

ВУФ- и УФ-излучение импульсных самостоятельных разрядов

А.Н. Панченко

*Институт сильноточной электроники СО РАН
634050, Томск, Россия, пр. Академический, 2/3, alexei@loi.hcei.tsc.ru*

Работа посвящена исследованию ВУФ- и УФ-излучения в плазменных струях и диффузных разрядах, формируемые короткими импульсами напряжения в смесях инертных газов с различными добавками. Обнаружено интенсивное излучение на ВУФ-линиях атомарного азота в плазменных струях и диффузных разрядах. Определены условия достижения максимальной интенсивности данного излучения. При разряде в струе газа мощность излучения на 149,3 и 174,3 нм достигала $6,8 \text{ мВт/см}^2$. Подтверждено предположение о каскадной передаче энергии на верхний уровень перехода полосы Лаймана молекулярного H_2 , что приводит к увеличению длительности импульса генерации H_2 -лазера. В тройных смесях инертных газов с $\text{F}_2(\text{NF}_3)-\text{Cl}_2(\text{HCl})$ получено интенсивное излучение молекул Cl_2 с максимумом на 258 нм и молекул ClF с максимумом на 284 нм. Определено влияние сорта (Ar, Ne, He) и давления инертного газа на интенсивности данных полос. При этом в смесях с гелием в спектре излучения появляется полоса молекул F_2 с пиком на 157 нм, а в смесях с Ar — полоса молекул ArF с максимумом на 193 нм. В смесях $\text{F}_2(\text{NF}_3)$ или $\text{Cl}_2(\text{HCl})$ с йодом получено излучение молекул интергалогенов IF и ICl в синей области спектра. Определены условия достижения максимальной интенсивности излучения на ВУФ линиях атомарного йода в смесях с гелием, неоном и аргоном. Показана возможность изменять в широких пределах интенсивности ВУФ-линий I^* в диапазоне 160–187 нм и УФ-линии на 206,2 нм.

Ключевые слова: неоднородное электрическое поле, диффузная плазма, атомы азота, УФ- и ВУФ-излучение; carbon dioxide, carbonyl, spark discharge.

Введение

Неравновесная низкотемпературная плазма, формируемая в газовых смесях при атмосферном давлении, в настоящее время находит применение в различных областях науки и технологии, продолжают ее исследования [1, 2]. Наряду с классическими режимами разряда, такими, как таунсендовский, тлеющий, коронный, искровой и дуговой, используются другие виды разрядов. К таким видам разрядов, прежде всего, следует отнести разряд в виде плазменных струй, формирующих холодную неравновесную плазму в различных газах атмосферного давления [3, 4]. Данный способ формирования неравновесной плазмы отличается простотой и низкой стоимостью конструкции.

В ряде работ показано, что в спектре плазменных струй в смесях аргона и гелия с азотом или воздухом наблюдаются ВУФ-линии атомарного азота [5, 6]. При этом подробные исследования параметров данного излучения не проводились.

Для формирования диффузной плазмы также используются высоковольтные импульсы не длительности и промежутки с неоднородным электрическим полем. Образование диффузных разрядов в неоднородном электрическом поле происходит по нескольким причинам. В частности, это связано с генерацией быстрых и убегających электронов, соответственно (БЭ) и (УЭ), а также тормозного рентгеновского излучения за счет тормозного излучения УЭ. УЭ — это электроны, которые получают больше энергии от электрического поля, чем теряют при столкновениях с частицами газа [7]. При этом диффузная плазма также может являться эффективным источником ВУФ излучения [8].

Цель настоящей работы — определение условий получения максимальной интенсивности ВУФ- и УФ-излучения в струях плазмы и диффузных разрядах в различных газовых смесях.

Экспериментальная установка и методика измерений

В экспериментах исследовались спектральные характеристики несколько типов самостоятельных разрядов. Для получения плазменных струй использовался разряд между двумя тонкими металлическими электродами, помещенными в кварцевую трубку с внутренним диаметром 4 мм, через которую продувались смеси азота с инертными газами. Для зажигания разрядов использовался генератор импульсов напряжения с амплитудой до 15 кВ, длительностью на полувысоте 100 нс, работающий с частотой до 50 кГц.

Дополнительно проведены исследования спектров излучения диффузного разряда между двумя иглами с зазором 4 мм между ними. Для формирования разряда применялись различные генераторы высоковольтных импульсов наносекундной длительности. Схема экспериментальной установки для исследования параметров плазмы диффузного разряда подробно описана в [8].

Диффузный разряд формировался в резко неоднородном электрическом поле между двумя иглами, расположенными на расстоянии 4 мм друг от друга. Генераторы соединялись с разрядной камерой коаксиаль-

ными кабелями длиной 1 или 3 м. Поэтому на разрядный промежуток приходила серия отраженных от промежутка и затем от генератора импульсов с интервалом 10 или 30 нс.

Спектры спонтанного излучения в диапазоне 100–550 нм при помощи вакуумного монохроматора VM-502, импульсы излучения в видимой и УФ-областях фотоэлементом ФЭК-22, импульсы напряжения на входе в разрядную камеру и тока разряда емкостным делителем и омическим шунтом, соответственно.

Камера крепилась к входному окну из LiF вакуумного монохроматора VM-502 (Acton Research Corp.), ФЭУ ЕМ19781В, который регистрировал как спектральное распределение энергии излучения плазмы разряда в области 100–545 нм, так и ход интенсивности излучения на различных длинах волн. Монохроматор откачивали до остаточного давления 10^{-6} Торр. В экспериментах использовались высоковольтные генераторы со следующими параметрами: ГИН 50-1 с амплитудой в падающей волне до +25 кВ, длительностью на полувывсоте $t_{1/2} = 13$ нс, фронтом $t_{\phi} = 2$ нс; ГИН 55-01 до –37 кВ, $t_{1/2} = 0,7$ нс, $t_{\phi} = 0,7$ нс; ГИН 100-1 до –25 кВ, $t_{1/2} = 4$ нс, $t_{\phi} = 1$ нс; FPG до +13 кВ, $t_{1/2} = 1$ нс, $t_{\phi} = 0,1$ нс.

Для регистрации спектров плазменные струи направлялись на входное окно газовой камеры, изготовленное MgF_2 , камера при этом откачивалась и заполнялась инертным газом.

Мощность ВУФ-излучения определялась измерителем Hamamatsu C8026 Series с сенсором H8025-126/146 (область чувствительности по уровню 0,1 140–185 нм, максимум чувствительности на 175 нм).

Импульсы напряжения на входе в разрядную камеру регистрировались емкостным делителем напряжения. Формы электрических сигналов записывались цифровыми осциллографами Tektronix TDS-3054B (500 МГц, 5 Гс/с).

ВУФ-излучение атомарного азота в струях и диффузных разрядах

В экспериментах было обнаружено, что в плазменных струях в гелии и аргоне при добавках 1-10% азота появлялись две ВУФ-линии, интенсивность могла превышать интенсивность полос второй положительной системы азота в 5–10 раз! Данные линии соответствуют переходам $3s^2P-2p^2P^0$ и $3s^2P-2p^2D^0$ атомарного азота на 174,3 и 149,3 нм, соответственно [9]. Отметим, что в спектре плазмы различных разрядов в смесях Ar и He с азотом или воздухом данные линии наблюдались ранее [10-11], но подробные исследования данного ВУФ излучения не проводилось. Характерный спектр струи плазмы в смеси аргона и азота приведен на рис. 1. Спектры излучения диффузного разряда в смесях Ar(He)–N₂ были подобны. Составы газовых смесей с аргонном и гелием для получения максимальной мощности ВУФ-излучения заметно отличались. Максимум интенсивностей для аргона получен при расходе азота 0,1–0,15 л/мин, тогда как для гелия оптимальный расход азота не превышал 10–20 л/мин. Оптимальный расход аргона и гелия составил 12 и 20 л/мин, соответственно.

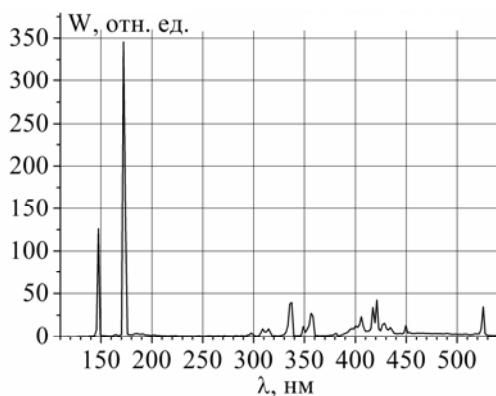


Рис. 1. Спектр излучения струи плазмы в смеси аргона и азота Ar:N₂ = 20:0.1 л/мин

Максимальная мощность ВУФ-излучения на линиях азота в оптимальных газовых смесях возрастала при увеличении амплитуды импульсов напряжения и достигала $6,8 \text{ мВт/см}^2$, что сравнимо с мощностью излучения барьерных эксиламп, на димерах ксенона, излучающих на 172 нм [12]. Данная мощность ВУФ-излучения в плазменной струе заметно не меняется при замене особо чистых газов на технические с чистотой 99,99% и не требует использования дорогих инертных газов и кварцевых трубок с высоким коэффициентом пропускания ВУФ-излучения. Мощность излучения на линиях азота может быть увеличена при повышении амплитуды импульсов напряжения и частоты их следования, тогда как параметры излучения ламп на димерах ксенона в [12] близки к предельным.

На рис. 2 представлены вольт-амперные и излучательные параметры диффузного разряда в смеси N₂ с Ar. Видно, что диффузный разряд формируется при падении на промежуток первого импульса от генератора. Затем энергия вкладывается в плазму разряда цугом отраженных импульсов в течение нескольких сотен нс. Однако после прекращения накачки наблюдается повторный рост интенсивности излучения на 149 и 174 нм. Это означает, что в релаксирующей плазме существует канал передачи энергии на верхний уровень данных ВУФ-переходов.

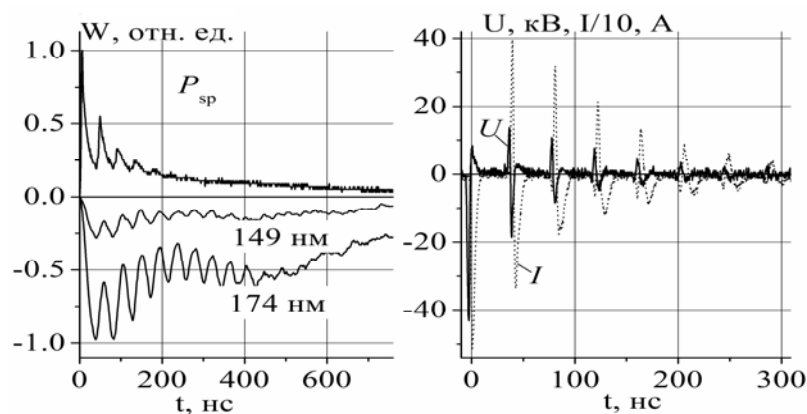


Рис. 2. Осциллограммы импульсов излучения диффузного разряда в видимой и УФ-областях (P_{sp}) и на 149 и 174 нм, а также сигнала с емкостного делителя (U) и тока разряда (I). Диффузный разряд формируется в потоке газа $Ar:N_2 = 5:0$, 022 л/мин, генератор ГИН-100-5, 30 кВ

ВУФ-излучение водорода и дейтерия в диффузных разрядах

Ранее нами было показано, что мощность излучения H_2 лазера на полосе Лаймана существенно возрастает в смесях с Ne [13], но причины этого эффекта не были выяснены. В данном разделе рассмотрены возможные механизмы влияния неона на ВУФ излучение H_2 . Спектры излучения диффузной плазмы в водороде и дейтерии, как в [14], были подобны. Наиболее интенсивной в спектре была полоса Лаймана с пиком около 160 нм. Интенсивность данной полосы в водороде была в 1,4 раза выше, чем в дейтерии. В смесях неона с водородом интенсивность полосы Лаймана существенно увеличивают до давления Ne в несколько атм. Однако интенсивность полосы Лаймана в дейтерии падает при его разбавлении Ne (см. рис. 3).

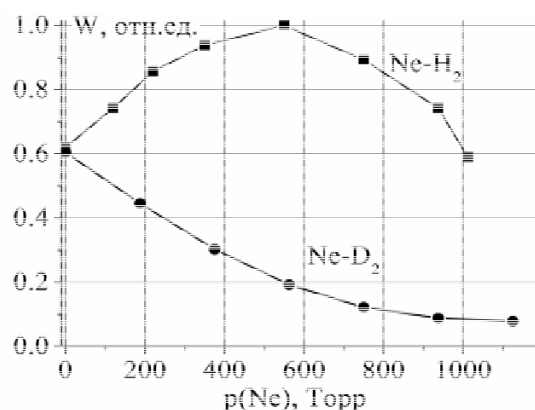


Рис. 3. Зависимости интенсивности излучения на 160 нм в водороде и дейтерии при давлении 15 Торр и их смесях с неоном от давления Ne генератор FPG-10, 13 кВ

Эффект буферного газа можно объяснить несколькими способами. При столкновениях с возбужденными атомами и молекулами Ne может образовываться H_2^* в высоколежащих возбужденных состояниях и возможно заселение состояния водорода $B^1\Sigma_u^+$ каскадами из данных состояний H_2^* . Эксимерное излучение первого и второго континуума Ne_2^* в диапазоне 73–85 нм будет эффективно поглощаться молекулами H_2 в основном состоянии, образуя высоковозбужденный H_2^* , и описанный выше процесс может снова повториться. В случае дейтерия эффективность описанных выше процессов должна уменьшиться из-за отличающихся параметров молекулы D_2 . Поэтому добавки неона могут не увеличивать интенсивность ВУФ-излучения разряда, что и было получено в эксперименте.

Излучение молекул интергалогенидов в диффузном разряде

В диффузных разрядах в газовых смесях инертных газов с галогенами высокого давления наблюдается ВУФ- и УФ-излучение [15, 16]. В тройных смесях инертных газов с $F_2(NF_3)-Cl_2(HCl)$ получено интенсивное одновременное излучение молекул Cl_2 с максимумом на 258 нм и молекул ClF с максимумом на 284 нм. Данный спектр и влияние Ne на интенсивности данных ВУФ- и УФ-полос показаны на рис. 4. Выбор сорта (Ar, Ne, He) и давления инертного газа позволял изменять интенсивность данных полос. При этом в смесях с гелием в спектре излучения появляется полоса молекул F_2 с пиком на 157 нм, а в смесях с Ar — полоса молекул ArF с максимумом на 193 нм. При использовании NF_3 вместо F_2 в спектре диффузного разряда

появляется интенсивная линия атомарного азота на 174 нм, что говорит о полной диссоциации части молекул трифторида азота в плазме.

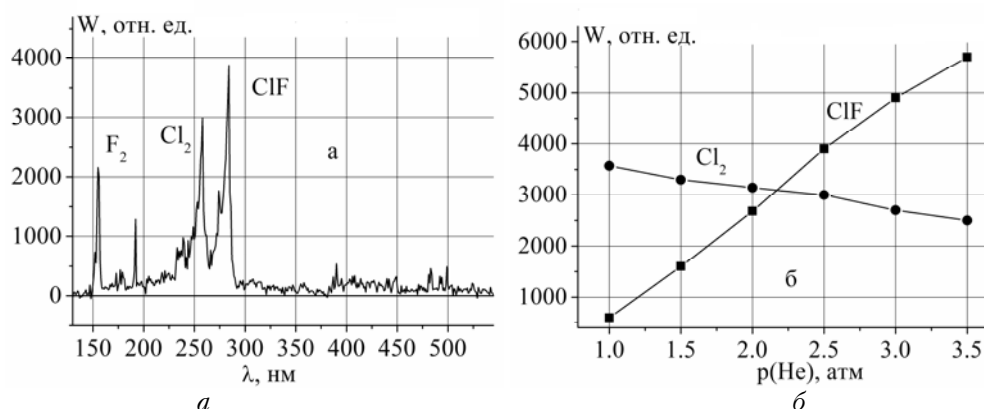


Рис. 4. Спектр излучения диффузного разряда в смеси He:F₂:Cl₂ = 2,5 атм:5:6 Торр (а) и зависимости интенсивности полос Cl₂ и ClF от давления He в смеси F₂:Cl₂ = 5:6 Торр (б). Генератор ГИН 100-1, 25 кВ

В смесях F₂ или Cl₂ с йодом получено излучение полос молекул интергалогенов IF и ICl в синей области спектра с пиками на 481 и 431 нм.

Определены условия достижения максимальной интенсивности излучения на ВУФ линиях атомарных йода в смесях с гелием, неоном и аргоном. При этом в зависимости от давления и сорта буферного газа интенсивности ВУФ линий в диапазоне 160–187 нм и УФ-линии I* на 206,2 нм изменяются в широких пределах.

Выводы по работе

Показано, что плазменные струи и диффузные разряды, формируемых в промежутках с неоднородным электрическим полем наносекундными импульсами высокого напряжения в смесях аргона, гелия и азота являются источниками интенсивного ВУФ-излучения атомарного азота на длинах волн 149 и 174 нм. Проведена оптимизация состава смесей и условий генерирования плазменных струй. Получена средняя мощность ВУФ-излучения до 6,8 мВт/см².

Измерены вольт-амперные и излучательные характеристики диффузных разрядов в смесях He(Ar)–N₂. Обнаружено, что интенсивность излучения на 149 и 174 нм возрастает после прекращения тока диффузного разряда.

Показано, что в спектре излучения диффузной плазмы в водороде и дейтерии преобладает полоса Лаймана с пиком около 160 нм. Предложен механизм влияния неона на интенсивность полосы Лаймана в N₂ и D₂.

В тройных смесях инертных газов с F₂(NF₃)–Cl₂(HCl) получено интенсивное одновременное излучение молекул F₂ с максимумом на 157 нм, Cl₂ с максимумом на 258 нм и ClF с максимумом на 284 нм.

В смесях F₂ или Cl₂ с йодом получено излучение молекул интергалогенов IF и ICl в синей области спектра с пиками на 481 и 431 нм.

Исследовано влияние буферных газов на интенсивность ВУФ-линий атомарного йода в диффузном разряде.

Финансирование. Работа выполнена в рамках госзадания ИСЭ СО РАН, проект № FWRM-2021-0014.

Список литературы

1. Adamovich I., Agarwal S., Ahedo E., Alves L.L., et al. The 2022 plasma roadmap: low temperature plasma science and technology // Journal of Physics D: Applied Physics. 2022. V. 15, Iss. 37. 373001. DOI: 10.1088/1361-6463/ac5e1.
2. Pulsed discharge plasmas: characteristics and applications / Shao, T., Zhang, C. (eds.). Springer Nature, Singapore, 2023. 152 с.
3. Barkhordari A., Ganjovi A., Mirzaei I. et al. A pulsed plasma jet with the various Ar/N₂ mixtures // Journal of Theoretical and Applied Physics. 2018. V. 11, Iss. 4. 301–312. DOI: 10.1007/s40094-017-0271-y 4.
4. Tao Shao, Ruixue Wang, Cheng Zhang, Ping Yan. Atmospheric-pressure pulsed discharges and plasmas: mechanism, characteristics and Applications // High Voltage. 2018. V 3, Iss. 1. P. 14–20. DOI: 10.1049/hve.2016.0014–2.
5. Brandenburg R., Hartmut Lange H., Thomas von Woedtke T., Stieber M., Kindel E., Ehlbeck J., and Weltmann K.-D. Antimicrobial effects of UV and VUV radiation of nonthermal plasma jets // IEEE Transactions on Plasma Science. 2009. V. 37, Iss. 6. P. 877–893. DOI:10.1109/TPS.2009.2019657.
6. Kashiwagi Y., Ito H., Noguchi K., Teranishi K., Suzuki S., Itoh H. Observation of VUV emission spectra from DC positive corona discharge // IEEE Transactions on Fundamentals and Materials. 2007. V. 127, iss. 9. P. 537–542. DOI: 10.1541/ieejfms.127.537.

7. Wilson C.T.R. The acceleration of β -particles in strong electric fields such as those of thunderclouds // Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society. 1925. V. 22, Iss. 4. P. 534–538. DOI: <https://doi.org/10.1017/S0305004100003236>.
8. Panchenko A.N., Tarasenko V.F., and Kozhevnikov V.V. VUV lasers pumped by diffuse discharges // Applied Physics B. 2023. V. 129, iss. 11. P. 178. <https://doi.org/10.1007/s00340-023-08125-5>.
9. Dahlberg D.A., Anderson D.K., and Dayton I.E. Optical Emission produced by proton and hydrogen-atom impact on nitrogen // Physical Review. 1967. V. 164, Iss. 1. P. 20–31. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRev.164.20>.
10. Kashiwagi Y., Ito H., Noguchi K., et. al., Teranishi K., Suzuki S., Itoh H. Observation of VUV emission spectra from DC positive corona discharge // IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials. 2007. V. 127, Iss. 9. P. 537–542. DOI: 10.1541/ieejfms.127.537.
11. Fierro A., Laity G., and Neuber A. Optical emission spectroscopy study in the VUV–VIS regimes of a developing low-temperature plasma in nitrogen gas // Journal of physics D: Applied Physics. 2012. V. 45, Iss. 45. 495202. DOI: 10.1088/0022-3727/45/49/495202.
12. Lomaev M.I., Skakun V.S., Tarasenko V.F., and Shitts D.V. Excilamps based on xenon dimers excited by a barrier discharge // J. Opt. Technol. 2012. V. 79, Iss. 8. P. 498–502. DOI: <https://doi.org/10.1364/JOT.79.000498>.
13. Panchenko A.N., Tarasenko V.F., and Kozhevnikov V.V. VUV lasers pumped by diffuse discharges, Applied Physics B. 2023. V. 129, Iss. 11. 178. <https://doi.org/10.1007/s00340-023-08125-5>
14. Komppula J., Tarvainen O., Kalvas T., Koivisto H., Myllyperkio P., Toivanen V. A study of VUV emission and the extracted electron-ion ratio in hydrogen and deuterium plasmas of a filament-driven H–/D– ion source // Phys. Plasmas. 2019. V. 26, Iss. 7. 073517. <https://doi.org/10.1063/1.5095475>.
15. Harteck P., Reeves R.R. and Thompson, B.A. The Iodine lamp: a light source for selective excitation of CO // Zeitschrift für Naturforschung A. 1964. V. 19, Iss. 1. 2–6. <https://doi.org/10.1515/zna-1964-0103>.
16. Diegelmann M., Grieneisen H.P., Hohla K., et. al. New TEA-lasers based on $D' - A'$ transitions in halogen monofluoride compounds C1F (284.4 nm), BrF (354.5 nm), IF (490.8 nm) // Applied Physics A. 1980. V. 23, Iss. 3. P. 283–287. DOI: <https://doi.org/10.1007/BF00914912>.

A.N. Panchenko. VUV and UV radiation in pulsed self-sustained discharges.

The work is devoted to the study of VUV and UV radiation in plasma jets and diffuse discharges formed by short voltage pulses in mixtures of rare gases with various additives. Intense radiation on VUV lines of atomic nitrogen in plasma jets and diffuse discharges was detected. The conditions providing the maximum intensity of this radiation were determined. During the discharge in a gas jet, the radiation power at 149.3 and 174.3 nm was measured to be as high as 6.8 mW/cm². The assumption about the cascade transfer of energy to the upper level of the transition of the Lyman band of molecular H₂ was confirmed, which leads to an increase in the pulse duration of a H₂ laser. In ternary mixtures of rare gases with F₂(NF₃)–Cl₂(HCl), intense radiation of Cl₂ molecules with a maximum at 258 nm and ClF molecules with a maximum at 284 nm was obtained. The influence of type (Ar, Ne, He) and pressure of rare gas on intensities of these bands was determined. In mixtures with helium, a band of F₂ molecules at 157 nm appears in the emission spectrum, and in mixtures with Ar, a band of ArF molecules with a maximum at 193 nm was observed. In mixtures of F₂(NF₃) or Cl₂(HCl) with iodine, emission of IF and ICl interhalogen molecules in the blue region of the spectrum was obtained. The conditions for achieving the maximum emission intensity on the VUV lines of atomic iodine in mixtures with helium, neon, and argon were determined. The possibility of changing the intensities of the VUV lines I* in the range of 160–187 nm and the UV line at 206.2 nm over a wide range was shown.