisaka, za dobijanje dobro definisanih, reproducibilnih rezultata neophodno je vršiti kratka, impulsna merenja (pogledati poglavlje 2.2.4), kako bi pražnjenje što manje perturbovalo površinu katode usled proticanja struja velikih jačina i sa česticama velikih energija koje udaraju u katodu. Dodatno, na ovaj način se izbegava i uticaj grejanja gasa na osobine pražnjenja.

Na slici 3.13 prikazane su strujno – naponske karakteristike snimljene u pražnjenju u pari metanola na elektrodnom rastojanju od 1.1 cm za dve vrednosti parametra pd – a) 0.15 Torr cm i b) 0.40 Torr cm. Na graficima su različitim simbolima predstavljeni rezultati dobijeni za različite kombinacije otpornika R_s i R_m . Takođe, na y – osi je prikazana razlika napona pražnjenja (V) i probojnog napona (V_b), jer je promena napona pražnjenja usled primene naponskih impulsa mala u odnosu na probojni napon. Pored toga, ovakvim prikazom rezultata se eliminišu male razlike probojnih napona u različitim setovima merenja, koje ne utiču na “dinamičke” strujno-naponske karakteristike (Jelenković, Rózsa i Phelps, 1993; Petrović i Phelps, 1993). Na snimljenim strujno-naponskim karakteristikama se jasno uočavaju oblasti različitih režima rada kroz koje pražnjenje prolazi sa povećanjem struje: Taunzendovo pražnjenje (slabostrujno pražnjenje), normalno tinjavo pražnjenje i abnormalno tinjavo pražnjenje. Prekid na strujno – naponskoj karakteristici označava oblast samostalnih, neprigušenih oscilacija. Ova oblast se širi sa povećanjem pritiska gasa.



Slika 3.13. Strujno – naponske karakteristike pražnjenja u pari metanola na elektrodnom rastojanju $d = 1.1$ cm i za dve vrednosti proizvoda pd – a) 0.15 Torr cm i $V_b = 740$ V i b) 0.40 Torr cm i $V_b = 460$ V. Na ubačenim graficima su date odgovarajuće negativne diferencijalne otpornosti R_D . Sloвне oznake od (a) do (d) odgovaraju raspodelama intenziteta emisije (emisionim profilima) na slikama 3.12 i 3.13.

Difuzna slabostrujna pražnjenja je moguće opisati poznavanjem probojnih napona (Pašenove krive), V - I karakteristika, ali i poznavanjem učestanosti i koeficijenta prigušenja oscilacija, granica oblasti samostalnih oscilacija i granica prelaska u konstrikcije. Sve ovo je obuhvaćeno modelom Felps – Petrović – Jelenković (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993) koji je izvršio povezivanje ovih karakteristika sa fenomenološkim i fizičkim veličinama, od kojih je najznačajnija negativna diferencijalna otpornost R_D .

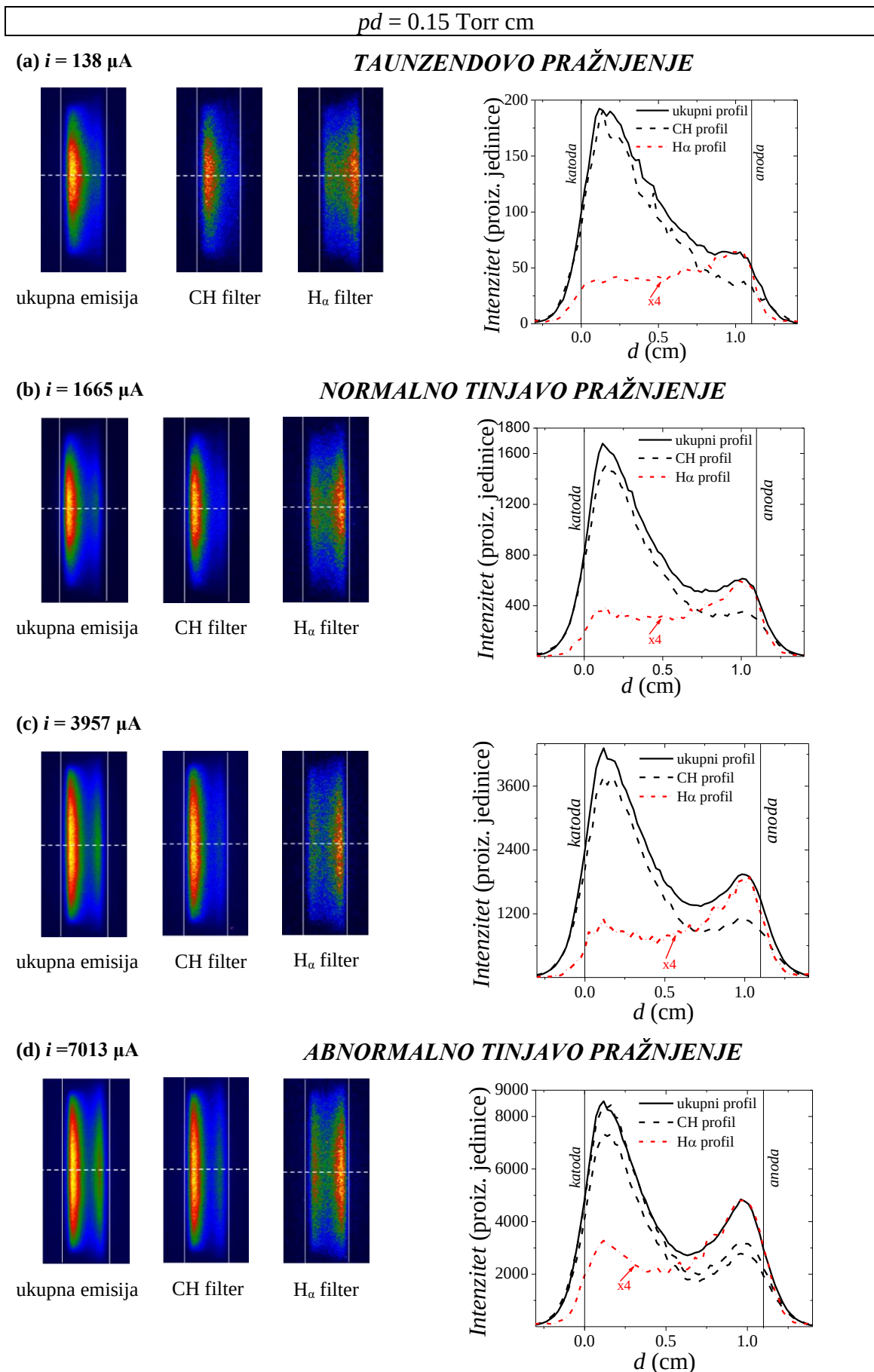
Na slici 3.13 se mogu uočiti dve oblasti na snimljenim V - I karakteristikama, u kojima je moguće uraditi linearni fit zavisnosti $\Delta V(i)$ (za lin–lin skalu). Oblast abnormalnog tinjavog pražnjenja, u kojoj napon raste sa porastom struje, može se aproksimirati pravom sa pozitivnim koeficijentom pravca. Drugi deo karakteristike koji se, takođe, može aproksimirati pravom, ali sa negativnim koeficijentom pravca, predstavlja oblast postojanja negativne diferencijalne otpornosti R_D , čija vrednost odgovara koeficijentu pravca. Negativna diferencijalna otpornost je posledica efekata prostornog naelektrisanja koji nastaju usled porasta struje pražnjenja (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993; Živanov *et al.*, 2000), kao i zavisnosti sekundarne emisije elektrona od struje i napona pražnjenja. Pozitivno prostorno naelektrisanje efektivno povećava električno polje ispred katode, čime eksponencijalno povećava jonizacioni koeficijent i prinos sekundarnih elektrona, što omogućava pražnjenju da stabilno radi na nižem naponu. Dakle, porast koncentracije prostornog naelektrisanja dovodi do nehomogenosti polja, koja sa svoje strane izaziva pad napona pražnjenja. Eksperimentalno izmerene negativne otpornosti za pražnjenje u pari metanola iznose $-31 \text{ k}\Omega$ za $pd = 0.15 \text{ Torr cm}$ i $-346 \text{ k}\Omega$ za $pd = 0.40 \text{ Torr cm}$.

Istovremeno sa vrednostima struje i napona snimljeni su vremenski integrisane aksijalne raspodele intenziteta emisije (aksijalni emisioni profili), koje odgovaraju kvazistacionarnom režimu pražnjenja u toku strujno-naponskog impulsa, u celom vidljivom spektru (slika 3.14 i slika 3.15). Takođe su snimljene i odgovarajuće spektralno razložene raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja, korišćenjem optičkih filtera na 431.2 nm (CH) i 656.4 nm (H_α). Raspodele intenziteta emisije prikazane na graficima izvučene su kao vektori intenziteta iz 2D slika, duž ose prikazane isprekidanom linijom (slika 3.14 i slika 3.15).

Aksijalna raspodela intenziteta emisije u Taunzendovom (slabostrujnom) pražnjenju za $pd = 0,15 \text{ Torr cm}$, snimljena integralno u celom vidljivom spektru (puna linija na slici 3.14), ima maksimum u oblasti ispred katode. Ovakav izgled je posledica ekscitacije i jonizacije gasa teškim česticama (jonima i brzim neutralima) u oblasti ispred katode, koja se javlja na većim vrednostima redukovano električnog polja E/N (u levoj grani Pašeneve krive, na manjim pd vrednostima). Sam oblik raspodele (emisionog profila) pokazuje da je, u ovoj oblasti, doprinos teških čestica procesima ekscitacije i jonizacije značajno veći od doprinosa elektrona.

Sa povećanjem struje povećava se i intenzitet emisije iz pražnjenja, odnosno maksimumi emisija ispred katode i anode postaju izraženiji. Nakon režima oscilacija pražnjenje ulazi u normalni tinjavi režim, a dalje povećanje struje je praćeno porastom napona, što je znak da je pražnjenje prešlo u abnormalni tinjavi režim rada. Maksimum emisije ispred anode (slika 3.14(d)) se sa povećanjem struje pomera ka katodi, što je posledica formiranja i razvoja katodnog pada. Naime položaj pika emisije ispred anode odgovara maksimumu negativnog svetljenja, koji se poklapa sa granicom katodnog pada (Marić *et al.*, 2002). Kako je na niskim pritiscima dužina katodnog pada približna rastojanju između elektroda ove promene se teže uočavaju, jer nisu jako izražene.

Zbog lakšeg poređenja sa profilima iz celog vidljivog spektra, u svim režimima je intenzitet H_α emisije iz pražnjenja pomnožen istim faktorom skaliranja ($k = 4$). Oblik raspodela intenziteta CH emisije (prikazane isprekidanom linijom) prati oblik raspodela u vidljivom spektru (puna linija) uz nešto intenzivniju emisiju u delu ispred katode, usled izraženog efekta teških čestica u ovoj oblasti (slika 3.14). U slučaju H_α emisije iz pražnjenja (prikazana crvenom crtica–tačka linijom) u Taunzendovom režimu, oblik raspodele intenziteta emisije je skoro zaravnjen sa nešto naglašenijim maksimumom ispred anode, što govori da se značaj doprinosa teških čestica procesima ekscitacije i jonizacije ne može zanemariti, ali da je doprinos elektrona ipak izraženiji. Sa porastom struje rastu i maksimumi emisije ispred elektroda, i jasno se može videti značajniji doprinos elektronske ekscitacije i jonizacije u H_α emisiji iz pražnjenja (naglašeniji pik ispred anode) (slika 3.14(b)(c)(d)).



Slika 3.14. Aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja u pari metanola, za $pd = 0.15 \text{ Torr cm}$, $V_b = 740 \text{ V}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$, koje odgovaraju karakterističnim režimima pražnjenja na V - I karakteristikama (slika 3.13a)). Raspodele intenziteta emisije (emisioni profili) su dobijene izvlačenjem intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom na 2D slikama. Na graficima su dati ukupni profili i profili dobijeni upotrebom optičkih filtera za CH na 431.2 nm i za H_α na

656.4 nm. H_α profili su pomnoženi odgovarajućim faktorom skaliranja radi lakšeg poređenja rezultata. Prilikom množenja nije održan relativni odnos intenziteta među profilima.

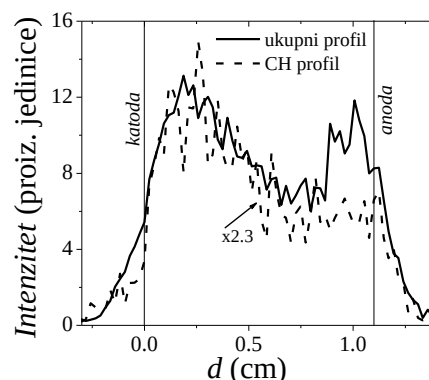
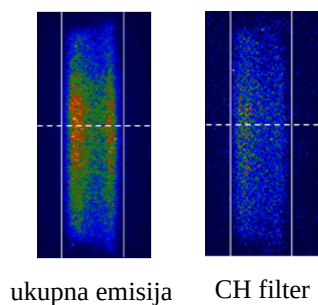
Na slici 3.15 prikazane su aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja koje odgovaraju minimumu Pašenove krive – $pd = 0.40$ Torr cm. Treba napomenuti da nije prikazan aksijalni profil koji odgovara H_α emisiji iz pražnjenja na struji od 3 μ A (slika 3.15(a)), jer je intenzitet emisije jako mali, pa se profil ne razlikuje od pozadinskog šuma. Iz oblika raspodela emisije snimljenih u celoj vidljivoj oblasti (prikazane punom linijom) se vidi da u procesima ekscitacije i jonizacije podjednako učestvuju i teške čestice i elektroni, odnosno da je njihov doprinos približno jednak. Ilustracija ovoga jesu pikovi intenziteta ispred elektroda. Usled porasta struje dolazi i do porasta maksimuma emisije u prielektrodnim oblastima. Nakon prolaska kroz režim oscilacija pražnjenje ulazi u normalni tinjavi režim rada u vidno konstrikovanom modu (slika 3.15(b) i (c)). U konstrikovanom modu je radijalna prostorna raspodela pražnjenja sužena i zauzima samo deo površine na elektrodi. Sa daljim porastom jačine struje dolazi od širenja provodnog kanala pražnjenja sve dok ne zauzme čitavu površinu elektrode (slika 3.15(c) i (d)). Za ovo vreme napon pražnjenja opada, iako se očekuje da bude približno konstantan, dok se proizvodnja naelektrisanih čestica obezbeđuje radijalnim širenjem pražnjenja pri konstantnoj gustini struje (Škoro *et al.*, 2008; Petrović i Phelps, 1997; Raizer, 1991). Ovakav blagi pad napona ukazuje na to da je preraspodela električnog polja i naelektrisanih čestica u toku razvoja katodnog pada, u normalnom tinjavom režimu, takva da dovodi do još ekonomičnijeg rada pražnjenja.

Sama pojava konstrikovanog moda pražnjenja (slika 3.15 (b) i (c)) je uslovljena postojanjem izrazito brzog porasta koeficijenta jonizacije sa električnim poljem. Zato u intervalu visokih vrednosti redukovano električnog polja E/N , usled blagog rasta koeficijenta jonizacije, na prelazu iz slabostrujnog difuznog u normalno tinjavo pražnjenje konstrikcija nije jako izražena (slika 3.14(b) i (c)). Takođe, visoki E/N odgovaraju levoj grani Pašenove krive, odnosno niskim pritiscima gasa, a širina provodnog kanala je direktno proporcionalna karakterističnoj dužini difuzije tj. srednjem slobodnom putu elektrona. Dodatno, treba napomenuti da je u ovim uslovima sama oblast normalnog tinjavog pražnjenja vrlo uska (slika 3.13a)). Ulazak u abnormalni režim pražnjenja okarakterisan je naglim porastom napona, pražnjenje ponovo postaje difuzno i zauzima celu površinu elektrode, a maksimum emisije ispred anode je još bliže pomeren ka katodi (slike 3.14(d) i 3.15(d)). Dakle, sa povećanjem jačine struje formira se katodni pad, čija se granica poklapa sa položajem pika emisije ispred anode (slike 3.14 i 3.15). U slučaju $pd = 0.40$ Torr cm je primećeno da na prelazu iz normalnog tinjavog u abnormalni režim, i na većim strujama u abnormalnom režimu dolazi do promene u struji i naponu u kvazistacionarnom režimu rada pražnjenja. Naime, nakon kratkog vremena (do par ms) rada pražnjenja napon raste, a struja opada, što se ogleda u pojavi „stepenika” u naponskom i strujnom signalu (detaljnije u glavi 5.2. Nagla promena režima pražnjenja u oblasti jakih struja u parama alkohola). Na slici 3.15 su u svim režimima pražnjenja intenziteti H_α emisije pomnoženi odgovarajućim faktorom skaliranja, dok je u slučaju CH emisije to urađeno samo za Taunzendov režim pražnjenja, a sve radi lakšeg poređenja sa profilima snimljenim u celom vidljivom spektru. Oblik raspodele CH emisije (prikazana isprekidanom linijom na slici 3.15) prati oblik ukupne raspodele emisije (puna linija). S druge strane, H_α emisijski profil (prikazan crvenom crtica–tačka linijom na slici 3.15) je u svim režimima pražnjenja dominantno eksponencijalan ka anodi. Dakle, u H_α emisiji procesi jonizacije i ekscitacije su dominantno indukovani elektronima.

$$pd = 0.40 \text{ Torr cm}$$

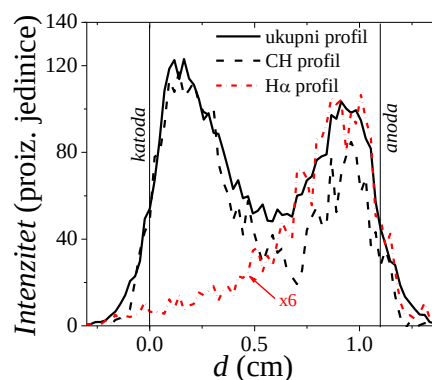
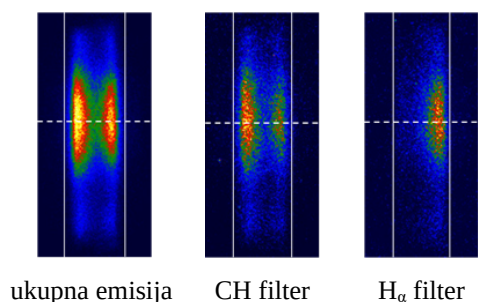
(a) $i = 3 \mu\text{A}$

TAUNZENDOVO PRAŽNJENJE

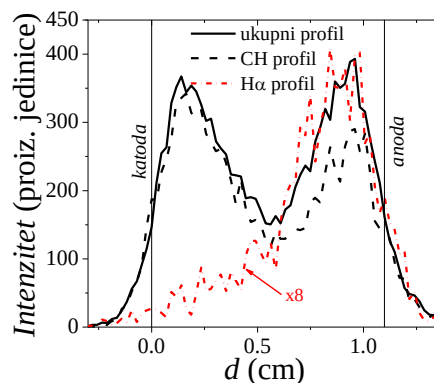
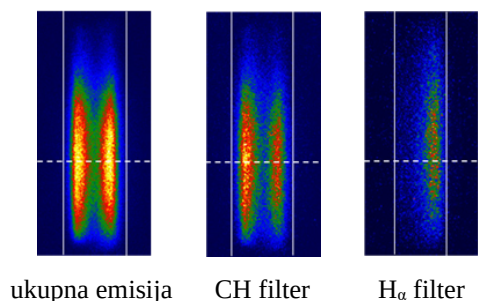


(b) $i = 183 \mu\text{A}$

NORMALNO TINJAVO PRAŽNJENJE

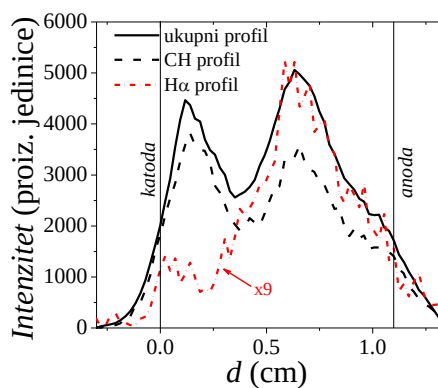
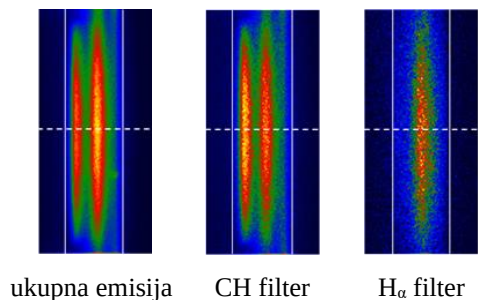


(c) $i = 793 \mu\text{A}$



(d) $i = 625 \mu\text{A}$

ABNORMALNO TINJAVO PRAŽNJENJE



Slika 3.15. Aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja u pari metanola, za $pd = 0.40 \text{ Torr cm}$, $V_b = 460 \text{ V}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$, koje odgovaraju karakterističnim režimima pražnjenja na V - I karakteristikama (slika 3.13b)). Raspodele intenziteta emisije (emisioni profili) su dobijene izvlačenjem intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom na 2D

slikama. Na graficima su dati ukupni profili i profili dobijeni upotrebom optičkih filtera za CH na 431.2 nm i za H α na 656.4 nm. CH i H α profili su pomnoženi odgovarajućim faktorom skaliranja radi lakšeg poređenja rezultata (faktori skaliranja su dati na graficima). Prilikom množenja nije održan relativni odnos intenziteta među profilima.

3.1.6 ZAKLJUČAK

U poglavlju 3.1. su dati rezultati merenja električnih i optičkih osobina proboja i različitih karakterističnih režima rada DC pražnjenja u pari metanola. Sva merenja probojnih napona (Pašenovih kriva) i odgovarajućih aksijalnih raspodela intenziteta emisije iz pražnjenja u širokom intervalu vrednosti pd , su urađena za dva međuelektrodna rastojanja: $d = 1.1$ cm i $d = 3.1$ cm.

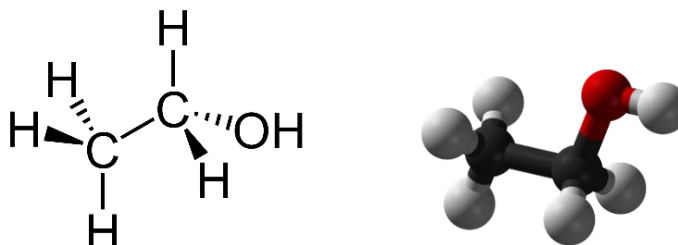
Snimljen je emisioni spektar iz pražnjenja u pari metanola, na elektrodnom rastojanju od 1.1 cm i pd vrednosti od 0.15 Torr cm, koji je pružio uvid u dominantne produkte disocijacije molekula metanola u pražnjenju i poslužio za izbor odgovarajućih optičkih filtera, koji su korišćeni za spektralno razložena snimanja emisije iz ovog pražnjenja.

Aksijalni emisioni profili su snimani i u celom vidljivom spektru i pomoću optičkih filtera, kojima su snimane aksijalne raspodele emisije na 431.2 nm (CH traka) i na 656.4 nm (H α linija). Na osnovu snimljenih aksijalnih raspodela emisije uočeno je da teške čestice (prvenstveno H atomi i CH radikali) imaju značajnu ulogu u probodu za široki opseg pd parametra ($E/N > 2.4$ kTd). Ovo je potvrđeno i poređenjem sa aksijalnim raspodelama intenziteta emisije snimljenim korišćenjem optičkih filtera koji odgovaraju talasnim dužinama emisije CH radikala i H atoma (H α linija). Takođe je iz aksijalnih profila emisije, snimanih za Pašenovu krivu, direktno određen jonizacioni koeficijent α , a zatim izračunat efektivni prinos sekundarnih elektrona γ_{eff} . Ovako dobijeni rezultati za koeficijent jonizacije su upoređeni sa postojećim podacima u literaturi i primećeno je da se u posmatranim intervalima rezultati zadovoljavajuće slažu. Što se tiče efektivnog prinosa sekundarnih elektrona, po našem saznanju ne postoje podaci u literaturi, tako da su ovde predstavljani prvi takvi rezultati.

Snimljene su i strujno-naponske karakteristike pražnjenja u različitim režimima za dve vrednosti parametra pd , na rastojanju $d = 1.1$ cm. Istovremeno su snimljene aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisioni profili) iz različitih režima pražnjenja u celom vidljivom spektru i sa CH i H α filterima. Pokazano je da prostorna struktura pražnjenja ima izraženi pik emisije ispred katode na niskom pritisku (veliko E/N), dok su na višem pritisku (malo E/N) primetne intenzivne oblasti emisije ispred katode i anode. Snimljeni profili CH emisije, za obe vrednosti pd parametra, su nešto manji po intenzitetu, ali po obliku prate profile pražnjenja snimljene u celom vidljivom spektru. S druge strane, profili H α emisije na višem pritisku su dominantno posledica ekscitacije elektronima, odnosno imaju eksponencijalni rast ka anodi za sve ispitane režime rada pražnjenja.

3.2 ETANOL C_2H_5OH

Etanol (etil alkohol) (slika 3.16) spada u primarne monohidroksilne alkohole, jer je hidroksilna grupa vezana za prvi – primarni atom ugljenika u alkilnoj grupi ($R - CH_2OH$). Najčešće se dobija fermentacijom sirovina biljnog porekla, koje u sebi sadrže ugljene hidrate, ili hidratacijom etilena. To je bezbojna, bistra, lako isparljiva i zapaljiva tečnost, koja ima specifičan miris i ukus, a u vodi je vrlo rastvorljiva. U industriji ima široku upotrebu, zbog svojih fizičkih i hemijskih svojstava. Prvenstveno se koristi u hemijskoj industriji za proizvodnju raznih rastvarača, boja, u kozmetičkoj i prehrambenoj industriji, za proizvodnju pića, a sve veću upotrebu nalazi i u industriji goriva. Etanol je u međuzvezdanom prostoru prvi put detektovan u Strelčevom B2 oblaku (eng. *Sagittarius B2*) 1975. godine (Zuckerman *et al.*, 1975), a 1995. godine je detektovan u međuzvezdanoj maglini G34.3 koja je udaljena 10 000 svetlosnih godina i nalazi se u sazvežđu Akuila (eng. *Aquila*) (Millar *et al.*, 1995). Ovo je bio prvi slučaj detekcije tako velike količine etanola sadržane u nekom nebeskom telu. Maglina G34.3 ima 1000 puta veći prečnik od našeg Sunčevog sistema i sadrži dovoljno alkohola da sa približno 150 000 litara piva snabde svakog dana, svaku pojedinačnu osobu na Zemlji, u narednih milijardu godina (Browne, 1995). Početkom 2015. godine etanol je po prvi put u istoriji detektovan na kometi, radi se o kometi C/2014 Q2 – Lovejoy, koja je poreklom iz Ort oblaka (eng. *Oort cloud*) (Bockelée-Morvan *et al.*, 2015). Ovo je jako interesantno, ako se uzme u obzir da komete predstavljaju jedan vid najstarijeg i najprimitivnijeg materijala u Sunčevom sistemu, pored leda, te stoga mogu dati uvid u isparljivi sastav solarnog protoplanetarnog diska, kao i odgovore na pitanja o načinu nastanka planeta i živog sveta. S druge strane, u izdahu zdravih osoba mogu se pronaći male količine endogenog etanola i acetaldehida (etanal), koje u organizmu nastaju u toku metaboličkih procesa (Turner *et al.*, 2006).



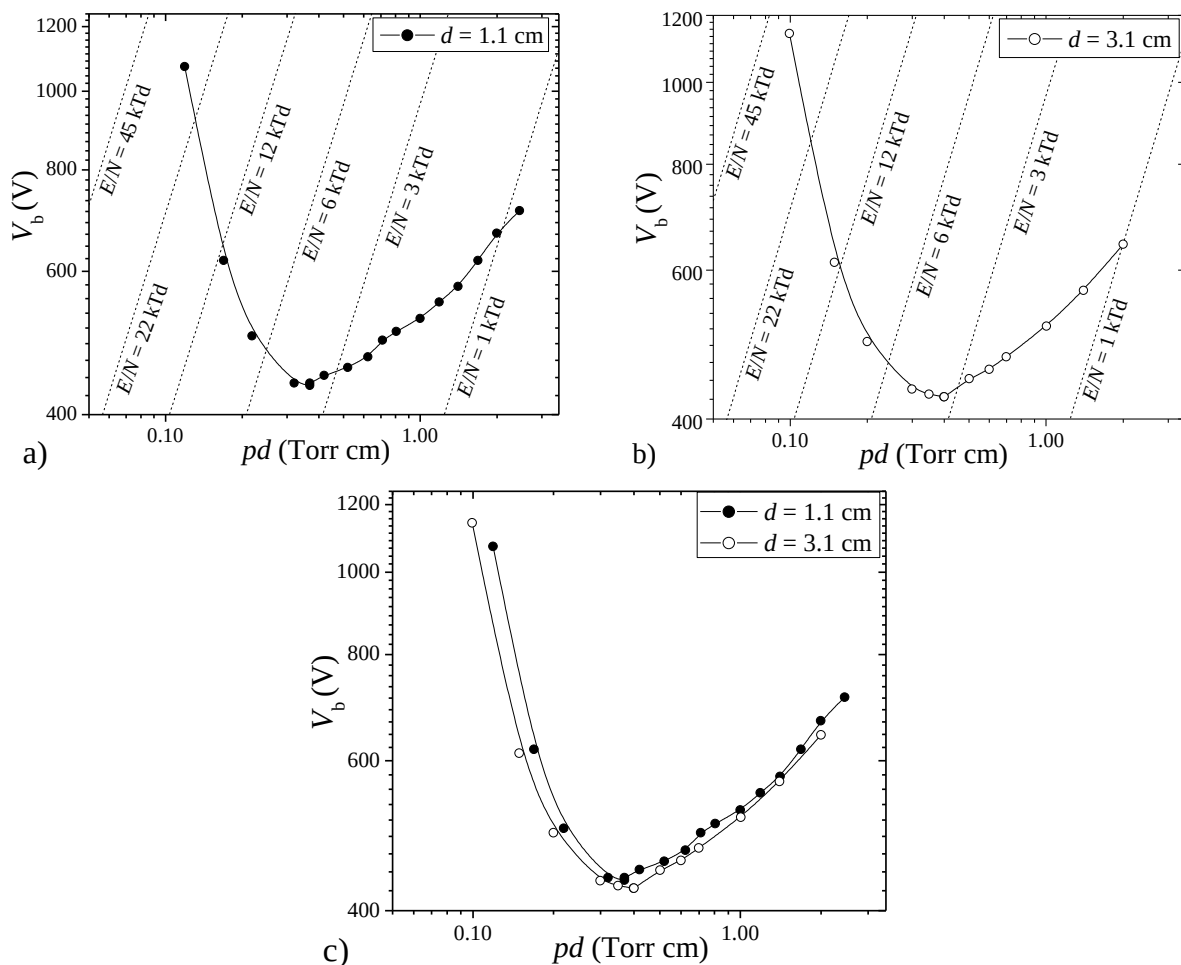
Slika 3.16. Etanol: levo – strukturna formula i desno – model molekula

Za dobijanje pare u našem eksperimentu je korišćen etanol čistoće 95% ($M = 46.07$ g/mol). Glavnu nečistoću u etanolu predstavlja voda, dok su ostale nečistoće, kao što su aceton, aldehidi, metanol, mravlja kiselina, prisutne samo u tragovima ($< 0.001\%$). Usled ovoga u pražnjenju je prisutan mali procenat vodene pare. Pritisak pare etanola na sobnoj temperaturi ($T = 25^\circ C$) iznosi 59 Torr ($1 \text{ Torr} = 133.322 \text{ Pa}$).

Za paru etanola su izmerene Pašenove krive, odnosno zavisnost probojnog napona V_b od proizvoda pritiska p i međuelektrodnog rastojanja d , za širok opseg pd vrednosti. Zajedno sa probojnim naponom snimljene su i odgovarajuće aksijalne raspodele intenziteta emisije iz slabostrujnog pražnjenja. Snimljeni emisijski spektar je poslužio za odabir odgovarajućih optičkih filtera koji su korišćeni u merenju spektralno razloženih raspodela emisije iz pražnjenja. Koeficijenti jonizacije α i sekundarne emisije elektorna γ dobijeni su na osnovu raspodela intenziteta emisije u slabostrujnom pražnjenju. Takođe su snimljene i strujno-naponske karakteristike za široki opseg struja, u minimumu i levoj grani Pašenove krive. Ova merenja su praćena i snimanjem prostorne raspodele pražnjenja u različitim režimima rada.

3.2.1 MERENJE PROBOJNOG NAPONA – PAŠENOVE KRIVE

Za pražnjenje u pari etanola, zavisnost probojnog napona od proizvoda pritiska p i međuelektrodnog rastojanja d je snimana za dve različite vrednosti d : 1.1 i 3.1 cm. Dobijene Pašenove krive i vrednosti redukovano električnog polja E/N su prikazane na slici 3.17. Kao i u slučaju metanola, krive imaju standardni oblik. Merenja su obuhvatila opseg pd vrednosti od 0.10 do 2.50 Torr cm, dok je struja u toku merenja iznosila 1 μ A. Minimalni probojni napon za paru etanola, odnosno minimum Pašenove krive iznosi 435 V na $pd = 0.35$ Torr cm za rastojanje od 1.1 cm (slika 3.17a)), odnosno 425 V na $pd = 0.40$ Torr cm za rastojanje od 3.1 cm (slika 3.17b)), što odgovara vrednostima redukovano električnog polja E/N od 4 kTd i 3 kTd, respektivno.



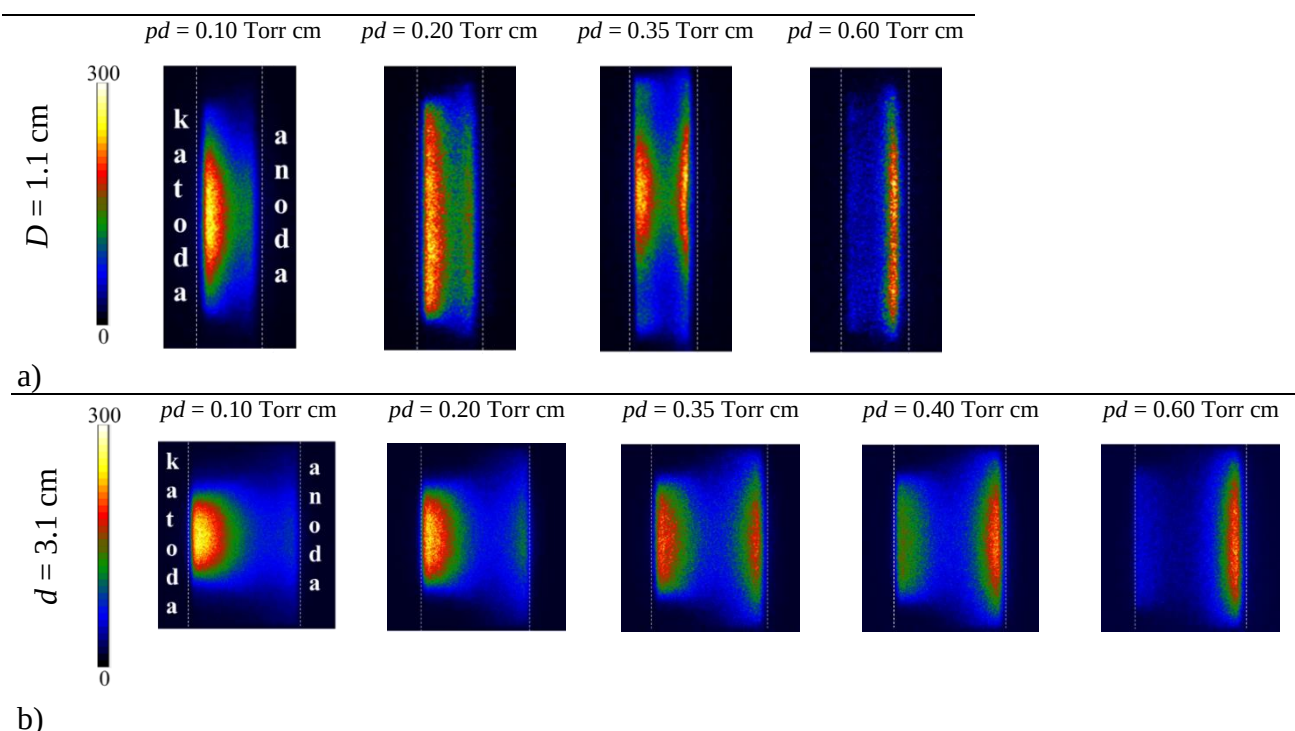
Slika 3.17. Pašenove krive pražnjenje u pari etanola na međuelektrodnim rastojanjima od a) 1.1 cm, b) 3.1 cm i c) grafik oba seta rezultata na jednoj slici kako bi se proverilo važenje pd skaliranja.

Kao i u slučaju metanola, pražnjenje radi stabilno do $pd = 0.70$ Torr cm, dok na vrednostima iznad 0.70 Torr cm upada u relaksacione (uređene) oscilacije. Kada pražnjenje radi u režimu relaksacionih oscilacija moguće je odrediti probojni napon (Marić, 2006; Marić *et al.*, 2009). Relaksacione oscilacije je moguće indukovati do vrednosti $pd = 2.50$ Torr cm, za 1.1 cm i $pd = 2.00$ Torr cm, za 3.1 cm, ali iznad ovih vrednosti pd parametra, pražnjenje odmah nakon proboja upada u režim slobodnih oscilacija, iz kojih se ne mogu odrediti probojni naponi korišćenjem tehnike prethodno opisane u odeljku 2.2.3. U toku merenja, kao i za dobijanje relaksacionih oscilacija, korišćene su kombinacije otpornika različitih otpornosti R_s i R_m ($R_s = 7$ k Ω , 560 k Ω , 1.2 M Ω i 5 M Ω i $R_m = 20$ k Ω , 100 k Ω , 500 k Ω , 1 M Ω , 2 M Ω i 10 M Ω). Na slici 3.17 c) pokazane su obe krive na jednom grafilu. Krive se dobro slažu, a to upravo ukazuje na važenje pd skaliranja, što je i očekivano, te

mnogo više govori o unutrašnjoj konzistentnosti eksperimenta u kojem su uklonjene zone rada u kojima bi se narušilo ovo skaliranje.

3.2.2 PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA

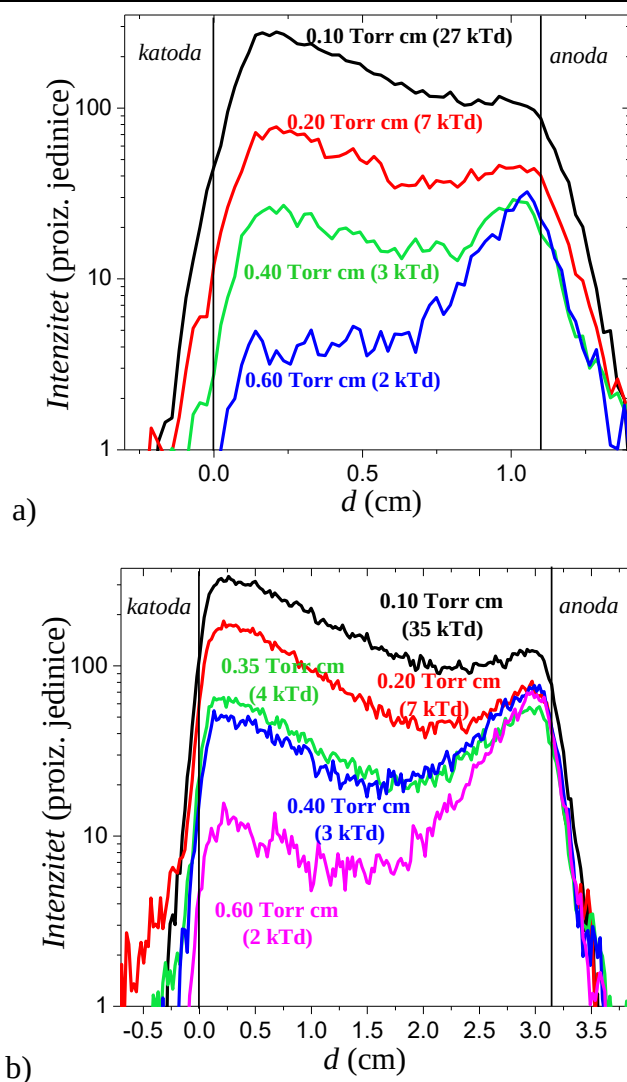
U slabostrujnom pražnjenju u pari etanola snimljene su 2D slike prostorne raspodele emisije, integrisane u celom vidljivom opsegu. Snimanje je urađeno ICCD kamerom koja je postavljena normalno na osu komore (bočno). Ovako snimljene 2D slike su korišćene za dobijanje aksijalnih raspodela intenziteta emisije iz pražnjenja (aksijalnih emisijonih profila). Na slici 3.18 prikazane su 2D slike raspodele emisije iz pražnjenja u pari etanola za dva međuelektordna rastojanja a) 1.1 cm i b) 3.1 cm, dok slika 3.19 prikazuje odgovarajuće aksijalne emisijne profile.



Slika 3.18. 2D raspodele emitovane svetlosti integrisane u celo vidljivom opsegu iz slabostrujnog pražnjenja u pari etanola a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm.

Sa 2D slika, za oba međuelektordna rastojanja, se može videti da je oblast maksimalnog svetljenja ispred katode, što govori da su u pražnjenju dominantni procesi indukovani teškim česticama. Primetno je da i na srednjim vrednostima redukovano električnog polja E/N (oko 3 kTd), u minimumu Pašenove krive (0.35 i 0.40 Torr cm), teške čestice (joni, neutrali) stižu dovoljno energije da učestvuju u procesima ekscitacije, pa čak i jonizacije, što je tipično ponašanje koje se javlja na velikim vrednostima E/N (Petrović *et al.*, 1992; Petrović i Phelps, 2009).

S druge strane, iz aksijalnih raspodela intenziteta pražnjenja (slika 3.19), vidi se da sa povećanjem vrednosti parametra pd (0.35, 0.40 i 0.60 Torr cm), odnosno sa povećanjem pritiska p (kojima odgovara niže E/N), raste intenzitet emisije ispred anode. Ovo govori da na većim pritiscima, a manjim E/N , procesi ekscitacije i jonizacije indukovani elektronima postaju sve zastupljeniji.



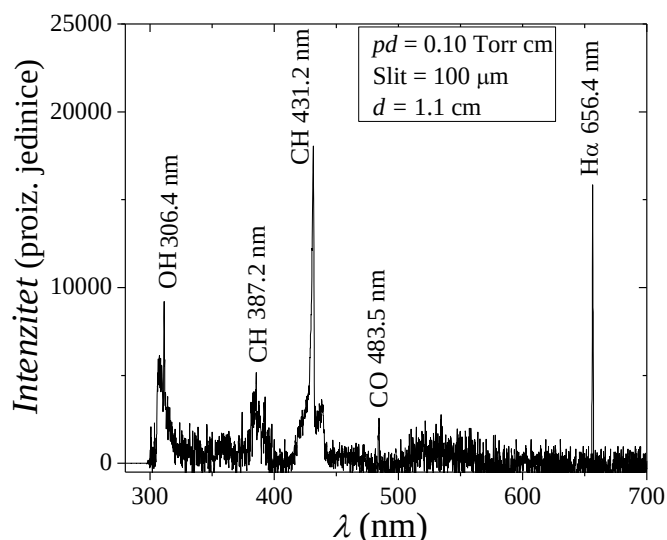
Slika 3.19. Aksijalne raspodele intenziteta emisije slabostrujnog pražnjenja u pari etanola za a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm, koje odgovaraju 2D raspodelama emitovane svetlosti sa slike 3.18 a) i 3.18 b), respektivno.. Na graficima je u zagradama naznačena vrednost redukovano električnog polja (E/N) na datom pd .

3.2.3 SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA

Snimanje optičkog emisionog spektra, koji je prikazan na slici 3.20, omogućilo je odabir odgovarajućih optičkih filtera koji su koršćeni za spektralno razložena snimanja prostorne raspodele emisije kao i identifikaciju različitih vrsta čestica koje postoje u pražnjenju. Emisioni spektar je sniman na $pd = 0.10$ Torr cm i jako maloj struji ($3 \mu\text{A}$), odnosno u pražnjenju koje radi u Taunzendovom režimu. U spektralnom opsegu od 300 – 700 nm detektovane su sledeće emisije: OH, CH, CO i H_α (vodonikova linija Balmerove serije). Dodatno, ako se pogleda bazna linija spektra, može se primetiti pik u intervalu talasnih dužina od 500 nm do 600 nm, koji može biti posledica CO_2 kontinuma (Gaydon, 1974), emisije CO trake (Poncin-Epaillard i Aouinti, 2002) ili emisije C_2 Svanove trake (eng. *Swan band*) (Gaydon, 1974). Kao i u slučaju metanola, sve posmatrane emisije vode poreklo od pobuđenih vrsta čestica koje su proizvodi disocijativne ekscitacije polaznog (roditeljskog) molekula (Levko *et al.*, 2012; Yanguas-Gil *et al.*, 2004; Reyes *et al.*, 2016; Donohue *et al.*, 1977), kao dominantnog mehanizma u ekscitaciji složenih molekula ove vrste. U ovim reakcijama nastaju vodonikovi atomi, ali i neki teži pobuđeni disocijativni fragmenti (OH, CH kao i C_xH_y). Kao što je ranije primećeno u pražnjenjima u etanolu (Yanguas-Gil *et al.*, 2004; Reyes *et al.*, 2016; Suda *et al.*, 2009; Levko *et al.*, 2012) može doći do formiranja CO od molekula etanola bilo u sudarima sa elektornima ili radikalima i molekulima vode. Naime, u ovim

reakcijama usled udara elektrona dolazi do odvajanja atomskog vodonika iz molekula etanola, kao i eventualno do raskidanja C – C veze.

Kao i kod metanola, emisija CH radikala je najintenzivnija za sistem $A^2\Delta \rightarrow X^2\Pi$ sa čelom trake na 431.2 nm (Gaydon, 1974; Malović, 1999). Što se tiče emisije na 387.2 nm ona potiče od 3900 Å sistema $B^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$ (Gaydon, 1974; Yanguas-Gil *et al.*, 2004). Kao i kod metanola, emisija na 306.4 nm potiče od OH radikala (Liu *et al.*, 2007; Stocer *et al.*, 2001; Mašlani i Sember, 2014).



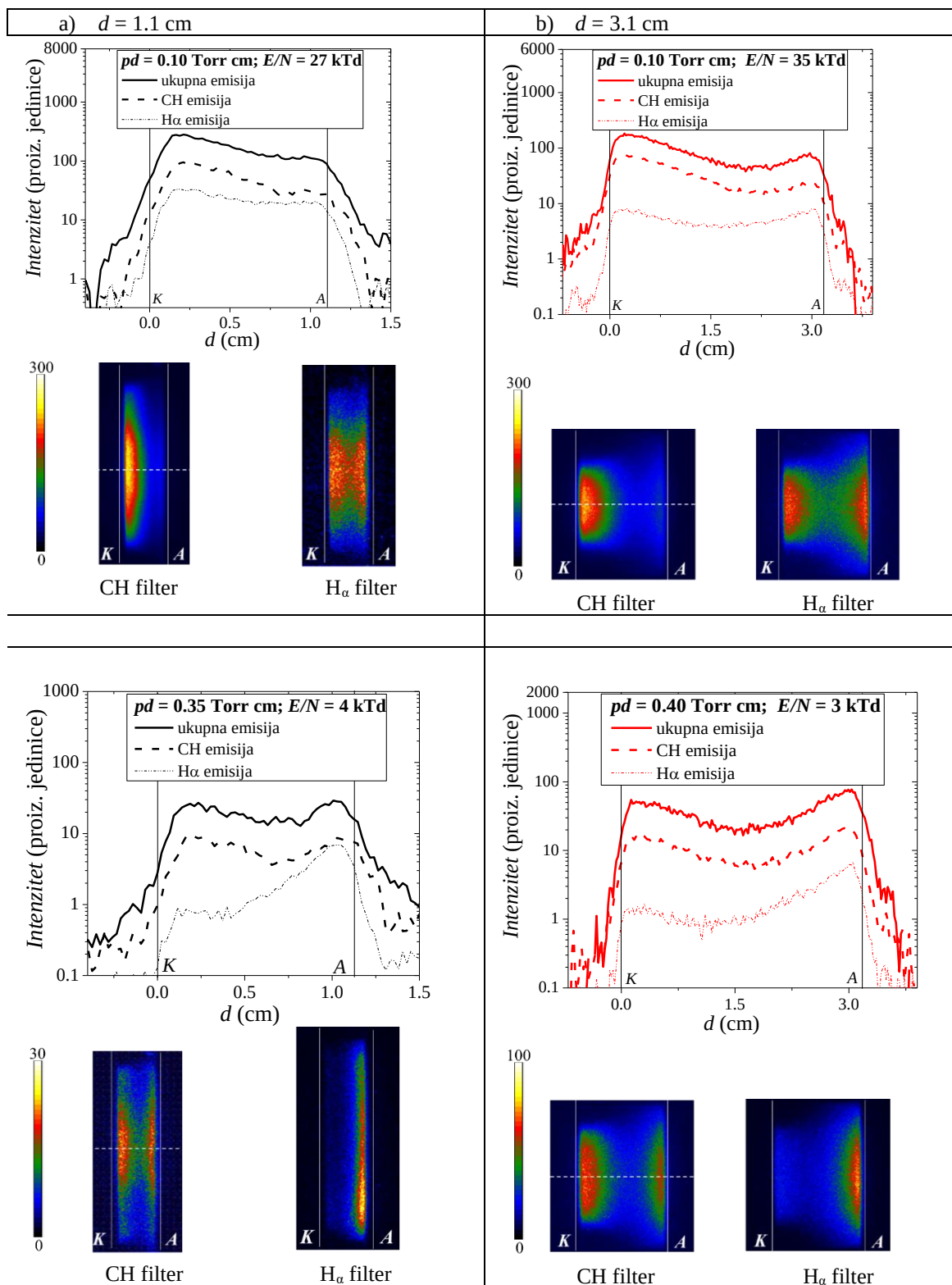
Slika 3.20. Optički emisioni spektar pražnjenja u pari etanola na $pd = 0.10$ Torr cm i rastojanju $d = 1.1$ cm ($V_b = 705$ V; $i = 3$ μA). Širina slita spektrografa je 100 μm.

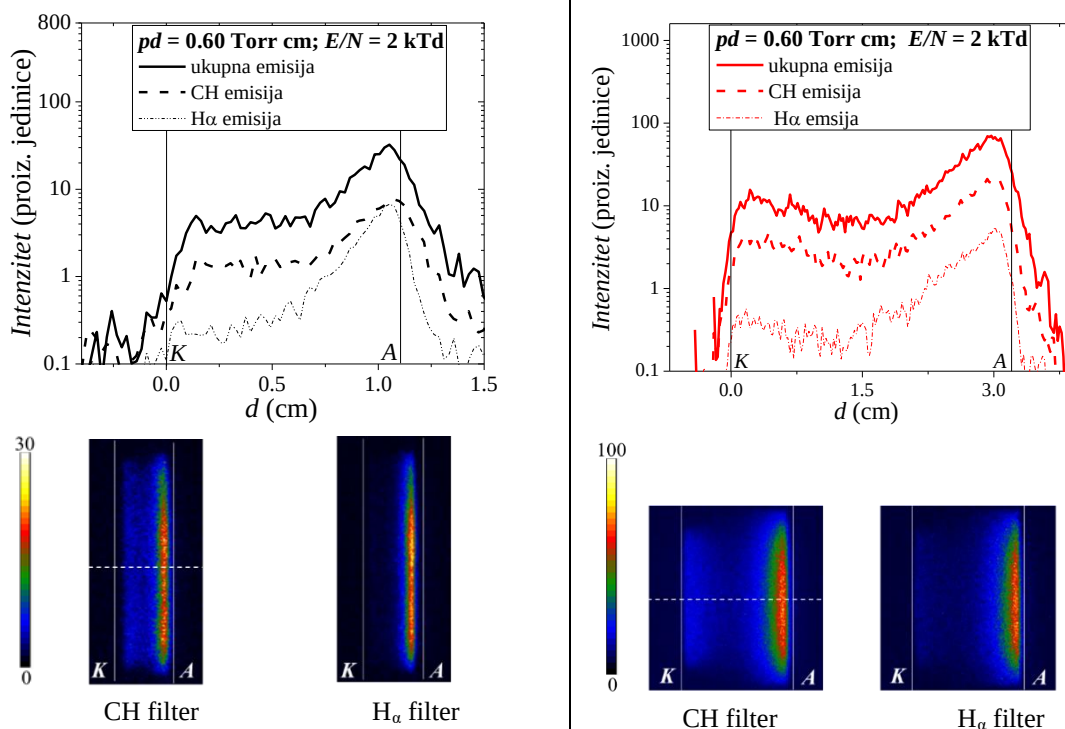
Pored emisionog spektra snimljena je i prostorna raspodela emisije pojedinih traka iz pražnjenja u pari etanola. Snimanja su obuhvatila prostorne raspodele (profile) ukupne emisije u celom vidljivom spektru i prostorne raspodele dobijene korišćenjem optičkih filtera u uskom intervalu talasnih dužina, oko najintenzivnijih uočenih emisija iz vidljivog dela spektra: 431.2 nm (CH) i 656.4 nm (H_α). Aksijalni emisijni profili prikazani na slici 3.21 su izvučeni duž ose pražnjenja (isprekidana linija na 2D slikama) sa 2D slika emisije integrisane u celom vidljivom opsegu i filtrirane CH i H_α optičkim filterima. Profili snimljeni za pd vrednosti od 0.10 do 0.60 Torr cm prikazuju kako promena jačine redukovanoeg električnog polja $E/N(pd)$ utiče na strukturu i osnovne procese u pražnjenju (slika 3.21). Kako je tokom ovih snimanja pražnjenje radilo u limitu slabih struja, odnosno u Taunzendovom režimu gde je gustina prostronog naelektrisanja zanemarljiva pa je električno polje u prostoru između elektroda skoro homogeno (Živanov *et al.*, 2000), očekivan je eksponencijalni porast emisije prema anodi, jer elektroni stiču dovoljno energije za procese ekscitacije u sudarima sa neutralima. Međutim, prikazani integrisani emisijni profili (puna linija) za sve vrednosti pd parametra imaju primetan maksimum emisije u oblasti ispred katode. Felps je zajedno sa svojim saradnicima pokazao da je upravo ekscitacija teškim česticama (brzim neutralima) dominantan uzrok emisije u katodnoj oblasti (Petrović *et al.*, 1992; Marić *et al.*, 2003). Primetno je i to da CH emisijni profil (isprekidana linija) oblikom prati integrisane profile (puna linija), dok H_α emisija (crtica – tačka linija) ima drugačiji oblik i znatno je manjeg intenziteta u poređenju sa CH emisijom.

U levoj grani Pašenove krive na 0.10 Torr cm (slika 3.21 a) i b)), procesi ekscitacije su dominantno indukovani teškim česticama (maksimum intenziteta emisije ispred katode). To se vidi i na CH emisionom profilu kroz postojanje pika emisije ispred katode. Sa povećanjem pritiska pik ukupne emisije u blizini anode, koji se pojavljuje na $pd = 0.35$ i 0.40 Torr cm i dostiže maksimalni intenzitet na $pd = 0.60$ Torr cm (malo E/N) (slika 3.21 a) i b)), nastaje usled procesa ekscitacije u sudarima elektrona i neutrala. Dodatno, oblik H_α emisionog profila (crtica – tačka linija) poprima eksponencijalni izgled, što sugerise da su vodonikovi atomi uglavnom pobuđeni procesima

3. Proboj i pražnjenja u parama alkohola

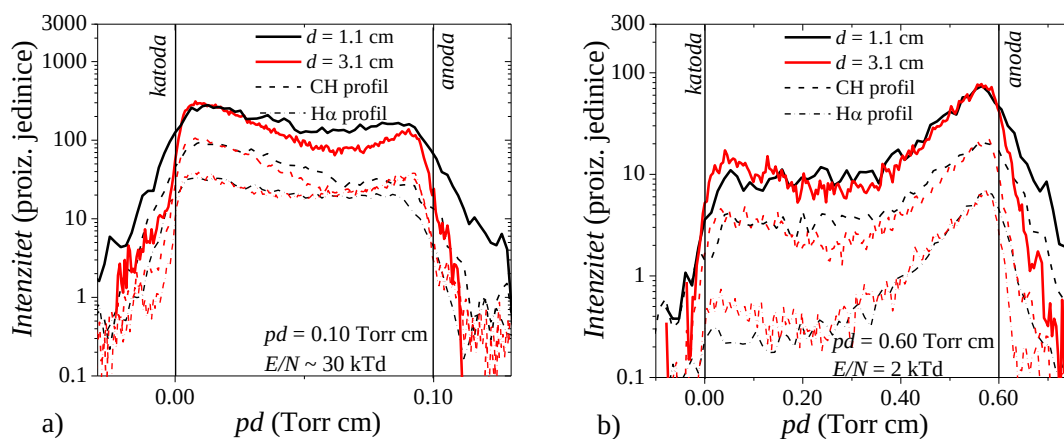
elektronske ekscitacije. Međutim, na nižim pd (većim E/N) vodonikovi atomi se takođe ekscituju u sudarima sa teškim česticama.





Slika 3.21. Aksijalne raspodele intenziteta ukupne, CH i $H\alpha$ emisije u Taunzendovom pražnjenju u intervalu pd vrednosti od 0.10 do 0.60 Torr cm. Merenja su urađena za a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm. Ispod grafika su prikazane 2D slike emisije snimljene korišćenjem CH i $H\alpha$ optičkih filtera.

Slika 3.22 prikazuje rezultate za dve vrednosti pd parametra 0.10 Torr cm (leva grana Pašenove krive) i 0.60 Torr cm (desna grana Pašenove krive) na međuelektrodnim rastojanjima od 1.1 i 3.1 cm. Ovde su raspodele emisije skalirane po parametru pd (d je rastojanje od katode) tako da je omogućeno poređenje raspodela intenziteta emisije na različitim rastojanjima elektroda/pritiscima tj. različitim vrednostima redukovanog električnog polja E/N . Na malim vrednostima pd i visokim E/N , teške čestice, joni i neutrali, dobijaju dovoljno energije da bi vršili ekscitaciju, pa čak i jonizaciju. Tako na $pd = 0.10$ Torr cm procesi indukovani teškim česticama (pretežno brzim neutralima) dominiraju nad elektronskim procesima, što se ogleda u emisionom profilu čiji je pik ispred katode (slika 3.22 a)).



Slika 3.22. Aksijalne raspodele intenziteta emisije Taunzendovog pražnjenja u pari etanola snimljene u a) levoj grani Pašenove krive ($pd = 0.10$ Torr cm) i b) desnoj grani Pašenove krive ($pd = 0.60$ Torr cm). Na x - osi prikazan je proizvod rastojanja katode d i pritiska p kako bi se omogućilo poređenje raspodela koje su snimljene na istom pd , ali na različitim međuelektrodnim rastojanjima. Punim linijama su prikazane raspodele emisije integrisane u vidljivom delu spektra, a isprekidanom linijom su prikazane raspodele emisije snimljene upotrebom CH optičkog filtera.

Ovi brzi neutrali uglavnom nastaju u sudarima brzih jona sa molekulima pozadinskog gasa u kojima dolazi do prenosa naelektrisanja (Marić *et al.*, 2003; Petrović i Stojanović, 1998). Ovi procesi se češće javljaju na nižim pritiscima/većim E/N (leva grana Pašenove krive), jer na višim pritiscima usled čestih sudara joni ne uspevaju da se dovoljno ubrzaju (veliki deo energije se gubi u sudarima).

U slučaju pare etanola, uloga teških čestica u procesima ekscitacije i jonizacije najverovatnije pripada brzim H atomima i nekim težim proizvodima disocijacije (OH, CO i CH vrstama). Spektralno razložena snimanja emisije optičkim filterima pokazuju da najveći deo emisije u vidljivom opsegu potiče od CH radikala i H atoma, što je verovatno pre posledica disocijativne ekscitacije nego ekscitacije osnovnog stanja (Tennyson *et al.*, 2017; Sivoš *et al.*, 2019).

U desnoj grani Pašenove krive, na $pd = 0.60$ Torr cm, primetan je pik u intenzitetu emisije ispred anode koji ukazuje na elektronsku ekscitaciju (slika 3.22 b)). S druge strane, H_α raspodela intenziteta emisije (slika 3.22 d)) ima tipični eksponencijalni porast intenziteta emisije u većem delu oblasti od katode ka anodi, što je posledica elektronske ekscitacije, sa uočljivim nehidrodinamičkim (neravnotežnim) regionom u blizini katode (Marić *et al.*, 2014; Malović *et al.*, 2003). Rezultati prikazani na slici 3.22 ukazuju da su osnovni procesi koji regulišu proboj i slabostrujna pražnjenja isti za iste vrednosti pd , za opseg rastojanja između elektroda koji je ovde prikazan, što govori da je i struktura pražnjenja nepromenjena.

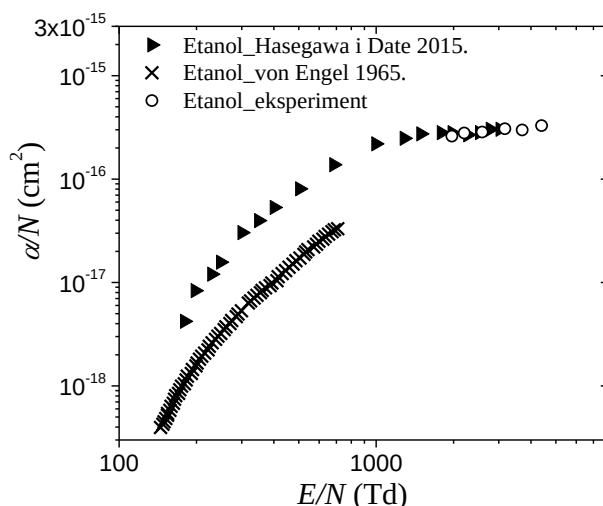
3.2.4 ODREĐIVANJE JONIZACIONOG KOEFICIJENTA α I KOEFICIJENTA SEKUNDARNE EMISIJE ELEKTRONA γ

U pražnjenju u pari etanola, koeficijent jonizacije α je jedino bilo moguće odrediti u intervalu redukovano polja E/N oko minimuma Pašenove krive, jer na većim vrednostima E/N efekti ekscitacije teškim česticama zaklanjaju emisioni profil elektronske ekscitacije. S druge strane, na višim pritiscima (nižim E/N) u desnoj grani Pašenove krive pražnjenje nije moglo da radi u stabilnom slabostrujnom režimu, pa se ni ovi aksijalni emisioni profili nisu mogli koristiti za određivanje koeficijenta α . Usled ovakvih ograničenja, u našem eksperimentu je bilo moguće odrediti jonizacione koeficijente samo u opsegu redukovano polja od 1.5 kTd do 3.3 kTd.

Na slici 3.23 je praznim krugovima prikazana zavisnost efektivnog jonizacionog koeficijenta α/N od redukovano polja E/N (Sivoš *et al.*, 2018). Takođe su prikazani i rezultati za jonizacioni koeficijent u etanolu iz literature (Hasegawa i Date, 2015; von Engel, 1965), koji obuhvataju oblast znatno nižih vrednosti redukovano polja E/N . Rezultati za jonizacioni koeficijent prikazani u radu Hasegave i Datea obuhvataju interval redukovano polja od 100 do 3000 Td, dok je u radu fon Engela jonizacioni koeficijent određen za interval redukovano polja od 140 do 700 Td.

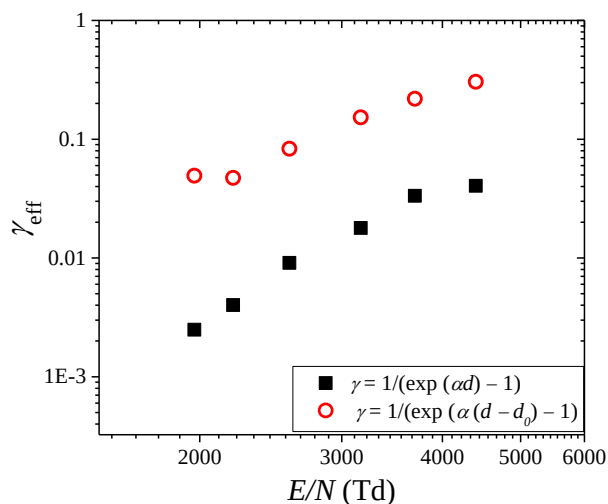
Sa slike 3.23 se vidi da, iako rezultati za jonizacioni koeficijent u radovima Hasegave i fon Engela obuhvataju isti opseg E/N , oni se međusobno razlikuju, odnosno jonizacioni koeficijenti prikazani u radu fon Engela su dosta manji od onih koji su dati u radu Hasegave i Datea. Ovo može biti posledica razlike u primenjenim eksperimentima, tehnici merenja, čistoći korišćenog uzorka etanola kao i u održavanju potrebne čistoće pare u toku rada pražnjenja i u toku samog merenja. Naime, u radu fon Engela, odnosno u radu Rejtera (Raether, 1937) je napomenuto da je u merenjima korišćen 96% etanol, kao i dehidratizovani etanol (eng. *anhydrous*) tzv. suvi etanol, koji odgovara apsolutnom etanolu čistoće 99.5%, i da su u oba slučaja vrednosti dobijenih rezultata iste. Hasegava i Date su u svojim merenjima koristili 99.5% etanol, dok je u našem eksperimentu korišćen 95% etanol. Dakle u slučaju rezultata Hasegave i fon Engela, može se zaključiti da je razlika u vrednostima jonizacionog koeficijenta najverovatnije posledica razlike korišćenih

eksperimenata/tehnika merenja. Naši rezultati za jonizacioni koeficijent u etanolu se dobro slažu sa rezultatima Hasegave i Datea za opseg vrednosti redukovanog električnog polja od 1.5 do 3 kTd.



Slika 3.23. Zavisnost efektivnog jonizacionog koeficijenta (α/N) od jačine redukovanog električnog polja (E/N) u pari etanola.

Na slici 3.24 prikazane su vrednosti efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona u pari etanola za uski interval vrednosti E/N od 1.5 kTd do 3.3 kTd dobijene na osnovu naših merenja jonizacionih koeficijenata i probojnog napona. Na grafiku su date vrednosti koeficijenta γ_{eff} bez (označene crnim kvadratima) i sa uračunatom dužinom uravnoteženja d_0 (označene crvenim praznim krugovima). Ne uračunavanje dužine nehidrodinamičke oblasti d_0 u koeficijent sekundarne emisije elektrona za posledicu ima značajnu razliku u vrednostima koeficijenta γ i dovodi do velike greške, jer se d_0 nalazi u eksponentu.

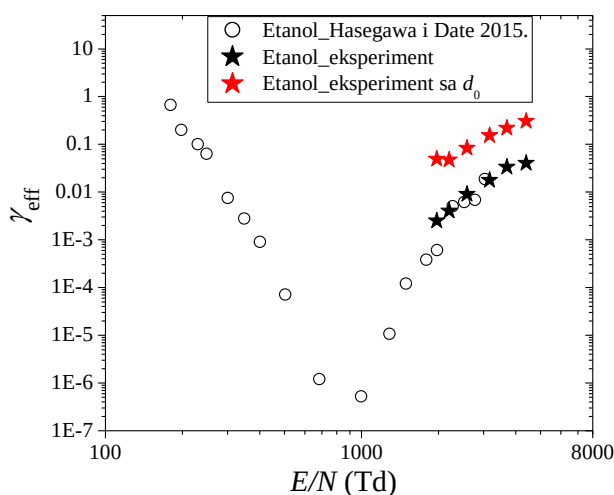


Slika 3.24. Zavisnost efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona γ_{eff} od redukovanog električnog polja E/N u pražnjenju u pari metanola (bakarna katoda). Prikazane su vrednosti za γ_{eff} koje su dobijene bez uračunavanja dužine uravnoteženja d_0 (crni kvadrati) i sa uračunavanjem d_0 (crveni prazni krugovi).

Kako je vrednosti za jonizacioni koeficijent i koeficijent sekundarne emisije elektrona u našem eksperimentu bilo moguće odrediti samo u uskom intervalu vrednosti redukovanog električnog polja, zbog uticaja teških čestica, mi smo u cilju proširivanja posmatranog intervala E/N izračunali koeficijent γ (otvoreni krugovi na slici 3.25) koristeći podatke za jonizacioni koeficijent date u radu Hasegave i Datea (2015) i Pašenovu krivu izmerenu u našem eksperimentu. U ovom slučaju poređene su vrednosti za γ bez uračunavanja dužine nehidrodinamičke oblasti d_0 . (slika 3.25). Ovako dobijeni koeficijent γ je upoređen sa rezultatima iz našeg eksperimenta (slika 3.25). Koliko je nama poznato u literaturi nema podataka vezanih za koeficijent sekundarne emisije elektrona u

etanolu. U intervalu jačina redukovanog električnog polja od 2.5 do 3 kTd rezultati dobijeni na osnovu rada Hasegave i Datea (slika 3.25–otvoreni krugovi) se poklapaju sa našim izmerenim rezultatima (slika 3.25–crne zvezdice).

Hasegava u radu navodi da je pritisak menjan u intervalu od 0.4 do 11 Torr, a rastojanje između elektroda od 0.2 do 1.5 cm. Za razliku od našeg eksperimenta u kome je katoda od bakra, u njihovom eksperimentu je korišćena katoda u čijoj sredini se nalazi ugrađena kvarcna ploča na koju je naparen tanak sloj zlata (debljine 50 nm) (Hasegawa *et al.*, 1985). Dakle, iako su u pitanju različiti eksperimenti ono što se može primetiti je to da u određenom opsegu redukovanog električnog polja dolazi do preklapanja rezultata za jonizacioni koeficijent Hasegave i Datea sa našim rezultatima, pa samim tim i do preklapanja rezultata dobijenih za koeficijent sekundarne emisije elektrona (rezultati bez uračunavanja d_0 – crne zvezdice i otvoreni krugovi na slici 3.25). Ali kada se u obzir uzme dužina nehidrodinamičke oblasti d_0 , vrednost koeficijenta sekundarne emisije se značajno menja i za nekoliko redova veličine (crvene zvezdice na slici 3.25), čime se lepo ilustruje koliku razliku pravi zanemarivanje dužine ekvibracije u izračunavanju γ_{eff} . Ovde teba napomenuti da je prednost naše tehnike za određivanje γ_{eff} u tome što se iz prostornih raspodela emisije može odrediti d_0 pa samim tim i koeficijent γ_{eff} koji neće varirati zavisno od uslova u pražnjenju.



Slika 3.25. Poređenje rezultata za zavisnost γ_{eff} (E/N) u pražnjenju u pari etanola dobijenih u našem eksperimentu i proračunatih iz rezultata za efektivni jonizacioni koeficijent iz rada Hasegave i Datea (2015). Poređenje rezultata : (prazni krugovi) – γ_{eff} iz rada Hasegave i Datea (2015) izračunati na osnovu naše Pašenove krive za etanol; (crne zvezdice) – γ_{eff} iz našeg eksperimenta bez uračunavanja dužine nehidridinamičke oblasti d_0 i (crvene zvezdice) – γ_{eff} iz našeg eksperimenta sa uračunim d_0 .

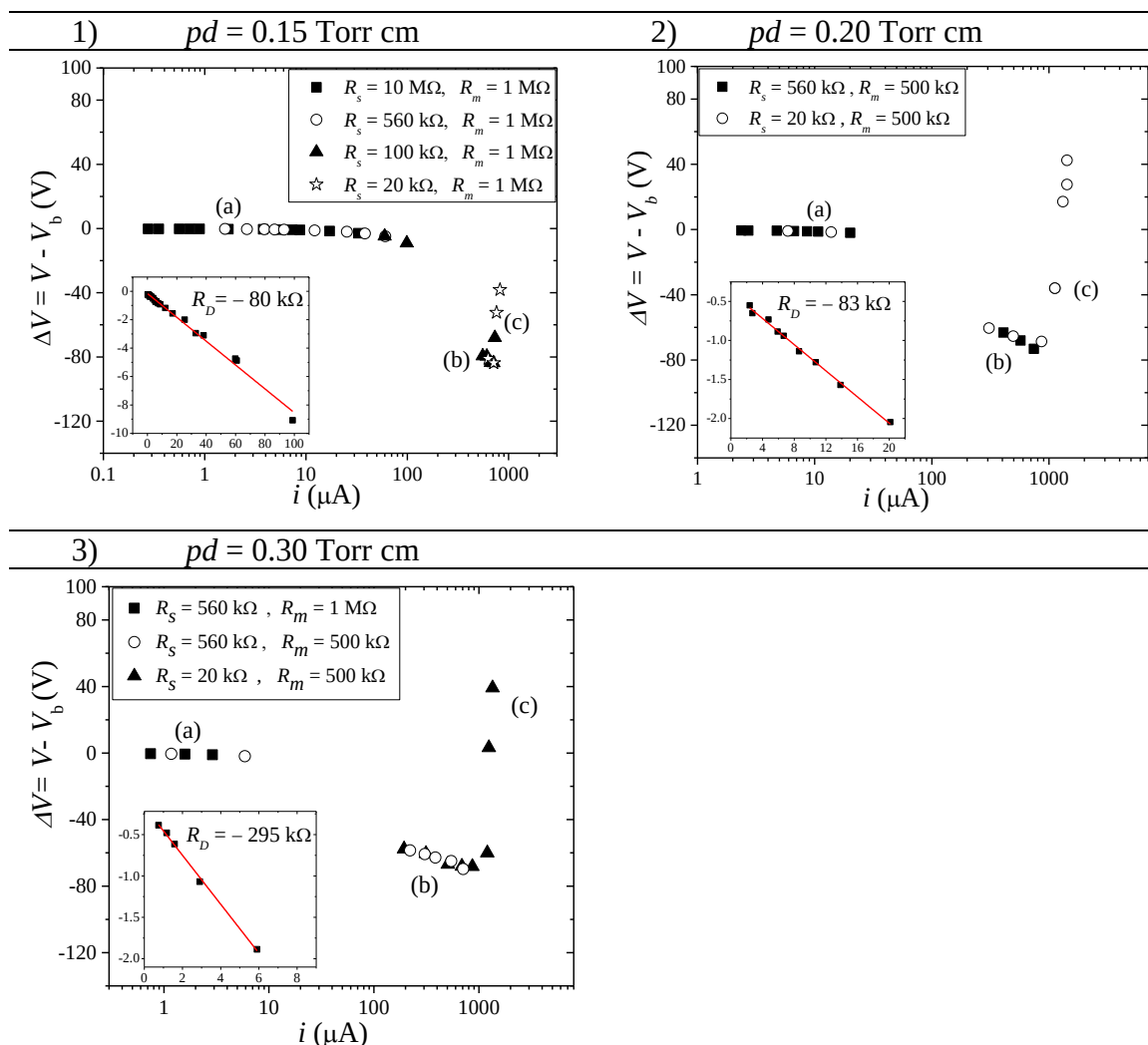
3.2.5 STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I PROSTORNE RASPODELE PRAŽNJENJA

U pražnjenju u pari etanola su snimljene strujno – naponske karakteristike za sledeće pd vrednosti: 1) 0.15 Torr cm, 2) 0.20 Torr cm i 3) 0.30 Torr cm, koje leže na levoj grani i u blizini minimuma Pašenove krive (slika 3.26). Merenja su rađena na međuelektrodnom rastojanju od 1.1 cm. Simboli, na graficima, odgovaraju rezultatima dobijenim korišćenjem kombinacija otpornika različitih otpornosti (R_s i R_m).

Na snimljenim strujno – naponskim karakteristikama, prikazanim na slici 3.26, mogu se prepoznati različiti režimi rada pražnjenja: Taunzendov režim (slabostrujno pražnjenje) (na graficima označen slovom (a)), normalni tinjavi režim (na graficima označen slovom (b)) i abnormalni tinjavi režim rada pražnjenja (na graficima označen slovom (c)). Sa povećanjem struje, na prelazu iz Taunzendovog u normalno tinjavo pražnjenje, javlja se oblast samostalnih, neprigušenih oscilacija,

3. Proboj i pražnjenja u parama alkohola

koja je na graficima prikazana kao prekid na strujno – naponskoj karakteristici. Sa grafika se može videti da se oblast samostalnih, neprigušenih oscilacija širi sa povećanjem pritiska gasa.

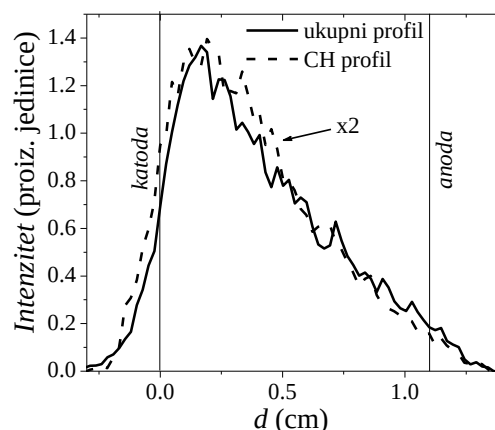
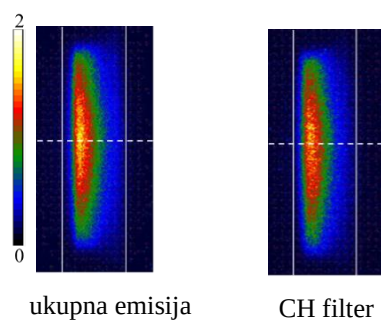
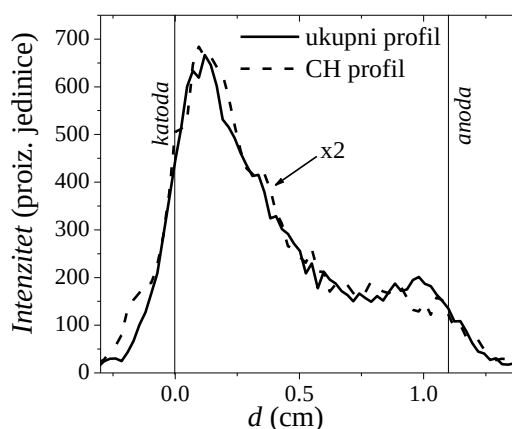
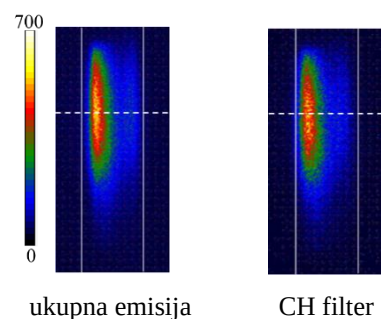
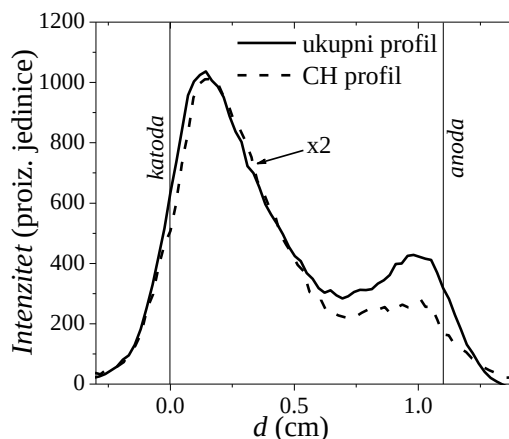
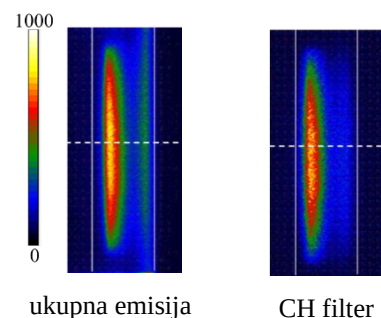


Slika 3.26. Strujno – naponske karakteristike pražnjenja u pari etanola na elektrodnom rastojanju $d = 1.1$ cm i za tri vrednosti proizvoda pd – 1) 0.15 Torr cm i $V_b = 608$ V i 2) 0.20 Torr cm i $V_b = 486$ V i 3) 0.30 Torr cm i $V_b = 452$ V. Na ubačenim graficima su date odgovarajuće negativne diferencijalne otpornosti R_D . Slovne oznake od (a) do (c) odgovaraju aksijalnim raspodelama intenziteta emisije (aksijalnim emisionim profilima) na slikama 3.27 – 3.29.

U difuznom Taunzendovom režimu strujno – naponske karakteristike (slika 3.26) imaju blago negativan nagib, koji odgovara negativnoj diferencijalnoj otpornosti R_D . Postojanje negativne diferencijalne otpornosti, kao posledice efekta prostornog naelektrisanja (Živanov *et al.*, 2000), je usko vezano sa koeficijentom sekundarne emisije elektrona. Naime, fenomenološki model Felps–Petrović–Jelenković kaže da je negativna diferencijalna otpornost ustvari posledica strujne zavisnosti koeficijenta sekundarne emisije elektrona (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993). U našem eksperimentu, u pražnjenju u pari etanola, su određene negativne diferencijalne otpornosti za tri vrednosti pd parametra: 1) za $pd = 0.15$ Torr cm je $R_D = -80 k\Omega$, 2) za $pd = 0.20$ Torr cm je $R_D = -83 k\Omega$ i 3) za $pd = 0.30$ Torr cm je $R_D = -295 k\Omega$ (slika 3.26).

Paralelno sa snimanjima struje i napona snimljene su i vremenski integrisane aksijalne raspodele intenziteta emisije (aksijalni emisioni profili) u celom vidljivom spektru (slike 3.27–3.29). Snimanja su vršena u kvazistacionarnim režimima rada pražnjenja. Za pojedine režime pražnjenja su date i spektralno razložene raspodele intenziteta emisije, koje su dobijene korišćenjem optičkih filtera na 431.2 nm (CH) i 656.4 nm (H_α). Raspodele intenziteta emisije koje su prikazane na graficima dobijene su iz 2D slika pražnjenja izvlačenjem vektora intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom (slike 3.27–3.29).

$$pd = 0.15 \text{ Torr cm}$$

(a) $i = 1.6 \mu\text{A}$ **TAUNZENDOVO PRAŽNENJE**(b) $i = 626 \mu\text{A}$ **NORMALNO TINJAVO PRAŽNENJE**(c) $i = 821 \mu\text{A}$ **ABNORMALNO TINJAVO PRAŽNENJE**

Slika 3.27. Aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja u pari etanola, za $pd = 0.15 \text{ Torr cm}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$, koje odgovaraju karakterističnim režimima pražnjenja na V - I karakteristikama (slika 3.26 1)). Raspodele intenziteta emisije (emisioni profili) su dobijene izvlačenjem intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom na 2D slikama. Na graficima su dati ukupni profili i profili dobijeni upotrebom optičkog filtera za CH na 431.2 nm. Radi lakšeg poređenja CH profili su pomnoženi odgovarajućim faktorom skaliranja. Prilikom množenja nisu očuvani relativni odnosi intenziteta među profilima.

Ako pogledamo aksijalne raspodele intenziteta emisije prikazane na slikama 3.27–3.29 (puna linija), na osnovu njihovih oblika (postojanje maksimuma intenziteta ispred katode), možemo da zaključimo da su procesi indukovani teškim česticama (jonima, brzim neutralima) dominantniji od procesa indukovanih elektronima, za vrednosti pd od 0.15 Torr cm do 0.30 Torr cm. Ekscitacija i

jonizacija gasa teškim česticama u oblasti ispred katode se javlja na većim vrednostima redukovanog električnog polja, što odgovara levoj grani Pašenove krive. Međutim, kod etanola, kao i u slučaju metanola, ekscitacija, pa i jonizacija, teškim česticama predstavlja dominantan proces u pražnjenju čak i na pd vrednostima u okolini Pašenovog minimuma.

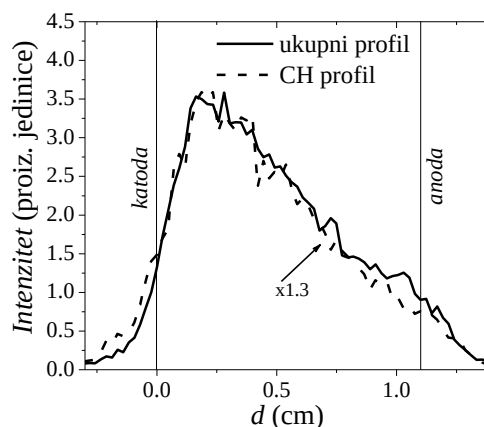
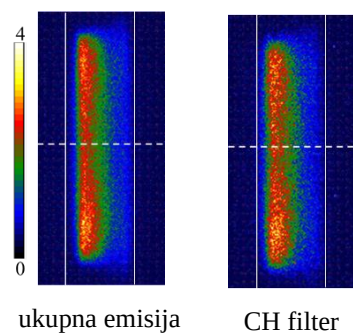
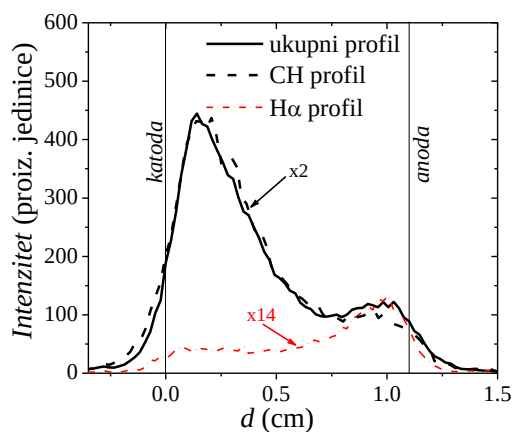
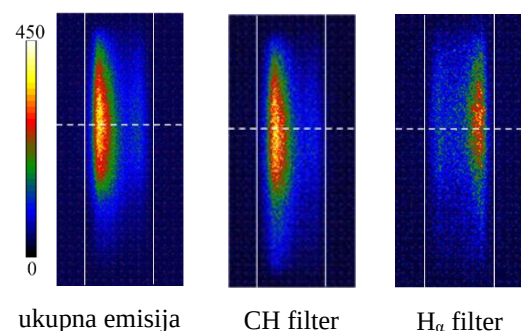
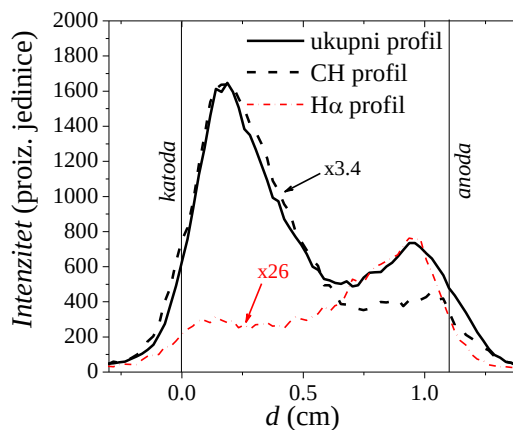
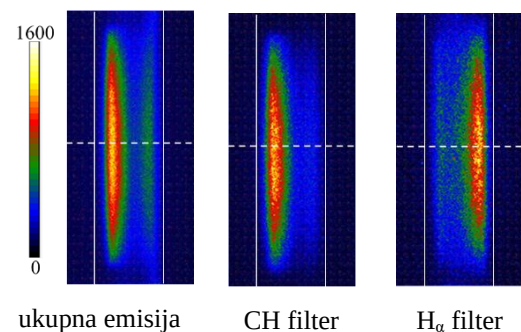
Na slikama 3.27 i 3.28 su prikazane aksijalne raspodele intenziteta emisije snimljene korišćenjem filtera na 431.2 nm (CH) (isprekidana linija). Snimljeni CH profili su nešto nižeg intenziteta nego ukupni profili, ali su zbog lakšeg poređenja sa profilima iz celog vidljivog spektra (ukupni profili) pomnoženi istim faktorom skaliranja ($k = 2$). Oblik raspodela intenziteta CH emisije (isprekidana linija) prati oblik raspodela u vidljivom spektru (puna linija) uz nešto intenzivniju emisiju u delu ispred katode, usled izraženog efekta teških čestica u ovoj oblasti (slike 3.27 i 3.28). Takođe, može se videti da u svim kvazistacionarnim režimima pražnjenja, na 0.15 i 0.20 Torr cm, najveći udeo u ukupnoj emisiji čini upravo emisija koja potiče iz opsega talasnih dužina pokrivenog CH filterom.

Sa rastom struje, raste i intenzitet emisije iz pražnjenja (puna linija), odnosno maksimumi emisija ispred katode postaju izraženiji, a pojavljuje se i maksimum intenziteta emisije ispred anode. Nakon izlaska iz režima oscilacija, pražnjenje ulazi u normalni tinjavi režim, što je praćeno pojavom konstrikcije pražnjenja. Za razliku od metanola, u etanolu je konstrikcija primetna i na nižim pritiscima (slike 3.27(b) i 3.28(b)). Maksimum emisije ispred anode (slike 3.27–3.28 (b) i (c)) se sa povećanjem struje pomera ka katodi, što je posledica formiranja i razvoja katodnog pada (Marić *et al.*, 2002).

Dodatno, na slikama 3.28 (b) i (c) je prikazana H_{α} emisija (crvena crtica–tačka linija) iz pražnjenja, koja je pomnožena odgovarajućim faktorom skaliranja radi lakšeg poređenja. Za razliku od CH emisionog profila, H_{α} emisioni profil ispoljava eksponencijalni oblik u normalnom i abnormalnom tinjavom režimu pražnjenja. To znači da u slučaju H_{α} emisije, najveći doprinos u ekscitaciji i jonizaciji potiče od elektrona. Takođe, sa slike 3.28(b) i (c) se vidi da se položaj maksimuma intenziteta H_{α} emisije poklapa sa položajem pika ispred anode ukupnog profila emisije. Ovde treba napomenuti da je, kao i u slučaju metanola, primećeno da na prelazu iz normalnog tinjavog u abnormalni režim, i na većim strujama u abnormalnom režimu (za $pd = 0.20$ Torr cm), dolazi do nagle promene u struji i naponu nakon kratkog vremena rada (do par ms). Naime napon raste, a struja opada, što se ogleda u pojavi „stepenika” u naponskom i strujnom signalu (detaljnije u glavi 5.2. Promena režima pražnjenja u oblasti jakih struja u parama alkohola).

Aksijalne raspodele intenziteta emisije na 0.30 Torr cm, snimljene u celom vidljivom spektru (puna linija na slici 3.29), imaju maksimum u oblasti ispred katode – procesi indukovani teškim česticama (jonima, brzim neutralima). Sam oblik aksijalne raspodele (aksijalnog emisionog profila) pokazuje da je, u svim oblastima, doprinos teških čestica procesima ekscitacije i jonizacije značajno veći od doprinosa elektrona. Sa povećanjem struje povećava se i intenzitet emisije iz pražnjenja, odnosno maksimumi emisija ispred katode i anode postaju izraženiji. Maksimum emisije ispred anode (slika 3.29) se sa povećanjem struje pomera ka katodi, što je posledica formiranja katodnog pada. Pri izlasku iz oscilacija i ulasku pražnjenja u normalni tinjavi režim javljaju se tzv. konstrikcije (konstrikovani kanal pražnjenja). Dakle, dolazi do prelaska iz difuznog režima rada u režim u kome se pražnjenje odvija u suženom kanalu, koji se sa povećanjem struje lagano širi dok ne zauzme celu površinu elektrode (slika 3.29(b) i (c)). Konstrikovani kanal pražnjenja će uvek težiti da prilagodi svoju poziciju tako da obezbedi najefikasnije uslove za rad pražnjenja. Sa porastom struje konstrikovani kanal pražnjenja se polako širi, dok napon lagano opada, iako bi trebalo da ostane približno konstantan. Ovo govori da pražnjenje radi u još ekonomičnijem i efikasnijem modu.

$$pd = 0.20 \text{ Torr cm}$$

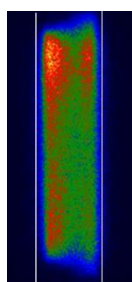
(a) $i = 11 \mu\text{A}$ **TAUNZENDOVO PRAŽNjenje**(b) $i = 495 \mu\text{A}$ **NORMALNO TINJAVO PRAŽNjenje**(c) $i = 1122 \mu\text{A}$ **ABNORMALNO TINJAVO PRAŽNjenje**

Slika 3.28. Aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja u pari etanola, za $pd = 0.20 \text{ Torr cm}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$, koje odgovaraju karakterističnim režimima pražnjenja na V - I karakteristikama (slika 3.26 2)). Raspodele intenziteta emisije (emisioni profili) su dobijene izvlačenjem intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom na 2D slikama. Na graficima su dati ukupni profili i profili dobijeni upotrebom optičkih filtera za CH na 431.2 nm i H_α na 656.4 nm . CH i H_α profili su pomnoženi odgovarajućim faktorom skaliranja radi lakšeg poređenja rezultata. Prilikom množenja nije održan relativni odnos intenziteta među profilima.

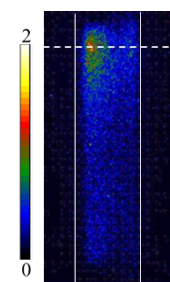
$pd = 0.30 \text{ Torr cm}$

(a) $i = 1.5 \mu\text{A}$

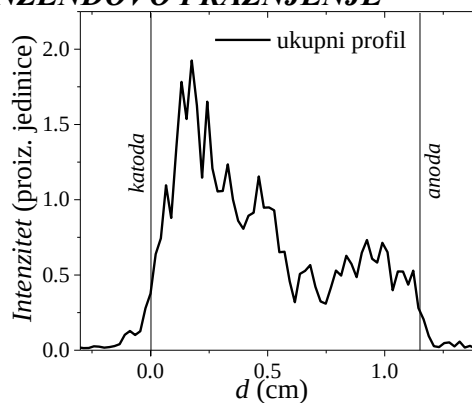
TAUNZENDOVO PRAŽNjenje



proboj
 $V_b = 454 \text{ V}$
 $i = 1 \mu\text{A}$

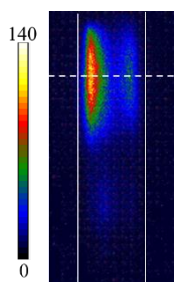


ukupna emisija

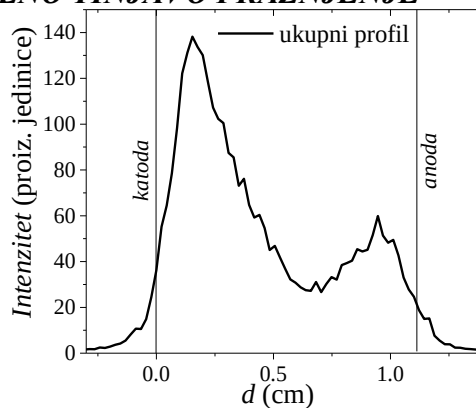


(b) $i = 193 \mu\text{A}$

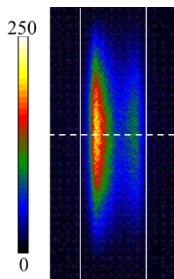
NORMALNO TINJAVO PRAŽNjenje



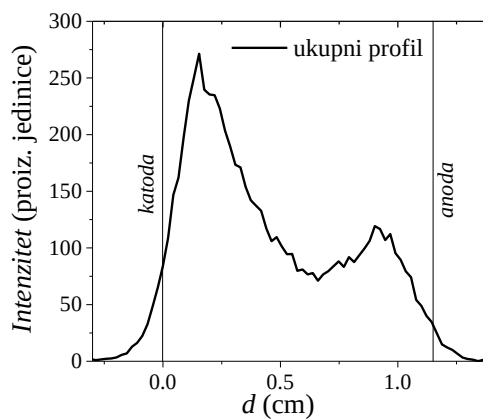
ukupna emisija



$i = 506 \mu\text{A}$

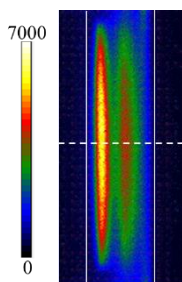


ukupna emisija

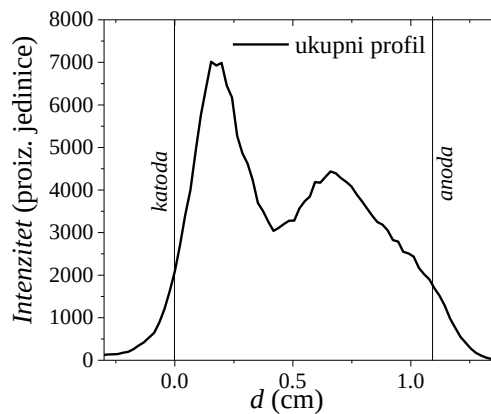


(c) $i = 1347 \mu\text{A}$

ABNORMALNO TINJAVO PRAŽNjenje



ukupna emisija



Slika 3.29. Aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja u pari etanola, za $pd = 0.30$ Torr cm i $d = 1.1$ cm, koje odgovaraju karakterističnim režimima pražnjenja na V - I karakteristikama (slika 3.26 3)). Raspodele intenziteta emisije (emisioni profili) su dobijene izvlačenjem intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom na 2D slikama.

Kada pražnjenje zauzme celu površinu elektrode, dalji porast struje dovodi do porasta napona pražnjenja, što je karakteristika abnormalnog tinjavog režima (slika 3.29(c)). U abnormalnom režimu raste intenzitet emisije pražnjenja ispred katode i anode i položaj maksimuma ispred anode je pomeren bliže ka katodi, što oslikava granicu katodnog pada. Abnormalni režim karakteriše dominantan efekat prostornog naelektrisanja, koji dovodi do smanjenja širine katodnog pada, pad napona se odvija na sve kraćem rastojanju, a da istovremeno više nema prostora za radialno širenje pražnjenja, pa je za procese jonizacije neophodno sve veće električno polje (potreban je veći napon).

3.2.6 ZAKLJUČAK

Odeljak 3.2. daje prikaz rezultata merenja električnih i optičkih osobina probuja i različitih karakterističnih režima rada DC pražnjenja u pari etanola. Sva merenja probojnih napona (Pašenovih kriva) i odgovarajućih aksijalnih raspodela intenziteta emisije iz pražnjenja, u širokom intervalu pd vrednosti, su urađena za dva međuelektrodna rastojanja: $d = 1.1$ cm i $d = 3.1$ cm.

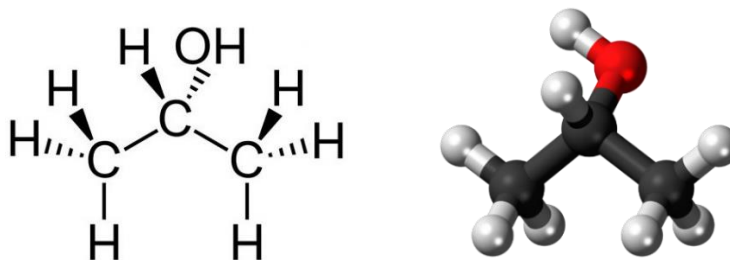
Snimljen je emisioni spektar iz pražnjenja u pari etanola, na elektrodnom rastojanju od 1.1 cm i pd vrednosti od 0.10 Torr cm, koji je pružio uvid u dominantne produkte disocijacije molekula etanola u pražnjenju i poslužio za izbor odgovarajućih optičkih filtera, koji su korišćeni za spektralno razložena snimanja emisije iz ovog pražnjenja.

Aksijalni emisioni profili su snimani i u celom vidljivom spektru i pomoću optičkih filtera, kojima su snimane aksijalne raspodele emisije na 431.2 nm (CH traka) i na 656.4 nm (H_{α} linija). Na osnovu snimljenih aksijalnih raspodela emisije uočeno je da teške čestice (brzi joni i atomi, najverovatnije H atomi i lakši disocijativni proizvodi) imaju značajnu ulogu u probouju, za široki opseg pd parametra ($E/N > 2.4$ kTd). Ovo je potvrđeno i poređenjem sa aksijalnim raspodelama intenziteta emisije snimljenim korišćenjem optičkih filtera koji odgovaraju talasnim dužinama emisije CH radikala i H atoma (H_{α} linija). Takođe je iz aksijalnih profila emisije, snimanih za Pašenuvu krivu, direktno određen jonizacioni koeficijent α , a zatim izračunat efektivni prinos sekundarnih elektrona γ_{eff} . Ovako dobijeni rezultati za koeficijent jonizacije, su upoređeni sa postojećim podacima u literaturi i primećeno je da se u posmatranim intervalima rezultati zadovoljavajuće slažu. Što se tiče efektivnog prinosa sekundarnih elektrona, po našem saznanju ne postoje podaci u literaturi, tako da su ovde predstavljeni prvi takvi rezultati.

Snimljene su i strujno-naponske karakteristike pražnjenja u različitim režimima za tri vrednosti parametra pd , na rastojanju $d = 1.1$ cm. Istovremeno su snimljene aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisioni profili) iz različitih režima pražnjenja u celom vidljivom spektru i sa CH i H_{α} filterima. Pokazano je da prostorna struktura pražnjenja ima izraženi pik emisije ispred katode za sve tri vrednosti parametra pd : 0.15, 0.20 i 0.30 Torr cm. Snimljeni profili CH emisije su nešto manji po intenzitetu, ali po obliku prate profile pražnjenja snimljene u celom vidljivom spektru. S druge strane, profili H_{α} emisije koji su snimljeni na 0.18 Torr ($pd = 0.20$ Torr cm) imaju eksponencijalni oblik i u normalnom i u abnormalnom tinjavom režimu rada pražnjenja, što ukazuje na to da emisija iz opsega talasnih dužina pokrivenog H_{α} filterom dominantno potiče od elektronske ekscitacije i jonizacije.

3.3 IZOPROPANOL (2-PROPANOL) $\text{CH}_3\text{CHOHCH}_3$

Izopropanol (2-propanol ili izopropil alkohol) je najjednostavniji monohidroksilni sekundarni alkohol (slika 3.30). Spada u grupu sekundarnih alkohola jer mu je OH grupa vezana za drugi ugljenikov atom u C-lancu. Ovo je polaran molekul, odnosno dipol, koji ima 34 elektrona, dok mu je energija jonizacije 10.17 eV (Raju, 2012).



Slika 3.30. Izopropanol: levo – strukturna formula i desno – model molekula.

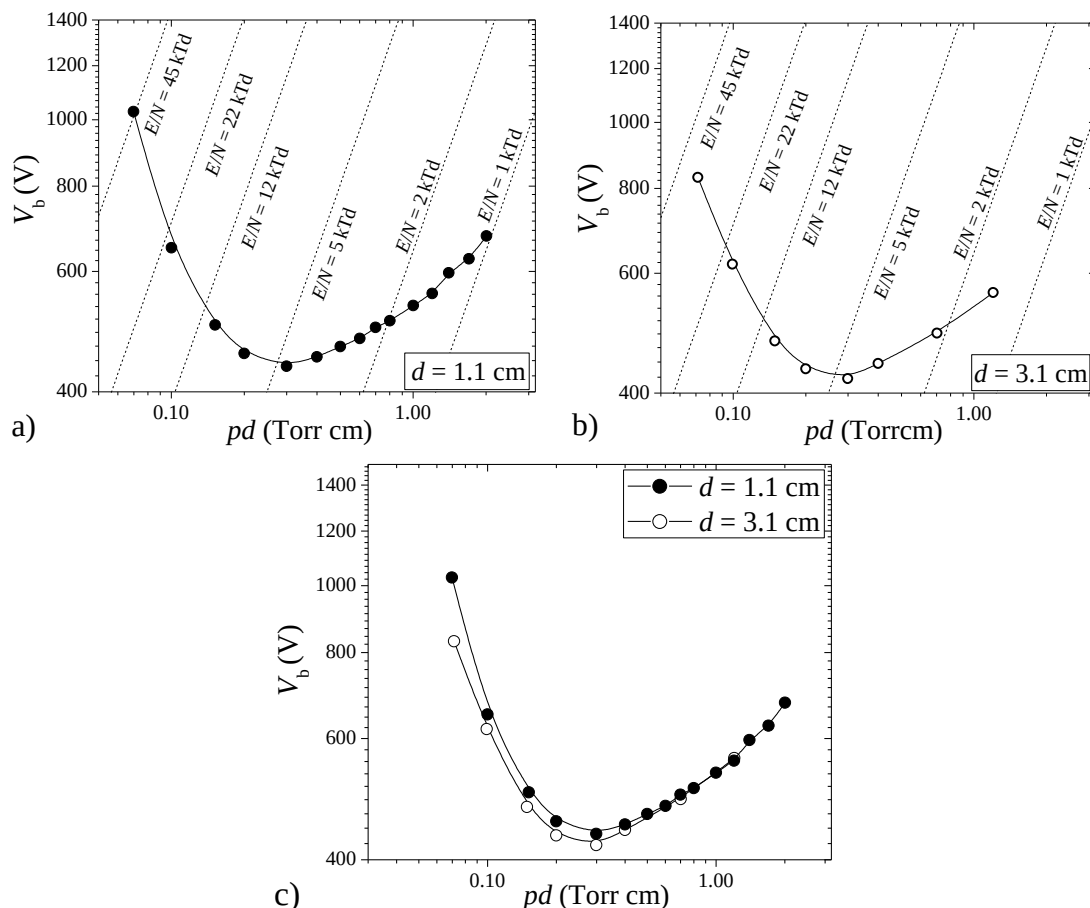
Izopropanol je prvi komercijalno sintetisani alkohol, koji je 1920. godine dobijen u toku izučavanja nusproizvoda nafte. To je bezbojna, lako isparljiva i zapaljiva tečnost jakog mirisa. Dobija se u reakciji hidratacije, kombinovanjem vode i propena, ili u reakciji acetona (keton izopropanola) sa vodonikom. Izopropanol se lepo meša sa vodom, etanolom, etrom i hloroformom, ali je i dobar rastvarač za mnoga ulja, alkalioide, etil celulozu, polivinil butiral (PVB), gumu i prirodne smole. Za razliku od metanola i etanola, ne može se mešati sa rastvorima soli. Upravo zato se iz vodenih rastvora može lako izdvojiti dodavanjem soli (npr. natrijum hlorida), čime se dobija lepo izdvojen sloj koncentrovanog izopropanola. Koristi se u proizvodnji široke palete industrijskih i kućnih hemikalija, te je čest sastojak u hemikalijama kao što su antiseptici, dezinfekcijska sredstva i deterdženti. Široko se primenjuje u farmaceutskoj i kozmetičkoj industriji, na primer ima ga u losionima koji se koriste posle brijanja, u raznim kremama i tonerima za kožu i formulama za zatezanje kože, u vlažnim maramicama i sredstvima za dezinfekciju ruku. U industriji se često koristi kao rastvarač za široki spektar nepolarnih jedinjenja, pa se između ostalog upotrebljava i kao sredstvo za čišćenje stakala, sočiva i drugih optičkih komponenti, elektronskih uređaja, matičnih ploča, za uklanjanje termalne paste iz hladnjaka i kompjuterskih procesora, dok se u industriji goriva koristi kao aditiv za benzin.

U našem eksperimentu para je dobijena isparavanjem 99.5 % tečnog izopropanola ($M = 60.1 \text{ g/mol}$). Glavna nečistoća u korišćenom uzorku je voda $\sim 0.2 \%$, dok preostale nečistoće čine kiseline, kao što je sirćetna kiselina – 0.002% , gvožđe 0.0005% i neisparljive materije 0.001% , koje su zastupljene u tragovima. Pritisak pare izopropanola na sobnoj temperaturi ($T = 25^\circ\text{C}$) iznosi 43.6 Torr (1 Torr = 133.322 Pa) (Dortmund Data Bank, 1989).

Za pražnjenje u pari izopropanola su izmerene Pašenove krive za široki opseg pd vrednosti, kao i odgovarajuće aksijalne raspodele intenziteta emisije iz slabostrujnog pražnjenja. Snimljen je emisijski spektar kako bi se odabrali odgovarajućih optički filteri koji su korišćeni za spektralno razložena snimanja emisije iz pražnjenja. Koeficijenti jonizacije α i sekundarne emisije elektrona γ dobijeni su na osnovu raspodela intenziteta emisije u slabostrujnom pražnjenju. Takođe su snimljene i strujno-naponske karakteristike za široki opseg struja, u minimumu i levoj grani Pašenove krive. Ova merenja su propraćena i snimanjem prostorne raspodele pražnjenja u različitim režimima rada.

3.3.1 MERENJE PROBOJNOG NAPONA – PAŠENOVE KRIVE

U pražnjenju u pari izopropanola izmerena je zavisnost probojnog napona V_b od pd (p – pritisak, d – rastojanje između elektroda) za dve vrednosti međuelektrodnog rastojanja: 1.1 cm i 3.1 cm (slika 3.31) u režimu slabih struja $\sim 1 \mu\text{A}$ (Sivoš *et al.*, 2020; Sivoš *et al.*, 2016). Merenja su urađena za široki interval pd vrednosti od 0.07 do 2.00 Torr cm u intervalu vrednosti redukovano električnog polja E/N od 1 do 45 kTd (isprekidane linije na slici 3.31). Izmerene probojne krive su standardnog oblika, tipičnog za neravnotežna niskotemperaturna pražnjenja.

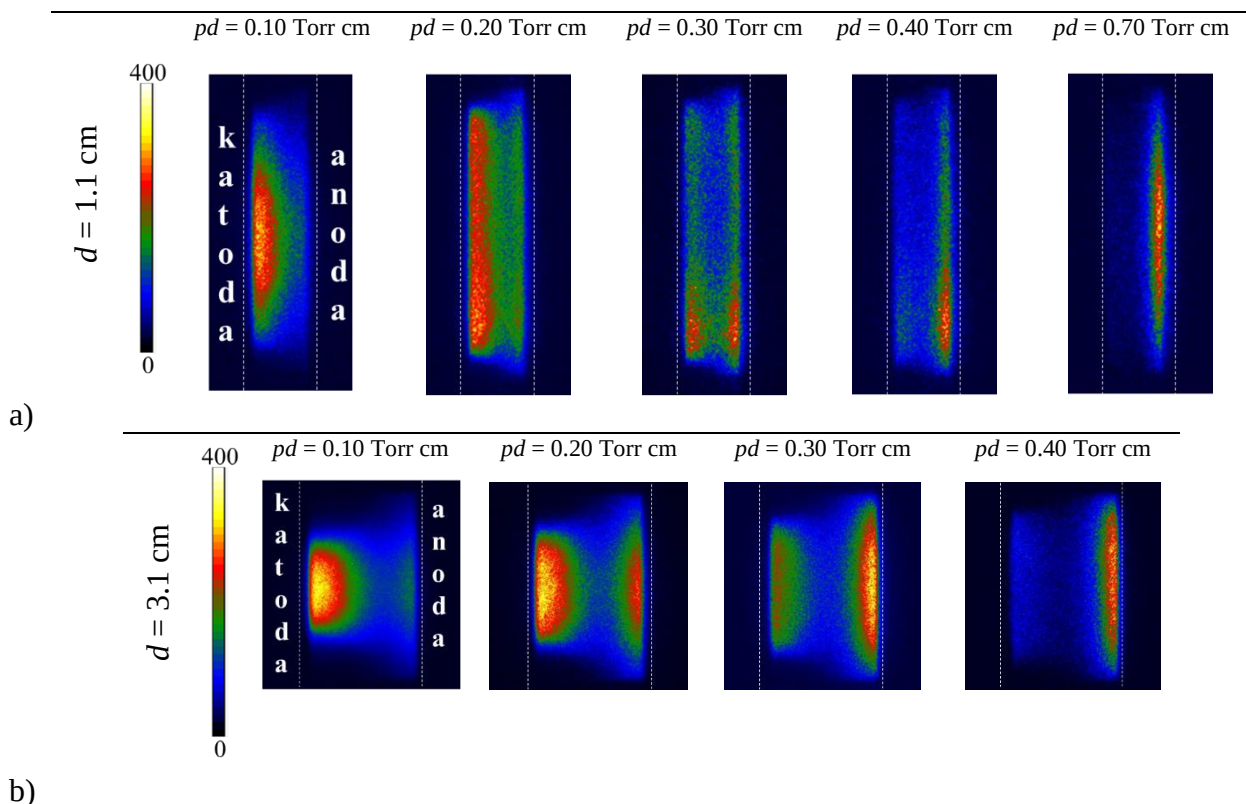


Slika 3.31. Pašenove krive za pražnjenje u pari izopropanola na međuelektrodnim rastojanjima od a) 1.1 cm, b) 3.1 cm i c) rezultati za oba međuelektrodna rastojanja.

Minimalni probojni napon za pražnjenje u pari izopropanola na rastojanju 1.1 cm iznosi 436 V, dok je na rastojanju od 3.1 cm 420 V. U oba slučaja je minimum Pašenove krive na 0.30 Torr cm, što odgovara jačini redukovano električnog polja E/N od ~ 4 kTd. Pražnjenje stabilno radi do 0.70 Torr cm, a u slučaju rastojanja od 3.1 cm do 0.40 Torr cm, dok se za tačke iznad ovih vrednosti pali u režimu uređenih (relaksacionih) oscilacija, pa je moguće odrediti probojni napon (Marić, 2006; Marić *et al.*, 2009). Na pd vrednostima iznad 2.00 Torr cm pražnjenje, odmah nakon proboja, upada u režim slobodnih oscilacija na osnovu kojih se ne mogu odrediti probojni naponi. U toku merenja i za dobijanje relaksacionih oscilacija korišćene su kombinacije otpornika različitih otpornosti R_s i R_m ($R_s = 7 \text{ k}\Omega$, $20 \text{ k}\Omega$, $560 \text{ k}\Omega$ i $1.2 \text{ M}\Omega$ i $R_m = 7 \text{ k}\Omega$, $20 \text{ k}\Omega$, $100 \text{ k}\Omega$, $500 \text{ k}\Omega$, $1 \text{ M}\Omega$ i $10 \text{ M}\Omega$).

3.3.2 PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA

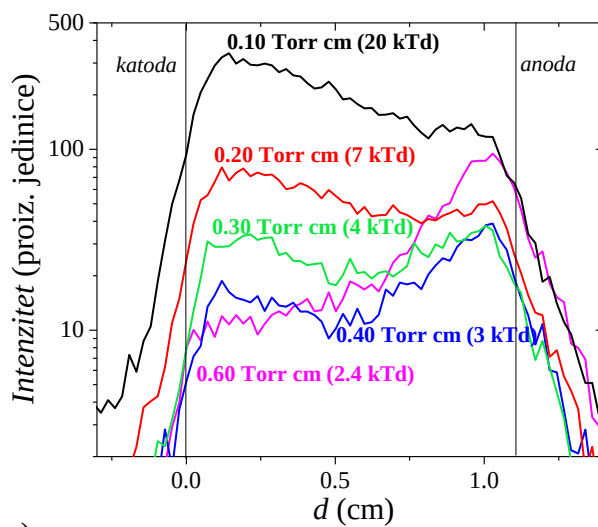
Na slici 3.32 date su 2D prostorne raspodele pražnjenja snimljene tokom merenja probojnih napona na međuelektrodnim rastojanjima od 1.1 i 3.1 cm. Snimanja su urađena u pražnjenju koje je radilo u Taunzendovom režimu na struji od 1 μA i pri različitim pritiscima, odnosno na različitim pd vrednostima. Za oba rastojanja primetno je da su procesi ekscitacije i jonizacije indukovani teškim česticama (joni, neutrali) prisutni čak i u minimumu Pašenove krive ($pd = 0.30$ Torr cm), dok na većim vrednostima pritiska glavnu ulogu preuzima elektronska ekscitacija i jonizacija. Dakle, pražnjenje se ponaša slično kao i u slučaju prethodno opisanih alkohola (metanola i etanola).



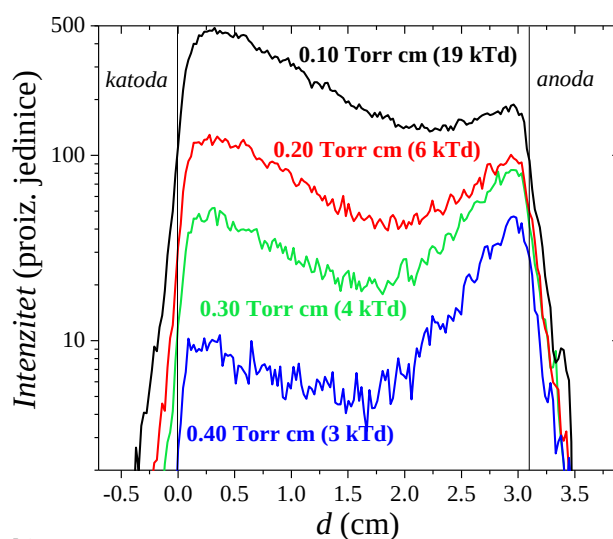
Slika 3.32. 2D raspodele emitovane svetlosti iz slabostrujnog pražnjenja u pari izopropanola a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm.

Može se primetiti da je u minimumu Pašenove krive (slika 3.32, $pd = 0.30$ Torr cm), na rastojanju od 1.1 cm, pražnjenje više pomereno ka donjem delu elektroda, dok se sa pomeranjem iz minimuma proširuje ravnomerno na skoro celu površinu (slika 3.32, $pd = 0.20$ i 0.70 Torr cm). Na osnovu ovoga se može pretpostaviti da se pražnjenje pali u tom delu zbog postojanja uslova koji obezbeđuju njegov ekonomičniji rad.

Slika 3.33 prikazuje aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja koje odgovaraju 2D slikama sa slike 3.32. Na aksijalnim raspodelama koje odgovaraju vrednostima E/N od 4 do 20 kTd primećuje se maksimum intenziteta emisije ispred katode, što ilustruje procese indukovane teškim česticama (Petrović *et al.*, 1992). Ovaj maksimum intenziteta emisije raste sa porastom jačine redukovano električnog polja E/N , odnosno sa smanjenjem pritiska p .



a)



b)

Slika 3.33. Aksijalne raspodele intenziteta emisije slabostrujnog pražnjenja u pari izopropanola za a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm, koje odgovaraju 2D raspodelama emitovane svetlosti sa slike 3.32a) i 3.32b), respektivno. U zagradi su naznačene vrednosti redukovanoeg električnog polja E/N na datom pd -u.

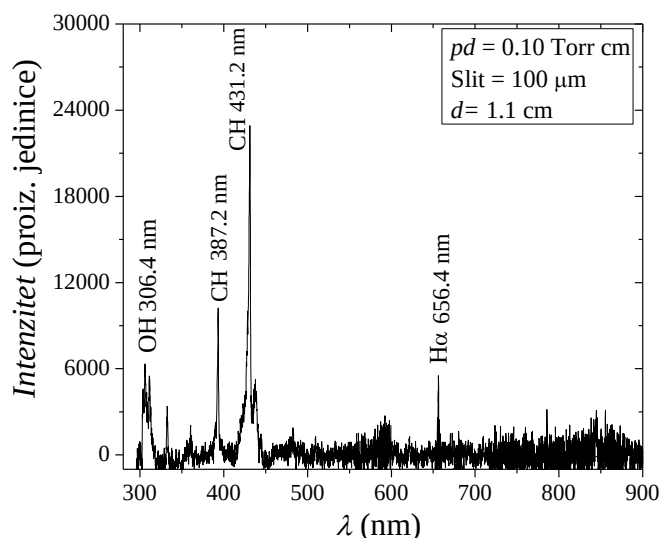
Nasuprot tome, sa opadanjem jačine redukovanoeg električnog polja i sa povećanjem pritiska raste intenzitet emisije ispred anode koji odražava sve značajniju ulogu elektrona u procesima ekscitacije i jonizacije gasa. Aksijalni emisioni profil poprima skoro eksponencijalni oblik sa приметnim nehidrodinamičkim delom u blizini katode (slika 3.33a) 0.70 Torr cm i b) 0.40 Torr cm). Ovo u stvari govori da elektronima treba da pređu određeni put kako bi stekli potrebnu energiju za ekscitaciju i jonizaciju, a taj put u stvari predstavlja dužinu uravnoteženja d_0 (Živanov, 2000), koja značajna pri računanju koeficijenta sekundarne emisije elektrona (Phelps i Petrović, 1999).

3.3.3 SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA

Optički emisioni spektar pražnjenja u pari izopropanola je snimljen kako bi se odabrali odgovarajući optički filteri za spektralno razložena snimanja emisije iz ovog pražnjenja. Spektar je snimljen za slabostrujno Taunzendovo pražnjenje na struji od 1 μ A, u levoj grani Pašenove krive na $pd = 0.10$ Torr cm i na međuelektrodnom rastojanju od 1.1 cm. Na slici 3.34 prikazan je spektar pražnjenja u pari izopropanola snimljen u opsegu talasnih dužina od 300 do 900 nm. U merenom spektralnom opsegu najintenzivnija emisija potiče od OH i CH radikala i H atoma (Balmerova serija), koji najverovatnije nastaju usled disocijativne ekscitacije izopropanolovog molekula

(Donohue *et al.*, 1977; Yanguas-Gil *et al.*, 2004; Reyes *et al.*, 2016; Sivoš *et al.*, 2020). Emisija OH radikala na 306.4 nm potiče od sistema $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$ (Liu *et al.*, 2007; Stocer *et al.*, 2001; Mašlani i Sember, 2014; Gaydon, 1974). Dodatno, emisije CH radikala na 431.2 i 387.2 nm potiču od dva dominantna sistema $A^2\Delta \rightarrow X^2\Pi$ i $B^2\Sigma^- \rightarrow X^2\Pi$, respektivno (Donohue *et al.*, 1977; Fazekas *et al.*, 2015; Reyes *et al.*, 2016). Dok se na 656.4 nm uočava emisija koja potiče od Balmerove H_α linije.

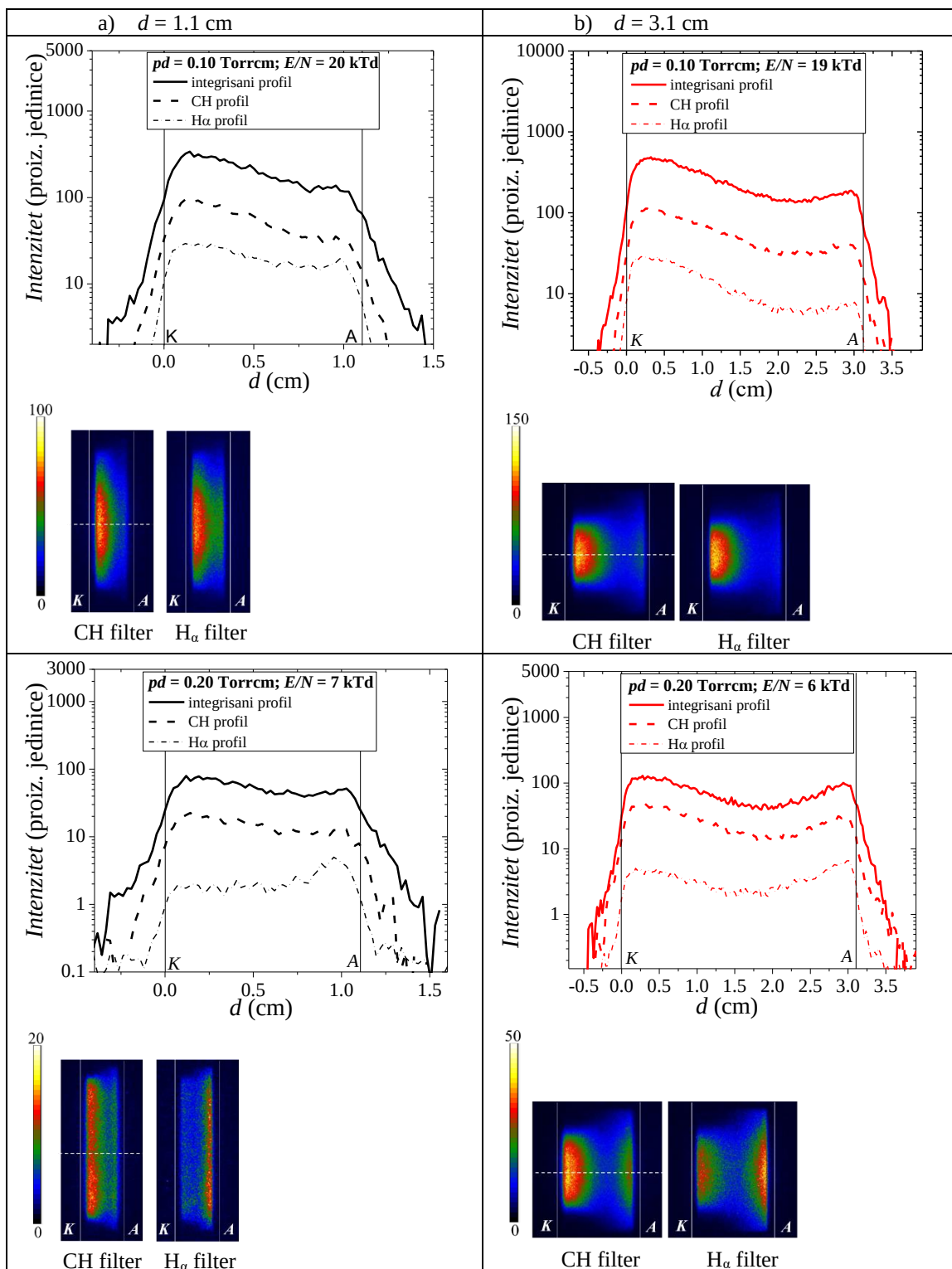
Može se primetiti da u spektru izopropanola dominira CH traka na talasnoj dužini od 431.2 nm i druga manjeg intenziteta na 387.2 nm, a za njom slede OH traka na 306.4 nm i Balmerova H_α linija na 656.4 nm. U pražnjenju u izopropanolu je intenzitet CH trake veći nego u slučaju metanola i etanola usled većeg sadržaja ugljenika i većeg broja C – H veza (Ghezelbash M. *et al.*, 2017), dok je intenzitet H_α linije nešto manji.

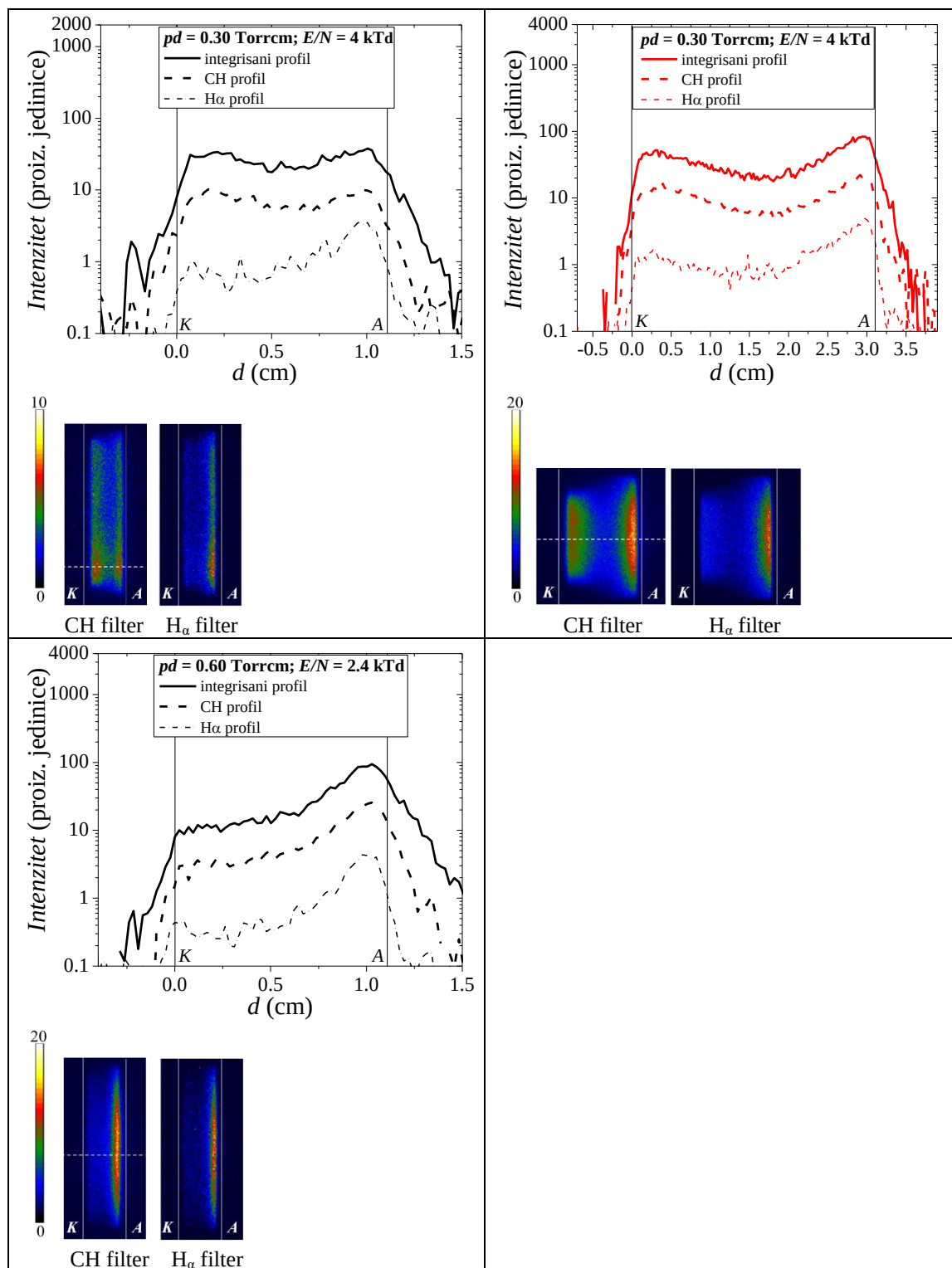


Slika 3.34. Optički emisijski spektar pražnjenja u pari izopropanola na $pd = 0.10$ Torr cm i rastojanju $d = 1.1$ cm ($V_b = 687$ V; $i = 1$ μ A). Širina slita spektrografa je 100 μ m.

Na osnovu najintenzivnijih emisija koje leže na talasnim dužinama: 431.2 i 656.4 nm, odabrani su odgovarajući optički filteri za spektralno razložena snimanja. Spektralno razloženo snimanje u UV oblasti nije bilo moguće zbog objektiva na kameri koji ima staklenu optiku.

Na slici 3.35 prikazane su aksijalne prostorne raspodele emisije u Taunzendovom pražnjenju u pari izopropanola, integrisane u celom vidljivom spektru i one dobijene korišćenjem optičkih filtera na 431.2 (CH filter) i 656.4 nm (H_α filter). Snimanja su urađena u intervalu pd vrednosti od 0.10 do 0.60 Torr cm za međuelektrodna rastojanja od 1.1 i 3.1 cm. Ispod grafika su date odgovarajuće 2D slike pražnjenja snimljene sa optičkim filterima, koje su korišćene za dobijanje aksijalnih profila emisije izvlačenjem vektora intenziteta duž ose komore (isprekidana linija na slici 3.35). U levoj grani Pašenove krive na $pd = 0.10$ Torr cm aksijalni emisijski profili imaju izraženi maksimum intenziteta emisije ispred katode, koji ukazuje na to da su procesi ekscitacije pretežno indukovani teškim česticama. To se vidi i na CH i H_α emisijskim profilima. Sa porastom pritiska raste i ekscitacija usled sudara elektorna i neutrala, što se odražava u pojavi maksimuma emisije ispred anode, koji svoju najveću vrednost dostiže na $pd = 0.60$ Torr cm (slika 3.35). Oblici CH (isprekidana linija) i H_α emisijskih profila (crtica – tačka linija) poprimaju eksponencijalni izgled, što sugerise da su CH radikali i vodonikovi atomi pobuđeni procesima elektronske ekscitacije. Dodatno, na svim pd vrednostima CH aksijalni profil (isprekidana linija) oblikom prati ukupni aksijalni profil (puna linija) (slika 3.35).



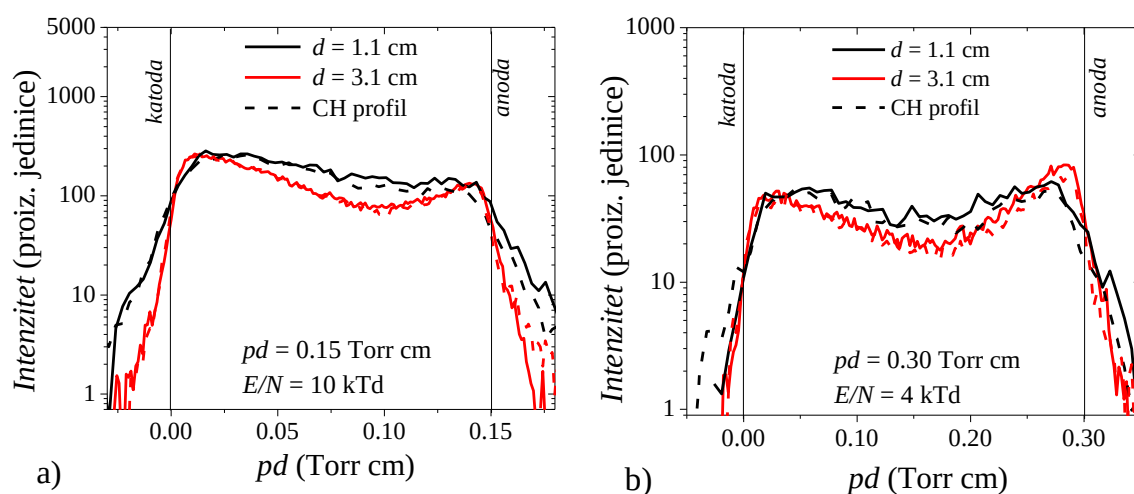


Slika 3.35. Aksijalne raspodele intenziteta ukupne, CH i $H\alpha$ emisije u Taunzenovom pražnjenju u pari izopropanola u intervalu pd vrednosti od 0.10 do 0.60 Torr cm. Merenja su urađena za a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm. Ispod grafika su prikazane 2D slike emisije snimljene korišćenjem CH i $H\alpha$ optičkih filtera, na osnovu kojih su dobijeni aksijalni emisijski profili izvlačenjem intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom, a slovima K i A su označeni položaji katode i anode.

Na slici 3.36 prikazane su aksijalne raspodele emisije (aksijalni profili) skalirane po parametru pd (d je rastojanje od katode) tako da je omogućeno poređenje raspodela intenziteta emisije na različitim rastojanjima elektroda/pritiscima tj. različitim vrednostima redukovano električnog polja E/N . Prikazani su rezultati za dve vrednosti pd parametra 0.15 Torr cm (leva grana Pašeneve krive) i 0.30 Torr cm (minimum Pašeneve krive) za dva međuelektrodna rastojanja od 1.1 i 3.1 cm. Na

malim vrednostima pd i visokim E/N , teške čestice, pretežno brzi neutrali, dobijaju dovoljno energije da bi vršili ekscitaciju, pa čak i jonizaciju (Marić *et al.*, 2003; Petrović i Stojanović, 1998; Petrović i Phelps, 2009; Phelps, 2009). Najverovatnije je da ulogu teških čestica u procesima ekscitacije i jonizacije imaju brzi H atomi, ali i neki teži proizvodi disocijacije (OH, CO i CH vrste). Spektralno razložena snimanja emisije optičkim filterima pokazuju da najveći deo emisije u vidljivom opsegu potiče od CH radikala i H atoma, što je verovatno posledica disocijativne ekscitacije nego ekscitacije osnovnog stanja (Tennyson *et al.*, 2017; Sivoš *et al.*, 2019).

U minimumu Pašenove krive, na $pd = 0.30$ Torr cm, primetna su dva maksimuma intenziteta emisije, jedan ispred katode i drugi ispred anode, približnih intenziteta (slika 3.36 b)). Emisioni maksimum ispred katode je posledica procesa indukovanih teškim česticama, što se jasno može videti i u slučaju CH aksijalne raspodele intenziteta emisije (isprekidana linija na slici 3.36 b)). Može se zaključiti da su osnovni procesi koji regulišu proboj i slabostrujna pražnjenja isti za iste vrednosti pd , za opseg rastojanja između elektroda koji je ovde prikazan, što govori da se i struktura pražnjenja ne menja.



Slika 3.36. Aksijalne raspodele intenziteta emisije Taunzendovog pražnjenja u pari izopropanola snimljene u a) levoj grani Pašenove krive na $pd = 0.15$ Torr cm i b) u blizini minimuma Pašenove krive na $pd = 0.30$ Torr cm. Na x - osi prikazan je proizvod rastojanja katode d i pritiska p kako bi se omogućilo poređenje raspodela koje su snimljene na istom pd , ali na različitim međuelektrodnim rastojanjima. Punim linijama su prikazane raspodele emisije integrisane u vidljivom delu spektra, a isprekidanom linijom raspodele emisije snimljene upotrebom CH optičkog filtera, noimirane na profile ukupne emisije.

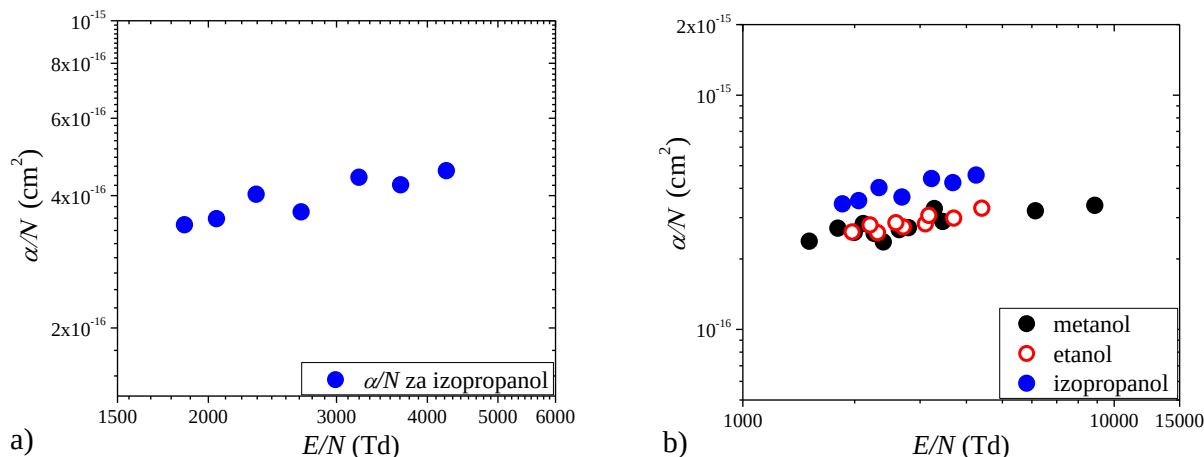
3.3.4 ODREĐIVANJE JONIZACIONOG KOEFICIJENTA α I KOEFICIJENTA SEKUNDARNE EMISIJE ELEKTRONA γ

U pražnjenju u pari izopropanola, koeficijent jonizacije α je određen za uski interval redukovano električnog polja E/N koji odgovara vrednostima u blizini minimuma Pašenove krive. Na većim vrednostima E/N , na nižim pritiscima u levoj grani Pašenove krive, efekti ekscitacije teškim česticama zaklanjaju emisioni profil elektronske ekscitacije, dok na višim pritiscima (nižim E/N), u desnoj grani Pašenove krive, pražnjenje nije moglo da radi u stabilnom slabostrujnom režimu. Usled ovakvih ograničenja, u našem eksperimentu je bilo moguće odrediti jonizacione koeficijente samo u uskom opsegu redukovano električnog polja od 1.8 kTd do 4.3 kTd.

Na slici 3.37 a) je prikazana zavisnost efektivnog jonizacionog koeficijenta α/N od redukovano električnog polja E/N dobijena u pražnjenju u pari izopropanola, dok je na istoj slici pod b) dato poređenje vrednosti efektivnog jonizacionog koeficijenta u pražnjenjima u parama metanola, etanola i izopropanola. Koliko je nama poznato u literaturi nema podataka o jonizacionom koeficijentu za pražnjenja u izopropanolu i propanolu. Zato je bilo interesantno videti i uporediti vrednosti za

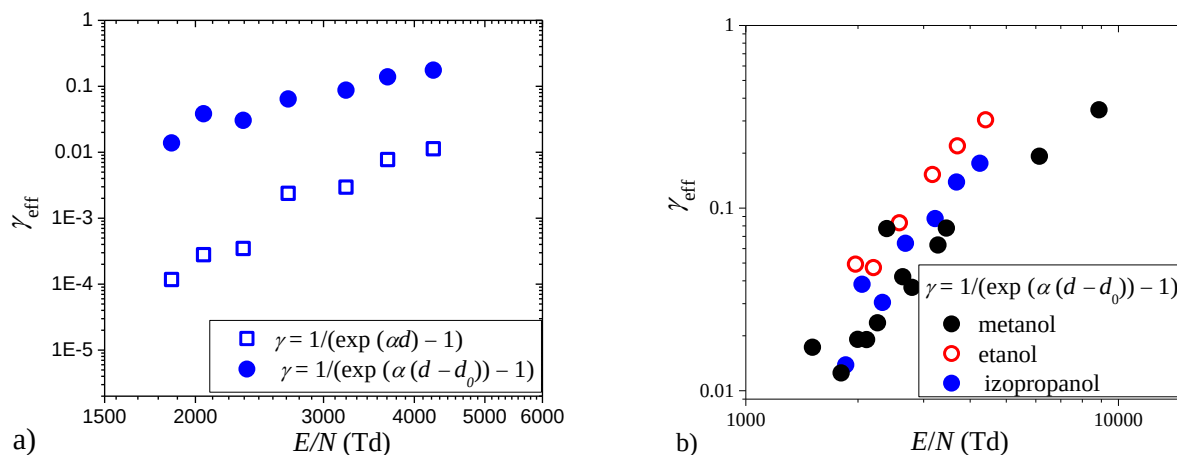
3. Proboj i pražnjenja u parama alkohola

jonizacioni koeficijent u parama alkohola koje su ispitivane u našem eksperimentu. Vrednosti efektivnog jonizacionog koeficijenta u izopropanolu za interval E/N od 1.8 do 4.3 kTd su i do 1.6 puta veće nego vrednosti jonizacionog koeficijenta u parama metanola i etanola.



Slika 3.37. Zavisnost efektivnog jonizacionog koeficijenta (α/N) od jačine redukovanog električnog polja (E/N): a) u pari izopropanola (bakarna katoda) i b) u parama metanola, etanola i izopropanola (bakarna katoda).

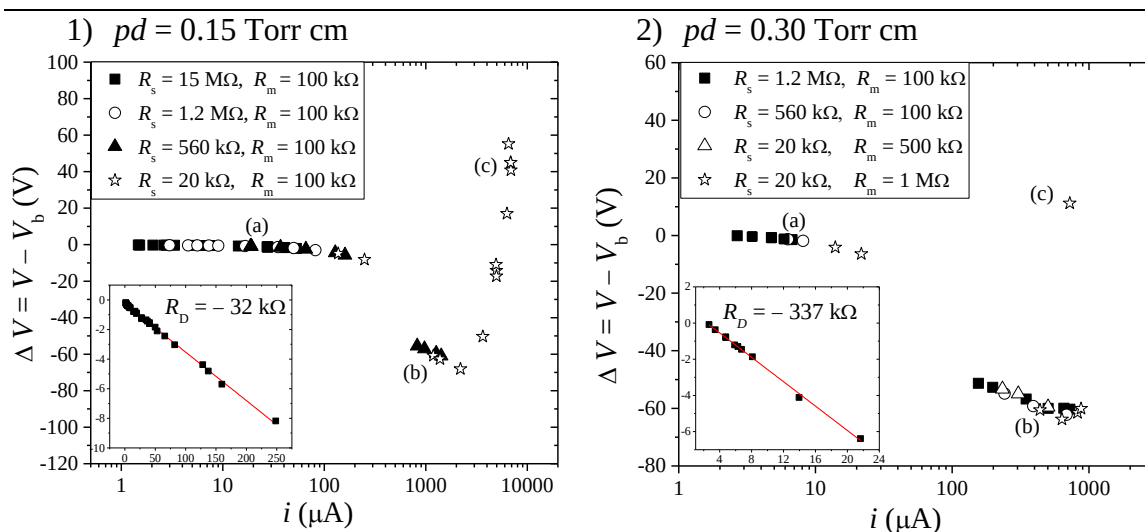
Pored jonizacionih koeficijenata određeni su i efektivni koeficijenti sekundarne emisije elektrona u zavisnosti od E/N za pražnjenje u pari izopropanola koji su dati na slici 3.38. Slika 3.38 a) prikazuje odnos vrednosti γ_{eff} koje su dobijene bez i sa uvažavanjem d_0 (dužine uravnoteženja) (Phelps A. V. i Petrović Z. Lj, 1999) u formulu za koeficijent sekundarne emisije elektrona (jednačina 3.1). Vidi se da razlika u vrednostima za γ_{eff} može da bude i do dva reda veličine kada se u formuli zanemari parametar d_0 . Na slici 3.38 b) upoređene su vrednosti γ_{eff} koeficijenata u intervalu E/N od 1.5 do 8.8 kTd dobijene u pražnjenjima u parama metanola, etanola i izopropanola u našem eksperimentu. Za opseg jačina redukovanog električnog polja od 1.8 do 4.3 kTd vrednosti koeficijenta γ_{eff} za izopropanol se u proseku razlikuju za faktor 0.02 u odnosu na odgovarajuće vrednosti γ_{eff} za metanol i etanol.



Slika 3.38. Zavisnost efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona γ_{eff} od redukovanog električnog polja E/N : a) u pražnjenju u pari izopropanola (bakarna katoda) gde su vrednosti za γ_{eff} dobijene bez uvažavanja dužine uravnoteženja d_0 (plavi prazni kvadrati) i sa uvažavanjem d_0 (plavi krugovi); b) za pražnjenja u parama metanola, etanola i izopropanola (bakarna katoda) sa uvažanim d_0 .

3.3.5 STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I PROSTORNE RASPODELE PRAŽNJENJA

Na slici 3.39 prikazane su strujno–naponske karakteristike snimljene u pražnjenju u pari izopropanola za dve vrednosti parametra pd : 0.15 Torr cm i 0.30 Torr cm, na međuelektrodnom rastojanju od 1.1 cm. Na graficima se jasno mogu uočiti različiti režimi kroz koje pražnjenje prolazi sa povećanjem struje, a slovima su označene tačke za koje su date odgovarajuće aksijalne raspodele emisije iz pražnjenja (slike 3.40 i 3.41). Ubačeni grafici na slici 3.39 predstavljaju određivanje odgovarajućih negativnih diferencijalnih otpornosti R_D , koje za $pd = 0.15$ Torr cm i $pd = 0.30$ Torr cm iznose -32 k Ω i -337 k Ω , respektivno. Različiti simboli označavaju kombinacije otpornika otpornosti R_s i R_m koje su korišćene u toku snimanja V – I karakteristika. Na prelazu iz Taunzendovog u normalno tinjavo pražnjenje pojavljuje se prekid na V – I karakteristici koji odgovara oblasti samostalnih, neprigušenih oscilacija.



Slika 3.39. Strujno – naponske karakteristike pražnjenja u pari izopropanola na elektrodnom rastojanju $d = 1.1$ cm i za dve vrednosti proizvoda pd – 1) 0.15 Torr cm i $V_b = 492$ V ii 2) 0.30 Torr cm i $V_b = 440$ V. Na ubačenim graficima su date odgovarajuće negativne diferencijalne otpornosti R_D . Slovne oznake od (a) do (c) odgovaraju aksijalnim raspodelama intenziteta emisije (aksijalnim emisionim profilima) na slikama 3.40 i 3.41.

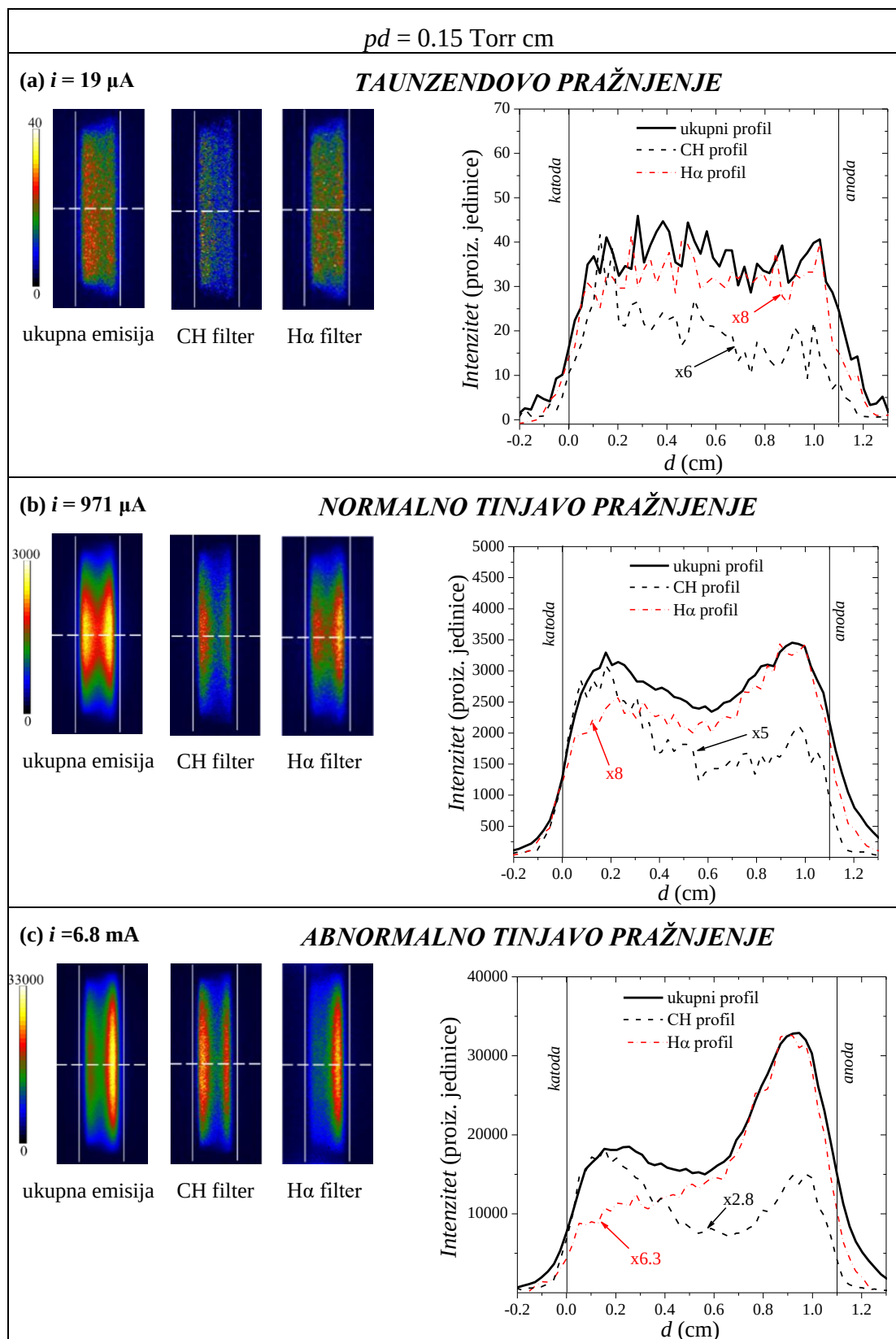
Na slikama 3.40 i 3.41 date su vremenski integrisane aksijalne raspodele intenziteta emisije (aksijalni emisioni profili) u celom vidljivom spektru, koje odgovaraju vrednostima označenim slovima na slici 3.39. Snimanja su urađena za kvazistacionarne režime rada pražnjenja. Zajedno sa profilima integrisanim u celom vidljivom spektru, prikazani su i spektralno razloženi emisioni profili koji su dobijeni korišćenjem optičkih filtera za izdvajanje emisije na 431.2 nm (CH) i 656.4 nm (H_α). Raspodele intenziteta emisije koje su prikazane na graficima dobijene su iz 2D slika pražnjenja izvlačenjem vektora intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom (slike 3.40 i 3.41).

Aksijalne raspodele intenziteta emisije snimljene na 0.15 Torr cm (slika 3.40), odnosno u levoj grani Pašenove krive – niski pritisci – prikazuju da procesi indukovani teškim česticama (jonima i brzim neutralima) daju približno podjednak doprinos ukupnoj emisiji kao i elektronski procesi. Ovo je ilustrovano kroz postojanje približno jednakih maksimuma intenziteta emisije ispred katode (proces u kojima učestvuju teške čestice) i anode (proces u kojima učestvuju elektroni) (puna linija na slici 3.40 a) i b)). Sa ulaskom pražnjenja u abnormalni režim i sa porastom struje može se primetiti veliki rast maksimuma intenziteta emisije ispred anode (puna linija na slici 3.40 c)), usled povećanja uticaja elektronskih procesa. Aksijalni emisioni profili dobijeni iz spektralno razloženih snimanja na 431.2 nm – CH profil (isprekidana linija) i za 656.4 nm – H_α profil (crvena crtica–tačka linija)

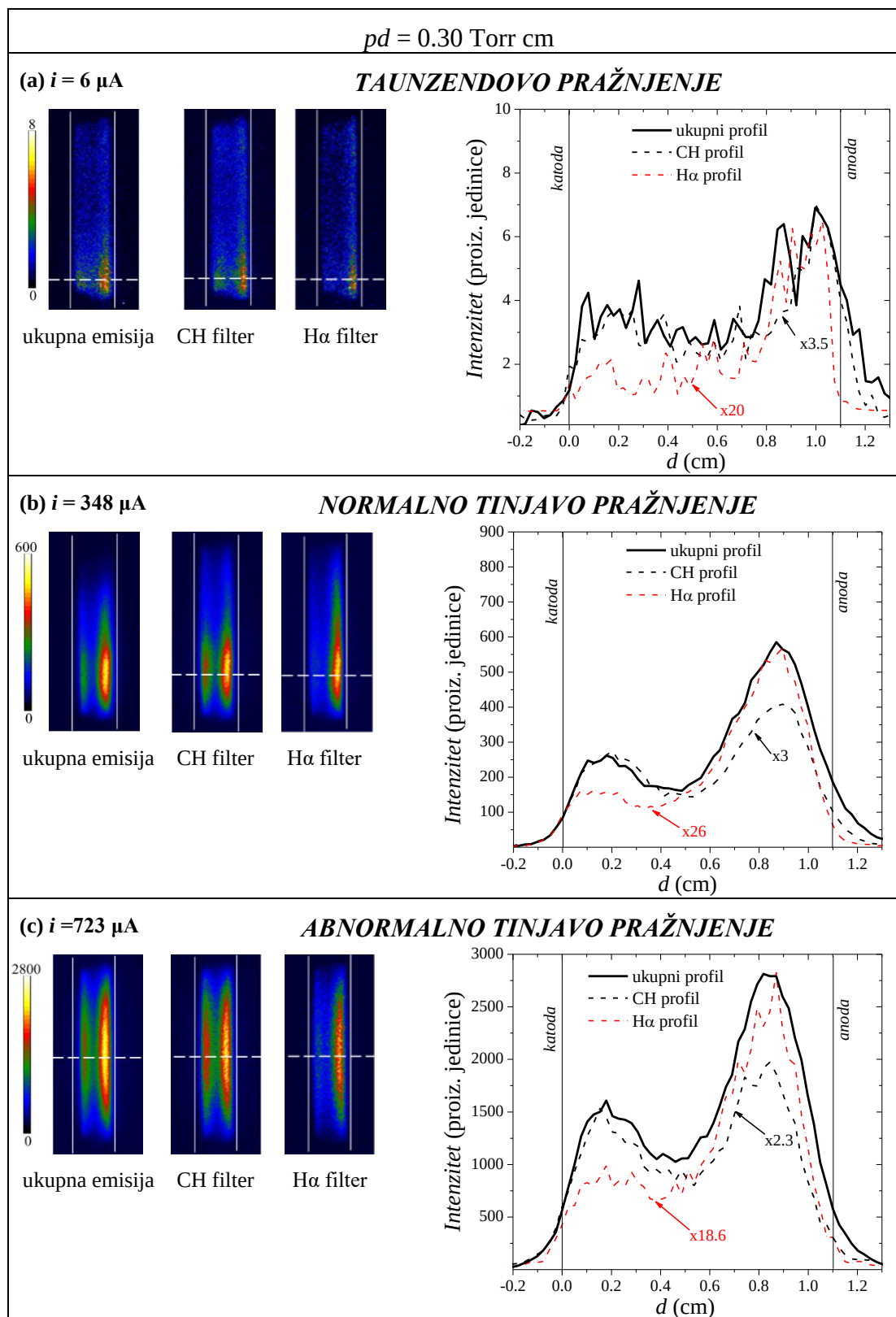
takođe su dati na slici 3.40. Intenziteti ovako dobijenih emisijinih profila su niži od intenziteta ukupnog profila (puna linija), ali su zbog lakšeg poređenja pomnoženi odgovarajućim faktorima skaliranja koji su dati na slikama. Sa grafika na slici 3.40 vidi se da CH profil (isprekidana linija) ima izražen maksimum u oblasti ispred katode u svim režimima rada pražnjenja, drugim rečima procesi indukivni teškim česticama preovlađuju u ekscitaciji gasa. Sa povećanjem struje primećuje se i maksimum ispred anode (elektronska ekscitacija) (isprekidana linija na slici 3.40 b) i c)), ali je on manjeg intenziteta u odnosu na maksimum ispred katode. Ovo govori da značajan deo ukupne emisije ispred katode upravo dolazi iz oblasti talasnih dužina koje pokriva CH filter. S druge strane, H_{α} aksijalni emisijini profil (crvena crtica–tačka linija) u Taunzendovom pražnjenju je skoro zaravnjenog oblika, što govori da u H_{α} emisiji podjednako učestvuju i elektroni i teške čestice. Kako raste sruja H_{α} profil oslikava porast intenziteta emisije od katode ka anodi (slika 3.40 b) i c)). Dakle, na većim strujama H_{α} emisija iz pražnjenja je proizvod elektronske ekscitacije i jonizacije.

U slučaju strujno–naponske karakteristike snimljene na 0.30 Torr cm (minimum Pašenove krive), prostorne raspodele emisije integrisane u celom vidljivom opsegu (puna linija) imaju izraženi maksimum intenziteta ispred anode, što govori da najveći deo emisije dolazi od elektronske ekscitacije i jonizacije gasa (slika 3.41). Dodatno, sa porastom struje pražnjenje od Taunzendovog prolazi kroz oscilatorni, normalni i abnormalni režim rada i pri tom intenzitet emisije raste, dok se maksimum intenziteta ispred anode pomera ka katodi (slika 3.41 a) – c)). Pomeranje maksimuma od anode ka katodi je posledica promene dužine formiranog katodnog pada, drugim rečima pad napona se odvija na sve kraćem rastojanju, pa je u abnormalnom režimu neophodno obezbediti veće električno polje (veći napon) kako bi se odvijali procesi jonizacije (i ekscitacije) da bi se održalo samo pražnjenje.

Spektralno razložene prostorne raspodele intenziteta emisije (slika 3.41), odnosno CH (isprekidana linija) i H_{α} (crvena crtica–tačka linija) emisijini profili su nižeg intenziteta u odnosu na ukupni emisijini profil. Aksijalni profil CH emisije (isprekidana linija) oblikom prati ukupni emisijini profil (puna linija) (slika 3.41 a) – c)). Sa porastom struje rastu i maksimumi u prikatodnim oblastima, kao i značaj procesa indukovanih teškim česticama u CH emisiji na većim strujama. U Taunzendovom režimu H_{α} (crvena tačka–crtica linija) emisijini profil (slika 3.41a)) pokazuje gotovo eksponencijalni porast intenziteta emisije od katode ka anodi – H_{α} emisija je proizvod procesa ekscitacije i jonizacije koji su dominantno indukovani elektronima. Naravno sa povećanjem struje raste i intenzitet H_{α} emisije i dostiže maksimalnu vrednost u abnormalnom režimu rada pražnjenja (slika 3.41 c)). Dakle, ovi rezultati su omogućili indentifikaciju procesa odgovornih za rad pražnjenja u različitim režimima i vrste čestica koje učestvuju u njima.



Slika 3.40. Aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja u pari izopropanola, za $pd = 0.15 \text{ Torr cm}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$, koje odgovaraju karakterističnim režimima pražnjenja na V-I karakteristikama (slika 3.39 1)). Raspodele intenziteta emisije (emisioni profili) su dobijene izvlačenjem vektora intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom na 2D slikama. Na graficima su dati ukupni profili i profili dobijeni upotrebom optičkih filtera kojima su izdvojene emisije za CH na 431.2 nm i H_{α} na 656.4 nm . CH i H_{α} profili su pomnoženi odgovarajućim faktorom skaliranja radi lakšeg poređenja rezultata. Prilikom množenja nisu očuvani relativni odnosi intenziteta među profilima.



Slika 3.41. Aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja u pari izopropanola, za $pd = 0.30 \text{ Torr cm}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$, koje odgovaraju karakterističnim režimima pražnjenja na V-I karakteristikama (slika 3.39 2)). Raspodele intenziteta emisije (emisioni profili) su dobijene izvlačenjem vektora intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom na 2D slikama. Na graficima su dati ukupni profili i profili dobijeni upotrebom optičkih filtera za CH na 431.2 nm i $H\alpha$ na 656.4 nm . CH i $H\alpha$ profili su pomnoženi odgovarajućim faktorom skaliranja radi lakšeg poređenja rezultata. Prilikom množenja nije održan relativni odnos intenziteta među profilima.

3.3.6 ZAKLJUČAK

Poglavlje 3.3. daje opis rezultata merenja električnih i optičkih osobina proboja i različitih karakterističnih režima rada DC pražnjenja u pari izopropanola. Snimanje Pašenovih kriva, odnosno merenje probojnih napona, kao i snimanja odgovarajućih aksijalnih raspodela intenziteta emisije iz pražnjenja urađena su u širokom intervalu pd vrednosti na dva međuelektrodna rastojanja: $d = 1.1$ cm i $d = 3.1$ cm.

Takođe je dat i emisioni spektar pražnjenja u pari izopropanola, na elektrodnom rastojanju od 1.1 cm i pd vrednosti od 0.10 Torr cm, koji je pružio uvid u dominantne proizvode disocijacije molekula izopropanola u pražnjenju i poslužio za izbor odgovarajućih optičkih filtera, koji su korišćeni za spektralno razložena snimanja emisije iz ovog pražnjenja.

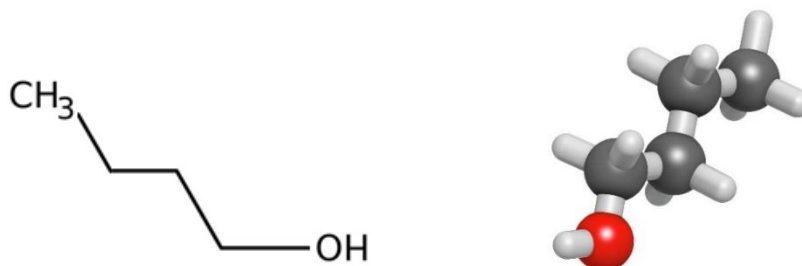
Aksijalni emisioni profili su integrisani u celom vidljivom spektru, ali su i snimani korišćenjem odgovarajućih optičkih filtera kojima su izdvojene emisije na 431.2 nm (CH traka) i na 656.4 nm (H_α linija). Na osnovu snimljenih aksijalnih raspodela emisije uočeno je da teške čestice (najverovatnije brzi neutrali) imaju značajnu ulogu u probou, za široki opseg pd parametra ($E/N \geq 3$ kTd). Ovo je potvrđeno i poređenjem sa aksijalnim raspodelama intenziteta emisije snimljenim korišćenjem optičkih filtera koji odgovaraju talasnim dužinama emisije CH radikala i H atoma (H_α linija). Takođe je iz aksijalnih profila emisije, snimljenih za Pašenovu krivu, direktno određen efektivni jonizacioni koeficijent α , a zatim izračunat efektivni prinos sekundarnih elektrona γ_{eff} . Po našem saznanju u literaturi nema podataka za koeficijent jonizacije i efektivni prinos sekundarnih elektrona za pražnjenja u izopropanolu, tako da nismo bili u mogućnosti da naše rezultate poredimo sa literaturom.

Prikazane su i strujno–naponske ($V-I$) karakteristike pražnjenja za dve vrednosti parametra pd : na 0.15 Torr cm, što odgovara uslovima u levoj grani Pašenove krive, i na 0.30 Torr cm, uslovi u minimumu Pašenove krive. Sva snimanja su rađena za rastojanje od 1.1 cm. Uporedo su snimane i aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisioni profili) u različitim režimima pražnjenja za celi vidljivi spektar i sa CH i H_α filterima. Pokazano je da na niskom pritisku (veliko E/N) prostorna struktura pražnjenja ima izraženu oblast emisije kako ispred anode, tako i ispred katode, dok na višem pritisku (malo E/N) dominira emisija u oblasti ispred anode. Spektralno razložena snimanja su pokazala da je H_α emisija na višem pritisku posledica ekscitacije elektronima (profil odražava eksponencijalni porast intenziteta emisije ok katode ka anodi), dok je na nižem pritisku na slabim strujama ova emisija proizvod podjednakog učešća kako teških čestica (brzih neutrala i jona) tako i elektrona u ekscitaciji i jonizaciji (zaravnjeni profil sa jednakim maksimumima u prikatodnim oblastima). Međutim, u levoj grani Pašenove krive (niski pritisci) u normalnom i abnormalnom pražnjenju (jakostrujna pražnjenja) profili H_α emisije imaju eksponencijalni rast ka anodi, emisija je posledica ekscitacije elektronima.

Potencijalno najinteresantniji rezultat koji je opažen je razlika u prostornim raspodelama emisije između profila za H_α , CH i ukupnu integrisanu emisiju. Ovaj efekat se može dobro primetiti i kod izopropanola. Razlika u profilima daje šansu da se kroz razmatranje efekata brzih teških čestica (posebno visoke energije) i objašnjenje opaženih razlika razvije univerzalna fenomenologija i teorija.

3.4 n-BUTANOL $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OH}$

Butanol odnosno n-butanol (slika 3.42), poznat i kao butil ili 1-butil alkohol, sadrži četiri ugljenikova atoma i pripada grupi monohidroksilnih primarnih alkohola, jer je OH grupa vezana za poslednji ugljenikov atom u lancu. To je dipolni molekul sa 42 elektrona i energijom jonizacije od 10.04 eV (Bowen i Maccoll, 1984). Kao i u slučaju prethodno opisanih alkohola i butanol je lako isparljiva i zapaljiva bezbojna, providna tečnost, jakog i specifičnog mirisa, koja se lako meša sa organskim rastvaračima, ali je slabije rastvorljiva u vodi (oko 7 %) zbog svog dužeg ugljovodoničnog lanca. Ovaj alkohol se javlja kao proizvod fermentacije ugljenih-hidrata, pa je s toga prisutan u alkoholnim pićima, voću, sirevima i raznim drugim namirnicama (Brandt, 1987). Zastupljen je u kozmetici, raznim aromama, tečnostima za kočione sisteme, odmašćivačima, repelentima, a koristi se i kao rastvarač u mnogim industrijskim procesima. Pored ovoga česta je i njegova upotreba u vidu ekstraktanta u proizvodnji antibiotika, hormona, biljnih ulja i vitamina (Lington i Bevan, 1994). Butanol se smatra potencijalnim biogorivom, kao i etanol, s tim što sadrži do 30 % više energije nego etanol, pa je što se toga tiče sličniji benzinu (Qureshi i Ezeji, 2008). Takođe, dodaje se i dizel gorivu kako bi se smanjila emisija čađi u izduvnim gasovima (Antoni., Zverlov i Schwarz, 2007). Može se dobiti putem petrohemijskih procesa, ali se može proizvesti i fermentacijom šećera dobijenog iz kukuruza i drugih poljoprivrednih kultura, kao što je to slučaj i sa etanolom.

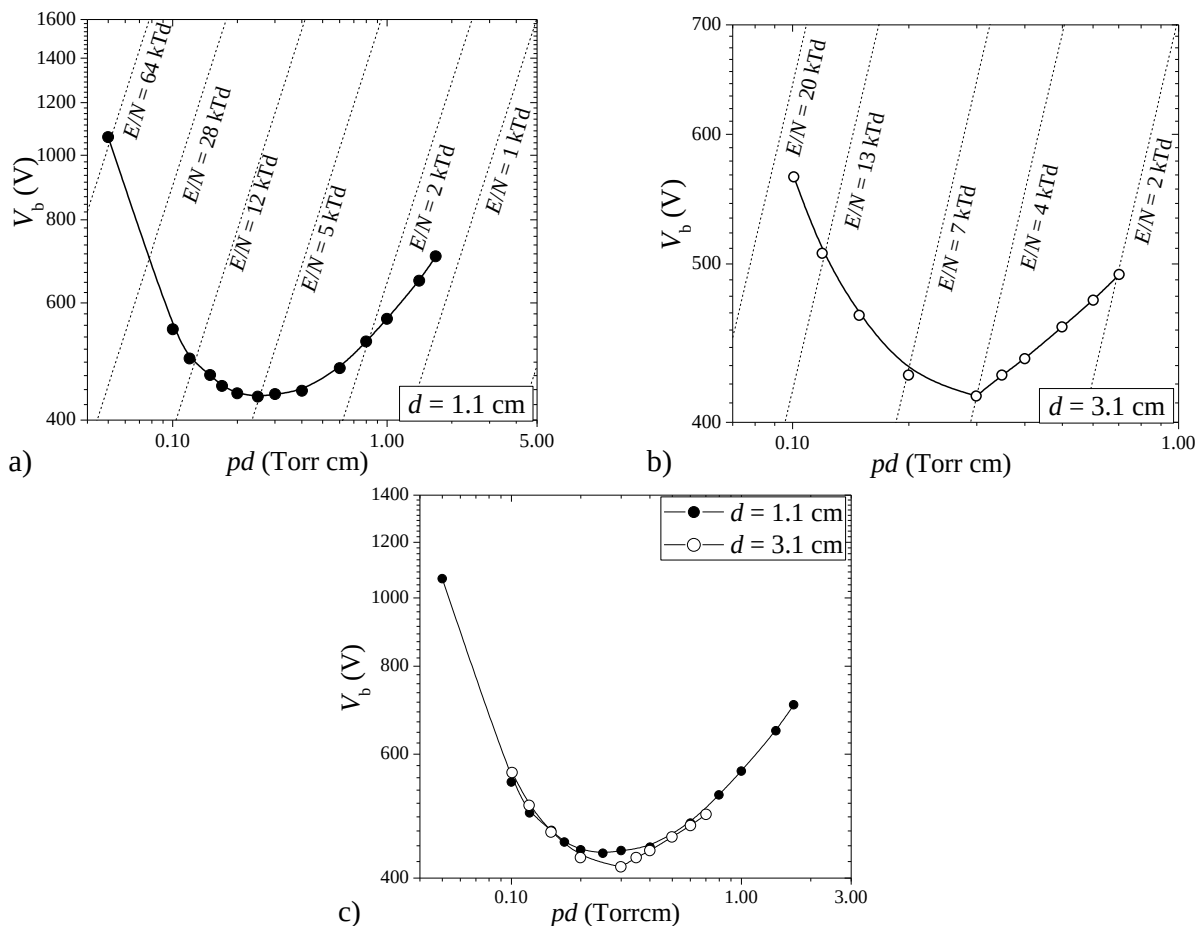


Slika 3.42. Butanol: levo – strukturna formula i desno – model molekula.

Za potrebe našeg eksperimenta i dobijanje pare korišćen je n-butanol čistoće 99.5 % ($M = 74.12 \text{ g/mol}$). Pritisak pare n-butanola na sobnoj temperaturi ($T = 25^\circ\text{C}$) iznosi 6.9 Torr ($1 \text{ Torr} = 133.322 \text{ Pa}$) (Dortmund Data Bank, 1989). Kao i u slučaju prethodno opisanih alkohola, i za pražnjenje u pari n-butanola u ovom odeljku će biti prikazane Pašenove krive izmerene za dva međuelektrodna rastojanja, kao i odgovarajuće aksijalne raspodele intenziteta emisije iz slabostrujnog difuznog Taunzendovog pražnjenja. Snimljeni emisijski spektar je dao uvid u glavne disocijacione proizvode koji nastaju u pražnjenju u našem eksperimentu. Dodatno, spektar nam je omogućio odabir odgovarajućih optičkih filtera koji su korišćeni za snimanje spektralno razloženih raspodela emisije iz pražnjenja. Koeficijenti jonizacije α i sekundarne emisije elektrona γ dobijeni su na osnovu raspodela intenziteta emisije u slabostrujnom Taunzendovom pražnjenju. Snimljena je strujno-naponska karakteristika za široki opseg struja u levoj grani Pašenove krive, kao i odgovarajuće prostorne raspodele pražnjenja za različite režime rada, odnosno na različitim vrednostima struje.

3.4.1 MERENJE PROBOJNOG NAPONA – PAŠENOVE KRIVE

Zavisnost probojnog napona V_b od pd – proizvoda pritiska i rastojanja između elektroda u pražnjenju u pari *n*-butanola na niskim pritiscima data je na slici 3.43. Pašenove krive su merene za dve vrednosti međuelektrodnog rastojanja: 1.1 i 3.1 cm. Sva merenja su urađena u Taunzendovom režimu pri jačini struje od $\sim 1 \mu\text{A}$, a obuhvataju opseg pd vrednosti od 0.05 do 1.70 Torr cm. Jačina redukovanog električnog polja E/N je na graficima (slika 3.43) prikazana isprekidanom linijom i dobijeni rezultati leže u intervalu od ~ 1 do 64 kTd.

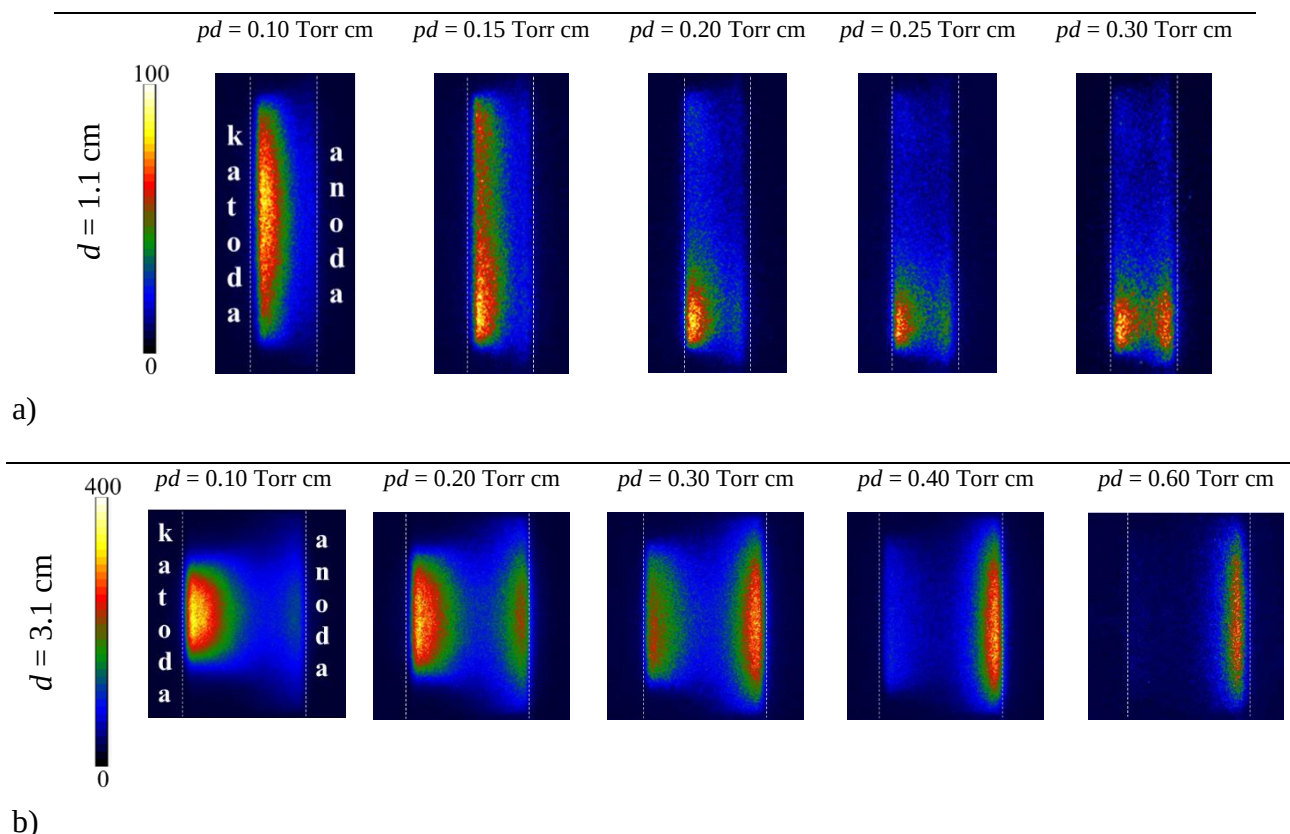


Slika 3.43. Pašenove krive za pražnjenje u pari *n*-butanola na međuelektrodnim rastojanjima od a) 1.1 cm, b) 3.1 cm i c) rezultati za oba međuelektrodna rastojanja.

Minimalni probojni napon u pražnjenju u pari *n*-butanola iznosi 434 V na 0.25 Torr cm pri jačini redukovanog električnog polja od 5 kTd, na međuelektrodnom rastojanju od 1.1 cm. Na rastojanju od 3.1 cm minimalna vrednost napona potrebna da bi došlo do električnog proboja u pari iznosi 415 V na 0.30 Torr cm pri jačini redukovanog električnog polja od 4 kTd. U slučaju manjeg međuelektrodnog rastojanja (1.1 cm), pražnjenje stabilno radi do 0.40 Torr cm, iznad ove vrednosti, odnosno na višim pritiscima, pražnjenje se uključuje u režimu relaksacionih uređenih oscilacija, iz kojih je moguće odrediti vrednost probojnog napona (Marić, 2006; Marić *et al.*, 2009). Na vrednostima iznad 1.70 Torr cm više nije moguće dobiti relaksacione oscilacije, već pražnjenje radi u režimu slobodnih oscilacija. S druge strane, u slučaju rastojanja od 3.1 cm, moguće je dobiti stabilno pražnjenje do 0.6 Torr cm, dok se iznad ove vrednosti javljaju relaksacione oscilacije. U toku merenja i za dobijanje relaksacionih oscilacija korišćene su kombinacije otpornika različitih otpornosti R_s i R_m ($R_s = 150 \text{ k}\Omega$, $560 \text{ k}\Omega$, $5 \text{ M}\Omega$ i $15 \text{ M}\Omega$ i $R_m = 100 \text{ k}\Omega$, $500 \text{ k}\Omega$, $1 \text{ M}\Omega$, $2 \text{ M}\Omega$ i $10 \text{ M}\Omega$).

3.4.2 PROSTORNE RASPODELE EMISIJE SVETLOSTI IZ PRAŽNJENJA

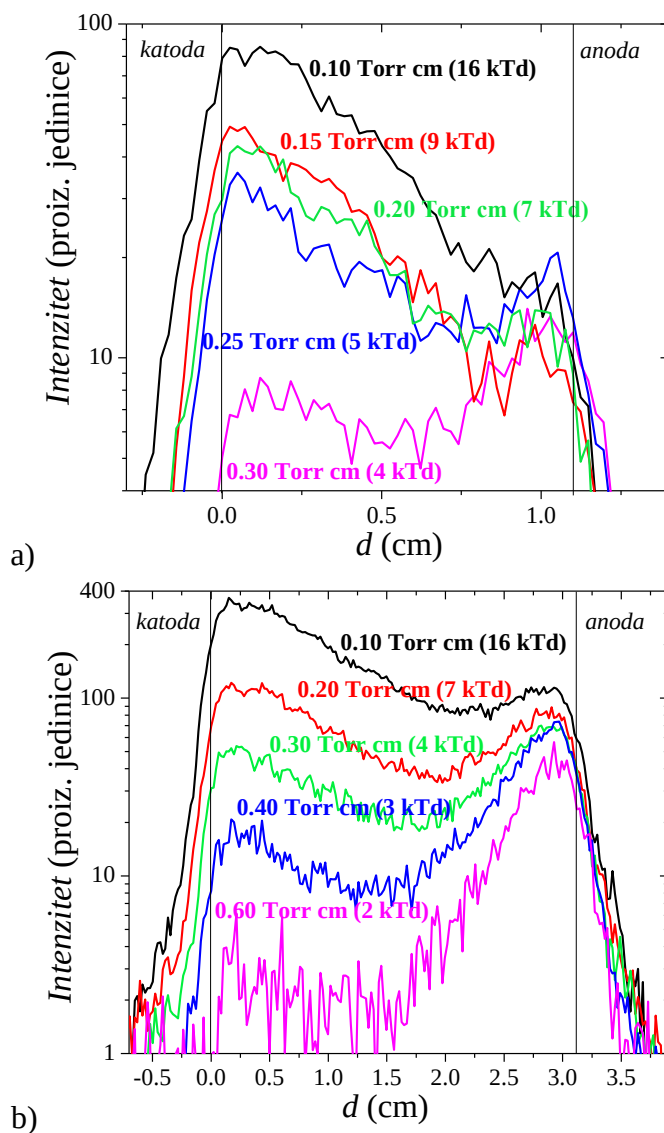
Slika 3.44 prikazuje 2D prostorne raspodele pražnjenja koje su snimljene u toku merenja probojnih napona, Pašenovih kriva, na međuelektrodnim rastojanjima od 1.1 i 3.1 cm. Prikazane raspodele su snimljene u Taunzendovom pražnjenju na struji od 1 μ A za različite pritiske, odnosno za različite pd vrednosti. Kod *n*-butanola se, kao i u slučaju prethodno opisanih alkohola, vidi značajan doprinos teških čestica procesima ekscitacije i jonizacije. Naime, kod pražnjenja u parama alkohola, za razliku od npr. vodene pare, procesi indukovani teškim česticama (jonima i brzim neutralima) se javljaju i u minimumu Pašenove krive, kako na 1.1 cm, tako i na 3.1 cm. Naravno daljim pomeranjem duž desne grane Pašenove krive, sa povećanjem pritiska, iščezava uticaj teških čestica i glavnu ulogu u procesima ekscitacije i jonizacije gasa preuzimaju elektroni.



Slika 3.44. 2D raspodele emitovane svetlosti iz slabostrujnog pražnjenja u pari *n*-butanola za međuelektroдно rastojanje od: a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm.

Na međuelektrodnom rastojanju od 1.1 cm, na pd vrednostima u blizini minimuma Pašenove krive (slika 3.44 a)) pražnjenje je i dalje difuzno i u Taunzendovom režimu, ali ne zauzima centralni deo elektroda, već je pomereno ka dole, kao i u slučaju izopropanola (slika 3.32 a)). Sa povećanjem napona, odnosno pomeranjem ka nižim pritiscima pražnjenje se polako širi dok na kraju ne zauzme celu površinu katode. Ovakvo ponašanje pražnjenja, paljenje na određenom delu površine elektrode, može biti posledica kondicioniranja površine, odnosno promene uslova na površini katode koji obezbeđuju ekonomičniji rad pražnjenja ili narušena paralelnost elektroda. Ovo drugo svakako nije razlog, jer je komora za pražnjenje osmišljena tako da obezbedi visoku paralelnost elektroda, koja je i eksperimentalno proverena. Uslovi na površini katode su takođe proveravani, i svaki put je pre merenja katoda na isti način tretirana u pražnjenju u vodoniku kako bi se dobili, identični i stabilni uslovi za svako merenje. Dakle, u toku tretmana katode u pražnjenju u vodoniku nisu primećena nikakva odstupanja ili čudna ponašanja u struji i naponu i u 2D prostornoj raspodeli pražnjenja. Takođe je komora otvarana, pregledane su elektrode, katoda čišćena i polirana. Na osnovu ovoga, može se pretpostaviti da u toku rada verovatno dolazi do promene uslova u pražnjenju, bilo

adsorpcijom ili disocijacijom koji indukuju ovakvo ponašanje i prostornu raspodelu pražnjenja. Čak i povratkom sa nižeg pritiska, odnosno iz leve grane Pašenove krive gde pražnjenje zauzima skoro celu površinu elektrode, u Pašenovom minimumu pražnjenje će se ponovo pomeriti ka donjem delu elektroda. Kako bi se dobile lepše prostorne raspodele pražnjenja i probojni naponi na višim pritiscima (desna grana Pašenove krive), u kojima bi se pražnjenje stabilno uključivalo, rastojanje između elektroda je povećano na 3.1 cm (slika 3.44 b)).



Slika 3.45. Aksijalne raspodele intenziteta emisije slabostrujnog pražnjenja u pari *n*-butanola za a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm, koje odgovaraju 2D raspodelama emitovane svetlosti sa slike 3.44 a) i 3.44 b), respektivno.

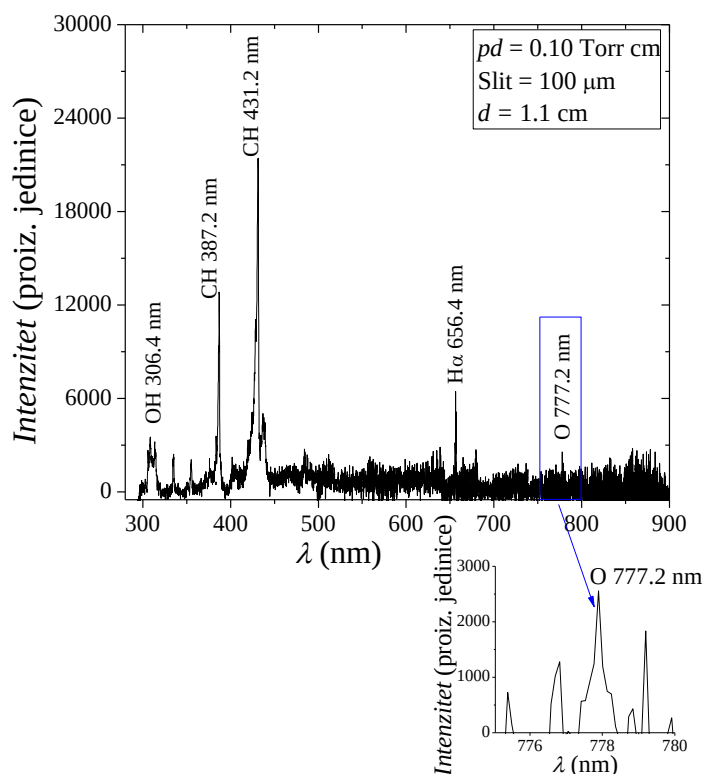
Na slici 3.45 prikazane su odgovarajuće aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja koje odgovaraju 2D slikama sa slike 3.44. Za oba međuelektrodna rastojanja na svim vrednostima pd parametra u blizini minimuma i u levoj grani Pašenove krive aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisijski profili) imaju maksimalni intenzitet u oblasti ispred katode, usled procesa indukovanih teškim česticama. Ovaj maksimum emisije raste sa porastom jačine redukovanoeg električnog polja E/N , odnosno sa smanjenjem pritiska p . Nasuprot tome, sa opadanjem jačine redukovanoeg električnog polja i sa povećanjem pritiska raste intenzitet emisije ispred anode (maksimum ispred anode) koji odražava sve značajniju ulogu elektrona u procesima ekscitacije i jonizacije gasa. Na malim E/N laki i već dovoljno brzi elektroni, nasuprot težim i tromijim jonima, dosta lakše stiču dovoljno energije za uspešnu ekscitaciju molekula i jonizaciju gasa. U tim uslovima aksijalni emisijski profil oslikava porast intenziteta emisije od katode ka anodi sa приметnim nehidrodinamičkim delom u blizini katode (slika 3.45b) 0.60 Torr cm). Dakle, iako se elektroni već

kreću velikim brzinama, njima je ipak potrebno da pređu određeni put kako bi skupili dovoljno energije za uspešnu ekscitaciju i jonizaciju pozadinskog gasa (u ovom slučaju *n*-butanola) i upravo taj put predstavlja nehidrodinamička oblast ispred katode na aksijalnom emisionom profilu (Živanov, 2000; Phelps i Petrović, 1999). Iz aksijalnih emisionih profila snimljenih na nižim *E/N* gde nema uticaja teških čestica i koji imaju eksponencijalni porast intenziteta emisije od katode ka anodi određeni su jonizacioni koeficijenti za pražnjenje u pari *n*-butanola.

3.4.3 SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA

Optički emisioni spektar pražnjenja u pari *n*-butanola je dat na slici 3.46 (Sivoš *et al*, 2020). Spektar je sniman na međuelektrodnom rastojanju od 1.1 cm u slabostrujnom Taunzendovom pražnjenju, na struji od 1 μ A, u levoj grani Pašenove krive za $pd = 0.10$ Torr cm za opseg talasnih dužina od 300 do 900 nm. U merenom spektralnom opsegu detektovane su sledeće emisije: OH, CH, O i H_{α} (Balmerova serija). Ekscitacija i jonizacija molekula usled sudara sa elektronima imaju važnu ulogu u procesima koji se odvijaju u neravnotežnim gasnim pražnjenjima. Disocijativnom jonizacijom višeatomskog molekula mogu nastati različiti atomski i molekulski joni. Ovako nastali molekulski joni su najčešće jako nestabilni (imaju kratko vreme života) pa nastavljaju da disosuju na manje jonske i neutralne fragmente (Zavilopulo, Chipev i Kokhtych, 2005). S druge strane, usled elektron–molekul sudara može doći do: 1) disocijativne ekscitacije, kada dolazi do disocijacije molekula, a preostala energija odlazi na ekscitaciju nastalog atomskog fragmenta i 2) predisocijativne ekscitacije, kada u sudaru elektron prvo pobudi molekul (ekscituje ga) nakon čega se molekul vraća u osnovno stanje disosujući na fragmente (Raju, 2005). Emisije koje su detektovane u snimljenom spektru pražnjenja u pari *n*-butanola potiču od ekscitovanih vrsta nastalih disocijativnom ekscitacijom roditeljskog molekula C_4H_9OH na H atome i druge teže pobuđene disocijativne fragmente: CH, OH i O (Poncin-Epaillard i Aouinti M, 2002; Zavilopulo, Chipev i Kokhtych, 2005; Gaydon A. G, 1974).

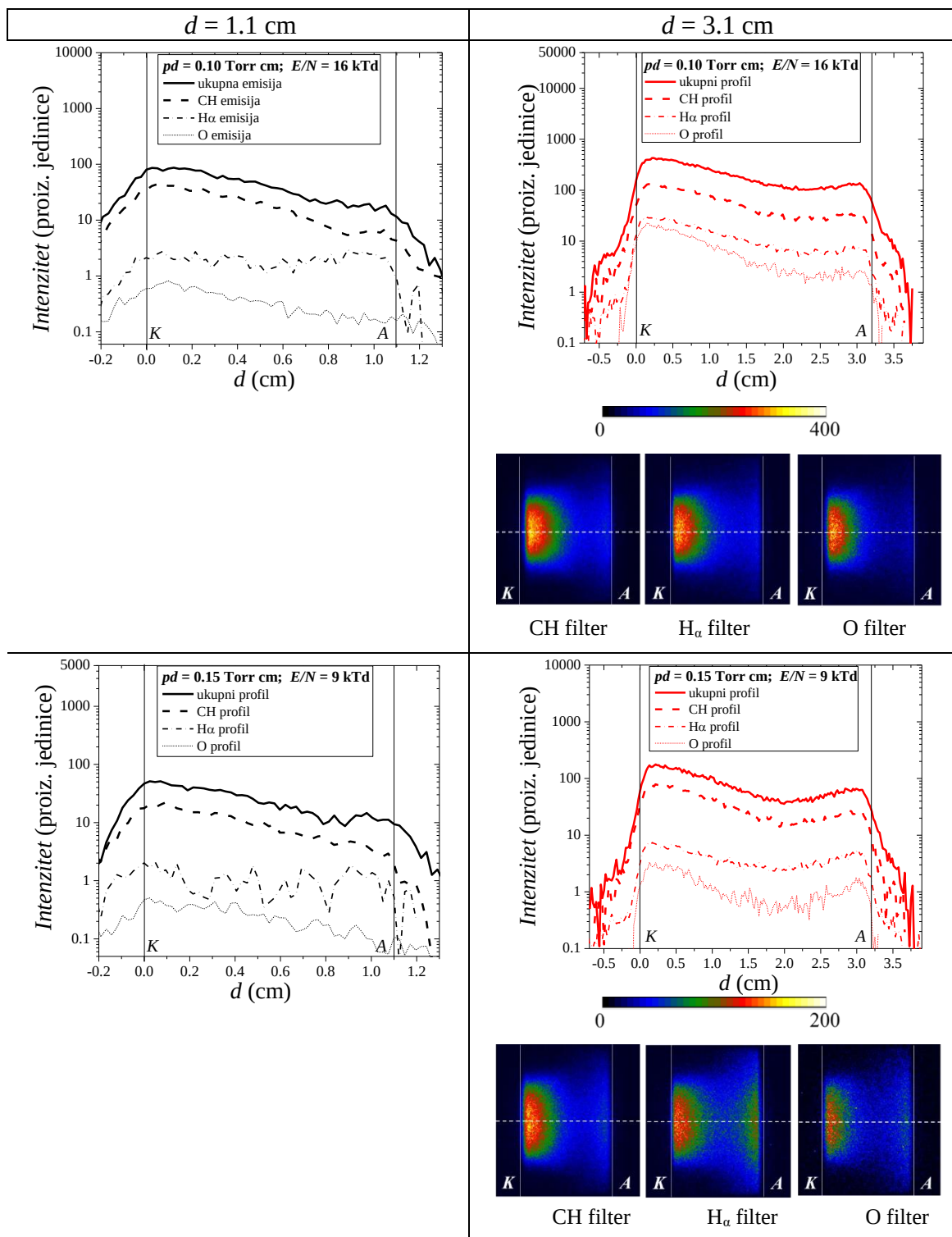
Emisija na talasnoj dužini od 306.4 nm potiče od OH radikala ($3604 \text{ \AA}$ sistem $A^2\Sigma \rightarrow X^2\Pi$) (Gaydon, 1974; Stocer *et al.*, 2001; Liu *et al.*, 2007; Mašláni i Sember, 2014). U spektru *n*-butanola je dominantna emisija CH radikala koji je osnova svih alkohola kao i većine organskih jedinjenja. Emisija ovog radikala potiče od dva dominantna sistema: 1) $B^2\Sigma^- \rightarrow X^2\Pi$ tzv. 3900 $\text{\AA}$ sistema sa čelom trake na 387.2 nm i 2) $A^2\Delta \rightarrow X^2\Pi$ odnosno 4315 $\text{\AA}$ sistema sa čelom trake na 431.2 nm (Gaydon, 1974; Donohue *et al.*, 1977). Na talasnim dužinama od 656.4 nm i 777.2 nm uočavaju se linije vodonikovog (Balmerova H_{α} linija) i kiseonikovog atoma, respektivno. Može se primetiti da u spektru u pražnjenju u *n*-butanolu dominira CH traka na talasnoj dužini od 431.2 nm i druga manjeg intenziteta na 387.2 nm, a zatim slede Balmerova H_{α} linija na 656.4 nm i OH traka na 306.4 nm. U pražnjenju u *n*-butanolu je intenzitet CH trake veći nego u slučaju prethodno opisanih prostijih alkohola, a uzrok tome je veći sadržaj ugljenika i veći broj C – H veza (Ghezelbash *et al.*, 2017). Snimanje emisionog spektra je urađeno kako bi se odabrali odgovarajući optički filteri za spektralno razložena snimanja. Filteri su takvi da pokrivaju interval talasnih dužina na kojima su detektovane najintenzivnije emisije iz pražnjenja: 431.2 nm (CH), 656.4 nm (H_{α}) i 777.2 nm (O). Spektralno razloženo snimanje u UV oblasti nije bilo moguće zbog objektiva na kameri koji ima staklenu optiku.

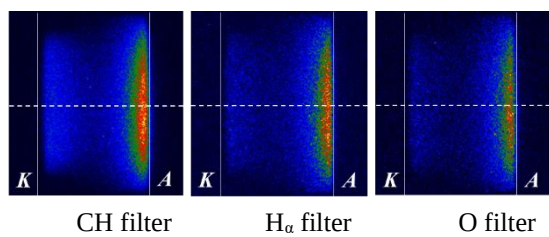
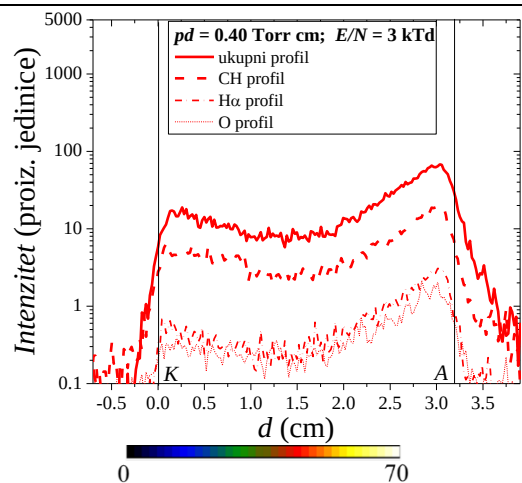
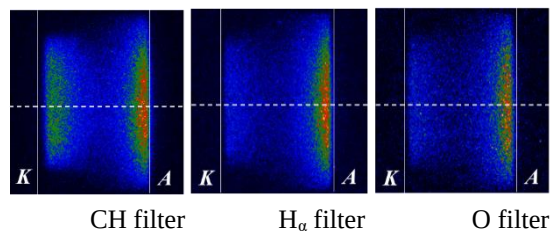
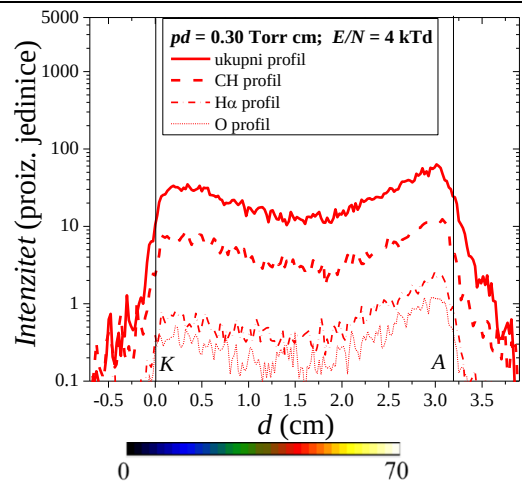
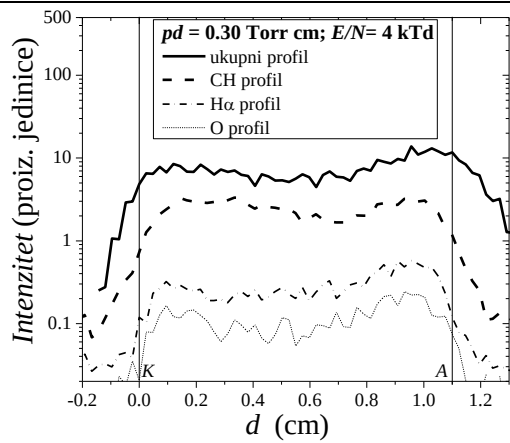


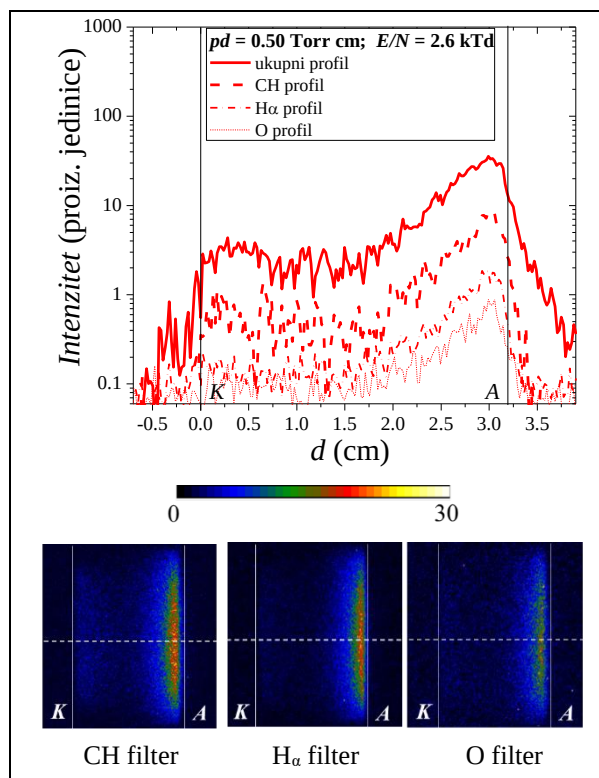
Slika 3.46. Optički emisijski spektar pražnjenja u pari *n*-butanola na $pd = 0.10$ Torr cm i rastojanju $d = 1.1$ cm ($V_b = 605$ V; $i = 1$ μ A). Širina slita spektrografa je 100 μ m.

Aksijalne prostorne raspodele emisije u Taunzendovom pražnjenju u pari *n*-butanola integrisane u celom vidljivom spektru (ukupni profili), kao i u izabrim uskim intervalima talasnih dužina u okolini najintenzivnijih linija (profili dobijeni snimanjem kroz filtere) prikazane su na slici 3.47. Snimanja su urađena u intervalu pd vrednosti od 0.10 do 0.50 Torr cm za međuelektrodno rastojanje od 3.1 cm i u intervalu od 0.10 do 0.30 Torr cm za rastojanje 1.1 cm. Na slici 3.47b) su ispod grafika date odgovarajuće 2D slike pražnjenja slikane sa optičkim filterima iz kojih su duž prikazane isprekidane linije izvučene aksijalne raspodele emisije (aksijalni profili). U slučaju *n*-butanola integrisani profili ukupne emisije (puna linija) imaju izraženi maksimum intenziteta ispred katode, kako u levoj grani Pašenove krive, na nižim pritiscima – većim E/N , tako i u njenom minimumu. Ovakav izgled aksijalnog profila, odnosno postojanje pika emisije ispred katode je posledica ekscitacije gasa teškim česticama (brzim neutralima) (Petrović *et al.*, 1992; Marić *et al.*, 2003). Na 0.15 Torr cm se na ukupnom profilu primećuje maksimum intenziteta emisije ispred anode nastao usled procesa ekscitacije indukovanih sudarima elektrona i neutrala, i raste sa povećanjem pritiska.

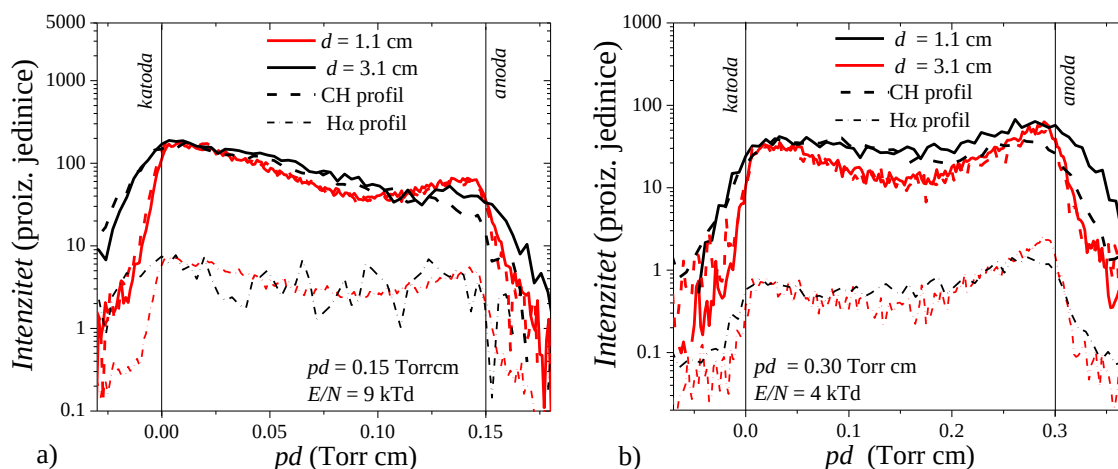
Aksijalni profil CH emisije (isprekidana linija) oblikom prati profil ukupne emisije (puna linija) za sve vrednosti pd parametra i nešto je manjeg intenziteta. S druge strane, H_α (crtica–tačka linija) i O (kratka isprekidana linija) aksijalni emisijski profili su dosta nižeg intenziteta nego CH emisijski profil, tako da je i njihov udeo u ukupnoj emisiji dosta manji nego onaj koji dolazi iz oblasti pokrivene CH filterom. Dodatno, oblik H_α emisijskog profila na različitim E/N govori da je na najnižem prikazanom pritisku ($pd = 0.10$ Torr cm) vodonik takođe pobuđen u sudarima sa teškim česticama (postojanje maksimuma emisije ispred katode), dok se sa porastom pritiska elektronska ekscitacija i jonizacija povećava da bi profil već u Pašenovom minimumu ($pd = 0.30$ Torr cm) poprimio skoro eksponencijalni oblik sa pikom ispred anode (0.30 Torr cm na slici 3.47b)), za razliku od ukupnog profila (puna linija) koji pokazuje približno podjednak doprinos elektronske ekscitacije i ekscitacije indukovane teškim česticama. Aksijalni profil O emisije (kratka isprekidana linija) se jako dobro slaže sa oblikom ukupnog profila (puna linija) na svim prikazanim pd vrednostima.







Slika 3.47. Aksijalne raspodele intenziteta ukupne, CH, H_{α} i O emisije u Taunzenovom pražnjenju u pari *n*-butanola snimljeni tokom merenja probojnih napona (Pašenove krive). Merenja su urađena za a) $d = 1.1$ cm i b) $d = 3.1$ cm. Za rastojanje od 3.1 cm su ispod grafika prikazane 2D slike emisije snimljene korišćenjem optičkih filtera za 431.2 nm (CH), 656.4 nm (H_{α}) i na 777.2 nm (O).



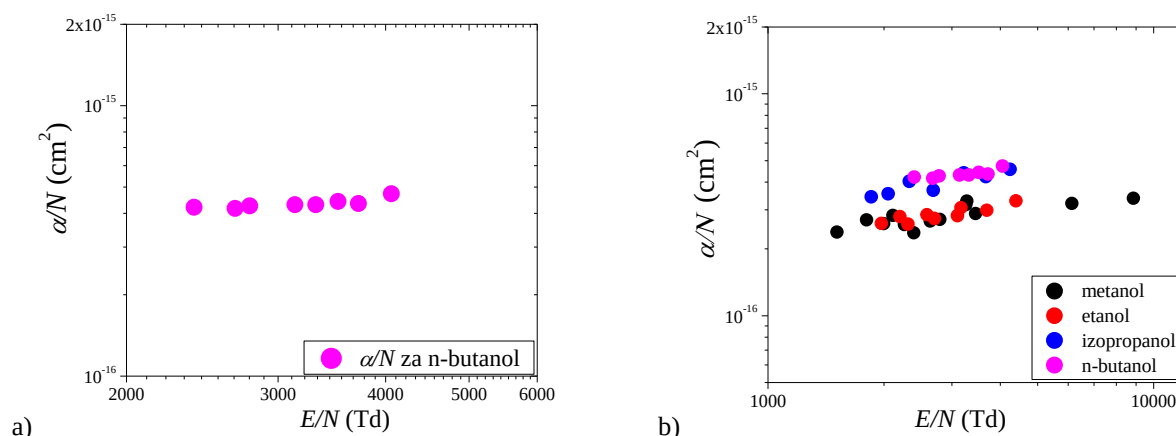
Slika 3.48. Aksijalne raspodele intenziteta emisije Taunzenovog pražnjenja u pari *n*-butanola snimljene u a) levoj grani Pašenove krive na $pd = 0.15$ Torr cm i c) u blizini minimuma Pašenove krive na $pd = 0.30$ Torr cm. Na x - osi prikazan je proizvod rastojanja katode d i pritiska p kako bi se omogućilo poređenje raspodela koje su snimljene na istom pd , ali na različitim međuelektrodnim rastojanjima. Punim linijama su prikazane ukupne raspodele emisije integrisane u vidljivom delu spektra, isprekidanom linijom su prikazane raspodele emisije snimljene upotrebom CH optičkog filtera i crtica-tačka linijom su prikazane raspodele emisije snimljene upotrebom H_{α} optičkog filtera. CH raspodele su normirane na odgovarajuće ukupne profile, dok su H_{α} raspodele međusobno normirane radi lakšeg poređenja rezultata dobijenih za različita rastojanja.

Na slici 3.48 su prikazani rezultati za dve vrednosti pd parametra 0.15 Torr cm (leva grana Pašenove krive) i 0.30 Torr cm (okolina minimuma Pašenove krive) na međuelektrodnim rastojanjima od 1.1 i 3.1 cm. Raspodele emisije su skalirane po parametru pd (d je rastojanje od katode) tako da je omogućeno poređenje na različitim rastojanjima elektroda/pritiscima tj. različitim vrednostima redukovanog električnog polja E/N . Na malim vrednostima pd i visokim E/N , teške čestice, joni i neutrali, dobijaju dovoljno energije da bi vršili ekscitaciju, pa čak i jonizaciju. Na $pd = 0.15$ Torr cm

procesu indukovani teškim česticama preovlađuju u pražnjenju, što se ogleda u emisionom profilu čiji je maksimum intenziteta ispred katode (slika 3.48a)). U okolini Pašenovog minimuma, na $pd = 0.30$ Torr cm, primetna su dva pika u intenzitetu emisije, manji ispred katode i veći ispred anode koji ukazuje na elektronsku ekscitaciju (slika 3.48b)). Rezultati prikazani na slici 3.48 ukazuju da su osnovni procesi koji se odvijaju u probou i u slabostrujnim pražnjenjima isti na istim vrednostima pd parametra, za opseg rastojanja između elektroda koji je ovde prikazan, što govori da i struktura pražnjenja ostaje nepromenjena.

3.4.4 ODREĐIVANJE JONIZACIONOG KOEFICIJENTA α I KOEFICIJENTA SEKUNDARNE EMISIJE ELEKTRONA γ

Za pražnjenje u pari n–butanola određeni su jonizacioni koeficijenti u uslovima koji su ispunili zahtev da u pražnjenju dominira elektronska jonizacija i ekscitacija molekula gasa, dakle na višim pritiscima, odnosno nižim vrednostima redukovano električnog polja – okolina minimuma i desna grana Pašeneve krive. Jonizacioni koeficijent je dobijen iz aksijalnih emisionih raspodela intenziteta pražnjenja (aksijalnih emisionih profila) snimljenih u slabostrujnom pražnjenju u limitu malih struja, odnosno u uslovima probou (za detaljniji opis pogledati odeljak 3.1.4.). U našem eksperimentu je bilo moguće odrediti jonizacione koeficijente samo u uskom opsegu redukovano električnog polja od 2.3 kTd do 4.1 kTd (slika 3.49).

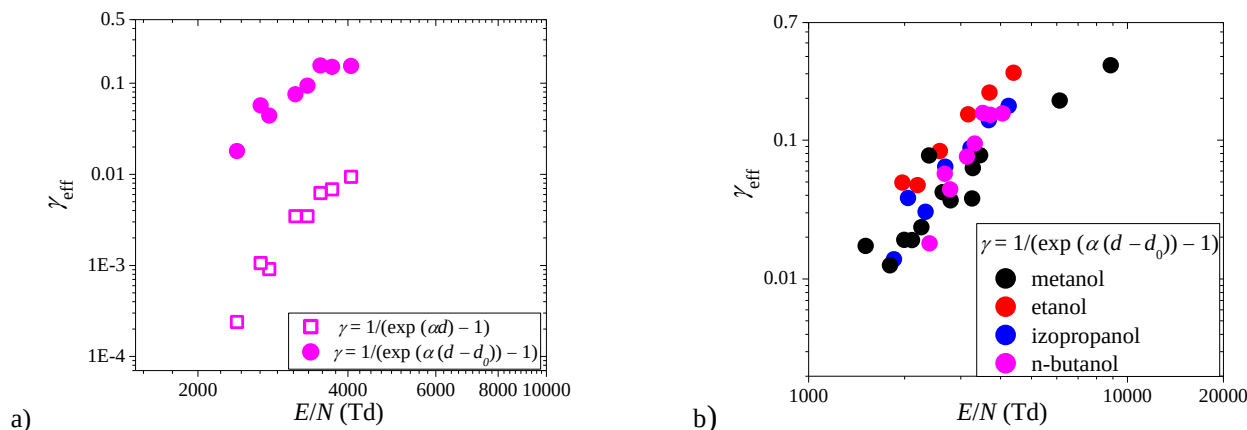


Slika 3.49. Zavisnost efektivnog jonizacionog koeficijenta (α/N) od jačine redukovano električnog polja (E/N): a) u pari n–butanola (bakarna katoda) i b) u parama metanola, etanola, izopropanola i n–butanola (bakarna katoda).

Zavisnost efektivnog jonizacionog koeficijenta α/N od redukovano električnog polja E/N dobijena u pražnjenju u pari n–butanola prikazana je na slici 3.49 a), dok je na istoj slici pod b) dato poređenje vrednosti efektivnog jonizacionog koeficijenta u pražnjenjima u parama metanola, etanola, izopropanola i n–butanola (Sivoš *et al.*, 2019). Koliko je nama poznato u literaturi nema podataka o jonizacionom koeficijentu za pražnjenje u n–butanolu (butanolu). Zato je bilo interesantno videti i uporediti vrednosti za jonizacioni koeficijent u parama alkohola koje su ispitivane u našem eksperimentu. Vrednosti efektivnog jonizacionog koeficijenta u n–butanolu za interval E/N od 2.3 do 4.1 kTd su i do 1.6 puta veće nego vrednosti jonizacionog koeficijenta u parama metanola i etanola, dok je razlika sa izopropanolom skoro zanemarljiva.

Za pražnjenje u pari n–butanola određeni su i efektivni koeficijenti sekundarne emisije elektrona γ_{eff} u zavisnosti od E/N koji su prikazani na slici 3.50. Slika 3.50 a) prikazuje odnos vrednosti γ_{eff} koje su dobijene bez i sa uračunavanjem d_0 (dužine uravnoteženja) (Phelps i Petrović, 1999) u formulu za koeficijent sekundarne emisije elektrona (jednačina 3.1). Vidi se da razlika u vrednostima za γ_{eff} može da bude i do dva reda veličine kada se u formuli zanemari parametar d_0 . Na slici 3.50 b) dato je poređenje vrednosti γ_{eff} koeficijenata za pražnjenja u parama metanola, etanola, izopropanola i n–

butanola dobijenih u našem eksperimentu, za interval vrednosti E/N od 1.5 do 8.8 kTd. Za opseg vrednosti jačina redukovano električnog polja od 1.8 do 4.3 kTd, vrednosti koeficijenta γ_{eff} za n-butanol se u proseku razlikuju za faktor 0.02 u odnosu na odgovarajuće vrednosti γ_{eff} za metanol i etanol, dok se sa izopropanolom gotovo preklapaju u intervalu E/N od 3 do 4 kTd. Vrednosti efektivnih koeficijenata α i γ su određene za uski interval relativno visokih vrednosti E/N , jer nije bilo moguće ostvariti stabilni rad pražnjenja na manjim E/N , odnosno višim pritiscima.

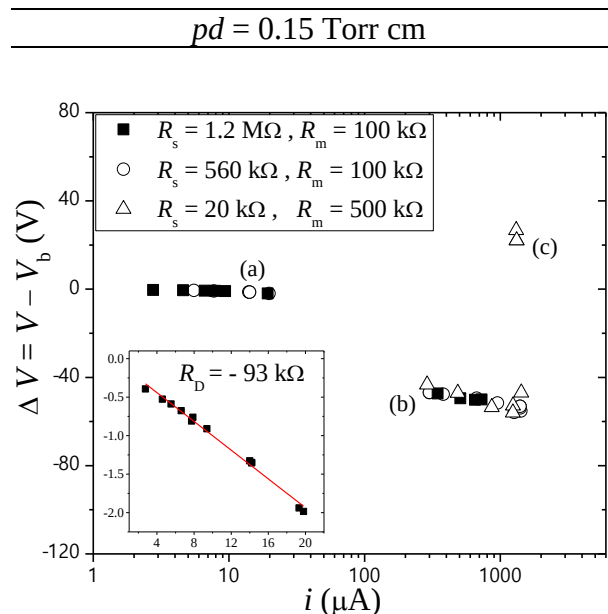


Slika 3.50. Zavisnost efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona γ_{eff} od redukovano električnog polja E/N : a) u pražnjenju u pari n-butanola (bakarna katoda) gde su vrednosti za γ_{eff} dobijene bez uračunavanja dužine uravnoteženja d_0 (prazni kvadrati) i sa uračunavanjem d_0 (puni krugovi); b) za pražnjenja u parama metanola, etanola, izopropanola i n-butanola (bakarna katoda) sa uračunatim d_0 .

3.4.5 STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I PROSTORNE RASPODELE PRAŽNJENJA

Za DC pražnjenje u pari n-butanola snimljena je strujno–naponska (V – I) karakteristika za pd vrednost od 0.15 Torr cm (slika 3.51), koja leži na levoj grani Pašenove krive. Merenje je urađeno na elektrodnom rastojanju od 1.1 cm za probojni napon od 447 V. Na V – I karakteristici se jasno izdvajaju oblasti koje odgovaraju različitim režimima rada pražnjenja: a) Tunzendov, b) normalni tinjavi i c) abnormalni tinjavi režim, dok prekid na V – I karakteristici, na prelazu iz Taunzendovog u normalno tinjavo pražnjenje, odgovara oblasti samostalnih neprigušenih oscilacija. Ubačeni grafik na slici 3.51 prikazuje određivanje negativne diferencijalne otpornosti, koja za snimljenu V – I karakteristiku na 0.15 Torr cm iznosi $R_D = -93$ k Ω . Simboli na slici odgovaraju kombinacijama otpornika različitih otpornosti R_s i R_m koje su korišćene u toku merenja.

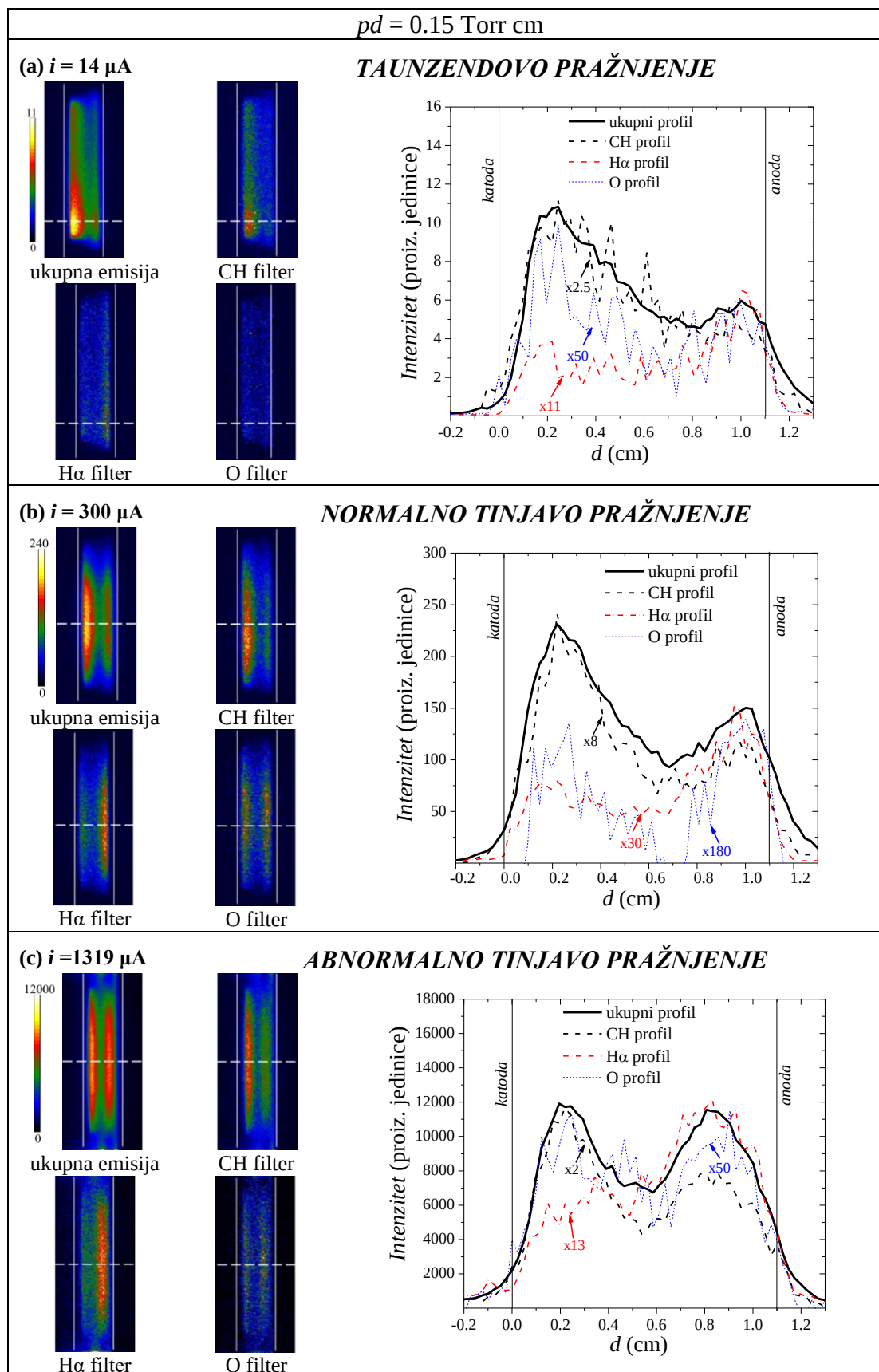
Na slici 3.52 su date aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisijski profili) koje odgovaraju V – I karakteristici na 0.15 Torr cm, i snimane su u različitim režimima rada pražnjenja: a) Taunzendovom, b) normalnom tinjavom i c) abnormalnom. Ako se pogledaju emisijski profili dobijeni integracijom u celoj vidljivoj oblasti (puna linija na slici 3.52) primećuje se izraženi pik u intenzitetu emisije koji se formira u oblasti ispred katode. Dakle, procesi ekscitacije i jonizacije su u ovom slučaju indukovani teškim česticama, najverovatnije brzim neutralima. Kako struja pražnjenja raste, odnosno kako pražnjenje prolazi kroz različite režime rada, raste i intenzitet ukupne emisije iz pražnjenja. Dodatno, sa porastom struje raste i pik intenziteta emisije ispred anode i dostiže svoj maksimum u abnormalnom režimu, kada postaje jednak po intenzitetu maksimumu emisije ispred katode (puna linija na slici 3.52c)). Dakle ovo govori da su u abnormalnom pražnjenju podjednako zastupljeni kako procesi indukovani teškim česticama, tako i elektronski procesi ekscitacije i jonizacije. Takođe se uočava da se sa porastom struje pomera i maksimum intenziteta ispred anode ka katodi, što je posledica promene dužine formiranog katodnog pada (slika 3.52a)–c)).



Slika 3.51. Strujno – naponske karakteristike pražnjenja u pari *n*-butanola na elektrodnom rastojanju $d = 1.1 \text{ cm}$, za vrednost proizvoda $pd = 0.15 \text{ Torr cm}$ i $V_b = 447 \text{ V}$. Na ubačenom grafiku je data odgovarajuća negativna diferencijalna otpornost R_D . Sloвне oznake od (a) do (c) odgovaraju aksijalnim raspodelama intenziteta emisije (aksijalnim emisionim profilima) na slici 3.52.

Profili dobijeni snimanjem kroz optičke filtere su dosta nižeg intenziteta nego ukupni profil, ali su skalirani odgovarajućim faktorom kako bi se poklopili sa maksimalnim intenzitetom ukupnog profila ispred katode ili anode. Ovo je urađeno radi lakšeg poređenja dobijenih rezultata. Ako se pogleda CH emisija (crna isprekidana linija) primećuje se da je ona u svim režimima rada pražnjenja dominantno indukovana teškim česticama, jako izražen maksimum intenziteta emisije u oblasti ispred katode. Dodatno CH profil oblikom dobro prati ukupni profil emisije u svim režimima rada pražnjenja. S druge strane, ako se pogleda H_α emisioni profil (crvena crtica-tačka linija na slici 3.52) on u svim režimima pražnjenja ima maksimum intenziteta emisije u oblasti ispred anode, odnosno pokazuje eksponencijalni porast intenziteta emisije od katode ka anodi. Ovakav izgled emisionog profila govori da do ekscitacije i jonizacije dolazi usled reakcije/sudara atoma i molekula gasa sa elektronima.

Što se tiče O emisije (plava isprekidana linija na slici 3.52) ona je u Taunzendovom pražnjenju posledica procesa ekscitacije teškim česticama, dok u normalnom i abnormalnom pražnjenju skoro jednak doprinos ekscitaciji daju i teške čestice i elektroni (podjednaki pikovi emisije ispred katode i anode). Može se zaključiti da značajan deo ukupne emisije ispred katode upravo dolazi iz oblasti talasnih dužina koje pokriva CH filter, dok dosta manji deo dolazi iz oblasti pokrivena O filterom. S druge strane u ukupnoj emisiji u oblasti ispred anode primetno učestvuje emisija koja dolazi iz oblasti pokrevene H_α filterom. Ovako snimljeni aksijalni profili su dali uvid kako u dominantne procese u različitim režimima rada pražnjenja, tako i u vrste čestica koje učestvuju u njima.



Slika 3.52. Aksijalne raspodele intenziteta emisije iz pražnjenja u pari *n*-butanola, za $pd = 0.15 \text{ Torr cm}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$, koje odgovaraju karakterističnim režimima pražnjenja na *V-I* karakteristici (slika 3.51). Raspodele intenziteta emisije (emisioni profili) su dobijene izvlačenjem intenziteta duž ose prikazane isprekidanom linijom na 2D slikama. Na graphicima su dati ukupni profili i profili dobijeni upotrebom optičkih filtera za izdvajanje emisije na CH na 431.2 nm, $H\alpha$ na 656.4 nm i O na 777.2 nm. Profili snimljeni optičkim filterima su pomnoženi odgovarajućim faktorima sklajiranja radi boljeg poređenja dobijenih rezultata (treba napomenuti da prilikom skaliranja nije održan relativni odnos intenziteta snimljenih profila sa optičkim filterima).

3.4.6 ZAKLJUČAK

U poglavlju 3.4. je dat opis rezultata merenja električnih i optičkih osobina probaja i različitih karakterističnih režima rada DC pražnjenja u pari n-butanola. Snimanje Pašenovih kriva, odnosno merenje probojnih napona, kao i snimanja odgovarajućih aksijalnih raspodela intenziteta emisije iz pražnjenja urađena su u širokom intervalu pd vrednosti na dva međuelektrodna rastojanja: $d = 1.1$ cm i $d = 3.1$ cm.

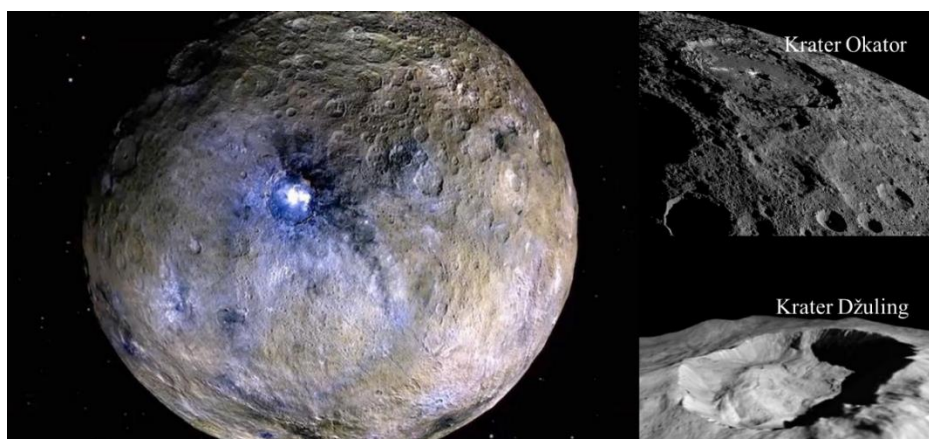
Za elektrodno rastojanje od 1.1 cm i pd vrednost od 0.10 Torr cm prikazan je snimljeni emisijski spektar pražnjenja u pari n-butanola, na osnovu koga su prepoznati dominantni proizvodi disocijacije molekula n-butanola u pražnjenju. Dobijeni optički emisijski spektar je poslužio za izbor odgovarajućih optičkih filtera, koji su korišćeni za spektralno razložena snimanja emisije iz ovog pražnjenja.

Aksijalni emisijski profili su integrisani u celom vidljivom spektru, ali su i snimani korišćenjem odgovarajućih optičkih filtera kojima su izdvojene emisije na 431.2 nm (CH traka), na 656.4 nm (H_{α} linija) i na 777.2 nm (O linija). Na osnovu snimljenih aksijalnih raspodela emisije uočeno je da teške čestice značajno učestvuju u probou i to u širokom opsegu pd parametra ($E/N \geq 4$ kTd). Ovo je potvrđeno i poređenjem sa aksijalnim raspodelama intenziteta emisije snimljenim korišćenjem optičkih filtera koji odgovaraju talasnim dužinama emisije CH radikala, O i H atoma (H_{α} linija). Takođe je iz aksijalnih profila emisije, snimljenih za probaj na višim pritiscima (manjim E/N), direktno određen jonizacioni koeficijent α , a zatim izračunat efektivni prinos sekundarnih elektrona γ_{eff} . Ovako dobijene rezultate za koeficijent jonizacije i efektivni prinos sekundarnih elektrona za pražnjenje u n-butanolu nije bilo moguće porediti sa podacima iz literature, jer ih po našem saznanju u dostupnoj literaturi nema.

U okviru ovog poglavlja prikazani su i rezultati vezani za strujno-naponsku ($V-I$) karakteristiku pražnjenja snimljenu za rastojanje elektroda od 1.1 cm na pd od 0.15 Torr cm, što odgovara uslovima u levoj grani Pašenove krive. Uz $V-I$ karakteristiku su prikazane i odgovarajuće aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisijski profili) u različitim režimima pražnjenja, kako za celi vidljivi spektar, tako i sa CH, O i H_{α} filterima. Pokazano je da na niskom pritisku (veliko E/N) prostorna struktura pražnjenja ima izraženu oblast emisije ispred katode. Snimljeni profili CH emisije, iako nižeg intenziteta, po obliku prate profile pražnjenja snimljene u celom vidljivom spektru. Ono što je zanimljivo je da u svim režimima rada pražnjenja H_{α} emisijski profil ima pik ispred anode, prikazujući eksponencijalni porast intenziteta emisije od katode ka anodi, što je posledica dominantno elektronskih procesa. Dok CH i O emisijski profili imaju izraženiji pik ispred katode, koji je posledica procesa indukovanih teškim česticama. Može se zaključiti da ukupnoj emisiji u oblasti ispred katode značajan deo daje CH emisija, koja je posledica procesa indukovanih teškim česticama u svim režimima rada pražnjenja.

4. VODENA PARA

Neravnotežna niskotemperaturna pražnjenja u vodi i u vodenoj pari, zauzimaju posebno mesto u oblasti plazma fizike koja proučava električna pražnjenja u tečnostima, njihovim parama i na granici gas–tečnost. Ovo je sasvim razumljivo ako se uzme u obzir to da je upravo voda jedan od najrasprostranjenijih molekula u svemiru (Kessler, 2002), da se može naći u atmosferama planeta i satelita, da je prisutna na kometama i pri formiranju zvezda. Samo u našem Solarnom sistemu je prisustvo vode detektovano u atmosferama Marsa, Jupitera, Merkura, Venere, Neptuna, Urana kao i u atmosferi patuljaste planete Ceres, na kojoj je pored prisustva vodene pare detektovano i prisustvo leda (Tereszchuk *et al.*, 2002; Bernath, 2002; Raponi *et al.*, 2018; Carrozzo *et al.* 2018). Značajan deo kometa se sastoji od zamrznute vode i one ispuštaju vodenu paru kada se nađu blizu Sunca. Čak postoji i teorija da je voda dospela do površine planete Zemlje kroz sudare sa kometama koje potiču iz udaljenih regiona Sunčevog sistema. Vodena para je opažena u međuzvezdanim oblacima (Faure *et al.*, 2019) bilo kao molekul, bilo kao klasteri – posebno $\text{H}_3\text{O}^+(\text{H}_2\text{O})_n$. U svim ovim situacijama može se očekivati neka vrsta formiranja jonizovanog gasa odnosno, interakcije slične gasnim pražnjenjima pa je to deo motivacije za izučavanje pražnjenja u vodenoj pari (pa i u samoj tečnoj vodi).



Slika 4.1. Ceres (levo) i njegova dva kratera Okator (eng. Ocattor Crater) i Džuling (eng. Juling Crater) (desno). Istraživanja objavljena u martu 2018. otkrila su obilje leda na severnom zidu kratera Džuling (prečnik ovog kratera je 20 km) i pokazala da je Ceresova površina (kora) debela oko 40 km i da je bogata vodom, raznim solima i, možda, organskim materijama. U Okatorskom krateru, odnosno u njegovim svetlim regionima dominiraju natrijum – karbonati, koji su detektovani pored drugih hidratisanih karbonata na površini Ceresa, a koji uglavnom nastaju u okeanima, što govori o tome da je ova planeta i hemijski i geološki aktivno telo (Carrozzo *et al.*, 2018; Raponi *et al.*, 2018; NASA/JPL-Caltech/UCLA/MPS/DLR/IDA, 2019).

Pražnjenja u vodenoj pari imaju široko polje primenljivosti, kao što je, na primer, eliminacija potencijalno opasnih mikroorganizama i biomolekula, koja je od velikog značaja u prehrambenoj, tekstilnoj i vazduhoplovnoj industriji, u sterilizaciji i dekontaminaciji raznih površina i instrumenata u medicini, zatim u zaštiti životne sredine, usavršavanju izvora svetlosti koji ne sadrže živu, u obradi, tretmanu i funkcionalizaciji materijala i u biomedicini (Stalder *et al.*, 2006; Artamonova *et al.*, 2008; Fumagalli *et al.*, 2012; Joshi *et al.*, 2011; Rossi *et al.*, 2009). Značajna je primena podvodnih pražnjenja za čišćenje brodskih korita od korozije i nagomilane materije. Upravo zbog raznolikosti mogućih primena raste potreba za razvojem i dizajniranjem različitih izvora ovih plazmi, koji mogu da rade na atmosferskom i niskom pritisku, kao i u samoj tečnosti. Zajednička karakteristika svih gore pomenutih primena pražnjenja u vodenoj pari je upravo samo radno okruženje koje je dosta kompleksno. Tako je na niskim pritiscima ono sačinjeno od mešavine gasa

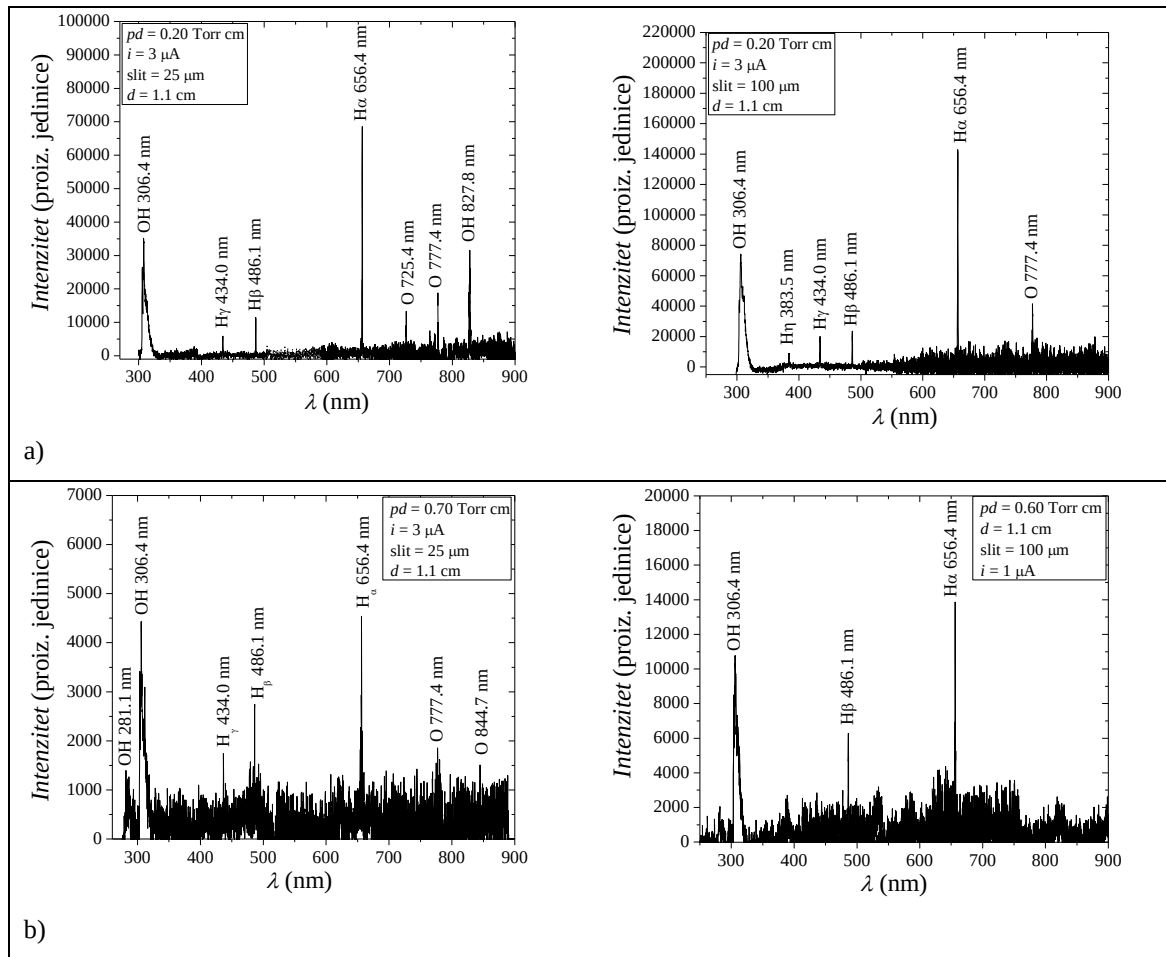
(npr. plemeniti gasovi: Ne, Ar, Kr) i pare (Artamonova *et al.*, 2008; Fumagalli *et al.*, 2012), dok se kod primena koje rade na atmosferskom pritisku pražnjenje najčešće odvija u vlažnom vazduhu, ili čak u sredini saturisanoj vodenom parom usled, na primer isparavanja tečne elektrode ili formiranja magle (Shirai *et al.*, 2011; Morgan i Rosocha, 2012). S druge strane, kod pražnjenja u tečnostima radna sredina je obično, heterogeni sistem tečnosti i mehurića vazduha (Babaeva i Kushner, 2009). Dodatno, uređaji koji se koriste u raznim aplikacijama u većini slučajeva imaju izvore pražnjenja složene geometrije. Uzimajući sve ovo u obzir, kao i složenost osobina i ponašanja neravnotežnog pražnjenja samog po sebi, sasvim je jasno da je potpuno razumevanje i opisivanje procesa, koji se dešavaju u ovim pražnjenjima, jako težak i kompleksan zadatak. Naime, suštinska priroda proučavanja neravnotežnih plazmi leži u detaljnom poznavanju i razumevanju kombinovanja atomskih i molekulskih procesa i procesa na površinama, koji zajedno grade kompleksnu sliku samog pražnjenja. Upravo je ovo razlog zbog kog je potrebno imati ispravne i tačne podatke i fenomenologiju, koji su dobro testirani kvantitativnim poređenjem sa eksperimentima.

Cilj našeg istraživanja pražnjenja u vodenoj pari je dobijanje nekih od osnovnih podataka o probou i režimima rada na niskim pritiscima, u širokom opsegu struja pražnjenja. I pored toga što se u primenama uglavnom koriste uređaji koji poseduju složenu geometriju, fundamentalne procese je, u kvantitativnom smislu, najbolje objašnjavati u jednostavnoj geometriji i upravo je to razlog što su naša merenja rađena u neravnotežnom plan–paralelnom DC pražnjenju u vodenoj pari. Ovakva merenja pri različitim radnim uslovima pražnjenja imaju za cilj formiranje baze referentnih podataka koji bi se koristili u tumačenju i modelovanju kompleksnijih pražnjenja. Jedan deo rezultata vezanih za merenja u pražnjenju u vodenoj pari prikazani su u Doktorskoj disertaciji dr Nikole Škora (Škoro, 2012) – Pašenove krive merene na različitim međuelektodnim rastojanjima, koeficijenti α i γ i strujno–naponske karakteristike snimljene za međuelektrodna rastojanja od 1.1, 2.1 i 3.1 cm. U ovom odeljku biće data merenja: optičkih emisionih spektara, spektralno razloženih snimanja raspodela emisije iz slabostrujnog pražnjenja, vremenski razloženih snimanja abnormalnog tinjavog pražnjenja i odgovarajuće strujno–naponske karakteristike, vremena preleta jona u slabostrujnom DC pražnjenju i uticaja postojanja kapljica na formiranje probouja, čime ćemo dopuniti i proširiti već postojeće podatke vezane za pražnjenje u vodenoj pari.

4.1 SPEKTRALNO RAZLOŽENA MERENJA

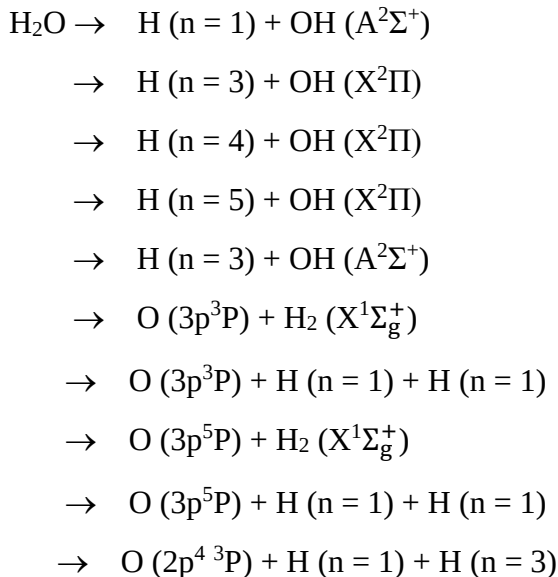
Pražnjenja u parama tečnosti karakterišu jako kompleksni elementarni fizički i hemijski procesi, pa je i u slučaju vodene pare ispitivanje prošireno spektralno razloženim merenjima emisije svetlosti iz pražnjenja. Snimljeni optički emisioni spektri pražnjenja u vodenoj pari pružili su uvid u dominantne proizvode disocijacije molekula vode u pražnjenju. Na slici 4.2 prikazani su emisioni spektri snimljeni na različitim vrednostima pd parametra – okolina minimuma i leva grana Pašenove krive. Merenja su rađena za elektrodno rastojanje od 1.1 cm, uz upotrebu dva slita : 25 i 100 μm , u opsegu talasnih dužina od 250 do 900 nm.

U pražnjenju u vodenoj pari u opsegu talasnih dužina od 250 do 900 nm može se uočiti emisija sledećih ekscitovanih fragmenata: OH radikala, vodonikovih (Balmerova serija) i kiseonikovih atoma. Nastanak gore pomenutih vrsta u pražnjenju može biti posledica dva procesa: elektronske disocijativne ekscitacije molekula vode (ekscitacija i disocijacija molekula usled udara elektrona) i elektronske disocijativne rekombinacije H_2O^+ ili H_3O^+ jona (zahvat elektrona od strane pozitivnog jona i formiranje neutralnog molekula koji dalje disosuje) (Sonnenfroh *et al.*, 1993). Emisija OH radikala (prelaz $A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi$, $\Delta v = 0$) u našem pražnjenju je najverovatnije posledica udara elektorna u molekule vode i predstavlja najupečatljiviju karakteristiku emisionog spektra vodene pare/vode. To je emisija koja se sastoji od kompleksnog sistema traka koje leže u opsegu od 306 nm do 350 nm, sa najvećim intanzitetom na 306.4 nm.



Slika 4.2. Optički emisijski spektri pražnjenja u vodenoj pari : a) $pd = 0.20$ Torr cm, $V_b = 985$ V i b) $pd = 0.70$ i 0.60 Torr cm, $V_b = 538$ V i $V_b = 536$ V, respektivno.

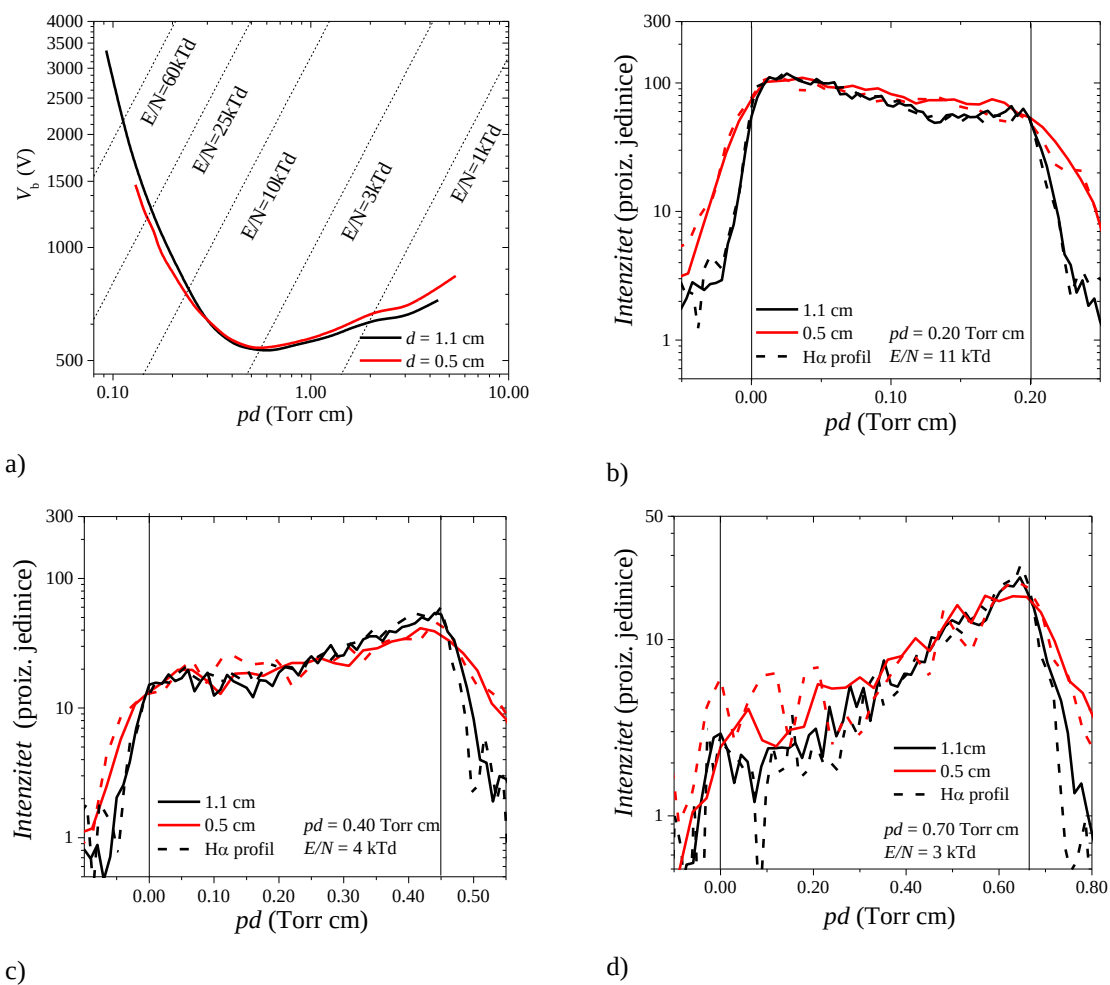
Pored ovog sistema može se uočiti i emisija OH na 281.1 nm (slika 4.2b)) koja odgovara sistemu $A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi$, $\Delta v = 1$ sa trakama u opsegu talasnih dužina od 281 nm do 295 nm. Takođe, u reakciji sa elektronima nastaju i vodonikovi atomi, čije su emisije linije na 383.5, 434.0, 486.1 i 656.4 nm, kao i pobuđeni O atomi (slika 4.2) od kojih su $3p^3P \rightarrow 3s^3S^0$ na 844.7 nm i $3p^5P \rightarrow 3s^5S^0$ na 777.4 nm detektovani u našem eksperimentu. Ovakav izgled emisijonog spektra pražnjenja u vodenoj pari može biti posledica sledećih reakcija disocijativne ekscitacije vode, koje su date u radu Binakera i saradnika (Beenakker *et al.*, 1974):



4. Vodena para

Dodatno je pokazano da je za nastajanje OH radikala u pobuđenom stanju $A^2\Sigma^+$ potrebno primeniti najmanje energiju od 9.13 eV (Rosen, 1970), pa ovaj prag odgovara pobuđenim stanjima molekula vode u opsegu od 9.13 – 9.3 eV (Beenakker *et al.*, 1974; Itikawa i Mason, 2005) što odgovara prvoj reakciji. Pragovi energija potrebnih za nastajanje $OH(X^2\Pi)$, $H(n=3)$ (H_α), $H(n=4)$ (H_β), $H(n=5)$ (H_γ), $O(3p^3P)$ i $O(3p^5P)$ su 17.2 eV, 17.2 eV, 17.8 eV, 18.1 eV, 20.4 eV i 20.2 eV respektivno (Beenakker *et al.*, 1974; Bruggeman *et al.*, 2009). Treba napomenuti da je najmanja vrednost energije potrebna za jonizaciju molekula vode 15.1 eV (Bruggeman *et al.*, 2009) i da pri tom, čak i u pražnjenjima malih energija, molekul vode uglavnom disosuje na H atom i OH radikal (Watson, 1924).

Kako je najintenzivnija emisija u spektru pražnjenja u vodenoj pari na 656.4 nm, odnosno potiče od H_α linije vodonikove Balmerove serije, za spektralno razložena snimanja prostornih raspodela emisije, izabran je odgovarajući uskopropusni optički filter uz pomoć kog su dobijene prostorne raspodele pražnjenja. Na slici 4.3 prikazane su aksijalne raspodele emisije (aksijalni profili) i Pašenove krive snimljene za dva međuelektrodna rastojanja 0.5 i 1.1 cm (Škoro, 2012).



Slika 4.3. a) Pašenove krive dobijene za dva međuelektrodna rastojanja 1.1 i 0.5 cm (Škoro, 2012); aksijalni profili emisije iz Taunzendovog pražnjenja u vodenoj pari snimljeni u levoj grani Pašenove krive na b) $pd = 0.20$ Torr cm i c) $pd = 0.40$ Torr cm i u minimumu Pašenove krive na d) $pd = 0.70$ Torr cm. Rastojanje od katode d je pomnoženo sa p da bi se omogućilo poređenje na istim vrednostima pd za različita međuelektrodna rastojanja. Puna linija odgovara profilima integrisanim u vidljivom delu spektra, dok isprekidana linija predstavlja profil dobijen snimanjem kroz H_α optički filter. Intenziteti aksijalnih H_α emisijnih profila su normirani na maksimalni intenzitet ukupnih profila faktorom 2 radi lakšeg poređenja.

Odabrani profili integrisane emisije i H_α emisije na $pd = 0.20$ Torr cm (slika 4.3b)), $pd = 0.40$ Torr cm (slika 4.3c)) i $pd = 0.70$ Torr cm (slika 4.3d)) ilustruju kako promena parametra pd (E/N) utiče na strukturu i osnovne procese u pražnjenju. Prikazani profili su skalirani po pd

parametru, d je rastojanje od katode. Na ovaj način je omogućeno poređenje raspodela intenziteta emisije dobijenih za različita međuelektrodna rastojanja, odnosno na različitim pritiscima, čime se u isto vreme može testirati i validnost skaliranja pd parametrom (Francis, 1956; Marić *et al.*, 2003, Petrović *et al.*, 2008).

Na niskim pd i visokim vrednostima redukovanog električnog polja (E/N) teške čestice – joni i neutrali – stiču dovoljno energije za ekscitaciju i jonizaciju okolnog gasa. Na $pd = 0.20$ Torr cm procesi indukovani teškim česticama preovlađuju nad procesima indukovanim elektronima, što se ispoljava kroz emisioni profil čiji se maksimum intenziteta nalazi ispred katode (slika 4.3 b)). U ovom slučaju najverovatnije kandidate, za indukovanje jake emisije u katodnoj oblasti predstavljaju brzi vodonikovi atomi (Petrović *et al.*, 1992; Petrović i Phelps, 2009). Dalje, sa pomeranjem ka minimumu, odnosno sa povećanjem pd i smanjenjem E/N , menja se i izgled profila, odnosno procesi u pražnjenju, tako na 0.40 Torr cm (slika 4.3 c)) i dalje je primetan pik ispred katode, ali je takođe prisutan i izraženiji pik intenziteta emisije u oblasti ispred anode, nastao usled procesa indukovanih elektronima (elektronska ekscitacija i jonizacija). U oblasti minimuma Pašenove krive, $pd = 0.70$ Torr cm (slika 4.3 d)), može se zapaziti tipičan eksponencijalni porast intenziteta emisije od katode ka anodi koji ukazuje na elektronsku ekscitaciju. Sam početak naglog porasta intenziteta emisije (slika 4.3 d)) je pomeren od katode za dužinu tzv. nehidrodinamičkog regiona u kome elektroni još uvek nemaju dovoljno energije za ekscitaciju (Malović *et al.*, 2003; Marić *et al.*, 2014; Folkard i Haydon, 1973).

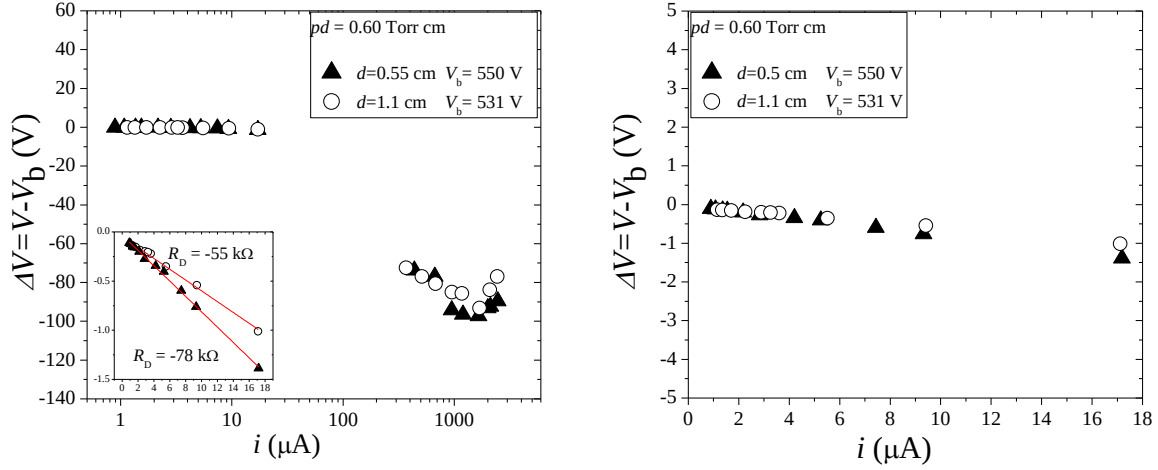
Ako pogledamo aksijalne raspodele emisije date na slici 4.3 možemo videti da se oblici aksijalnih emisionih profila integrisanih u vidljivoj oblasti (pune linije) odlično slažu sa profilima dobijenim upotrebom optičkog filtera na 656.4 nm, odnosno sa H_α aksijalnim emisionim profilima (isprekidane linije) (čiji su intenziteti normirani na maksimalni intenzitet ukupnih profila faktorom 2 radi lakšeg poređenja), na svim vrednostima parametra pd (E/N). Takođe, primetno je dobro međusobno slaganje u obliku aksijalnih emisionih profila integrisanih u vidljivoj oblasti na različitim međuelektrodnim rastojanjima, što govori u prilog tome da su zakoni skaliranja održivi na istim pd , odnosno E/N . Drugim rečima, osnovni procesi koji određuju i definišu sam proboj i slabostrujna pražnjenja ostaju isti za isto pd , odnosno struktura pražnjenja ostaje nepromenjena. Ovakva snimanja prostornih raspodela pražnjenja pružaju podatke kojima je omogućeno kontinualno praćenje prelaza između dva režima, a takođe ovako dobijeni profili, uz upotrebu odgovarajućih tehnika, mogu biti upotrebljeni za dobijanje kvantitativnih podataka o sudarima teških čestica u vodenoj pari.

4.2 STRUJNO–NAPONSKE KARAKTERISTIKE I VREMENSKI RAZVOJ ABNORMALNOG PRAŽNJENJA

Da bi se dobio odgovor da li na ukupnu kinetiku pražnjenja utiču procesi višeg reda ili nelinearnosti potrebno je proveriti skaliranje svojstava pražnjenja. Pokazano je da u slučaju pražnjenja u gasovima na niskim pritiscima važi skaliranje sa pd , E/N ali i sa j/p^2 . U većini slučajeva kada se skalira sa gustinom struje, pretpostavlja se da je površina koja se koristi za normalizaciju jednaka celoj površini pražnjenja, odnosno celoj površini elektrode. Felps i saradnici su često isticali da bi se trebala uzeti u obzir realna površina pražnjenja, a ne pretpostavljati da pražnjenje u svakom trenutku zauzima celu površinu elektroda. Određivanje realnih površina pražnjenja je postalo moguće upotrebom transparentnih provodnih elektroda, koje su omogućile dobijanje radijalne raspodele pražnjenja i samim tim sprovođenje realnih testova skaliranja (kao što je to po prvi put urađeno u radu Škoro *et al.*, 2008). Na ovaj način je pokazano da su teorijska predviđanja koja su tvrdila da je gustina struje konstantna tokom normalnog tinjavog pražnjenja tačna, što znači da se cela oblast normalnog režima svodi na jednu j/p^2 tačku. Na slici 4.4 su date strujno–naponske karakteristike u funkciji struje i za pražnjenje u vodenoj pari na $pd = 0.60$ Torr cm za

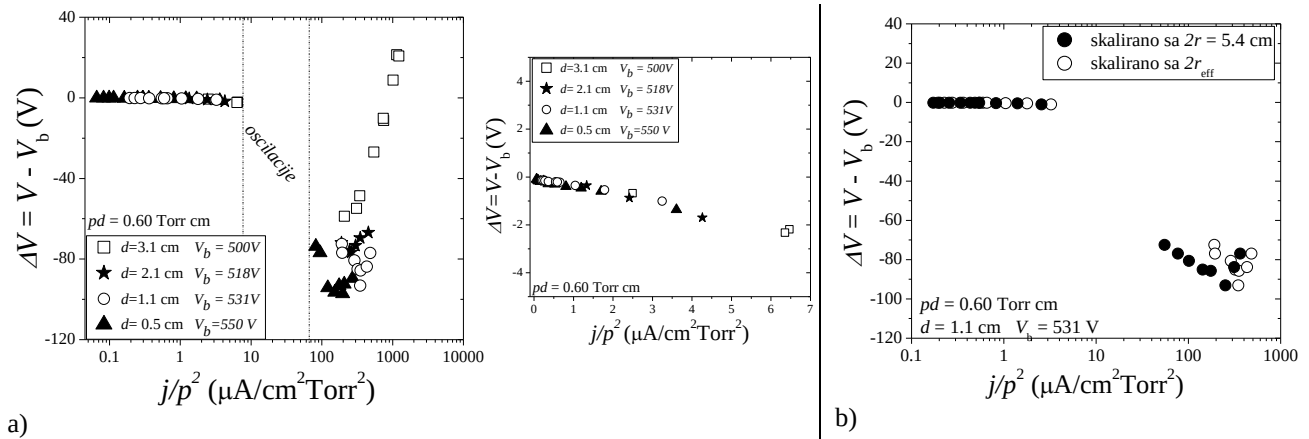
4. Vodena para

međuelektrodna rastojanja od 1.1 cm (Škoro, 2012) i 0.5 cm. Na slici 4.4 grafik desno daje uvećani izgled slabostrujne oblasti (Taunzendov režim) pražnjenja ($\sim 1 \mu\text{A}$ do $\sim 20 \mu\text{A}$) za ova dva rastojanja elektroda. Napon je dat kao razlika napona pražnjenja V i probojnog napona V_b kako bi se eliminisale razlike u pripremi katode koje dovode do različitih probojnih napona. Tako se prikazivanjem nadnapona (eng. *overvoltage*) pokazuje deo napona koji se konvertuje u struju i aktivno učestvuje u strujno–naponskoj karakteristici.



Slika 4.4. Strujno–naponske karakteristike pražnjenja u vodenoj pari na $pd = 0.60 \text{ Torr cm}$, snimljene za dva različita rastojanja: $\blacktriangle$ – $d = 0.5 \text{ cm}$, gde je probojni napon $V_b = 550 \text{ V}$ i $\circ$ – $d = 1.1 \text{ cm}$, gde je probojni napon $V_b = 531 \text{ V}$ (merjenja za $d = 1.1 \text{ cm}$ Škoro, 2012). Na ubačenom grafiku prikazane su odgovarajuće negativne diferencijalne otpornosti R_D . Na grafiku desno data je uvećana oblast Taunzendovog pražnjenja za oblast struja od $\sim 1 \mu\text{A}$ do $\sim 18 \mu\text{A}$.

Na slici 4.5 su prikazane V - I karakteristike u funkciji j/p^2 za međuelektrodna rastojanja od 3.1, 2.1, 1.1 i 0.5 cm. U ovom slučaju su za rastojanja od 3.1 – 1.1 cm određene efektivne površine pražnjenja iz bočnih snimaka korišćenjem uprošćene Abelove inverzije, dok je u slučaju rastojanja od 0.5 cm, iz bočnih snimaka bilo moguće samo grubo proceniti efektivnu površinu pražnjenja zbog pojave dvostrukih kanala u blizini zidova i nesimetričnosti pražnjenja (pogledati odeljak 5.1. Višestruki kanali pražnjenja u vodenoj pari). Ovakva gruba procena efektivnog prečnika pražnjenja je omogućila da se proveri da li su i pored postojanja dvostrukih kanala, osobine pražnjenja bliske očekivanim osobinama baziranim na zakonima skaliranja.



Slika 4.5. Strujno–naponske karakteristike za pražnjenje u vodenoj pari na niskom pritisku na $pd = 0.60 \text{ Torr cm}$ i na rastojanjima $d = 0.5 \text{ cm}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$, skalirane parametrom j/p^2 . V je napon pražnjenja a V_b je probojni napon. a) Dodatno je prikazan grafik sa uvećanom oblašću slabostrujnog Taunzendovog pražnjenja kako bi se bolje videlo poklapanje skaliranja za različita rastojanja u ovoj oblasti pražnjenja. b) $\Delta V(j/p^2)$ strujno–naponske karakteristike dobijene skaliranjem sa različitim površinama pražnjenja: $\bullet$ – $2r = 5.4 \text{ cm}$ – prečnik koji odgovara pražnjenju koje zauzima celu površinu elektroda i $\circ$ – $2r_{\text{eff}}$ – prečnik koji odgovara realnoj površini koju pražnjenje zauzima određenoj na osnovu bočnih snimaka.

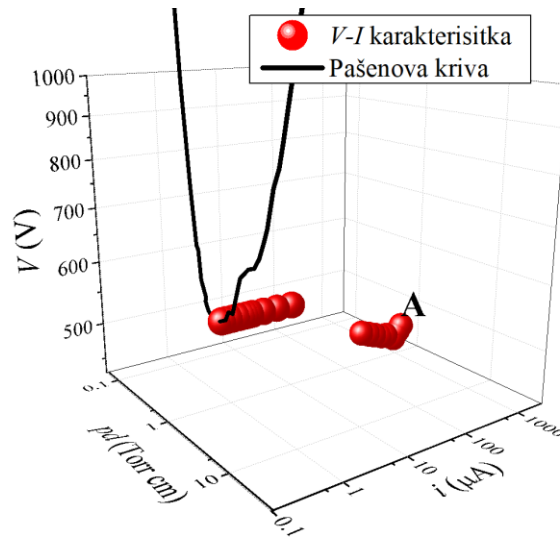
Na V - I karakteristikama (slika 4.5a)) se mogu uočiti oblasti koje odgovaraju Taunzendovom, normalnom tinjavom, abnormalnom tinjavom režimu i oblast slobodnih oscilacija (prekid bez tačaka na strujno–naponskoj karakteristici između Taunzendovog i normalnog tinjavog pražnjenja). Vidi se da se pražnjenja na različitim rastojanjima elektroda dobro skaliraju u slabostrujnoj Taunzendovoj oblasti (uvećani grafik na slici 4.5a)). Ovo znači da u našem pražnjenju nema procesa koji bi doveli do narušavanja skaliranja, kao što su tro–čestični sudari, procesi stepenaste ekscitacije i jonizacije, grejanje gasa ili elektrode itd. (Marić *et al.*, 2003; Francis, 1956). Na većim strujama (normalno pražnjenje) može se primetiti razlika u vrednostima napona – veće vrednosti napona na većim međuelektrodnim rastojanjima (2.1 i 3.1 cm u odnosu na 1.1 i 0.5 cm), odnosno nižim pritiscima. Ovakav rast napona na većim d se može povezati sa većim difuzionim gubicima. U slučajevima kada dužina međuelektrodnog rastojanja postaje uporediva sa prečnikom pražnjenja, radijalni gubici naelektrisanih čestica bivaju sve značajniji, dok na nižim pritiscima dodatan uticaj može imati i raspodela električnog polja oko krajeva katode (Donkó *et al.*, 1999). Dodatno, ako pogledamo normalni tinjavi režim na V - I karakteristikama uočava se da su naponi na rastojanjima 0.5 i 1.1 cm približnih vrednosti. Ove male razlike u naponima mogu biti posledica toga da pd nije baš identično ili razlike u sekundarnoj emisiji elektrona, pražnjenje se na 0.5 cm odvija u blizini krajeva što može imati za posledicu to da je površina katode nešto drugačija u blizini krajeva, nego u njenom centru. Dodatno, i promene u probojnom naponu mogu doprineti promenama uslova na površini katode. Važno je naglasiti da je poređenje napona u abnormalnom režimu otežano zbog nedovoljnog broja tačaka, pogotovo na manjem međuelektrodnom rastojanju. Važno je naglasiti da normalni tinjavi režim praktično odgovara jednoj tački na j/p^2 skali što govori da je gustina struje konstantna u celom regionu pre razvoja abnormalnog pražnjenja (slika 4.5).

Na slici 4.5b) dato je poređenje j/p^2 skaliranja na 1.1 cm, koje pokazuje izgled karakteristike kada se za prečnik pražnjenja pri računanju gustine struje j uzme prečnik cele elektrode ($2r = 5.4$ cm) – prikazano punim simbolima i realni (efektivni) prečnik pražnjenja ($2r_{\text{eff}}$) – prikazano praznim simbolima. Glavna razlika koja se uočava jeste izgled oblasti normalnog tinjavog režima, koja u slučaju gustine struje normirane sa celom površinom elektrode pokazuje postojanje platoa umesto jedne tačke na j/p^2 skali, odnosno pokazuje da gustina struje nije konstantna tokom normalnog tinjavog pražnjenja, što nije tačno. Zato je jako važno, da bi se skaliranje pravilno primenilo, za površinu uzimati izmerenu realnu efektivnu površinu koju pražnjenje zauzima.

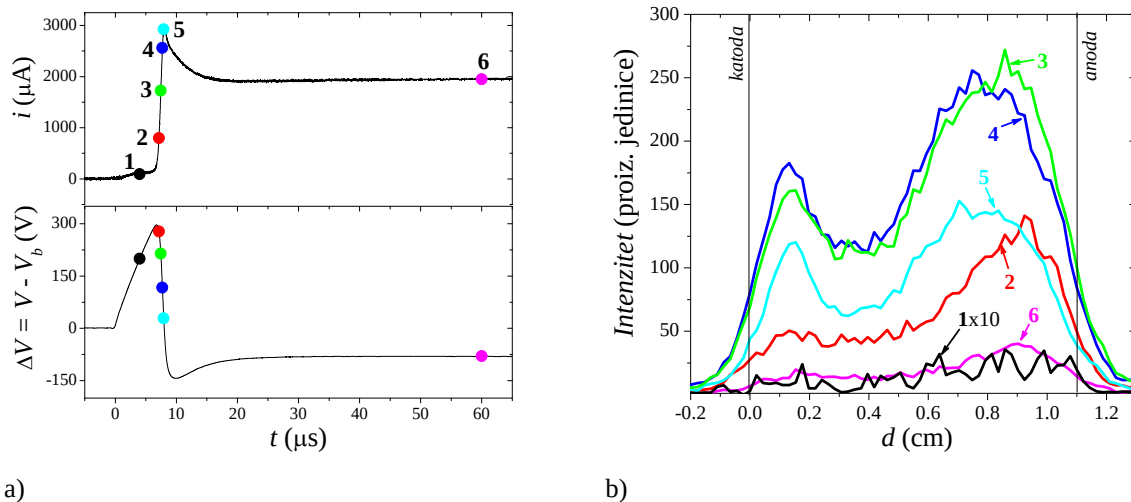
Ispitivanje i praćenje vremenski razložene strukture pražnjenja može dati uvid u kinetiku procesa koji dovode do razvoja katodnog pada, konstrikcija i drugih karakteristika tinjavih pražnjenja na niskim pritiscima u vodenoj pari. Ovde prikazani rezultati se zasnivaju na sistematski vremenski razloženim snimcima emisije svetlosti iz pražnjenja brzom ICCD kamerom. Ovo u stvari znači da se vremenski razvoj strukture pražnjenja prati snimanjem emisije iz pražnjenja sa izuzetno kratkim vremenskim prozorom (ekspozicijom) kamere i to sukcesivno (uzastopno) u vremenu, od trenutka proboja pa do uspostavljanja kvazistacionarnog režima. Snimanje emitovane svetlosti iz pražnjenja je sinhronizovano sa razvojem pražnjenja i merenjem struje i napona.

Vremenski razvoj abnormalnog tinjavog pražnjenja u vodenoj pari sa potpuno razvijenim katodnim padom je prikazan na slikama 4.7 i 4.8. Merenje je urađeno za međuelektroдно rastojanje od 1.1 cm na $pd = 0.60$ Torr cm (u minimumu Pašenove krive) u tački koja je označena slovom A na slici 4.6.

Na slici 4.7 dati su talasni oblici, odnosno signali struje i napona (a) i aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisioni profili) svetlosti iz pražnjenja (b). Tačkama su na graphicima označeni trenuci u kojima su dobijeni 2D snimci emisije iz pražnjenja prikazani na slici 4.8, korišćeni za izvlačenje aksijalnih emisionih profila datih na slici 4.7b).



Slika 4.6 3D grafik sa Pašenovom krivom za pražnjenje u vodenoj pari na rastojanju $d = 1.1$ cm (Škoro N., 2012) i odgovarajuća V-I karakteristika snimana u minimumu Pašenove krive na $pd = 0.60$ Torr cm. Slovom A je označena tačka u abnormalnom režimu za koju je urađen vremenski razvoj formiranja pražnjenja dat na slikama 4.7 i 4.8.

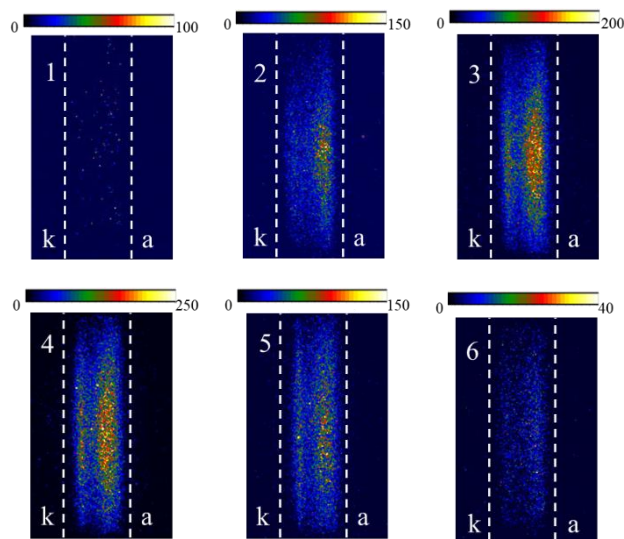


Slika 4.7 a) Talasni oblici (signali) napona i struje pražnjenja u toku formiranja abnormalnog tinjavog režima u vodenoj pari ($pd = 0.60$ Torr cm, $d = 1.1$ cm, $V_b = 531$ V i $i = 2$ mA).

b) Aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisijski profili) intenziteta svetlosti snimljene ICCD kamerom u odabranim trenucima tokom razvoja pražnjenja koji su obeleženi brojevima od 1 do 6.

Tačke obeležene brojevima (1-6) odgovaraju trenucima snimanja 2D strukture pražnjenja datim na slici 4.8.

Emisioni profil koji odgovara početnom trenutku $t = 0$ μs zbog jako velikog šuma nije prikazan na graficima. Sa grafika prikazanog na slici 4.7a) vidi se da se nakon ~ 20 μs pražnjenje nalazi u stacionarnom stanju. Tokom prvih 7 μs pražnjenje radi u Taunzendovom režimu, a profil pokazuje porast intenziteta emisije od katode ka anodi sa maksimumom ispred anode, što je posledica elektronske ekscitacije (slika 4.7b) profili 1 i 2). U tački 2 efekti prostornog naelektrisanja postaju značajni i dovode do naglog povećanja struje i smanjenja napona pražnjenja. Prostorno naelektrisanje koje nastaje u pražnjenju dovodi do formiranja katodnog pada i oblasti negativnog svetljenja, koja se pomera od anode ka katodi kako se katodni pad razvija (slika 4.7b) profili 2–5). Sa povećanjem struje pojavljuje se pik emisije u oblasti ispred katode (slika 4.7b) profili 3) koji nastaje usled procesa ekscitacije teškim česticama, najverovatnije brzim vodonikovim atomima, koji mogu nastati u sudarima sa brzim jonima kada dolazi do prenosa naelektrisanja (*eng. charge exchange collisions*). Sam efekat teških čestica je posledica pojačavanja električnog polja koje nastaje tokom razvoja katodnog pada i skraćenja dužine katodnog pada.



Slika 4.8 2D slike vremenskog razvoja abnormalnog tinjavog pražnjenja u vodenoj pari na $pd = 0.60 \text{ Torr cm}$ i $d = 1.1 \text{ cm}$ koje odgovaraju tačkama sa slike 4.7. Slike su snimljene sa ekspozicijom kamere od 200 ns. Na slikama su obeleženi položaji katode (k) i anode (a).

Dalje, vidi se da tokom porasta struje pražnjenja prvo značajno raste doprinos elektrona u ekscitaciji, dok doprinos teških čestica dolazi do izražaja nešto kasnije. Ovakva dinamika je očekivana imajući u vidu razlike u brzinama preleta elektrona i jona. Pored toga, zanimljivo je da je emisija maksimalna u opsegu 3–4, dok se maksimum struje dostiže tek u tački 5; što daje uvid u brzine kojima funkcija raspodele po energijama i samim tim i procesi ekscitacije prate promene električnog polja u odnosu na odgovarajuće promene flukseva naelektrisanih čestica, koje su vezane za promenu struje pražnjenja.

U trenutku kada struja dosegne svoju maksimalnu vrednost, položaj oblasti negativnog svetljenja je najbliži katodi (slika 4.7b) profil 5). Ubrzo nakon ovoga, struja opada i pražnjenje ulazi u stacionarni režim (slika 4.7b) profil 6). Tokom prelaska u stacionarni režim intenziteti emisije ispred katode i anode se smanjuju, a oblast negativnog svetljenja se pomera ka anodi. Aksijalni profil u stacionarnom stanju ima izraženiji maksimum emisije ispred anode u odnosu na maksimum ispred katode, što pokazuje značajniju ulogu elektrona u procesima ekscitacije i jonizacije u pražnjenju (slike 4.7 i 4.8 oznaka 6).

4.3 ANALIZA VREMENA PRELETA JONA U SLABOSTRUJNOM DC PRAŽNJENJU U VODENOJ PARI

U pražnjenju u vodenoj pari teške čestice – pozitivni joni, kao i brzi neutrali dobijeni u sudarima sa prenosom naelektrisanja (eng. *charge transfer collisions*), mogu imati značajan doprinos u procesima ekscitacije u srednjim i jakim redukovanim električnim poljima E/N (Sivoš *et al.*, 2015). Polazna pretpostavka je bila ta da su vodonikovi joni i brzi neutrali najverovatniji kandidati jer se ove čestice najlakše proizvode kroz disocijaciju u pražnjenju u vodenoj pari. U okviru ovog odeljka biće predstavljeni rezultati čiji je cilj identifikacija dominantnih teških čestica koje nastaju u ovom pražnjenju.

U analizi rezultata vezanih za parametre pražnjenja korišćen je model koji su razvili Felps, Petrović i Jelenković 1993. godine (prethodno opisan u odeljku 1.4) (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993). Model se može primeniti samo u slučaju slabostrujnog Taunzendovog pražnjenja, gde prostorno naelektrisanje ne utiče značajno na primenjeno spoljašnje električno polje, odnosno ne perturbuje ga. Primena ovog modela dozvoljava računanje vremena preleta jona korišćenjem parametara

električnog kola i eksperimentalno dobijenih ugaonih učestanosti i koeficijenata prigušenja. Podaci koji su korišćeni u okviru proračuna su dobijeni optimizacijom, odnosno fitovanjem talasnog signala struje pražnjenja u režimu prigušenih oscilacija (slika 4.9). Poređenjem ovako dobijenih vremena preleta jona sa direktno izmerenim vremenima preleta jona iz literature (Stefanović i Petrović, 1997; Phelps, 1990; Miller *et al.*, 1968; Graham *et al.*, 1973), mogu se proceniti dominantne teške čestice koje učestvuju u pražnjenju.

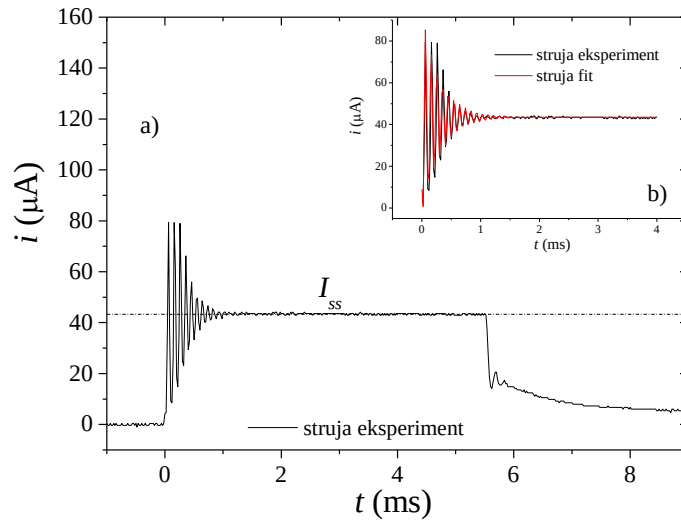
Oblici strujnog i naponskog talasnog signala pražnjenja u režimu prigušenih oscilacija mogu se dobro opisati funkcijom sledećeg oblika:

$$y(t) = A \exp(-kt) \sin(\omega t) - B \quad (4.1),$$

gde su A i B konstante, a k i ω su koeficijent prigušenja oscilacija i ugaona učestanost. Na slici 4.9a) je prikazan primer izmerenog strujnog talasnog signala pražnjenja u režimu prigušenih oscilacija, dok je na ubačenom grafiku dato poređenje izmerene struje i odgovarajućeg fita (slika 4.9b) dobijenog primenom gore prikazane funkcije. Kako bi se dobilo vreme preleta jona potrebno je odrediti parametre pražnjenja (α/N ; γ ; k_V ; k_I ; $\partial g/\partial V$ i R_D) koji figurišu u jednačinama PPJ modela. Koeficijent jonizacije α/N je dobijen iz eksperimentalnih merenja i dat je na slici 4.10 u zavisnosti od redukovanog električnog polja E/N . Koeficijent sekundarne emisije elektrona γ (slika 4.11) je računat iz uslova za proboj u gasu (jednačina 1.6):

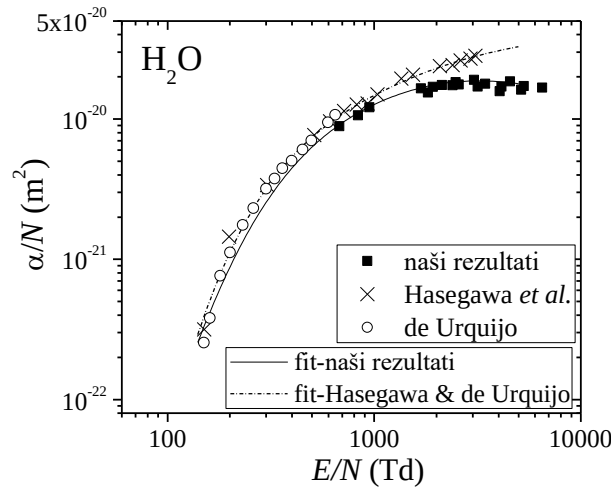
$$1 = \gamma_{ss} (\exp(\alpha(E/N)) d - 1) \quad (4.2),$$

gde je γ_{ss} vrednost koeficijenta sekundarne emisije koja odgovara vrednosti napona proboja V_b , odnosno vrednosti redukovanog električnog polja E/N koje zadovoljavaju gore dat uslov.

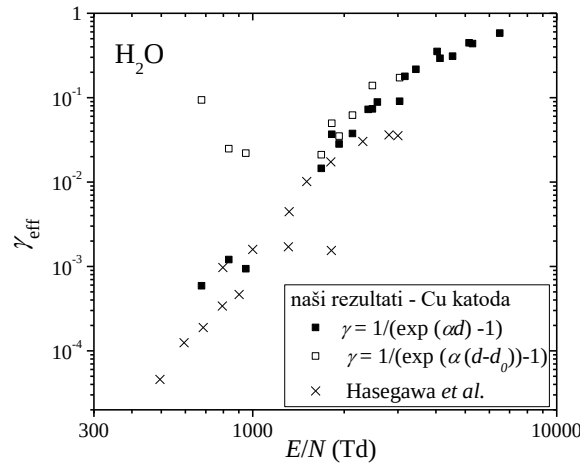


Slika 4.9 a) Talasni oblik izmerenog strujnog signala u pražnjenju u vodenoj pari, gde I_{ss} predstavlja vrednost kvazistacionarne struje, i b) kriva optimizacije, odnosno fit strujnog signala. Strujni talasni signal je snimljen za $pd = 0.30$ Torr cm, $d = 2.1$ cm, $R_s = 1.2$ M Ω , $R_m = 100$ k Ω i $I_{ss} = 43$ μ A. Dobijeni koeficijent prigušenja je $k = 3.3$ kHz, a ugaona učestanost je $\omega = 64.9$ kHz.

Odstupanja fitovanog i merenog profila su značajna jedino u zoni kada struja ima svoje maksimalne vrednosti. Tada je i verovatno da jedinstavna zavisnost (4.1) nije dovoljna da opiše prelaznu promenu napona zbog mogućih prolazaka kroz različite režime (Taunzendovo, tinjavo i abnormalno tinjavo pražnjenje – Marić, Malović i Petrović, 2009). Zato smo se mi fokusirali na fitovanje struje kada je vrednost manja od polovine maksimuma gde kriva odlično prati eksperimentalno snimljenu vremensku zavisnost i gde se razvoj struje može opisati kao prigušena oscilacija sa jednim koeficijentom prigušenja.



Slika 4.10 Zavisnost redukovanog efektivnog jonizacionog koeficijenta od redukovanog električnog polja. Naši rezultati (kvadrati) su upoređeni sa rezultatima Hasegave i saradnika (Hasegawa et al., 2007) (krstići) i de Urkiha i saradnika (de Urquijo. et al., 2013) (krugovi). Linije predstavljaju fitove jonizacionih koeficijenata analitičkom formulom datom u jednačini 4.8.



Slika 4.11 Zavisnost efektivnog koeficijenta sekundarne emisije elektrona od redukovanog električnog polja. Tačke prikazane punim simbolima su računate sa zanemarivanjem d_0 – dužine uravnoteženja, dok prazni simboli predstavljaju tačke sa uračunavanjem d_0 . Naši rezultati (kvadrati) su dobijeni korišćenjem bakarne katode, rezultati Hasegave i saradnika (krstići) sa katodom od nerđajućeg čelika u čijoj se sredini nalazi ugrađena kvarcna ploča na koju je naparen tanak sloj zlata (Hasegawa et al., 2007).

Parametar k_V se dobija na osnovu jednačine za γ iz modela PPJ (jednačina 1.21, odeljak 1.4):

$$\gamma = \gamma_p + k_V V + k_I I \quad (4.3)$$

Kada dođe do proboja u gasu može se uzeti da je $V = V_b$ i $I \approx 0$, i kada se to zameni u jednačinu 4.3 dobija se sledeći izraz za k_V :

$$k_V = \frac{\gamma - \gamma_p}{V_b} \quad (4.4),$$

gde je γ_p tzv. „potencijalno izbacivanje” elektrona. Parametar $\partial g / \partial V$ predstavlja izvod koeficijenta umnožavanja elektrona g po naponu pražnjenja V i dobija se diferenciranjem jednačine za g :

$$g = \gamma(V)(\exp(\alpha(V)d) - 1) \quad (4.5)$$

Diferenciranjem se dobija:

$$\frac{\partial g}{\partial V} = \frac{\partial \gamma}{\partial V} (\exp(\alpha d) - 1) + \gamma \frac{\partial \alpha}{\partial V} d \exp(\alpha d) \quad (4.6),$$

gde je $\partial \gamma / \partial V = k_V$. Vrednost izvoda koeficijenta jonizacije α po naponu V , se dobija kao:

$$\frac{\partial \alpha}{\partial V} = \frac{1}{d} \frac{\partial (\alpha/N)}{\partial (E/N)} \quad (4.7),$$

u kome figuriše izvod koeficijenta jonizacije po redukovanom električnom polju, gde se za α/N uzima njegov analitički izraz oblika (Marić, Radmilović–Rađenović i Petrović, 2005):

$$\frac{\alpha}{N} = \sum_{i=0}^2 A_i \exp\left(\frac{-B_i}{E/N}\right) \quad (4.8)$$

U slučaju parametra k_I koristi se izraz za negativnu diferencijalnu otpornost R_D (jednačina 1.24 u odeljku 1.4) koji daje:

$$k_I = -R_D \gamma_{ss} \frac{\partial \gamma}{\partial V} \quad (4.9)$$

Kada se odrede svi prethodno navedeni parametri može se dobiti vrednost za vreme preleta dominantnih jona T (tabela 4.1) rešavanjem jednačine za učestanost oscilacija:

$$\omega^2 = \frac{I_{ss}}{R_s C T} \left[(R_s + R_m) \frac{\partial g}{\partial V} - \frac{k_I}{\gamma_{ss}} \right] \left[1 + \frac{I_{ss}(k_I - R_m k_V)}{\gamma_{ss}(1 + \gamma_{ss})} \right]^{-1} - k^2 \quad (4.10),$$

odnosno ako je ispunjen uslov $\omega^2 \gg k^2$ dobija se sledeći izraz (jednačina 1.22 u odeljku 1.4):

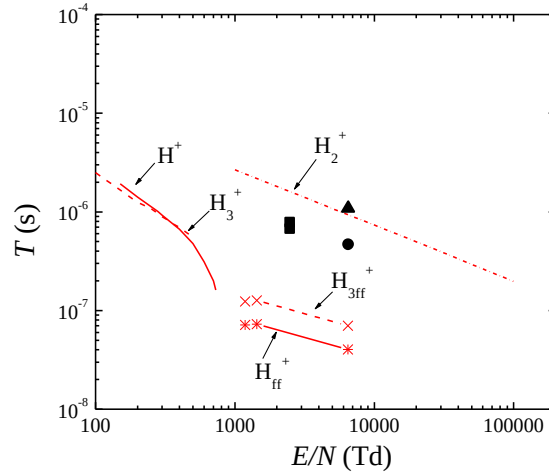
$$\omega^2 = \frac{I_{ss}}{R_s C} \frac{\partial g / \partial V}{T} (R_s + R_m + R_D) \quad (4.11),$$

gde je C parazitivna kapacitivnost kola, R_s i R_m su otpornosti u električnom kolu, γ_{ss} je efektivni prinos elektrona po upadnom jonu na površinu katode pri stacionarnoj vrednosti napona pražnjenja, k_V član je približan doprinos „kinetičkog“ izbacivanja elektrona sa površine katode i k_I član predstavlja prinos elektrona na katodi (Phelps, Petrović i Jelenković, 1993).

Na slici 4.12 je prikazano vreme preleta jona T u pražnjenju u vodenoj pari dobijeno za različite vrednosti redukovanog električnog polja E/N . Na istom grafiku su, radi poređenja, data i vremena preleta vodonikovih jona H^+ , H_2^+ , H_3^+ , H_{ff}^+ , H_{3ff}^+ (gde ff u indeksu označava *free fall* – slobodni prelet) koja su dobijena za pražnjenje u vodoniku (Phelps, 1990; Stefanović i Petrović, 1997). U slučaju vodene pare vremena preleta su određena za uslove pražnjenja u kojima procesi indukovani teškim česticama imaju značajnu ulogu u slabostrujnom režimu. Proračuni su urađeni za uslove u minimumu Pašenove krive na $pd = 0.60$ Torr cm i $d = 1.1$ cm, kao i za uslove u levoj grani Pašenove krive na $pd = 0.30$ Torr cm za $d = 2.1$ i 3.1 cm. Ako se pogledaju dobijeni rezultati za vreme preleta vidi se da je u intervalu srednjih vrednosti jačine redukovanog električnog polja u pražnjenju dominantan vodonikov jon H_2^+ . Složeniji i teži joni bi imali značajnije duža vremena

4. Vodena para

preleta, drugim rečima nalazili bi se iznad oblasti H_2^+ jona (označeno tačkastom linijom na grafiku). Zanimljivo bi bilo videti koji su joni dominantni u pražnjenju na većim vrednostima redukovano električnog polja E/N u levoj grani Pašenove krive, odnosno proširiti interval E/N i odrediti oblasti u kojima različiti joni imaju dominantnu ulogu u pražnjenju.



Slika 4.12 Vreme preleta jona T u zavisnosti od redukovano električnog polja E/N za pražnjenja u vodenoj pari i u vodoniku. Pražnjenje u vodenoj pari: puni simboli – vrednosti dobijene optimizacijom eksperimentalne zavisnosti $\omega(I)$ korišćenjem jednačine 4.10: ■ – $d = 1.1$ cm, ● – $d = 2.1$ cm ▲ – $d = 3.1$ cm. Pražnjenje u vodoniku: linije – vreme preleta vodonikovih jona iz literature (Phelps, 1990), linije+simboli – vreme „slobodnog preleta“ vodonikovih jona (Stefanović i Petrović, 1997).

Tabela 4.1 Izračunate vrednosti parametara pražnjenja u vodenoj pari dobijenih iz fitovanja prelaznih napona i struja i korišćenih za računanje vremena preleta jona T i njihove drift brzine W .

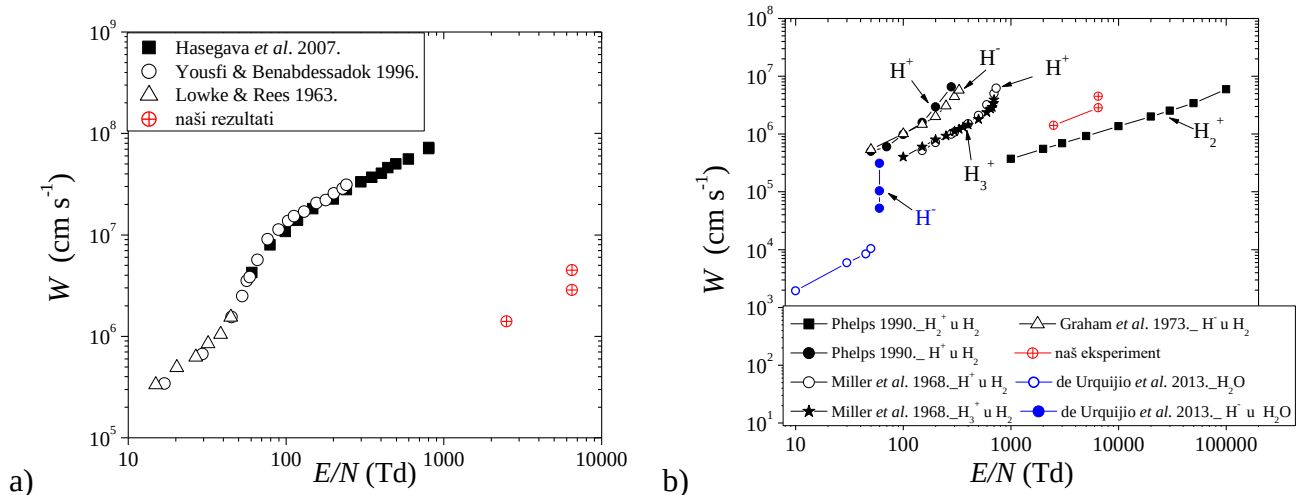
pd (Torr cm)	0.60	0.30	0.30
d (cm)	1.1	2.1	3.1
p (Pa)	71	16.5	11
V_b (V)	531	600	619
E/N ($\times 10^{-21}$ Vm ²)	2500	6500	6500
α/N ($\times 10^{-20}$ m ²)	1.21	1.67	1.67
γ	0.073	0.31	0.43
k (Hz)	1671	3311	3915
ω (Hz)	50484	64884	31200
k_V ($\times 10^{-4}$ V ⁻¹)	1.4	5.2	6.9
k_I (A ⁻¹)	4.8	53	163
$\partial g / \partial V$ ($\times 10^{-4}$ V ⁻¹)	9.4	16	20
C_p ($\times 10^{-12}$ F)	45	35	40
R_D ($\times 10^3$ Ω)	-69	-107	-191
T ($\times 10^{-7}$ s)	7.9	4.7	11
W ($\times 10^6$ cm s ⁻¹)	1.40	4.49	2.86

Na slici 4.12 prikazane su drift brzine W iz literature: a) za elektrone u pražnjenju u vodenoj pari (Hasegawa *et al.*, 2007; Yousfi i Benabdessadok, 1996; Lowke i Rees, 1963) zajedno sa vrednostima koje su dobijene iz našeg eksperimenta (brzine drifta za jone) i b) drift brzine jona u pražnjenju u vodoniku (na grafiku prikazani simbol–linijom) (Phelps, 1990), negativnih jona u vodenoj pari (prikazani simbolima) (de Urquijo, 2013) i vrednosti iz našeg eksperimenta (crveni

simboli). Vrednost za drift brzinu W izračunali smo pomoću podataka za vreme preleta jona T (tabela 4.1) koristeći sledeću formulu:

$$W = \frac{d}{T} \quad (4.12),$$

gde d predstavlja međuelektrodno rastojanje. Sa grafika na slici 4.12a) se vidi da su rezultati Hasegave i saradnika (Hasegawa *et al.*, 2007) nešto niže vrednosti od rezultata Jousfaja i Benabdesadoka (Yousfi i Benabdessadok, 1996), dok rezultati Lauvka i Risa (Lowke i Rees, 1963) leže u znatno nižem intervalu E/N . Naši rezultati, iako su u pitanju samo tri tačke, su za oko dva reda veličine manji od rezultata Hasegave i saradnika, što je i očekivano za brzinu jona u odnosu na brzinu elektrona i leže u većem intervalu redukovanog električnog polja od 2.5 do 6.5 kTd. Na slici 4.12b) prikazano je poređenje drift brzina jona vodonika za pražnjenja u H_2 (Phelps, 1990) i u H_2O . Pored naših rezultata za vodenu paru, radi bolje ilustracije date su i drift brzine računate na osnovu rezultata de Urkiha i saradnika (de Urquijo, 2013) koji su merili vreme preleta negativnih jona u vodenoj pari, ali u dosta nižem intervalu redukovanog električnog polja – od 10 do 60 Td. Ovde je važno reći da u dostupnoj literaturi nema puno podataka o vremenima preleta i drift brzinama jona u pražnjenju u vodenoj pari, a i mali broj postojećih rezultata odgovara niskim E/N (do stotinak Td), što dosta otežava bolje i preciznije poređenje sa našim rezultatima.



Slika 4.12 a) Poređenje drift brzine W elektrona iz literature (Hasegawa *et al.*, 2007; Yousfi i Benabdessadok, 1996; Lowke i Rees, 1963) sa drift brzinom jona iz našeg eksperimenta za pražnjenje u vodenoj pari i b) poređenje drift brzine vodonikovih jona H^+ i H_2^+ dobijene za pražnjenje u vodoniku (Phelps, 1990), H^+ i H_3^+ (Miller *et al.*, 1968) i H^- jona (Graham *et al.*, 1973) sa drift brzinom jona u našem eksperimentu sa vodenom parom i rezultatima na osnovu rada de Urkiha (de Urquijo *et al.*, 2013): (plavi prazni kružići) drift brzine negativnih jona na istom pritisku a različitim E/N i (plavi puni kružići) drift brzine H^- jona na istom E/N a različitim pritisku.

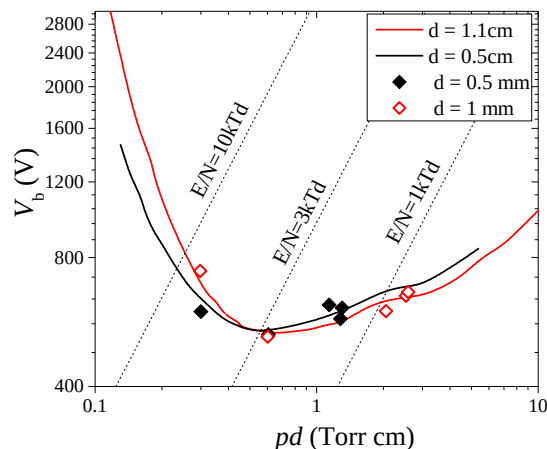
4.4 MIKROPRAŽNJENJE U VODENOJ PARI

U cilju boljeg razumevanja pražnjenja u vodenoj pari, kao i ponašanja pražnjenja na granici gas-tečnost, urađena su merenja u uslovima kada je pritisak u komori dovoljno visok da može doći do kondenzacije i formiranja kapljica. Pri sobnoj temperaturi, u vodenoj pari dolazi do formiranja kapljica na pritisku od oko 20 Torr. U centimetarskoj geometriji nije bilo moguće stabilisati pražnjenje zbog pojave strimera pa je se za ova merenja korišćena komora mikrometarskih dimenzija, kako bi se pražnjenje dovelo u oblast pd koja odgovara minimumu Pašenove krive. Komora je detaljno opisana u odeljku 2.1.2. *Komora za pražnjenje.*

Merenja su urađena na dva međuelektrodna rastojanja $d = 0.5$ mm i 1 mm. Na slici 4.13 prikazani su rezultati merenja probojnog napona u zavisnosti od pd – Pašenova kriva. Dodatno, dato je i poređenje rezultata za probojni napon koji su dobijeni na različitim međuelektrodnim rastojanjima. Pašenove krive za pražnjenje u vodenoj pari prikazane linijama su merene na sobnoj temperaturi od 22°C u komori za centimetarska pražnjenja (detaljan opis komore je dat u odeljku 2.1.2. *Komora za pražnjenje*) pri elektrodnom rastojanju od 0.5 cm (crna linija) i 1.1 cm (crvena linija). Simbolima u obliku dijamanta dati su rezultati dobijeni merenjem u μ -komori na sobnoj temperaturi od 22°C na dva međuelektrodna rastojanja: 0.5 mm (puni simboli) i 1 mm (prazni simboli).

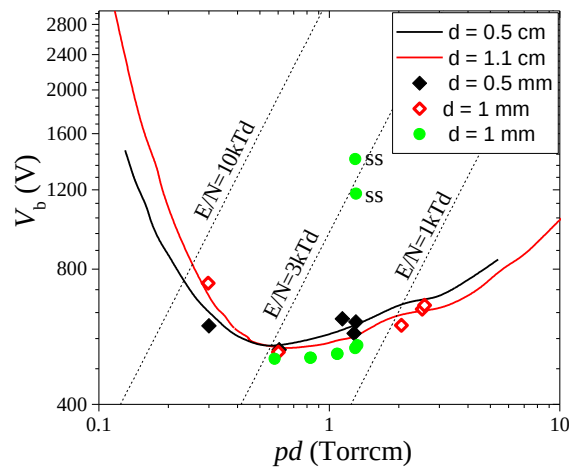
Kako pritisak pare za vodu na temperaturi od 22°C iznosi 19.8 Torr, granica nakon koje može doći do pojave kapljica leži na pd vrednosti od 0.99 Torr cm za rastojanje 0.5 mm i na 1.99 Torr cm za $d = 1$ mm. Ako pogledamo Pašenove krive na slici 4.13 možemo videti dobro slaganje kriva dobijenih na 0.5 cm (crna linija) i 0.5 mm (puni simboli), kao i onih za 1.1 cm (crvena linija) i 1 mm (prazni simboli). Tokom merenja na milimetarskim rastojanjima pražnjenje je radilo u režimu relaksacionih oscilacija koje su korišćenje za određivanje probojnog napona (Marić *et al.*, 2009; Kuschel *et al.*, 2011).

Tokom ovih merenja nije primećeno ništa neobično u radu pražnjenja, stabilnosti pritiska i vrednosti probojnog napona, iako smo uspeali da odemo na vrednosti pd -a koje su malo iznad granice za formiranje kapljica. Pretpostavljamo da na najvišim pritiscima koji su ovde izmereni sa vrednostima u blizini pritiska pare, nije došlo do prezasićenja i kondenzacije pare. Dakle, bilo je neophodno otići na još više pritiske. To je moguće ostvariti na dva načina: smanjivanjem rastojanja između elektroda ili smanjivanjem vrednosti za pritisak pare – spuštanjem temperature na kojoj se nalazi komora za pražnjenje. Naime sa smanjivanjem rastojanja dolazi do menjanja odnosa između prečnika elektroda i međuelektrodnog rastojanja što može usloviti dodatne nestabilnosti u radu pražnjenja (Petrović *et al.*, 2008; Marić *et al.*, 2009).



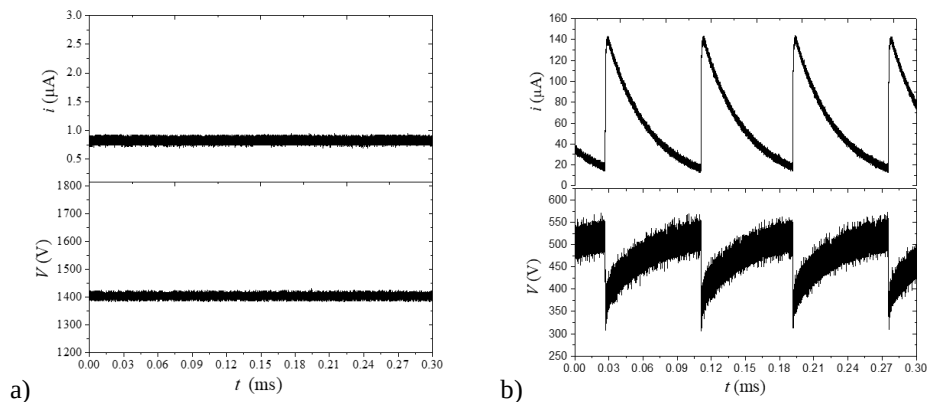
Slika 4.13 Poređenje Pašenovih kriva dobijenih merenjem na rastojanjima od 0.5 (crna linija) i 1.1 cm (crvena linija) i merenjem u komori za mikro-pražnjenja na rastojanjima između elektroda od 0.5 mm (puni crni simboli) i 1 mm (prazni crveni simboli). Tokom merenja komora se nalazila na sobnoj temperaturi od 22°C .

Drugi deo merenja na malim rastojanjima u komori za μ -pražnjenja se bazirao na spuštanju pritiska na kome dolazi do formiranja kapljica (pritisak pare), odnosno na spuštanju temperature na kojoj se nalazi komora za pražnjenje. To je ostvareno tako što je komora zatvorena u specijalno napravljenu kutiju od izolacionog materijala (stiropora) kako bi se omogućilo efikasnije hlađenje i održavanje temperature. Na taj način je komora tokom merenja bila na temperaturi od 8°C i pritisak potreban za formiranje kapljica je spušten na 8.1 Torr, što je omogućilo da odemo na veće vrednosti pd koje leže u desnoj grani Pašenove krive. Na slici 4.14 prikazani su rezultati za probojni napon (puni krugovi) dobijeni u gore opisanim uslovima. I u ovim uslovima se pražnjenje uključivalo u režimu relaksacionih oscilacija.



Slika 4.14 Poređenje Pašenovih kriva dobijenih merenjem na rastojanjima od 0.5 (crna linija) i 1.1 cm (crvena linija) i merenjem u komori za mikro-pražnjenja na rastojanjima između elektroda od 0.5 mm (puni crni simboli) i 1 mm (prazni crveni simboli). Tokom merenja komora se nalazila na sobnoj temperaturi od 22°C. Zelenim punim simbolima su označeni izmereni probojni naponi za uslove kada je komora hladena i držana na temperaturi od 8°C, dok je rastojanje između elektroda podešeno na 1 mm.

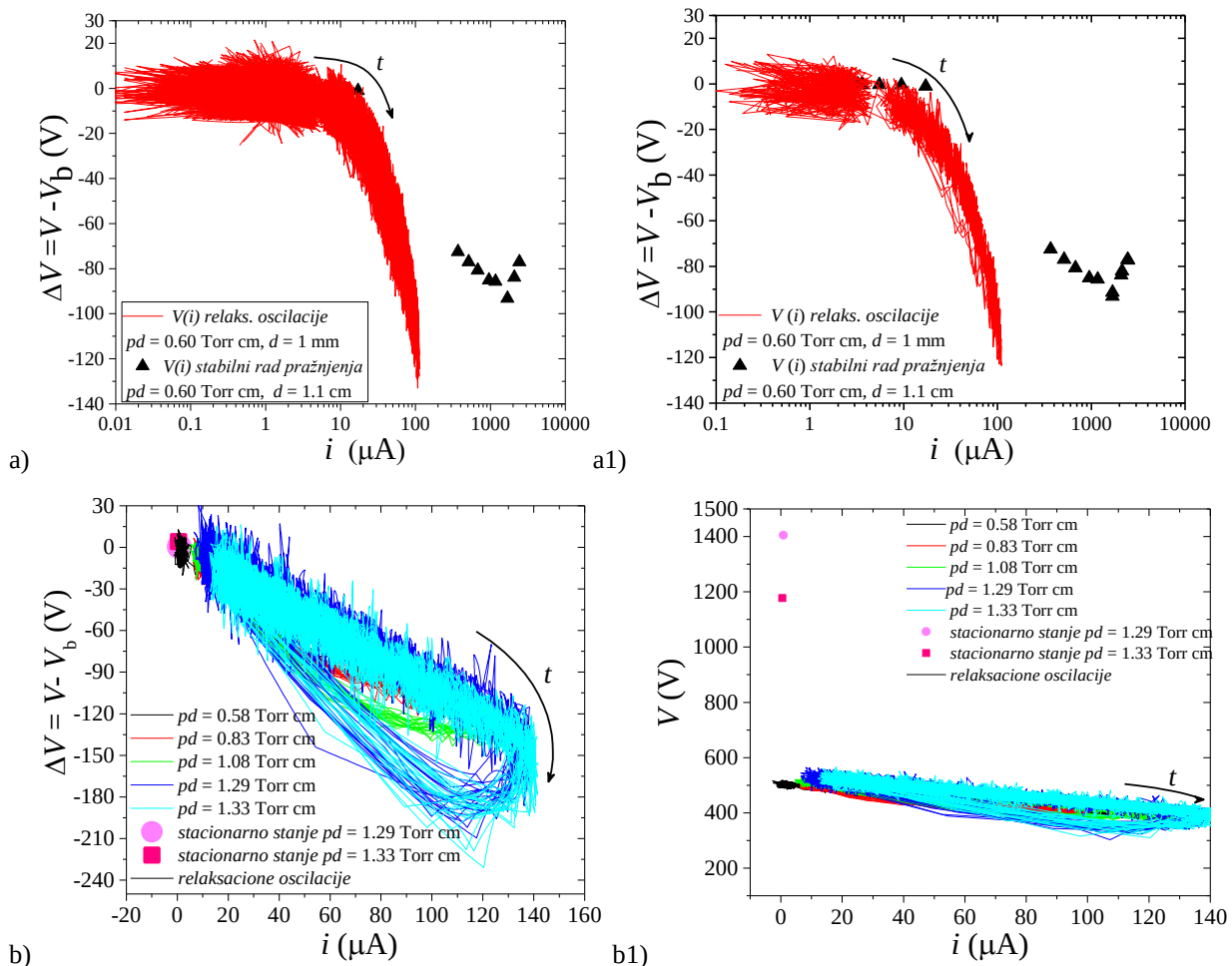
Za razliku od merenja kada je komora bila na sobnoj temperaturi, sada je pražnjenje uspevalo da se uključi stabilno i 1 do 2 min da radi u stabilnom modu, da bi nakon toga opet prešlo u oscilacije. Ovakvo ponašanje je primećeno za $pd = 1.29$ i 1.33 Torr cm. Tačke na Pašenovoj krivi koje odgovaraju stabilnom stacionarnom režimu su označene na slici 4.14 slovima (ss) i leže na znatno višim naponima (1177 V i 1405 V). Izgledi naponskog i strujnog signala su prikazani na slici 4.15: a) u stabilnom stacionarnom režimu pražnjenja i b) u režimu relaksacionih oscilacija. U ovom slučaju je primećeno da se pražnjenje stabilno palilo na višim naponima ~ 1.2 i 1.4 kV na struji od ~ 1 μ A da bi nakon određenog vremenskog perioda samo skliznulo u oscilatorni režim (relaksacione oscilacije) i nastavilo da radi na nižem naponu (533 V i 541 V) i višoj struji ~ 20 μ A. Takođe je primećeno da u toku merenja pritisak u komori počne da raste za 0.5 do 1 Torr pa nakon toga opadne na približno početnu vrednost, a da se pri tom ne menja ni struja ni napon. Pretpostavka je da je ovakvo ponašanje pražnjenja posledica promene uslova u pražnjenju, najverovatnije nastala usled faznog prelaza u gasu pri visokim pritiscima, odnosno kondenzacije na površinama ili čak i kapljica u pari, što ima za posledicu visoki probojni napon (reda kilovolta).



Slika 4.15 Izgled talasnih signala struje i napona kada se pražnjenje u vodenoj pari na $pd = 1.29$ Torr cm i $d = 1$ mm: a) uključi u stabilnom modu ($i = 0.8$ μ A, $V_b = 1405$ V) i b) kada radi u modu relaksacionih oscilacija ($i = 19$ μ A, $V_b = 541$ V).

Na slici 4.16 dat je grafik zavisnosti $\Delta V(i)$. Na grafiku 4.16 a) uporedili smo zavisnost $\Delta V(i)$ snimljenu za pražnjenje na 1.1 cm (puni simboli) na 0.60 Torr cm sa $\Delta V(i)$ na istom pd -u dobijenu za rastojanje od 1 mm u režimu relaksacionih oscilacija (linija) i stacionarnog moda pražnjenja (ss – simboli). Može se videti da se u relaksacionom oscilatornom režimu (linija na slici 4.16a) struja razvija od skoro nulte vrednosti i ide do visokih vrednosti ~ 100 μ A, da bi se nakon toga ponovo

vratila na početnu vrednost – na nisku struju. Strujno-naponske karakteristike tokom oscilacija imaju kružne oblike (slika 4.16b). Na slici 4.16 b) su prikazane zavisnosti $\Delta V(i)$ na različitim pd vrednostima za pražnjenje u vodenoj pari na rastojanju između elektroda od 1 mm. Kada se pražnjenje uključi u režimu relaksacionih oscilacija vrednost probojnog napona na različitim pd -ovima se kreće u intervalu od ~ 500 V do ~ 600 V, dok se struja razvija od ~ 1 μ A do 140 μ A da bi se nakon dostizanja maksimalne vrednosti ponovo vratila na početnu malu vrednost (slika 4.16b i b1). U slučaju kada se pražnjenje uključi stabilno (simboli na slici 4.16 b1) probojne vrednosti napona su reda kilovolta dok pražnjenje radi stabilno na struji koja je ~ 1 μ A.



Slika 4.16 Izgled zavisnosti napona od struje za pražnjenje u vodenoj pari na međuelektrodnom rastojanju od 1 mm – a) poređenje $V(i)$ snimljenih u stacionarnom modu rada pražnjenja na 1.1 cm (simboli) i u modu relaksacionih oscilacija na 1 mm (linija) za vrednost $pd = 0.60$ Torr cm; i b) izgled zavisnosti napona od struje za različite vrednosti pd parametra na međuelektrodnom rastojanju 1 mm gde je simbolima označeno stacionarno stanje, a linijama relaksacioni oscilatorni režim. Strelicama je označeno vreme, a napon je predstavljen kao razlika napona pražnjenja i probojnog napona V_b . Na slici a1) je prikazan rezultat za relaksacione oscilacije normiran na svaku 100. tačku radi bolje preglednosti, a slika b1) prikazuje poređenje zavisnosti $V(i)$ na različitim pd kada se za napon uzme napon pražnjenja.

Kako je komora morala biti hlađena nismo bili u mogućnosti da ICCD kamerom snimimo izgled pražnjenja kroz transparentnu anodu. 2D slike izgleda pražnjenja u trenucima stabilnog rada bi omogućile tačan uvid u ono što se dešava i pokazale bi da li se pražnjenje uključilo u Taunzendovom ili nekom drugom režimu. Dodatno, omogućavanje rada pražnjenja na većim vrednostima pritiska, daleko iznad pritiska pare na datoj temperaturi komore bi obezbedilo dodatne informacije o osobinama i ponašanju pražnjenja na visokim pritiscima kada ima više formiranih kapljica, što bi pružilo odgovore na pitanja vezana za proboj u heterogenim sistemima (tečnost-mehurići) i na prelazu iz pare u tečnost.

4.5 ZAKLJUČAK

U ovoj glavi je prikazan pregled rezultata vezanih za pražnjenje u vodenoj pari na rastojanjima od 0.05, 0.1, 0.5 i 1.1 cm. Na osnovu spektralno razloženog snimanja emisije iz pražnjenja dobijeni su emisioni spektri pražnjenja u vodenoj pari za međuelektrodno rastojanje od 1.1 cm, na pritiscima koji odgovaraju levoj grani Pašenove krive ($pd = 0.20$ Torr cm) i njenom minimumu ($pd = 0.60$ i 0.70 Torr cm). Ovako dobijeni emisioni optički spektri dali su uvid u dominantne proizvode disocijacije u ovom pražnjenju. Najizraženije linije u spektrima pripadaju vodonikovom atomu, tačnije Balmerovoj vodonikovo seriji (linije za H_α , H_β , H_γ i H_δ), O atomu i OH radikalu. Dodatno, tokom snimanja prostorne strukture pražnjenja korišćen je i optički filter na 656.4 nm, što je omogućilo poređenje ukupnih aksijalnih raspodela pražnjenja sa onim dobijenim sa filterom i dalo informacije o osnovnim procesima koji vladaju u pražnjenju, kao i o vrsti čestica koje u njima učestvuju. Aksijalne emisije raspodele (aksijalni emisioni profili) koje su skalirane proizvodom pritiska i rastojanja od katode su omogućile poređenje profila koji su snimljeni na istom pd , a različitim međuelektrodnim rastojanjima d , čime je potvrđeno da na istim pd glavni procesi u pražnjenju ostaju ne promenjeni, bez obzira na rastojenje d .

Urađeno je i skaliranje strujno–naponske karakteristike parametrom j/p^2 , kao i vremenski razloženo snimanje razvoja abnormalnog pražnjenja za međuelektrodno rastojanje od 1.1 cm i $pd = 0.60$ Torr cm. Objašnjen je značaj uzimanja realne efektivne površine pražnjenja prilikom računanja gustine struje, i samim tim pravilno skaliranje snimljenih strujno–naponskih karakteristika. Ovo je poslužilo kao egzaktni pokazatelj tačnosti teorijskih predviđanja koja su tvrdila da gustina struje tokom normalnog tinjavog pražnjenja ostaje ista, što je manifestovano time da se ceo plato normalnog tinjavog režima urušava i svodi na jednu j/p^2 tačku. S druge strane, ispitivanje i praćenje vremenski razložene strukture pražnjenja dalo je uvid u kinetiku procesa koji dovode do razvoja katodnog pada i samog abnormalnog tinjavog režima, kao i u ulogu različitih vrsta čestica (elektrona i teških čestica) tokom formiranja pražnjenja.

Iz prigušenih oscilacija koje su snimljene na prelazu iz Taunzendovog u normalno tinjavo pražnjenje, primenom modela koji su razvili Felps, Petrović i Jelenković 1993. godine, određena su vremena preleta jona. Ovako dobijena vremena preleta su upoređena sa rezultatima računatim za vreme preleta jona u vodonikovom pražnjenju, jer na žalost u literaturi nismo pronašli podatke vezane za vodenu paru. Dobijeni eksperimentalni rezultati su pokazali da je u intervalu srednjih vrednosti redukovano električnog polja u pražnjenju dominantan H_2^+ vodonikov jon. Na osnovu vremena preleta i rastojanja elektroda izračunate su brzine drifta koje su upoređene sa odgovarajućim rezultatima iz literature. Rezultati našeg eksperimenta su se dobro složili sa rezultatima iz literature, a kako su izmereni na većim vrednostima E/N proširili su oblast do sada određenih drift brzina (do 1 kTd) na veće vrednosti redukovano električnog polja (do 7 kTd).

U ovoj glavi su prikazani i rezultati merenja probojnih napona na pritiscima koji su reda pritiska pare za vodu. Probojni naponi su mereni za dva uslova: 1) na međuelektrodnim rastojanjima 0.5 i 1 mm kada je komora držana na sobnoj temperaturi (22°C) i 2) na međuelektrodnom rastojanju od 1 mm kada je komora dodatno hladena (8°C) kako bi pritisak potreban za fazni prelaz u gasu bio što niži. Probojni naponi izmereni u prvom slučaju se dobro slažu sa Pašenovim krivama izmerenim u centimetarskim pražnjenjima ($d = 0.5$ i 1.1 cm). U drugom slučaju, izmereni probojni naponi na pritiscima iznad pritiska pare (8.1 Torr ili na $pd = 0.81$ Torr cm) na $pd = 1.29$ i 1.31 Torr cm su pokazali da se pražnjenje na ovim pritiscima stabilno uključuje na visokim naponima reda kV (struja je ~ 1 μ A), i nakon par minuta stabilnog rada upada u relaksacione oscilacije nastavljajući da radi na nižem naponu i nešto višoj struji. Pretpostavka je da je ovakvo ponašanje posledica faznog prelaza u gasu, odnosno pojave kondenzacije ili kapljica tečnosti. Kako nije bilo moguće snimiti izgled stacionarnog pražnjenja prilikom proboja, zbog korišćenja anode od nerđajućeg čelika, nismo u

mogućnosti da sa sagurnošću utvrdimo kako pražnjenje prostorno izgleda u trenutku proboja i da li je u pitanju Taunzendov režim ili neki drugi mod pražnjenja. Da bi se proširila postojeća merenja potrebno je sve ponoviti sa transparentnom anodom koja će omogućiti dobijanje radijalnih raspodela emisije iz pražnjenja, i pokušati otići na još više pritiske iznad pritiska pare, tako što bi se dodatno smanjilo međuelektrodno rastojanje, a komora hladila u cilju spuštanja granice za fazni prelaz u vodenoj pari. Treba napomenuti da prilikom smanjivanja međuelektrodnog rastojanja treba voditi računa o odnosu prečnika elektroda i rastojanja i održavati ga takvim da se radijalni gubici naelektrisanih čestica ograniče na prihvatljivi nivo čime bi se omogućila primena i važenje jednodimenzionalne Taunzendove teorije.

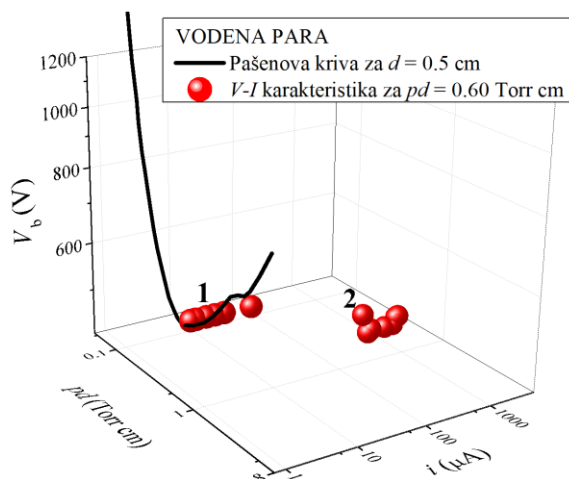
5. ANOMALNA PONAŠANJA ISPITIVANIH PRAŽNJENJA

Ovo poglavlje će obuhvatiti pregled netipičnog (anomalnog) ponašanja ispitivanog neravnotežnog pražnjenja na niskim pritiscima u parama tečnosti koje su proučavane u okviru ove disertacije: u alkoholima i vodi. Rad sa pražnjenjima u parama tečnosti je sam po sebi dosta složen, polazeći od činjenice da se radi o neravnotežnim pražnjenjima, preko problematike vezane za održavanje odgovarajuće čistoće pare, kontrole i stabilizacije pritiska, kao i kontrole stanja površine katode što je u direktnoj vezi sa proizvodnjom sekundarnih elektrona i radom samog pražnjenja. Međutim, problematika rada sa neravnotežnim pražnjenjima u parama tečnosti se može uspešno prevazići dobro dizajniranim i osmišljenim eksperimentom, kao i proverenom primenjenom eksperimentalnom tehnikom koja daje pouzdane i reproducibilne rezultate. U prethodnim poglavljima su prikazani rezultati merenja probojnih napona (Pašenove krive) i snimanja strujno-naponskih karakteristika u parama tečnosti. U toku ovih merenja, pod određenim uslovima uočeni su i ispitani fenomeni, odnosno, nestandardni modovi ponašanja pražnjenja kao što su pojava višestrukih kanala pražnjenja i nagle promene režima pražnjenja u oblasti jakih struja, praćene promenama u električnim i emisionim osobinama.

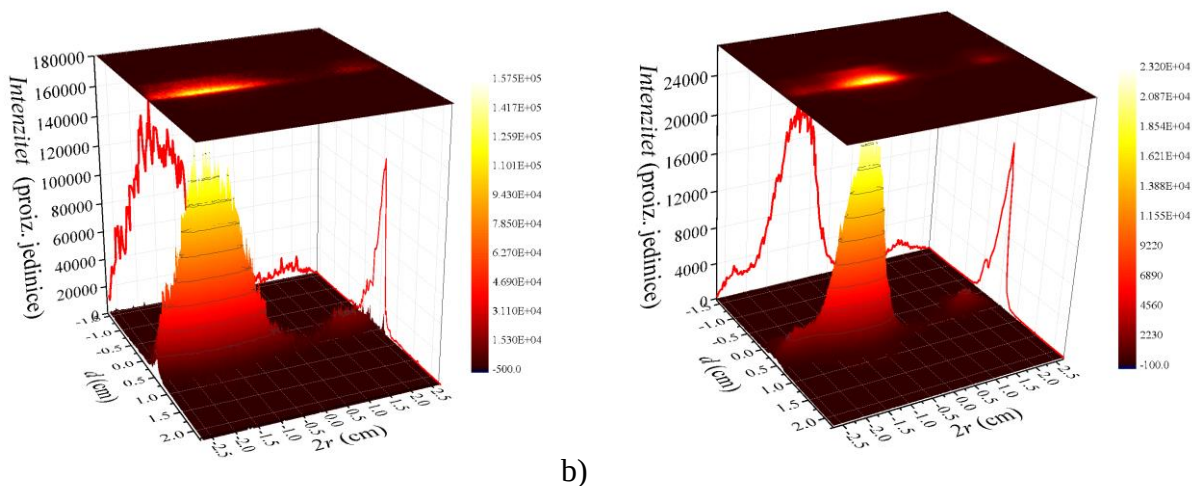
U prvom delu će biti prikazani rezultati koji se odnose na pojavu višestrukih kanala u pražnjenju u vodenoj pari, dok će drugi deo sadržati rezultate vezane za naglu promenu režima pražnjenja u oblasti jakih struja u pražnjenju u parama metanola i etanola.

5.1 VIŠESTRUKI KANALI PRAŽNJENJA U VODENOJ PARI

Na prelazu iz difuznog režima rada Taunzendovog pražnjenja u normalni tinjavi režim može doći do pojave konstriktovanog moda pražnjenja. Konstriktovani mod pražnjenja (konstriktovani kanal pražnjenja) će se formirati ako postoji takva količina prostornog naelektrisanja dovoljna da potpuno zakloni (ekranira) spoljašnje homogeno električno polje, a ovo će dovesti do manjeg polja u većem delu ali većeg polja u manjem delu prostora između elektroda. Zbog eksponencijalnog rasta koeficijenta jonizacije sa poljem doći će do znatnog i brzog povećanja ukupne jonizacije elektrona u nastalom konstriktovanom kanalu. Ovakav kanal pražnjenja može da radi (zadovolji uslov proboja) na nižem naponu i dokle god je viši napon doveden na elektrode provešće veću struju što će dovesti do većeg pada napona na rednim otpornicima, do smanjenja radnog napona i samim tim do gašenja ostalih kanala pražnjenja. Na slici 5.1 dat je 3D grafik na kome su zajedno prikazane Pašenova kriva (rezultati za Pašenovu krivu su ranije prikazani u disertaciji dr Nikole Škora, 2012) i strujno-naponska karakteristika, koja je snimljena za uslove Pašenovog minimuma na $pd = 0.60$ Torr cm i međuelektrodnom rastojanju od 0.5 cm. U toku snimanja primećeno je postojanje dvostrukih kanala pražnjenja u Taunzendovom i normalnom tinjavom režimu. Brojevima 1 i 2 su na slici 5.1 obeležene tačke u kojima su snimljene raspodele emisije svetlosti prikazane na 3D graficima na slici 5.2. Sa slike 5.2 vidi se postojanje dva maksimuma u radijalnoj raspodeli od kojih je jedan znatno jači (primarni). Drugi, slabiji, kanal je označen kao sekundarni i nalazi se nedaleko od zida komore za pražnjenje suprotno od pozicije primarnog kanala.



Slika 5.1. Pašenova kriva (Škoro., 2012) i strujno-naponska karakteristika na $pd = 0.60$ Torr cm i $d = 0.5$ cm za pražnjenje u vodenoj pari. Na grafiku su sa brojevima 1 i 2 obeležene tačke čije su aksijalne prostorne raspodele emisije prikazane na slici 5.2.

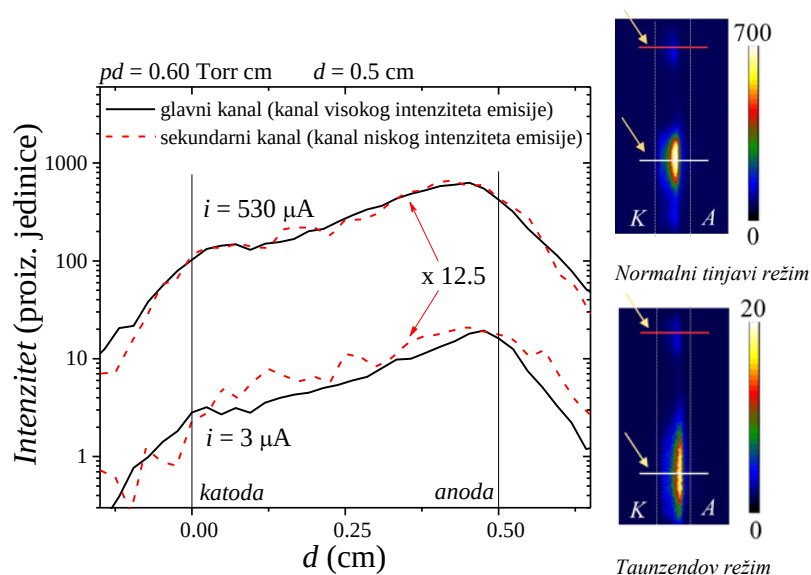


a)

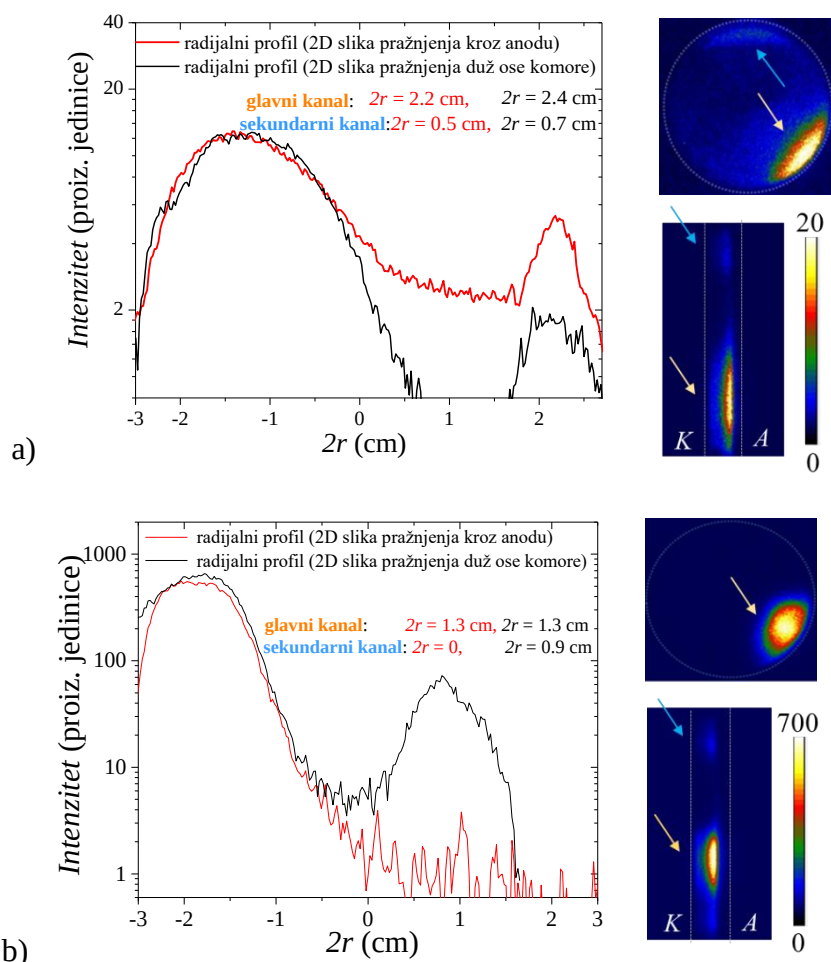
b)

Slika 5.2. 3D prikaz aksijalnih raspodela emisije dvostrukih kanala u paražnjenju u vodenoj pari sa odgovarajućim projekcijama aksijalnih i radijalnih profila i 2D slikama pražnjenja: a) u Taunzendovom pražnjenju za $i = 3$ μA i $V = 542$ V, tačka 1 sa slike 5.1. i b) u normalnom tinjavom pražnjenju za $i = 530$ μA i $V = 439$ V, tačka 2 sa slike 5.1.

Aksijalne raspodele emisije svetlosti dobijene su na osnovu 2D slika pražnjenja, izvlačenjem vektora intenziteta duž ose komore, koji odgovaraju primarnom i sekundarnom kanalu snimljenim u Taunzendovom i normalnom režimu i prikazane su na slici 5.3. Sa grafika se može videti da su intenziteti emisije koji odgovaraju sekundarnom kanalu niži, kako na manjoj struji od 3 μA , tako i na većoj struji od 530 μA , u odnosu na primarni kanal pražnjenja. Dodatno, ako se pogleda oblik raspodela emisije iz sekundarnog kanala primećuje se da se one dobro poklapaju sa oblicima raspodela emisije iz primarnog kanala. Na osnovu ovoga se može zaključiti da oba kanala (i primarni i sekundarni) rade u istom režimu pražnjenja. Kako bi se bolje uporedili ovako snimljeni kanali pražnjenja, maksimalni intenziteti sekundarnih kanala su normalizovani na maksimalne intenzitete odgovarajućih primarnih kanala. Zanimljivo je napomenuti da su aksijalne raspodele emisije (aksijalni profili) za različite struje normalizovani istim faktorom ($k = 12.5$), što znači da su relativni intenziteti emisije u dvostrukim kanalima očuvani u različitim režimima pražnjenja. Na slici 5.3 vidi se mali ali primetan pomeraj maksimuma od anode ka katodi u odnosu na raspodelu za Taunzenov režim. Ovo pokazuje da je u oba kanala pražnjenje u režimu abnormalnog tinjavog pražnjenja što nije neočekivano, jer bi 10 puta manja struja u sekundarnom kanalu i dalje bila 53 μA što je dovoljno za formiranje prielektrodne oblasti u uskom kanalu.



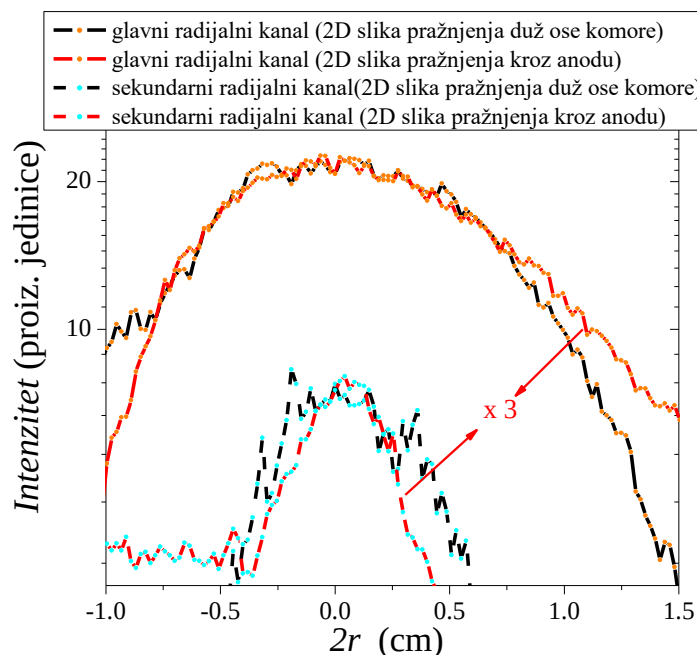
Slika 5.3. Aksijalne raspodele emisije za $pd = 0.60$ Torr cm i $d = 0.5$ Torr cm, koje su dobijene izvlačenjem vektora intenziteta duž konstrikovanih kanala pražnjenja, kao što je naznačeno punim linijama na odgovarajućim 2D slikama u Taunzendovom režimu ($3 \mu\text{A}$) i u normalnom tinjavom režimu pražnjenja ($530 \mu\text{A}$).



Slika 5.4. Radijalne raspodele emisije (a,b) dobijene izvlačenjem vektora intenziteta iz odgovarajućih 2D slika snimljenih duž ose komore i kroz transparentnu anodu u Taunzendovom režimu ($3 \mu\text{A}$) i u normalnom tinjavom režimu pražnjenja ($530 \mu\text{A}$). Strelicama su na 2D slikama označeni glavni (narandžasta strelica) i sekundarni kanal (plava strelica).

Na slici 5.4 date su raspodele emisije koje su dobijene iz 2D slika pražnjenja snimljenim kroz transparentnu anodu i koje su upoređene sa onim dobijenim bočnim snimanjem pražnjenja.

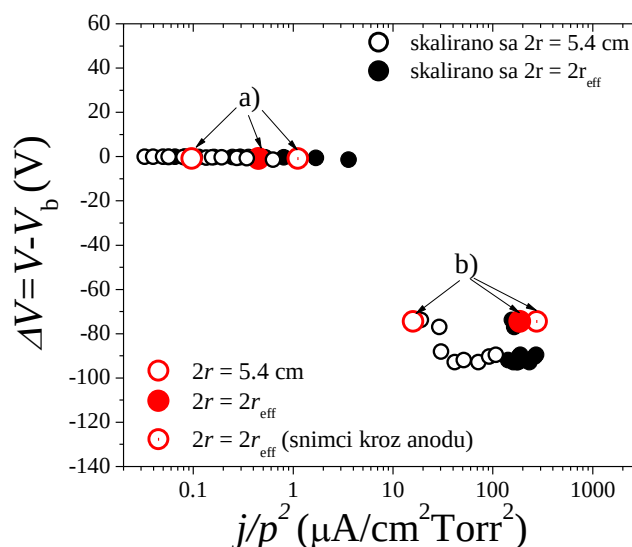
Radijalni profili emisije se mogu odrediti i na osnovu bočnih snimaka kamerom, izdvajanjem vektora intenziteta duž pravca normalnog na osu komore za pražnjenje (Marić, 2002). Poređenjem ovako dobijenih radijalnih profila pražnjenja vidi se da se primarni i sekundarni kanali po obliku dobro slažu (slika 5.5). Međutim postoji mala razlika u veličini prečnika odgovarajućih kanala koji su dobijeni iz različitih snimaka. Ono, što se još može primetiti je izostanak sekundarnog kanala na 2D slici pražnjenja kroz transparentnu anodu u normalnom tinjavom režimu na struji od $530 \mu\text{A}$, što može biti posledica jako većeg intenziteta emisije glavnog kanala koji je zaklonio po intenzitetu dosta slabiji sekundarni kanal, ali i slabije transparentnosti anode i kraćeg vremena snimanja. To takođe može da znači i da su sekundarni kanali nestabilni i da se u nekim uslovima mogu ugasiti



Slika 5.5 Radijalne raspodele emisije dobijene izvlačenjem vektora intenziteta iz odgovarajućih 2D slika snimljenih duž ose komore i kroz transparentnu anodu u Taunzendovom režimu ($3 \mu\text{A}$). Dato je poređenje glavnih i sekundarnih kanala pražnjenja koji su dobijeni iz 2D slika pražnjenja. Profili snimljeni kroz anodu su pomnoženi odgovarajućim faktorom skaliranja kako bi se bolje videla sličnost između radijalnih profila dobijenih na dva različita načina (iz bočnih snimaka kamerom i kroz transparentnu anodu).

Radijalni profili dobijeni snimanjem kroz transparentnu anodu pružaju mogućnost tačnog određivanja efektivne površine koju pražnjenje zauzima na elektrodi, i samim tim omogućavaju egzaktno j/p^2 skaliranje strujno-naponske karakteristike. Na slici 5.6 data je zavisnost razlike napona ΔV od redukovane gustine struje j/p^2 za međuelektrodno rastojanje od 0.5 cm u pražnjenju u vodenoj pari. Prikazane su karakteristike dobijene tako što je za efektivni prečnik pražnjenja uzet celi prečnik elektrode 5.4 cm (prikazano praznim simbolima), efektivni prečnik procenjen na osnovu radijalnih profila dobijenih iz bočnih snimaka (prikazano punim simbolima) i efektivni prečnik pražnjenja dobijen iz snimaka kroz transparentnu anodu (slike 5.4 i 5.5) (prazni simboli sa tačkom). Oznake a) i b) na slici odgovaraju uslovima pražnjenja sa slike 5.4 u kojima se javljaju dvostruki kanali pražnjenja. Na slici 5.6 oznaka a) odgovara tački sa $V-I$ karakteristike na struji od $3 \mu\text{A}$ (Taunzendova oblast) gde bi se očekivalo da pražnjenje zauzima skoro celu površinu elektrode (efektivni prečnik od 5.4 cm) i da je simetrično (prazni crveni krug), ali zbog pojave dvostrukih kanala na osnovu radijalnih profila iz bočnih snimaka grubo je procenjen efektivni prečnik pražnjenja (pun crveni krug). Međutim, realnu sliku o izgledu pražnjenja i površini koju ono zauzima u odnosu na elektrode moguće je dobiti jedino snimanjima kroz transparentnu elektrodu (u našem slučaju je transparentna anoda). Dodatno, kroz celi normalni tinjavi režim gustina struje ostaje konstantna, što je ilustrovano time da se cela oblast normalnog režima može svesti na jednu j/p^2 tačku (crni krugovi), dok u slučaju kada je gustina struje normirana sa celom površinom elektrode postoji plato u normalnom režimu umesto jedne tačke na j/p^2 skali (prazni crni krugovi) $j \neq \text{const}$. Dakle, slika 5.6 dobro ilustruje kakve greške u skaliranju mogu nastati kada se za

efektivni prečnik uzima prečnik elektroda u odnosu na slučaj kada se određuje na osnovu radijalnih profila i snimaka kroz transparentnu anodu.



Slika 5.6. Strujno-naponska karakteristika za pražnjenje u vodenoj pari na niskom pritisku na $pd = 0.60$ Torr cm i na rastojanju $d = 0.5$ cm skalirana parametrom j/p^2 . V je napon pražnjenja, a $V_b = 550$ V je probojni napon. Slovim a) i b) odgovaraju uslovi snimanja sa slike 5.4.

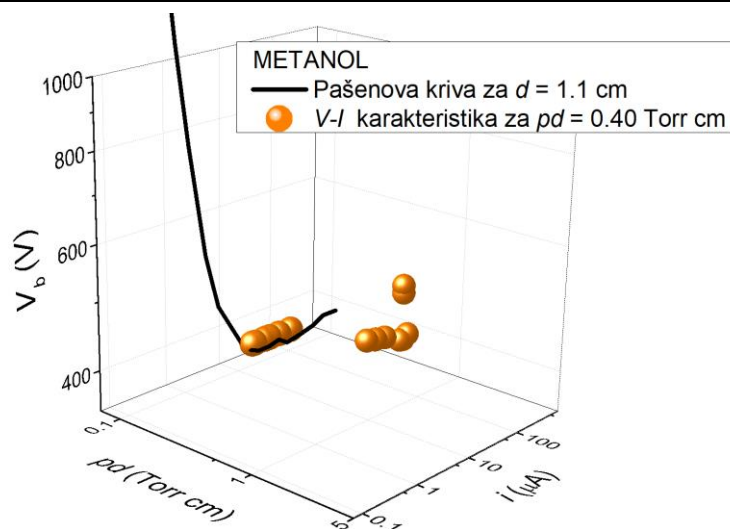
$\Delta V(j/p^2)$ strujno-naponske karakteristike su dobijene skaliranjem sa različitim površinama pražnjenja: ● – $2r = 5.4$ cm – prečnik koji odgovara pražnjenju koje zauzima celu površinu elektroda i ○ – $2r_{eff}$ – prečnik koji odgovara efektivnoj površini koju pražnjenje zauzima određenoj na osnovu bočnih snimaka i ○ – $2r_{eff}$ – efektivni prečnik pražnjenja koji odgovara realnoj površini pražnjenja dobijen na osnovu snimaka kroz anodu (slika 5.4).

Koegzistencija dva kanala pražnjenja može biti povezana sa malom dužinom difuzije na višim pritiscima i velikim prečnikom elektroda u odnosu na međuelektrodno rastojanje kada konstrirovani kanali pražnjenja mogu da rade nezavisno jedan od drugog (Petrović *et al.*, 2008; Marić *et al.*, 2009). Pojava međusobno odvojenih kanala pražnjenja primećena je i izučavana kod mikropražnjenja kako u impulsnom tako i u jednosmernom režimu rada. Kod ovih pražnjenja pod određenim uslovima su dobijani čitavi različiti paterni pražnjenja (Wang, *et al.*, 2018; Schoenbach *et al.*, 2004; Becker *et al.*, 2006; Schoenbach i Becker, 2016). U ovom radu mi smo uspeali da izdvojimo nastanak najjednostavnijeg kompleksnog profila koji se sastoji od dva provodna kanala. Posmatranjem osobina vidi se da su ovo nezavisni kanali koji funkcionišu na identičan način.

5.2 NAGLA PROMENA REŽIMA PRAŽNJENJA U OBLASTI JAKIH STRUJA U PARAMA ALKOHOLA

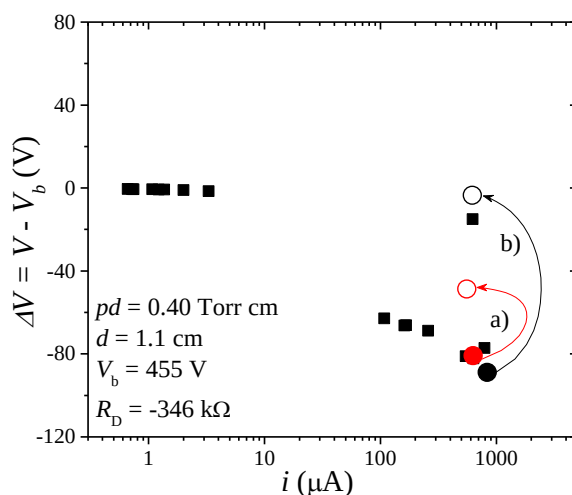
Proučavanje pražnjenja u parama alkohola ukazalo je na postojanje fenomena koji nije opažen u pražnjenju u vodenoj pari. Tokom snimanja strujno-naponskih karakteristika u pražnjenju u parama metanola i etanola, u režimu jakih struja, uočene su nagle promene režima rada pražnjenja koje su praćene promenama u emisionim i električnim osobinama samog pražnjenja.

Na slici 5.7 dat je 3D grafik sa Pašenovom krivom pražnjenja u pari metanola dobijenoj za međuelektrodno rastojanje od 1.1 cm i odgovarajućom strujno-naponskom karakteristikom snimljenom na $pd = 0.40$ Torr cm, odnosno na pd vrednosti koja odgovara minimumu Pašenove krive.



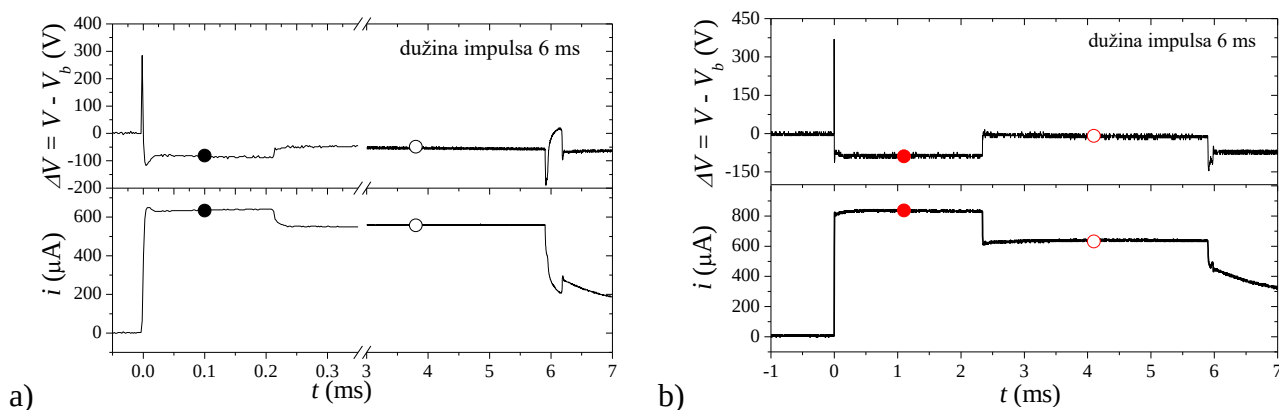
Slika 5.7. 3D grafik Pašenove krive za pražnjenje u pari metanola na rastojanju od 1.1 cm i strujno–naponska karakteristika za $pd = 0.40$ Torr cm (u minimumu Pašenove krive).

U toku snimanja strujno–naponske karakteristike, tačnije u abnormalnom pražnjenju na višim strujama, primećeno je da u toku jednog naponskog impulsa trajanja 6 ms, dolazi do promene režima rada pražnjenja. Ova promena režima rada se na strujnom i naponskom signalu manifestuje pojavom stepenika u samom obliku signala (slika 5.9). Da bi se bolje videlo šta se zapravo dešava, urađen je vremenski razvoj abnormalnog pražnjenja u tačkama koje leže na visokoj struji. Tačke u kojima je rađen vremenski razvoj su označene praznim simbolima (prazni krugovi) na slici 5.8. Na istoj slici puni krugovi predstavljaju vrednosti struje i napona pre stepenika, koje su date na slici 5.9. Primećuje se da pre prelaza pražnjenje radi u normalnom tinjavom režimu, dok nakon prelaza uskače u abnormalni režim sa većim naponom ali nižom strujom, što je u suprotnosti sa očekivanim da sa porastom napona raste i struja pražnjenja.



Slika 5.8. Strujno–naponska karakteristika za pražnjenje u pari metanola za $pd = 0.40$ Torr cm i $d = 1.1$ cm. Napon predstavlja razliku između napona pražnjenja i probojnog napona ($V_b = 455$ V). Promena (prelaz) režima rada pražnjenja je označena strelicama i kružnim simbolima, koji odgovaraju vrednostima sa slike 5.9.

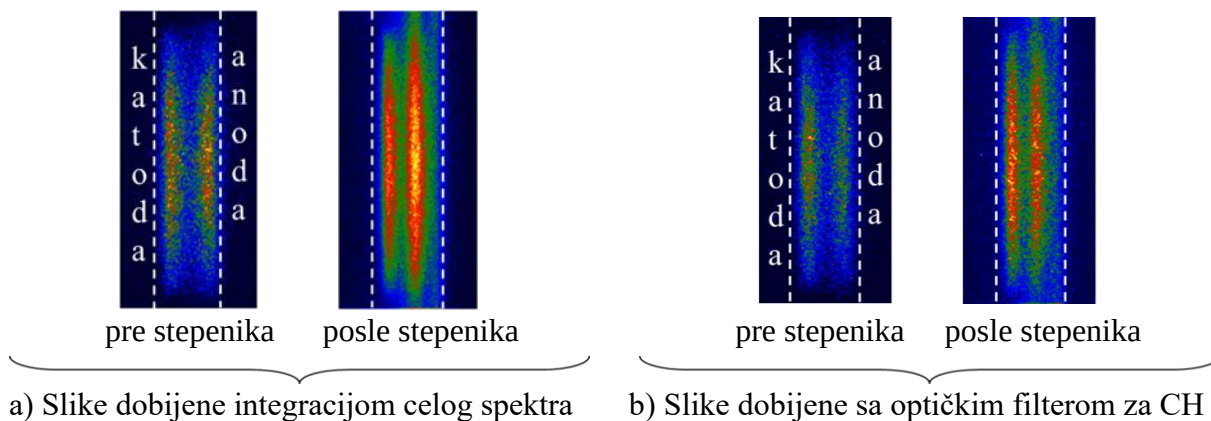
Na slici 5.9 prikazana su dva primera efekta u kome struja i napon imaju izraženi stepenasti oblik signala usled prelaznog moda pražnjenja. Ovaj efekat prelaza u režimu pražnjenja se javlja u opsegu struja koje odgovaraju prelazu iz normalnog u abnormalni režim, od $620 \mu\text{A}$ (sam početak pozitivnog nagiba strujno–naponske karakteristike) do $840 \mu\text{A}$. U prvom primeru na nižoj struji $\sim 620 \mu\text{A}$ (slika 5.9a) prelazni režim se javlja oko 0.2 ms nakon početka impulsa. Tokom prelaza, pražnjenje prelazi na ~ 30 V viši napon i $\sim 70 \mu\text{A}$ nižu struju. Prelaz traje oko 4 μs .



Slika 5.9. Signali napona i struje dobijeni na a) nižoj struji ($i = 557 \mu\text{A}$) i b) većoj stacionarnoj struji ($i = 621 \mu\text{A}$) na kojima se vidi prelaz koji se javlja u vidu stepenika u toku jednog impulsa. Napon predstavlja razliku između napona pražnjenja i probojnog napona ($V_b = 455 \text{ V}$). Vrednosti pre i posle prelaza su predstavljene punim i praznim simbolima u obliku kruga, respektivno, i odgovaraju vrednostima sa slike 5.8.

U drugom primeru, na slici 5.9b) ovaj efekt se pojavljuje na nešto većoj početnoj struji od $\sim 830 \mu\text{A}$, ali za razliku od prvog slučaja, ovde se prelaz dešava nakon $\sim 2 \text{ ms}$ nakon početka impulsa. U ovom slučaju pražnjenje nakon stepenika radi na $\sim 70 \text{ V}$ većem naponu i $\sim 200 \mu\text{A}$ nižoj struji. Vreme trajanja prelaza je $\sim 10 \mu\text{s}$. Važno je naglasiti da je u oba slučaja prelaz iz jednog moda pražnjenja u drugi gladak, bez prisustva nestabilnosti ili oscilacija u naponskim i strujnim signalima.

Takođe uporedo sa snimanjem signala (talasnih oblika) napona i struje, ICCD kamerom je u nekoliko tačaka (vremenskih trenutaka) snimana i emisija svetlosti iz pražnjenja, duž ose komore (bočni snimak), u toku trajanja jednog impulsa. Primer izgleda pražnjenja u toku jednog impulsa, u trenucima pre i posle stepenika je dat na slici 5.10. Prikazan je 2D izgled pražnjenja dobijen integracijom celog spektra (slika 5.10a) i upotrebom optičkog filtera za CH traku na 431.2 nm (slika 5.10b). Sa 2D slika se vidi da je intenzitet emisije svetlosti pre stepenika manji nego nakon stepenika.

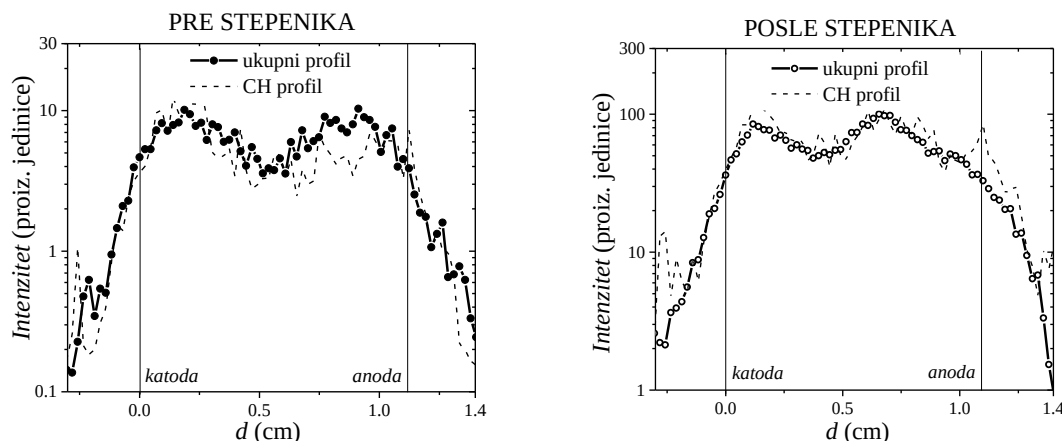


Slika 5.10 2D slike pražnjenja dobijene duž ose komore u tačkama pre i posle stepenika koje odgovaraju tačkama sa slike 5.9b): a) slike dobijene integracijom celog spektra i b) slike dobijene korišćenjem optičkog filtera za izdvajanje talasne dužine koja odgovara CH traci na 431.2 nm .

Na osnovu 2D slika pražnjenja dobijene su aksijalne raspodele emisije iz pražnjenja (aksijalni emisijski profili) prikazane na slikama 5.11 i 5.12, koje odgovaraju tačkama sa slike 5.9b) pre i posle stepenika. Na slici 5.11 date su ukupne i CH aksijalne raspodele dobijene pre (puni simboli) i posle (prazni simboli) stepenika. Oblik profila dobijenih upotrebom optičkog filtera za CH traku dobro prati oblik ukupnih profila dobijenih integracijom celog vidljivog spektra. Na osnovu ovoga se vidi da emisija pobuđenih CH radikala značajno, čak dominantno, doprinosi celokupnoj emisiji u intervalu talasnih dužina od $\sim 400\text{--}800 \text{ nm}$. CH profili su nešto nižeg intenziteta emisije u poređenju

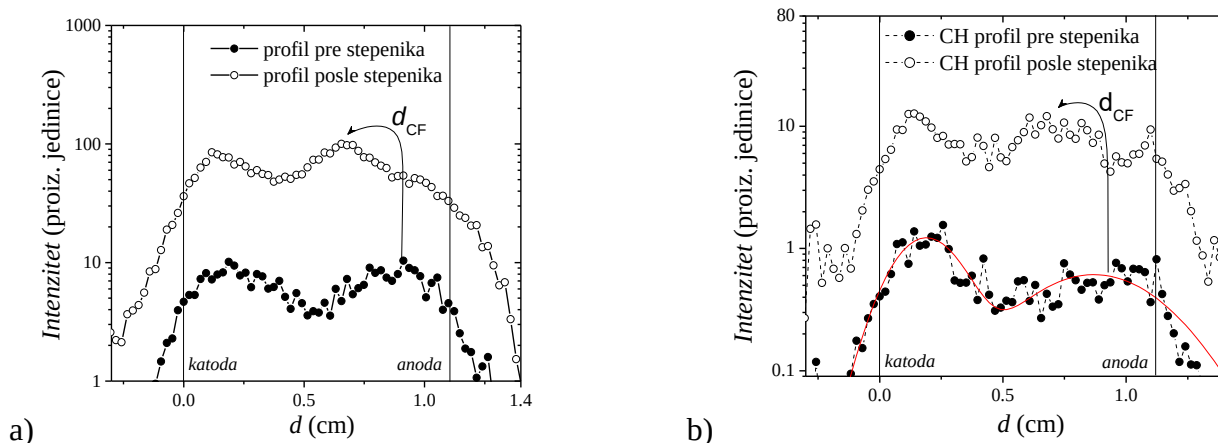
5. Anomalna ponašanja ispitivanih pražnjenja

sa ukupnim profilima, a na graficima su radi lakšeg poređenja normirani na maskimalni intenzitet ukupnih profila (faktor normiranja $k = 9$).



Slika 5.11. Aksijalne raspodele emisije (aksijalni profili) pražnjenja u pari metanola dobijene iz 2D slika pražnjenja duž ose komore (slika 5.10) u tačkama pre (puni simboli) i posle (prazni simboli) stepenika koje odgovaraju trenucima vremena datim na slici 5.9b). Dato je poređenje profila dobijenih sa i bez korišćenja optičkog filtera za CH traku. CH aksijalni profili su normirani faktorom $k = 9$ radi lakšeg poređenja sa profilima ukupne emisije u vidljivom spektru.

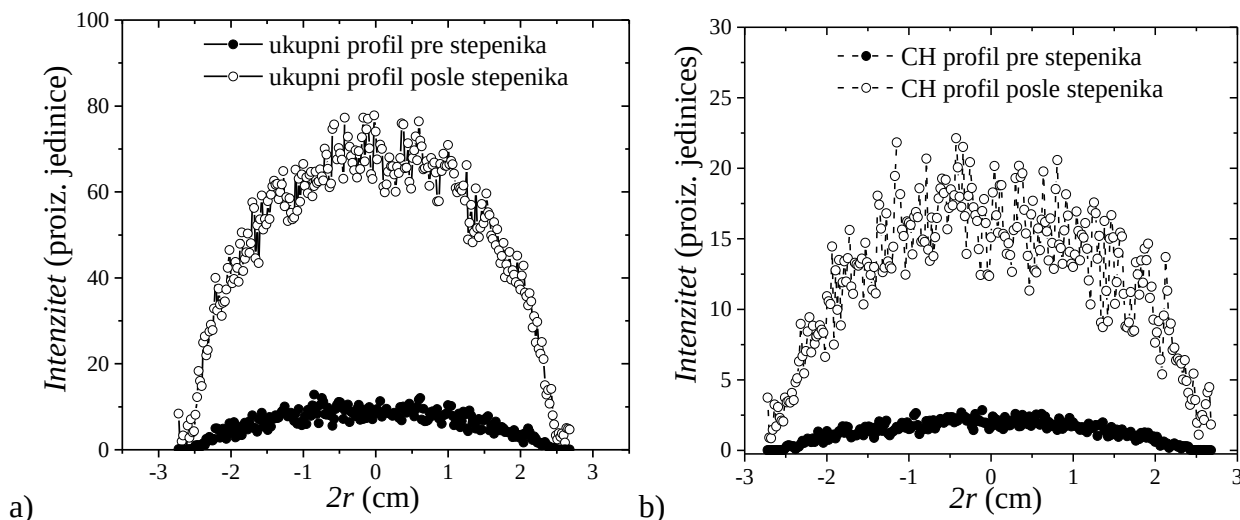
Na slici 5.12 dato je poređenje: a) ukupnih profila pre (puni simboli) i posle (prazni simboli) stepenika i b) profila dobijenih sa optičkim filterom za CH traku, koji su snimani sa vremenom ekspozicije kamere od $100 \mu s$ i odgovaraju tačkama na slici 5.9b). Zajedničko za profile pre i posle stepenika je da su u procesima ekscitacije i jonizacije teške čestice skoro podjednako efektivne u proizvodnji emisije kao i elektroni, što se ogleda u postojanju maksimuma svetljenja ispred katode. Iako nakon stepenika struja opadne, ukupni intenzitet emisije iz pražnjenja je veći, što se lepo vidi sa grafika na slici 5.12. Međutim, odnos maksimuma intenziteta profila ispred elektroda pre stepenika (puni simboli) i posle stepenika (prazni simboli), za oba slučaja (a) i b)) data na slici 5.9, su isti (oko 9).



Slika 5.12 Aksijalne raspodele emisije (aksijalni profili) pražnjenja u pari metanola dobijene iz 2D slika pražnjenja duž ose komore (slika 5.10) u tačkama pre (puni simboli) i posle (prazni simboli) stepenika koje odgovaraju trenucima vremena datim na slici 5.9b). Dato je poređenje: a) ukupnih profila pre (puni simboli) i posle (prazni simboli) i b) profila dobijenih korišćenjem optičkog filtera za CH traku, u trenucima pre (puni simboli) i posle (prazni simboli) stepenika. CH profil pre stepenika je fitovan funkcijom koja je suma dva Gausijana (crvena linija) kako bi se lakše uočio maksimum intenziteta ispred anode. Promene početnih (inicijalnih) vrednosti napona i struje u stacionarnom stanju posle stepenika (prelaza) su: $\delta V = 70 V$, $\delta i = -200 \mu A$. Dužina katodnog pada je označena sa d_{CF} .

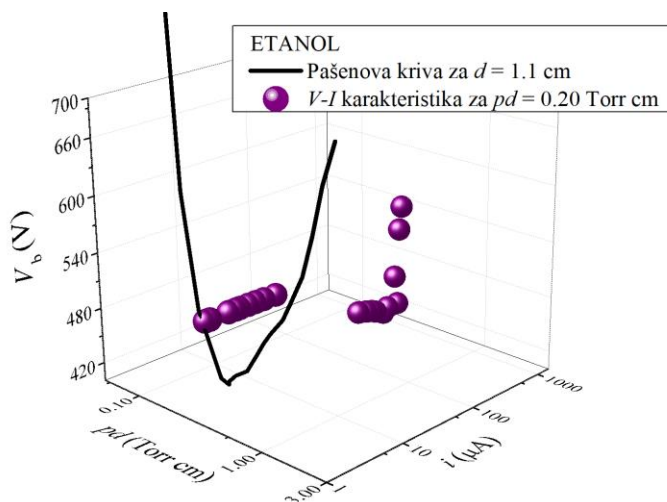
Takođe, na osnovu radijalnih profila (slika 5.13) dobijenih iz 2D slika pražnjenja sa slike 5.10, vidi se da profili pre i posle stepenika imaju istu širinu (prečnik), odnosno istu efektivnu površinu pražnjenja (Škoro *et al.*, 2008). Glavnu razliku u profilima pre i posle stepenika predstavlja pozicija emisijonog pika koji odgovara negativnom svetljenju tj. odnosno granici katodnog pada (Marić *et al.*,

2002, Marić *et al.*, 2003). Granica oblasti katodnog pada (d_{CF} na slici 5.12) se pomera bliže katodi nakon prelaza (posle stepenika), što je u suprotnosti sa smanjenjem struje pražnjenja, ali je u skladu sa povećanjem E/N .



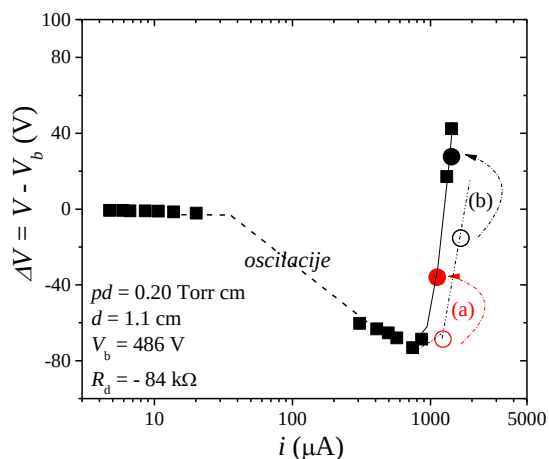
Slika 5.13. Radijalne raspodele emisije (radijalni profili) pražnjenja u pari metanola dobijene iz 2D slika pražnjenja (slika 5.10) u tačkama pre (puni simboli) i posle (prazni simboli) stepenika koje odgovaraju trenucima vremena datim na slici 5.9b). a) Radijalni ukupni profili i b) radijalni profili dobijeni korišćenjem optičkog filtera za CH traku.

U pražnjenju u pari etanola je takođe primećen efekat promene moda pražnjenja na visokim strujama. Na slici 5.14 dat je 3D grafik na kome su prikazane Pašenove krive za pražnjenje u pari etanola na 1.1 cm i odgovarajuća strujno–naponska karakteristika snimljena za uslove u levoj grani Pašenove krive na $pd = 0.20$ Torr cm.



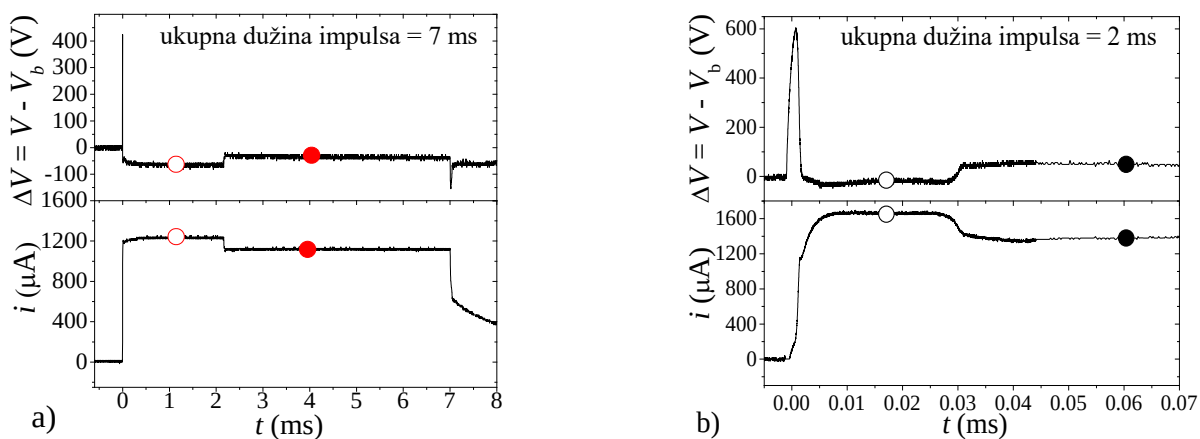
Slika 5.14 3D grafik Pašenove krive za pražnjenje u pari etanola na rastojanju od 1.1 cm i strujno–naponska karakteristika za $pd = 0.20$ Torr cm (u levoj grani Pašenove krive).

Pojava prelaznog režima je primećena u toku snimanja normalnog režima rada pražnjenja, odnosno na samom prelazu in normalnog tinjavog u abnormalno pražnjenje (početak pozitivnog nagiba $V-I$ karakteristike). Na slici 5.15 su prikazane tačke (puni krugovi) u kojima je proučavan vremenski razvoj pražnjenja, dat na slici 5.16. Puni krugovi predstavljaju tačke nakon prelaza, dok su prazni ekvivalentni vrednostima pre stepenika. Kao i u slučaju metanola, i kod etanola pražnjenje pre prelaza radi na nižem naponu (prazni krugovi) i višoj struji u abnormalnom režimu, a nakon prelaza skače na viši napon i nižu struju (puni krugovi), čija je posledica dosta strmiji pozitivni nagib strujno–naponske karakteristike.



Slika 5.15 Strujno-naponska karakteristika za pražnjenje u pari metanola za $pd = 0.40$ Torr cm i $d = 1.1$ cm. Napon predstavlja razliku između napona pražnjenja i probojnog napona ($V_b = 455$ V). Promena (prelaz) režima rada pražnjenja je označena strelicama i kružnim simbolima, koji odgovaraju vrednostima sa slike 5.16.

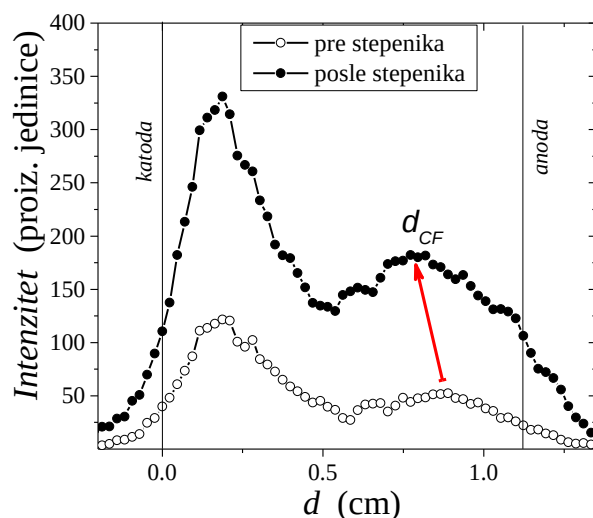
Slika 5.16 daje vremenski razvoj za dva slučaja u kojima je primećen efekat promene moda pražnjenja u toku trajanja jednog impulsa, odnosno daje izgled naponskog i strujnog signala (talasnog oblika) koji imaju izraženi stepenik usled promene moda pražnjenja. Prelazni režim u pražnjenju je prisutan u opsegu struja od $860 \mu\text{A}$ (početak pozitivnog nagiba V-I karakteristike) do $1430 \mu\text{A}$. U prvom primeru, na nižoj struji (slika 5.16a) prelaz u režimu rada se dešava približno 2 ms nakon početka impulsa. U toku prelaza pražnjenje prelazi na ~ 40 V viši napon i $\sim 130 \mu\text{A}$ nižu struju. Prelaz je gladak i traje oko 15 μs . U drugom primeru (slika 5.16b) isti efekat se javlja na višoj početnoj struji od $\sim 1680 \mu\text{A}$, ali ovde do prelaza dolazi svega 30 μs nakon početka stabilnog rada pražnjenja, drugim rečima 30 μs nakon početka primenjenog impulsa. Sam prelaz traje oko 3 μs , nakon čega pražnjenje skače na ~ 70 V viši napon i $\sim 320 \mu\text{A}$ nižu struju. U ovom slučaju se prelaz javlja ranije u toku impulsa na višim početnim strujama. U oba slučaja prelaz je gladak, bez nestabilnosti i oscilacija u talasnim signalima napona i struje.



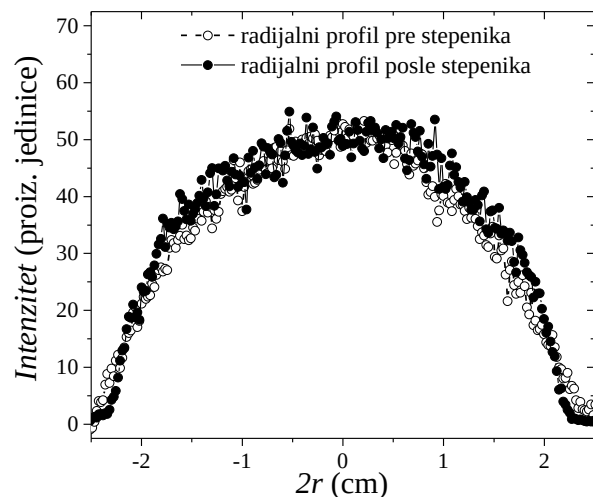
Slika 5.16 Signali napona i struje dobijeni na a) nižoj struji (početna $i_d = 1240 \mu\text{A}$) i b) višoj struji (početna $i_d = 1680 \mu\text{A}$) na kojima se vidi prelaz koji se javlja u vidu stepenika u toku jednog impulsa. Napon predstavlja razliku između napona pražnjenja i probojnog napona ($V_b = 486$ V). Vrednosti pre i posle prelaza su predstavljene praznim i punim simbolima u obliku kruga, respektivno, i odgovaraju vrednostima sa slike 5.15.

Zabeležene su prostorne raspodele emisije pražnjenja (2D slike pražnjenja) nekoliko puta u toku trajanja jednog impulsa. Slika 5.17 prikazuje aksijalne raspodele emisije (aksijalne emisijske profile) koji su dobijeni iz snimaka kamerom sa kratkim trajanjem ekspozicije oko 0.2 μs , a koje odgovaraju tačkama sa slike 5.16b). Može se primetiti da aksijalni profili pre (prazni simboli) i posle (puni simboli) stepenika imaju izraženi maksimum intenziteta emisije u oblasti ispred katode, što je posledica značajnog udela teških čestica u procesima ekscitacije i jonizacije. Kao što je već ranije spomenuto struja pražnjenja opada nakon stepenika, ali ukupni intenzitet emisije raste. Jedina

bitna razlika između profila pre i posle prelaza jeste pozicija pika emisije koji označava negativno svetljenje, odnosno koji označava dužinu katodnog pada d_{CF} . Dakle, granica katodnog pada se pomera ka katodi, drugim rečima nakon prelaza (posle stepenika) se dužina katodnog pada samnjuje. Kao i u slučaju metanola, i ovde su odnosi maksimuma intenziteta aksijalnih profila ispred elektroda za uslove pre (prazni simboli) i posle (puni simboli) stepenika isti (oko 3). Iz radijalnih profila pre i posle stepenika (slika 5.18), dobijenih na osnovu 2D bočnih snimaka pražnjenja, može se videti da je prečnik pražnjenja u oba slučaja isti, odnosno pre i posle stepenika pražnjenje ima istu efektivnu površinu.



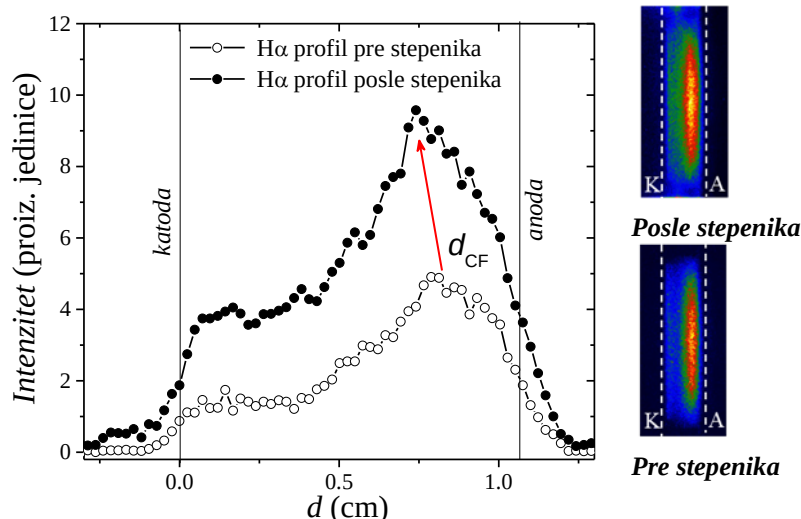
Slika 5.17 Aksijalne raspodele emisije (aksijalni profili) pražnjenja u pari etanola dobijene iz 2D slika pražnjenja duž ose komore u tačkama pre (prazni simboli) i posle (puni simboli) stepenika koje odgovaraju trenucima vremena datim na slici 5.16b). Dato je poređenje ukupnih profila pre (prazni simboli) i posle (puni simboli) stepenika. Promene početnih (inicijalnih) vrednosti napona i struje u stacionarnom stanju posle stepenika (prelaza) su: $\delta V = 70$ V, $\delta i = -320$ μA . Dužina katodnog pada je označena sa d_{CF} .



Slika 5.18 Radijalne raspodele emisije (radijalni profili) pražnjenja u pari etanola dobijene iz 2D bočnih slika pražnjenja u tačkama pre (prazni simboli) i posle (puni simboli) stepenika koje odgovaraju trenucima vremena datim na slici 5.16b). Profil pre stepenika je normalizovan na maksimalnu vrednost emisije profila posle stepenika.

Na slici 5.19 date su aksijalne raspodele emisije pre (prazni simboli) i posle (puni simboli) stepenika dobijene upotrebom optičkog filtera kojim je izdvojena emisija na talasnoj dužini koja odgovara H_{α} liniji na 656.4 nm. Ovi aksijalni emisijski profili su slikani u trenucima koji odgovaraju tačkama sa slike 5.16b). Kada se pogledaju ovi emisijski profili uočava se da je maksimum intenziteta emisije sada ispred anode, odnosno da je ekscitacija i jonizacija dominantno indukovana elektronima, dok teške čestice u njima ne učestvuju. Dakle, brzi vodonikovi neutrali su pretežno elektronski ekscitovani, i u ukupnoj emisiji učestvuju u delu koji odgovara procesima indukovanim elektronima u oblasti ispred anode. Takođe se i kod H_{α} profila javlja pomeranje maksimuma intenziteta emisije

ka katodi, nakon stepenika, kao što je i u slučaju ukupnih aksijalnih profila. Ovakvo pomeranje granice katodnog pada je jako neobično, ako se ima u vidu to da nakon stepenika pražnjenje radi na nižoj struji. Za očekivati bi bilo da sa smanjenjem struje dužina katodnog pada raste (Marić *et al.*, 2002). Uzrok ovakve promene raspodele električnog polja, struje i napona pražnjenja nije najjasniji. Ako se uzme u obzir to da je vreme pojave efekta prelaznog režima reproducibilno u uzastopnim impulsima, onda se on ne može pripisati procesima taloženja (depozicije) ili raspršivanja (spaterovanja) na površinama. Grejanje gasa ili elektrode ne bi trebalo da značajno utiču jer su primenjivani kratki naponski impulsi i pražnjenje radi u sporom protočnom režimu čime su predupređeni ovi efekti grejanja.



Slika 5.19 Aksijalne raspodele emisije (aksijalni profili) pražnjenja u pari etanola dobijene iz 2D slika pražnjenja duž ose komore sa upotrebom optičkog filtera za vodonikovu liniju na 656 nm u tačkama koje odgovaraju trenucima vremena datim na slici 5.15b). Dato je poređenje H_{α} profila pre (prazni simboli) i posle (puni simboli) stepenika. 2D slike snimljene sa 20 akumulacija i ekspozicijom od 20 μ s i maksimalnim pojačanjem (Gain = 255).

Ovakvo ponašanje pražnjenja, odnosno pojava prelaznog režima u okviru jednog primenjenog impulsa, je verovatno povezano sa promenom ravnoteže ekscitovanih ili naelektrisanih čestica (vrsta): jona ili elektronski i vibraciono ekscitovanih proizvoda disocijacije i adsorbovanih vrsta u pražnjenju. S toga se u određenom vremenskom intervalu, nakon primene naponskog impulsa, dominantne gasovite vrste koje nastaju u pražnjenju mogu menjati i na taj način uticati na ravnotežu naelektrisanih i ekscitovanih vrsta u pražnjenju. U slučaju argona slične promene režima su opažene od strane Petrovića i Felpsa (Petrović i Phelps, 1997 (Fig. 3)) ali tu dolazi do promene radijalnog profila posle promene režima rada.

5.3 ZAKLJUČAK

U poglavlju 5 dati su rezultati vezani za primećena anomalna ponašanja pražnjenja u parama metanola, etanola i vode. U pražnjenju u vodenoj pari tokom snimanja strujno-naponske karakteristike za $pd = 0.60$ Torr cm pri rastojanju elektroda od 0.5 cm uočeno je postojanje dvostrukih kanala pražnjenja u Taunzendovom i normalnom tinjavom režimu. Prikazane su odgovarajuće aksijalne raspodele emisije iz pražnjenja koje odgovaraju glavnom i sekundarnom kanalu pražnjenja kao i odgovarajuće 2D slike pražnjenja dobijene snimanjem ICCD kamerom. Takođe su date i radijalne raspodele emisije i 2D slike pražnjenja dobijene snimanjem kroz transparentnu anodu. Intenzitet emisije sekundarnog kanala je manji u odnosu na intenzitet emisije glavnog kanala ali poklapanje oblika dobijenih aksijalnih profila za ove kanale dokazuje da oba rade u istom režimu pražnjenja. Interesantno je da su profili dobijeni na različitim strujama normalizovani istim faktorom, što pokazuje da je relativni intenzitet emisije u dvostrukim kanalima

održan za različite režime pražnjenja. Koegzistencija dvostrukih kanala u pražnjenju može biti posledica male dužine difuzije na višim pritiscima i velikog prečnika elektroda u odnosu na rastojanje između elektroda, pa konstrikcije (kanali pražnjenja) mogu raditi nezavisno jedna od druge. Postojanje višestrukih kanala je zabeleženo u mikropražnjenjima i pražnjenjima sa šupljom katodom.

Drugi anomalni efekat je primećen u ponašanju pražnjenja u parama alkohola metanola i etanola na visokim strujama, na kojima je opaženo postojanje prelaznog režima (moda) pražnjenja u toku trajanja jednog primenjenog naponskog impulsa tokom stabilnog rada pražnjenja. Postojanje prelaznog moda je primećeno u normalnom tinjavom pražnjenju, tačnije na prelazu iz normalnog u abnormalno tinjavo pražnjenje, na početku pozitivnog nagiba strujno-naponske karakteristike. Bez propratnih nestabilnosti ili oscilacija i bez značajnih promena u posmatranoj spoljašnjoj prostornoj strukturi pražnjenje se prebacuje iz jednog u drugi stabilni mod rada prelazeći sa više na nižu struju i sa nižeg na viši napon u toku jednog impulsa. Prelaz u poželjniji mod rada, nakon nekog vremena stabilnog rada, je verovatno posledica promene ravnoteže naelektrisanih i ekscitovanih vrsta, proizvoda disocijacije i adsorbovanih vrsta nastalih u pražnjenju. Efekat je interesantan kako sa stanovišta osnovnih karakteristika pražnjenja tako i sa stanovišta primena koje rade u pulsnom ili visokofrekventnom tinjavom režimu pražnjenja.

6. ZAKLJUČAK

Ova doktorska disertacija daje pregled eksperimentalno ispitivanih osobina neravnotežnih niskotemperaturnih DC pražnjenja u jednostavnoj plan–paralelnoj elektrodnoj geometriji u parama tečnosti. Motivacija za ovaj tip istraživanja leži u naglom razvoju plazma medicine, koji je obeležio poslednjih par godina i uslovio porast broja radova na temu interakcije plazme i tečnosti, kao i njihovih primena. Ipak, nedovoljno poznavanje osnovnih procesa kao i mali broj dostupnih podataka, posebno o koncentracijama reaktivnih vrsta u pražnjenjima u mehurićima i pražnjenjima unutar tečnosti, još uvek predstavljaju jedan od glavnih problema. Cilj ovde izloženog istraživanja jeste prelaz sa gasnih pražnjenja na pražnjenja u tečnostima, koja će svakako biti predmet daljeg rada. Dakle, ideja je da ova disertacija bude spona između pražnjenja u parama tečnosti (gasna pražnjenja) i u tečnostima, i u tu svrhu daje pregled podataka neophodnih za razumevanje procesa koji određuju osobine proboja i pražnjenja u parama/tečnostima, konkretno u vodenoj pari i parama alkohola: metanolu, etanolu, izopropanolu i n-butanolu na niskim pritiscima u širokom opsegu struja.

Eksperimentalni rad u okviru ove disertacije je baziran na proučavanju DC proboja u parama tečnosti, merenju strujno–naponskih karakteristika i vremenski razloženih snimanja prostorne strukture pražnjenja tokom formiranja jakostrujnog abnormalnog režima, kao i na snimanju spektralno razloženih prostornih raspodela emisije svetlosti iz pražnjenja. Za predmet istraživanja izabrane su pare alkohola, kao predstavnika najjednostavnijih organskih tečnosti, koje su od interesa zbog raznovrsnosti primena počev od industrije goriva/biogoriva (za direktno dobijanje vodonika – goriva budućnosti), preko primene u razvoju tehnologija za unapređivanje postojećih i razvoj novih materijala, u procesima polimerizacije, u proizvodnji tankih filmova (DLC filmovi (*engl. diamond-like carbon film*) i nanokompozitni tanki filmovi) do sinteze ugljeničnih nanočestica i nanografena. Pored alkohola, istraživanja su uključila i nastavak rada na pražnjenju u vodenoj pari, koje je sastvani deo bio-medicinskih primena, a značajno je i u obradi, tretmanu i funkcionalizaciji materijala, zaštiti životne sredine itd.

U parama alkohola: u metanolu, etanolu, izopropanolu i n-butanolu, je za dve vrednosti elektrodnog rastojanja (1.1 i 3.1 cm) izvršeno merenje probnog napona u zavisnosti od proizvoda pritiska i međuelektrodnog rastojanja, odnosno Pašenove krive, uz istovremeno snimanje aksijalnih raspodela emisije svetlosti iz slabostrujnog pražnjenja u celom vidljivom spektru i u određenom intervalu talasnih dužina upotrebom odgovarajućih optičkih filtera (korišćeni filteri: 425, 660 i 780 nm). Najviši probni naponi su izmereni za paru metanola. Dodatno, snimljene Pašenove krive pokazuju da se minimum pomera ka nižim pritiscima, višim E/N , za kompleksnije alkohole. Kompleksnost je proporcionalna broju atoma u molekulu, pa sa porastom kompleksnosti raste i broj modova za vibracionu ekscitaciju, što dovodi do većih gubitaka koji zahtevaju veće vrednosti E/N kako bi elektroni postigli energije koje dozvoljavaju jonizaciju kako bi došlo do proboja. Desno od Pašenovog minimuma (na većim vrednostima pd), ovaj zahtev je zadovoljen porastom probnog napona, ali levo od Pašenovog minimuma (na manjim vrednostima pd), najefikasniji način za dostizanje visokog E/N (odnosno srednje energije) je pomeranje minimuma ka nižim vrednostima pd -a. S toga, najsloženiji (najkompleksniji) molekul ima najveće probne napone u desnoj grani Pašenove krive, a najniže probne napone u levoj grani Pašenove krive. Prema tome, zavisnost naših rezultata od kompleksnosti (složenosti) je vezana za procese indukovane fotonima, jer disocijacija mora da se odvija duž istih osnovnih potencijalnih krivih za molekule.

Snimljene aksijalne raspodele emisije svetlosti iz slabostrujnog pražnjenja otkrivaju da teške čestice imaju značajan doprinos u probu u parama alkohola, u širokom intervalu pd vrednosti, odnosno

E/N . Čak i na srednjim vrednostima redukovano električnog polja, od 3 do 5 kTd, procesi indukovani teškim česticama imaju značajnu ulogu u pražnjenju. Na većim vrednostima E/N , ovi procesi postaju dominantni

Urađena su i spektralno razložena snimanja emisije svetlosti iz slabostrujnog pražnjenja u cilju dobijanja optičkih emisinih spektara ovih alkohola. Na osnovu rezultata dobijenih ovakvim snimanjima identifikovani su procesi koji imaju glavnu ulogu u probodu i održavanju slabostrujnog pražnjenja na određenim pd vrednostima, ali je takođe omogućen i uvid u dominantne proizvode disocijacije polaznih (roditeljskih) molekula u pražnjenju. Najizraženije emisije u spektrima alkohola potiču od CH (431.2 nm i 387.2 nm) i OH (306.4 nm) radikala i H_α vodonikove Balmerove linije (656.4 nm). Iz aksijalnih raspodela emisije svetlosti iz pražnjenja (aksijalni emisioni profili) direktno je određen jonizacioni koeficijent, koji je omogućio računanje efektivnog prinosa sekundarnih elektrona (koeficijenta sekundarne emisije elektrona) u ovim pražnjenjima. Dobijeni rezultati za jonizacioni koeficijent za metanol i etanol su uporedivi sa rezultatima iz literature, dok su za izopropanol i n-butanol, po našem saznanju, ovde prikazani prvi rezultati tog tipa. Naši rezultati za jonizacioni koeficijent i efektivni prinos sekundarnih elektrona leže u intervalu vrednosti redukovano električnog polja E/N od ~ 1 kTd do ~ 9 kTd, dajući tako rezultate na vrednostima redukovano električnog polja iznad 3 kTd za koje do sada nije bilo podataka u literaturi. Snimljene su strujno–naponske karakteristike pražnjenja u alkoholima za međuelektrodno rastojanje od 1.1 cm i pd vrednosti koje leže u minimumu i u levoj grani Pašenove krive. Odgovarajuće aksijalne raspodele emisije svetlosti snimljene u različitim režimima omogućile su posmatranje prostorne strukture pražnjenja integrisane u celom vidljivom spektru i u uskim intervalima talasnih dužina izdvojenim pomoću optičkih filtera.

Rad na probodu i pražnjenjima u vodenoj pari, započet u doktorskoj disertaciji dr Nikole Škora (Škoro, 2012), proširen je merenjima električnih i optičkih osobina proboda i različitih karakterističnih režima jednosmernog pražnjenja u vodenoj pari, na međuelektrodnim rastojanjima: 0.05, 0.1, 0.5 i 1.1 cm. Snimljeni su optički emisioni spektri slabostrujnog pražnjenja u vodenoj pari na rastojanju $d = 1.1$ cm i na pd vrednostima koje leže u levoj grani Pašenove krive ($pd = 0.20$ Torr cm) i u njenom minimumu ($pd = 0.60$ i 0.70 Torr cm). Najizraženije linije u spektru vodene pare pripadaju vodonikovom atomu, tačnije Balmerovoj vodonikovoj seriji (linije za H_α , H_β , H_γ i H_δ), OH radikalu i kiseonikovom atomu. Korišćenje optičkog filtera na 656.4 nm omogućilo je poređenje aksijalnih raspodela emisije svetlosti iz pražnjenja snimanih na različitim pd vrednostima koje su dobijene integracijom u celom vidljivom spektru i u uskom intervalu talasnih dužina oko 656.4 nm, što odgovara H_α liniji. Snimljene aksijalne raspodele emisije (aksijalni emisioni profili) su skalirane sa parametrom skaliranja pd (p – pritisak, d – udaljenost katode), što je omogućilo poređenje profila snimljenih na istom pd , a različitim međuelektrodnim rastojanjima d . Ovako skalirani aksijalni emisioni profili su pokazali da na istim pd vrednostima glavni procesi u pražnjenju ostaju nepromenjeni bez obzira na promenu rastojanja d . Strujno–naponske karakteristike, koje su snimljene na 0.5, 1.1, 2.1 i 3.1 cm i $pd = 0.60$ Torr cm, su skalirane parametrom j/p^2 . Pokazan je značaj uzimanja realne efektivne površine pražnjenja da bi se dobila realna gustina struje pražnjenja. Ovime je egzaktno potvrđena ispravnost teorijskih predviđanja o konstantnoj gustini struje tokom normalnog tinjavog režima. Drugim rečima, na skaliranim $V-I$ karakteristikama, ceo plato koji odgovara normalnom tinjavom režimu se sažima u jednu j/p^2 tačku.

Urađena je i prostorno–vremenska analiza razvoja abnormalnog režima pražnjenja u vodenoj pari, istovremenim snimanjem električnih signala i emisije svetlosti iz pražnjenja. Time je omogućeno posmatranje kinetike procesa koji dovode do formiranja katodnog pada, uz dobijanje informacije o ulozi različitih vrsta čestica (elektrona i teških čestica) u formiranju abnormalnog pražnjenja.

Određena su i vremena preleta jona u vodenoj pari koja su pokazala da je u intervalu srednjih vrednosti redukovano električnog polja dominantan H_2^+ vodonikov jon. Iz vremena preleta i

međuelektrodnog rastojanja određene su brzine drifta jona za interval E/N od ~ 2 kT do 7 kTd. Poređenje sa postojećim rezultatima iz literature za brzine drifta u vodenoj pari je pokazalo dobro slaganje čime su postojeći rezultati prošireni na više vrednosti E/N .

Dodatno, pored rezultata za probojne napone u centimetarskim pražnjenjima dali smo i rezultate dobijene minijaturizacijom prežnjenja u vodenoj pari. Cilj je bio izmeriti probojne napone u uslovima kada u pražnjenju dolazi do formiranja kondenzacije i kapljica vode (pritisci viši od tzv. pritiska pare). Probojni naponi su mereni za dva uslova: 1) na međuelektrodnim rastojanjima 0.5 i 1 mm kada je komora držana na sobnoj temperaturi (22°C) i 2) na međuelektrodnom rastojanju od 1 mm kada je komora dodatno hlađena (8°C) kako bi pritisak potreban za fazni prelaz u gasu bio što niži. U slučaju 1) izmereni probojni naponi (dobijeni iz relaksacionih oscilacija, pražnjenje se uključivalo u oscilatornom režimu) se dobro slažu sa Pašenovim krivama izmerenim u centimetarskim pražnjenjima ($d = 0.5$ i 1.1 cm), dok u slučaju 2) pri merenju probojnih napona na pritiscima iznad pritiska pare (8.1 Torr ili na $pd = 0.81$ Torr cm) primećeno je da se pražnjenje uključuje u stacionarnom modu (stabilni rad pražnjenja) sa probojnim naponima reda kilovolta (struja je ~ 1 μA). Zanimljivo je da nakon par minuta stabilnog rada pražnjenje upada u relaksacione oscilacije nastavljajući da radi na nižem naponu i nešto višoj struji. Pretpostavka je da je ovakvo ponašanje posledica faznog prelaza u gasu, odnosno pojave kondenzacije ili kapljica tečnosti.

U okvir ove disertacije su ušla i ispitivanja anomalnih ponašanja pražnjenja koja su primećena tokom rada sa parama tečnosti, a koja se odnose na pojavu višestrukih kanala pražnjenja u vodenoj pari i na nagle promene režima pražnjenja u oblasti jakih struja, praćene promenama u električnim i emisijom osobinama u pražnjenjima u metanolu i etanolu. Tokom snimanja strujno-naponske karakteristike u pražnjenju u vodenoj pari na $pd = 0.60$ Torr cm i rastojanju elektroda od 0.5 cm uočeno je postojanje dvostrukih kanala pražnjenja u Taunzendovom i normalnom tinjavom režimu. Poređenjem aksijalnih raspodela emisije svetlosti iz glavnog i sekundarnog kanala pražnjenja pokazano je da, iako je intenzitet emisije sekundarnog kanala manji u odnosu na intenzitet emisije glavnog kanala, po obliku se aksijalni profil sekundarnog kanala slaže sa glavnim tj. poklapaju se. Ovo dokazuje da oba kanala rade u istom režimu pražnjenja. Takođe su profili dobijeni na različitim strujama normalizovani istim faktorom, što pokazuje da je relativni intenzitet emisije u dvostrukim kanalima održan za različite režime pražnjenja. Koegzistencija dvostrukih kanala u pražnjenju se povezuje sa malom dužinom difuzije na višim pritiscima i velikim prečnikom elektroda u odnosu na njihovo međusobno rastojanje, pa konstrikcije (kanali pražnjenja) mogu raditi nezavisno jedne od drugih. Drugi anomalni efekat je primećen u ponašanju pražnjenja u parama alkohola metanola i etanola na visokim strujama, na kojima je opaženo postojanje prelaznog režima (moda) pražnjenja u toku trajanja jednog primenjenog naponskog impulsa tokom stabilnog rada pražnjenja. Ovaj prelazni mod u radu pražnjenja se javlja u normalnom tinjavom pražnjenju, tačnije na prelazu iz normalnog u abnormalno tinjavo pražnjenje, na početku pozitivnog nagiba strujno-naponske karakteristike. Pražnjenje se, bez propratnih nestabilnosti, oscilacija i bez značajnijih promena u posmatranoj spoljašnjoj prostornoj strukturi, prebacuje iz jednog u drugi stabilni mod rada prelazeći sa više na nižu struju i sa nižeg na viši napon u toku jednog impulsa. Urađena je prostorno-vremenska analiza razvoja abnormalnog režima pražnjenja u kom dolazi do pojave prelaznog moda, tako što su istovremeno snimani električni signali i emisija svetlosti iz pražnjenja. Ovime je omogućeno praćenje i utvrđivanje procesa koji prethode, dešavaju se tokom i nakon prelaznog moda. Snimljeni aksijalni emisijni profili u trenucima pre i nakon prelaza pokazuju da je pre prelaza emisija iz pražnjenja manjeg intenziteta u odnosu na istu nakon prelaza. Takođe, granica katodnog pada, odnosno položaj negativnog svetljenja je nakon prelaza bliži katodi, udaljeniji od anode, nego što je bio pre prelaza. Spektralno razložene emisije raspodele svetlosti iz pražnjenja koje su dobijene upotrebom optičkih filtera na 431 i 656 nm takođe ispoljavaju gore opisane osobine. Pojava prelaznog moda u radu pražnjenja je verovatno posledica promene ravnoteže naelektrisanih i ekscitovanih vrsta, proizvoda disocijacije i adsorbovanih vrsta nastalih u pražnjenju.

Ovde predstavljeni izmereni podaci obezbeđuju osnovu za opisivanje proboja u parama tečnosti (vodi i alkoholima) i omogućavaju postavljanje elementarnih testova (*eng. benchmark*) pre prelaska na modelovanje proboja iznad tečnosti, gde bi tečnost mogla da bude jedna od elektroda, i proboja u mehurićima ili direktno u tečnostima. Treba naglasiti da su ovde prikazani rezultati za prinos sekundarnih elektrona određivani za metalne površine koje su saturisane parama ispitivanih tečnosti. Takođe, merenja u našem eksperimentu se preklapaju sa oblašću visokih vrednosti redukovano električnog polja E/N gde se javljaju „runaway“ elektroni i joni. Ova oblast je veoma zanimljiva sa stanovišta mogućeg proboja u samoj tečnosti pod dejstvom brzih nanosekundnih visokonaponskih impulsa. Dodatno, ovde prikazani podaci za jonizacione koeficijente i raspodele emisije iz pražnjenja (ukupne i spektralno razložene uz pomoć optičkih filtera) mogu poslužiti za normiranje setova podataka za sudarne preseke (*engl. cross sections*) i za proračun transportnih koeficijenata elektrona, jona (pozitivnih i negativnih) i brzih neutrala u parama alkohola i vode (Stojanović *et al.*, 2012; Stojanović *et al.*, 2015). U slučaju vodene pare je, u okviru Laboratorije za gasnu elektroniku, urađeno takvo normiranje setova sudarnih preseka, a korišćenjem raspodela za H_α emisiju dobijeni su sudarni preseki za brze vodonikove atome (Stojanović *et al.*, 2016), za koje ranije nije bilo rezultata. Specifičnost našeg eksperimenta, u odnosu na tipične eksperimente sa rojevima dostupne u drugim laboratorijama (npr. *Pulsed Townsend experiment*, *Steady State Townsend experiment*), je u tome što omogućava normiranje i verifikaciju preseka u oblasti većih vrednosti redukovano električnog polja E/N ($\sim$ kTd), koje su najčešće zastupljene u praktičnim primenama. Značaj ovde izloženih rezultata je podržan time što se smatra da na granici gasovite i tečne faze postoje dve međuoblasti (*engl. interface*), pa su shodno tome, naši kvantitativni podaci relevantni za deo oblasti (interfejs) gasovite faze gde je koncentracija pare dominantna u odnosu na okolni gas. Na kraju možemo da zaključimo da će hidratacija elektrona i jona sa površine tečnosti značajno uticati na promenu kinetike proboja, a simim tim i na formiranje i razvoj pražnjenja.

LITERATURA

- Anders A. (2003), *Tracking down the origin of arc plasma Science-II. Early continuous discharges*, IEEE Trans. Plasma Sci. **31**(5), 1060.
- Ando A., Ishikawa K., Kondo H., Tsutsumi T., Takeda K., Ohta T., Ito M., Hiramatsu M., Sekine M. and Hori M. (2018), *Nanographene synthesis employing in-liquid plasmas with alcohols or hydrocarbons*, Japanese Journal of Applied Physics **57**, 026201.
- Antoni D., Zverlov V. and Schwarz W H. (2007), *Biofuels from Microbes*, Applied Microbiology and Biotechnology **77**(1), 23–35.
- Artamonova E., Artamonova T., Beliaeva A., Gorbov D., Khodorkovskii M., Melnikov A., Michael D., Milenin V., Murashov S. and Rakcheeva L. (2008) *Low pressure water vapour discharge as a light source: I. Spectroscopic characteristics and efficiency*, J. Phys. D: Appl. Phys. **41**, 155206.
- Auday G., Guillot P., Galy J. and Brunet H. (1998), *Experimental study of the effective secondary emission coefficient for rare gases and copper electrodes*, J.Appl.Phys. **83**, 5917 – 5921.
- Babaeva Y. N. and Kushner J. M. (2009), *Structure of positive streamers inside gaseous bubbles immersed in liquids*, J. Phys. D: Appl. Phys.**42**, 132003.
- Becker K. H., Schoenbach K. H. and Eden J. G. (2006), *Microplasmas and applications*, J. Phys. D: Appl. Phys. **39**, R55–R70.
- Beenakker C. I. M., De Heer F. J., Krop H. B. and Mohlmann G. R. (1974), *Dissociative excitation of water by electron impact*, Chem. Phys. **6**, 445–54.
- Bernath P. F. (2002), *The spectroscopy of water vapour: Experiment, theory and applications*, Phys. Chem. Chem. Phys. **4**, 1501–1509.
- Bockelée-Morvan D., Moreno R., Crovisier J., Colom P., Lis D. C., Sandqvist A., Boissier J., Despois D. and Milam S. N. (2015), *Ethyl alcohol and sugar in comet C/2014 Q2 (Lovejoy)*, Sci. Adv. **1**(9), e1500863.
- Bogaerts A., Neyts E., Gijbels R. and van der Mullen J. (2002), *Gas discharge plasmas and their applications*, Spectrochim. Acta Part B **57**, 609-658.
- Bošnjaković D., Petrović Z. Lj., White R. D. and Dujko S. (2014), *Boltzmann equation and Monte Carlo studies of electron transport in resistive plate chambers*, J. Phys. D: Appl. Phys. **47**, 435203.
- Bowen R. D. and Maccoll A. (1984), *Low energy, low temperature mass spectra*, Org. Mass Spectrom. **19**, 379. Retrieved 2019. from <https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C71363&Units=SI&Mask=20#Ion-Energetics>
- Brandt K. R. (1987), *Final report on the safety assessment of n-butyl alcohol*, J. Am. Coll. Toxicology **6**(3), 403-424.

- Browne M. W. (1995), Alcohol-Laden Cloud Holds the Story of a Star, The New York Times, Section C, Page 10, viewed 5 April 2018, <<https://www.sciencealert.com/cosmic-cloud-contains-enough-alcohol-to-keep-the-world-world-drinking-for-a-billion-years>>
- Bruggeman P., Schram D., Gonzalez M. A., Rego R., Kong M. G. and Leys C. (2009), *Characterization of a direct dc-excited discharge in water by optical emission spectroscopy*, Plasma Sources Sci. Technol. **18**, 025017 (13pp).
- Bruggeman P. and Leys C. (2009), *Non-thermal plasmas in and in contact with liquids*, J. Phys. D: Appl. Phys. **42**, 053001.
- Bruggeman P. J. and Locke B. R. (2013), *Low Temperature Plasma Technology*, edited by Chu P. K. and Lu X. P. (CRC Press Taylor & Francis Group, Boca Raton, FL, USA).
- Bruggeman P. J., Kushner M., Locke B., Gardeniers H., Graham B., Graves D., Hofman-Caris R., Marić D., Reid J., Ceriani E., Fernandez Rivas D., Foster J., Garrick S., Gorbanev Y., Hamaguchi S., Iza F., Jablonowski H., Klimova E., Krcma F., Kolb J., Lukes P., Machala Z., Marinov I., Mariotti D., Mededovic Thagard S., Minakata D., Neyts E., Pawlat J., Petrović Z. Lj., Pflieger R., Reuter S., Schram D., Schroeter S., Shiraiwa M., Tarabova B., Tsai P., Verlet J., von Woedtke T., Wilson K., Yasui K. (2016), Zvereva G., *Plasma–liquid interactions: a review and roadmap*, Plasma Sources Sci. Technol. **25**, 053002 (59pp).
- Carrozzo F. G. *et al.* (2018), *Nature, formation, and distribution of carbonates on Ceres*, Sci. Adv. **4**, e1701645 (7pp.).
- Charpak G. and Sauli F. (1979), *Multiwire proportional chambers and drift chambers*, Nuclear Instruments and Methods **162**, 405.
- Cottrell T. L. and Walker I. C. (1965), *Drift velocities of slow electrons in polyatomic gases*, Trans. Faraday Soc. **61**, 1585.
- Crompton R. W., Dutton J. and Haydon S. C. (1955), *Growth of Pre-Breakdown Ionization Currents in Hydrogen*, Nature **176**, 1079.
- Crookes W. F. R. S. (1879), *On Radiant Matter*, Journal of the Franklin Institute **108**(5), 305-316.
- Dillon R., Srinivasan S., Aricò A. S. and Antonucci V. (2004), *International activities in DMFC R&D: status of technologies and potential applications*, J. Power Sources **127**, 112–126.
- Donkó Z. (1999), *Modelling of low-current self-generated oscillations in a hollow cathode discharge*, J. Phys. D: Appl. Phys. **32**, 1657.
- Donkó Z. (2000), *Heavy-particle hybrid modeling of transients in a direct-current argon discharge*, J. Appl. Phys. **88**, 2226.
- Donkó Z., Bánó G., Szalai L., Kutasi K., Rózsa K., Pinheiro M. and Pinhão N. (1999), *Investigations on the effect of constriction in the cathode region of argon glow discharges*, J. Phys. D **32**, 2416.
- Donohue D. E., Schiavone J. A. and Freund R. S. (1977), *Molecular dissociation by electron impact: Optical emission from fragments of methane, ethylene, and methanol*, J. Chem. Phys. **67**, 769.

Dortmund Data Bank (DDB) (1989), *Saturated Vapor Pressure* [Online], Dostupno na: <http://ddbonline.ddbst.com/AntoineCalculation/AntoineCalculationCGI.exe>, Preuzeto 2. aprila 2019. sa sajta: <http://ddbonline.ddbst.com/AntoineCalculation/AntoineCalculationCGI.exe>

Druyvesteyn M. J. and Penning F. M. (1940), *The Mechanism of Electrical Discharges in Gases of Low Pressure*, Rev. Mod. Phys. **12**, 87-174.

Dujko S., White R. D. and Petrović Z. Lj. (2008), *Monte carlo studies of non-conservative electron transport in the steady-state Townsend experiment*, J. Phys. D: Appl. Phys. **41**, 245205.

Faure A., Hily-Blant P., Rist C., Pineau des Forêts G., Matthews A. and Flower D. R. (2019), *The ortho-to-para ratio of water in interstellar clouds*, Monthly Notices of the Royal Astronomical Society **487**(3), 3392–3403.

Fazekas P., Keszler A. M., Bódis E., Drotár E., Klébert S., Károly Z. and Szépvölgyi J. (2015), *Optical emission spectra analysis of thermal plasma treatment of poly(vinyl chloride)*, Open Chem. **13**, 549–556.

Folkard M. A. and Haydon S. C. (1973), *Experimental investigations of ionization growth in nitrogen. I*, J. Phys. B: At. Mol. Phys. **6**, 214.

Fonte P., Mangiarotti A., Botelho S., Goncalves J. A. C., Ridenti M. A. and Bueno C. C. (2010), *A dedicated setup for the measurement of the electron transport parameters in gases at large electric fields*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **613**, 40-45.

Foster J. E., Sommers B. S., Gucker S. N., Blankson I. M. and Adamovsky G. (2012), *Perspectives on the Interaction of Plasmas With Liquid Water for Water Purification*, IEEE Trans. Plasma Sci. **40**, 1311-1323.

Francis G. (1956), *Handbuch der Physik* (Springer, Berlin, Germany), Vol. **22**, pp. 53-203.

Fridman G., Friedman G., Gutsol A., Shekhter A. B., Vasilets V. N. and Fridman A. (2008), *Applied Plasma Medicine*, Plasma Proc. Polym. **5**, 503-533.

Friedrich J. F., Mix N., Schulze R. D., Meyer-Plath A., Ranjit Joshi R. and Wettmarshausen S. (2008), *New Plasma Techniques for Polymer Surface Modification with Monotype Functional Groups*, Plasma Proc. Polym. **5**, 407.

Fumagalli F., Kylián O., Amato L., Hanuš J. and Rossi F. (2012), *Low pressure water vapour plasma treatment of surfaces for biomolecules decontamination*, J. Phys. D: Appl. Phys. **45**(13), 135203.

Gaydon A. G. (1974), *The Spectroscopy of Flames* (Chapman and Hall, London, United Kingdom).

Ghezelbash M., Majd A. E., Darbani S. M. R., Mousavi S. J., Ghasemi A. and Tehrani M. K. (2017), *Spatial investigation of plasma emission from laminar diffusion methanol, ethanol, and n-propanol alcohol flames using LIBS method*, Appl. Phys. B **123**, 36.

Gott J.R., Jurić M., Schlegel D., Hoyle F., Vogeley M., Tegmark M., Bahcall N. and Brinkmann J. (2005), *A map of the Universe*, Astrophys. J. **624**, 463.

- Graham, IV E., James D. R., Keever W. C., Albritton D. L. and McDaniel E. W. (1973), *Mobilities and longitudinal diffusion coefficients of massidentified hydrogen ions in H₂ and deuterium ions in D₂ gas*, J. Chern. Phys. **59**(7), 3477.
- Grey D. J., Sood R. K. and Manchanda R. K. (2004), *Resolution and spectral characteristics of ultra-high pressure proportional counters using various quench gases*, Nucl. Instr. Meth. A **527**, 493.
- Gurnett D. A. and Bhattacharjee A. (2005), *Introduction to Plasma Physics: With Space and Laboratory Applications* (Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom).
- Hackam R. (1971), *Breakdown potential of water vapour between plane parallel electrodes*, J. Phys. D: Appl. Phys. **4**, 1134-1139.
- Hagino T., Kondo H., Ishikawa K., Kano H., Sekine M. and Hori M. (2012), *Ultrahigh-Speed Synthesis of Nanographene Using Alcohol In-Liquid Plasma*, Appl. Phys. Express **5**, 035101.
- Harilal S. S. and Harilal B. (2002), *Intensity Calibration of Acton SpectraPro-500i Spectrograph and ICCD detector*, University of California, San Diego Laser Plasma and Laser Matter Interactions Laboratory Internal Lab Report.
- Hartman P., Donko Z., Bano G., Szalai L. and Rozsa K. (2000), *Effect of different elementary processes on the breakdown in low-pressure helium gas*, Plasma Sources Sci. Technol. **9**, 183.
- Hartmann P. and Donko Z. (2004), *Basic phenomena in low-pressure noble gas discharges: The role of heavy particle induced processes*, Acta Phys. Hung. B **20**, 193-217.
- Hasegawa H., Sato Y., Murai K., Shimozuma M. and Tagashira H. (1985), *Measurement of the ionisation coefficients in binary and ternary mixtures of CO₂, N₂ and He*, J. Phys. D: Appl. Phys. **18**, 1361-1370.
- Hasegawa H., Date H. and Shimozuma M. (2007), *Electron swarm parameters in water vapour*, J. Phys. D: Appl. Phys. **40**, 2495-8.
- Hasegawa H. and Date H. (2015), *Study of electron transport in hydrocarbon gases*, Journal of Applied Physics **117**, 133302.
- Hayashi N, Tsutsui S., Tomari T. and Guan W. (2008), *Sterilization of Medical Equipment Using Oxygen Radicals Produced by Water Vapor RF Plasma*, IEEE Trans. Plasma Sci. **36**, 1302-1303.
- Hernández-Ávila J. L., Basurto E., Juárez A. M. and de Urquijo J. (2013), *Electron swarm coefficients in He-H₂O mixtures*, Proc. 31st ICPIG (Granada, Spain) PS2-008.
- Hirish M. N. and Oskam H. J. (1978), *Gaseous Electronics: Volume I Electrical Discharges* (Academic Press INC, New York, USA).
- Huxley L. G. H. and Crompton R. W. (1974), *The Diffusion and Drift of Electrons in Gases* (Wiley-Interscience, New York, USA)
- Ishijima T., Nosaka K., Tanaka Y., Uesugi Y., Goto Y. and Horibe H. (2013), *A high-speed photoresist removal process using multibubble microwave plasma under a mixture of multiphase plasma environment*, Appl. Phys. Lett. **103**, 142101.

- Itikawa Y. and Mason N. (2005), *Cross Sections for Electron Collisions with Water Molecules*, J. Phys. Chem. Ref. Data, **34**(1), 1–20.
- Jelenković B. M. and Phelps A. V. (1987), *Excitation of N₂ in dc electrical discharges at very high E/n*, Phys. Rev. A **36**, 5310.
- Jelenković B. M., Rózsa K. and Phelps A. V. (1993), *Oscillations of low-current electrical discharges between parallel-plane electrodes. II. Pulsed discharges in H₂*, Phys. Rev. E **47**, 2816.
- Joshi R., Friedrich J. and Wagner M. (2011), *Role of Hydrogen Peroxide in Selective OH Group Functionalization of Polypropylene Surfaces using Underwater Capillary Discharge*, J. Adhes. Sci. Technol. **25**, 283–305.
- Jovanović J. V., Vrhovac S. B. and Petrović Z. Lj. (2004), *Application of Blanc's law at arbitrary electric field to gas density ratios*, Euro. Phys. J. D **28**, 91-99.
- Kamarudin M. Z. F, Kamarudin S. K., Masdar M. S. and Daud W. R. W. (2013), *Direct ethanol fuel cells*, International journal of hydrogen energy **38**, 9438-9453.
- Kessler M.F. (2002), *The Infrared Space Observatory (ISO) Mission*, Adv. Space Res. **30**(9), 1957-1965.
- Klyarfel'd B. N., Guseva L. G. and Pokrovskaya-Soboleva A. S.(1966), *Glow Discharge at Low Pressures and Current Densities up to 0.1 A/cm²*, Zhurnal Tekhnicheskoi Fiziki **306**, 704 (Engl. Transl.: Soviet Physics – Technical Physics, **11**, 520).
- Kramida A., Ralchenko Yu., Reader J. and NIST ASD Team (2018), *NIST Atomic Spectra Database* (ver. 5.6.1) [Online], Dostupno na: <https://physics.nist.gov/asd> National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, DOI: <https://doi.org/10.18434/T4W30F>, Preuzeto 2019. sa sajta https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html
- Kuschel T., Stefanović I., Škoro N., Marić D., Malović G., Winter J. and Petrović Z. Lj. (2011), *Spatiotemporal Profile of Emission From Oscillating DC Microdischarges*, IEEE Transactions on Plasma Science **39**, 2692.
- Kushner M. J. (2009), *Hybrid modelling of low temperature plasmas for fundamental investigations and equipment design*, J. Phys. D: Appl. Phys. **42**, 194013.
- Langmuir I. (1928), *Oscillations in Ionized Gases*, Proc. Natl. Acad. Sci. U S A **14**(8), 627-637.
- Lavin G. I. and Stewart F. B. (1929), *Production of Hydroxyl by Water Vapor Discharge*, Proc. Nat. Ac. Sci. **15**, 829.
- Liebson S. H. (1947), *The Discharge Mechanism of Self-Quenching Geiger-Mueller Counters*, Phys. Rev. **72**, 602.
- Lington A. W. and Bevan C. (1994), *Alcohols* (pp. 2585-2760) in *Patty's Industrial Hygiene and Toxicology* (4th ed.) Clayton G. D. and Clayton F. E. (Eds.) (New York: Wiley-Interscience, USA).
- Liu F., Wang W., Wang S., Zheng W. and Wang Y. (2007), *Diagnosis of OH radical by optical emission spectroscopy in a wire-plate bi-directional pulsed corona discharge*, Journal of Electrostatics **65**, 445–451.

- Lisovski V. A., Derevianko V. A. and Yegorenkov V. D. (2015), *DC breakdown in low-pressure CF₄*, J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 475201 (7pp).
- Levko D. S., Tsymbalyuk A. N. and Shchedrin A. I. (2012), *Plasma kinetics of ethanol conversion in a glow discharge*, Plasma Physics Reports **38**, 913–921.
- Lowke J. J. and Rees J. A. (1963), *The Drift Velocities of Free and Attached Electrons in Water Vapour*, Aust. J. Phys. **16**, 447–53.
- Makabe T. and Petrović Z. Lj. (2006), *Plasma electronics: Applications in Microelectronic Device Fabrication* (CRC Press Taylor & Francis Group, Boca Raton, FL, USA).
- Manukonda R., Dillon R. and Furtak T. (1995), *Optical emission spectroscopy of H₂–CO and H₂O–CH₃OH plasmas for diamond growth*, Journal of Vacuum Science & Technology A **13**, 1150–1154.
- Malović G. (1999), Doktorska disertacija: *Merenja i analiza koeficijenata ekscitacije u inertnim gasovima i metanu* (Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu).
- Malović G., Strinić A., Živanov S., Marić D. and Petrović Z. Lj. (2003), *Measurements and analysis of excitation coefficients and secondary electron yields in Townsend dark discharges*, Plasma Sources Sci. Technol. **12**, S1–S7.
- Marić D. (2002), Magistarska teza: *Skaliranje osobina abnormalnog tinjavog pražnjenja* (Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu).
- Marić D., Kutasi K., Malović G., Donkó Z. and Petrović Z. Lj. (2002), *Axial emission profiles and apparent secondary electron yield in abnormal glow discharges in argon*, Eur. Phys. J. D **21**, 73–81.
- Marić D., Hartmann P., Malović G., Donkó Z. and Petrović Z. Lj. (2003), *Measurements and modelling of axial emission profiles in abnormal glow discharges in argon: heavy-particle processes*, J. Phys. D: Appl. Phys. **36**, 2639.
- Marić D., Radmilović-Radenović M. and Petrović Z. Lj. (2005), *On parametrization and mixture laws for electron ionization coefficients*, Eur. Phys. Jour. D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics **35**, 313.
- Marić D. (2006), Doktorska disertacija: *Prostorna struktura i osnovni kinetički procesi u gasnim pražnjenjima na niskom pritisku* (Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu).
- Marić D., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2007), *Spatiotemporal Development of Low-Pressure Gas Discharges*, J. Phys.: Conf. Ser. **86**, 012009.
- Marić D., Malović G., Radmilović-Radenović M. and Petrović Z. Lj. (2008), *Space-time resolved kinetics of low-pressure breakdown*, J. Phys.: Conf. Ser. **115**, 012001.
- Marić D., Škoro N., Malović G., Graham W. G. and Petrović Z. Lj. (2009), *Low Pressure Breakdown in Water Vapour*, 29th ICPIG (Cancun, Mexico) PA8-5.
- Marić D., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2009), *Space-time development of low-pressure gas breakdown*, Plasma Sources Sci. Technol. **18**, 034009.

- Marić D., Škoro N., Maguire P. D., Mahony C. M. O., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2012), *On the possibility of long path breakdown affecting the Paschen curves for microdischarges*, Plasma Sources Sci. Technol. **21**(3), 035016 (6pp).
- Marić D., Savić M., Sivoš J., Škoro N., Radmilović-Radjenović M., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2014), *Gas breakdown and secondary electron yields*, Eur. Phys. J. D **68**, 155.
- Marić D., Sivoš J., Škoro N., Stojanović V., Marjanović S., Banković A., Dujko S., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2016), *Atomic and Molecular Processes of Interest for Modelling of Discharges in Liquids*, Gordon Research Conference on Plasma Processing Science: Plasmas with Complex Interactions – Exploiting the Non-Equilibrium (Proctor Academy in Andover NH, United States)
- Martin J. C. (1996), *J.C. Martin on Pulsed Power*, edited by Martin T.H., Guenther A.H. and Kristiansen M. (Plenum Press, c1996, New York, USA).
- Mariotti D., Patel J., Svrcek V. and Maguire P. (2012), *Plasma-Liquid Interactions at Atmospheric Pressure for Nanomaterials Synthesis and Surface Engineering*, Plasma Proc. Polym. **9**, 1074-1085.
- Maruyama S., Kojimaa R., Miyauchia Y., Chiashia S. and Kohnob M. (2002), *Low-temperature synthesis of high-purity single-walled carbon nanotubes from alcohol*, Chem. Phys. Lett. **360**, 229–234.
- Matsushima M., Noda M., Yoshida T., Kato H., Kalita G., Kizuki T., Uchida H., Umeno M. and Wakita K. (2013), *Formation of graphene nano-particle by means of pulsed discharge to ethanol*, J. Appl. Phys. **113**, 114304.
- Mašláni A. and Sember V. (2014), *Emission Spectroscopy of OH Radical in Water-Argon Arc Plasma Jet*, Journal of Spectroscopy **2014**, 1–6.
- Menes M. (1959), *Buildup of a Discharge in Argon*, Phys. Rev. **116**, 481.
- Miller T. M., Moseley J. T., Martin D. W. and McDaniel E. W. (1968), *Reactions of H^+ in H_2 and D^+ in D_2 ; Mobilities of Hydrogen and Alkali Ions in H_2 and D_2 Gases*, Phys. Rev. **173**, 115.
- Millar T. J., Macdonald G. H. and Habing R. J. (1995), *The detection of hot ethanol in G34.3+0.15*, Mon. Not. R. Astron. Soc. **273**, 25-29.
- Morgan W. L. and Rosocha L. A. (2012), *The Physics and Plasma Chemistry of an RF Needle in a Saltwater Aerosol*, IEEE Trans. Plasma Science **40**, 3174–84.
- NASA's Jet Propulsion Laboratory (2019), *Photojournal (Mission Dawn–Ceres)* [online], Dostupno na: <https://solarsystem.nasa.gov/planets/dwarf-planets/ceres/overview/>, Preuzeto 25. decembra 2019. sa sajta <https://photojournal.jpl.nasa.gov/keywords/dp?subselect=Target%3ACeres%3A>
- Nikolić M. M., Đorđević A., Stefanović I., Vrhovac S. and Petrović Z. Lj. (2003), *Semianalytical models of volt-ampere characteristics of diffuse low-current low-pressure discharges*, IEEE Trans. Plasma Sci. **31**, 717.
- Oh J. S., Kawamura K., Pramanik B. K. and Hatta A. (2009) *Investigation of Water-Vapor Plasma Excited by Microwaves as Ultraviolet Light Source*, IEEE Trans. Plasma Sci. **37**, 107-112.

- Paschen F. (1889), *Über die zum Funkenübergang in Luft, Wasserstoff und Kohlensäure bei verschiedenen Drucken erforderliche Potentialdifferenz*, Wied. Ann. **37**, 69-96.
- Perrin J. B. (1895), *Nouvelles propriétés des rayons cathodiques*, C. R. T. **121**, 1130 – 1134.
- Petitpas G., Rollier J. D., Darmonb A., Gonzalez-Aguilar J., Metkemeijer R. and Fulcheri L. (2007), *A comparative study of non-thermal plasma assisted reforming technologies*, Int. J. Hydrogen Energy **32**, 2848-2867.
- Petrović Z. Lj. (1985), *Doktorska disertacija: Low energy electron transport coefficients and scattering cross sections obtained using swarm methods* (Australian National University).
- Petrović Z. Lj. (1986), *The Determination of the Diffusion Coefficient for Thermal Electrons in Water Vapour by the Use of a Modified Blanc's Law Procedure*, Australian Journal of Physics **39**, 249.
- Petrović Z. Lj., Jelenković B. M. and Phelps A. V. (1992), *Excitation by and Surface Reflection of Fast Hydrogen Atoms in Low-Pressure Hydrogen Discharges*, Phys. Rev. Lett. **68**, 325.
- Petrović Z. Lj. and Phelps A. V. (1993), *Oscillations of low-current electrical discharges between parallel-plane electrodes. I. dc discharges*, Phys. Rev. E **47**, 2806.
- Petrović Z. Lj. and Phelps A. V. (1996), *Constrictions in cathode-dominated, low-pressure argon discharges*, IEEE Trans. Plasma Sci. **24**, 107.
- Petrović Z. Lj. and Phelps A. V. (1997), *Temporal and constriction behaviour of low-pressure cathode-dominated argon discharges*, Phys. Rev. E **56**, 5920.
- Petrović Z. Lj., Stefanović I., Vrhovac S. and Živković J. (1997), *Negative Differential Resistance, Oscillations and Constrictions of Low Pressure, Low Current Discharges*, J. Phys. IV France **7** (C4), C4-341 – C4-352.
- Petrović Z. Lj. and Stojanović V. (1998), *The role of heavy particles in kinetics of low current discharges in argon at high electric field to gas number density ratio*, J. Vacuum Sci. Technol. A **16**, 329–336.
- Petrović Z. Lj., Škoro N., Marić D., Mahony C. M. O., Maguire P. D., Radmilović-Radenović M. and Malović G. (2008), *Breakdown, scaling and volt-ampere characteristics of low current micro-discharges*, J. Phys. D: Appl. Phys. **41**, 194002.
- Petrović Z. Lj. and Phelps A. V. (2009), *Energetic ion, atom, and molecule reactions and excitation in low-current H₂ discharges: Spatial distributions of emissions*, Phys. Rev. E **80**, 016408.
- Petrović Z. Lj., Maguire P., Radmilović-Radenović M., Radetić M., Puač N., Marić D., Mahony C. and Malović G. (2010), 'On Application of Plasmas in Nanotechnologies' in A. Korkin, P. S. Krstić and J. C. Wells (eds), *Nanotechnology for Electronics, Photonics, and Renewable Energy*, Springer New York Dordrecht Heidelberg London, 85-130.
- Petrović Z. Lj., Marić D., Savić M., Marjanović S., Dujko S. and Malović G. (2017), *Using swarm models as an exact representation of ionized gases*, Plasma Process Polym. **14**, 1600124.

- Phelps A. V. (1990), *Cross Sections and Swarm Coefficients for H^+ , H_2^+ , H_3^+ , H , H_2 , and H^- in H_2 for Energies from 0.1 eV to 10 keV*, J. Phys. Chem. Ref. Data **19**(3), 653.
- Phelps A. V., Petrović Z. Lj. and Jelenković B. M. (1993), *Oscillations of low-current electrical discharges between parallel-plane electrodes. III. Models*, Phys. Rev. E **47**, 2825.
- Phelps A. V., Pitchford L. C., Pedoussat C. and Donko Z. (1999), *Use of secondary-electron yields determined from breakdown data in cathode-fall models for Ar*, Plasma Sources Sci. Technol. **8**, B1.
- Phelps A. V. and Petrović Z. Lj. (1999), *Cold-cathode discharges and breakdown in argon: surface and gas phase production of secondary electrons*, Plasma Sources Sci. Technol. **8**, R21.
- Phelps A. V. (2001), *Abnormal glow discharges in Ar: experiments and models*, Plasma Sources Sci. Technol. **10**, 329-343.
- Phelps A. V. (2009), *Energetic ion, atom, and molecule reactions and excitation in low-current H_2 discharges: Model*, Physical Review E **79**, 066401.
- Planck Collaboration (2015), *Planck 2015 results. XIII. Cosmological parameters*, Astronomy & Astrophysics **594**, A13.
- Poncin-Epaillard F. and Aouinti M. (2002), *Characterization of CO_2 Plasma and Interactions with Polypropylene Film*, Plasmas and Polymers **7**, 1-17.
- Prasad A. N. and Craggs J. D. (1960), *Measurement of Ionization and Attachment Coefficients in Humid Air in Uniform Fields and the Mechanism of Breakdown*, Proc. Phys. Soc. **76**, 223-232.
- Puač N., Miletić M., Mojović M., Popović-Bijelić A., Vuković D., Miličić B., Maletić D., Lazović S., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2015), *Sterilization of bacteria suspensions and identification of radicals deposited during plasma treatment*, Open Chem. **13**, 332-338.
- Raether H. (1937), *Untersuchung der Elektronenlawine mit der Nebelkammer*, Zeitschrift Für Physik, **107**, 91-110.
- Raizer Y. P. (1991), *Gas Discharge Physics* (Springer, Berlin, Germany).
- Raju G. G. (2005), *Gaseous Electronics: Theory and Practice* (CRC Press, Taylor & Francis Group, Boca Raton, Florida, USA).
- Raju G. G. (2012), *Gaseous Electronics: Tables, Atoms and Molecules* (CRC Press, Taylor & Francis Group, Boca Raton, Florida, USA).
- Raponi A., De Sanctis M. C., Frigeri A., Ammannito E., Ciarniello M., Formisano M., Combe J.-P., Magni G., Tosi F., Carrozzo F. G., Fonte S., Giardino M., Joy S. P., Polanskey C. A., Rayman M. D., Capaccioni F., Capria M. T., Longobardo A., Palomba E., Zambon F., Raymond C. A. and Russell C. T. (2018), *Variations in the amount of water ice on Ceres' surface suggest a seasonal water cycle*, Science Advances **4**(3), 3757 (6pp.).
- Raspopović Z. M., Sakadžić S., Bzenić S. and Petrović Z. Lj. (1999), *Benchmark Calculations for Monte Carlo Simulations of Electron Transport*, IEEE Trans. Plasma Sci. **27**, 1241-1248.

- Ristivojević Z. and Petrović Z. Lj. (2012), *A Monte Carlo simulation of ion transport at finite temperatures*, Plasma Sources Sci. Technol. **21**, 035001.
- Reyes P. G., Gómez A., Martínez H., Flores O., Torres C. and Vergara J. (2016), *Characterization of Ethanol Plasma Glow Discharge, Decomposition in Several Species and Solid Film Formation*, IEEE Transactions on Plasma Science **44**, 2995-3000.
- Robson R. E. (1986), *Physics of reacting particle swarms in gases*, J.Chem.Phys. **85**, 4486.
- Robson R. E. (2006), *Introductory Transport Theory for Charged Particles in Gases* (World Scientific Publishing Company, Singapore).
- Rosen B. (1970), *Spectroscopic data relative to diatomic molecules* (Pergamon Press, Oxford).
- Rossi F., Kylián O., Rauscher H., Hasiwa M. and Gilliland D. (2009), *Low pressure plasma discharges for the sterilization and decontamination of surfaces*, New Journal of Physics **11**, 115017 (33pp).
- Sándor Z (2002),
[https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Kat%C3%B3dsugarak_m%C3%A1gneses_mez%C5%91ben\(2\).jpg](https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Kat%C3%B3dsugarak_m%C3%A1gneses_mez%C5%91ben(2).jpg)
- Samukawa S., Hori M., Rauf S., Tachibana K., Bruggeman P., Kroesen G., Whitehead J. Ch., Murphy A. B., Gutsol A. F., Starikovskaia S., Kortshagen U., Boeuf J. P., Sommerer T. J., Kushner M. J., Czarnetzki U. and Mason N. (2012), *The 2012 Plasma Roadmap*, J. Phys. D: Appl. Phys. **45**, 253001.
- Sato M., Ohgiyama T. and Clements J. S (1996), *Formation of chemical species and their effects on microorganisms using a pulsed high-voltage discharge in water*, IEEE Trans. Ind. Appl. **32**, 106-112.
- Schlumbohm H. (1959), *Electronen – stozionisierungs coefficient α für organische dämpfe und sauerstoff (aus der trägerstatistic von elektronenlawinen)*, Z. Angew. Physik **11**, 156-159.
- Schoenbach K. H, Moselhy M. and Shi W. (2004), *Self-organization in cathode boundary layer microdischarges*, Plasma Sources Sci. Technol. **13**, 177.
- Schoenbach Karl H. and Becker Kurt (2016), *20 years of microplasma research: a status report*, Eur. Phys. J. D **70**: 29.
- Sekine Y., Matsukata M., Kikuchi E., Kado S. and Haga F. (2004), *Hydrogen Production from Ethanol Using Low Energy Pulse Discharge at Ambient Temperature*, Prepr. Pap.-Am. Chem. Soc., Div. Fuel Chem. **49**, 914-915.
- Shirai N., Ichinose K., Uchida S. and Tochikubo F. (2011), *Influence of liquid temperature on the characteristics of an atmospheric dc glow discharge using a liquid electrode with a miniature helium flow*, Plasma Sources Sci. Technol. **20**, 034013.
- Sivoš J., Marić D, Škoro N., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2013), *Breakdown in water vapour and ethanol vapour: heavy particle processes*, 3rd National Conference on Electronic, Atomic, Molecular and Photonic Physics (Belgrade, Serbia) 21-24.

- Sivoš J., Škoro N., Marić D., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2015), *Breakdown and dc discharge in low-pressure water vapour*, J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 424011.
- Sivoš J., Škoro N., Marić D., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2016), *Analysis of Transit Time of Ions in Low - Current DC Discharge in Water Vapour*, 28th SPIG (Belgrade, Serbia) 316-319.
- Sivoš J., Škoro N., Marić D., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2016), *Emission Properties of Low-current dc Discharges in Alcohol Vapours*, COST TD1208 "International Conference on Electrical Discharges with liquids (ICEDL)" (Turkey, Kocaeli) 50.
- Sivoš J., Škoro N., Marić D., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2018), *Discharges in alcohol vapours at low pressures*, 22nd International Conference on Gas Discharges and their Applications (GD) (Novi Sad, Serbia) 327-330.
- Sivoš J., Marić D., Škoro N., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2018), *Volt-ampere characteristics and abnormal glow discharges in methanol and ethanol vapours*, 29th SPIG (Belgrade, Serbia) 222-225.
- Sivoš J., Marić D., Škoro N., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2019), *DC discharge in low-pressure ethanol vapour*, Plasma Sources Sci. Technol. **28**, 055011 (8pp).
- Sivoš J., Marić D., Škoro N., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2019), *Ionization Coefficients in Low-Pressure DC Discharge in Vapours of Alcohols*, XX International Workshop on Low-Energy Positron and Positronium Physics, XXI International Symposium on Electron-Molecule Collisions and Swarms, V Workshop on Non-Equilibrium Processes (Belgrade, Serbia) 115.
- Sivoš J., Marić D., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2020), *Low-pressure DC breakdown in alcohol vapours*, Eur. Phys. J. D **74**: 64 (10pp).
- Smoluch M., Mielczarek P. and Silberring J. (2016), *Plasma-based ambient ionization mass spectrometry in bioanalytical sciences*, Mass Spectrom. Rev. **35**, 22–34.
- Sobacchi M. G., Saveliev A. V., Fridman A. A., Kennedy L. A., Ahmed S. and Krause T. (2002), *Experimental Assessment of a Combined Plasma/Catalytic System for Hydrogen Production via Partial Oxidation of Hydrocarbon Fuels*, International Journal of Hydrogen Energy **27**, 635-642.
- Sonnenfroh D. M., Caledonia G. E. and Lurie J. (1993), *Emission from OH(A) produced in the dissociative recombination of H₂O⁺ with electrons*, J. Chem. Phys. **98**, 2872–81.
- Stalder K. R., Nersisyan G. and Graham W. G. (2006), *Spatial and temporal variation of repetitive plasma discharges in saline solutions*, J. Phys. D: Appl. Phys. **39**, 3457.
- Steen M. L., Hymas L., Havey E. D., Capps N. E., Castner D. G. and Fisher E. R. (2001), *Low temperature plasma treatment of asymmetric polysulfone membranes for permanent hydrophilic surface modification*, J. Membr. Sci. **188**, 97-114.
- Steen M. L., Jordan A. C. and Fisher E. R. (2002), *Hydrophilic modification of polymeric membranes by low temperature H₂O plasma treatment*, J. Membr. Sci. **204**, 341-357.
- Stefanović I. and Petrović Z. Lj. (1997), *Volt Ampere Characteristics of Low Current DC Discharges in Ar, H₂, CH₄ and SF₆*, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 4728.
- Stefanović I. (1998), Doktorska disertacija: *Osobine difuznih električnih pražnjenja u gasovima na niskom pritisku u režimu niskih struja* (Elektrotehnički fakultet, Univerzitet u Beogradu).

- Stefanović I., Berndt J., Marić D., Šamara V., Radmilović-Radenović M., Petrović Z. Lj., Kovačević E. and Winter J. (2006), *Secondary electron emission of carbonaceous dust particles*, Phys. Rev. E **74**, 026406.
- Stefanović I., Škoro N., Marić D. and Petrović Z. Lj. (2010), *Chaotic behaviour of dc microdischarges with parallel-plate geometry*, 20th ESCAMPIG (Novi Sad, Serbia) P3.41.
- Stefanović I., Kuschel T., Škoro N., Marić D., Petrović Z. Lj. and Winter J. (2011), *Oscillation modes of direct current microdischarges with parallel-plate geometry*, Journal of Applied Physics **110**, 083310.
- Stocker R., Karl J. and Hein D., in *Proceedings of the PSFVIP-3 in Maui, Hawaii, 2001: OH LIF in Atmospheric Pressure Flames Excited by a Tunable OPO (Type II) Laser System* (University of Hawaii Maui College, Maui, 2001) F3003 1-16.
- Stojanović V. D. and Petrović Z. Lj. (1998), *Comparison of the results of Monte Carlo simulations with experimental data for electron swarms in N₂ from moderate to very high electric field to gas density ratios (E/N)*, J. Phys. D **31**, 834-846.
- Stojanović V., Sivoš J., Marć D., Škoro N., Petrović Z. Lj. (2012), *Monte Carlo simulation of electron transport in H₂O vapour*, 26th SPIG (Zrenjanin, Serbia) 35-38.
- Stojanović V. D., Raspopović Z. M., Marić D. and Petrović Z. Lj. (2015), *Cross sections and transport of O⁻ in H₂O vapour at low pressures*, Eur. Phys. J. D **69**, 63.
- Stojanović V., Škoro N., Sivoš J., Malović G., Marić D. and Petrović Z. Lj. (2016), *Modeling emission from water vapor dc discharge at low pressure*, 28th SPIG (Belgrade, Serbia) 328-331.
- Suda Y., Okita A., Takayama J., Oda A, Sugawara H., Sakai Y., Oke S. and Takikawa H. (2009), *Carbon-Nanotube Growth in Alcohol-Vapor Plasma*, IEEE Trans. Plasma Sci. **37**, 1150-1155.
- Suzuki T., Saburi T., Tokunami R., Murata H. and Fujii Y. (2006), *Dominant species for oxidation of stainless-steel surface in water vapor plasma*, Thin Solid Films **506–507**, 342-345.
- Škoro N., Marić D. and Petrović Z. Lj. (2008), *Effective Discharge Area of Nonequilibrium DC Discharges*, IEEE Trans. Plasma Sci. **36**, 994-995.
- Škoro N., Marić D., Malović G., Graham W. G. and Petrović Z. Lj. (2011), *Electrical Breakdown in Water Vapor*, Phys. Rev. E **84**, 055401
- Škoro N. (2012), Doktorska disertacija: *Proboj i formiranje gasnih pražnjenja od standardnih do mikroskopskih dimenzija* (Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu).
- Škoro N., Marić D., Stojanović V., Sivoš J., Malović G. and Petrović Z. Lj. (2016), *Heavy-particle collisions in water vapour discharges at low pressures*, 23rd ESCAMPIG (Bratislava, Slovakia) 406-409.
- Tennyson J., Rahimi S., Hill C., Tse L., Vibhakar A., Akello-Egwel D., Brown D. B., Dzarasova A., Hamilton J. R., Jaksch D., Mohr S., Wren-Little K., Bruckmeier J., Agarwal A., Bartschat K., Bogaerts A., Booth J.-P., Goeckner M. J., Hassouni K., Itikawa Y., Braams B. J., Krishnakumar E., Laricchiuta A., Mason N. J., Pandey S., Petrović Z. Lj., Pu Y.-K., Ranjan A., Rauf S., Schulze J.,

- Turner M. M., Ventzek P., Whitehead J. C. and Yoon J.-S. (2017), *QDB: a new database of plasma chemistries and reactions*, Plasma Sources Sci. Technol. **26**, 055014.
- Tereszczuk K., Bernath P. F., Zobov N. F., Shirin S. V., Polyansky O. L., Libeskind N. I., Tennyson J. and Wallace L. (2002), *Laboratory spectroscopy of hot water near 2 microns and sunspot spectroscopy in the H-band region*, The Astrophysical Journal **577**, 496–500.
- Turner C., Španěl P. and Smith D. (2006), *A longitudinal study of methanol in the exhaled breath of 30 healthy volunteers using selected ion flow tube mass spectrometry*, SIFT-MS. Physiological Measurement **27**(7), 637–648.
- Turner C., Španěl P. and Smith D. (2006), *A longitudinal study of ethanol and acetaldehyde in the exhaled breath of healthy volunteers using selected-ion flow-tube mass spectrometry*, Rapid Commun. Mass Spectrom. **20**, 61–68.
- de Urquijo J., Bekstein A., Ruiz-Vargas G. and Gordillo-Vázquez F. J. (2013), *Drift and clustering of daughter negative ions of H₂O in parent gas*, J. Phys. D: Appl. Phys. **46**, 035201.
- Va'vra J. (2003), *Physics and chemistry of aging – early developments*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **515**, 1-14.
- von Engel A. (1957), *Biographical memoirs John Sealy Edward Townsend, 1868-1957*, Biogr. Mems Fell. R. Soc. **3**, 256-272.
- von Engel A. (1965), *Ionized Gases* (The Clarendon Press Oxford, Oxford, United Kingdom).
- Vrhovac S. B. and Petrović Z. Lj. (1996), *Momentum – Transfer Theory of Non – Conservative Charged Particle Transport in Mixtures of Gases: General Equations and Negative Differential Conductivity*, Phys. Rev. E **53**, 4012-4025.
- Zavilopulo A. N., Chipev F. F. and Kokhtych L. M. (2005), *Dissociative ionization of ethanol, methanol and butanol molecules*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B **233**, 302–306.
- Zuckerman B., Turner B. E., Johnson D. R., Clark F. O., Lovas F. J., Fourikis N., Palmer P., Morris M., Lilley A. E., Ball J. A., Gottlieb C. A., Litvak M. M. and Penfield H. (1975), *Detection of interstellar trans-ethyl alcohol*, Astrophysical Journal **196**, L99-L102.
- Živanov S., Živković J., Stefanović I., Vrhovac S. and Petrović Z. Lj. (2000), *Transition from diffuse to constricted low current discharge in argon*, Eur. Phys. J. AP **11**, 59-69.
- Živanov S. (2000), *Magistarska teza: Uticaj sekundarne emisije elektrona na proboj u gasovima* (Fizički fakultet, Univerzitet u Beogradu).
- Qureshi N. and Ezeji T. C. (2008), *Butanol, 'a superior biofuel' production from agricultural residues (renewable biomass): recent progress in technology*, Biofuels, Bioprod. Bioref. **2**:319–330.
- Wang, Z., Feng, C., Gao, L., & Ding, H. (2018). *Pattern Transition in a Surface Microdischarge in Atmospheric-Pressure Helium*. IEEE Transactions on Plasma Science, **46**(8), 2761–2765.

- Webb M. R. and Hieftje G. M. (2009), *Spectrochemical Analysis by Using Discharge Devices with Solution Electrodes*, Anal. Chem. **81**, 862-867.
- Weikart C. M. and Yasuda H. K. (2000), *Modification, degradation, and stability of polymeric surfaces treated with reactive plasmas*, J. Polym. Sci. A **38**, 3028-3042.
- White R. D. and Robson R. E. (2011), *Multiterm solution of a generalized Boltzmann kinetic equation for electron and positron transport in structured and soft condensed matter*, Phys. Rev. E **84**, 031125.
- White R. D., Robson R. E., Nicoletopoulos P. and Dujko S. (2012), *Periodic structures in the Franck-Hertz experiment with neon: Boltzmann equation and Monte-Carlo analysis*, Eur.Phys. J. D **66**, 117.
- Watson W. W. (1924), *The Emission Spectrum Of Water-Vapor*, The Astrophysical Journal **60**, 145-157.
- Yanguas-Gil A., Hueso J. L., Cotrino J., Caballero A. and González-Elipe A. R. (2004), *Reforming of ethanol in a microwave surface-wave plasma discharge*, Appl. Phys. Lett. **85**, 4004.
- Yousfi M. and Benabdessadok M. D. (1996), *Boltzmann equation analysis of electron-molecule collision cross sections in water vapor and ammonia*, J. Appl. Phys. **80**, 6619-30.

Biografija autora

Jelena Marjanović (rođena Sivoš) je rođena 23.01.1983. godine u Kruševcu. Fizički fakultet Univerziteta u Beogradu – smer Primenjena fizika i informatika je upisala školske 2002/2003. godine i završila sa prosečnom ocenom 8.34. Diplomirala je 29.12.2010. godine sa temom „Proboj i strujno–naponske karakteristike pražnjenja u vodenoj pari” sa ocenom 10, pod mentorstvom dr Dragane Marić.

Od 2011. godine je student doktorskih studija na Fizičkom fakultetu Univerziteta u Beogradu – smer Fizika jonizovanog gasa i plazme. Položila je sve izborne ispite sa prosečnom ocenom 10.00.

Jelena Marjanović je u radnom odnosu od 1.01.2011. godine u Institutu za fiziku u Beogradu u Laboratoriji za gasnu elektroniku (sada Laboratorija za neravnotežne procese i primenu plazme) pod rukovodstvom prof. dr Zorana Lj. Petrovića. Na sednici Naučnog veća Instituta za fiziku održanoj 23.09.2014. godine izabrana je u zvanje Istraživač saradnik, a reizabrana u isto zvanje na sednici Naučnog veća Instituta za fiziku održanoj 18.07.2017. godine.

Autor i koautor je četiri naučna rada koja su objavljena u međunarodnim časopisima kategorija M21a, M21, M22 i M23. Rezultati njenih istraživanja su prezentovani na velikom broju međunarodnih konferencija. Bila je koautor većeg broja predavanja po pozivu (18) i većeg broja radova štampanih u izvodu (19) i u celini (12).

Jelena Marjanović je predlog teme uspešno odbranila pred Kolegijumom doktorskih studija na Fizičkom fakultetu 27.06.2018. godine. Kolegijum se saglasio i odredio dr Draganu Marić za mentora. Na sednici Nastavno–naučnog veća Fizičkog fakulteta održanoj 21.11.2018. godine usvojen je Izveštaj Komisije za ocenu ispunjenosti uslova i opravdanost predložene teme za izradu doktorske disertacije pod nazivom *Proboj i osobine neravnotežnih DC pražnjenja na niskom pritisku u parama tečnosti*, pod mentorstvom dr Dragane Marić naučnog savetnika u Institutu za fiziku.

Изјава о ауторству

Име и презиме аутора _____ Јелена Марјановић _____

Број индекса _____ 8001/2018 _____

Изјављујем

да је докторска дисертација под насловом

Пробој и особине неравнотежних DC пражњења на ниском притиску у парама течности

- резултат сопственог истраживачког рада;
- да дисертација у целини ни у деловима није била предложена за стицање друге дипломе према студијским програмима других високошколских установа;
- да су резултати коректно наведени и
- да нисам кршио/ла ауторска права и користио/ла интелектуалну својину других лица.

Потпис аутора

У Београду, _____

Изјава о истоветности штампане и електронске верзије докторског рада

Име и презиме аутора _____ Јелена Марјановић _____

Број индекса _____ 8001/2018 _____

Студијски програм _____ Физика јонизованог гаса и плазме _____

Наслов рада Пробој и особине неравнотежних DC пражњења на ниском притиску у парама течности

Ментор _____ др Драгана Марић _____

Изјављујем да је штампана верзија мог докторског рада истоветна електронској верзији коју сам предао/ла ради похрањивања у **Дигиталном репозиторијуму Универзитета у Београду**.

Дозвољавам да се објаве моји лични подаци везани за добијање академског назива доктора наука, као што су име и презиме, година и место рођења и датум одбране рада.

Ови лични подаци могу се објавити на мрежним страницама дигиталне библиотеке, у електронском каталогу и у публикацијама Универзитета у Београду.

Потпис аутора

У Београду, _____

Изјава о коришћењу

Овлашћујем Универзитетску библиотеку „Светозар Марковић“ да у Дигитални репозиторијум Универзитета у Београду унесе моју докторску дисертацију под насловом:

Пробој и особине неравнотежних DC пражњења на ниском притиску у парама течности

која је моје ауторско дело.

Дисертацију са свим прилозима предао/ла сам у електронском формату погодном за трајно архивирање.

Моју докторску дисертацију похрањену у Дигиталном репозиторијуму Универзитета у Београду и доступну у отвореном приступу могу да користе сви који поштују одредбе садржане у одабраном типу лиценце Креативне заједнице (Creative Commons) за коју сам се одлучио/ла.

1. Ауторство (CC BY)
2. Ауторство – некомерцијално (CC BY-NC)
- ☒ 3. Ауторство – некомерцијално – без прерада (CC BY-NC-ND)
4. Ауторство – некомерцијално – делити под истим условима (CC BY-NC-SA)
5. Ауторство – без прерада (CC BY-ND)
6. Ауторство – делити под истим условима (CC BY-SA)

(Молимо да заокружите само једну од шест понуђених лиценци.

Кратак опис лиценци је саставни део ове изјаве).

Потпис аутора

У Београду, _____

1. **Ауторство.** Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце, чак и у комерцијалне сврхе. Ово је најслободнија од свих лиценци.

2. **Ауторство – некомерцијално.** Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела.

3. **Ауторство – некомерцијално – без прерада.** Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, без промена, преобликовања или употребе дела у свом делу, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела. У односу на све остале лиценце, овом лиценцом се ограничава највећи обим права коришћења дела.

4. **Ауторство – некомерцијално – делити под истим условима.** Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце и ако се прерада дистрибуира под истом или сличном лиценцом. Ова лиценца не дозвољава комерцијалну употребу дела и прерада.

5. **Ауторство – без прерада.** Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, без промена, преобликовања или употребе дела у свом делу, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце. Ова лиценца дозвољава комерцијалну употребу дела.

6. **Ауторство – делити под истим условима.** Дозвољавање умножавање, дистрибуцију и јавно саопштавање дела, и прераде, ако се наведе име аутора на начин одређен од стране аутора или даваоца лиценце и ако се прерада дистрибуира под истом или сличном лиценцом. Ова лиценца дозвољава комерцијалну употребу дела и прерада. Слична је софтверским лиценцама, односно лиценцама отвореног кода.