

01

## Барьерный разряд в гелии при средних давлениях. Спектроскопия послесвечения

© В.А. Иванов

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

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

Поступила в редакцию 02.07.2018 г.

В окончательной редакции 09.11.2018 г.

Принята к публикации 12.11.2018 г.

Спектроскопически исследована распадающаяся плазма, создаваемая диэлектрическим барьерным разрядом (DBD) в гелии поперек цилиндрической трубки при давлении гелия 1–40 Торг. Демонстрируется радикальное отличие характера послесвечения барьерного разряда от послесвечения продольного импульсного разряда при той же плотности электронов плазмы. Показано, что эффект обусловлен аномально низкой плотностью метастабильных атомов  $\text{He}(2^1S_0, ^3S_1)$  в плазме, создаваемой DBD. В таком эксперименте оказывается возможным наблюдение чисто рекомбинационного послесвечения, свободного от процессов с участием метастабильных атомов, что принципиально важно для решения проблемы гелиевого послесвечения.

DOI: 10.21883/OS.2019.03.47361.185-18

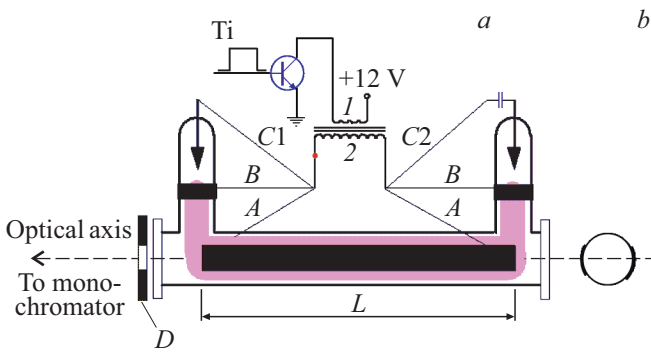
### Введение

Настоящая работа является результатом поиска оптимального способа создания слабоионизованной плазмы для решения задачи о рекомбинации в гелиевом послесвечении. Несмотря на более чем полувековую историю исследований, в литературе нет единого мнения о роли диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов гелия в формировании атомного спектра распадающейся гелиевой плазмы [1]. Процессы электрон-ионной рекомбинации обычно исследуются в распадающейся плазме, созданной импульсным разрядом постоянного тока [2]. В такой плазме плотность атомов в долгоживущих метастабильных состояниях  $2^3S_1$ , как правило, на порядок превышает плотность электронов. В стадии распада плазмы парные столкновения этих атомов создают мощный поток ионизации, маскирующий рекомбинационные процессы и радикально усложняющий определение констант их скоростей. Как следствие, для константы скорости диссоциативной рекомбинации в литературе можно найти значения от  $10^{-8}$  см<sup>3</sup>/с [3] в ранних работах до значений, меньших  $10^{-10}$  [2]. В настоящей работе мы описываем успешную попытку создания гелиевой плазмы с аномально низкой плотностью метастабильных частиц. Такая плазма, как показал эксперимент, может быть создана барьерным разрядом при давлениях от одного до нескольких десятков Торг. Круг приложений низкотемпературной плазмы DBD в последние годы существенно расширился [4]. Как правило, в этих приложениях используется плазма при нормальном или близком к нему давлении, что позволяет ее применять в различных технологических процессах в атмосфере воздуха. Различают множество конфигураций и типов разрядов с диэлектрическими барьерами [5]. Цель настоящей работы состояла в поиске такой конфигурации, которая оказалась бы удобной

для постановки эксперимента по спектроскопическому исследованию электрон-ионной рекомбинации в плазме невысоких давлений и при низких частотах разряда в ячейке достаточно протяженных размеров. Период  $T_p$  повторения разряда определяется спецификой задачи, т.е.  $T_p$  должно заметно превышать характерные времена рассматриваемых процессов. Требование в отношении геометрических размеров вытекает из целесообразности создания плазменного образования, по своим параметрам близкого к однородному вдоль направления наблюдения. Один из параметров, который не должен претерпевать заметных изменений — температура газа  $T_g$ . Его неоднородный разогрев, даже в простейших условиях равенства температур электронов  $T_e$  и атомов, усложняет обработку эксперимента и, следовательно, уменьшает точность извлекаемых из него данных. Особенно критична неопределенность температуры частиц для анализа механизма ударно-радиационной рекомбинации (CRR) ввиду сильной зависимости константы скорости от температуры:  $\alpha_{\text{CRR}} \sim T_e^{-4.5}$  [6,7]. Совмещение двух условий — минимизация разогрева газа, что достигается уменьшением его плотности, и необходимость создать плазму с достаточно высокой относительной концентрацией молекулярных ионов диктуют выбор давления для постановки обсуждаемого эксперимента — единицы-десятки Торг. В результате тестирования нескольких вариантов разряда мы пришли к оптимальному, на наш взгляд, решению.

### Эксперимент

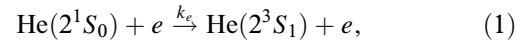
На рис. 1 показаны четыре испытанных варианта разряда, инициированного одной и той же схемой импульсного питания в разрядной трубке с несколькими электродами. Во всех вариантах средний ток равен



**Рис. 1.** (а) Разрядная трубка диаметром 3,9 см,  $L = 23$  см;  $D$  — диафрагма диаметром 0,5 см. (б) Расположение электродов на внешней боковой поверхности трубки.

нулю, что важно для исключения явления катафореза при работе со смесями газов. Источником напряжения пробоя служила вторичная обмотка трансформатора в обратном включении с соотношением чисел витков  $N_2/N_1 = 20$ . Этот режим осуществляется при разомкнутой вторичной обмотке в течение импульса напряжения  $T_i$ , открывающего транзистор, когда происходит нарастание тока первичной обмотки от источника напряжения (в данном случае 12 В) и соответственно накопление энергии в магнитопроводе трансформатора. При этом напряжение на электродах  $12N_2/N_1 = 240$  В недостаточно для развития разряда. По окончании импульса транзистор закрывается, и накопленная энергия через вторичную обмотку доставляется к нагрузке. Мы использовали транзистор IRG4PC50UD с максимально допустимым напряжением на коллекторе 600 В, что при указанном соотношении  $N_2/N_1$  соответствует максимальному напряжению на электродах разрядной трубки 12000 В. Регулировка мощности схемы осуществлялась изменением длительности импульса  $T_i$  и была достаточной при всех условиях для создания плазмы протяженностью более 23 см с плотностью электронов на оси трубки более  $10^{11} \text{ см}^{-3}$ . Разрядная трубка наполнялась гелием, прошедшим двухступенчатую очистку пропусканием через охлаждаемый жидким азотом активированный уголь и в дополнительной ячейке с катафоретическим отделением примесей. На предварительной стадии эксперимента спектроскопическими методами оценивались плотности атомов гелия в метастабильных состояниях  $[\text{He}(2^1S_0)]$ ,  $[\text{He}(2^3S_1)]$  и электронов  $[e]$  на оси трубки. Спектроскопические измерения проводились с помощью монохроматора с разрешением 0,1 nm. Техника эксперимента в основном аналогична описанной в работе [8]. Световые потоки регистрировались по методу многоканального счета фотонов. Плотности  $[\text{He}(2^1S_0)](t)$  и  $[\text{He}(2^3S_1)](t)$  измерялись по поглощению излучения дополнительного источника на линиях 501,6 и 388,9 nm соответственно. В качестве такого источника использовался слаботочный разряд с полым катодом в гелии при давлении 7 Torr. Плотность электронов  $[e]$  оценивалась по скорости спада  $[\text{He}(2^1S_0)](t)$  в раннем

послесвечении за счет процесса



который в данных условиях является доминирующим каналом разрушения атомов  $\text{He}(2^1S_0)$ . Константа скорости процесса (1) известна [9]:  $k_e \approx 4 \cdot 10^{-7} \text{ см}^3/\text{с}$  и не зависит от температуры электронов [10]. Последнее важно, потому что  $T_e$  может меняться в ранней стадии послесвечения [2].

На этой стадии эксперимента мы сравнивали результаты спектроскопических измерений, выбирая при этом условия, отвечающие одинаковым плотностям электронов на оси. Были опробованы следующие варианты подключения вторичной обмотки трансформатора к электродам трубки (рис. 1).

C1-C2 — разряд с внутренними электродами. Конденсатор  $C = 100 \text{ pF}$  обеспечивал равенство нулю среднего тока.

В-В — разряд с внешними электродами: кольцевые полоски медной фольги на внешней поверхности вертикальных отростков трубки.

В-C1 — разряд между внутренним и внешним электродами, или разряд с одним диэлектрическим барьером. По сравнению с разрядом В-В он позволяет создавать плазму со значительно большей плотностью электронов при тех же параметрах схемы питания.

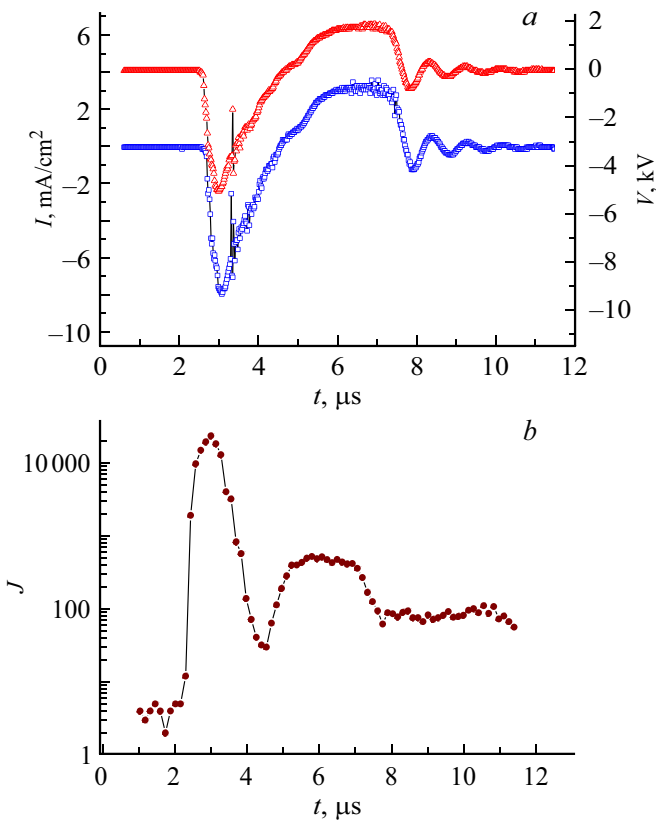
A-A — разряд между электродами из медной фольги прямоугольной формы размером  $23 \times 2,5$  см, расположенными на боковых поверхностях трубки, как это показано на рис. 1, б.

Как показали измерения, первые три типа разряда мало отличались друг от друга по отношению плотностей  $[e](t_0)/([\text{He}(2^1S_0)](t_0) + [\text{He}(2^3S_1)](t_0))$  частиц на оси трубки ( $t_0$  — начало послесвечения) и были близкими по этому параметру к обычному импульсному DC-разряду [2]. В последнем случае это отношение было в несколько раз больше, что радикально меняло картину послесвечения.

## Результаты измерений

### Характеристики активной фазы и радиальное распределения яркости излучения

На рис. 2 представлены зависимости от времени плотности тока разряда, напряжения на электродах (а) и интенсивности  $J(t)$  излучения наиболее яркой линии гелия 587,6 nm (б) при подключении вторичной обмотки трансформатора к электродам А-А. Видно, что амплитуда плотности тока разряда соответствует типичным значениям тлеющего DBD-разряда [4,5] при равенстве нулю среднего значения. Иногда на спаде отрицательной полуволны тока появлялись одиночные, как показано на рис. 2, или серия выбросов тока и напряжения, что указывало на кратковременный переход разряда в нитевидный режим, но в целом картина на экране осциллографа была весьма стабильной. Внутренние поверхности



**Рис. 2.** (а) Плотность тока разряда (нижняя кривая) и напряжения на электродах (верхняя кривая); частота импульсов 80 Hz, давление гелия 19 Торг. *b* — интенсивность линии 587.6 nm (в отн. ед.) в центре трубки при наблюдении вдоль оси.

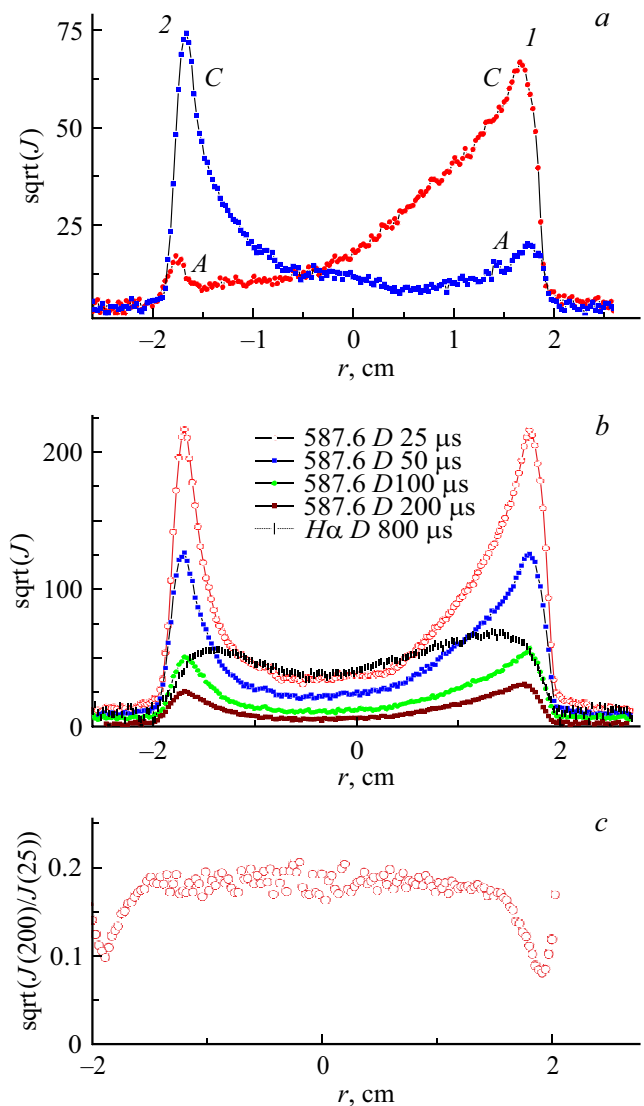
разрядной трубки вблизи электродов были равномерно покрыты слоем плазмы. Как видно из рис. 2, *b*, первая (отрицательная на рис. 2, *a*) полуволна тока сопровождается появлением свечением на оси почти на два порядка величины более ярким, чем вторая полуволна, более продолжительная, но меньшей амплитуды. При этом каждая полуволна создает плазму преимущественно в прикатодном слое. Это следует из рис. 3, показывающего распределения яркости линии 587.6 nm по расстоянию между электродами в активной фазе (*a*) и при различных временах в послесвечении (*b*). Данные получены сканированием изображения трубки (диафрагма при проведении этих измерений снималась) в плоскости входной щели монохроматора при стробировании сигнала ФЭУ импульсами длительностью  $\delta t = 2.5 \mu s$  в активной фазе и  $\delta t = D/5$  ( $D$  — время задержки стробирующего импульса по отношению к моменту начала разряда) в послесвечении.

В активной фазе разряда свечение начинается непосредственно у внутренней поверхности трубки, причем имеет место заметная асимметрия яркости, сохраняющаяся в течение длительного времени в послесвечении. Подобная асимметрия является типичной для DBD и обусловлена различием напряженности электрического

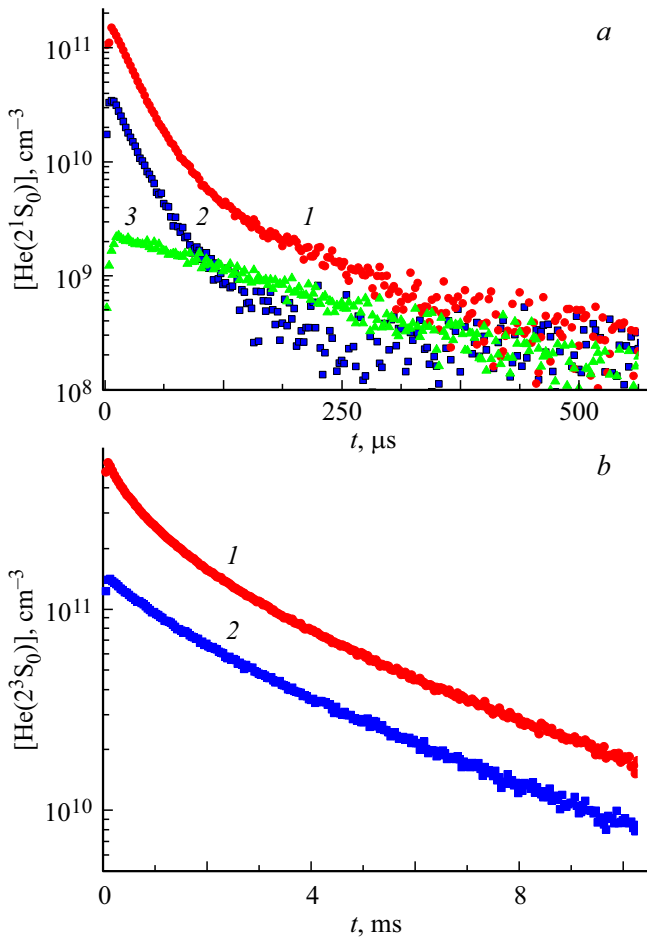
поля в прианодной и прикатодной областях [11] и асимметрией положительной и отрицательной полуволн тока. Роль амбиполярной диффузии в послесвечении проявляется прежде всего в областях плазмы вблизи электродов. Это видно из рис. 3, *c* по изменению со временем распределения  $J(r)$ . Время основной моды амбиполярной диффузии в трубке  $R = 1.9$  cm для давления гелия 19 Торг и температур частиц 300 К

$$\tau_a = (D_a)^{-1} (R/2.4)^2 \sim 15 \text{ ms},$$

$D_a$  — коэффициент амбиполярной диффузии ионов.



**Рис. 3.** Распределение интенсивности (в произв. ед.) линии 587.6 nm в плазме между электродами: *a* — активная стадия, 1 — первая полуволна, электрод 1—катод (C), электрод 2—анод (A); 2 — вторая полуволна, электрод 2—катод (C), электрод 1—Анод; *b* — послесвечение при различных временах,  $D$  — задержка импульса, стробирующего ФЭУ. Времена отсчитываются от начала разряда. Давление 19 Торг, плотность электронов в начале послесвечения  $[e](r = 0) \approx 8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . (*c*) Отношение интенсивностей линии 587.6 nm в послесвечении при временах 200 и 25 μs.



**Рис. 4.** Плотности метастабильных атомов на оси трубки в послесвечении разрядов В-В (1) и DBD (2). Плотность электронов в начале послесвечения  $[e](r = 0) \approx 8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  (1, 2) и  $\approx 1.3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  (3).

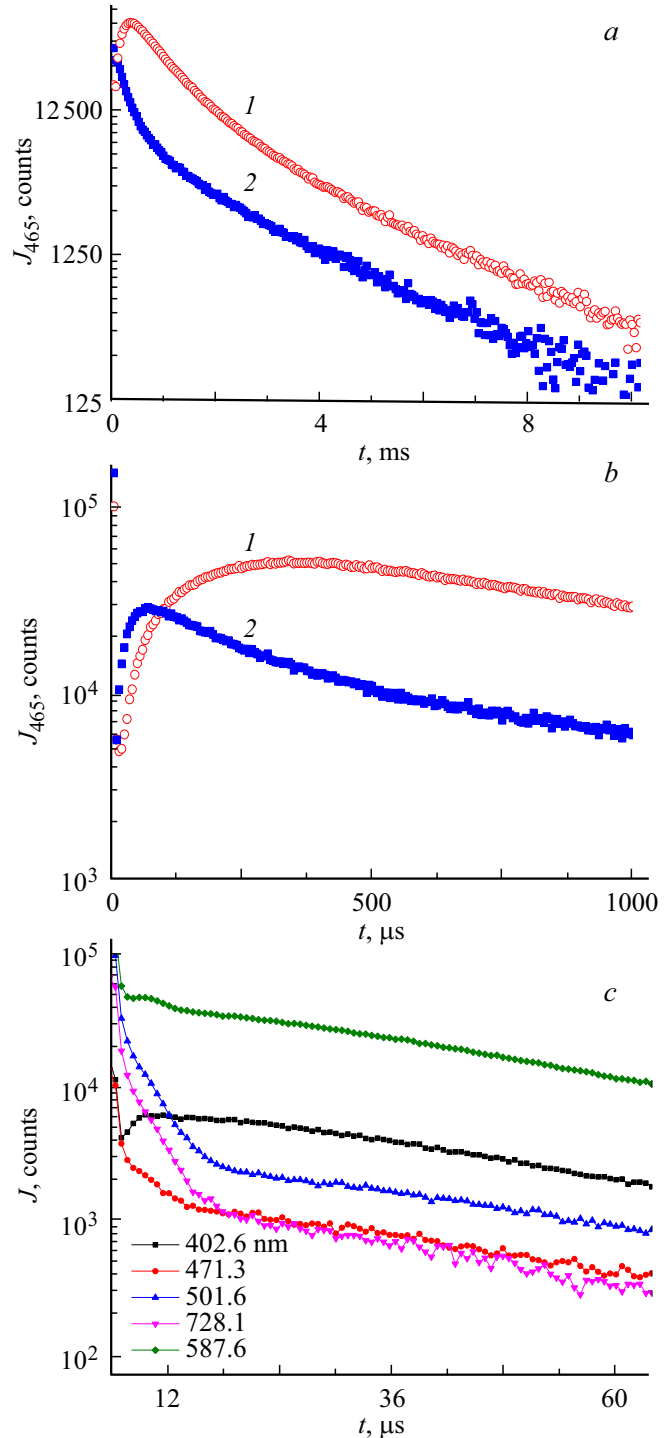
Реальное пространственное распределение заряженных частиц, как можно судить по  $J(r)$  рис. 3, далеко от бesselова, имеет максимумы плотности плазмы вблизи стенок, которые прежде всего и сглаживаются за счет высших мод диффузии за времена  $t \ll \tau_a$ .

**Метастабильные атомы**

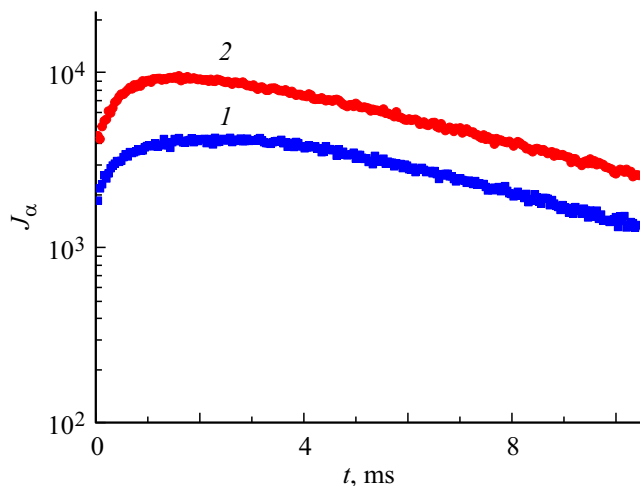
На рис. 4 сравниваются плотности  $[\text{He}(2^1S_0)](t)$  и  $[\text{He}(2^3S_1)](t)$  в послесвечении двух вариантов разрядов — В-В и А-А. Последний в дальнейшем будем называть DBD. Измерения поглощения велись на линиях 501.6 nm ( $3^1P_1 - 2^1S_0$ ) и 388.9 nm ( $3^3P_1 - 2^3S_1$ ). Для  $[\text{He}(2^3S_1)](t)$  расчеты проводились с учетом тонкой структуры линии 388.9 nm.

Из всего набора проведенных измерений выбирались те данные, которые соответствовали одинаковым скоростям спада  $[\text{He}(2^1S_0)](t)$  в раннем послесвечении, т.е. одинаковым плотностям электронов, создаваемых обоими разрядами в центре трубки. Данным 1 и 2 на рис. 4 соответствует  $[e](r = 0) \approx 8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . До-

минирующая роль процесса (1) в разрушении атомов  $\text{He}(2^1S_0)$  следует из сравнения скоростей распада  $[\text{He}(2^1S_0)]$  при различных плотностях электронов. Кривая 3 на рис. 4,а соответствует минимальной в эксперименте плотности электронов, создаваемой разрядом В-В:  $[e](r = 0) \approx 1.3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . Из данных рис. 4



**Рис. 5.** а — послесвечение молекулярной полосы 465 nm, б — его ранняя стадия. Условия те же, что и на рис. 3. 1 — разряд В-В, 2 — разряд DBD. в — интенсивности линий в раннем послесвечении DBD.



**Рис. 6.** Интенсивность линии  $H_\alpha$  атома водорода в послесвечении на оси разрядной трубки (в произв. ед.): 1 — разряд DBD, 2 — разряд В-В. Условия те же, что и на рис. 3.

следует, что послесвечение DBD развивается при втрое меньшей плотности синглетных метастабилей. Что касается  $\text{He}(2^3S_1)$ , то этих атомов в начальной стадии послесвечения почти в 4 раза меньше по сравнению с другими типами разрядов.

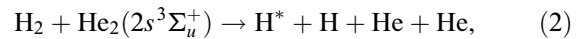
### Послесвечение DBD в атомном и молекулярном спектрах

Рис. 5, *a, b* демонстрирует различие послесвечения молекулярной полосы гелия около 465.0 nm в послесвечении двух разрядов. Видно, что имеет место радикальное изменение характера гелиевого молекулярного послесвечения в условиях малой относительной плотности метастабилей. Мы полагаем, что в случае DBD начальная фаза послесвечения полосы гелия свободна от процессов с участием метастабильных атомов и имеет чисто рекомбинационный характер. Со временем, как видно из рис. 5, *a*, система приходит к обычно наблюдаемому состоянию, контролируемому метастабильными атомами.

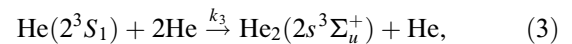
Рис. 5, *c* показывает еще одно интересное следствие устранения „метастабильного облака“, в которое обычно „укутано“ гелиевое послесвечение. На нем показаны интенсивности нескольких линий атома гелия в раннем послесвечении DBD. Видно, что линии 728.1, 501.6 и 471.3 nm принципиально иначе меняются со временем по сравнению с 587.6 и 402.6 nm. Отметим, что энергии верхних уровней линий 587.6 и 501.6 nm отличаются менее чем на 0.015 eV. В то же время, раннее послесвечение всех других разрядов, создававшихся схемой рис. 1, практически одинаково на всех указанных линиях.

На рис. 6 показан временной ход интенсивности  $J_\alpha(t)$  линии  $H_\alpha$  656.3 nm атома водорода, линии серии Бальмера которого с некоторым трудом были обнаружены в излучении плазмы.

Измерения  $J_\alpha(t)$  мы использовали для сравнения плотностей метастабильных молекул гелия в обсуждаемых типах разрядов. Специфический характер  $J_\alpha(t)$ , а именно равенство интенсивностей в начале и в конце послесвечения, отражает механизм возбуждения атома водорода в распадающейся гелиевой плазме [12]



где  $\text{He}_2(2s^3\Sigma_u^+)$  — молекула гелия в метастабильном состоянии. Образование этих молекул в данных условиях связано с процессом конверсии атомных метастабилей при тройных столкновениях [2,9]



$k_3 = (1.9 \pm 0.4) \cdot 10^{-34} \text{ cm}^6/\text{c}$  [2].

Характерное время конверсии (3) при  $P_{\text{He}} = 19 \text{ Torr}$  около 10 ms, поэтому за время активной фазы (единицы  $\mu\text{s}$ ) плотность  $[\text{He}_2(2s^3\Sigma_u^+)]$  в отличие от атомных метастабилей измениться не успевает. Это и объясняет поведение  $J_\alpha(t)$  в случае механизма (2). Тем самым данные рис. 6 позволяют заключить, что и метастабильных молекул в послесвечении DBD заметно меньше по сравнению с другими разрядами. Об их пространственном распределении можно судить по данным рис. 3, *b* о зависимости  $J_\alpha(r)$  при времени в послесвечении, соответствующему максимуму интенсивности линии  $H_\alpha$ .

### Заключение

Продемонстрирована возможность создания гелиевой плазмы с аномально низкой плотностью метастабильных атомов и молекул. В качестве источника такой плазмы использован импульсный протяженный разряд с внешними электродами в ячейке большого объема при средних давлениях. По своим характеристикам это диффузный тлеющий диэлектрический барьерный разряд (DBD). Послесвечение такой плазмы в атомном и молекулярном спектрах в течение длительного времени свободно от влияния процессов с участием метастабильных атомов, что открывает новые возможности в плане исследования механизмов рекомбинации атомных и молекулярных ионов в плазме

Автор благодарен Ю.Э. Скобло за расчеты населенностей метастабильных атомов гелия по результатам измерения поглощения.

### Список литературы

- [1] Carata L., Orel A.E. // Phys. Rev. A. 1999. V. 59. P. 2804.
- [2] Deloche R., Monchicourt P., Cheret M., Lambert F. // Phys. Rev. A. 1976. V. 13. P. 1140.
- [3] Johnson R.A., McClure B.T., Holt R.B. // Phys. Rev. 1950. V. 80. P. 376.
- [4] Brandenburg R. // Plasma Sources Sci. Technol. 2017. V. 26. P. 053001.

- [5] *Bazinette R., Subileau R., Paillol J., Massines F.* // *Plasma Sources Sci. Technol.* 2014. V. 23. P. 035008.
- [6] *Bates D.R., Kingston A.E.* // *Nature.* 1961. V. 189. P. 652.
- [7] *Stevelfelt J., Boulmer J., Delpech J.F.* // *Phys. Rev. A.* 1975. V. 12. P. 1246.
- [8] *Ivanov V.A.* // *J. Phys. B.* 1998. V. 31. P. 1765.
- [9] *Phelps A.V.* // *Phys. Rev.* 1955. V. 99. P. 1307.
- [10] *Иванов В.А., Приходько А.С., Скобло Ю.Э.* // *Опт. и спектр.* 1991. Т. 70. В. 3. С. 507.
- [11] *Golubovskii Yu.B., Maiorov V.A., Behnke J., Behnke J.F.* // *J. Phys. D.* 2003. V. 36. P. 39.
- [12] *Иванов В.А., Скобло Ю.Э.* // *Опт. и спектр.* 2000. Т. 88. № 2. С. 185.