

激光与光电子学进展

氩气放电等离子体特征参数的光谱测量方法

熊明*

核工业理化工程研究院, 天津 300180

摘要 针对采用氩气放电方式产生等离子体的离子引出模拟研究需求,提出一种等离子体密度及电子温度等关键特征参数的光谱测量方法。根据氩等离子体状态建立反映其粒子间动力学反应过程的粒子布居平衡模型,并通过对比分析实验测得的发射光谱获取等离子体相关特征参数信息。实验结果表明,该光谱测量方法可获取典型工况下射流区内氩等离子体的密度及电子温度等关键参数信息,为离子引出过程的模拟研究提供一种可靠和实用的等离子体参数测量手段。

关键词 光谱学; 等离子体密度; 电子温度; 氩气放电; 发射光谱; 粒子布居平衡模型

中图分类号 O433

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP202259.1730002

Spectral Measurement Method for Characteristic Parameters of Argon Discharge Plasma

Xiong Ming*

Institute of Physical and Chemical Engineering in Nuclear Industry, Tianjin 300180, China

Abstract In this study, a spectral measurement method of key characteristic parameters, such as plasma density and electron temperature, is proposed for the ion extraction simulation study, which produces plasma through argon discharging. According to the argon plasma state, a particle population equilibrium model of kinetic reaction processes among the main particles is established. By comparing and analyzing emission spectra acquired in the experiment, information on corresponding plasma characteristic parameters can be obtained. The experimental results show that under the typical working conditions, the proposed spectral measurement method is used to obtain key parameters such as the density and electron temperature of the argon plasma in the jet region, thereby providing a reliable and practical measurement method for the simulation studies on the ion extraction process.

Key words spectroscopy; plasma density; electron temperature; argon discharge; emission spectra; particle population equilibrium model

1 引言

原子蒸气激光同位素分离(AVLIS)方法的原理是通过激光照射金属蒸气使其中的目标同位素原子经过选择激发、电离后变成等离子体,通过电磁场将目标同位素离子引出即可实现同位素的分离^[1]。大量理论研究表明,等离子体密度和电子温度等特征参数对AVLIS的离子引出过程有直接影响,掌握其影响规律对提高AVLIS的产品收集效率具有重要意义。但AVLIS的实验装置比较复杂且实验成本较高,关于等离子体特征参数对AVLIS离子引出过程影响的实验研究很少,因此,建立以氩气放电代替激光电离产生等

离子体的离子引出模拟装置,在节约成本的同时可以专注于研究等离子体特征参数对离子引出过程的影响规律^[2]。为了在离子引出模拟装置上开展AVLIS的相关研究,需要建立有效的测量方法获取模拟介质氩等离子体的相关特征参数信息,因此,需要开展关于氩等离子体特征参数测量方法的研究工作。

常用的等离子体参数测量方法主要有探针法、微波法和光谱法。其中:探针法需要将金属探针直接插入等离子体中获取电信号信息,会对等离子体状态产生扰动;微波法在测量过程中无需接触等离子体,但获得的等离子体状态信息不够全面,且其响应速度较慢,只适合测量状态比较稳定或参数变化缓慢的等离

收稿日期: 2021-12-14; 修回日期: 2021-12-23; 录用日期: 2022-01-05

通信作者: *445846025@qq.com

子体;光谱法同样无需接触等离子体,普遍适用于各种状态的等离子体且能获得丰富的参数信息,但通常需要建立合适的数学模型处理较为复杂的光谱信息^[3]。

结合当前离子引出模拟装置上的实验需求和各类测量方法的技术特点,本文选择光谱法测量氩等离子体特征参数,并建立相关光谱分析的理论模型和实验测量系统,最终在离子引出模拟装置上实现对氩等离子体密度及电子温度等关键参数的测量,验证了该光谱测量方法的可行性。

2 实验原理

光谱法是一种非侵入式的等离子体测量方法,整个测量过程中都不会对等离子体状态造成干扰。其中,发射光谱法因适用范围广成为目前常用的光谱测量方法^[4-6]。等离子体的发射光谱是其内部粒子间动力学反应过程的综合体现,其中的动力学反应速率通常与等离子体的特征参数紧密相关。因此,通过建立合适的数学模型分析等离子体的发射光谱即可获得等

离子体的密度、电子温度等特征参数信息。

考虑到实际 AVLIS 过程中产生的是处于低气压环境下的低温等离子体,其等离子体密度约为 10^{10} cm^{-3} ,可通过调节放电参数使模拟介质氩等离子体密度尽量在该量级附近^[7],此时,内部粒子间的碰撞跃迁和辐射跃迁等动力学反应过程是发射光谱信号的主要来源。此外,还需要考虑等离子体的自吸收效应和粒子与腔壁的碰撞散射^[8]。考虑到氩等离子体内部粒子成分和动力学反应过程较为复杂,建立了反映主要粒子间动力学反应过程的粒子布居平衡模型,具体参数如表 1 所示。其中: e 为电子; h 为普朗克常量; ν 为光的频率; T_e 为电子温度; n_e 为等离子体的密度; T_g 为等离子体气体的温度; d 为等离子体的半径; N_{low} 为低能级粒子密度; R_{ij}^e 为电子碰撞激发与退激发的反应速率; R_{ij}^{atom} 为原子碰撞跃迁反应速率; A_{ij} 为自发辐射跃迁反应速率; K_i 为电子碰撞电离反应速率; K_{ij} 为彭宁电离反应速率; β 为三体复合反应速率; η_{ij} 为等离子体自吸收效应导致光子发射逃逸的反应速率; K_{wall} 为粒子与腔壁发生碰撞散射的反应速率。

表 1 粒子布居平衡模型的动力学反应过程^[9-10]

Table 1 Kinetic reaction processes of the particle population equilibrium model^[9-10]

Kinetic reaction	Process	Related factor
Electron collision	$e + \text{Ar}(i) \xrightarrow{R_{ij}^e} e + \text{Ar}(j)$	T_e, n_e
Atomic collision	$\text{Ar} + \text{Ar}(j) \xrightarrow{R_{ij}^{\text{atom}}} \text{Ar} + \text{Ar}(i)$	T_g
Spontaneous radiation	$\text{Ar}(j) \xrightarrow{A_{ij}} h\nu + \text{Ar}(i)$	—
Electron impact ionization	$e + \text{Ar}(i) \xrightarrow{K_i} e + e + \text{Ar}^+$	T_e, n_e
Penning ionization	$\text{Ar}(i) + \text{Ar}(j) \xrightarrow{K_{ij}} e + \text{Ar} + \text{Ar}^+$	T_g
3-body collision	$e + e + \text{Ar}^+ \xrightarrow{\beta} e + \text{Ar}(i)$	T_e, n_e, T_g
Self absorption	η_{ij}	d, N_{low}
Quenching at the wall	K_{wall}	d, T_g

表 1 中动力学反应过程涉及的主要粒子包括基态氩原子 $\text{Ar}(\text{gs})$ 、1s 能级氩原子 $\text{Ar}(1\text{s})$ 、2p 能级氩原子 $\text{Ar}(2\text{p})$ 、2s 和 3d 能级组成的等效能级氩原子 $\text{Ar}(2\text{s}3\text{d})$ 、

3p 能级氩原子 $\text{Ar}(3\text{p})$ 、氩离子 Ar^+ 、氩准分子 Ar_2^* 、电子 e 等。各能级间的粒子布居平衡方程可表示为

$$\left(\sum_{j(j \neq i)} R_{ij}^e n_e + \sum_{j(j \neq i)} R_{ij}^{\text{atom}} N_g + \sum_{j < i} \eta_{ij} A_{ij} + K_i n_e + \sum_{j(j \neq i)} K_{ij} N_j + K_{\text{wall}} \right) N_i = \left(\sum_{j(j \neq i)} R_{ji}^e n_e + \sum_{j(j \neq i)} R_{ji}^{\text{atom}} N_g + \sum_{j > i} \eta_{ji} A_{ji} \right) N_j + \beta_i N_i n_e^2 \quad (1)$$

通过自主设计的 Matlab 计算程序求解各能级粒子的布居平衡方程组,得到相应实验条件下各能级的粒子布居数,从而推算出等离子体发射光谱中各谱线的相对强度。将计算结果与实验采集的发射光谱图进行对比分析,若推算的发射光谱与实验采集的结果基本吻合,就能确定当前实验条件下等离子体的电子密

度和温度^[10]。通过该光谱测量方法获取等离子体参数的主要过程如图 1 所示。具体步骤:1)在设定的等离子体特征参数(等离子体密度 n_e 及电子温度 T_e)下计算粒子间相关动力学反应速率;2)将动力学反应速率系数代入粒子布居平衡方程组,计算得到各能级粒子布居数;3)由各能级粒子布居结果推算出相关谱线的相

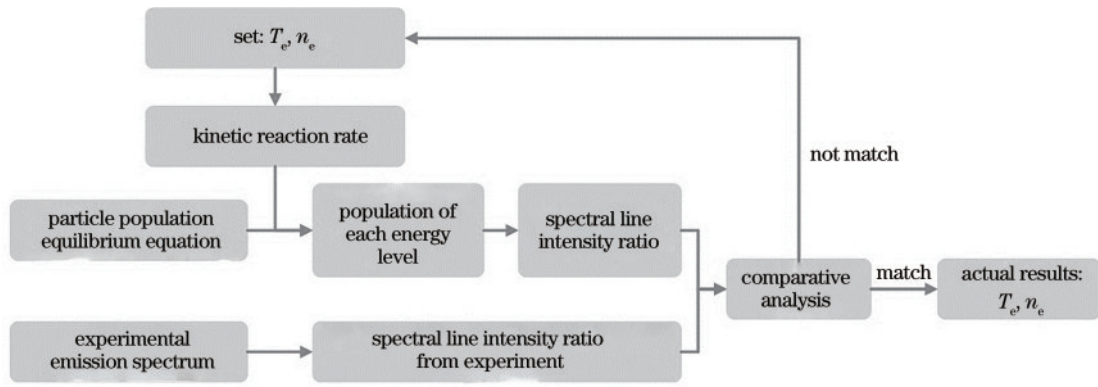


图 1 发射光谱法测量等离子体参数的流程图

Fig. 1 Flow chart of measuring plasma parameters by emission spectra measurement

对强度,选择两组合适的谱线(λ_1, λ_2)和(λ_3, λ_4)分别计算其强度比 $r_1 = I_1/I_2$ 和 $r_2 = I_3/I_4$; 4) 使等离子体特征参数(T_e, n_e)分别按设定步长变化,迭代计算并绘制选定的两组谱线强度比 r_1 及 r_2 随(T_e, n_e)变化的等值线图; 5) 通过实验采集的发射光谱图计算得出对应的两组谱线(λ_1, λ_2)和(λ_3, λ_4)的强度比,在步骤 4) 的等值线图中分别找到对应曲线,这两条等值线交点对应的(T_e, n_e)即为该方法测量得到的等离子体特征参数。

3 实验系统与测量结果

图 2 为离子引出模拟装置及其光谱测量系统的示

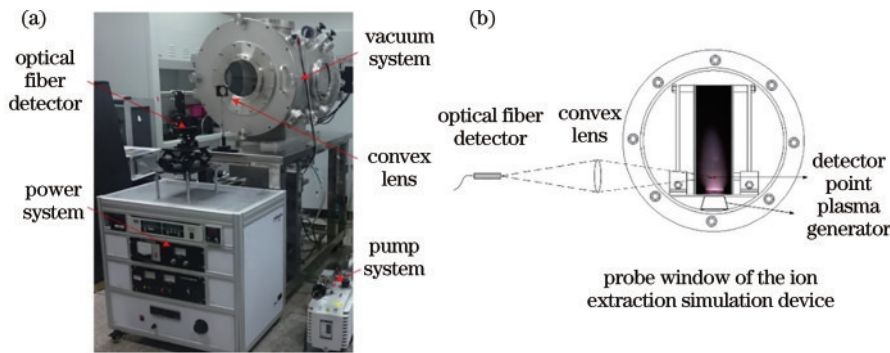


图 2 实验系统示意图。(a)离子引出模拟装置;(b)光谱测量系统

Fig. 2 Schematic diagram of the experimental system. (a) Simulation device of the ion extraction; (b) spectra measurement system

在实验系统的基础上开展了典型工况下(腔内压强 $p = 6.0 \times 10^{-2}$ Pa, 放电频率 $f = 26$ kHz, 电源功率 $P = 10.0$ W, 氩气流量 $L = 0.071$ g/min, 气体温度 $T_g = 600$ K)的等离子体特征参数测量实验,测量位置处于等离子体射流出口正上方 3 cm 处。当 T_e 的迭代步长为 1 eV, n_e 的迭代步长为 10^{10} cm^{-3} 时,通过 Matlab 软件计算选定两组谱线强度比 $r_1 = I_{738.4}/I_{912.3}$ 和 $r_2 = I_{696.5}/I_{750.4}$ 随等离子体特征参数(T_e, n_e)变化的等值线图如图 3 所示。其中, r_1 为水平走向的等值线组, r_2 为竖直走向的等值线组。

由实验采集的发射光谱数据得到对应谱线的实际谱线强度比值 $r_1 = 0.323$, $r_2 = 0.189$ 。将结果代入程序

意图。该装置通过等离子体发生器(放电功率可达 1000 W, 频率为 10~30 kHz)对氩气进行高压放电从而产生模拟等离子体束流,调节等离子体发生器的实验工况条件(如电源功率、放电频率、氩气流量)可以在一定范围内控制所产生等离子体的特征参数。通过法兰窗口可以看到,氩等离子体束流处于两块用于分离的电极板中间,利用凸透镜可以将其发射光谱信号按比例地传输到光纤探测器(Avantes 公司 AvaSpec PlasLine 系列多通道光谱仪,波长范围为 200~1070 nm,分辨率为 0.7~1.4 nm)的探头内,从而实现

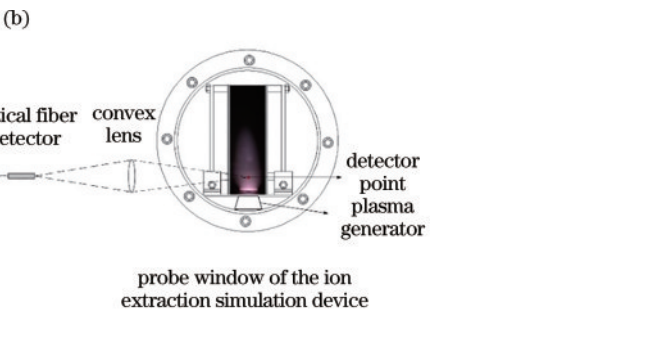


图 3 谱线强度比值随(T_e, n_e)变化的等值线图

Fig. 3 Contour plot of spectral line intensity ratio varying with (T_e, n_e)

中得到对应比值的两条谱线强度比曲线,由两条曲线交点 A 对应的横纵坐标得到当前实验条件下的氩等离子体参数 $(T_e, n_e) = (2.61 \text{ eV}, 6.16 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3})$ 。保持实验条件不变,重复测量 2 次,获得的实验数据如表 2 所示,最终得出射流区域中心位置的等离子体密度 $n_e = 6.02 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, 电子温度 $T_e = 2.60 \text{ eV}$ 。

表 2 发射光谱法测量氩等离子体参数的实验结果

Table 2 Experimental results of argon plasma parameters measured by emission spectra measurement

No.	$r_1 = I_{738.4} / I_{912.3}$	$r_2 = I_{696.5} / I_{750.4}$	$n_e / (10^{10} \text{ cm}^{-3})$	T_e / eV
1	0.323	0.190	6.16	2.61
2	0.330	0.189	5.98	2.61
3	0.320	0.186	5.91	2.58
Average	—	—	6.02	2.60

在此基础上,进一步开展了射流空间内氩等离子体参数变化情况的测量工作。将光纤探头固定在二维平移台上,通过沿轴向和径向移动平台测量典型工况下等离子体密度及电子温度在射流空间内的分布情况(定义原点为等离子体射流出口处,轴向(z 方向)为等离子体射流流动方向,径向(r 方向)为垂直于等离子体射流几何轴线的方向),实验结果如图 4 及图 5 所示。

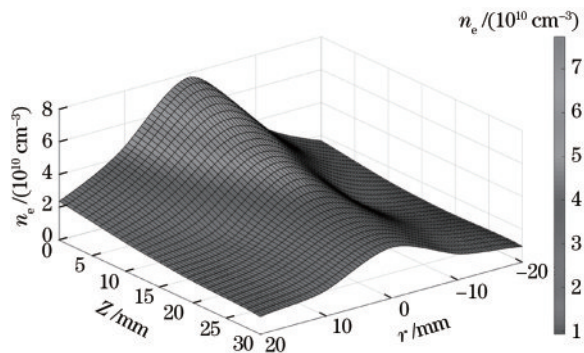


图 4 典型工况下射流区等离子体密度空间分布

Fig. 4 Spatial distribution of plasma density in jet region under typical working conditions

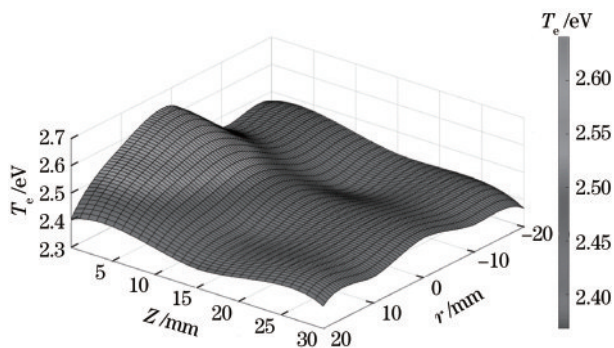


图 5 典型工况下射流区等离子体电子温度空间分布

Fig. 5 Spatial distribution of plasma electron temperature in jet region under typical working conditions

可以发现:随着轴向距离绝对值的增加,等离子体密度逐渐降低;随着径向距离绝对值的增加,等离子体密度也逐渐降低。电子温度分布趋势与密度的分布趋势大致相似,同样随轴向距离绝对值的增加逐渐降低,随径向距离绝对值的增加也逐步降低,但其变化幅度相对等离子体密度的变化幅度更为平缓。

4 结 论

针对离子引出模拟实验研究需求,提出了一种不干扰等离子体状态即可获取其特征参数信息的光谱测量方法。根据模拟介质氩等离子体状态建立了用于分析发射光谱的粒子布居平衡模型,设计了用于分析发射光谱的计算程序,并用该方法在离子引出模拟实验装置上完成了氩等离子体密度及电子温度等特征参数的测量工作。实验结果表明,典型工况下,测量得到射流区域测量点处(射流出口正上方 3 cm 处)的等离子体密度 $n_e = 6.02 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 及电子温度 $T_e = 2.60 \text{ eV}$ 。等离子体特征参数在空间内的分布规律:随着轴向距离(z)绝对值的增加,等离子体密度及电子温度均逐渐降低;随径向距离(r)绝对值的增加,等离子体密度及电子温度也逐渐降低,总体上等离子体密度相对电子温度的变化幅度更大。通过建立的光谱测量方法,可以很方便地获取模拟介质氩等离子体密度及电子温度等特征参数信息,为 AVLIS 离子引出模拟研究提供了一种可靠和实用的等离子体参数测量手段。

参 考 文 献

- [1] 李和平,王鹏,王鑫,等.原子蒸气激光同位素分离研究进展综述:(I):理论研究[J].高电压技术,2015,41(9):2825-2836.
Li H P, Wang P, Wang X, et al. Advances on the atomic vapor laser isotope separation process (I): theory [J]. High Voltage Engineering, 2015, 41(9): 2825-2836.
- [2] 李和平,王鑫,王鹏,等.原子蒸气激光同位素分离研究进展综述:(II):实验研究[J].高电压技术,2016,42(3):706-716.
Li H P, Wang X, Wang P, et al. Advances in atomic vapor laser isotope separation process (II): experiment [J]. High Voltage Engineering, 2016, 42(3): 706-716.
- [3] 叶超,宁兆元,江美福.低气压低温等离子体诊断原理与技术[M].北京:科学出版社,2010.
Ye C, Ning Z Y, Jiang M F. Low-pressure low temperature plasma diagnosis principle and technology [M]. Beijing: Science Press, 2010.
- [4] 吴蓉,李燕,朱顺官,等.等离子体电子温度的发射光谱法诊断[J].光谱学与光谱分析,2008,28(4):731-735.
Wu R, Li Y, Zhu S G, et al. Emission spectroscopy diagnostics of plasma electron temperature [J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2008, 28(4): 731-735.
- [5] 陆同兴,赵献章,崔执凤.用发射光谱测量激光等离子体的电子温度与电子密度[J].原子与分子物理学报,1994,11(2):120-128.

- Lu T X, Zhao X Z, Cui Z F. The determination of the electron temperature and electron density of laser plasma from the emission spectra[J]. *Journal of Atomic and Molecular Physics*, 1994, 11(2): 120-128.
- [6] Iordanova S, Koleva I. Optical emission spectroscopy diagnostics of inductively-driven plasmas in argon gas at low pressures[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2007, 62(4): 344-356.
- [7] 梁卓, 罗海云, 王新新, 等. 气流对氮气介质阻挡放电气体温度及放电模式的影响[J]. *物理学报*, 2010, 59(12): 8739-8746.
- Liang Z, Luo H Y, Wang X X, et al. Influences of gas flow on gas temperature and discharge mode in dielectric barrier discharge of nitrogen at atmospheric pressure[J]. *Acta Physica Sinica*, 2010, 59(12): 8739-8746.
- [8] Zhu X M, Chen W C, Li J, et al. Determining the electron temperature and the electron density by a simple collisional-radiative model of argon and xenon in low-pressure discharges[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2009, 42(2): 025203.
- [9] Zhu X M, Pu Y K. A simple collisional-radiative model for low-temperature argon discharges with pressure ranging from 1 Pa to atmospheric pressure: kinetics of Paschen 1s and 2p levels[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2010, 43(1): 015204.
- [10] Zhu X M, Pu Y K. Optical emission spectroscopy in low-temperature plasmas containing argon and nitrogen: determination of the electron temperature and density by the line-ratio method[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2010, 43(40): 403001.