

# Kontinuum

## Diagnostické metody 1

Zdeněk Navrátil

Ústav fyzikální elektroniky PřF MU, Brno

# Proč se zabývat kontinuem?

- 1 rozšířené možnosti pro diagnostiku plazmatu
- 2 významný zdroj záření a ztrát plazmat s vyšším stupněm ionizace

*Continuum radiation is a significant part of the total power balance of specialty lamps such as the UHP lamps from Philips. Continuum radiation completes the colour balance of UHP lamps in the red, and makes it possible to use these lamps in LCD projection systems. Bremsstrahlung radiation from  $e-H$  and  $e-He$  collisions is a major part of the opacity of stellar atmospheres.*

Lawler J E (2004) J. Phys. D: Appl. Phys. 37 1532

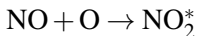
# Difúzní molekulová spektra

Nejběžnější způsoby vzniku

- kontinua víceatomových molekul
- disociace
- predisociace

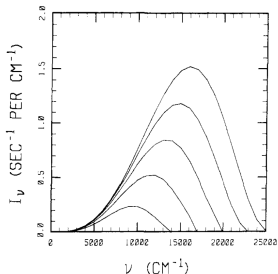
# „Nepravá“ kontinua – NO<sub>2</sub>

chemoluminescence:

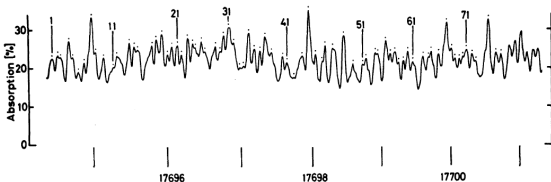


*Nitrogen dioxide (NO<sub>2</sub>) is notorious for its complex visible spectrum and has frustrated many chemists and physicists. . .*

Uehara K and Sasada H 1985 *High Resolution Spectral Atlas of Nitrogen Dioxide 559-597 nm*  
Springer Series in Chemical Physics  
mezi 559 - 596 nm kolem 13300 čar

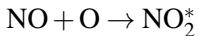


**Figure 2.** The model continuum spectrum as a function of excitation energy. From bottom to top,  $E = 13000, 16000, 19000, 22000,$  and  $25000 \text{ cm}^{-1}$ .



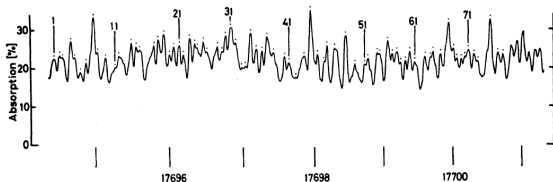
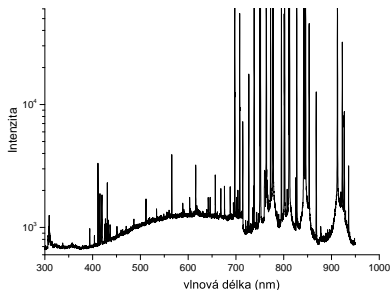
# „Nepravá“ kontinua – NO<sub>2</sub>

chemoluminescence:



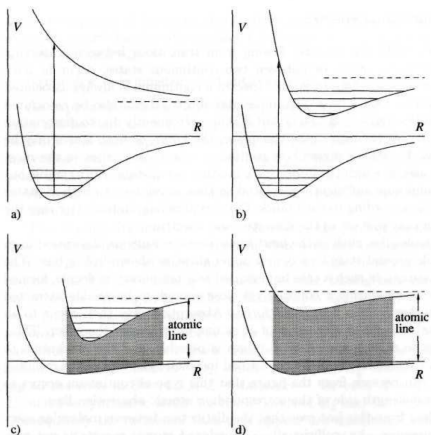
*Nitrogen dioxide (NO<sub>2</sub>) is notorious for its complex visible spectrum and has frustrated many chemists and physicists. . .*

Uehara K and Sasada H 1985 *High Resolution Spectral Atlas of Nitrogen Dioxide 559-597 nm*  
Springer Series in Chemical Physics  
mezi 559 - 596 nm kolem 13300 čar

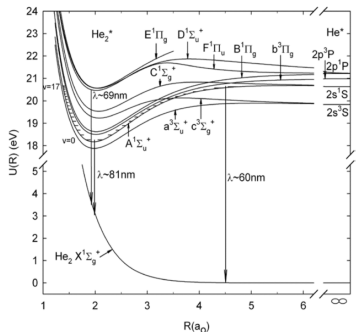
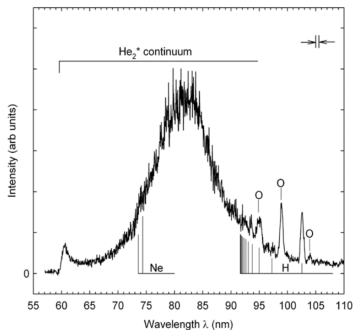


# Disociace molekuly

- jeden z molekulových stavů má spojité spektrum energií
- disociace molekuly  $AB \rightarrow A + B$



# VUV kontinua vzácných plynů – excimery



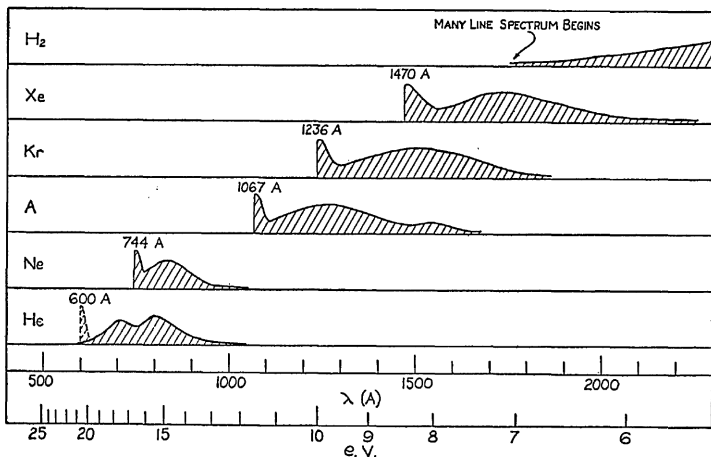
Hopfieldovo kontinuum  $\text{He}_2$  ( $A^1\Sigma_u^+ \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ ): 60–120 nm

$\text{He}_2$   $(\sigma_g 1s)^2(\sigma_u 1s)^2 X^1\Sigma_g^+$  – VdW vazba, 152 neV

$\text{He}_2$   $(\sigma_g 1s)^2(\sigma_u 1s)(\sigma_g 2s) A^1\Sigma_u^+$

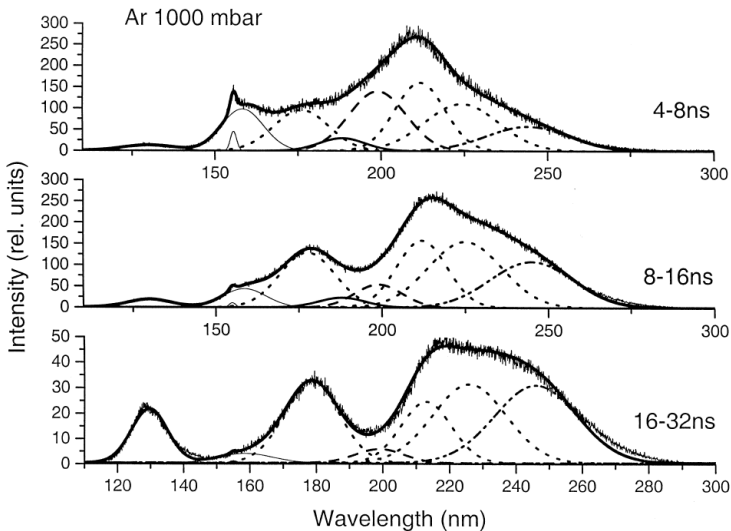
narodí od atomové čáry není kontinuum absorbováno samoabsorpcí  
intenzivní zdroje UV záření za atmosférického tlaku

# VUV kontinua vzácných plynů





# Třetí kontinua vzácných plynů

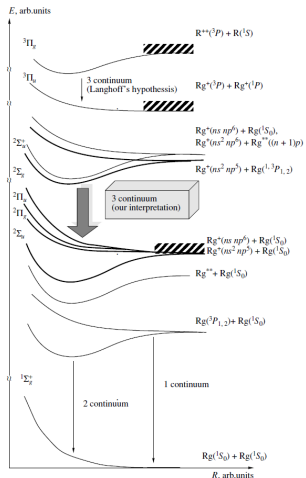


Wieser 2000 – Ar

# Třetí kontinua vzácných plynů – původ

## Hypotézy původu

- $Rg_2^{2+*}$
- $Rg_2^{+*}$

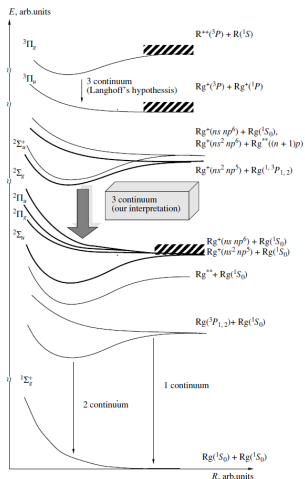


Boichenko 1999

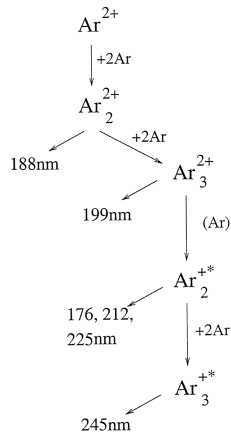
# Třetí kontinua vzácných plynů – původ

## Hypotézy původu

- $Rg_2^{2+*}$
- $Rg_2^{+*}$

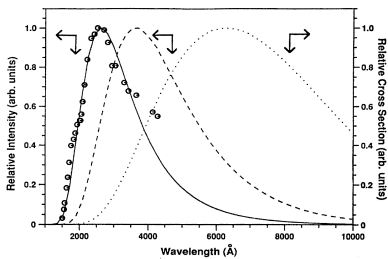


Boichenko 1999

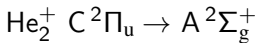


Wieser 2000

# Třetí kontinua vzácných plynů – helium

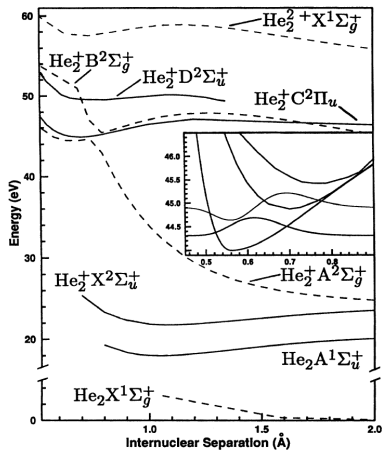


kontinuum Huffmann-Tanaka

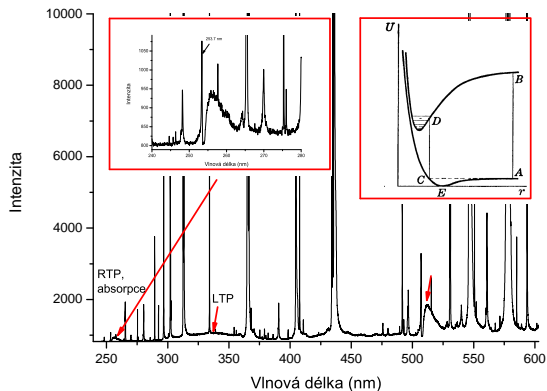


max 360 nm, klesá do 650 nm při 300 K

Hill 1991, vliv podmínek na tvar kontinua

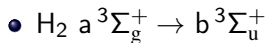
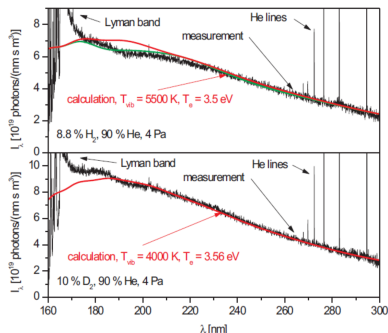
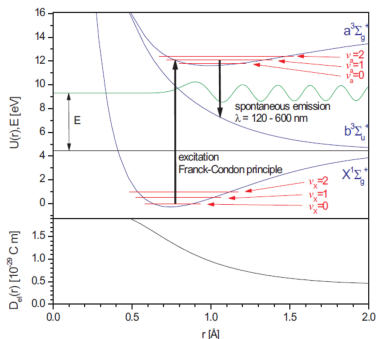


# UV/VIS kontinuum rtuťi



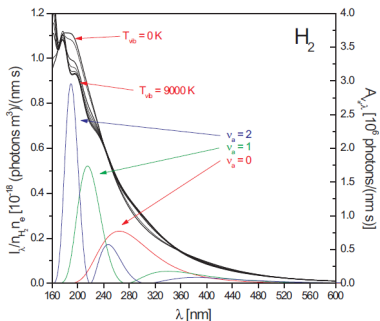
- Hg:  $[\text{Xe}] 4f^{14} 5d^{10} 6s^2 \rightarrow$  nestabilní základní stav  $\text{Hg}_2$
- kontinua  $\text{Hg}_2$  na 253 nm, 335 a 485/510 nm, druhý řád

# UV kontinuum vodíku

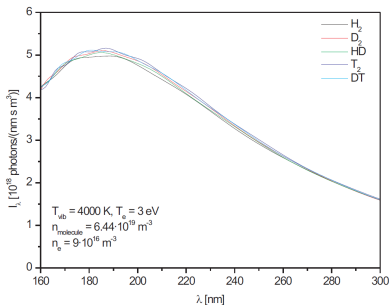


Fantz U, Schalk B and Behringer K 2000 Calculation and interpretation of the continuum radiation of hydrogen molecules *New Journal of Physics* 2 7.1

# UV kontinuum vodíku



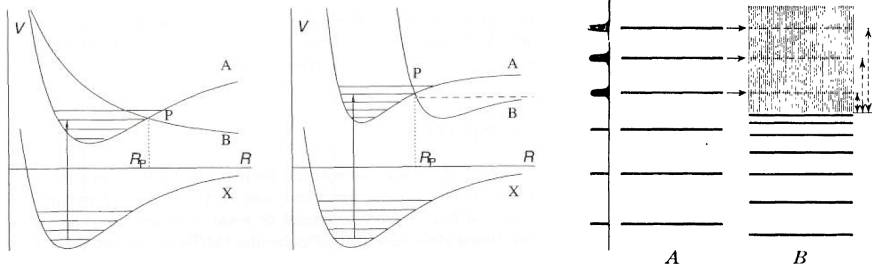
vliv vibrační excitace



vliv izotopů

- tvar kontinua závisí na  $T_{vib}$ , absolutní intenzita na  $T_e$
- standard pro kalibraci spektrometrů v UV oblasti

# Predisociace



- konfigurační interakce mezi diskrétními a spojitými stavy energií
- vede k: zeslabení/vymizení části spektra (nezářivý rozpad), rozmazání hladin v okolí křížení
- obdoba preionizace/autoionizace



# Predisociace

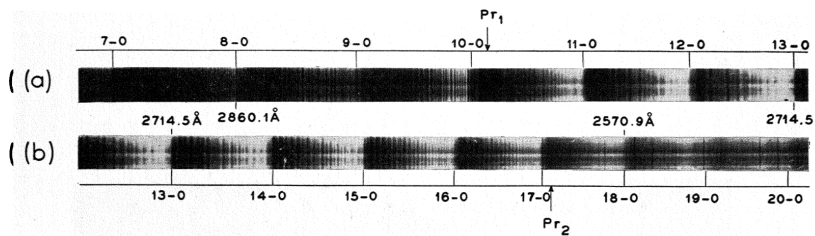


FIG. 16. Absorption Spectrum of S<sub>2</sub> Vapor. (a) and (b) give two adjacent parts of the same original spectrogram; they overlap slightly (13-0 band). The arrows denoted by  $Pr$  indicate the positions at which the bands become diffuse. The emission lines at the right in (b) are lines of H<sub>2</sub> (first order overlapping the second order spectrum).

# Predisociace $S_2$

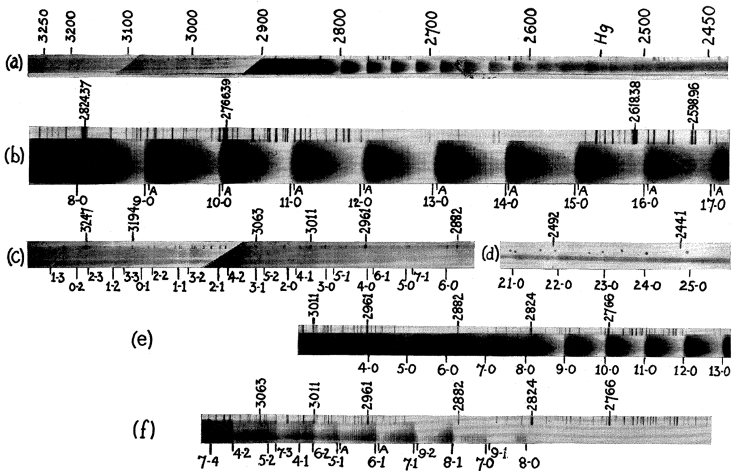


Fig. 1. (a)  $S_2$  spectrum investigated in absorption. (b) Part of (a) showing the first region of predissociation between  $\lambda 2792.8$  and  $\lambda 2615.0$  and the first band of the second region below  $\lambda 2615$ . (c) Absorption spectrum obtained with sulphur cell at about  $750^\circ\text{C}$ . (d) Bands of the second region of predissociation showing indications of rotational structure. (e) Absorption spectrum obtained with sulphur cell at about  $450^\circ\text{C}$ . (f) Emission spectrum of  $S_2$ .

By comparing (e) and (f) one sees that the bands which become diffuse in absorption due to predissociation do not appear in emission.

# Difúzní atomová spektra

Možné způsoby vzniku difúzního/spojitého spektra

- opticky husté plazma (*blackbody limit* a saturace čar)
- rozmazání hladin
- fb přechody
- ff přechody

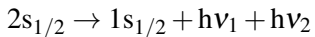
# Spontánní dvoufotonová emise?

$$h\nu_1 + h\nu_2 = E' - E''$$

# Spontánní dvoufotonová emise?

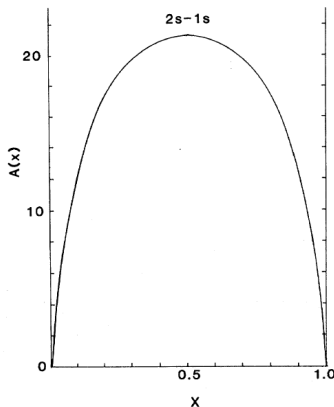
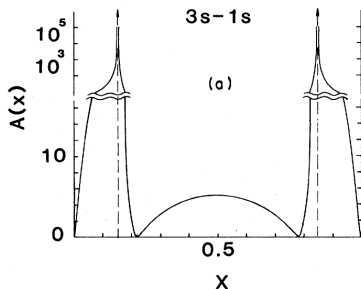
$$h\nu_1 + h\nu_2 = E' - E''$$

Př. vodík



$$A = 8,229 Z^6 s^{-1}$$

Klarsfeld S 1969 *Phys. Lett.* 30A, 382.



Tung J H et al 1984 *Phys. Rev. A* 30 1175

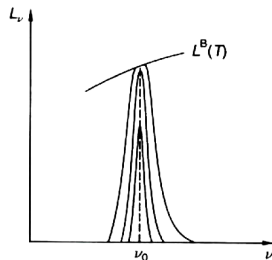
# Opticky husté plazma

$$L_I(\nu) = S'(\nu)[1 - e^{-k'(\nu)l}]$$

- opticky tlusté LTE plazma:

$$L_I(\nu) = S'(\nu) = L^B(\nu)$$

- Kirchhoffův zákon pro atomy
- nezrealizuje široké spektrum energií
- nebere v potaz vliv absorpce na populaci vyšších stavů
- samozvrat čáry v nehomogenním plazmatu



saturace čáry

# Opticky tlusté plazma – emisivita a absorbilita

- vystupující záření z opticky tlustého plazmatu

$$L_I(\nu) = S'(\nu)[1 - e^{-k'(\nu)l}]$$

- LTE plazma:

$$S'(\nu) = L^B(\nu)$$

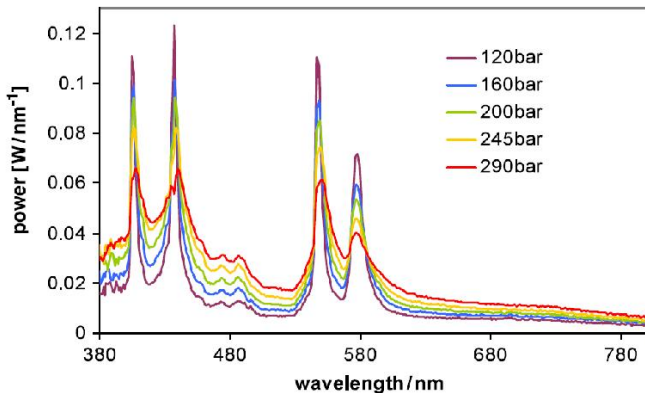
$$L_I(\nu) = L^B(\nu) \cdot \overbrace{[1 - e^{-k'(\nu)l}]^{A(\nu)}}$$

- $A$  – absorpční funkce, absorbilita (doplňek do 1 k propustnosti  $T$ )
- pokud  $A = 1$ , vše se pohltí, pak  $L_I(\nu) = L^B(\nu)$
- v praxi se pojem emisivity ( $\times$  koeficient emise) může používat pro výraz

$$\varepsilon(\nu) = L(\nu)/L^B(\nu) = A(\nu)$$

viz pyrometrie

# Opticky husté plazma



UHP zdroje, sodíkové čáry



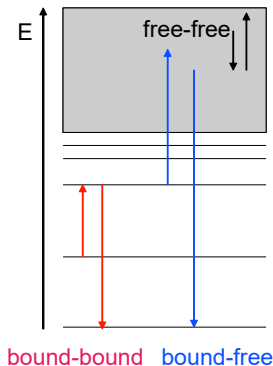
# b-b, b-f a f-f přechody

- fotoionizace
- rekombinační záření při záchytu elektronu iontem  $\mathcal{E}_{ei}^{fb}$
- záchyt elektronu atomem (vznik negativního iontu)  

$$\text{H} + e^- + \varepsilon \leftrightarrow \text{H}^- + h\nu,$$
- brzdné záření na iontech  $\mathcal{E}_{ei}^{ff}$
- brzdné záření na atomech  $\mathcal{E}_{ea}^{ff}$
- fotoasociace/fotodisociace  

$$\text{He}^+(1s) + \text{He}(1s^2) \leftrightarrow \text{He}_2^+ + h\nu$$
- radiační přenos náboje  

$$\text{He}^+(1s) + \text{He}(1s^2) \rightarrow \text{He} + \text{He}^+ + h\nu$$



# Volné a vázané stavy

Neostrá hranice mezi volnými a vázanými stavy vlivem

- snížení ionizačního potenciálu
- splývání diskretních hladin vlivem jejich rozšíření

# Snížení ionizačního potenciálu

K odstínění pole jádra v přítomnosti nabitých částic dojde na Debyeově délce

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T}{n_e e^2}}.$$

snížení ionizačního potenciálu atomu o

$$U_D = \frac{Z_{\text{ef}} e^2}{4\pi\epsilon_0 \lambda_D}$$

pro  $Z_{\text{ef}} = 1$ ,  $T = 10^4 \text{ K}$ ,  $n_e \approx 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  je

$$\lambda_D \approx 7 \cdot 10^{-8} \text{ m} = 1304 a_0 \quad \rightarrow \quad n^* = \sqrt{Z_{\text{ef}} \lambda_D / a_0} \approx 36$$

$$U_D \approx 0,02 \text{ eV}$$

Malé snížení, obtížně měřitelné.  $Q(T)$  konečné.

# Splývání hladin vlivem jejich rozšíření

- vzdálenost mezi hladinami

$$\delta E_n = hcRZ^2 \left[ \frac{1}{(n-1)^2} - \frac{1}{n^2} \right]$$

- rozšíření hladiny lineárním Starkovým jevem

$$\Delta E_n \propto n^2 |\vec{E}|, \quad |\vec{E}| \propto 1/\bar{R}^2, \quad \bar{R} \propto n_e^{-1/3}$$

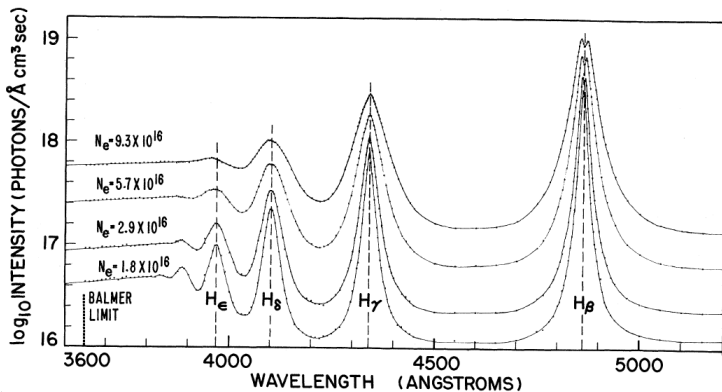
- limit Inglis-Teller pro atom ( $Z_a$ ) a perturber ( $Z_p$ )

$$\delta E_n \approx \Delta E_n$$

$$[p] = \frac{Z_a^{4,5}}{Z_p^{1,5}} \frac{1}{n_m^{7,5}} 10^{29,12} \text{ m}^{-3}$$

$n_m$  – nejvyšší kvantové číslo pozorovaného přechodu

# Splývání hladin vlivem jejich rozšíření



obloukový výboj ve vodíku,  $T \approx 10^4$  K

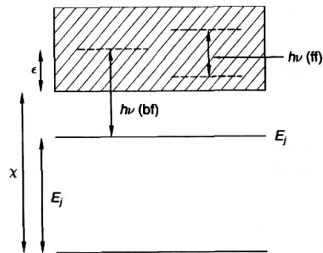
Wiese et al 1972 Phys. Rev A 6 1132

## fb přechody

- $A_j + h\nu \leftrightarrow A^+ + e^- + \varepsilon$ 
  - fotoionizace z vázaného stavu
  - ← radiální rekombinace, záchyt elektronu
- Einsteinův-Milneho vztah (účinný průřez pro záchyt)

$$\frac{\sigma(\nu)}{\alpha(\nu)} = \frac{h^2 \nu^2}{m^2 c^2 \nu^2} \frac{g_j}{g_{i0}}$$

$\sigma(\nu)$  – průřez pro záchyt,  $\alpha(\nu)$  – absorpční účinný průřez  $\alpha(\nu) = k(\nu)/n_j$ ,  
 $g$  – stat. váhy stavů atomu a iontu



$$h\nu = \chi + \varepsilon - E_j$$

$$\varepsilon = \frac{1}{2} m v^2$$

# Výpočet koeficientu emise fb přechodů

- nalezneme  $\alpha(\nu)$
- Kirchoffův zákon v LTE

$$\frac{j(\nu)}{k'(\nu)} = L^B(\nu)$$

- obecně pro Maxwellovo rozdělení

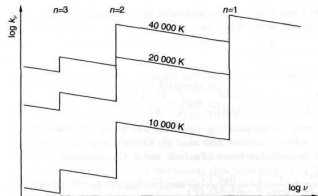
$$j(\nu) = \frac{h^2}{m} \left( \frac{m}{2\pi kT} \right)^{3/2} n_i n_e \nu \sigma(\nu) \nu^2 e^{-\varepsilon/kT}$$

# Absorpční průřez pro fotoionizaci

$$\alpha_n(\nu) = \frac{64}{3^{3/2}} \pi a_0^2 \alpha \left( \frac{\chi_H}{h\nu} \right)^3 \frac{Z^4}{n^5} G_n^{\text{bf}}(\nu, Z)$$

$$n_n = \frac{n_a}{Q(T)} 2n^2 e^{-\frac{Z^2 \chi_H}{kT}} (1 - 1/n^2)$$

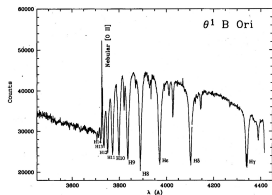
$$k(\nu) = \sum_n n_n \alpha_n(\nu)$$



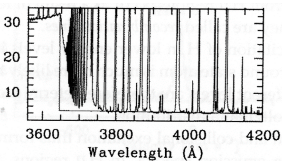
- atom vodíkového typu
- $G_n^{\text{bf}}(\nu, Z)$  – Gauntův faktor
- $\alpha \propto 1/n^5$  – při vysokých energiích hrají velkou roli dolní stavy
- $\alpha \propto 1/\nu^3$  – pokles intenzity po dosažení energie excitovaného stavu



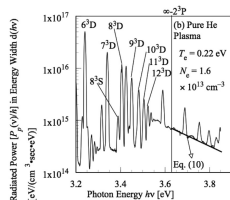
## fb přechody



fotoionizace



fotorekombinace H



fotorekombinace He

- Radiační rekombinace je velmi málo pravděpodobná.
- Rekombinace nabitých částic na stěnách
- Disociativní rekombinace molekulárních iontů za atmosférického tlaku.
- oblouky, H II oblasti mlhovin

# Výpočet $k'(\lambda)$ v obloukových výbojích

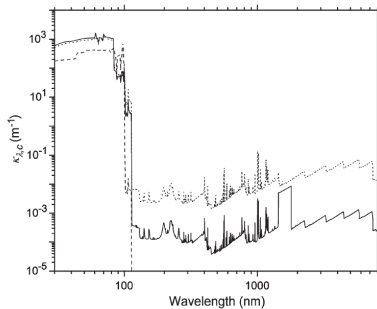


Fig. 9. Continuum absorption coefficient at 0.1 MPa. Dash line: 5000 K, straight line: 8000 K and dotted line: 10000 K.

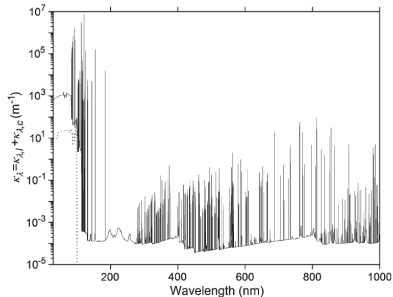


Fig. 11. Total absorption coefficient at 0.1 MPa and 8000 K. Straight line: total absorption coefficient and dotted line: molecular contribution to the  $k_{\lambda}$ .

Adineh 2012 *IEEE Trans. Plasma Sci.* 40 853

# Absorpční koeficienty pro fb a ff přechody

pro LTE, Maxwellovo rozdělení, vodíku podobné atomy (s nábojem jádra  $z$ )

$$\begin{aligned}k^{\text{fb}}(\nu) &= \frac{16\pi^2}{3^{3/2}} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^3 \frac{2z^2 n_a kT}{ch^4 Q_a(T) \nu^3} \exp\left(-\frac{z^2 \chi_H}{kT}\right) \left( e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1 \right) \\k^{\text{ff}}(\nu) &= \frac{16\pi^2}{3^{3/2}} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^3 \frac{2z^2 n_a kT}{ch^4 Q_a(T) \nu^3} \exp\left(-\frac{z^2 \chi_H}{kT}\right) G^{\text{ff}}\end{aligned}\tag{1}$$

# Zjednodušující vztahy pro výpočet emisí kontinuí

- rekombinační záření při záchytu elektronu iontem

$$\mathcal{E}_{ei}^{\text{fb}} = C_1 Z^2 \frac{n_e n_i}{\lambda^2 \sqrt{T_e}} \left[ 1 - e^{-\frac{hc}{\lambda k T_e}} \right] \xi_{ei}^{\text{fb}}(\lambda, T_e)$$

- brzdné záření na iontech

$$\mathcal{E}_{ei}^{\text{ff}} = C_1 Z^2 \frac{n_e n_i}{\lambda^2 \sqrt{T_e}} e^{-\frac{hc}{\lambda k T_e}} \xi_{ei}^{\text{ff}}(\lambda, T_e)$$

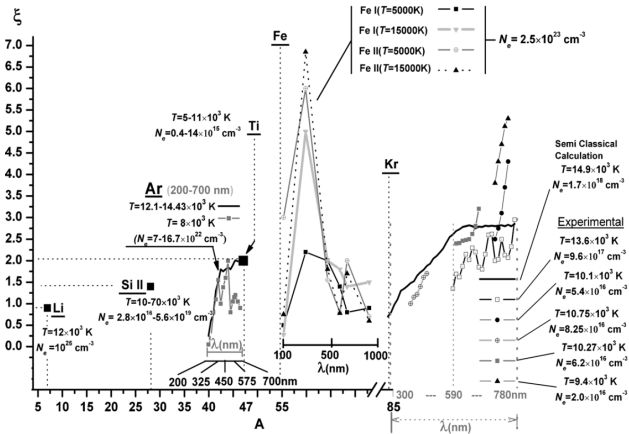
- brzdné záření na atomech

$$\mathcal{E}_{ea}^{\text{ff}} = \frac{1}{4\pi} n_e n_a h\nu \sqrt{\frac{2}{m_e}} \int_{h\nu}^{\infty} \frac{d\sigma(\varepsilon)}{d\lambda} f(\varepsilon) \varepsilon d\varepsilon,$$

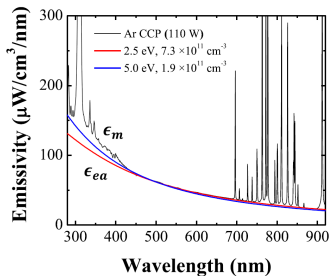
$$\frac{d\sigma(\varepsilon)}{d\lambda} = \frac{4\alpha}{3\pi} \frac{\varepsilon}{m_e c^2 \lambda} \sqrt{1 - \frac{h\nu}{\varepsilon}} \left( 2 - \frac{h\nu}{\varepsilon} \right) \sigma_m(\varepsilon)$$

- Předpokládáme Maxwellovo rozdělení ( $T_e$ ).
- $\xi_{ei}^{\text{fb}}(\lambda, T_e)$  a  $\xi_{ei}^{\text{ff}}(\lambda, T_e)$  – Bibermannovy faktory

## Bibermannovy faktory



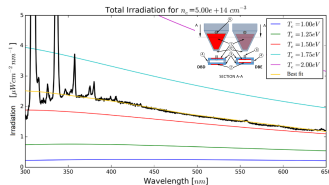
# Neutrální bremstrahlung v RF výbojích



## $\alpha$ -mode RF DBD in argon

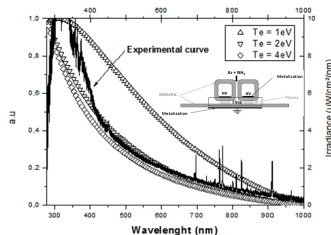
Park *et al* 2014 *Appl. Phys. Lett.* 104 084103

- $I_{ff}^{ea} \gg I_{ff}^{ei} + I_{fb}^{ei}$  for  $[i]/[a] \sim 10^{-3}$
- for electron density and temperature measurement
- RF DBD, OES of active discharge



## RF DBD/DBE jet in argon

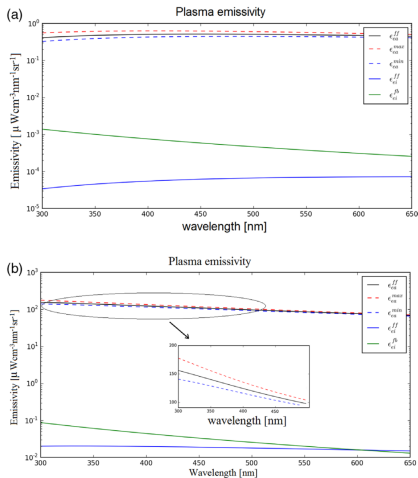
Nikiforov *et al* 2016 *Plasma Phys. Control. Fusion* 58 014013



## RF DBD in Ar + NH<sub>3</sub>

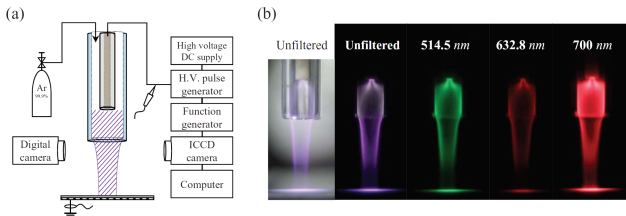
Bazinette *et al* 2015 *Plasma Sources Sci. Technol.* 24 055021

# Kontinua v RF výbojích

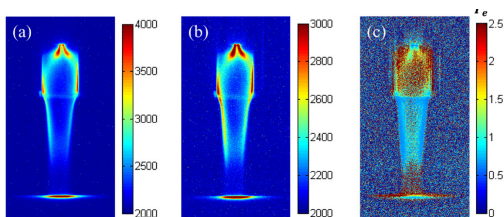


**Figure 10.** Emissivity of the Ar plasma estimated through the numerical solution of equations (1)–(3) for two typical conditions: (a)  $T_e = 1\text{ eV}$ ,  $n_e = 10^{13}\text{ cm}^{-3}$  and (b)  $T_e = 2\text{ eV}$ ,  $n_e = 10^{14}\text{ cm}^{-3}$ . Values  $\epsilon_{ii}^{\max}$  and  $\epsilon_{ii}^{\min}$  are calculated through the use of the approximation of the integral in equation (1) based on equations proposed in Refs. [33, 40, 41]. The emissivity is shown on the logarithmic scale with the inset in part (b) demonstrating the approximations of equation (1) on a linear scale.

# Kontinua v RF výbojích



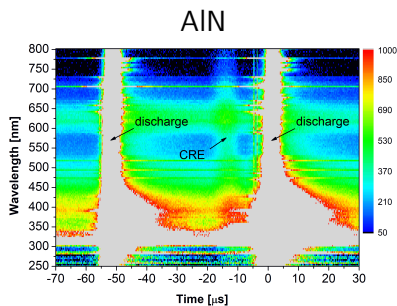
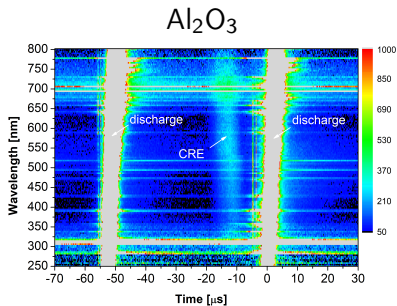
**Figure 3.** (a) The plasma apparatus for the argon *n*-PPJ with the relevant power system. (b) Optically unfiltered and filtered images taken using a DSLR camera with interference filters with center wavelengths of 514.5, 632.8 and 700 nm.



**Figure 6.** Raw images taken using a DSLR camera with (a)  $\lambda_c^a = 514.5$  nm and (b)  $\lambda_c^b = 632.8$  nm interference filters. (c) The 2D distribution of time-averaged  $T_e$  in the argon *n*-PPJ.



# Spojité záření v temné fázi koplanárního výboje v heliu



- saturated light from the active discharge  $> 10^6$  photons/point
- long-lasting emissions
- extra light with continuous spectrum observed in the time of the CRE

# Měření elektrického pole z brzdného záření

- bremsstrahlung cross section

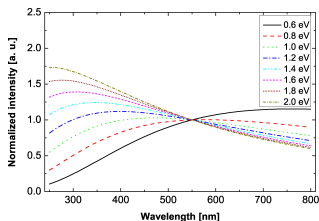
$$\frac{d\sigma(\varepsilon)}{d\lambda} = \frac{4\alpha}{3\pi} \frac{\varepsilon}{m_e c^2 \lambda} \sqrt{1 - \frac{h\nu}{\varepsilon}} \left(2 - \frac{h\nu}{\varepsilon}\right) \sigma_m(\varepsilon)$$

Kas'yanov V and Starostin A 1965 *Soviet Physics JETP-USSR* 21 193

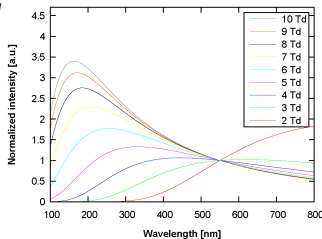
- bremsstrahlung intensity

$$I(\lambda; E/N) = \frac{1}{4\pi} n_e N h\nu \sqrt{\frac{2}{m_e}} \int_{h\nu}^{\infty} \frac{d\sigma(\varepsilon)}{d\lambda} f(\varepsilon; E/N)$$

- BKE solver for EDF  $f(\varepsilon; E/N)$
- strong shape dependence in VIS for low  $E/N$
- absolute intensity increases with  $E/N$

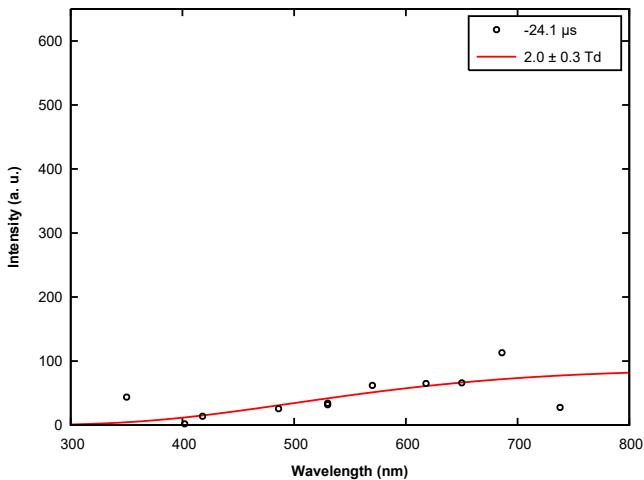


Maxwellian EDF

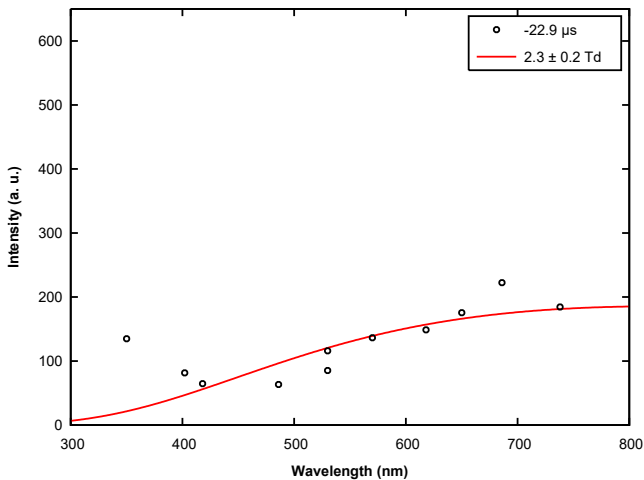


solution of BKE

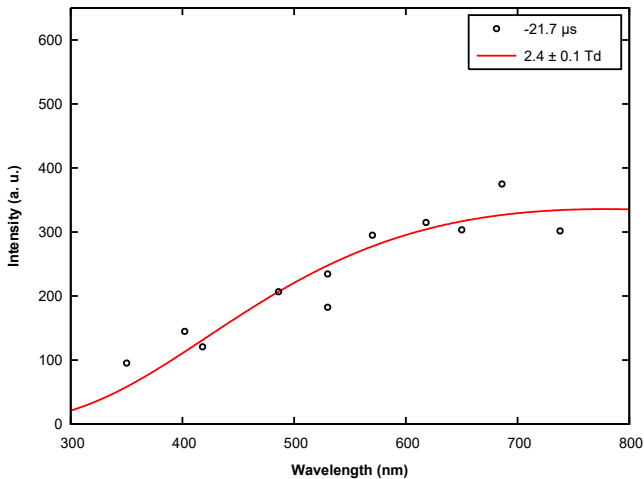
# Temporally and spatially resolved continuum development



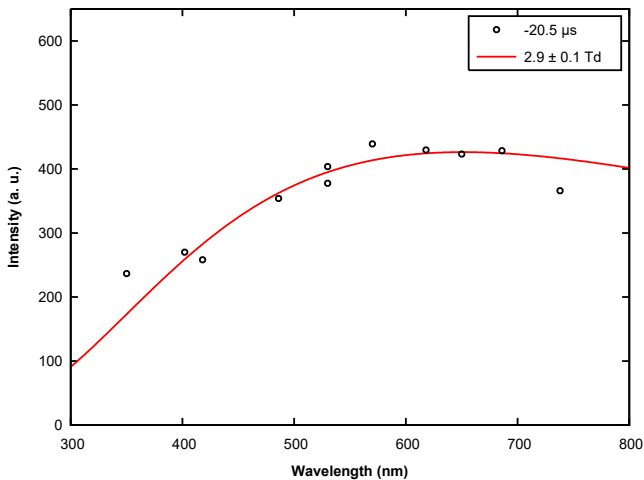
# Temporally and spatially resolved continuum development



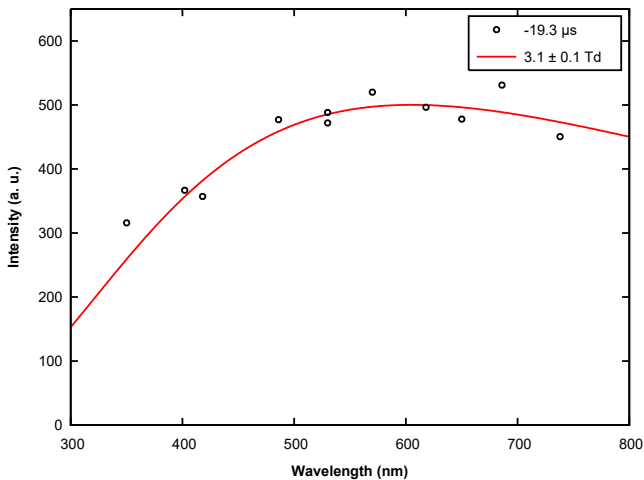
# Temporally and spatially resolved continuum development



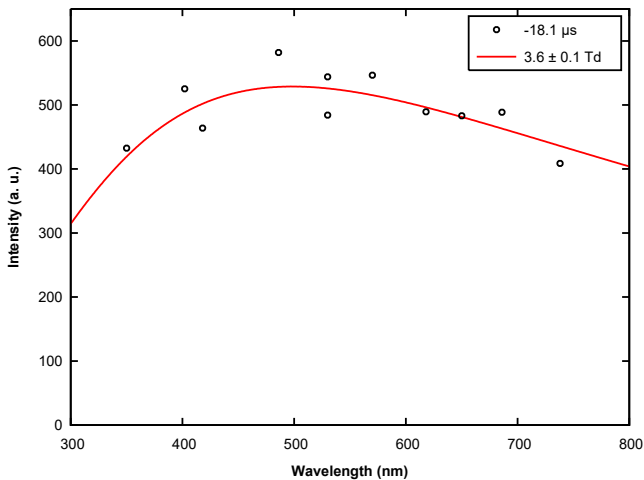
# Temporally and spatially resolved continuum development



# Temporally and spatially resolved continuum development

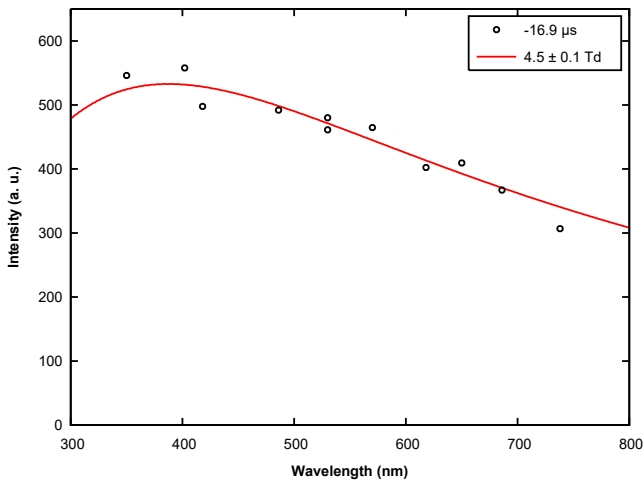


# Temporally and spatially resolved continuum development

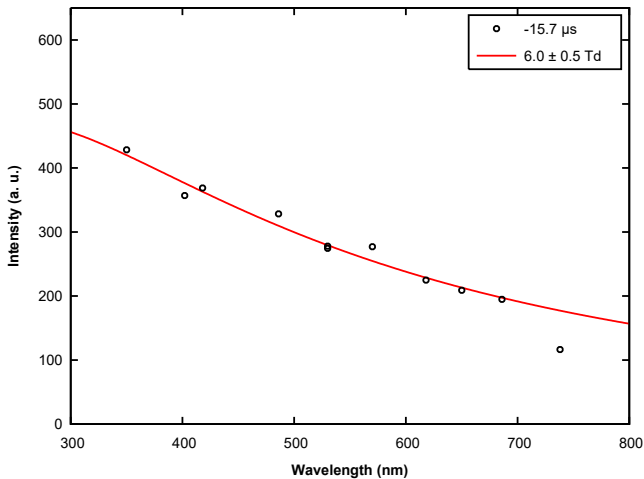




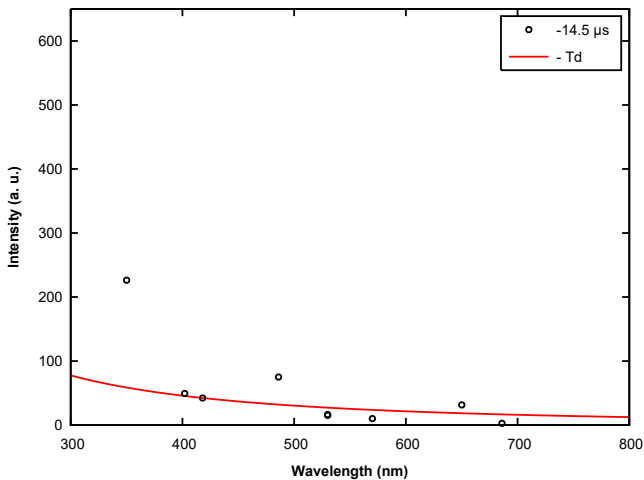
# Temporally and spatially resolved continuum development



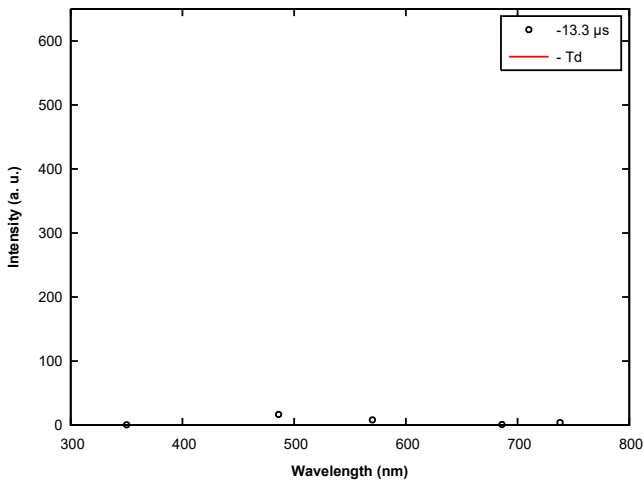
# Temporally and spatially resolved continuum development



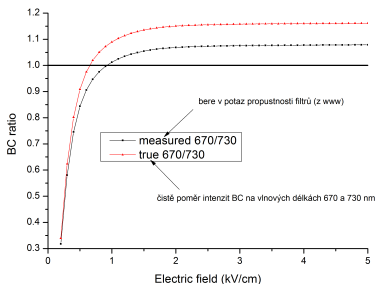
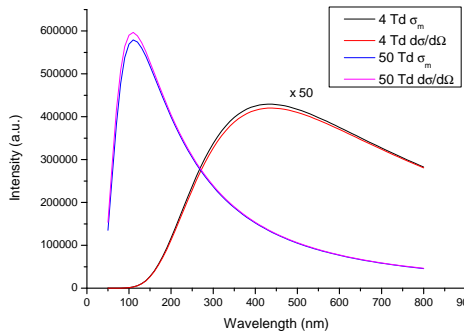
# Temporally and spatially resolved continuum development



# Temporally and spatially resolved continuum development



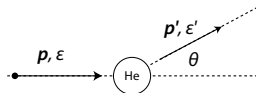
# Poměr intenzit brzdného záření



# Výpočet účinného průřezu neutrálního brzdného záření

- cross section for radiating electron

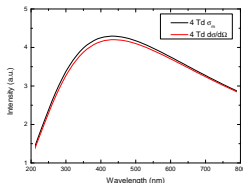
$$\frac{d\sigma(\varepsilon)}{d\lambda} = \frac{2\alpha}{3\pi m_e^2 c^2 \lambda} \frac{k'}{k} \int (\vec{p} - \vec{p}')^2 \frac{d\sigma_{el}}{d\Omega} d\Omega$$



$$\frac{d\sigma(\varepsilon)}{d\lambda} = \frac{4\alpha}{3\pi} \frac{\varepsilon}{m_e c^2 \lambda} \sqrt{1 - \frac{h\nu}{\varepsilon}} \int \left[ 2 - \frac{h\nu}{\varepsilon} - 2\sqrt{1 - \frac{h\nu}{\varepsilon}} \cos\theta \right] \frac{d\sigma_{el}}{d\Omega} d\Omega$$

- approximation for  $h\nu \ll \varepsilon$

$$\frac{d\sigma(\varepsilon)}{d\lambda} = \frac{4\alpha}{3\pi} \frac{\varepsilon}{m_e c^2 \lambda} \sqrt{1 - \frac{h\nu}{\varepsilon}} \left( 2 - \frac{h\nu}{\varepsilon} \right) \sigma_m(\varepsilon)$$



Kas'yanov V and Starostin A 1965 *Soviet Physics JETP-USSR* 21 193

Nesbet R K 1979 Variational calculations of accurate e-He cross sections below 19 eV, *Phys. Rev. A* 20