

01

Ударно-радиационная рекомбинация ионов Ne^{++} и Ne^+ с электронами в распадающейся плазме 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 24.12.2021 г.

В окончательной редакции 13.02.2022 г.

Принята к публикации 06.04.2022 г.

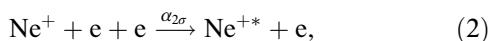
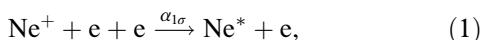
Экспериментально исследовано и промоделировано излучение, формируемое процессами ударно-радиационной рекомбинации ионов неона Ne^+ и Ne^{++} с электронами распадающейся плазмы. Плазма создавалась барьерным разрядом в цилиндрической стеклянной трубке с электродами на ее поверхности. Условия эксперимента: давление неона 0.65 Torr, плотность электронов в начальной стадии послесвечения $[e] \sim (1-5) \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$. Основное внимание уделено сравнительному анализу ударно-радиационной рекомбинации ионов Ne^+ и Ne^{++} на базе численного решения системы дифференциальных уравнений для плотностей заряженных и долгоживущих возбужденных частиц и температуры электронов с учетом основных элементарных процессов в распадающейся неоновой плазме. Сравнение модельных решений с интенсивностями ионных и атомных спектральных линий, измеренными методом многоканального счета фотонов, указывает на необходимость уточнения зависимости скорости ударно-радиационной рекомбинации от заряда иона.

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

DOI: 10.21883/OS.2022.07.52719.3077-21

Введение

Настоящая работа является продолжением исследования процессов в распадающейся плазме барьерного разряда (DBD) [1,2], посвященного анализу излучения ионных линий, появляющегося при давлении неона менее 1 Torr и обусловленного ударно-радиационной рекомбинацией ионов Ne^{++} . Это излучение заметно обогащает с уменьшением давления спектр плазмы, формируемый процессами рекомбинации ионов Ne_2^+ и Ne^+ с электронами, а в фиолетовой области в раннем послесвечении становится доминирующим, но значительно быстрее исчезает со временем. Механизмы рекомбинации ионов Ne^+ и Ne^{++} идентичны:



Отличие, согласно теории процесса [3], заключается лишь в более эффективном взаимодействии высоковозбужденного электрона иона Ne^{+*} с электронами плазмы, обеспечивающем его ускоренную диффузию в пространстве энергии „вниз“ к основному состоянию иона, что и завершает единичный акт рекомбинации. Согласно [3], коэффициенты рекомбинации (1) и (2) в пределе чисто столкновительной кинетики возбужденных электронов не зависят от сорта иона и отличаются только множите-

лем Z^3 , где Z — заряд иона, в рассматриваемом случае равный 2: $\alpha_{2\text{cr}} = 8\alpha_{1\text{cr}}$.

Ударно-радиационная рекомбинация (1) является одним из основных механизмов деионизации широкого круга плазменных объектов, ее изучению посвящено большое количество экспериментальных и теоретических работ (некоторые перечислены в [2]), дающих достаточно полное представление о процессе, допускающее его моделирование при различных степенях ионизации. Что касается процесса (2), то сведения о нем ограничиваются упомянутым соотношением $\alpha_{Z\text{cr}} \sim Z^3$ [3] и результатом численного решения задачи [4] с учетом радиационных переходов в кинетике возбужденных атомов, согласно которому степень R числа Z может принимать значения от $R = 4$ до отрицательных величин в зависимости от плотности и температуры электронов плазмы.

В плане экспериментального исследования роли рекомбинации многозарядных ионов в формировании свойств распадающейся плазмы мы можем упомянуть лишь работы [5,6], в которых наблюдалось послесвечение гелиевой плазмы низкого давления ($P_{\text{He}} < 2 \text{ Torr}$), образованной импульсным пучком моноэнергетических электронов. В анализе механизма спада интенсивностей ионных линий авторы ограничились гипотезой о разрушении ионов He^{++} в столкновениях с метастабильными

атомами гелия, не получив какой-либо информации о рекомбинационных процессах.

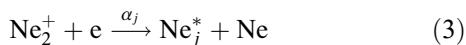
Цель данной работы заключается в моделировании поведения интенсивностей атомных и ионных линий неона в стадии распада плазмы и получении данных о скорости ударно-радиационной рекомбинации ионов неона с зарядом $Z = 2$.

Возможность такого исследования основывается на следующих обстоятельствах.

1. В эксперименте наблюдается (см. ниже) отчетливая зависимость скорости и характера спада интенсивностей $J_i(t)$ ионных линий в послесвечении от плотности электронов плазмы.

2. Регистрация послесвечения в ионном и атомном спектрах проводится в одинаковых условиях, так что в моделировании поведения ионных линий могут быть использованы параметры плазмы и константы скоростей элементарных процессов, отвечающие оптимальному описанию линий атомного спектра.

3. В плазме сложного ионного состава, какой является плазма в обсуждаемом эксперименте, содержащей атомарные Ne^+ , Ne^{++} и молекулярные Ne_2^+ ионы, имеет место отчетливое разделение механизмов заселения возбужденных уровней атома: выходные каналы диссоциативной рекомбинации в распадающейся плазме



содержат только те уровни атома (это справедливо и в отношении атомов других тяжелых инертных газов), которые в шкале энергии расположены ниже основного колебательного уровня молекулярного иона. Особенно ярко это проявляется на примере уровней конфигурации $2p^54p$ атома неона [7]: интенсивности спектральных линий $J(t)$, излучаемые четырьмя верхними 4p-уровнями, пропорциональны потоку рекомбинации (1), в то время как заселение остальных шести связано с диссоциативной рекомбинацией (3).

Формированию потока ударно-радиационной рекомбинации (1) в условиях данного эксперимента при относительно невысоких плотностях электронов, недостаточных для реализации чисто столкновительной модели [3] процесса, отвечает промежуточная модель: константа скорости процесса определяется столкновительной кинетикой высоковозбужденных атомов, в то время как в пространстве уровней с небольшими главными квантовыми числами (оценки представлены в [2]) рекомбинационный поток переносится, в основном, излучением, что и делает возможным анализ процесса по результатам спектроскопических наблюдений.

Постановка и результаты эксперимента

Плазма создавалась низкочастотным (80 Hz) барьерным разрядом в цилиндрической стеклянной трубке (рис. 1) длиной 20 и диаметром 3.9 см. Характерные особенности плазмы такого разряда изложены в [1,2].

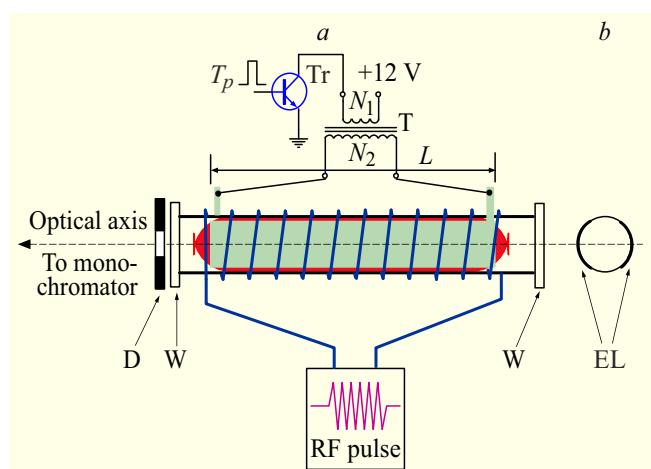


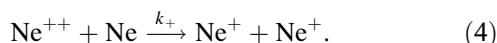
Рис. 1. (a) Схема совмещения барьерного и импульсного HF-разряда (RF Pulse): D — диафрагма диаметром 5 mm, W — кварцевые окна. (b) Расположение электродов DBD (EL) на поверхности разрядной трубы.

Изменение степени ионизации газа в схеме рис. 1 достигается простым увеличением длительности импульса напряжения T_p , открывающего транзистор Tr и задающего запасенную в первичной обмотке обратноходового трансформатора T энергию, передающуюся во вторичную обмотку при закрывании транзистора. Форма тока второй обмотки в этой схеме представляет собой две полуволны разной полярности длительностью несколько μsec каждая. При отношении чисел витков $N_2/N_1 = 10$ и давлениях неона менее 200 Торр в разрядной трубке указанного размера можно было создавать плазму с плотностью электронов на оси $[e] \sim 10^{10} - 5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$. Намотанная поверх электродов DBD спираль индукционного высокочастотного разряда (RF Pulse) использовалась для импульсного „подогрева“ электронов распадающейся плазмы с целью решения двух задач: наблюдения отклика интенсивностей спектральных линий и оценке плотности электронов в послесвечение по реакции населенности атомов $\text{Ne} 2p^53s(^3P_1)$ на изменение температуры электронов [1,2]. Анализу факторов, влияющих на температуру электронов в послесвечении неоновой плазмы низкого давления и моделированию послесвечения с „подогревом“ электронов в условиях преобладания амбиполярной диффузии в распаде плазмы посвящена работа [2]. Один из выводов этой работы заключался в предпочтительности использования в модели более высокой, чем предписывает теория [3], скорости процесса (2).

В данной работе обсуждаются результаты спектроскопического эксперимента, демонстрирующего зависимости интенсивностей линий, пропорциональных потокам рекомбинации (1) и (2), от времени в послесвечении при различных мощностях DBD, отвечающих плотностям электронов на оси трубы $[e] \approx (1 - 5.5) \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$. В стадии позднего послесвечения плотности электронов

были менее 10^{10} см^{-3} , так что регистрация интенсивностей в широком динамическом диапазоне требовала длительного накопления сигнала (от нескольких минут до нескольких часов) и установки достаточно широких входной и выходной щелей монохроматора, спектральная ширина которых составляла $\Delta\lambda \sim 0.2 \text{ nm}$. В качестве инструмента исследования рекомбинации ионов Ne^+ мы использовали линию 576.4 nm, верхний 4d-уровень которой расположен на $\sim 0.45 \text{ eV}$ выше основного колебательного уровня иона Ne_2^+ . Анализ процесса (2) проводился на основе наблюдений излучения плазмы на длине волны около 334.5 nm, так что в интервал $\Delta\lambda$ попадали ионные линии 334.4, 334.5, 334.6 nm.

Некоторые результаты эксперимента представлены на рис. 2. Видно, что поведение ионных $J_i(t)$ и атомных $J_a(t)$ линий заметно отличается при всех условиях эксперимента. При малых плотностях электронов, когда роль рекомбинации в распаде плазмы невелика, это отличие связано, во-первых, с передачей заряда ионами Ne^{++} при столкновениях с атомами неона



(данные о константе скорости k_+ процесса (4), полученные в экспериментах [8,9], отличаются в несколько раз: $9 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{s}^{-1}$ [8] и около $2 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{s}^{-1}$ [9]) и с различием коэффициентов амбиполярной диффузии ионов Ne^+ и Ne^{++} более чем в 1.5 раза [8–10].

Изменение характера временных зависимостей интенсивностей линий (на рис. 2 приведены к одинаковым условиям измерения) по мере роста начальной плотности электронов отчетливо указывает на увеличение роли процессов рекомбинации (1), (2) в распаде плазмы.

Модель послесвечения

Интенсивности линий, связанных с процессами (1), (2), считались пропорциональными числу актов рекомбинации:

$$J_a(t) \sim \alpha_{1\text{cr}}(T_e)[e][\text{Ne}^+], \quad (5)$$

$$J_i(t) \sim \alpha_{2\text{cr}}(T_e)[e][\text{Ne}^{++}]. \quad (6)$$

Обсудим, прежде всего, результаты моделирования излучения плазмы на переходах в атомном спектре. В качестве $\alpha_{1\text{cr}}$ мы использовали предложенную в [11] аппроксимацию зависимости коэффициента ударно-радиационной рекомбинации от параметров плазмы:

$$\begin{aligned} \alpha_{1\text{cr}} = & 1.55 \cdot 10^{-10} T_e^{0.63} + 6.0 \cdot 10^{-9} T_e^{2.18}[e]^{0.37} \\ & + 3.8 \cdot 10^{-9} T_e^{4.5}[e]. \end{aligned} \quad (7)$$

Здесь T_e — температура электронов в кельвинах, $[e]$ — в cm^{-3} , $\alpha_{1\text{cr}}$ — в $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$. Последнее слагаемое в (7) — коэффициент рекомбинации в случае чисто столкновительной кинетики возбужденных электронов (совпадает с вычисленным в [3] по зависимости от параметров

плазмы и близкое по абсолютной величине для $Z = 1$), первое — описывает процесс в слабоионизованной плазме (радиационная рекомбинация).

Использованная для описания результатов эксперимента модель (подробно обсуждается в [2]) содержит обширный набор констант скоростей элементарных процессов, ответственных за эволюцию параметров плазмы в послесвечении. Подстановка в систему дифференциальных уравнения модели (семь уравнений для плотностей ионов, атомов в метастабильных и резонансных состояниях и температуры электронов) этих констант, измеренных с определенными погрешностями

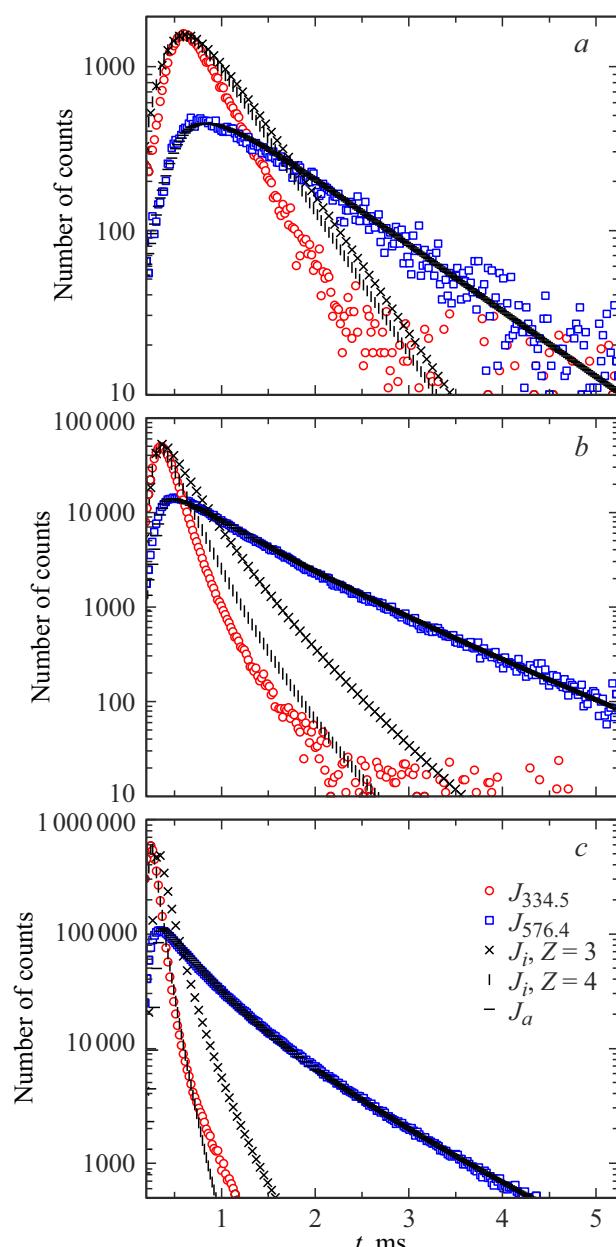


Рис. 2. Интенсивности спектральных линий и модельные кривые для начальных плотностей электронов $[e] \sim 10^{11}$ (a), $2.9 \cdot 10^{11}$ (b), $5.5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$ (c). Давление неона 0.65 Torr, $t = 0$ соответствует началу DBD.

Модельные плотности электронов в начале послесвечения $[e]_{\text{M}}(t_0)$, в максимуме интенсивности $J_a(t)$ $[e]_{\text{M}}(t_{\max})$, в реперной точке $[e]_{\text{M}}(t_r)$, температура электронов в начале послесвечения $T_e(t_0)$, доля энергии δ , передаваемая „быстрыми“ электронами основной группе электронов плазмы. Параметры a , b и c отвечают одноименным данным рис. 2.

	$[e]_{\text{M}}(t_0)$	$[e]_{\text{M}}(t_{\max})$	$[e](t_r)$, $[e]_{\text{M}}(t_r)$	$T_e(t_0) \cdot 10^3 \text{ K}$	δ	$[\text{Ne}^{++}]/[\text{Ne}^+]$
a	1	0.44	0.4, 0.32	45	0.25	0.3
b	2.9	1.3	0.8, 0.72	60	0.35	0.37
c	5.5	2.2	1.2, 0.91	70	0.4	0.5

либо вычисленных (например, частота электрон-ионных столкновений $\nu_{ei}(T_e)$) по приближенным формулам, не может по этой причине дать решение, описывающее эксперимент столь адекватно как на рис. 2. К тому же важнейшие в этой задаче параметры плазмы — температура и плотность электронов в ранней стадии послесвечения, используемые в качестве начальных условий в системе уравнений, также находились с ограниченной точностью. Например, по нашим оценкам [2] погрешность определения плотности электронов $[e](t_r)$ в реперной точке послесвечения ($t_r \sim 1.5 \text{ ms}$) по отклику населенности атомов неона в состоянии $2p^53s(3P_1)$ на импульсный „подогрев“ электронов не меньше 30%. Поэтому решение, вычисленное на основе $[e](t_r)$, не удалось приблизить к экспериментальным кривым даже при варьировании других параметров модели в разумных пределах. Модельные кривые $J_a(t)$ на рис. 2 были построены в две стадии следующим образом. В качестве первого приближения были использованы параметры модели работы [2], в условиях которой были получены данные рис. 2, a , и для наилучшего описания эксперимента подбирались два параметра — плотность электронов в начале послесвечения $[e](t_0)$ и масштабирующий множитель m для совмещения расчетной кривой и экспериментальных интенсивностей в их максимумах: $J_a(t) = m\alpha_{1\text{cr}}(T_e)[e][\text{Ne}^+]$.

Временной ход интенсивностей $J_a(t)$ и $J_i(t)$ не сильно, но все же зависит от относительной плотности ионов $[\text{Ne}^{++}]/[\text{Ne}^+]$, составившей ~ 0.3 по оценке [2], которую мы использовали в качестве первого приближения. Некоторые параметры модели представлены в таблице.

Важно подчеркнуть, что поиск оптимальных параметров модели для всей серии экспериментальных данных велся при неизменном наборе констант скоростей элементарных процессов — том самом, что был найден для случая рис. 2, a . Соответствие экспериментальных и расчетных кривых достигалось подбором $[e](t_0)$ и множителя m . Заметим, что с ростом $[e](t_0)$ все более заметное влияние на ход $J_a(t)$ (и особенно $J_i(t)$) оказывало слагаемое в уравнении для $T_e(t)$, пропорциональное частоте $\nu_{ei}(T_e)$ (при вычислении ν_{ei} учитывалось, что сечение электрон-ионного взаимодействия пропорционально Z^2). Ускорение релаксации энергии электронов в послесвечении несколько смешало максимум $J_a(t)$ от экспериментальных точек к началу координат. Восстановление их совпадения могло быть достигнуто уве-

личением в модели температуры $T_e(t_0)$ и (или) доли энергии (δ в таблице), передаваемой электронам плазмы „быстрыми“ электронами, появляющимися в реакциях с участием атомов неона в резонансных и метастабильных состояниях. Окончательные значения этих параметров находились на завершающей стадии обработки при совместном анализе $J_a(t)$ и $J_i(t)$. Они и помещены в таблице.

В модели рекомбинации двухзарядных ионов мы руководствовались выводами работы [3], согласно которым $\alpha_{Z\text{cr}} \sim Z^3$, и результатами цитированных выше [8–10] измерений константы скорости процесса (4) и подвижности Ne^{++} в неоне. В качестве коэффициента рекомбинации мы использовали третье слагаемое в формуле (4) с коэффициентом $Z^3 = 8$:

$$\alpha_{2\text{cr}} = 8 \cdot 3.8 \cdot 10^{-9} T_e^{4.5} [e], \quad (8)$$

а все остальные параметры, в том числе и начальные значения $[e](t_0)$ и $T_e(t_0)$, заимствованы из результатов моделирования $J_a(t)$. Единственным подгоночным параметром был масштабирующий множитель, подбираемый так, чтобы совместить расчетные и экспериментальные данные в области максимума интенсивности линии. Результаты (рис. 2) оказались таковыми, что при всех условиях эксперимента (рис. 2 представляет только часть из них) никакой вариацией параметров задачи невозможно было устраниТЬ очевидное расхождение скоростей спада $J_i(t)$ и $J_{334.5}(t)$, не нарушив радикально соответствия $J_a(t)$ и $J_{576.4}(t)$. Единственное исключение — увеличение скорости диффузии ионов Ne^{++} , для чего нет оснований (данные [8] и [9] близки) и (или) константы скорости процесса (4). Последнее осуществлялось подстановкой предложенного в [8] значения $9 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{s}^{-1}$. Это действительно улучшало соответствие $J_i(t)$ и $J_{334.5}(t)$ при минимальной в эксперименте плотности электронов (рис. 2, a). Но при более высоких значениях $[e]$ приводило к качественному несоответствию $J_{334.5}(t)$ с наблюдаемым в эксперименте уменьшением скорости спада интенсивностей ионных линий со временем, приближая этот спад к чисто экспоненциальному. В модели, как и в работе [2], мы использовали константу $k_+ = 3.7 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{s}^{-1}$.

Следует подчеркнуть, что очевидные расхождения $J_i(t)$ и $J_{334.5}(t)$ при практически идеальном соответствии $J_a(t)$ и $J_{576.4}(t)$ не связаны с кажущейся некорректностью в подходе к описанию атомного и ионного спектров

с использованием формул (7) (справедлива для любых плотностей электронов) и (8) (относится к случаю чисто столкновительной кинетики возбужденных электронов). Дело в том, что уже в условиях рис. 2, *b* (и тем более рис. 2, *c*) третью слагаемое в (7) дает преобладающий вклад в $J_a(t)$. Таким образом, остается единственный способ приблизить $J_i(t)$ к $J_{334.5}(t)$ — увеличить в модели скорость рекомбинации двухзарядных ионов. Для этой цели мы выполнили расчеты с коэффициентом рекомбинации

$$\alpha_{2\text{cr}} = 16 \cdot 3.8 \cdot 10^{-9} T_e^{4.5} [e], \quad (9)$$

отвечающим зависимости $\alpha_{Z\text{cr}} \sim Z^4$. Результаты расчетов представлены на рис. 2. Для удобства сравнения мы и в этом случае подбирали масштабирующий множитель, совмещая расчеты с данными для Z^3 в максимуме $J_i(t)$. Видно, что переход к Z^4 приближает расчетные кривые к экспериментальным данным по мере возрастания плотности электронов, однако степень согласия остается весьма далекой от достигнутой для линии 576.4 nm. При этом заметно (особенно отчетливо на рис. 2, *c*) несоответствие зависимостей расчетной и наблюдаемой скорости спада ионной линии от параметров плазмы, изменяющихся со временем в послесвечении. Возможно, расхождение при больших временах могло быть устранено увеличением $J_i(t)$ за счет дополнения $\alpha_{2\text{cr}}$ слагаемыми, учитывающими отклонение от чисто столкновительной модели рекомбинации по аналогии с (7), однако, насколько нам известно, для двухзарядных ионов такой подход не реализован.

В отношение параметров плазмы в правой части таблицы отметим следующее. Варьирование параметров $T_e(t_0)$ и δ приводило, хотя и к несколько различающимся, но похожим изменениям решения для $J_i(t)$. Поэтому находимые величины оказались взаимозависимыми, так что данные таблицы надо понимать скорее как проявление тенденции увеличения этих параметров с ростом мощности DBD, чем отражение возможности их определения в рамках предпринятого нами чисто спектроскопического эксперимента. В равной степени это относится и к относительной плотности ионов.

Заключение

Продемонстрирована возможность описания эволюции интенсивностей линий атомарного и ионного спектров в послесвечении в диапазоне изменения плотности электронов $[e] \sim (0.1-5) \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$ на основе численного решения системы связанных дифференциальных уравнений первого порядка, учитывающих основные процессы с участием заряженных и долгоживущих возбужденных частиц. Обнаружено, что параметры модели, обеспечивающие практически идеальное соответствие рассчитанных и экспериментальных интенсивностей спектральных линий атома неона, не обеспечивают приемлемого описания послесвечения линий ионов.

Показано, что моделирование ионных линий оказывается значительно более успешным при увеличении по крайней мере вдвое коэффициента ударно-радиационной рекомбинации двухзарядных ионов по сравнению с принятым в рамках имеющихся представлений о процессе.

Конфликт интересов

Конфликт интересов отсутствует.

Список литературы

- [1] V.A. Ivanov. // Plasma Sources Sci. Technol. 2020. V. 29. 045022. DOI: 10.1088/1361-6595/ab7f4c
- [2] В.А. Иванов. // Опт. и спектр. 2021. Т. 129. № 8. С. 992. DOI: 10.21883/OS.2021.08.51193.1987-21; V.A. Ivanov. // Opt. Spectrosc. 2021. V. 129. N 10. P. 1104. DOI: 10.1134/S0030400X21080099
- [3] A.V. Gurevich, L.P. Pitaevskii. // Sov. Phys. JETP. 1964. V. 19. N 4. P. 870.
- [4] D.R. Bates, A.E. Kingston, R.W.P. Mc Whirter. // Proc. Roy. Soc. (London). 1962. V. A267. P. 297. <https://www.jstor.org/stable/2414257>
- [5] О.В. Жигалов, Ю.А. Пиотровский, Ю.А. Толмачев. // Опт. и спектр. 2004. Т. 97. № 2. С. 181; O.V. Zhigalov, Yu.A. Piotrovskii, Yu.A. Tolmachev. // Opt. Spectrosc. 2004. V. 97. N 2. P. 167. DOI: 10.1134/1.1790631
- [6] О.В. Жигалов, Ю.А. Пиотровский, Ю.А. Толмачев. // Опт. и спектр. 2004. Т. 97. № 5. С. 720; O.V. Zhigalov, Yu.A. Piotrovskii, Yu.A. Tolmachev. // Opt. Spectrosc. 2004. V. 97. N 5. P. 673. DOI: 10.1134/1.1828614.
- [7] С.В. Гордеев, В.А. Иванов, Ю.Э. Скобло. // Опт. и спектр. 2019. Т. 127. № 3. С. 247. DOI: 10.21883/OS.2019.09.48190.106-19; S.V. Gordeev, V.A. Ivanov, Yu.E. Skoblo. // Opt. Spectrosc. 2019. V. 127. N 3. P. 418. DOI: 10.1134/S0030400X19090133.
- [8] F.J. de Hoog, H.J. Oskam. // J. Appl. Phys. 1973. V. 44. P. 3496.
- [9] R. Johnsen, M.A. Biondi. // Phys. Rev. A. 1978. V. 18. N 3. P. 989.
- [10] G.E. Courville, M.A. Biondi. // J. Chem. Phys. 1962. V. 37. N 3. P. 616.
- [11] J. Stevefelt, J. Boulmer, J.-F. Delpech. // Phys. Rev. A. 1975. V. 12. N 4. P. 1246.