

УДК 535.33;537.5, 533.9

PACS 52.77.-j, 52.70.-m, 52.30.-q

DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.161-168

А.А. Генерал, В.А. Кельман, Ю.В. Жменяк, В.В. Звенигородський,
Ч.Д. Надь

Інститут електронної фізики НАН України, 88017, Ужгород, вул. Університетська, 21
e-mail: vkel171@gmail.com

ОПТИЧНЕ ВИПРОМІНЮВАННЯ ПЛАЗМОВОГО СТРУМЕНЯ, ЩО ЗБУДЖУЄТЬСЯ БАР'ЄРНИМ РОЗРЯДОМ В СУМІШАХ АРГОН-ПОВІТРЯ І ГЕЛІЙ- ПОВІТРЯ

У спектральній області 300–900 нм експериментально досліджено люмінесценцію плазмових струменів, сформованих бар'єрним розрядом атмосферного тиску у сумішах аргон-повітря та гелій-повітря. Показано, що спектри випромінювання які генеруються з допомогою плазмових струменів, представлені переважно електронно-коливальними переходами другої позитивної системи нейтральних молекул азоту $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$.

Ключові слова: плазмовий струмінь, бар'єрний розряд, молекула азоту.

Вступ

Протягом останнього десятиліття все більший практичний інтерес викликають плазмові струмені атмосферного тиску [1–5], збуджені газовими розрядами: тліючим, бар'єрним і т.д. Широке застосування плазмові струмені знаходять в медицині [3], для обробки і очищення поверхні матеріалів [4] та для напилення покриттів [5].

Атмосферна плазма є одним з ефективних стерилізаторів, а основними робочими газами, які використовуються, при отриманні плазмових струменів атмосферного тиску є аргон або гелій. На сьогоднішній день створені і вивчені джерела плазмових струменів атмосферного тиску на основі бар'єрного розряду, в яких робочими газами є аргон, гелій, азот і їх суміші. Проте, до теперішнього часу практично не вивчалися характеристики плазмових струменів бар'єрного розряду в сумішах аргон-повітря і гелій-повітря.

У зв'язку з цим дана робота присвячена вивченню спектральних характеристик випромінювання плазмових струменів

бар'єрного розряду атмосферного тиску в сумішах аргон-повітря і гелій-повітря.

Техніка та умови експерименту

Основні вузли експериментальної апаратури, використаної нами для експериментів, описані в роботі [6] і представлені на рис. 1. Джерело плазмового струменя було створене на основі капілярної газорозрядної трубки (ГРТ) з плавленого кварцу довжиною 50 мм, внутрішнім діаметром 3 мм, зовнішнім – 6 мм. Капілярна трубка на виході звужується і має вигляд сопла з вихідним отвором діаметром 1 мм. Всередині капіляра розміщувався виготовлений зі сталі голчастий електрод діаметром 1 мм і довжиною 45 мм. Другий електрод, виготовлений з фольги шириною 25 мм, був розміщений поверх капілярної трубки, стінки якої відігравали роль міжелектродного діелектричного бар'єра. Відстань від електродів до вихідного отвору сопла становила 5 мм. Величина міжелектродної ємності 2,4 нФ створювана діелектричним бар'єром, визначає величину електричної енергії, що вводиться в розряд за один імпульс.

Реєстрація спектрів люмінесценції плазмового струменя здійснювалася з використанням монохроматора MS 7504i. Інтегровані в часі спектри люмінесценції плазми реєструвалися за допомогою CCD-камери HS 101H і виводилися на монітор комп'ютера. Для збудження бар'єрного розряду в

джерелі випромінювання був використаний генератор з резонансною перезарядкою накопичувальної ємності 110 пФ і тиратроном ТГІ1-2000/35 в якості комутатора. Генератор забезпечував частоту повторення імпульсів до 10 кГц при зарядній напрузі близько 5 кВ.

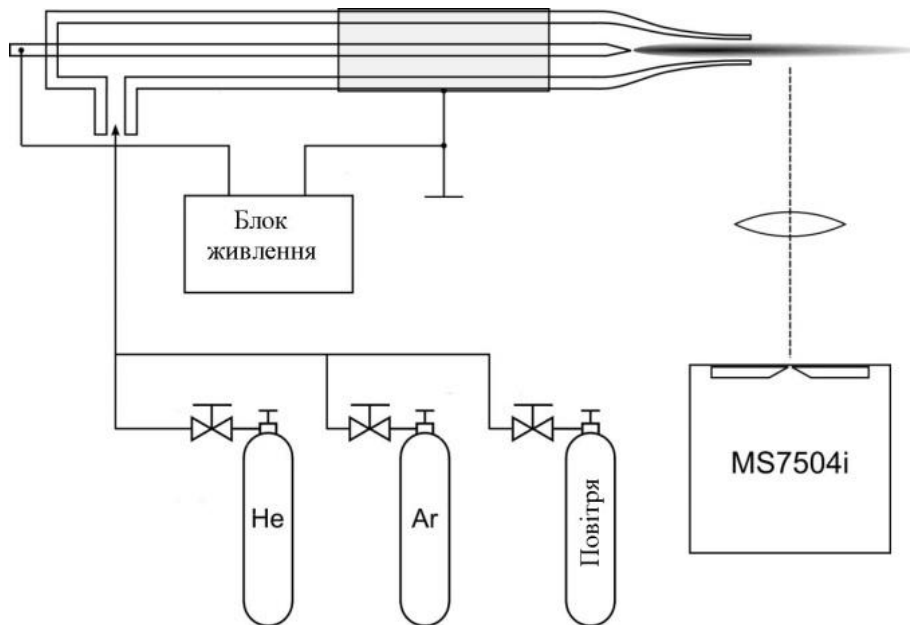


Рис. 1. Блок-схема експерименту.

Емісійні характеристики плазми

Плазмовий струмінь, який формувався на виході з сопла капіляра при подачі на електроди високовольтної імпульсно-періодичної напруги і продуванні крізь капіляр сумішей гелію з повітрям і аргону з повітрям в співвідношенні 6: 0,5 (витрата газових сумішей до 2 л/хв), мав вигляд голкоподібного факела. Протяжність плазмового струменя за межами вихідного сопла не перевищувала 1,5 см. В роботі було досліджено спектральний склад випромінювання плазмових струменів на основі сумішей гелію з повітрям та аргону з повітрям. На рис. 2а приведено зареєстрований спектр випромінювання плазмового струменя, який витікає з сопла для суміші гелію з повітрям в інтервалі довжин хвиль 300-900 нм.

В довгохвильовій ділянці спектра випромінювання плазмового струменя суміші гелію з повітрям зареєстрована лінія атома

гелію 667 нм $1s3d\ ^1D_2 \rightarrow 1s2p\ ^1P_1^0$ - перехід. Також було зафіксовано випромінювання атома водню H_{α} . Слід зауважити, що інших емісій в довгохвильовій ділянці спектру нами зафіксовано не було.

В області 300-500 нм спектр випромінювання плазмового струменя суміші гелій-повітря представлений емісіями молекули азоту, які є результатом електронно-коливальних переходів другої позитивної системи нейтральних молекул азоту $N_2(C\ ^3\Pi_u \rightarrow B\ ^3\Pi_g)$, а також першої негативної системи іонів молекул азоту $N_2^+(B\ ^2\Sigma_u^+ \rightarrow X\ ^2\Sigma_g^+)$.

Найбільш інтенсивні зареєстровані молекулярні емісії утвореної плазмового струменя в суміші гелію і повітря приведені в таблиці, де дана їх ідентифікація. Ототожнення атомарних ліній в емісійному спектрі проводилося з використанням даних [7], а визначення коливальних переходів молекулярних компонент плазми здійснювалася на основі даних [8, 9].

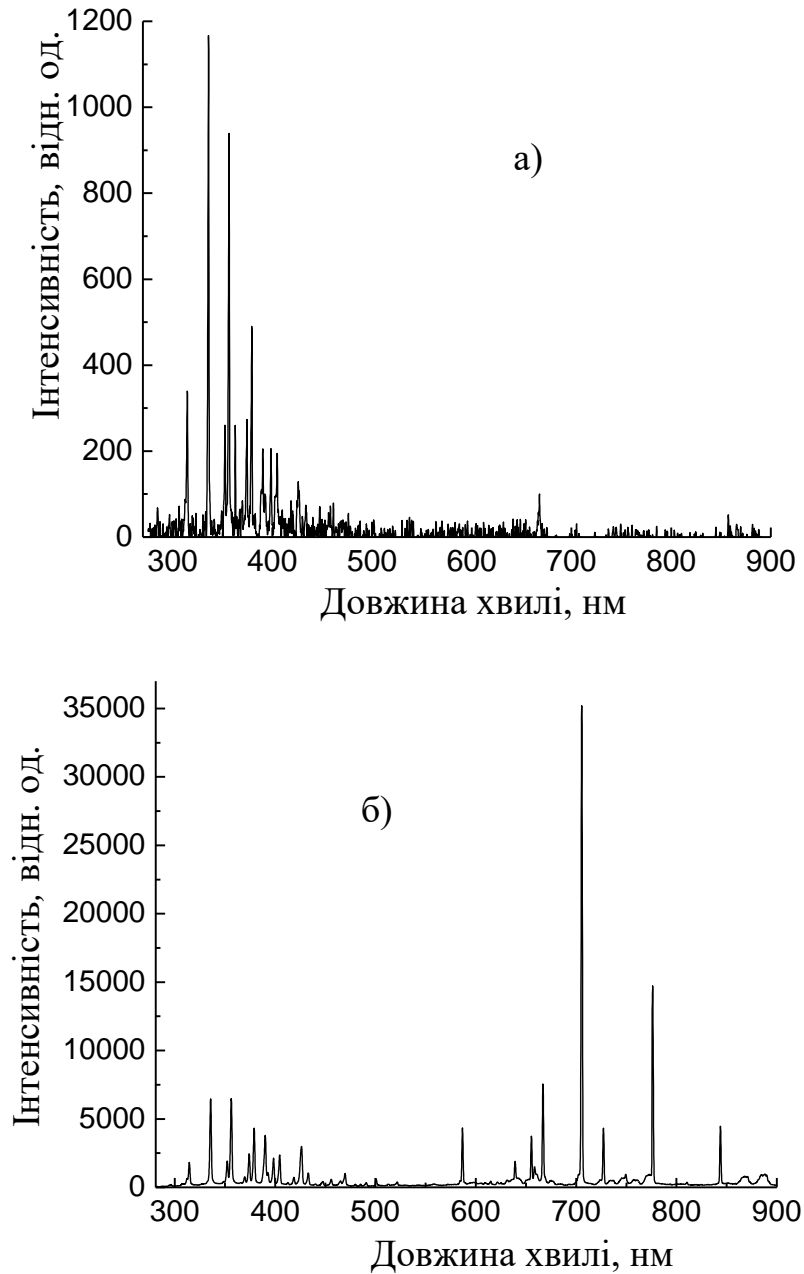


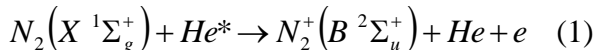
Рис. 2. Спектр випромінювання плазмового струменя в суміші гелій-повітря (а) і гелію (б) при напрузі 4 кВ, частоті 4 кГц і розрядному струміві 0,01 А.

Таблиця. Молекулярні емісії, зареєстровані в спектрі люмінесценції плазмового струменя, сформованого бар'єрним розрядом в суміші гелій-повітря.

λ , нм	Плазмові компоненти	Електронно-коливальний перехід	Енергія збудження, еВ.
315,9	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=1) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=0)$	11,3
337,1	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=0) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=0)$	11
353,6	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=1) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=2)$	11,3
357,7	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=0) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=1)$	11

370,9	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=2) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=4)$	11,5
375,4	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=1) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=3)$	11,3
380,4	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=0) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=2)$	11
391,4	N ₂ ⁺	$B^2\Sigma_u^+(\nu=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$	18,7
399,7	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=1) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=4)$	11,3
405,8	N ₂	$C^3\Pi_u(\nu=0) \rightarrow B^3\Pi_g(\nu=3)$	11
427,8	N ₂ ⁺	$B^2\Sigma_u^+(\nu=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(\nu=1)$	18,7

Як впливає з даних представлених в таблиці випромінювання молекулярних компонентів плазми відбувається, в основному, при спектральних переходах з найнижчих коливальних рівнів збуджених електронних станів, що є наслідком коливальної релаксації збуджених молекул при їх зіткненнях. Верхні рівні всіх випромінюючих збуджених нейтральних молекул азоту енергетично розташовані досить високо, і їх енергія збудження перевищує 10 еВ. Енергії збуджених рівнів іонізованих молекул азоту ще більші і мають значення не менше 18,7 еВ. Наявність в спектрі випромінювання плазмового струменя емісії першої негативної системи іонів молекулярного азоту $N_2^+(B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+)$ поряд з емісіями другої позитивної системи нейтральних молекул азоту $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$, вказує на те, що, як було продемонстровано в праці [10], утворення іонізованих молекул азоту в збудженому стані $N_2^+(B^2\Sigma_g^+)$ зумовлене високою ефективністю процесу іонізації Пенінга при зіткненнях молекул азоту з метастабільними атомами гелію



На рис. 2б наведено зареєстрований нами спектр випромінювання плазмового струменя чистого гелію в атмосфері для порівняння зі спектром плазмового струменя, одержуваного в суміші гелій-повітря.

Детальна інтерпретація спектру випромінювання плазмового струменя гелію дана нами в роботі [10]. При порівнянні представлених на рис. 2 спектрів випромінювання

видно, що при введенні повітря в потік гелію, що продувається крізь капіляр, в довгохвильовій області спектра плазмового струменя більшість інтенсивних спектральних ліній стали мізерно слабкими, інтенсивність атомарних спектральних ліній гелію сильно зменшилася. У короткохвильовій області спектра інтенсивність випромінювання першої негативної системи смуг іону молекули азоту $N_2^+(B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+)$ також значно зменшилася в порівнянні з інтенсивністю випромінювання другої позитивної системи нейтральних молекул азоту. Причиною зменшення інтенсивності емісій плазмового струменя при додаванні в розряд повітря є той факт, що повітря є сильно електронегативним газом і в розряді призводить до зменшення електронної концентрації, а також «гасіння» самого розряду.

На рис. 3а представлений інтегрований в часі спектр люмінесценції плазмового струменя, отриманий в суміші аргон-повітря. Нижче на рис. 3б наведено також для порівняння зареєстровану ділянку спектра випромінювання плазмового струменя аргону. В інтервалі довжин хвиль 300-405 нм, емісійний спектр плазмового струменя, отриманий в суміші аргону і повітря, представлений переважно спектральними смугами азоту, відповідних електронно-коливальних переходів другої позитивної системи молекул азоту $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$. У довгохвильовій спектральній області вище 500 нм будь-яке випромінювання відсутнє, тому дану ділянку спектра й не приводимо на рисунку.

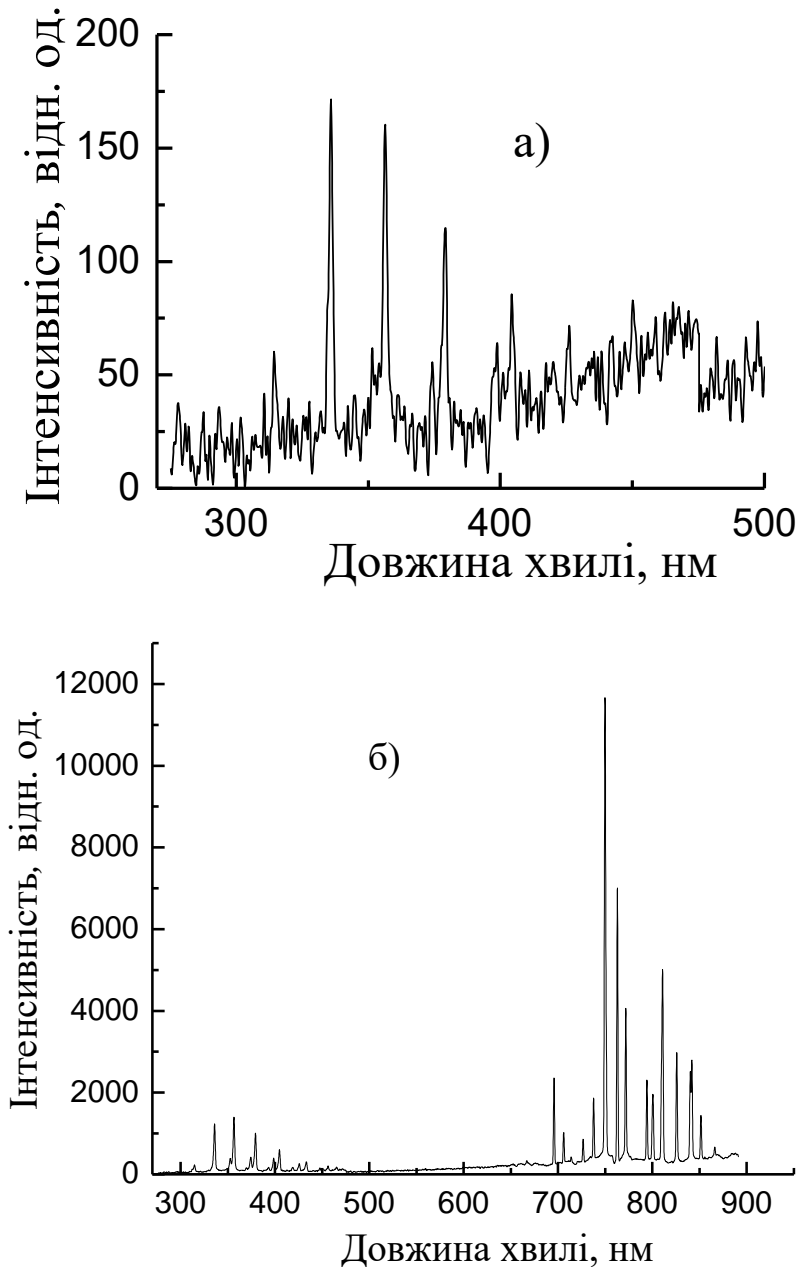


Рис. 3. Спектр випромінювання плазмового струменя в суміші аргон-повітря (а) і аргоні (б) при напрузі 4 кВ, частоті 4 кГц і розрядному струміві 0,01 А.

Детальний аналіз спектру випромінювання плазмового струменя аргону в атмосфері наведено нами в роботі [11]. У короткохвильовому діапазоні довжин хвиль (300-405 нм) емісійний спектр аргонного плазмового струменя, представлений також переважно спектральними смугами молекулярного азоту другої позитивної системи молекули азоту. Окремо варто відзначити, що в спектрах рис. 3 відсутнє випромінювання іону молекули азоту, оскільки енергії метастабільних атомів аргону недостатньо для процесу іонізації Пенінга. Адже енергія

збудження основного електронного стану іону молекули азоту становить 15,6 еВ, а енергія збудження електронного стану позитивного іону азоту дорівнює 18,7 еВ [12].

У довгохвильовій області спектру випромінювання аргонного плазмового струменя (690 – 900 нм) присутні зареєстровані інтенсивні лінії переважно спектральних переходів між збудженими станами атомів аргону. Порівняння представлених на рис. 3 спектрів випромінювання показує, що потік повітря, який продувається крізь капіляр призводить до повного гасіння

випромінювання атомів аргону в довгохвильовій області спектру і зниження інтенсивності випромінювання молекул азоту в короткохвильовій області внаслідок сильної електронегативності повітря.

Шляхом порівняння спектральних характеристик випромінювання плазми при переході від суміші аргон-повітря до суміші гелій-повітря було встановлено, що потужність випромінювання зросла в 3 рази.

Висновки

Експериментально досліджені і проаналізовані спектри люмінесценції

плазмових струменів, сформованих бар'єрним розрядом в сумішах гелій-повітря і аргон-повітря. Встановлено, що в результаті формування плазмового струменя в газорозрядній капілярній трубці при продуванні крізь неї сумішей гелію з повітрям та аргону з повітрям виникають основні компоненти плазми – молекули і іони азоту для суміші гелій-повітря і молекули азоту для суміші аргон-повітря. Потужність випромінювання плазмового струменя при переході від суміші аргон-повітря до суміші гелій-повітря зросла в 3 рази.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Fang Z., Ruan C., Shao T., and Zhang C. Two discharge modes in an atmospheric pressure plasma jet array in argon // *Plasma Sources Sci. Technol.* – 2016. – V.25. – 01LT01. doi:10.1088/0963-0252/25/1/01LT01.
2. West A., van der Schans M., Xu C. etc. Fast, downstream removal of photoresist using reactive oxygen species from the effluent of an atmospheric pressure plasma Jet // *Plasma Sources Sci. Technol.* – 2016. – V.25. – 02LT01.
3. Benedict J., Forcke K., Yanguas-Gil A., Von Keudell A. Atmospheric pressure micro plasma jet as a depositing tool // *J. Appl. Phys.* – 2006. – V.99. – P.112 – 303.
4. Aboubakr H.A., Gangal U., Youssef M.M. etc. Inactivation of virus in solution by cold atmospheric pressure plasma: Identification of chemical inactivation pathways // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 2016. – V.49. – 204001.
5. Joh H.M., Kim S.J., Chung T.H., Leem S.H. Reactive oxygen species-related plasma effects on the apoptosis of human bladder cancer cells in atmospheric pressure pulsed plasma jets // *Appl. Phys. Lett.* – 2012. – V.101. – 053703.
6. General A.A., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V., Shpenik Yu.O. A UV source on hydroxyl molecules operating in a pulsed-periodic mode // *Instruments and Experimental Techniques.* – 2010. – V.53. – №4. – С. 558 – 560.
7. URL:<http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>.
8. Pearse R.W.B. & Gaydon A.G.. *The Identification of Molecular Spectra*, 3rd edn. – London: Chapman & Hall, 1963. – 347 p.
9. Huber K.P. and Herzberg G. *Molecular Spectra and Molecular Structure. IV. Constants of Diatomic Molecules*. New York: Van Nostrand Reinhold Company, 1979. – 716 p.
10. Korbut A.N., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V. and Klenovskii M.S. Emission properties of an atmospheric-pressure helium plasma jet generated by a barrier discharge // *Optics and Spectroscopy.* – 2014. – V.116. – №6. – С. 919 – 925.
11. Korbut O.M., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V., Klenivskiy M.S. Emission Properties of an Atmospheric Pressure Argon Plasma Jet Excited by Barrier Discharge // *Ukr. J. Phys.* – 2015. – V.60. – N12. – P. 1189 – 1195.
12. Russ R. Laher. and Forrest R. Gilmore Improved Fits for the Vibrational and Rotational Constants of Many States of Ni trogen and Oxygen // *J. Phys. Chem. Ref. Data.* – 1991. – V.20. – No.4. – P. 685 – 701.

А.А. Генерал, В.А. Кельман, Ю.В. Жменяк, В.В. Звенигородский,
Ч.Д. Надь

Институт электронной физики НАН Украины, 88017, Ужгород, ул. Университетская, 21
e-mail: vkel171@gmail.com

ОПТИЧЕСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ ПЛАЗМЕННОЙ СТРУИ, ВОЗБУЖДАЕМОЕ БАРЬЕРНЫМ РАЗРЯДОМ В СМЕСЯХ АРГОН-ВОЗДУХ И ГЕЛИЙ-ВОЗДУХ

В спектральной области 300–900 нм экспериментально исследована люминесценция плазменных струй, сформированных барьерным разрядом атмосферного давления в смесях аргон-воздух и гелий-воздух. Продемонстрировано, что спектры излучения генерируемые плазменными струями представлены преимущественно электронно-колебательными переходами второй положительной системы нейтральных молекул азота $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$.

Ключевые слова: плазменная струя, барьерный разряд, молекула азота.

PACS 52.77.-j, 52.70.-m, 52.30.-q

DOI: 10.24144/2415-8038.2017.42.161-168

A.A. General, V.A. Kelman, Yu.V. Zhmenyak, V.V. Zvenyhorodsky,
Ch.D. Nady

Institute of Electron Physics NAS Ukraine, 88017, Uzhhorod, Universitetska str. 21
e-mail: vkel171@gmail.com

AN OPTICAL EMISSION OF PLASMA JET EXCITED BY BARRIER DISCHARGE IN ARGON-AIR AND HE-AIR MIXTURES

Background: Atmospheric pressure plasma jets are intensively studying during last years due to its unique parameters and applications. The best carrier of such type of plasma is the capillary barrier discharge. The purpose of this work is to study the emission spectra of this plasma jets generated in helium and argon inert gases also as in helium-air and argon-air mixtures.

Materials and methods: We explored the optical method to study the molecular emission spectra of all studied plasma jets. Emitted spectra were registered using grating grid monochromator and HS 101H CCD-camera.

Results: In spectral range 300–900 nm it was experimentally investigated the luminescence of atmospheric pressure plasma jets excited by barrier discharge in Argon-air and Helium-air mixtures. It was shown that emitted spectra are represented mainly by electron-vibrational transitions of the second positive system of neutral nitrogen molecules $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$.

Conclusion: Experimentally were investigated and analyzed luminescence spectra of plasma jets formed by barrier discharge in helium, argon and their mixtures with air. It was established that the emission intensity of helium-air jet is thirdly much more than argon-air jet, predominantly due to Penning ionization.

Keywords: plasma jet, barrier discharge, nitrogen molecule.
PACS 52.77.-j, 52.70.-m, 52.30.-q

REFERENCES

1. Fang Z., Ruan C., Shao T., and Zhang C. Two discharge modes in an atmospheric pressure plasma jet array in argon // *Plasma Sources Sci. Technol.* – 2016. – V.25. – 01LT01.
2. West A., van der Schans M., Xu C. etc. Fast, downstream removal of photoresist using reactive oxygen species from the effluent of an atmospheric pressure plasma Jet // *Plasma Sources Sci. Technol.* – 2016. – V.25. – 02LT01.
3. Benedict J., Forcke K., Yanguas-Gil A., Von Keudell A. Atmospheric pressure micro plasma jet as a depositing tool // *J. Appl. Phys.* – 2006. – V.99. – P.112 – 303.
4. Aboubakr H.A., Gangal U., Youssef M.M. etc. Inactivation of virus in solution by cold atmospheric pressure plasma: Identification of chemical inactivation pathways // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 2016. – V.49. – 204001.
5. Joh H.M., Kim S.J., Chung T.H., Leem S.H. Reactive oxygen species-related plasma effects on the apoptosis of human bladder cancer cells in atmospheric pressure pulsed plasma jets // *Appl. Phys. Lett.* – 2012. – V.101. – 053703.
6. General A.A., Kelman V.A., Zhmenjak Yu.V., Shpenik Yu.O. A UV source on hydroxyl molecules operating in a pulsed-periodic mode // *Instruments and Experimental Techniques.* – 2010. – V.53. – №4. – C. 558 – 560.
7. URL:<http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>
8. Pearse R.W.B. & Gaydon A.G.. *The Identification of Molecular Spectra*, 3rd edn. – London: Chapman & Hall, 1963. – 347 p.
9. Huber K.P. and Herzberg G. *Molecular Spectra and Molecular Structure. IV. Constants of Diatomic Molecules*. New York: Van Nostrand Reinhold Company, 1979. – 716 p.
10. Korbut A.N., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V. and Klenovskii M.S. Emission properties of an atmospheric-pressure helium plasma jet generated by a barrier discharge // *Optics and Spectroscopy.* – 2014. – V.116. – №6. – C. 919 – 925.
11. Korbut O.M., Kelman V.A., Zhmenyak Yu.V., Klenivskiy M.S. Emission Properties of an Atmospheric Pressure Argon Plasma Jet Excited by Barrier Discharge // *Ukr. J. Phys.* – 2015. – V.60. – N12. – P. 1189 – 1195.
12. Russ R Laher and Forrest R. Gilmore Improved Fits for the Vibrational and Rotational Constants of Many States of Nitrogen and Oxygen // *J. Phys. Chem. Ref. Data.* – 1991. – V.20. – No.4. – P. 685 – 701.

© Ужгородський національний університет