

01

Оптическое излучение плазменных струй атмосферного давления, возбуждаемых барьерным разрядом

© А.А. Генерал

Институт электронной физики НАН Украины,
88017 Ужгород, Украина
e-mail: heneral@i.ua

Поступила в редакцию 04.02.2019 г.

В окончательной редакции 04.02.2019 г.

Принята к публикации 08.07.2019 г.

В спектральной области 270–900 nm экспериментально исследованы спектры люминесценции плазменных струй, формируемых барьерным разрядом атмосферного давления в смесях аргон-воздух и гелий-воздух. Показано, что спектры излучения плазменных струй представлены преимущественно электронно-колебательными переходами второй положительной системы нейтральных молекул азота в ультрафиолетовой области спектра. Сравнены мощности излучения указанных смесей.

Ключевые слова: аргон, гелий, воздух, плазменная струя, барьерный разряд.

DOI: 10.21883/OS.2019.11.48504.41-19

Введение

В последнее время все большее внимание стали привлекать к себе плазменные струи атмосферного давления, которые формируются разными электрическими разрядами, как, например, в работах [1–7]. Такой способ формирования плазмы практически не приводит к нагреву ее газовой составляющей, в результате чего температура газа в плазме остается на уровне комнатной, а такую плазму называют „холодной“. На сегодняшний день созданы и наиболее изучены источники плазменных струй атмосферного давления на основе барьерного разряда, в которых рабочими газами являются аргон, гелий, азот и их смеси.

Холодная плазма атмосферного давления инактивирует бактерии и вирусы посредством активных форм кислорода и азота. Известно, что холодная плазменная струя является одним из самых эффективных источников стерилизации [4], а основными рабочими газами, которые используются при генерации плазмы атмосферного давления, являются аргон или гелий. Однако создавать источник плазменной струи, работающий только на сравнительно дорогом инертном газе — гелии, является экономически нецелесообразно, поскольку такой источник требует большое количество гелия. К тому же температура гелиевой плазменной струи, выходящей из капилляра, может достигать нескольких сотен градусов, что может привести к повреждению исследуемой поверхности. Для устранения этого негативного эффекта, например, авторами работ [4,5] было использован рабочий газ — аргон. А при использовании в струе вместе с аргоном небольшого количества кислорода плазма начинает производить активные частицы — радикалы кислорода. К тому же подобная плазменная струя глубоко проникает в атмосферу, что способствует созданию пути

для радикалов кислорода, которые более качественно стерилизуют исследуемую поверхность. В работе [4] отмечается сравнительно высокая эффективность плазменной струи на смеси газов аргона и воздуха для использования в медицине.

Широкое практическое применение плазменных струй атмосферного давления побуждает к созданию новых источников с различными рабочими газами и проведению всесторонних исследований их работы. Тем не менее, к настоящему времени практически не изучались характеристики плазменных струй барьерного разряда в смесях аргон-воздух и гелий-воздух, хотя известно, что воздух содержит как азот, так и кислород, что способствует тому, что подобные рабочие смеси найдут практическое применение. В связи с этим настоящая работа посвящена изучению спектральных и энергетических характеристик излучения плазменных струй барьерного разряда атмосферного давления в рабочих смесях аргон-воздух и гелий-воздух.

Экспериментальная аппаратура и методики

Основные узлы экспериментальной аппаратуры, использованной для проведения экспериментов, были описаны в работах [8–11] и представлены на рис. 1. Источник плазменной струи [12] был создан на основе капиллярной газоразрядной трубки (ГРТ) из плавленого кварца длиной ~ 60 mm, внутренним диаметром ~ 3 mm, внешним ~ 6 mm. Капиллярная трубка на выходе сужается и имеет вид сопла с выходным отверстием диаметром ~ 1 mm. Используемый в работе игольчатый электрод диаметром 1 mm и длиной 50 mm был изготовлен из меди и размещался внутри капилляра. Второй электрод, изготовленный из тантала, был размещен

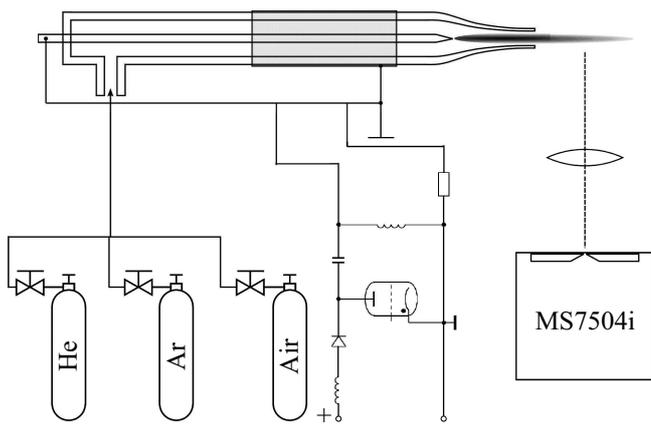


Рис. 1. Принципиальная блок-схема экспериментальной установки.

поверх капиллярной трубки, стенки которой играли роль межэлектродного диэлектрического барьера. Расстояние от электродов до выходного отверстия сопла составляло ~ 6 мм. Промежуток между электродами составлял ~ 2 мм, из которых ~ 1.5 мм — кварцевый диэлектрик. Расстояние от электродов до среза капилляра составляло ~ 7 мм. Через капилляр продувались смеси гелий-воздух и аргон-воздух. Максимальный расход рабочей смеси не превышал 10 л/мин. Межэлектродная емкость 2.5 нФ, создаваемая диэлектрическим барьером, определяет электрическую энергию, вводимую в разряд за один импульс накачки. Выбор барьерного разряда для создания плазменной струи обусловлен, в частности, тем, что барьерный разряд является слаботочным и не вызывает существенного нагрева газовой составляющей генерируемой низкотемпературной плазмы, что позволяет считать плазму холодной. Наличие диэлектрического барьера обеспечивает ограничение электрической энергии, вводимой в разряд на протяжении импульса возбуждения и определяемой значением межэлектродной емкости. Регистрация спектров люминесценции плазменных струй осуществлялась с использованием монохроматора MS 7504i. Данный монохроматор был изготовлен и спроектирован фирмой SOLAR ТИИ по горизонтальной оптической схеме Черни-Тернера с компенсацией астигматизма. Эта оптическая схема позволяет избежать повторного отражения излучения от дифракционных решеток. Спектральный монохроматор MS 7504i имеет два оптических выхода на фотоприемники — CCD-камеру HS 101H и фотоэлектронный умножитель R 928 и позволяет автоматически с помощью компьютера переключаться на один из них. Для системы регистрации на базе монохроматора MS 7504i также было определено спектральное распределение чувствительности. Калибровки проводились с использованием дейтериевой лампы ДДС-30 в ультрафиолетовой области спектра и ленточной вольфрамовой лампы накаливания СИ8-200У в видимой и инфракрасной областях излучения.

Барьерный разряд в газоразрядном устройстве возбуждался с использованием тиратронного генератора с коммутатором ГГИ1-2000/35 и резонансного перезаряда накопительной емкости 1650 пФ (в различных экспериментах были использованы и другие емкости, в частности 680 и 470 пФ) по схеме, приведенной на рис. 1. Высоковольтный импульсный блок питания, который использовался в исследованиях, обеспечивал импульсное напряжение до 10 кВ, частоту повторения импульсов от единиц Нз до 10 кНз, средний разрядный ток до нескольких ампер, а максимальную выходную мощность до 2.5 кВт. Режим резонансной перезарядки позволяет увеличить напряжение на накопительном конденсаторе в 2 раза по отношению к напряжению на выпрямителе.

По методике, описанной в работах [9,13], были проведены измерения мощности излучения. Итак, полная мощность ультрафиолетового излучения для данного метода измерения излучения плазменной струи будет равна

$$P = P'l = \frac{4\pi\bar{P}}{S} L(L+l), \quad (1)$$

где \bar{P} — значение мощности излучения, измеренное фотоприемником, S — площадь светочувствительного элемента фотоприемника, l — длина плазменной струи, L — расстояние между плазменной струей и фотоприемником.

Результаты измерений и обсуждение

Горящая в атмосфере плазменная струя, которая формировалась на выходе сопла капилляра при подаче на электроды разрядной трубки высоковольтного импульсно-периодического напряжения и продувании сквозь капилляр смесей гелия с воздухом и аргона с воздухом, имела вид иглоподобного факела. Максимальное содержание воздуха в смесях не превышало 10%. Протяженность плазменной струи за пределами выходного сопла не превышала ~ 4 см. В работе был исследован спектральный состав излучения сформированной плазменной струи смесями гелия с воздухом и аргона с воздухом.

На рис. 2 приведен зарегистрированный участок интегрированного во времени спектра излучения плазменной струи, вытекающей из сопла для смеси гелия с воздухом в интервале длин волн 270–900 нм. В длинноволновом участке спектра излучения плазменной струи зарегистрирована линия атома гелия $1s3d^1D_2 \rightarrow 1s2p^1P_1^0$ — переход с максимумом на 667 нм (рис. 2). В области 300–500 нм спектр излучения плазменной струи определяется эмиссией молекул азота (рис. 2) в результате электронно-колебательных переходов второй положительной системы нейтральных молекул азота $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$, а также менее интенсивной первой отрицательной системы ионов молекул азота $N_2^+(B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+)$.

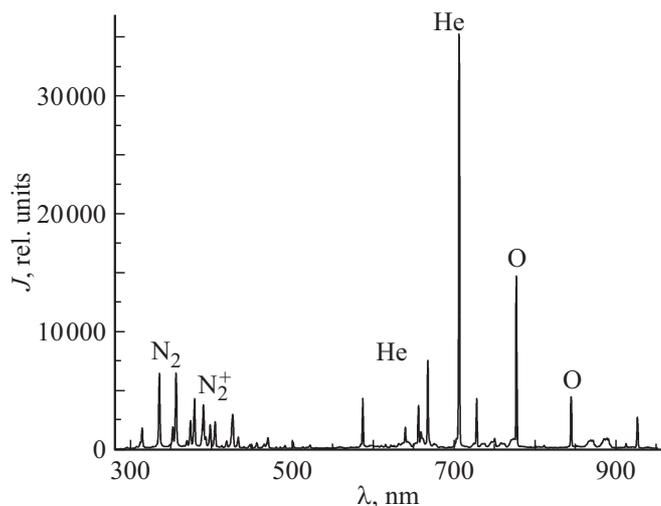


Рис. 2. Типичный спектр излучения плазменной струи в смеси гелий-воздух при оптимальных условиях эксперимента.

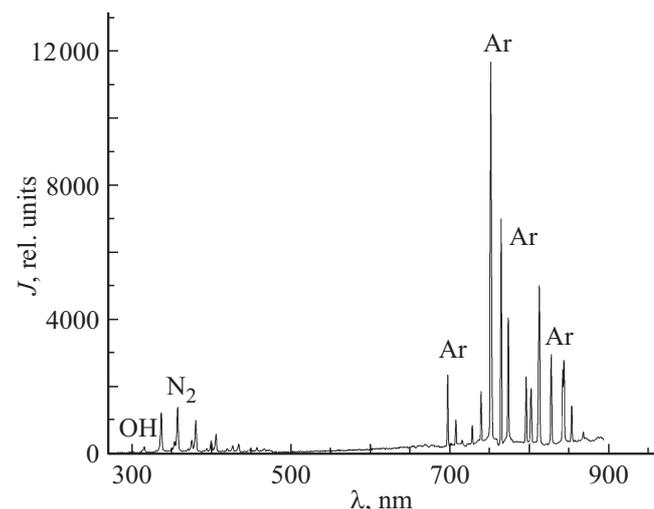
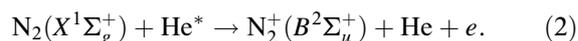


Рис. 3. Типичный спектр излучения плазменной струи в смеси аргон-воздух при оптимальных условиях эксперимента.

Наиболее интенсивные зарегистрированные молекулярные эмиссии образованной плазменной струи в смеси гелия и воздуха приведены в таблице, где дана их идентификация. отождествление атомарных линий в эмиссионном спектре проводилось с использованием данных [14], а определение колебательных переходов молекулярных компонент плазмы осуществлялась на основе данных [15,16]. Как хорошо видно при рассмотрении данных таблицы, излучение молекулярных компонент плазмы происходит в основном при спектральных переходах из самых нижних колебательных уровней возбужденных электронных состояний, что является следствием колебательной релаксации возбужденных молекул при соударениях в условиях атмосферного давления. Верхние уровни всех излучающих возбужденных нейтральных молекул азота расположены достаточно

высоко, и их энергия возбуждения превышает 10 eV. Энергии возбужденных уровней ионизированных молекул азота еще больше и имеют значения не менее 18.7 eV. Наличие в спектре излучения плазменной струи первой отрицательной системы ионов молекулярного азота N_2^+ ($B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$) и второй положительной системы нейтральных молекул азота N_2 ($C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$) указывает на то, что образование ионизированных молекул азота в возбужденном состоянии N_2^+ ($B^2\Sigma_g^+$) обусловлено высокой эффективностью ионизации Пеннинга при столкновениях молекул азота с метастабильными атомами гелия. Как было показано в работе [7], идет передача энергии от возбужденного атома гелия молекуле азота:



Зарегистрированный спектр излучения плазменной струи чистого гелия в атмосфере приведен в работе [7]. При сравнении спектров плазменной струи в чистом гелии [7] и в смеси гелий-воздух видно, что при введении воздуха в поток гелия в ультрафиолетовой области спектра интенсивность излучения первой отрицательной системы полос иона молекулы азота N_2^+ ($B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$) значительно уменьшилась по сравнению с интенсивностью излучения второй положительной системы нейтральных молекул азота. Причиной уменьшения интенсивности при добавлении в разряд воздуха является тот факт, что воздух является сильно электроотрицательным газом и в разряде уменьшает электронную температуру и концентрацию ионов молекулы азота N_2^+ ($B^2\Sigma_g^+$).

На рис. 3 представлен интегрированный во времени спектр люминесценции плазменной струи, полученной в смеси аргон-воздух. В ультрафиолетовой области эмиссионный спектр представлен преимущественно спектральными полосами азота, соответствующими электронно-колебательным переходам второй положительной системы молекул азота. Для сравнения можно при-

λ , nm	Компоненты плазмы	Электронно-колебательный переход	Энергия возбуждения, eV
315.9	N_2	$C^3\Pi_u(v=1) \rightarrow B^3\Pi_g(v=0)$	11.3
337.1	N_2	$C^3\Pi_u(v=0) \rightarrow B^3\Pi_g(v=0)$	11
353.6	N_2	$C^3\Pi_u(v=1) \rightarrow B^3\Pi_g(v=2)$	11.3
357.7	N_2	$C^3\Pi_u(v=0) \rightarrow B^3\Pi_g(v=1)$	11
370.9	N_2	$C^3\Pi_u(v=2) \rightarrow B^3\Pi_g(v=4)$	11.5
375.4	N_2	$C^3\Pi_u(v=1) \rightarrow B^3\Pi_g(v=3)$	11.3
380.4	N_2	$C^3\Pi_u(v=0) \rightarrow B^3\Pi_g(v=2)$	11
391.4	N_2^+	$B^2\Sigma_u^+(v=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(v=0)$	18.7
399.7	N_2	$C^3\Pi_u(v=1) \rightarrow B^3\Pi_g(v=4)$	11.3
405.8	N_2	$C^3\Pi_u(v=0) \rightarrow B^3\Pi_g(v=3)$	11
427.8	N_2^+	$B^2\Sigma_u^+(v=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(v=1)$	18.7

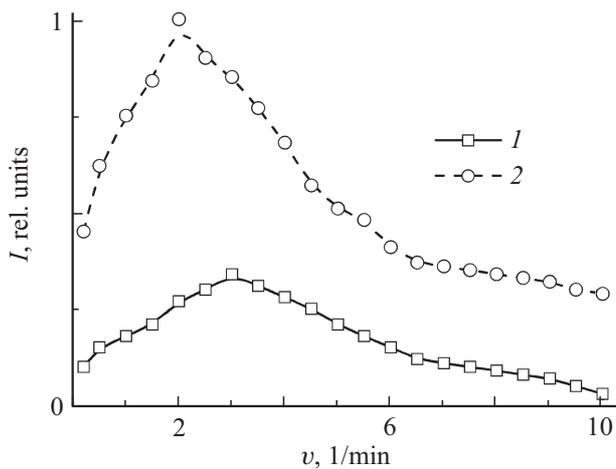


Рис. 4. Зависимость интенсивности УФ излучения плазменной струи от скорости потока рабочей смеси. Пояснения в тексте.

влекать спектр излучения плазменной струи аргона в атмосфере, приведенный в работе [5]. В коротковолновом диапазоне длин волн (300–400 nm) эмиссионный спектр аргоновой плазменной струи представлен также преимущественно спектральными полосами молекулярного азота, соответствующих электронно-колебательным переходам второй положительной системы молекулы азота $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$. Отдельно стоит отметить, что в спектрах рис. 3 отсутствует излучение иона азота $N_2^+(B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+)$, поскольку энергии метастабильных атомов аргона недостаточно для процесса ионизации Пеннинга. Минимальная энергия возбуждения основного электронного состояния иона молекулярного азота составляет 15.6 eV, а энергия возбужденного электронного состояния иона азота равна 18.7 eV [17].

В длинноволновой области спектра излучения аргоновой плазменной струи (690–900 nm) зарегистрированы интенсивные линии преимущественно спектральных переходов между возбужденными состояниями атомов аргона.

Было установлено, что после зажигания барьерного разряда нужно около минуты для выхода на стабильный режим горения плазменной струи для смеси аргон-воздух и примерно 30 s для смеси гелий-воздух. Как видно на рис. 4, для обеих смесей при небольшом расходе газа (до 0.4 l/min) плазменная струя вообще не зажигается. Максимальной длиной струи и мощностью излучения для смеси аргон-воздух (кривая 1) становится при расходе ~ 3 l/min, а для смеси гелий-воздух (кривая 2) максимальная выходная мощность УФ излучения будет при ~ 2 l/min. Дальнейший рост расхода газа только уменьшает мощность излучения струи для обеих смесей.

Путем сравнения мощностей излучения плазмы при переходе от смеси аргон-воздух к смеси гелий-воздух было установлено, что мощность излучения выросла в ~ 3 раза. Максимальная полная мощность излучения

была достигнута в смеси гелий-воздух и составляла ~ 0.07 W при оптимальных условиях эксперимента.

Выводы

В барьерном разряде атмосферного давления экспериментально исследованы и проанализированы спектры люминесценции и пространственное распределение интенсивности плазменных струй, сформированных в смесях гелий-воздух и аргон-воздух. Установлено, что в результате формирования плазменной струи в газоразрядной капиллярной трубке при продувании сквозь нее смесей гелия с воздухом и аргона с воздухом возникают основные излучающие компоненты плазмы — молекулы и ионы азота для смеси гелий-воздух и молекулы азота для смеси аргон-воздух. Оценена зависимость интенсивности УФ излучения от скорости выхода газа. Максимальной длиной струи для смеси аргон-воздух становится при скорости потока ~ 3 l/min, а для смеси гелий-воздух максимальная выходная мощность УФ излучения будет при ~ 2 l/min. Определено, что при переходе от рабочей смеси аргон-воздух к смеси гелий-воздух мощность излучения выросла в ~ 3 раза.

Плазменные струи, сформированные барьерным разрядом в смесях гелий-воздух и аргон-воздух, могут найти практическое применение в медицине, микроэлектронике и биохимии.

Благодарности

Выражаю благодарности за помощь и полезные научные дискуссии при выполнении данной работы проф. В. Кельману и Ю. Жменяку.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке гранта НАН Украины для молодых ученых.

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Luan P., Knoll A.J., Wang H. et al. // J. Phys. D. 2017. V. 50. P. 03LT02. doi.org/10.1088/1361-6463/aa4e97
- [2] Ogawa K., Oh J.-S., Gaur N. et al. // Jpn. J. Appl. Phys. 2019. V. 58. N SA. P. SAAB01. doi.org/10.7567/1347-4065/aaea6b
- [3] Nguyen T.T., Matsuura H., Matsui Y., Takemura Y. // Plasma Res. Express. 2019. V. 1. P. 015009. doi.org/10.1088/2516-1067/aaf958
- [4] Aboubakr H.A., Gangal U., Youssef M.M., et al. // J. Phys. D. 2016. V. 49 P. 204001. doi.org/10.1088/0022-3727/49/20/204001
- [5] Корбут О.М., Кельман В.А., Жменяк Ю.В., Кленівський М.С. // Український фізичний журнал. 2015. Т. 60. С. 1189.

- [6] *Senba H., Suzuki H., Toyoda H.* // Jpn. J. Appl. Phys. 2019. V. 58. N SA. P. SAAC05. doi.org/10.7567/1347-4065/aaeb3d
- [7] *Korbut A.N., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V., Klenovskii M.S.* // Opt. Spectrosc. 2014. V. 116. N 6. P. 919. doi.org/10.1134/S0030400X14040146
- [8] *Shuaibov A.K., Heneral A.A., Shpenik Yu.O., etc.* // Technical Physics. 2009. V. 54. N 8. C. 1238. doi.org/10.1134/S1063784209080258
- [9] *Avtaeva S.V., General A.A., Kel'man V.A.* // J. Phys. D. 2010. V. 43. P. 315201. doi.org/10.1088/0022-3727/43/31/315201
- [10] *General A.A., Avtaeva S.V.* // J. Phys. D. 2017. V. 50. P. 495202. doi.org/10.1088/1361-6463/aa93bb
- [11] *General A.A., Kelman V.A., Zhmenyak Y.V., Zvenigorodsky V.V.* // J. Appl. Spectrosc. 2016. V. 83 P. 598. doi.org/10.1007/s10812-016-0334-x
- [12] *Генерал А.А.* Патент України. 123287. 2018.
- [13] *General A.A., Kelman V.A., Zhmenjak Yu.V., Shpenik Yu.O.* // Instruments and Experimental Techniques. 2010. V. 53. P. 558. doi.org/10.1134/S0020441210040160
- [14] URL: <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm6>
- [15] *Pearse R.W.B., Gaydon A.G.* The Identification of Molecular Spectra. London: Chapman & Hall, 1965. 368 p.
- [16] *Huber K.P., Herzberg G.* Molecular Spectra and Molecular Structure. IV. Constants of Diatomic Molecules. N.Y.: Van Nostrand Reinhold Company, 1979. 716 p.
- [17] *Laher Russ R., Gilmore Forrest R.* // J. Phys. Chem. Ref. Data. 1991. V. 20. P. 685. doi.org/10.1063/1.555892