

# Диэлектрический барьерный разряд в смеси He–Ne низкого давления. Спектроскопия послесвечения на переходах $2p^55s \rightarrow 2p^53p$

© С.В. Гордеев, В.А. Иванов<sup>✉</sup>, Ю.Э. Скобло

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

<sup>✉</sup> e-mail: v.a.ivanov@spbu.ru

Поступила в редакцию 27.01.2022 г.

В окончательной редакции 27.01.2022 г.

Принята к публикации 24.02.2022 г.

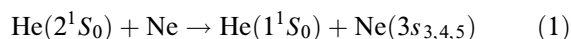
Спектроскопически исследованы и промоделированы процессы заселения и разрушения населенностей уровней конфигурации  $2p^55s$  атома неона в распадающейся плазме низкочастотного барьерного разряда в смеси He–Ne. Условия эксперимента: давление гелия 0.08–22 Torr, неона  $\leq 3$  mTorr, плотность электронов менее  $10^{11}$  cm<sup>-3</sup>. На основе данных об эволюции населенностей уровней  $3s_i$  (в обозначениях Пашена) с изменением давления гелия получены уточненные данные о константах скоростей столкновительных процессов, определяющих кинетику этих уровней в плазме He–Ne.

**Ключевые слова:** гелий-неоновая плазма, передача возбуждения, послесвечение, неупругие столкновения.

DOI: 10.21883/OS.2022.05.52433.3208-21

## Введение

Диэлектрический барьерный разряд (DBD) находит все более широкое применение в прикладной оптике для оптимизации источников ВУФ излучения [1] и газоразрядных лазеров [2]. Такие свойства этого разряда как возможность работы в области давлений от сотых долей Torr до атмосферы при минимальном разогреве газа стимулируют его применение и в практике эксперимента по исследованию элементарных процессов в слабоионизованной плазме [3]. В данной работе DBD использован как источник плазмы He–Ne с целью анализа кинетики населенностей возбужденных уровней атома неона конфигурации  $2p^55s$ , включающей верхние лазерные уровни, для получения данных о константах скоростей неупругих столкновений, ответственных за формирование свойств активной среды He–Ne-лазера. Несмотря на то, что изучению этих процессов посвящены сотни работ [4], сведения о некоторых процессах имеют либо оценочный характер, либо данные различных работ отличаются в несколько раз. Например, сечение передачи возбуждения при столкновениях

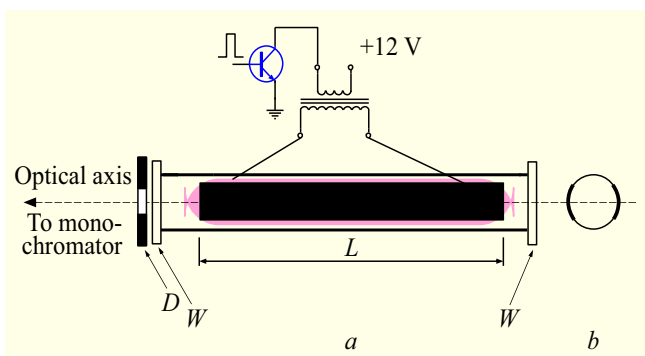


( $3s_{2,3,4,5}$  — уровни конфигурации  $2p^55s$  в обозначениях Пашена) по данным эксперимента [5] менее  $10^{-18}$  cm<sup>2</sup>, что не согласуется с выводами [6]; в отношении скорости одного из основных процессов в активной среде — столкновительной деактивации верхнего лазерного уровня линии 632.8 nm — расхождения в данных достигают трех раз [4]. Одна из основных причин этих расхождений кроется в неудачном, на наш взгляд, выборе условий эксперимента. В большинстве работ в качестве объекта исследования используется плазма газового разряда с

параметрами, близкими к имеющим место в активной среде, т.е. при высоких температуре и плотности электронов, достаточных для их участия наряду с атомами в формировании населенностей возбужденных уровней. Интерпретация результатов измерений констант скоростей атомных процессов в таких условиях требует специального анализа роли электронов [7]. Аналогичные сомнения возникают и в отношении тех результатов, которые были получены при высоких плотностях атомов: как отмечено в [6], надежные данные о распределении потоков заселения при передаче возбуждения могут быть получены только при давлении смеси менее 1 Torr. В этой связи низкочастотный DBD представляется оптимальным способом создания слабоионизованной плазмы, в стадии распада которой при близкой к комнатной температуре электронов и атомов в широком диапазоне давлений, начиная с сотых долей Torr, в рамках спектроскопических методов удобно наблюдать эволюцию плотностей возбужденных атомов при изменении условий эксперимента.

## Экспериментальная часть

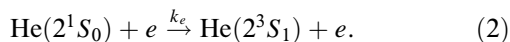
Мы использовали простую схему реализации импульсного барьерного разряда (рис. 1) цилиндрической конфигурации с электродами на боковых сторонах разрядной трубки. Подробности, касающиеся характеристик разряда, изложены в работах [3,8]. В данной работе частота разряда составляла 80–320 Hz, давление гелия варьировалось от 0.08 до 22 Torr при давлении неона менее 3 mTorr. Ток такого разряда представляет собой две полуволны противоположной полярности длительностью несколько микросекунд при равенстве нулю среднего значения. Последнее важно, поскольку



**Рис. 1.** (а) Разрядная трубка — внутренний диаметр 3.9 см,  $L = 22$  см;  $D$  — диафрагма диаметром 5 мм;  $W$  — кварцевые окна. (б) Расположение электродов на боковой поверхности трубки.

ку в отличие от постоянного тока в таком разряде отсутствует разделение смеси вследствие катафореза. Световые потоки регистрировались с помощью метода многоканального счета фотонов с разрешением от 40 ns. Длительность послесвечения при всех условиях была достаточной для наблюдения смены механизма заселения уровней  $2p^55s$  атома неона — от передачи возбуждения в ранней стадии распада плазмы к рекомбинации атомарных  $\text{Ne}^+$  или молекулярных  $\text{HeNe}^+$  и  $\text{Ne}^{2+}$  ионов с электронами [9,10]. Анализ населенностей проводился в раннем послесвечении, в котором интенсивности  $J(t)$  спектральных линий переходов  $5s \rightarrow 3p$  спадали тождественно плотности атомов  $[\text{He}(2^1S_0)](t)$ . Для регистрации  $[\text{He}(2^1S_0)]$  использовался метод поглощения излучения дополнительного источника на линии 501.6 nm. В дополнение к интенсивностям спектральных линий  $J(t)$  регистрировались спектры послесвечения. В данном случае измерения велись с использованием стробирования сигнала фотоэлектронного умножителя в пределах раннего послесвечения.

Плотность электронов в ранней стадии послесвечения оценивалась по скорости спада плотности атомов гелия  $[\text{He}(2^1S_0)](t)$ , основным каналом разрушения которых в условиях малой плотности  $[\text{Ne}]$  является процесс

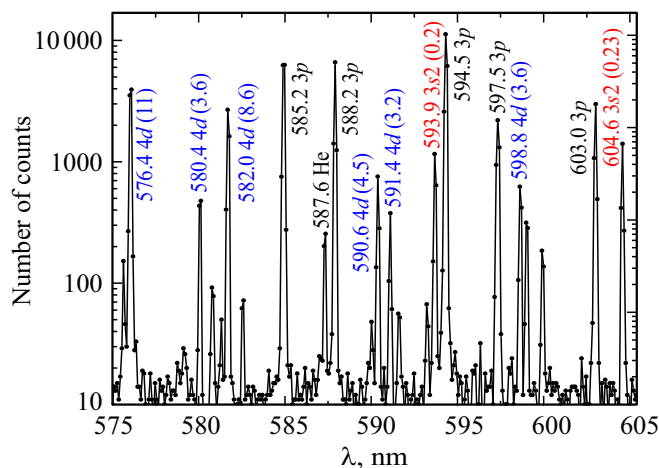


Константа скорости (2)  $k_e \sim 4 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$ , впервые измеренная в [11], слабо зависит от температуры электронов [12], меняющейся в раннем послесвечении. При всех условиях эксперимента на этой стадии временной ход  $[\text{He}(2^1S_0)](t)$  совпадал со спадом интенсивностей линий переходов  $5s \rightarrow 3p$ .

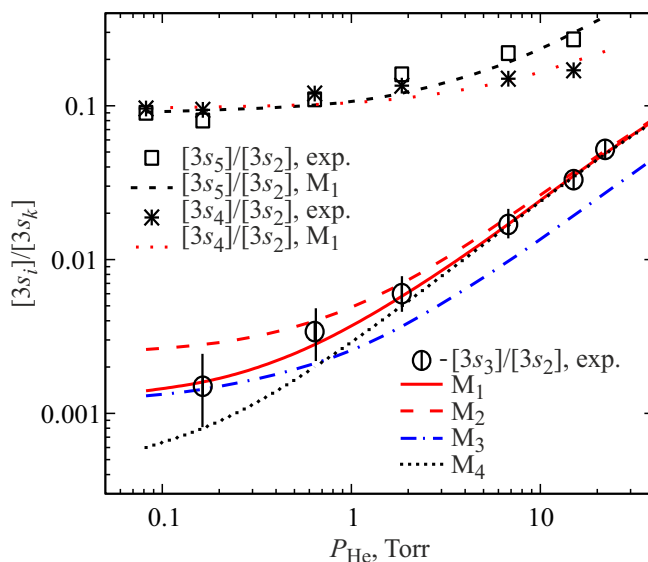
## Обсуждение результатов

### Населенности уровней $3s_2$ и $3s_3$

Фрагмент спектра послесвечения показан на рис. 2. Сравнительно низкое разрешение по длинам волн свя-



**Рис. 2.** Фрагмент спектра послесвечения на ранней стадии распада плазмы. Давление гелия 0.66 Торг. В скобках указаны вероятности переходов в  $10^6 \text{ s}^{-1}$ .



**Рис. 3.** Экспериментальные и модельные зависимости относительной населенности уровней  $3s_i$  от давления гелия.

зано с малостью световых потоков и необходимостью устанавливать широкие входную и выходную щели монохроматора. Спектры в области 570–670 nm зарегистрированы при давлениях гелия 0.08, 0.16, 0.66, 1.85, 6.8, 15 и 22 Торг, из которых первое оказалось слишком малым для уверенной регистрации линий, излучаемых наименее населенным [13] уровнем  $3s_3$ . В отношении кинетики этого уровня литературные данные [4] имеют лишь оценочный характер, и по этой причине основное внимание в работе было уделено именно ему.

Результаты эксперимента по определению относительной населенности уровней  $[3s_3]/[3s_2]$  представлены на рис. 3. Они получены усреднением по наиболее ярким

линиям  $J_{3sik}$  с каждого уровня  $3s_i$ :

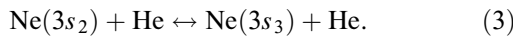
$$[3s_i] = (1/N_k) \sum_k J_{ik}/S_{ik}A_{ik}.$$

Здесь  $S_{ik}(\lambda)$  — чувствительность оптической системы регистрации излучения,  $A_{ik}$  — вероятности переходов, значения которых взяты из NIST Database [14],  $N_k$  — число линий. В качестве величин  $J_{3sik}$  использовались максимумы функций Гаусса, которыми мы аппроксимировали зависимости  $J(\lambda)$  в зарегистрированных спектрах.

На рис. 3 экспериментальные данные представлены вместе с результатами моделирования отношения населенностей  $[3s_3]/[3s_2]$ . Вертикальные отрезки характеризуют неопределенность экспериментальных значений интенсивностей линий, возрастающую с уменьшением давления гелия вследствие уменьшения как относительной, так и абсолютной величин населенности уровня  $3s_3$ .

Модель построена следующим образом.

1. Принимая во внимание структуру уровней  $3s_i$  — две пары ( $3s_2, 3s_3$  и  $3s_4, 3s_5$ ) близко расположенных уровней с зазором между парами (в шкале энергии  $\sim 0.086$  eV), заметно превышающим тепловую энергию, в балансе населенностей  $3s_2$  и  $3s_3$ , кроме передачи возбуждения, учитывались только столкновительные переходы между ними:



Основанием для пренебрежения переходами с уровней  $4d$  служит их малая населенность по сравнению с уровнем  $3s_2$ . Это ясно из сравнения интенсивностей линий (рис. 2) переходов  $4d \rightarrow 3p$  и  $5s \rightarrow 3p$  с учетом того факта, что в указанной области спектра спектральная чувствительность  $S(\lambda)$  меняется незначительно. Так, населенность уровня  $4d$ , излучающего наиболее яркую в послесвечении линию 576.4 nm (расположен на 0.04 eV выше  $3s_2$ ), в 13 раз ниже населенности  $3s_2$ , определяемой по линии 593.9 nm.

Отношение констант скоростей прямых и обратных переходов (3)  $k_{23}$  и  $k_{32}$  связаны принципом детального равновесия, в соответствии с которым

$$k_{32}/k_{23} = (g_2/g_3) \exp\{-0.006/kT_a\} \sim 2.4, \quad (4)$$

$g_2/g_3$  — отношение статистических весов уровней,  $kT_a \sim 0.026$  eV при комнатной температуре частиц. Значение константы  $k_{23}$  находилось из условия наилучшего согласия модельных расчетов с экспериментальными данными.

2. Константы скоростей процессов (1) заселения уровней  $3s_3$  и  $3s_2$  в модели связаны коэффициентом  $m_3$ :  $k_3^m = m_3 k_2^m$ , в качестве константы  $k_2^m$  в системе уравнений мы использовали значение, найденное по общепринятому [4] сечению процесса  $\langle\sigma_2\rangle = 3.6 \cdot 10^{-16}$  cm<sup>2</sup>:  $k_2^m = \langle\sigma_2\rangle\langle v\rangle$ , где  $\langle v\rangle$  — средняя скорость сталкивающихся частиц  $\langle v\rangle \sim 1.4 \cdot 10^5$  cm/s при температуре атомов  $T_a = 300$  K.

3. В разрушении населенностей учтены переходы (3) и процессы, обратные передаче возбуждения (1), константы скоростей которых находились подобно (4) из принципа детального равновесия. Таким образом, модель содержит два варьируемых параметра:  $k_{23}$  и  $m_3$ .

4. Результаты моделирования зависят от степени пленения резонансного излучения на переходе с уровня  $3s_2$  в основное состояние атома неона. Оценки [15] на основе анализа поглощения при малых давлениях (давление неона не более 3 mTorr) для доплеровского характера контуров линий (что оправдано в наших условиях при  $P_{\text{He}}$  не более 22 Torr) показывают, что изменение вероятности перехода, вносимое пленением, не превышает 30%. Тем не менее вычисления мы провели для обоих случаев —  $k_0R \ll 1$  и  $k_0R \gg 1$  ( $k_0$  — коэффициент поглощения в центре линии,  $R$  — радиус разрядной трубки).

Поскольку в эксперименте (при всех условиях) характерные времена изменения населенностей на порядки величины превышали радиационные времена жизни возбужденных состояний, система дифференциальных уравнений

$$\begin{aligned} \frac{d[3s_2]}{dt} = & - [3s_2]\{A_2 + (k_{23} + k_{21})[\text{He}]\} \\ & + k_{32}[3s_3][\text{He}] + k_2^m[\text{He}(2^1S_0)][\text{Ne}], \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \frac{d[3s_3]}{dt} = & - [3s_3]\{A_3 + (k_{32} + k_{31})[\text{He}]\} \\ & + k_{23}[3s_2][\text{He}] + m_3 k_2^m[\text{He}(2^1S_0)][\text{Ne}] \end{aligned} \quad (6)$$

( $A_2$  и  $A_3$  — суммы вероятностей переходов с уровней  $3s_2$  и  $3s_3$ ,  $k_{21}$  и  $k_{31}$  — константы скоростей процессов, обратных передаче возбуждения на уровни  $3s_2$  и  $3s_3$ ) могла быть заменена системой алгебраических уравнений (квазистационарное приближение), из которой следует очевидное решение при  $P_{\text{He}} \rightarrow 0$ :

$$\frac{[3s_3]}{[3s_2]}(0) = m_3 \frac{A_2}{A_3}, \quad (7)$$

т.е. отношение констант скоростей передачи возбуждения определяется отношением населенностей при малом давлении.

Модельные кривые  $M_1$ – $M_4$  на рис. 3 отвечают следующим параметрам.

$M_1$ :  $k_0R \ll 1$ ;  $m_3 = 0.00037$ , т.е. сечение передачи возбуждения на уровень  $3s_3$  ( $\sigma_3$ ) =  $0.00037\langle\sigma_2\rangle \sim 1.3 \cdot 10^{-19}$  cm<sup>2</sup>; второй параметр модели  $k_{23} = 10^{-12}$  cm<sup>3</sup>/s, что соответствует сечению  $\langle\sigma_{23}\rangle \sim 0.7 \cdot 10^{-17}$  cm<sup>2</sup>.

$M_2$ :  $k_0R \ll 1$ . Для теста чувствительности модели к изменению параметра  $m_3$  мы увеличили его вдвое:  $m_3 = 0.00074$ . Видно, во-первых, что эта замена практически не повлияла на результаты расчета при больших давлениях гелия, и, во-вторых, учитывая неопределенность экспериментальных данных, можно полагать, что

сечение  $\langle\sigma_2\rangle$  определено с погрешностью около полутора раз.

$M_3$ :  $k_0R \ll 1$ . Проверка чувствительности модели к изменению параметра  $k_{23}$ .  $m_3 = 0.00037$  — как в  $M_1$ . Сравнение кривых  $M_1$ ,  $M_2$  и  $M_3$  показывает, во-первых, что определяемая величина одного из параметров модели не зависит от вариаций другой, и, во-вторых, что неопределенность параметра  $k_{23}$  существенно ниже, чем неопределенность  $m_3$ .

$M_4$ : Единственное изменение по сравнению с  $M_1$  —  $k_0R \gg 1$ , т. е. излучение на переходе в основное состояние полностью пленено, что втрое уменьшает вероятность  $A_2$  в первом уравнении модели. Как и следовало ожидать, эффект пленения в значительно большей степени влияет на результат при малых давлениях, когда роль столкновительных переходов невелика.

Суммируя возможные источники погрешностей, включая пленение излучения, представим окончательные результаты в следующем виде: сечение передачи возбуждения на уровень  $3s_3$   $\langle\sigma_3\rangle = (1.3 \pm_{0.5}^{0.8}) \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$ , сечение столкновительного переноса возбуждения с уровня  $3s_2$  на уровень  $3s_3$   $\langle\sigma_{23}\rangle = (0.7 \pm 0.15) \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$ . Отметим, что при таком соотношении указанных констант скоростей основным источником заселения уровня  $3s_3$  в плазме He–Ne при давлении гелия более 1 Torr является столкновительный переход  $3s_2 \rightarrow 3s_3$ , а не передача возбуждения (1).

Сравним эти данные с немногочисленными литературными данными. В [6] указан нижний предел сечения  $\langle\sigma_3\rangle = 9 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$ , в [5], как упоминалось выше, авторами дана лишь оценка сечения передачи возбуждения на все три нижних уровня конфигурации  $2p^55s$ :  $\langle\sigma_{3,4,5}\rangle$  менее  $10^{-18} \text{ cm}^2$ . Что касается  $\langle\sigma_{23}\rangle$ , то нам не удалось найти обоснованных экспериментом оценок скорости процесса — вероятно, такая оценка получена впервые.

### Населенности уровней $3s_4$ и $3s_5$

Эти уровни значительно более населены по сравнению с  $3s_3$ , что позволило уверенно регистрировать излучаемые линии при минимальном в эксперименте давлении гелия 0.08 Torr. Размеры символов на рис. 3 при  $P_{\text{He}} = 0.08 \text{ Torr}$  приблизительно отражают неопределенность отношений  $[3s_4]/[3s_2]$  и  $[3s_5]/[3s_2]$ . Видно, что они слабо подвержены влиянию столкновительных процессов. Для них также справедлива формула (7) (с соответствующими индексами), с помощью которой и данными [14] о вероятностях переходов, пренебрегая пленением резонансного излучения с уровня  $3s_4$ , получаем следующее:

$$\frac{[3s_4]}{[3s_2]}(0) = m_4 \frac{A_2}{A_4} \sim \frac{[3s_5]}{[3s_2]}(0) = m_5 \frac{A_2}{A_5} \sim 0.09.$$

Для сечений передачи возбуждения соответственно получаем  $\langle\sigma_4\rangle \sim 0.11\langle\sigma_2\rangle = 4 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$ ,  $\langle\sigma_5\rangle \sim 0.028\langle\sigma_2\rangle = 10^{-17} \text{ cm}^2$  с погрешностью, связанной со статистикой

измерений интенсивностей спектральных линий, около 20%. С ростом давления, как видно из данных рис. 3, происходит как увеличение относительных населенностей обоих уровней, так и уменьшение  $[3s_4]/[3s_5]$ . Первое, как и при анализе  $[3s_3]/[3s_2]$ , мы связываем с включением столкновительных переходов  $3s_2 \rightarrow 3s_{4,5}$ . Изменение отношения  $[3s_4]/[3s_5](P_{\text{He}})$  может иметь две причины: различие сечений  $\langle\sigma_{24}\rangle$  и  $\langle\sigma_{25}\rangle$  и релаксация населенностей за счет столкновительных переходов  $3s_4 \leftrightarrow 3s_5$  с приближением к равновесному значению  $(g_4/g_5) \exp\{-0.011/kT_a\} \sim 0.4$  независимо от соотношения сечений  $\langle\sigma_{24}\rangle$  и  $\langle\sigma_{25}\rangle$ . Ясно поэтому, что находящиеся в рамках рассматриваемой простой модели (уравнения (5), (6) дополнены аналогичными для  $3s_4$  и  $3s_5$ ) отношения  $\langle\sigma_{24}\rangle/\langle\sigma_{25}\rangle$  и  $\langle\sigma_{45}\rangle$  оказываются зависимыми и не могут быть однозначно определены на основании используемого в работе ограниченного набора экспериментальных данных. Грубую оценку сечений  $\langle\sigma_{24}\rangle$  и  $\langle\sigma_{25}\rangle$  можно получить, полагая, что эффективность столкновительного „перемешивания“ уровней  $3s_4$  и  $3s_5$  такая же, что для  $3s_2$  и  $3s_3$ :  $\langle\sigma_{45}\rangle = \langle\sigma_{23}\rangle \sim 0.7 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$ . Модельные кривые на рис. 3 отвечают сечениям  $\langle\sigma_{24}\rangle = 1.4 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$  и  $\langle\sigma_{25}\rangle = 2.3 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$ .

### Заключение

Выполнено спектроскопическое исследование спектра излучения распадающейся плазмы He–Ne в диапазоне изменения плотности атомов гелия  $[\text{He}]$  более чем на два порядка величины и при условии  $[\text{Ne}] \ll [\text{He}]$ . На основе сравнения данных об относительных населенностях уровней  $3s_i$  (обозначения по Пашену,  $i = 2-5$ ) конфигурации  $2p^55s$  атома неона с модельными расчетами найдены константы скоростей передачи возбуждения на уровни  $3s_3$ ,  $3s_4$  и  $3s_5$  при столкновениях атомов гелия в метастабильном состоянии  $2^1S_0$  с атомами неона и столкновительных переходов между уровнями  $3s_2$  и  $3s_3$ . Эти данные могут быть использованы для уточнения теоретических моделей процессов в плазме He–Ne.

### Конфликт интересов

Конфликт интересов отсутствует.

### Список литературы

- [1] M.I. Lomaev, E.A. Sosnin, V.F. Tarasenko, D.V. Shits, V.S. Skakun, M.V. Erofeev, A.A. Lisenko. Instrum. Exp. Tech., **49** (5), 595–616 (2006). DOI: 10.1134/S0020441206050010
- [2] U. Kogelschatz. Plasma Chem. Plasma Proc., **23** (1), 1–46 (2003). DOI: 10.1023/A:1022470901385
- [3] V.A. Ivanov. Plasma Sources Sci. Technol., **29** (4), 045022 (2020). DOI: 10.1088/1361-6595/ab7f4c
- [4] A.Z. Devdariani, A.L. Zagrebina, K. Blagoev. Annales de Physique, **17**(5), 365–470 (1992). DOI: 10.1051/anphys:01992001705036500

- [5] J.T. Massey, A.G. Schulz, B.F. Hochheimer, S.M. Cannon. *J. Appl. Phys.*, **36** (6), 658–659 (1965). DOI: 10.1063/1.1714054
- [6] Ю.З. Ионих, Н.П. Пенкин. *Опт. и спектр.*, **31** (5), 837–840 (1971).
- [7] C.S. Willett, R.T. Young. *J. Appl. Phys.*, **43** (2), 725–727 (1972). DOI: 10.1063/1.1661185
- [8] В.А. Иванов. *Опт. и спектр.*, **126** (3), 247–252 (2019). DOI: 10.21883/OS.2019.03.47361.185-18 [V.A. Ivanov. *Opt. Spectr.*, **126** (3), 167–172 (2019). DOI: 10.1134/S0030400X1903007X].
- [9] В.А. Иванов, А.С. Петровская, Ю.Э. Скобло. *Опт. и спектр.*, **114** (5), 750–758 (2013). DOI: 10.7868/S0030403413040090 [V.A. Ivanov, A.S. Petrovskaya, Yu.E. Skoblo. *Opt. Spectr.*, **114** (5), 688–695 (2013). DOI: 10.1134/S0030400X13040097].
- [10] В.А. Иванов, А.С. Петровская, Ю.Э. Скобло. *Химическая физика*, **34** (8), 63–69 (2015). DOI: 10.7868/S0207401X15080117 [V.A. Ivanov, A.S. Petrovskaya, Yu.E. Skoblo. *Russ. J. Phys. Chem. B*, **9** (4), 565–570 (2015). DOI: 10.1134/S1990793115040235].
- [11] A.V. Phelps. *Phys. Rev.*, **99** (4), 1307–1313 (1955). DOI: 10.1103/PhysRev.99.1307
- [12] В.А. Иванов, А.С. Приходько, Ю.Э. Скобло. *Опт. и спектр.*, **70** (3), 507–510 (1991). [V.A. Ivanov, A.S. Prikhod'ko, Yu.E. Skoblo. *Opt. Spectrosc.*, **70** (3), 297–299 (1991)].
- [13] H.K. Naak, B. Wittig, F. Stuhl. *Z. für Naturforsch. A*, **35a** (12), 1342–1349 (1980). DOI: 10.1515/zna-1980-1214
- [14] 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)
- [15] H.K. Holt. *Phys. Rev. A*, **13** (4), 1442–1447 (1976). DOI: 10.1103/PhysRevA.13.1442