

04

# Оптическая эмиссионная спектроскопия разряда в смеси аргона с азотом, поддерживаемого терагерцевым излучением лазера на свободных электронах

© А.В. Сидоров<sup>1</sup>, В.В. Кубарев<sup>2</sup>, А.П. Веселов<sup>1</sup>, А.В. Водопьянов<sup>1</sup>, О.А. Шевченко<sup>2</sup>, Я.И. Горбачев<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики им. А.В. Гапонова-Грехова РАН, Нижний Новгород, Россия

<sup>2</sup> Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН, Новосибирск, Россия  
E-mail: alexsv@ipfran.ru

Поступило в Редакцию 8 июля 2025 г.

В окончательной редакции 30 июля 2025 г.

Принято к публикации 11 августа 2025 г.

Описываются результаты исследования разряда в смеси аргона с азотом, возникающего в сфокусированном пучке излучения на длине волны  $130\text{ }\mu\text{m}$  Новосибирского лазера на свободных электронах. Представлены результаты исследования заселенности по вращательным уровням молекул азота в фиксированном электронно-колебательном состоянии в различных разрядных условиях. Обсуждаются возможные механизмы наблюдаемого распределения заселенности.

**Ключевые слова:** терагерцевое излучение, газовый лазерный разряд, ультрафиолетовое излучение.

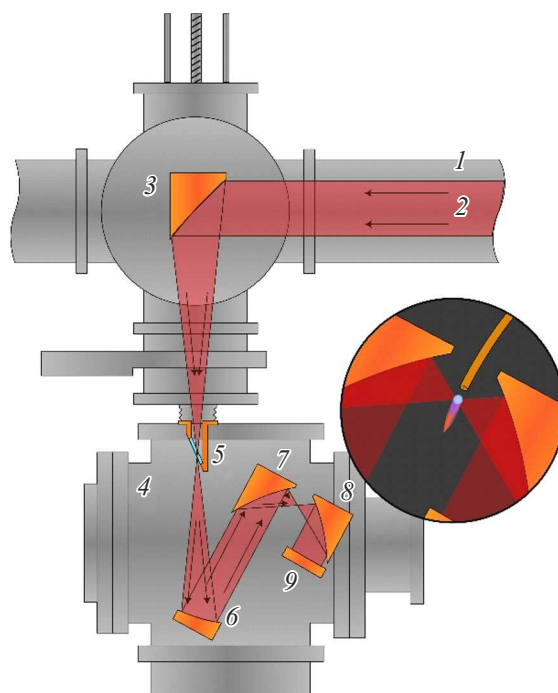
DOI: 10.61011/PJTF.2025.22.61576.20435

Прогресс в создании мощных источников излучения терагерцевого (THz) диапазона частот [1,2] позволил приступить к изучению взаимодействия электромагнитного излучения данного диапазона с плазмой. Данные исследования вызывают интерес прежде всего с прикладной точки зрения, так как плотная плазма THz-разряда может служить ярким источником оптического, ультрафиолетового и экстремального ультрафиолетового излучения [3].

Одной из основных проблем разряда в сфокусированном пучке электромагнитных волн Новосибирского лазера на свободных электронах (НЛСЭ) в чистых инертных газах является то, что разряд уходит навстречу греющему излучению и горит не в фокусе пучка, что существенно увеличивает объем плазмы и снижает максимальную температуру, достигаемую в разряде [3]. В представленном исследовании в разрядный объем добавлялся азот, существенно ухудшающий пробойные условия вне фокуса греющего излучения, что позволяло удерживать разряд в области фокального пятна излучения НЛСЭ. Получены данные о диапазонах давлений фонового газа, скоростей напуска газов, при которых возможно развитие разряда. В отличие от публикаций [3,4], в которых исследовалось свечение инертных газов, в настоящей работе основное внимание уделено особенностям заселенности по вращательным уровням молекул азота в фиксированном электронно-колебательном состоянии в различных разрядных условиях. Обсуждаются возможные механизмы наблюдаемого распределения заселенности.

Схема станции оптического разряда НЛСЭ показана на рис. 1. По каналу 1 излучение НЛСЭ (длина волны  $130\text{ }\mu\text{m}$ , длительность импульса  $100\text{ ps}$ , частота

следования импульсов  $5.6$  или  $11.2\text{ MHz}$ ) с помощью поворотного зеркала 3 вводилось в разрядную камеру 4 через алмазное окно 5, расположенное под углом Брюстера в фокальной перетяжке зеркала, вводящего



**Рис. 1.** Разрядная камера и схема ввода в нее излучения НЛСЭ. 1 — канал излучения НЛСЭ, 2 — THz-пучок, 3 — поворотное зеркало, 4 — разрядная камера, 5 — входное окно, выполненное из CVD-алмаза, 6 —  $30^\circ$  поворотное зеркало, 7 и 8 —  $90^\circ$  фокусирующие зеркала, 9 — плоское зеркало.

излучение в камеру. Далее в разрядной камере с помощью оптической системы, состоящей из трех параболических 6–8 и одного плоского 9 зеркал, излучение лазера на свободных электронах фокусировалось в пятно между зеркалами 7 и 8 с минимальным поперечным размером (ширина на полувысоте гауссова пучка для 130  $\mu\text{m}$ -излучения была около 0.3 mm). Исследования проводились при двух частотах следования импульсов НЛСЭ: 5.6 и 11.2 MHz (конкретные величины частот определяются параметрами установки, подробнее см. [1]). Увеличение частоты следования импульсов позволяло поднять среднюю мощность излучения, греющего разряд. На половинном от максимального уровне средней мощности легко достигалась точная пропорциональность средней мощности частоте повторения импульсов (средняя мощность увеличивалась с 120 W на частоте 5.6 MHz до 240 W на частоте 11.2 MHz). Планируется достичь такой же пропорциональности и для максимальных средних мощностей.

Вакуумная разрядная камера 4 предварительно откачивалась до давлений на уровне  $10^{-4}$  Torr, после чего заполнялась рабочим газом (аргон с добавкой азота). Для инициирования разряда в тех случаях, когда интенсивности электромагнитного излучения было недостаточно для самостоятельного пробоя, использовался высоковольтный искровой разряд, зажигающийся около фокального пятна электромагнитного излучения.

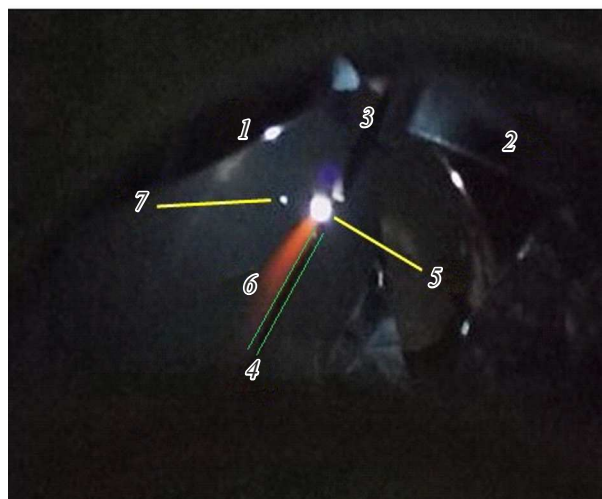
Разряд зажигался в струе газа (аргон), напускаемого в объем разрядной камеры в области фокальной перетяжки, как показано на вставке к рис. 1, через отверстие с диаметром около 1 mm в медной трубке, охлаждаемой водой (далее газовая мишень). Струя газа напускалась в разрядный объем под высоким давлением (2 bar). Давление в разрядном объеме регулировалось скоростью напуска газа и откачки. В описываемых экспериментах его величина составляла 1 bar. При этом расход напускаемого газа регулировался и контролировался по расходомеру в пределах от 2 до 10 l/min. Добавление азота в разрядную камеру осуществлялось по отдельной линии напуска непосредственно в атмосферу разрядной камеры. Скорость напуска азота регулировалась в пределах 0.1–1.2 l/min.

Диагностика светимости разряда в различных диапазонах длин волн осуществлялась с помощью монохроматора-спектрографа MS 5204i от SOL Instruments (решетка 1800 1/mm). Аппаратная ширина линии, прокалиброванная по ртутной лампе, составляла 0.7 Å. Диагностика свечения разряда осуществлялась через оптическое окно разрядной камеры, выполненное из кварцевого стекла. Излучение фокусировалось кварцевой линзой и направлялось на вход световода, присоединенного к входной щели монохроматора. При этом на световод попадало практически все излучение точечного разряда (5 на рис. 2).

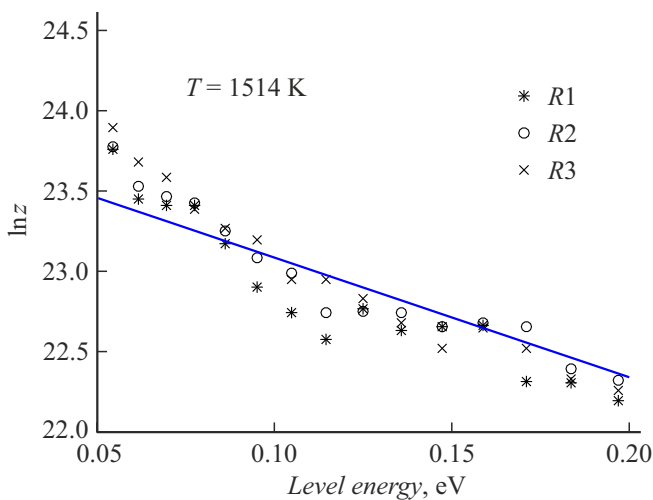
Для дополнительной оптимизации условий горения разряда было проведено исследование свечения разряда в зависимости от потоков аргона и азота, напускаемых

в разрядную камеру. В качестве параметра, характеризующего разряд, было выбрано отношение интенсивности линий Ar III, находящихся в диапазоне 250–280 nm, к интенсивности сплошного излучения. Представляется, что сплошное излучение светит в основном из холодного гало плазмы разряда, в то время как линейчатое излучение идет в основном из горячей „сердцевинки“ разряда диаметром около 1 mm. При этом с ростом температуры плазмы линейчатое излучение сердцевинки плазмы растет, а рекомбинационное излучение холодного плазменного гало падает. Поэтому отношение интенсивности линейчатого излучения к интенсивности сплошного является хорошим качественным индикатором температуры разряда. Было установлено, что для каждого потока аргона существует оптимальный поток азота, при котором это соотношение максимально. При этом с ростом потока аргона оптимальный поток азота также растет.

На рис. 2 представлена типичная фотография разряда в струе аргона (снятого в той же плоскости, что и вставка к рис. 1), напускаемой в объем, заполненный аргоном с примесью азота. Кроме самого разряда за ним в направлении газового потока наблюдается хорошо различимый красно-оранжевый „хвост“. Представляется, что газ, прошедший через периферию разряда, нагревается и в процессе своего распространения в фоновом объеме газа возбуждает первую положительную систему колебательно-вращательного спектра азота. Это приводит к оранжевому свету на трассе распространения горячего газа. При этом при увеличении потока газа (аргона) с 6 до 12 l/min плазма основного разряда все



**Рис. 2.** Фотография ТНz-разряда в смеси аргон–азот. 1, 2 — 90° фокусирующие зеркала, 3 — трубка напуска газа, 4 — электрод поджига высоковольтного искрового разряда (для контраста обведен зеленым контуром), 5 — основной разряд, 6 — оранжевый „хвост“ разряда, 7 — центральная часть основного разряда (два отражения основного разряда в выходном окне). Цветной вариант рисунка представлен в электронной версии статьи.



**Рис. 3.** Распределение заселенностей по вращательным состояниям в фиксированном электронно-колебательном состоянии молекулы азота  $N_2(C^3\Pi)$ . Разряд в смеси аргона и азота. Поток аргона 6 л/мин, поток азота 0.4 л/мин. Мощность НЛСЭ 120 W.

сильнее рассеивает струю газа, которая не может пройти через него [3], что приводит к сильным отклонениям струи от первоначального направления распространения и даже раздвоению светящегося хвоста возбужденных атомов.

Для того чтобы составить представление о величине температуры этого газа, использовалось свечение второй положительной системы азота из объема основного разряда.

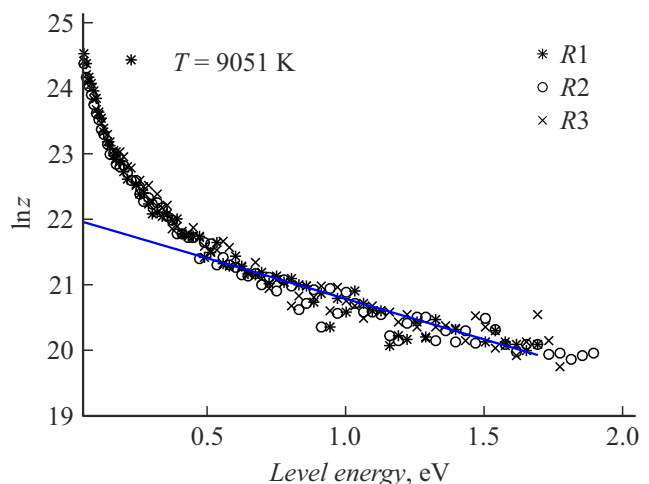
Как известно, заселенность вращательных уровней в молекулах часто используется для оценки температуры газа [5]. В настоящей работе мы исследовали заселенность вращательных состояний основного колебательно-го уровня (колебательное квантовое число  $v = 0$ )  $C^3\Pi$ . Для этого были использованы линии ветви R второй положительной системы  $C^3\Pi-B^3\Pi$ , а конкретно полос (0-2) и (0-0), края которых лежат на длинах волн 380.49 и 337.1 nm соответственно.

На рис. 3 показана зависимость относительной заселенности (в логарифмическом масштабе) вращательных уровней в фиксированном электронно-колебательном состоянии молекулы азота в зависимости от энергии вращательного уровня —  $B_v(J' + 1)J'$ , где  $J'$  — вращательное квантовое число. Относительная заселенность вычислялась по интенсивности линий, соответствующих R-ветви полосы (0-2) второй положительной системы азота, как  $\ln z = \ln(I_{J'J''}/S_{J'J''}v_{J'J''}^4)$ , где  $v_{J'J''}$  — частота перехода  $J'-J''$ ,  $S_{J'J''}$  — фактор интенсивности во вращательной структуре [5]. Чтобы характеризовать данную заселенность, вводился температурный коэффициент заселенности, вычисляемый как  $T_r = B_v(J' + 1)J'/\ln z$  и определяющий угол наклона зависимости заселенности от энергии уровня. В случае бальмановского распределения заселенности он соответствует так называемой

вращательной температуре. Аппроксимация угла наклона зависимости относительных заселенностей осуществлялась для уровней с  $J' > 15$  (что соответствует энергии приблизительно 0.05 eV), так как в этом случае на линии R-ветви уже не накладываются линии, соответствующие P-ветви.

По углу наклона графика зависимости заселенностей восстанавливался температурный коэффициент заселенностей. В зависимости от условий данный коэффициент менялся в диапазоне приблизительно от 1200 до 2000 K. При этом он практически не зависел ни от потока аргона, напускаемого в разряд, ни от средней мощности НЛСЭ (для случаев 120 и 240 W). В то же время температурный коэффициент заселенности уменьшался с ростом потока азота от приблизительно 2000 до 1200 K при росте потока азота от 0.1 до 1.2 л/мин соответственно. То же самое можно сказать и о колебательной температуре, восстановленной по соотношению интенсивностей в пике полос (0-2) и (1-3) (см., например, [5]). Она в пределах ошибки измерений в 20 % совпадала с температурным коэффициентом заселенности вращательных уровней и так же зависела только от потока азота, падая с его ростом. При этом важно отметить, что для полосы (0-2) можно наблюдать линии только для  $J'$  вплоть до 30. Для того чтобы проследить за заселенностями более высоких вращательных уровней, использовалась полоса (0-0) второй положительной системы азота, для которой можно наблюдать линии вплоть до  $J' = 91$  [6].

На рис. 4 показана зависимость относительной заселенности уровней от их энергии, восстановленная по полосе (0-0). И если для диапазона вращательных чисел от 15 до 30 температурный коэффициент приблизительно (с точностью до 20 %) совпадал с аналогичным, но восстановленным по полосе (0-2), то для более высоких вращательных чисел, как видно из рис. 4, угол наклона зависимости относительных заселенностей

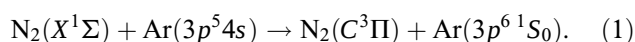


**Рис. 4.** Распределение заселенностей по вращательным состояниям в фиксированном электронно-колебательном состоянии молекулы азота  $N_2(C^3\Pi)$ . Разряд в смеси аргона и азота. Поток аргона 8 л/мин, поток азота 0.2 л/мин. Мощность НЛСЭ 120 W.

вращательных уровней становился существенно меньше и соответствовал температуре примерно в 9000 К, что существенно отличается от заселенностей уровней с  $15 < J' < 30$ . При этом с ростом потока азота указанная температура спадала приблизительно до 6000 К.

Такое неБольцмановское распределение заселенностей отмечалось ранее в различных разрядах в азоте, а также в смесях азота с другими газами. В монографии [5] можно найти обзор этих работ. В частности, в [7] было продемонстрировано наличие двух групп вращательных уровней с различными температурными коэффициентами заселенностей: холодной (для более низких  $J'$ ) и горячей (для более высоких  $J'$ ). При этом в данной работе было показано, что температура холодной группы соответствовала температуре газа (что, по всей видимости, наблюдается и в предлагаемой работе), измеренной как по заселенностям вращательных уровней других молекул (СО), так и непосредственно с помощью термпары. Интересно отметить, что вращательная температура газа, проходящего через периферию нашего высокотемпературного лазерного разряда, выше вращательной температуры газа в плазме разряда в электрическом поле низкой частоты [8] примерно во столько же раз ( $\sim 2-3$ ), во сколько температура плазмы на периферии нашего лазерного разряда выше температуры наиболее нагретых электронов в электрическом разряде ( $\sim 1$  eV). Поэтому вращательная температура газа может, по-видимому, являться дополнительной вспомогательной качественной диагностикой температуры основной плазмы нашего лазерного разряда.

Представляется, что в наших условиях повышенная заселенность уровней с высоким  $J$  обусловлена столкновениями молекул азота в основном состоянии с возбужденными атомами аргона, например, в ходе реакции



Данная реакция широко изучалась как источник высоковозбужденных уровней молекулы азота в состоянии  $C^3\Pi$  (см., например, монографию [5] и ссылки в ней). Однако избыток энергии, который в ней выделяется, не превышает 0.8 eV, в то время как (рис. 4) наблюдаются и более высокоэнергетические уровни. Характерной особенностью THz-разряда высокого давления, обсуждаемого здесь, является не только высокая концентрация нейтральных частиц, но и большая концентрация электронов, характерная для данного типа разрядов (на уровне критической, т.е. порядка  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  для 2.3 THz), а также высокий удельный энерговклад в разряд (порядка  $100-200 \text{ kW/cm}^3$  в среднем по времени в описываемых условиях). В результате данный разряд является интенсивным источником ультрафиолетового излучения (вплоть до вакуумного ультрафиолетового), которое может возбуждать атомы аргона не только в состояние  $3p^5 4s$ , но и в более высокое  $3p^5 4p$ , для которого избыток энергии

над уровнем  $C^3\Pi$  молекулы азота составляет примерно 2 eV.

Собственно, именно возбуждаемые ультрафиолетовым излучением разряда атомы инертных газов и служат причиной, по которой THz- или СВЧ-разряд [9] в чистых инертных газах может распространяться в область существенно допробойных полей, величины которых значительно меньше пробойных для холодного газа (в отсутствие разряда), так как на ионизацию атомов инертных газов из возбужденного состояния необходима гораздо меньшая энергия электронов (всего 2–4 eV для аргона). Тот факт, что при добавлении азота в наш случай разряд мог поддерживаться только в области фокуса THz-излучения и не смещался навстречу греющему излучению, как это происходит при разряде в чистом аргоне, косвенно свидетельствует об эффективном тушении возбужденных атомов аргона при столкновениях с молекулами азота.

## Финансирование работы

Работа поддержана грантом Российского научного фонда № 19-72-20166.

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] G.N. Kulipanov, E.G. Bagryanskaya, E.N. Chesnokov, Yu.Yu. Choporova, V.V. Gerasimov, Ya.V. Getmanov, S.L. Kiselev, B.A. Knyazev, V.V. Kubarev, S.E. Peltek, V.M. Popik, T.V. Salikova, M.A. Scheglov, S.S. Seredniakov, O.A. Shevchenko, A.N. Skrinsky, S.L. Veber, N.A. Vinokurov, *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.*, **5**, 798 (2015). DOI: 10.1109/TTHZ.2015.2453121
- [2] S. Sabchevski, T. Saito, M.Y. Glyavin, in *Advances in terahertz source technologies*, ed. by G.S. Park, M. Tani, J.S. Rieh, S.Y. Park (Jenny Stanford Publ., N.Y., 2024), p. 419–459.
- [3] V.V. Kubarev, Ya.I. Gorbachev, O.A. Shevchenko, A.V. Vodopyanov, A.V. Sidorov, A.P. Veselov, *Plasma Sources Sci. Technol.*, **32**, 055004 (2023). DOI: 10.1088/1361-6595/accca9
- [4] A.B. Сидоров, В.В. Кубарев, А.П. Веселов, А.В. Водопьянов, О.А. Шевченко, Я.И. Горбачев, *Письма в ЖТФ*, **50** (24), 73 (2024). DOI: 10.61011/PJTF.2024.24.59444.6563k [A.V. Sidorov, V.V. Kubarev, A.P. Veselov, A.V. Vodopyanov, O.A. Shevchenko, Ya.I. Gorbachev, *Tech. Phys. Lett.*, **50** (12), 147 (2024). DOI: 10.61011/TPL.2024.12.60378.6563k].
- [5] V.N. Ochkin, *Spectroscopy of low temperature plasma* (Wiley, Weinheim, 2009).
- [6] A. Loftus, P.H. Krupenie, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **6** (1), 113 (1977). DOI: 10.1063/1.555546

- [7] В.Н. Очкин, С.Ю. Савинов, Н.Н. Соболев, в сб. *Электронно-возбужденные молекулы в неравновесной плазме*, под ред. Н.Н. Соболева (Наука, М., 1985), с. 6.
- [8] Q.Y. Zhang, D.Q. Shi, W. Xu, C.Y. Miao, C.Y. Ma, C.S. Ren, C. Zhang, Z. Yi, AIP Adv., **5**, 057158 (2015).  
DOI: 10.1063/1.4921916
- [9] N.A. Bogatov, Yu.Ya. Brodsky, S.V. Golubev, V.G. Zorin, in *Proc. of XVIII Int. Conf. on phenomena in ionized gases* (Swansea, U.K., 1987), p. 864–865.