

## НЕМОНОТОННОЕ ИЗМЕНЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ ЭЛЕКТРОНОВ В РАСПАДАЮЩЕЙСЯ ПЛАЗМЕ ИМПУЛЬСНОГО РАЗРЯДА В АЗОТЕ

*Л.С.Богдан, С.М.Левитский, Е.В.Мартыш*

В нашей работе [1] сообщалось, что при распаде плазмы, образовавшейся под воздействием ультрафиолетового излучения мощного импульсного разряда в молекулярных газах ( $N_2$ ,  $O_2$ ,  $NO$ ), наблюдался немонотонный ход изменения концентрации зарядов во времени: после этапа быстрого спада концентрация электронов испытывала на протяжении нескольких сотен мкс рост в 1.5–2 раза, после чего плазма распалась окончательно. В инертных газах подобная немонотонность не наблюдалась. Настоящая работа посвящена более подробному описанию этих экспериментальных результатов и обсуждению механизмов, которые бы могли быть причиной указанного явления.

Эксперименты проводились на установке, подобной описанной в работе [2]. В центре цилиндрической вакуумной камеры соосно с ней был расположен импульсный кольцевой источник плазмы (КИП) [3]. Он представлял собой диэлектрическое кольцо диаметром 10 см, на внутренней поверхности которого был расположен ряд не соединенных друг с другом электродов. При подаче импульса напряжения с  $U_c = 15 \dots 25$  кВ межэлектродные промежутки одновременно пробиваются и по внутренней поверхности кольца возникает скользящий разряд с силой тока до 10 кА, длящийся 20...30 мкс. Ультрафиолетовое излучение разряда создает внутри кольца фотоионизационную плазму с концентрацией зарядов порядка  $10^{12}$  см $^{-3}$ .

В торцах камеры имелись вакуумные окна, через которые вводился радиосигнал восьмимиллиметрового диапазона, служивший для зондирования образующейся плазмы. Расположенными в окнах диэлектрическими линзами зондирующее излучение фокусировалось в плоскости КИП, образуя фокальное пятно с диаметром не более 3 см. Внутренние стенки камеры были покрыты материалом, поглощающим рассеянное радиозлучение.

Измерения проводились в инертных ( $Ne$ ,  $Ar$ ,  $Kr$ ) и молекулярных газах ( $N_2$ ,  $O_2$ ,  $NO$ ), а также в их смесях при давлениях от нескольких Тор до 1 атм. Поскольку при указанных давлениях обычные СВЧ методики не дают достаточно корректных результатов, то нами была разработана комбинированная методика, пригодная для измерений при высоких давлениях газа и сочетающая в себе одновременное измерение сигнала, непосредственно прошедшего через плазму, и интерференционного сигнала [4]. Эта методика позволяла получать информацию одновременно как о концентрации электронов  $n_e(t)$ , так и о частоте их соударений с тяжелыми частицами  $\nu(t)$ .

Результаты измерений в чистом азоте при давлении  $p = 100$  Тор и  $U_c = 21$  кВ представлены на рисунке. Как видно, концентрация электронов вначале довольно быстро уменьшается со скоростью  $10^{16}$  см $^{-3} \cdot c^{-1}$ , но с момента  $t \approx 150$  мкс начинает возрастать и возрастает до  $t \approx 300$  мкс, после чего вновь монотонно спадает. Частота соударений в пределах точ-

ности измерений сохраняется неизменной и равной  $\sim 10^{11} \text{ с}^{-1}$ . Аналогичные результаты были получены и для других давлений в других молекулярных газах. В инертных газах повторный рост концентрации никогда не наблюдался. Следует отметить, что даже небольшие добавки молекулярных газов к инертным (например,  $\text{Ar} + 2\% \text{N}_2$  и даже  $\text{Ar} + 0.1\% \text{O}_2$ ) также давали картину повторного роста концентрации. С уменьшением энерговклада в разряд (т.е. с уменьшением напряжения  $U_c$ ) выраженность повторного нарастания концентрации уменьшалась и оно могло исчезнуть совсем.

Нечто подобное такому немонотонному ходу концентрации зарядов в распадающейся плазме можно обнаружить и на одном из графиков, приведенных в работе [2], однако этот эффект авторами указанной работы специально не отмечался и обсуждение его причин не проводилось. В работе [5] на основании анализа спектрометрических измерений интенсивности линий в послесвечении разряда в азоте была рассчитана скорость ионизации и обнаружена немонотонность в ее ходе для поздних времен порядка нескольких мс. Но данных о прямых измерениях концентрации заряженных частиц в работе не содержится.

Для объяснения обнаруженной нами немонотонности изменения концентрации заряженных частиц в распадающейся плазме следует допустить возможность существования в ней некоторого источника энергии, за счет которого могла бы происходить не только частичная компенсация рекомбинационных потерь в плазме и замедление ее распада, но и перекомпенсация этих потерь, что могло бы приводить, хотя бы и на некоторое время, к повторному росту концентрации зарядов.

Другой особенностью этого источника энергии должно быть то, что он включается в действие не сразу, а лишь по истечении некоторого времени (порядка  $10^{-4} - 10^{-3} \text{ с}$ ) после образования плазмы.

Основным процессом, ответственным за снижение концентрации в распадающейся плазме при указанных давлениях является, по-видимому, диссоциативная рекомбинация, константа которой для азота в условиях наших экспериментов имеет порядок  $10^{-6} \text{ см}^3/\text{с}$  [6]. Для наблюдавшейся концентрации электронов порядка  $10^{11} \text{ см}^{-3}$  это дает скорость распада плазмы  $10^{16} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$  и должно приводить к ее полному исчезновению за  $10^{-5} \text{ с}$ , что по крайней мере на 2 порядка меньше наблюдавшегося.

Одним из наиболее известных механизмов, которые могут поддерживать концентрацию зарядов в распадающейся плазме, может быть ассоциативная ионизация электронно-возбужденных метастабильных атомов и молекул (для азота это может быть, например, уровень  $a^1\Sigma\bar{u}$ ). Скорость такого процесса  $\alpha_a n_a^{*2}$ , где  $\alpha_a \approx 10^{-10} \text{ см}^3/\text{с}$  — константа скорости ассоциативной ионизации электронно-возбужденных молекул азота [7],  $n_a^*$  — концентрация метастабильных атомов. Последняя величина является неизвестной. Однако измерения, проведенные одним из авторов по методике, описанной в [8], позволили установить, что в аналогичных условиях в КИП, работающем в аргоне, концентрация метастабильных атомов, возбужденных на уровень  $4^3P_0$  составляет  $10^{11} - 10^{12} \text{ см}^{-3}$ . Такое же по порядку величины значение ( $\sim 3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$ ) получили авторы работы [2] для разряда в азоте в условиях, подобных нашим. Если ориентироваться на это число, то оценка по верхнему пределу дает скорость ассоциативной ионизации  $10^{13} \dots 10^{14} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ . Это на два-три порядка

меньше скорости диссоциативной рекомбинации, так что ассоциативная ионизация существенного вклада в поддержание плазмы дать не может.

Другими носителями запаса энергии могут быть колебательно-возбужденные молекулы газа. Влияние колебательных степеней свободы на развитие процессов в послесвечении при условиях наших экспериментов можно оценить следующим образом. Поскольку за время действия разрядника ( $\tau_{\text{имп}} \approx 20$  мкс) генерируется электронная концентрация  $n_e \approx 10^{12}$  см<sup>-3</sup>, то при имевшихся давлениях азота порядка 0.1 атм основным механизмом установления средней энергии электронов будет возбуждение низколежащих колебательных уровней молекул ( $v = 0-8$ ). Сечение этого процесса достаточно велико и для энергий электронов  $\mathcal{E} \approx 1 \dots 3$  эВ составляет величину порядка  $\sigma_{ev} \sim 10^{-15}$  см<sup>2</sup> [9]. Плотность возбужденных на нижние уровни молекул  $N_2^*$  можно оценить как  $N_2^* \sim \sigma_{ev} n_e (\mathcal{E}/m)^{1/2} N_2 \tau_{\text{имп}} \sim 10^{16} - 10^{17}$  см<sup>-3</sup>. Так как температура газа во время разряда мало отличается от комнатной, то перекачка колебательного возбуждения в поступательные степени свободы пренебрежимо мала. Кроме того, вероятность возбуждения колебаний электронным ударом резко уменьшается с ростом номера исходного колебательного уровня, а вероятность ударов II рода также мала для переходов между высоковозбужденными состояниями [10].

Релаксация во времени такого блока импульсно-возбужденных низколежащих колебательных уровней в послесвечении азота рассматривалась ранее в ряде экспериментальных и численно-модельных работ [11]. В них было показано, что с течением времени из-за столкновений с обменом колебаниями с учетом ангармонизма молекул происходит перетекание таких возбуждений в верхние колебательные уровни с обеднением низколежащих. Из плазмохимических исследований, описанных в [7], следует, что возникновение высокой заселенности верхних колебательных уровней может приводить к росту скорости ионизации из-за следующих процессов: 1) взаимодействия молекулы, возбужденной на высокий колебательный уровень, с молекулой, возбужденной на метастабильный уровень, если их суммарная энергия больше энергии ионизации молекулы азота; 2) взаимодействия двух молекул, возбужденных на высокие колебательные уровни.

Константы указанных процессов оцениваются в [7] как  $k_1 \approx 3.9 \cdot 10^{-12} \times \exp(-640/T)$  см<sup>3</sup>/с,  $k_2 \approx 1.9 \cdot 10^{-15} \exp(-1160/T)$  см<sup>3</sup>/с.

Оценки, проведенные по первому механизму, показывают, что при наличии метастабильных электронно-возбужденных молекул азота с концентрацией  $N_2' \sim 10^{12} \dots 10^{13}$  см<sup>-3</sup> следует ожидать заметного роста скорости ионизации, когда поток колебательных возбуждений достигает уровней с  $v \geq 20$ . Плотность таких колебательно-возбужденных молекул можно оценить по результатам работ, изложенных в [11], где в послесвечении при давлениях азота 10...200 Тор и энерговкладе  $\sim 0.2 \dots 0.3$  Дж/см<sup>3</sup> на временах  $\sim 500$  мкс после выключения разряда плотность молекул с  $v \approx 20$  составляла  $10^{-2} \dots 5 \cdot 10^{-3}$  от  $N_2^*(v=1)$ . Принимая, как в [2], что средний энерговклад на молекулу составляет 0.1 колебательно-кванта, получим, что  $N_2^*(v \sim 20)$  окажется порядка  $10^{15} \dots 10^{16}$  см<sup>-3</sup>. Скорость ионизации в этих условиях за счет первого процесса будет  $I_1 \sim k_1 N_2' N_2^*(v \approx 20) \sim \dots 10^{16} \dots 10^{17}$  см<sup>-3</sup> · с<sup>-1</sup>. Такое значение скорости ионизации оказывается соизмеримым или даже превышающим скорость

диссоциативной рекомбинации и позволяет в течение некоторого промежутка времени получить рост концентрации, наблюдавшийся в эксперименте.

Второй же механизм не может обеспечить требующейся скорости ионизации из-за малости константы реакции и недостаточной концентрации молекул, возбужденных на необходимый для этой реакции уровень ( $v \gtrsim 32$ ).

Привлечение к рассмотрению роста скорости ионизации в послесвечении разряда в азоте процесса релаксации колебательного возбуждения позволяет объяснить и временной ход электронной концентрации. Ее повторное нарастание должно коррелировать во времени с достижением потоком колебательных квантов уровня  $v \sim 20$ .

Рассмотрение этого процесса может быть проведено с помощью кинетического уравнения для функции распределения молекул по колебательным состояниям. Особенности импульсной накачки позволяют применить здесь диффузионное приближение с линейным по функции распределения потоком в пространстве колебательных состояний. В начальный момент времени создается блок сильно заселенных нижних состояний и относительно слабо заселенных верхних. Коэффициент диффузии  $D_{vv}(E)$  в этих условиях, учитывающий слабый ангармонизм молекул, известен, и результаты исследований временного поведения функции распределения изложены в [12]. Однако движение фронта заселенности по колебательным состояниям можно оценить из более простых соображений. Время достижения уровней с  $v \geq 20(\tau_{20})$  есть  $E^2/D_{vv}(E)$ , где  $E = \hbar\omega \cdot v$ , а  $\hbar\omega$  — колебательный квант азота. Подставляя в выражение для  $D_{vv}(E)$ , позаимствованное из [12], все необходимые данные, соответствующие условиям нашего эксперимента, получаем  $\tau_{20} \sim 6 \cdot 10^{-4}$  с, что близко к наблюдаемым значениям.

### Список литературы

- [1] Богдан Л.С., Задирака Ю.В., Левитский С.М. и др. // Письма в ЖТФ. 1989. Т. 15. Вып. 9. С. 6–9.
- [2] Грицинин С.И., Косый И.А., Силаков В.П. и др. // ТВТ. 1986. Т. 24. № 4. С. 662–667.
- [3] Бартурдаров Э.М., Бережецкая Н.И., Большаков Е.Ф. и др. // ЖТФ. 1984. Т. 54. Вып. 6. С. 1219–1222.
- [4] Богдан Л.С., Левитский С.М., Мазно С.Н. // УФЖ. 1991. Т. 36. № 3. С. 360–363.
- [5] Большакова Л.Г., Голубовский Ю.Б., Тележко В.М., Стоянов Д.Г. // ЖТФ. 1990. Т. 60. Вып. 6. С. 53–58.
- [6] Словецкий Д.И. Механизмы химических реакций в неравновесной плазме. М.: Наука, 1980. 310 с.
- [7] Мнацаканян А.Х., Найдис Г.В. // Химия плазмы. М.: Энергоатомиздат, 1987. Вып. 14. С. 227–254.
- [8] Косичкин Ю.В., Надеждинский А.И. // Изв. АН СССР. Сер. Физ. 1983. Т. 47. Вып. 10. С. 2037–2045.
- [9] Бекефи Дж. Плазма в лазерах. М.: Мир, 1982. 324 с.
- [10] Гордичев Б.Ф., Осипов А.И., Шелепин Л.А. Кинетические процессы в газах и молекулярные лазеры. М.: Наука, 1980.
- [11] Капителли М. и др. Неравновесная колебательная кинетика. М.: Мир, 1989. 392 с.
- [12] Русанов В.Д., Фридман А.А., Шолин Г.В. Физика химически активной плазмы. М.: Наука, 1984.