

01

## Особенности формирования спектра излучения распадающейся плазмы импульсного барьерного разряда низкого давления

© В.А. Иванов

Санкт-Петербургский государственный университет,  
198504 Санкт-Петербург, Россия

e-mail: v.a.ivanov@spbu.ru

Поступила в редакцию 11.06.2023 г.

В окончательной редакции 28.09.2023 г.

Принята к публикации 28.09.2023 г.

Методами кинетической спектроскопии проведено сравнение роли процессов электрон-ионной рекомбинации ионов  $Ne^+$ ,  $Ne_2^+$  и  $Ne^{++}$  в формировании оптических свойств распадающейся неоновой и гелий-неоновой плазмы. Источником плазмы служил низкочастотный (80–160 Hz) импульсный диэлектрический барьерный разряд, создающий количество двукратно заряженных ионов  $Ne^{++}$ , достаточное для спектроскопических наблюдений в рекомбинационном послесвечении. Представлены результаты, показывающие возможность решения задачи с помощью анализа как интенсивностей отдельных спектральных линий в послесвечении разряда, так и излучения плазмы в „белом“ свете.

**Ключевые слова:** диэлектрический барьерный разряд, двукратно заряженные ионы, ударно-радиационная рекомбинация, распадающаяся плазма, элементарные процессы.

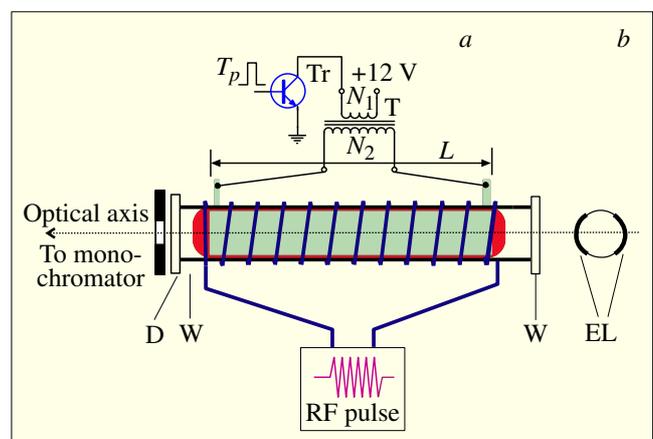
DOI: 10.61011/OS.2023.09.56602.5307-23

### Введение

Диэлектрический барьерный разряд (DBD) как способ создания плазмы для исследования элементарных процессов обладает рядом преимуществ по сравнению с другими разрядами [1]. Важным для данной работы свойством DBD является, во-первых, способность генерировать двукратно заряженные ионы, впервые проявившие себя в спектроскопическом эксперименте [1] обогащением спектра излучения неоновой плазмы ионными линиями в активной стадии DBD и в раннем послесвечении при понижении давления газа до значений менее нескольких Торр. Во-вторых, создавать в этих условиях почти однородное в пространстве [2] и достаточно протяженное (десятки сантиметров) плазменное образование с легко регулируемой плотностью электронов. Последнее было использовано в работах [3,4] для анализа скорости ударно-радиационной рекомбинации (CRR) ионов  $Ne^{++}$  с электронами по характеру спада интенсивностей ионных линий в стадии распада плазмы. Одним из результатов этого анализа, выполненного с учетом данных масс-спектрометрических экспериментов [5,6] о подвижности двухзарядных ионов и передаче заряда при столкновениях  $Ne^{++}+Ne$ , был вывод о значительно более высокой скорости CRR этих ионов по сравнению с предсказанием теории процесса [7]. В данной работе мы представляем результаты спектроскопического эксперимента, характеризующие вклад связанного с рекомбинацией ионов  $Ne^{++}$  заселения возбужденных уровней иона неона в излучение распадающейся плазмы, в ионном составе которой преобладают ионы  $Ne^+$  и  $Ne_2^+$ .

### Постановка эксперимента

Схема осуществления низкочастотного импульсного барьерного разряда подробно изложена в цитированных выше работах. Здесь мы для последовательности изложения лишь кратко остановимся на описании этого технически простого (рис. 1) и достаточно универсального способа ионизации газа в широком диапазоне давлений. Главным элементом схемы является обратноходовой трансформатор, используемый с источником питания 12 V в импульсном режиме, параметры которого — частота и длительность  $T_p$  импульса, открывающего транзистор Tr, задают уровень энергии, запасаемой в



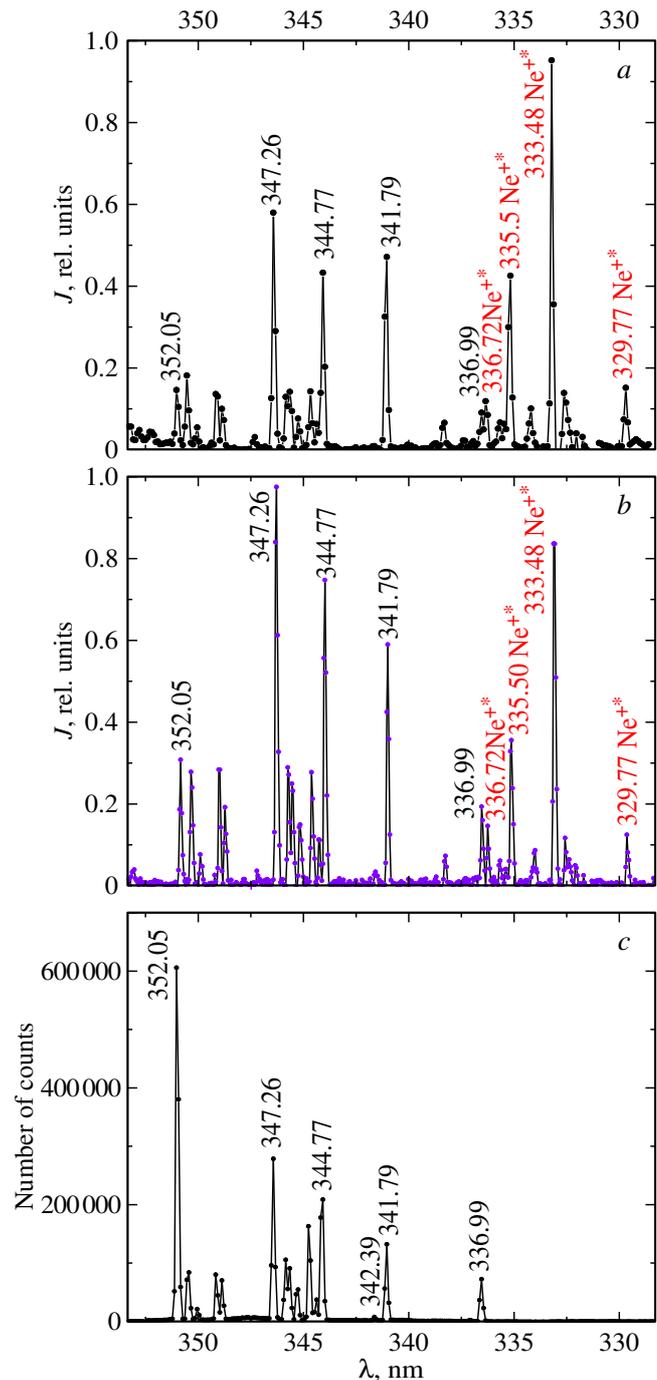
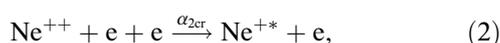
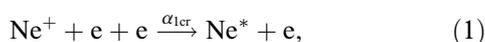
**Рис. 1.** (а) Схема совмещения барьерного и импульсного высокочастотного разряда (RF Pulse), D — диафрагма диаметром 5 mm, W — кварцевые окна. (б) Расположение электродов DBD (EL) на поверхности разрядной трубки длиной  $L \sim 20$  cm.

трансформаторе Т, и соответственно напряжение на электродах DBD при закрывании транзистора. Осциллограммы тока в цепи электродов показывают, что функция  $i(t)$  состоит из двух несколько отличающихся по амплитуде и длительности полуволн противоположной полярности протяженностью по основанию около  $3 \mu\text{s}$ . В обсуждаемом эксперименте (давление газа 1.7–0.5 Torr) при отношении чисел витков  $N_2/N_1 = 10$  напряжение на электродах могло регулироваться в пределах 1000–6000 V, что позволяло создавать плазму с плотностью электронов  $[e] \sim (10^{10} - 5 \cdot 10^{11}) \text{ cm}^{-3}$  в центре трубки диаметром 3.9 см. Представленные ниже экспериментальные данные получены при плотности электронов в начале послесвечения  $[e] \sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ .

Дополнение схемы спиралью высокочастотного (десятки МГц) разряда (RF на рис. 1) позволяет решать несколько задач. В импульсном режиме с регулируемой амплитудой высокочастотного напряжения легко осуществляется кратковременный „нагрев“ электронов распадающейся плазмы, что позволяет по изменениям интенсивностей спектральных линий судить о механизмах заселения возбужденных уровней  $\text{Ne}^*$  и  $\text{Ne}^{+*}$ . В таких экспериментах длительность RF-импульса обычно  $\Delta t \leq 1 \mu\text{s}$ . Более длительный (десятки — сотни микросекунд) нагрев с наблюдением населенности уровня  $2p^5 3s(^3P_1)$  мы используем [1] для оценки плотности электронов  $[e](t)$ , сопоставляя ход  $[^3P_1](t)$  с расчетами на основе известной константы скорости процесса  $^3P_2 + e \leftrightarrow ^3P_1 + e$ . Наконец, обогащение ионными линиями спектра послесвечения используемого нами варианта барьерного разряда по сравнению с RF-разрядом указывает на появление в плазме с уменьшением давления газа ионов  $\text{Ne}^{++}$ . Связанное с ними рекомбинационное излучение столь же резко реагирует на „подогрев“ электронов, как и связанное с CRR ионов  $\text{Ne}^+$ .

## Результаты и обсуждение

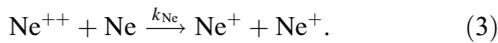
Спектры послесвечения DBD в неоне и в смеси  $\text{He}-\text{Ne}$  при сопоставимом полном давлении и одинаковых условиях разряда показаны на рис. 2, *a, b*. Измерения выполнены методом многоканального счета фотонов, регистрируемых фотоэлектронным умножителем ФЭУ-106 с применением стробирования сигнала ФЭУ с целью исключения вклада стадий разряда и раннего послесвечения при высокой температуре электронов, достаточной для прямого и ступенчатого возбуждения. Таким образом, представленные спектры характеризуют рекомбинационную составляющую послесвечения, причем интервал стробирования включал излучение, связанное с процессами CRR как однократно, так и двукратно заряженных ионов:



**Рис. 2.** Спектры послесвечения: (а) смесь  $\text{He}-\text{Ne}$  при давлениях компонент 0.4 и 0.2 Torr соответственно, (б)  $\text{Ne}$  (0.5 Torr), (с) RF-разряд в неоне (0.5 Torr).

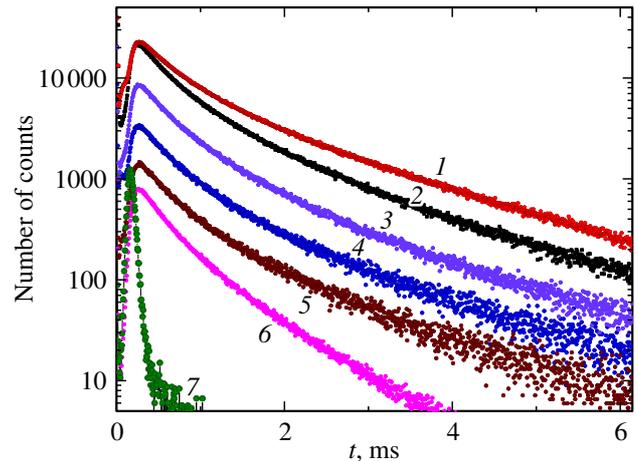
где  $\alpha_{1\text{cr}}, \alpha_{2\text{cr}}$  — константы скоростей процессов. Данные рис. 2 относятся к минимальному в наших экспериментах давлению газа и поэтому наиболее отчетливо демонстрируют вклад процесса (2) в формирование спектра послесвечения в области ближнего ультрафиолета. С ростом давления неона в кинетике ионов  $\text{Ne}^{++}$  все более

заметную роль играет процесс передачи заряда:



Информация об этом процессе при температуре частиц  $\sim 300$  К в работах [5,6] содержит противоречивые оценки константы скорости  $k_{\text{Ne}}$ : согласно [5]  $k_{\text{Ne}} = (9 \pm 2) \cdot 10^{-14} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ , в [6] авторы предлагают различные константы скорости для трех нижних состояний  $^1S$ ,  $^1D$ , и  $^3P$  иона  $\text{Ne}^{++}$ :  $2.7 \pm 0.3$ ,  $1.9 \pm 0.2$  и  $2.1 \pm 0.2$  в тех же единицах соответственно. Используя оценку константы скорости  $\alpha_{1\text{cr}}$  [7] в приближении чисто столкновительной кинетики возбужденного электрона в (1) (напомним, что рекомбинационный поток в этом приближении определяется скоростью диффузии высоковозбужденного электрона, появившегося вследствие акта рекомбинации, в сторону основного состояния атома при столкновениях с электронами плазмы; в области небольших квантовых чисел и невысокой плотности электронов, что имеет место в обсуждаемых условиях, рекомбинационный поток переносится излучением) и предложенную в [7] зависимость скорости рекомбинации от заряда иона  $\alpha_{\text{Zcr}} \sim Z^3$ , нетрудно найти, что при плотности электронов  $[e] \sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  и их температуре  $T_e \sim 300$  К процесс (3) окажется основным каналом разрушения двукратно заряженных ионов при давлениях  $P_{\text{Ne}} > 1$  Торг. Как видно из данных рис. 2, минимальному содержанию неона ( $P_{\text{Ne}} = 0.2$  Торг) отвечает ситуация, когда наиболее яркими в обсуждаемой области спектра оказываются ионные линии. Длины волн некоторых из них указаны на рисунке. Напротив, в спектре высокочастотного разряда (рис. 2, c) эти линии не регистрируются вовсе, и это при том, что спектр содержит все линии переходов  $4p \rightarrow 3s$  вплоть до самых слабых из них (например, 342.39 nm, интенсивность  $J \sim 3000$  counts) с вероятностью перехода  $A_{ik} \sim 10^5 \text{ s}^{-1}$ .

Что касается всей области длин волн, доступной для регистрации в эксперименте (300–850 nm), то подобное отображенному на рис. 2 простое сопоставление интенсивностей отдельных ионных и атомных линий едва ли целесообразно. В соответствии с базой данных NIST [8], ионный спектр неона на порядок величины плотнее атомного, так что даже малые по интенсивности линии излучения  $\text{Ne}^{++}$  могут внести заметный вклад в полный поток излучения распадающейся плазмы. В данной работе для сопоставления этих потоков мы обратились к анализу излучения в „белом“ свете (нулевом порядке дифракционной решетки монохроматора). Для постановки эксперимента с целью упрощения задачи мы выбрали разряд в чистом неоне при давлении 1.7 Торг, значительно более высоком, чем в условиях рис. 2. Как показывает моделирование процессов в распадающейся плазме барьерного разряда [3], временные зависимости атомных  $J_a(t)$  и ионных  $J_i(t)$  линий в некоторой степени зависят от отношения начальных плотностей ионов  $[\text{Ne}^{++}]/[\text{Ne}^+]$  при их сопоставимых значениях (данными о которых мы в настоящее время не располагаем) и, напротив, при  $[\text{Ne}^{++}]/[\text{Ne}^+] \ll 1$  конверсия ионов  $[\text{Ne}^{++}] \rightarrow [\text{Ne}^+]$  (3)



**Рис. 3.** Время  $t = 0$  соответствует началу послесвечения, давление неона 1.7 Торг, плотность электронов  $[e] (t = 0) \sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ . 1, 3–6 — интенсивности  $J_\lambda$  линий  $\lambda = 585.2$  (переход  $3p-3s$ ), 344.7 ( $4p-3s$ ), 345.4 ( $4p-3s$ ), 705.9 ( $3d-3p$ ) и 576.4 nm ( $4d-3p$ ) соответственно; 2 — „белый“ свет; 7 — ионная линия 333.48 nm.

способствует выполнению указанного неравенства, и в послесвечении не влияет на ход  $J_a(t)$ .

Некоторые данные об эволюции послесвечения при давлении неона 1.7 Торг представлены на рис. 3. Видно, что интенсивности  $J(t)$  формируют три характерные группы (эта закономерность отмечается для всех наблюдавшихся в диапазоне длин волн 300–8500 nm атомных и ионных спектральных линий), отражающие участие трех процессов в образовании возбужденных частиц. Третий из них — в дополнение к (1) и (2) — диссоциативная рекомбинация (DR) молекулярного иона:



С процессом DR (самый быстрый процесс деионизации плазмы, константа скорости которого  $\alpha_{\text{DR}}$  для некоторых ионов превышает  $10^{-6} \text{ cm}^3/\text{s}$  [9,10]) связаны интенсивности 1, 3–5 на рис. 3. Для него характерна ярко выраженная селективность, обусловленная ограниченностью набора выходных каналов процесса. В неоне это свойство выражено наиболее ярко: в плазме, распадающейся при температуре электронов  $T_e \sim 300$  К, пороговым для процесса является уровень  $3p_3$  [11] (в обозначениях Пашена) конфигурации  $2p^5 4p$  с энергией возбуждения  $U \sim 20.26$  eV, тогда как заселение более высоких по энергии уровней связано с CRR (1), представленной на рис. 3 линией 576.4 nm. В силу упомянутой выше специфики формирования потока рекомбинации в плазме с атомарными ионами возможно появление возбужденных атомов в любых состояниях.

Кинетику плотности  $[\text{Ne}^{++}](t)$  представляет ионная линия 333.48 nm (кривая 7 на рис. 3). Механизмы рекомбинации ионов  $\text{Ne}^{++}$  (2) и  $\text{Ne}^+$  (1) идентичны, отличаются только скорости процессов ( $\alpha_{\text{Zcr}} \sim Z^3$ ), на

что и указывают данные рис. 3, демонстрирующие намного более быстрый спад интенсивностей ионных линий. Процесс (2) как наименее исследованный из цепочки (1), (2), (4) в плане формирования оптических свойств распадающейся плазмы мы рассмотрим наиболее детально.

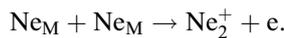
Интерпретация данных рис. 3 в плане сопоставления процессов (1) и (3) достаточно очевидна: уровни  $4d$  недоступны для DR, поэтому поток фотонов в линии  $576.4 \text{ nm}$  пропорционален

$$J_{576.4}(t) \sim \alpha_{1cr}[e]^2[Ne^+]. \quad (5)$$

Линии с уровнями  $3p$ ,  $4p$  и  $3d$  помимо доли потока (5) содержат также вклад DR (4) молекулярных ионов, появляющихся в послесвечении вследствие хорошо изученных [10] процессов конверсии при тройных столкновениях:



и парных столкновений возбужденных атомов неона  $Ne_M$  в метастабильных состояниях:



Рекомбинация молекулярных ионов (4) составляет конкурирующий с (1) поток фотонов:

$$J_{DR} \sim \alpha_{DR}[e][Ne_2^+]. \quad (6)$$

Очевидно, что решение поставленной задачи заключается в исключении из „белого“ света потоков рекомбинации (5) и (6). Представим зарегистрированный в эксперименте поток квантов в „белом“ свете как сумму трех слагаемых:

$$J_W = a_1 J_{576.4} + a_2 J_{DR} + a_3 J_{Ne^{++}}, \quad (7)$$

где

$$J_{Ne^{++}} \sim \alpha_{2cr}[e]^2[Ne^{++}].$$

В качестве первого шага из интенсивности „белого“ света вычтем интенсивность линии  $585.2 \text{ nm}$ , в наименьшей степени подверженной влиянию CRR (1) (рис. 3). Использование для решения задачи именно этой линии обусловлено следующими обстоятельствами. Поскольку алгоритм решения основан на сопоставлении временных зависимостей интенсивностей спектральных линий  $J(t)$ , для анализа должны быть выбраны те из них, которые в наибольшей степени отражают исследуемые процессы и не подвержены влиянию сопутствующих факторов, главным из которых является реабсорбция излучения на переходах в наиболее населенные состояния атома неона конфигурации  $2p^33s$ . Излучение линии  $585.2 \text{ nm}$  не искажено реабсорбцией, поскольку нижним состоянием перехода является верхнее резонансное состояние  $^1P_1$ , населенность которого много меньше населенности упомянутого выше состояния  $^3P_1$ . С другой стороны, в линии  $585.2 \text{ nm}$  переносится практически весь поток

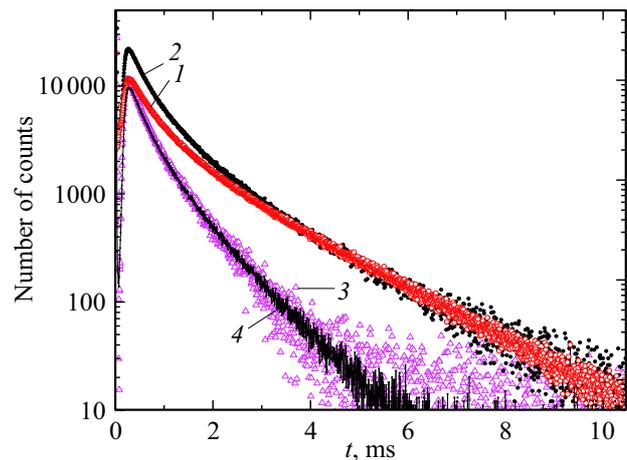


Рис. 4. 1 — интенсивность  $J_{585.2}$  линии  $585.2 \text{ nm}$ , 2 —  $J_{Wk}$ , 3 — разность  $D_1$ , 4 — интенсивность линии  $576.4 \text{ nm}$ , совмещенная с  $D_1$ .

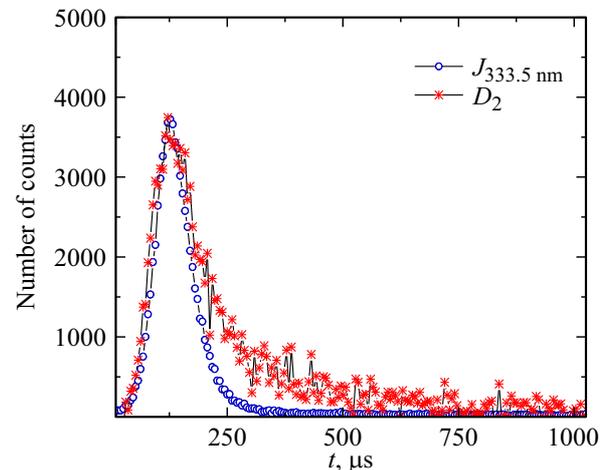


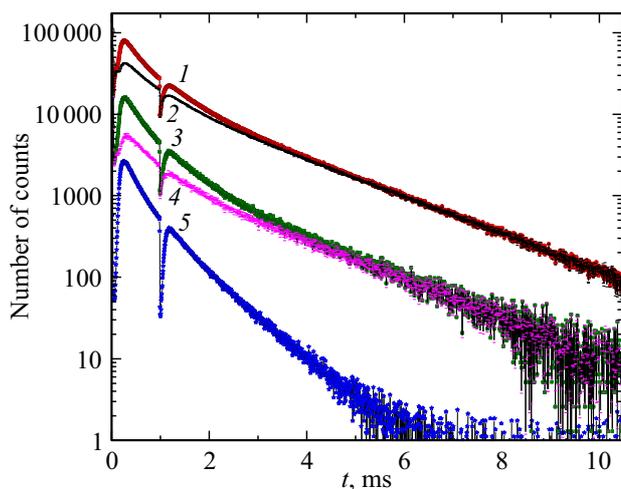
Рис. 5. Разность  $D_2$  и интенсивность ионной линии  $333.48 \text{ nm}$ , совмещенные в максимуме.

излучения с уровня  $2p_1$  [8], на который направлена значительная часть потока DR молекулярных ионов [12].

Продолжая построение алгоритма, подберем коэффициент  $k$  таким образом, чтобы сумма квадратов разностей интенсивностей  $\sum_i (J_{585.2} - J_{Wk})_i^2$  линии  $585.2 \text{ nm}$  и „белого“ света, была минимальной для точек  $i$  при временах в послесвечении  $t > 4.5 \text{ ms}$ , когда вкладом CRR (1) в обе рассматриваемые интенсивности уже можно пренебречь, что видно по  $J_{576.4}(t)$  рис. 3, и составим разность

$$D_1(t) = J_{Wk} - J_{585.2}.$$

Очевидно, что  $D_1(t)$  соответствует потоку в „белом“ свете, за исключением вклада DR и частично потока (5). На рис. 4 представлены  $D_1$  вместе с  $J_{585.2}(t)$  и  $J_W(t)k$ , а также  $J_{576.4}(t)$ , совмещенная с  $D_1$ , начиная с времени  $t > 1 \text{ ms}$ , когда послесвечение уже свободно от ионных линий, таким же способом, что и  $J_W$  с  $J_{585.2}$ . Видно,



**Рис. 6.** Послесвечение с импульсным „подогревом“ электронов: 1, 3, 5 — интенсивности линий 585.2, 724.5 и 576.4 nm; 2, 4 — интенсивности линий 585.2 и 724.5 nm без вклада CRR.

что исключение вклада DR из „белого“ света дало разность  $D_1(t)$ , практически тождественную потоку CRR ионов  $\text{Ne}^+$ . Очевидно, что, если рассматриваемая модель формирования потока излучения распадающейся плазмы верна (т.е. поток содержит только три рассмотренных составляющих), то полученный результат означает, что вклад процесса (2) в интегральное излучение плазмы мал по сравнению с (1) и (4), но все же заметен, благодаря, в основном, излучению в коротковолновой области. Вычисляя разность  $D_2(t)$  совмещенных  $D_1(t)$  и  $J_{576.4}(t)$ , и располагая ее на рис. 5 вместе с ионной линией  $J_{333.48}(t)$  (нормируя интенсивность последней так, чтобы она была близка к  $D_2$  в области максимума), видим, что  $D_2$  оказывается весьма близкой к  $J_{333.5}(t)$ .

Основываясь только на результатах изложенного в данной работе эксперимента, нельзя утверждать, отражает ли различие  $D_2(t)$  и  $J_{333.5}(t)$ , выходящее за рамки статистической погрешности, реальные процессы в плазме. Во всяком случае изложенное показывает, что анализ в спектроскопическом эксперименте „белого“ света наряду с линейчатый излучением известного происхождения с помощью несложных процедур может быть использован для разделения вкладов и исследования различных процессов заселения возбужденных состояний атомов в плазме сложного ионного состава. В заключение заметим, что похожий алгоритм разделения потоков заселения возбужденных уровней может быть осуществлен и в отношении процессов (1) и (2). Для нахождения свободных от CRR (1) потоков фотонов в линиях 585.2 и 724.5 nm мы обратились к более информативному эксперименту с „подогревом“ электронов слабым импульсным (длительностью 1  $\mu\text{s}$ ) высокочастотным полем (рис. 6). Линия 576.4 nm, как и следовало ожидать в соответствии с температурной зависимостью константы скорости  $\alpha_{1cr}(T_e) \sim T_e^{-4.5}$  [7], значительно сильнее реагирует на изменение  $T_e$  по сравнению с линиями 585.2 и 724.5 nm. Видно также

что „вычитание“ вклада CRR в интенсивности этих линий приближает их реакцию на подогрев электронов к характерной для DR слабой зависимости  $\alpha_{DR}(T_e)$ .

## Выводы

Методом кинетической спектроскопии в области длин волн 300–850 nm исследовано излучение распадающейся плазмы протяженного барьерного разряда в неоне низкого давления в условиях сложного ионного состава. На основе анализа излучения плазмы в „белом“ свете наряду со спектральными атомными и ионными линиями реализован алгоритм разделения вкладов процессов рекомбинации ионов  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ne}_2^+$  и  $\text{Ne}^{++}$  с электронами в образование возбужденных частиц распадающейся плазмы и показано, что CRR двухзарядных ионов неона, существенно обогащая спектр плазмы в области ближнего ультрафиолета, не может конкурировать с ионами  $\text{Ne}_2^+$  и  $\text{Ne}^+$  в формировании полного потока излучения распадающейся плазмы в оптическом диапазоне.

## Конфликт интересов

Конфликт интересов отсутствует.

## Список литературы

- [1] V.A. Ivanov. Plasma Sources Sci. Technol., **29**, 045022 (2020). DOI:org/10.1088/1361-6595/ab7f4c
- [2] В.А. Иванов. Опт. и спектр., **130**(7), 996 (2022). DOI: 10.61011/OS.2023.09.56602.5307-23 [V.A. Ivanov. Opt. Spectrosc., **130** (7), 799 (2022). DOI: 10.61011/OS.2023.09.56602.5307-23].
- [3] В.А. Иванов. Опт. и спектр., **129** (8), 992 (2021). DOI: 10.61011/OS.2023.09.56602.5307-23 [V.A. Ivanov. Opt. Spectrosc., **129**(10), 1104 (2021). DOI: 10.1134/S0030400X21080099].
- [4] В.А. Иванов. Опт. и спектр., **130** (7), 1004 (2022). DOI: 10.21883/OS.2022.07.52719.3077-21 [V.A. Ivanov. Opt. Spectrosc., **130**(7), 806 (2022). DOI: 10.21883/EOS.2022.07.54720.3077-21].
- [5] F.J. de Hoog, H.J. Oskam. J. Appl. Phys., **44**, 3496 (1973).
- [6] R. Johnsen., M.A. Biondi. Phys. Rev. A, **18** (3), 996 (1978).
- [7] A.V. Gurevich, L.P. Pitaevskii. Sov. Phys. JETP., **19** (4), 870 (1964).
- [8] NIST Atomic Spectra Database Lines Form [Электронный-ресурс]. URL: [https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines\\_form.html](https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html).
- [9] Y.J. Shiu, M.A. Biondi, D. P. Sipler. Phys. Rev. A, **15** (2), 494 (1977).
- [10] А.В. Елецкий, Б.М. Смирнов. УФН, **136** (1), 25 (1982).
- [11] С.В. Гордеев, В.А. Иванов, Ю.Э. Скобло. Опт. и спектр., **127**(3), 396 (2019). DOI: 10.61011/OS.2023.09.56602.5307-23 [S. V. Gordeev, V. A. Ivanov, Yu. E. Skoblo. Opt. Spectrosc., **127**(3), 418 (2019). DOI: 10.1134/S0030400X19090133].
- [12] В.А. Иванов. УФН, **162** (1), 35 (1992). [V.A. Ivanov. Usp. Fiz. Nauk., **162**, 35 (1992)].