РАДИОФИЗИКА

УДК 533.9.082.76

КОНЦЕНТРАЦИЯ H^- В ПОЛОЖИТЕЛЬНОМ СТОЛБЕ ВОДОРОДНОЙ ПЛАЗМЫ НИЗКОГО ДАВЛЕНИЯ

А. М. Девятов, А. В. Калинин, Ли Сын Чан (КНДР), С. Р. Мийович (СФРЮ)

(*кафедра физической электроники*)

Вычислена концентрация отрицательных ионов в положительном столбе водородной плазмы низкого давления. В расчетах учтены основные процессы образования и разрушения отрицательных ионов. Определен эффективный коэффициент диффузии отрицательных ионов H^- в водороде. Экспериментально оценен верхний предел концентрации отрицательных ионов H^-.

Плазма в молекулярных электроотрицательных газах имеет сложный состав ионного компонента. Управление компонентным составом требует создания таких условий, чтобы элементарный процесс, ведущий к генерации нужного типа ионов, преобладал над другими элементарными процессами. Так, например, пучки отрицательных ионов, вытягиваемые из водородной плазмы, используются для очистки металлических поверхностей, для создания потоков ускоренных нейтральных атомов водорода и т. п.

1. Целью настоящего расчета было определение концентрации отрицательных ионов и сопоставление результатов расчетов с измеренными значениями n_-. В неизотермической водородной плазме низкого давления основными заряженными частицами являются: электроны, отрицательные ионы атомов водорода H^- и положительные ионы молекул водорода H_2^+ [1]. Чтобы определить концентрацию H^- в водородной плазме, необходимо написать уравнение баланса, в котором учтены основные процессы образования и разрушения отрицательных ионов H^-. Оценки показали, что в наших условиях ($p=10^{-2}\div10^{-1}$ Тор, $n_e=10^9\div10^{10}$ см$^{-3}$, $T_e=4\div5$ эВ, $I_d=50\div200$ мА, $R=2$ см) таковыми оказались:

диссоциативное прилипание

$$e+H_2\begin{matrix}\nearrow H^-+H\\ \searrow H^-+H^*\end{matrix}, \tag{1}$$

диссоциативная рекомбинация

$$e+H_2^+\rightarrow H^-+H^+, \tag{2}$$

электронное отлипание

$$H^-+e\rightarrow H+2e, \tag{3}$$

взаимная нейтрализация

$$H^-+H_2^+\rightarrow H+H_2 \tag{4}$$

и гибель отрицательных ионов на стенках. Тогда уравнение баланса будет иметь вид

$$k_1n_0n_e+k_2n_+n_e-k_3n_en_--k_3n_+n_--n_-/\tau=0. \tag{5}$$

Здесь k_1, k_2, k_3, k_4 — константы скоростей реакций (1), (2), (3), (4); n_0, n_+, n_-, n_e — концентрации молекул, положительных ионов H_2^+, отрицательных ионов H^- и электронов соответственно; τ — диффузионное время жизни H^-. Эффективные сечения процессов (1), (2), (3) взяты из работ [2, 3], [4] и [5] соответственно. Значение k_4 приводится в работе [6].

В условиях наших исследований при малых значениях плотности разрядного тока ($J<1{,}6\cdot10^{-2}$ А/см^2) и малых давлениях водорода ($p_{H_2}<10^{-1}$ Тор), принимая во внимание малое значение энергии сродства водорода к электрону ($E_a=0{,}75$ эВ), можно ожидать, что концентрация отрицательных ионов водорода будет меньше, чем концентрация электронов и положительных ионов. В этом случае можно в первом приближении пренебречь объемной рекомбинацией и считать, что потери заряженных частиц в основном будут происходить из-за их диффузии по направлению к стенкам разрядной трубки, что обусловит распределение заряженных частиц по сечению трубки согласно уравнению Бесселя.

Для нахождения диффузионного времени жизни отрицательных ионов τ необходимо знать их эффективный коэффициент диффузии D_{eff}^-. Используя выражения для плотности потоков электронов положительных ионов, отрицательных ионов и условие квазинейтральности [7], получим выражение

$$D_{\text{eff}}^- = D_+ \frac{1+(1+\alpha)\,\mu_+/\mu_e - \gamma\alpha\nabla n_e/\nabla n_- + \alpha\mu_-/\mu_e\nabla n_+/\nabla n_-}{1+\alpha\mu_-/\mu_e + (1+\alpha)\,\mu_+/\mu_e}. \tag{6}$$

Здесь D_+ — коэффициент свободной диффузии положительных ионов: μ_+, μ_-, μ_e — подвижности положительных и отрицательных ионов и электронов, $\alpha=n_-/n_e$, $\gamma=T_e/T_-=T_e/T_+$, где T_e, T_-, T_+ — температура соответствующих частиц. Как видно, D_{eff} в явном виде зависит от отношения градиентов концентрации частиц по радиусу, что делает гораздо более сложной задачу определения D_{eff} для электроотрицательных газов, чем для электроположительных.

В литературе встречаются различные выражения для D_{eff}^- (см., напр., [7, 8]), в зависимости от того, какой вид распределения заряженных частиц используется при расчетах. В работе [7] предположено, что распределения электронов и ионов по радиусу положительного столба подчиняются закону Больцмана. В таком случае получается

$$D_{\text{eff}}^- = D_+\left[\frac{1}{\gamma}\cdot\frac{\mu_-}{\mu_e}\cdot\frac{1+\gamma+2\alpha\gamma}{1+(\mu_+/\mu_e)(1+\alpha)+\alpha\mu_-/\mu_e}\right], \tag{7}$$

откуда следует, что D^-_{eff} является величиной только положительной и мало меняется при изменении α от 10^{-3} до 10^4. В работе [8] предполагалось, что нейтральные частицы, отрицательные и положительные ионы находятся в равновесии, в то время как распределение электронов может и не подчиняться закону Больцмана, и тогда

$$D_{\text{eff}}^- = D_+\left[\frac{1-\gamma+2(\alpha+1)\,\mu_-/\mu_e}{1+\alpha\mu_-/\mu_e+(1+\alpha)\,\mu_+/\mu_e}\right]. \tag{8}$$

В этом случае D_{eff}^- может быть величиной отрицательной, положительной и равной нулю. Результаты вычислений D_{eff}^-/D_+ с использованием формул (7) и (8) приведены на рис. 1 для условий $\gamma=100$; $\mu_-/\mu_e=0{,}088$; $\mu_+/\mu_e=0{,}024$ [9].

Искомое диффузионное время жизни находится теперь в предположении бесселевского распределения отрицательных ионов вдоль радиуса [10]. Для нашего случая цилиндрической геометрии согласно [11] будем иметь

$$\tau = \frac{1}{D_{\text{eff}}^{-}} \frac{R^2}{2,4^2}, \tag{9}$$

где R — радиус трубки.

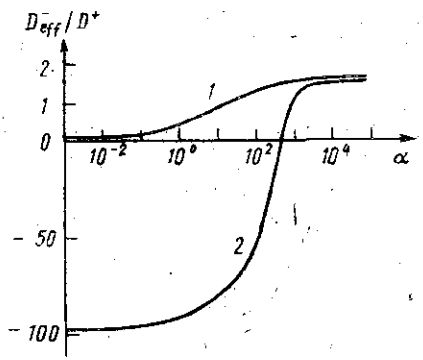

Рис. 1

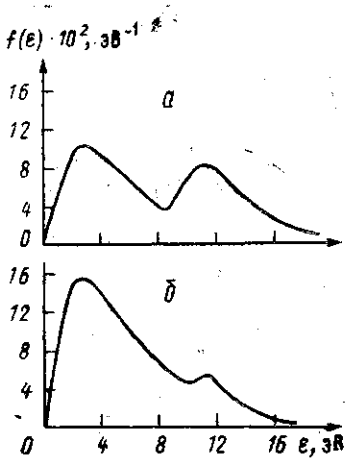

Рис. 2

Рис. 1. Зависимость отношения D^{-}_{eff}/D_{+} от $\alpha = n_{-}/n_e$, рассчитанная по (7) — *1* и по (8) — *2* при $\gamma = 100$

Рис. 2. ФРЭЭ вдоль страты: в «головке» (*а*) и в «хвосте» страты (*б*)

Теперь имеем возможность сравнивать члены уравнения баланса (5), которые описывают исчезновение отрицательных ионов атомов водорода. Например, для $p_{H_2} = 10^{-2}$ Тор, $T_e = 5$ эВ и $n_e = 10^9$ см$^{-3}$ получим частоту отлипания электронов $k_3 n_e = 5 \cdot 10^2$ с$^{-1}$, частоту взаимной нейтрализации $k_4 n_e = 10^2$ с$^{-1}$, частоту ухода на стенки $1/\tau = 9 \cdot 10^3$ с$^{-1}$, т. е. последний член в уравнении (5) больше чем на порядок величины превосходит третий и четвертый члены (не принимая во внимание, что отлипание в большой степени компенсируется прилипанием [12]), что подтверждает сделанные нами ранее предположения.

Основную трудность при решении уравнения (5) представлял учет диффузионных потерь, зависящих от концентрации отрицательных ионов, которую, собственно, и необходимо определить. Уравнение (5) решалось итерационным методом. На первом шаге задавалось произвольное $\alpha = n_{-}^{(0)}/n_e$, после чего квадратное уравнение (5) решалось относительно n_{-}. Тем самым находилось следующее приближение для $\alpha_1 = n_{-}^{(1)}/n_e$. Затем снова находилось следующее приближение для $n_{-} = n_{-}^{(2)}$, после чего процедура повторялась необходимое число раз в зависимости от требуемой точности нахождения α.

При выборе коэффициента диффузии D_{eff}^{-} согласно [7] описанный итерационный процесс сходится очень быстро. В случае же выбора коэффициента диффузии по [8] ситуация выглядит совершенно иным

образом. В силу того что D_{eff}^{-} может быть отрицательной величиной, итерационный процесс неустойчив. Это свидетельствует о том, что теория [8] внутренне противоречива. Действительно, в основе данной теории лежит предположение о больцмановском распределении отрицательных ионов, в то время как окончательное решение задачи показывает, что коэффициент диффузии D_{eff}^{-} во много раз больше по абсолютной величине коэффициента свободной диффузии. Однако при наличии потоков частиц больцмановского распределения, вообще говоря, не существует. Принятие в [13] такого предположения для электронов обусловлено тем, что коэффициент амбиполярной диффузии много меньше коэффициента свободной диффузии электронов. Для отрицательных же ионов наблюдается, как мы только что показали, обратная ситуация.

В наших экспериментальных условиях положительный столб был почти без страт ($p_{H_2}=10^{-2}$ Тор, $I_d=50$ мА) или с ярко выраженными неподвижными стратами ($p_{H_2}=10^{-1}$ Тор, $I_d=200$ мА). В первом случае функция распределения электронов по энергиям (ФРЭЭ) была почти максвелловская с $T_e=5$ эВ и $n_e=10^9$ см$^{-3}$. Результат расчета значения $\beta=n_-/n_+$ из уравнения (5) дал $\beta\approx 0{,}03$. Когда увеличивали давление p_{H_2} и разрядный ток I_d, положительный столб становился стратифицированным. При этом ФРЭЭ была резко неравновесной и ее вид сильно отличался в «головках» и «хвостах» страты (рис. 2). Подобные результаты получены в работе [14]. Вычисления с использованием экспериментально полученных ФРЭЭ для следующих условий эксперимента: $p_{H_2}=4\cdot 10^{-2}$ Тор, $n_e=4\cdot 10^9$ см$^{-3}$, $I_d=150$ мА привели к $\beta=0{,}2$ в «головке» страты и $\beta=4{,}5\cdot 10^{-3}$ в «хвосте». Из анализа результатов расчетов видно, что надо ожидать больших концентраций H^- при больших давлениях водорода, особенно в «головках» страт. В «головках» страт ФРЭЭ сильно обогащена быстрыми электронами, при $E_e>9$ эВ на функции распределения имеется второй максимум. Первый член уравнения (5), описывающий процесс диссоциативного прилипания (1), имеет порог при $E_e\approx 8$ эВ. Такой вид ФРЭЭ приводит к увеличению значения k_1 в уравнении (5). Кроме того, увеличение давления уменьшает роль диффузионных потерь, что тоже приводит к увеличению концентрации H^-.

2. Эксперименты проводились в разрядной трубке диаметром 4 см и длиной 30 см с оксидным катодом накаливания.

Для обнаружения отрицательных ионов в плазме было измерено отношение токов насыщения отрицательных частиц к току насыщения на плоский зонд положительных ионов $r=i_{-s}/i_{+s}$ [15]. Ток насыщения отрицательных частиц будет равен

$$i_{-s}=eS\cdot[n_e(kT_e/2\pi m_e)^{1/2}+n_-(kT_-/2\pi M_-)^{1/2}], \tag{10}$$

а положительных ионов —

$$i_{+s}=0{,}6eSn_+(kT_e/M_+)^{1/2}, \tag{11}$$

где S — площадь поверхности зонда, e — заряд электрона, k — постоянная Больцмана, m_e, M_-, M_+ — массы электрона, отрицательного и положительного ионов соответственно. Суть метода заключается в том, что отношение r уменьшается, если в плазме существуют отрицательные ионы, потому что для выполнения условия квазинейтральности при заданном значении n_+ требуется меньшая концентрация n_e. Когда $\beta=n_-/n_+$ имеет малые значения, оценка концентрации отрицательных

ионов по измеренным значениям r проводится с большими погрешностями, потому что r слабо зависит от β. В чисто электроположительном газе (в нашем случае гелий) получали измеренное отношение $r_0|_{\beta=0}=i_{es}/i_{+s}$, которое меньше отношения $r_{00}=(2{,}72M_+/2\pi m_e)^{1/2}$, полученного делением (10) на (11), так что метод дает завышенные значения для n_- [1]. Причиной уменьшения экспериментальных значений r и r_0 является неполная справедливость известных предположений, заложенных в теорию зондовых измерений, в условиях экспериментов [15]. Все это требует проведения оценки точности метода измерений r_0 в чистом электроположительном газе. После этого концентрацию отрицательных ионов можно определить, используя выражение [15]

$$r/r_0=(i_{-s}/i_{+s})/(i_{es}/i_{+s})_{\beta=0}=(1-\beta)+(m_eT_-/M_-T_e)^{1/2}\beta. \qquad (12)$$

Как видно из формулы (12), с учетом условия $m_e \ll M_-$ и $T_- < T_e$, для небольшого β можно пользоваться приближенной формулой

$$r/r_0 \approx (1-\beta). \qquad (13)$$

Отсюда следует, что для определения $\beta=n_-/n_+$ должны быть измерены значения (i_{-s}/i_{+s}) и $(i_{es}/i_{+s})|_{\beta=0}$. Анализ показывает, что формула (12) не совсем точна, так как масса положительного иона M_+ в чистом электроположительном газе не равна эффективной массе $M_{+\mathrm{eff}}$ положительного иона в смеси газов. С учетом этого замечания вместо (12) получаем

$$r/r_0=(1-\beta)(M_{+\mathrm{eff}}/M_+)^{1/2}+(mT_-/M_-T_e)^{1/2}\beta\,(M_{+\mathrm{eff}}/M_+)^{1/2}, \qquad (12a)$$

где $M_{+\mathrm{eff}}=cM_++(1-c)M_{+n}$ — доля концентрации положительных ионов электроположительного газа в смеси, M_{+n} — масса положительного иона электроотрицательного газа.

Для того, чтобы оценить нижнюю границу $\beta_1=n_-/n_+$, которую позволяет определить наш метод, были многократно измерены значения $r_0=i_{es}/i_{+s}$ в чистом гелии.

Было определено отношение максимального отклонения $r_{\max}$ от среднеарифметического значения $\bar{r}$ к величине $\bar{r}$, $a=r_{\max}/\bar{r}$. Тогда из (12) можно получить выражение для самого малого значения β_1, которое можно оценить из результатов измерений [15]:

$$\beta>\beta_1=(1-a)/[1-(T_-m_e/T_em_-)^{1/2}]\approx 1-a.$$

Статистическая обработка результатов измерений показывает, что $|1-a|=0{,}2$. Отсюда следует, что по формуле (13) мы не можем определить наличие отрицательных ионов, если $\beta<0{,}2$.

При измерениях в разряде в гелии с добавкой водорода значения отношения токов насыщения r изменялись в пределах погрешностей экспериментов, так что мы можем оценить только верхний предел для $\beta=n_-/n_+$: он равен 0,2.

Об измерениях в разряде в чистом водороде можно сказать следующее. Если предположить, что там нет отрицательных ионов, то нужно ожидать, что r будет в $\sqrt{2}=(M_{\mathrm{He}^+}/M_{\mathrm{H}_2})^{1/2}$ раз меньше, чем r_0 в разряде в чистом гелии, так как $r_{00}=(2{,}72M_+/2\pi m_e)^{1/2}$ — функция только M_+. Измерения дали ожидаемый результат с разбросом от среднего значения около 20%. Это свидетельствует, что в разряде в чистом водороде $\beta \ll 0{,}2$.

ЛИТЕРАТУРА

[1] Nicolopolov E., Bacal M., Doucet H. J.//J. de Physique. 1977. **38**. P. 1399. [2] Scultz G. J., Asundi R. K.//Phys. Rev. Lett. 1965. **15**. P. 946. [3] Rapp D., Sharp T. E., Briglia D. D.//Phys. Rev. Lett. 1965. **14**. P. 533. [4] Duborsky G. N., Ob'edkov V. D., Janev R. K.//Vth Int. Conf. on Physics of Electronic and Atomic Collisions. Leningrad, 1976. P. 342. [5] Peart B., Walton D. S., Dolder K. T.//J. Phys. 1970. **B3**. P. 1346. [6] Bates D. R., Boyd T. J. M.//Proc. Phys. Soc. A. 1956. **69**. P. 910. [7] Thompson J. B.//Proc. Phys. Soc. 1959. **73**. P. 818. [8] Arutunian G. G., Galechian G. A.//J. Phys. 1979. **40**. P. C7-205. [9] Ellis H. W., Pai R. J., McDaniel E. W.//Atomic Data and Nuclear Data Tables 1976. **17**. P. 177. [10] Конюков М. В.//ЖЭТФ. 1958. **34**, № 4. С. 908; № 6. С. 1634. [11] Мак-Даниель И., Мэзон Э. Подвижность и диффузия ионов в газах. М., 1976. С. 24. [12] Райзер Ю. П. Физика газового разряда. М., 1987. С. 157. [13] Грановский В. Л. Электрический ток в газах. М., 1971. Т. 2. С. 240. [14] Boyd R. L., Twiddy N. D.//Proc. Roy. Soc. 1960. **A259**. P. 145. [15] Amemiya H.//J. Phys. Soc. Japan. 1988. **57**. P. 887.

Поступила в редакцию
02.01.90

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3, ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ. 1991. Т. 32, № 3

УДК 533.9.082

ЗОНДОВАЯ ДИАГНОСТИКА ПЛАЗМЫ, СОДЕРЖАЩЕЙ ОТРИЦАТЕЛЬНЫЕ ИОНЫ ИОДА

Л. М. Волкова, А. М. Девятов, С. Р. Мийович (СФРЮ), М. К. Таракджи (Сирия)

(*кафедра физической электроники*)

Путем обработки вольт-амперных характеристик одиночного цилиндрического зонда и методом второй производной тока на зонд для смеси гелия с парами иода получены значения температуры и ФРЭЭ электронов, концентрации электронов, положительных и отрицательных ионов иода. Результаты, полученные из решения уравнения баланса, удовлетворительно согласуются с данными измерений.

Плазма в электроотрицательных газах, в том числе в галогенах, находит многочисленные применения в плазмохимии, в газоразрядных приборах, особенно в лазерах [1]. Плазма в смеси иода с гелием образует активную среду для лазера в видимой [2] и близкой инфракрасной областях спектра переходов между состояниями нейтрального атома иода [3].

Цель настоящей работы состояла в измерении основных характеристик плазмы положительного столба в смеси гелия с парами иода. Условия экспериментов были следующие: парциальное давление гелия 0,3 Тор, иода $10^{-4} \div 10^{-3}$ Тор, значение разрядного тока 30 мА. Для определения концентрации электронов n_e, положительных ионов n_+, отрицательных ионов n_-, температуры электронов T_e, функции распределения электронов по энергиям ФРЭЭ и отношения $\alpha = n_-/n_e$ были использованы одиночные цилиндрические зонды, расположенные на оси трубки. Результаты получены путем обработки вольт-амперных зондовых характеристик и методом второй производной тока на зонд. Разрядная трубка длиной 40 см и диаметром 4 см была снабжена полым цилиндрическим катодом в виде сетки длиной 10 см, расположенным посередине трубки, и двумя плоскими дискообразными анодами на обоих ее концах. Катод и анод были изготовлены из нержавеющей стали.