

04

©1995 г.

## ОБРАЗОВАНИЕ ИОН-ИОННОЙ ПЛАЗМЫ В РЕЗУЛЬТАТЕ УБЕГАНИЯ ЭЛЕКТРОНОВ В ПАУЗАХ ИМПУЛЬСНОГО РАЗРЯДА В КИСЛОРОДЕ

*С.А.Гуцев, А.А.Кудрявцев, В.А.Романенко*

Научно-исследовательский институт физики  
Санкт-Петербургского государственного университета,  
198904, Санкт-Петербург, Россия  
Всероссийский научный центр "ГОИ им. С.И. Вавилова",  
188537, Сосновый Бор, Россия  
(Поступило в Редакцию 23 декабря 1994 г.)

Выполнены исследования плазмы послесвечения импульсного (1 кГц) разряда в кислороде низкого давления (0.1 Тор), где концентрация отрицательных ионов  $O^-$  превосходит электронную концентрацию. Обнаружено явление убегания электронов из объема на временах, значительно меньших характерных времен диффузии ионов, что позволяет получать безэлектронную плазму со сравнительно высокой ( $10^{10} \text{ см}^{-3}$  и более) плотностью ионов.

Наличие отрицательных ионов существенно влияет на свойства газоразрядной плазмы, что проявляется, в частности, в характере диффузии ее различных компонентов. В стационарных разрядах большие различия в температурах электронов  $T_e$  и отрицательных ионов  $T_n$  ( $T_n \ll T_e$ ) приводят к расслоению плазмы на области с различным ионным составом [1-4]. При этом в центральных областях разряда формируется ион-ионная плазма, а на его периферии — электрон-ионная [1-3].

В распадающейся плазме импульсного разряда, когда внешнее электрическое поле отсутствует, из-за присутствия отрицательных ионов могут происходить бифуркации ее параметров. При этом на начальной стадии распада отрицательные ионы заперты в объеме радиальным полем в плазме и пристеночным скачком потенциала на ее границах, поэтому их ток на стенки практически отсутствует. В зависимости от условий убыль электронов может происходить как за счет преимущественного прилипания [5], так и за счет их совместной с положительными ионами диффузии на стенки [6]. Плазма на этой стадии обедняется электронами и положительными ионами, и по мере увеличения относительной концентрации отрицательных ионов  $\alpha = n_n/n_e$

происходит переход к ион-ионной (безэлектронной) плазме. Этот переход может происходить скачкообразно, сопровождаясь быстрым уходом электронов из объема с одновременным резким нарастанием тока отрицательных ионов на стенки [5,6].

Наиболее детальные экспериментальные исследования распадающейся плазмы в электроотрицательных газах были выполнены в [6] в смеси  $Kr:O_2 = 1:1$  при полном давлении  $p = 0.03$  Тор в трубке радиусом  $R = 5.5$  см. Разряд возбуждался импульсами ВЧ-поля длительностью  $\tau = 10$  мкс с периодом повторения  $T = 20$  мс. В начале распада концентрации электронов  $n_e$  и положительных ионов  $n_p$  составляли величину порядка  $10^9$  см<sup>-3</sup>, концентрация отрицательных ионов  $n_n$  была значительно ниже  $n_n \sim 10^8$  см<sup>-3</sup>. В момент  $t_0 = 3.7$  мс после разрядного импульса, когда достигается  $n_e \approx n_n$ , в [6] наблюдался резкий уход электронов из объема, в результате чего возникала ион-ионная плазма с весьма низкой концентрацией  $n_n \approx n_p \approx 10^8$  см<sup>-3</sup>.

Ввиду практической неизученности ион-ионной плазмы как физического объекта, а также ее возможного использования для технических приложений (в частности, для создания источников отрицательных ионов) представляют большой интерес получение и исследование безэлектронной плазмы с гораздо большими, чем в [6], концентрациями заряженных частиц. Повышенные абсолютные  $n_n$  и относительные  $\alpha$  концентрации отрицательных ионов в активной фазе разряда проще реализовать в чистых электроотрицательных газах, а не в смесях, как в [6].

В данной работе выполнены исследования плазмы послесвечения импульсного разряда в кислороде. Обнаружено явление убегания электронов из объема на временах  $t_0$ , значительно меньших характерных времен диффузии ионов, что позволяет получать безэлектронную плазму со сравнительно высокой ионной концентрацией.

Измерения проводились в паузах тока амплитудой  $I = 5 \dots 150$  мА импульсного разряда длительностью  $\tau = 20 \dots 50$  мкс с периодом повторения  $T = 0.5 \dots 1.5$  мс в кислороде в диапазоне давления  $p = 0.05 \dots 0.5$  Тор в стеклянной трубке радиусом  $R = 1.7$  см. В трубке были впаяны подвижные электрические зонды радиусом 0.05 мм и длиной 3.5 см. Измерительная схема позволяла регистрировать зондовые вольт-амперные характеристики  $I(V)$  и их вторые производные с временным разрешением 5...10 мкс. Также использовалась схема, позволяющая измерять временные зависимости токов насыщения на зонд.

На рис. 1 представлены результаты измерений  $I(V)$  на оси трубки в различные моменты времени для условий  $p = 0.07$  Тор,  $I = 10$  мА,  $\tau = 32$  мкс,  $T = 660$  мкс. Видно, что на начальной стадии распада плазмы зондовые характеристики имеют обычный вид, когда токи насыщения отрицательных частиц значительно больше соответствующих токов положительных частиц  $I_e + I_n > I_p$ . Это связано с тем, что электронный ток насыщения  $I_{es} > I_{ps}$ , даже при  $n_e < n_p$  в силу меньшей массы электронов  $m < M_p$  и соответственно их большей скорости.

Затем в момент  $t_0 = 200$  мкс происходит резкое уменьшение тока отрицательных частиц и при  $t > t_0$   $I(V)$  становится симметричной. На второй стадии ( $t > t_0$ ) плазма состоит из положительных и отрицательных ионов; электроны практически отсутствуют.

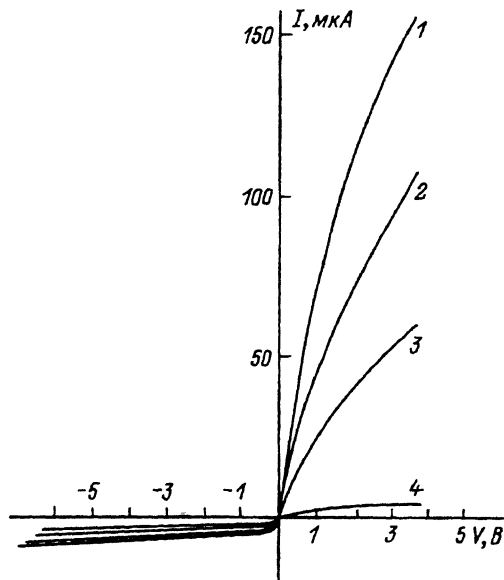


Рис. 1. Зондовые вольт-амперные характеристики на оси трубки в различные моменты времени.

$\tau$ , мкс: 1 — 100, 2 — 150, 3 — 250, 4 — 350.

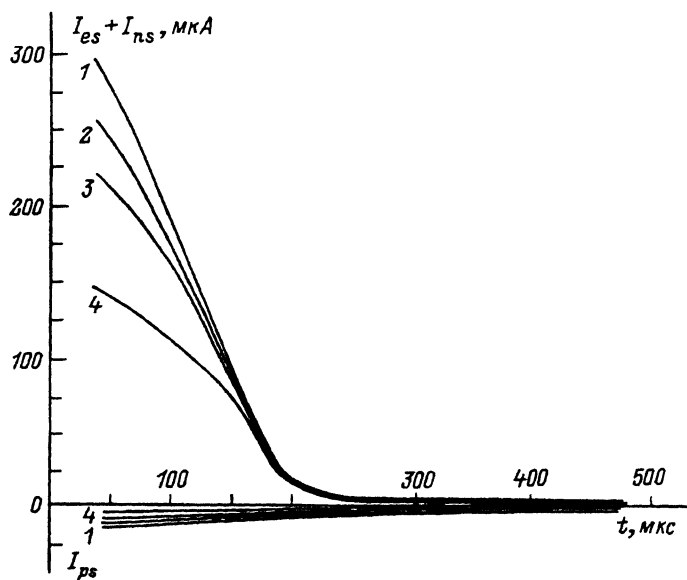


Рис. 2. Временные зависимости токов насыщения отрицательных  $I_{ns}^{(t)} + I_{es}^{(t)}$  и положительных  $I_{ps}^{(t)}$  частиц на зонд.

1 —  $r = 0$ , 2 — 0.5, 3 — 1, 4 — 1.5 см.

Аналогичные измерения в разных расстояниях по радиусу трубки показывают, что зависимости  $I(V)$  имеют вид, качественно подобный  $I(V)$  на оси трубки.

На рис. 2 для тех же условий приведены временные зависимости токов насыщения положительных  $I_{ps}(t)$  и отрицательных  $I_{ns}(t) + I_{es}(t)$  частиц в различных точках по радиусу трубки. Поскольку величины токов насыщения пропорциональны концентрациям соответствующих компонентов, данные зависимости позволяют судить о временном ходе концентраций положительных и отрицательных частиц. Результаты измерений временных зависимостей токов насыщения согласуются с изменениями во времени  $I(V)$ . Видно, что при  $t < t_0$  ток отрицательных частиц является электронным током насыщения, который значительно больше ионного тока насыщения. Со времени  $t_0$  происходит резкое уменьшение электронного тока, и при  $t \geq t_0$  электроны в плазме практически отсутствуют. Дальнейший распад плазмы определяется диффузией положительных и отрицательных ионов.

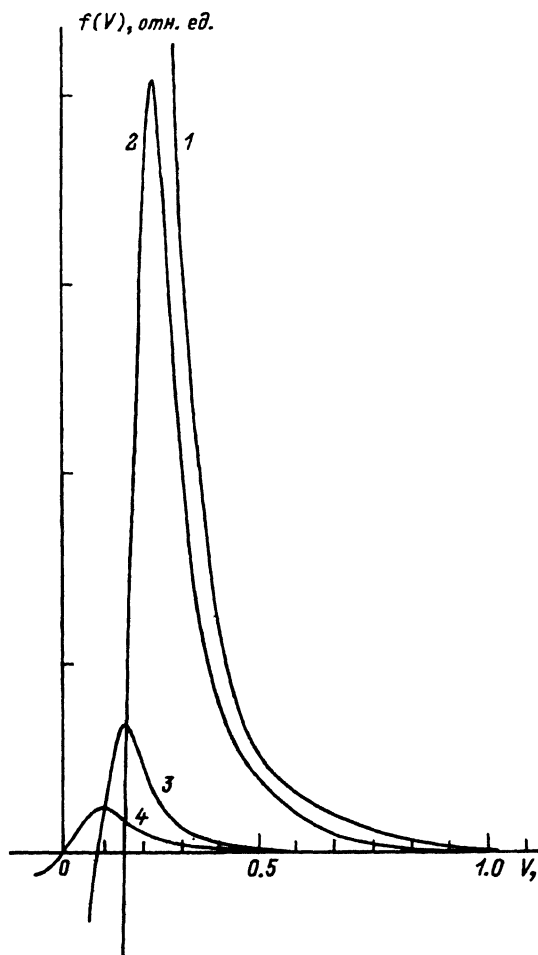


Рис. 3. Функции распределения электронов по энергиям на оси трубки различные моменты времени.

$\tau$ , мкс: 1 — 100, 2 — 160, 3 — 200, 4 — 300.

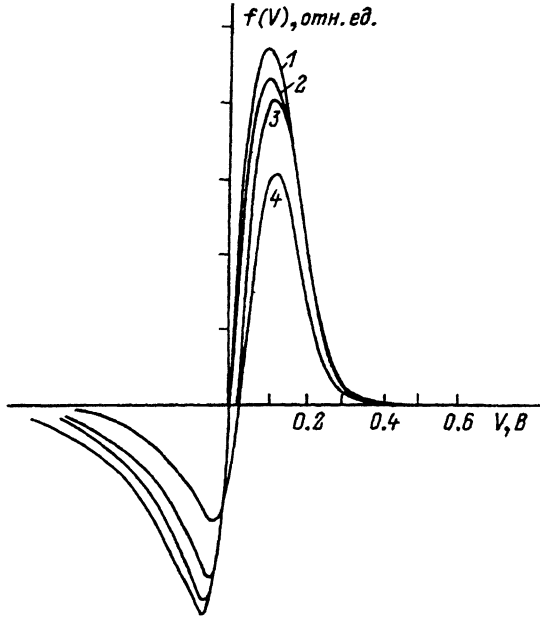
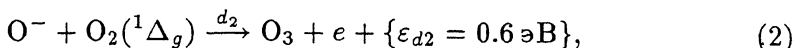
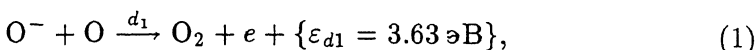


Рис. 4. Функции распределения электронов по энергиям при  $\tau = 120$  мкс в различных точках радиуса.  
 $r$ , см: 1 — 0, 2 — 0.5, 3 — 1.0, 4 — 1.5.

На рис. 3 представлены измерения функций распределения электронов по энергиям (ФРЭ) по второй производной зондового тока на оси трубки в различные моменты времени ( $p = 0.1$  Тор,  $I = 85$  мА,  $\tau = 32$  мкс,  $T = 660$  мкс). Из рисунка видно, что к моменту  $t = t_0$  ФРЭ резко уменьшается. При  $t > t_0$  измеряемые вторые производные зондового тока определяются отрицательными ионами.

На рис. 4 для примера представлены измеренные ФРЭ в момент времени  $t = 120$  мкс в различных точках радиуса трубки ( $p = 0.07$  Тор,  $I = 7$  мА,  $\tau = 32$  мкс,  $T = 660$  мкс). Подобные измерения показывают, что радиальные зависимости ФРЭ близки к бесселевским, а сами ФРЭ уменьшаются по мере увеличения времени распада. Измерения температуры электронов  $T_e$  по наклону ФРЭ показывают, что при  $t > 30$  мкс значения  $T_e$  лежат в диапазоне  $0.3 \dots 0.03$  эВ.

Перейдем к обсуждению полученных результатов. Анализ литературы [1-4] показывает, что в тлеющем разряде в кислороде низкого давления  $pR < 1$  см · Тор основными ионами являются  $O_2^+$  и  $O^-$ , а величина  $\alpha$ , как правило, больше единицы и лежит в диапазоне  $1 \dots 40$ . В паузах тока импульсного разряда продольное электрическое поле равно нулю, температура электронов мала и процессами ионизации и диссоциативного прилипания, имеющими большой энергетический порог, можно пренебречь. При низких давлениях эффективность трехтельного прилипания также мала, а для рассматриваемого диапазона концентраций заряженных частиц  $10^{10} \dots 10^{11}$  см $^{-3}$  можно пренебречь их рекомбинационной гибелью по сравнению с диффузией и отлипанием.



и скорость их протекания зависит от концентраций  $O$  и  $O_2(^1\Delta_g)$  в разрядном объеме. Необходимо отметить, что в результате реакций (1,2) образуются быстрые электроны с энергией  $\varepsilon_{di} \gg T_e$  ( $T_e$  — температура максвелловских тепловых электронов:  $i = 1, 2$ ). При рассмотрении баланса электронов важным является соотношение между  $\varepsilon_{di}$  и величиной пристеночного скачка потенциала  $\Phi_h$ . Обычно величина  $e\Phi_h$  составляет несколько  $T_e$ . Например, в простейшем случае бесстолкновительного пристеночного слоя для максвелловских функций распределения в изотермической плазме с температурой  $T$  [6]

$$e\Phi_h = T \ln \left\{ \frac{1}{1 + \alpha} \left[ \left( \frac{M_p}{m_e} \right)^{1/2} + \alpha \left( \frac{M_p}{M_n} \right)^{1/2} \right] \right\}, \quad (3)$$

где  $m_e$ ,  $M_p$ ,  $M_n$  — соответственно массы электрона, положительного и отрицательного иона.

Для кислородной плазмы по (3) при  $\alpha = 1 \dots 40$   $e\Phi_h = (5 \dots 2)T$ , уменьшаясь с ростом  $\alpha$ .

Выражение (3) можно использовать для оценок, если поток отлипания  $F_d = n_n \nu_d = n_n ([O]d_1 + [O_2(^1\Delta_g)]d_2)$  меньше, чем  $F_p = n_p / \tau_p$  — диффузионный поток положительных ионов на стенку. В обратном случае  $F_d > F_p$  возможно образование аномально большого скачка потенциала [7], однако в проводимых экспериментах данный случай не реализовался (концентрация электронов всегда падала со временем) и в настоящей работе подробно не обсуждается.

Поскольку в рассматриваемых условиях температура  $T$  близка к комнатной и потенциал стенки  $\Phi_h < \varepsilon_{di}/e$ , быстрые электроны в реакциях отлипания (1), (2) уходят на стенки в режиме свободной диффузии, не успев изменить свою энергию. Поэтому можно считать, что в плазме существуют две практически не взаимодействующих между собой подсистемы электронов с концентрациями  $n_{es}$  (максвелловские электроны) и  $n_{ef}$  (быстрые электроны). Поэтому в балансе электронов основной группы ( $n_{es}$ ) отлипания можно не учитывать.

С учетом сказанного система уравнений баланса заряженных частиц имеет вид

$$\frac{dn_p}{dt} + \nabla \Gamma_p = 0, \quad (4)$$

$$\frac{dn_n}{dt} + \nabla \Gamma_n = -\nu_d n_n, \quad (5)$$

$$\frac{dn_{es}}{dt} + \nabla \Gamma_{es} = 0, \quad (6)$$

$$\nabla \Gamma_{ef} = \nu_d n_n, \quad (7)$$

$$\Gamma_j = D_j \nabla n_j \pm n_j b_j E \quad (7)$$

( $j = n, p, e$ ).

Из условия равенства плотностей потоков  $\Gamma_e + \Gamma_n = \Gamma_p$  находим самосогласованное радиальное поле

$$E = - \frac{D_e \nabla n_e + D_n \nabla n_n - D_p \nabla n_p}{n_e b_e + n_n b_n + n_p b_p}. \quad (9)$$

Граничные условия для системы уравнений (4)–(7) имеют вид [1–4]

$$\nabla n_e \Big|_{r=0} = \nabla n_n \Big|_{r=0} = \nabla n_p \Big|_{r=0} = 0, \quad (10)$$

$$n_e(R) = n_p(R) = 0. \quad (11)$$

Относительно граничного условия для отрицательных ионов на стенке трубки в послесвечении могут реализоваться две возможности. При выполнении неравенства [2]

$$\frac{T_e}{T_n} > 1 + \frac{2b_p n_p}{n_e b_e}, \quad (12)$$

т.е. уже при небольшом превышении  $T_e$  над  $T_n$ , поток  $\Gamma_n(r) < 0$  и направлен в глубь плазмы. В этой ситуации граничное условие для отрицательных ионов имеет вид

$$\Gamma_n(R) = 0 \quad (13)$$

и совпадает с используемым в [3] для положительного столбца тлеющего разряда. Превышение  $T_e$  над  $T_n$  ( $T_n$  совпадает с температурой газа) в раннем послесвечении, наблюдающееся в приводимых выше экспериментах, связано с подогревом электронов в реакциях отлипания и ударов II рода колебательно- и электронно-возбужденных молекул с тепловыми электронами [7]. Отметим, что даже при  $T_e = T_n$ , пока  $e\Phi_h \gg T_n$ , отрицательные ионы заперты в объеме пристеночным скачком потенциала и граничное условие для них также имеет вид (13).

В другом случае, обратном рассмотренному выше (изотермическая плазма с высоким параметром  $\alpha$  и низким  $n_e$ ), отрицательные ионы уходят на стенку и для них, так же как для  $n_e$  и  $n_p$ , справедливо нулевое условие (11)  $n_n(R) = 0$ . В этом случае, реализующемся на второй стадии распада плазмы,  $\Gamma_n(r) > 0$ , т.е. меняет знак.

Как известно [3], в активной фазе разряда в кислороде в диапазоне исследуемых экспериментальных условий профиль  $n_e(r)$  близок к бесселевскому. Ввиду того что у стенки трубки ( $r \approx R$ ) выполняется условие  $n_n \ll n_e$ , можно считать, что в этой области  $n_e(r) \approx n_p(r)$ . Поскольку в рассматриваемом нами послесвечении низкого давления тепловые электроны и положительные ионы гибнут в результате диффузии к стенкам, то следует ожидать, что профиль  $n_e(r)$  сохранится и

после выключения разряда, на первой стадии ( $t < t_0$ ), так же как и в активной фазе разряда,  $n_e b_e > n_p b_p + n_n b_n$  и радиальное поле  $E$  (9) определяется электронной температурой

$$E = \frac{T_e}{e} \frac{\nabla n_e}{n_e}. \quad (14)$$

Соответственно при  $t < t_0$  граничное условие для отрицательных ионов имеет вид (13), т. е. они заперты в объеме. Тогда усредненный по сечению поток  $\langle \Gamma_n \rangle = 0$ .

С учетом сказанного, усредняя систему (4)–(6) по радиусу, в начальной стадии распада плазмы в итоге получим

$$\frac{d\langle n_{es} \rangle}{dt} = \frac{d\langle n_p \rangle}{dt} = -\frac{\langle n_p \rangle}{\tau_{ap}}, \quad (15)$$

$$\frac{d\langle n_n \rangle}{dt} = \nu_d \langle n_n \rangle, \quad (16)$$

$$\langle n_{ef} \rangle = \nu_d \langle n_n \rangle \tau_{df}, \quad (17)$$

где

$$\tau_{ap} = \Lambda^2 / D_p (1 + T_e / T_p), \quad \tau_{df} = \Lambda^2 / D_r, \quad (18)$$

$\Lambda = R/2, 4$ ,  $D_p$  и  $D_r$  — соответственно коэффициенты диффузии положительных ионов и свободных электронов.

Из (15) имеем

$$\langle n_p \rangle = \langle n_p(0) \rangle \exp(-t/\tau_{ap}), \quad (19)$$

$$\langle n_e \rangle = \langle n_e(0) \rangle - \langle n_p(0) \rangle + \langle n_p \rangle = \langle n_e(0) \rangle - \langle n_p(0) \rangle (1 - \exp(-t/\tau_{ap})). \quad (20)$$

Из (20) следует, что концентрация электронов стремится к нулю при

$$t_0 = \tau_{ap} \ln(1 + 1/\alpha_0), \quad (21)$$

где  $\alpha = n_{n0}/n_{e0}$  — начальное отношение концентраций отрицательных ионов и электронов.

В процессе уменьшения  $n_e$ , когда оказывается выполненным неравенство  $n_e b_e < n_p b_p + n_n b_n$ , электроны практически мгновенно (в режиме свободной диффузии) уходят на стенки и в объеме остаются только положительные и отрицательные ионы, так что  $n_p = n_n$ . Поэтому на второй стадии  $t > t_0$  распад плазмы в пренебрежении отлипанием определяется ион-ионной амбиполярной диффузией

$$n_p(t) = n_n(t) = n_p(t_0) \exp(-t/\tau_a), \quad (22)$$

где  $\tau_a = \Lambda^2 (D_n + D_p) / (D_n D_p)$  — характерное время ион-ионной амбиполярной диффузии.

Выполним оценки характерных времен диффузии для давления  $p = 0.07$  Тор и радиуса трубки  $R = 1.7$  см. Используя для подвижности  $b_p = 2.2 \text{ см}^2 \cdot \text{В}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$  [8], сечения упругого рассеяния электронов при энергиях  $\varepsilon < 1 \text{ эВ}$ ,  $\sigma_\varepsilon = 10^{-17} \dots 10^{-16} \text{ см}^2$ , получим  $\tau_{df} < 10^{-8} \text{ с}$ ,



$\tau_{ap} = 450$  мкс. Из оценок следует, что время свободной диффузии электронов к стенкам  $\tau_{df}$  ничтожно мало, так что их уход в режиме свободной диффузии происходит практически мгновенно. В то же время характерные времена амбиполярной диффузии ионов  $\tau_{ap} > t_0 \approx 200$  мкс, так что концентрации ионов и их радиальные профили на первой стадии, в течение которой практически все электроны уходят из объема, меняются незначительно. Этот факт следует и из проведенного выше анализа. Как видно из (21), при  $\alpha_0 > 1$   $t_0 < \tau_{ap}$  в соответствии с наблюдаемой картиной. Физический смысл того факта, что уход всех электронов из объема происходит при малых изменениях концентрации ионов, связан с тем, что в разряде  $\alpha > 1$ , т.е.  $n_e < n_p, n_n$ . Поскольку на первой стадии  $n_e < n_p$ , то для обеспечения равенства электронного и ионного потоков на стенку

$$n_e/t_0 \approx n_p/\tau_{ap} \quad (23)$$

при  $n_e < n_p$  необходимо, чтобы выполнялось соотношение  $t_0 < \tau_{ap}$ .

Таким образом, в паузах импульсного разряда в электроотрицательных газах при  $\alpha > 1$  за сравнительно короткое время практически все электроны уходят из плазменного объема при малом изменении концентрации ионов. После этого в течение заданного промежутка времени в объеме существует ион-ионная плазма, обладающая рядом специфических свойств по сравнению с обычной газоразрядной плазмой. Дальнейшие исследования свойства такой безэлектронной плазмы являются весьма перспективными и актуальными и могут иметь важные практические приложения, в частности, при разработке устройств для генерации пучков отрицательных ионов, практически не содержащих электронов. Подобные устройства используются, например, при лабораторном моделировании условий ионосферы [9].

Авторы признательны Н.В. Беденкову за полезные обсуждения.

Настоящая работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 94-02-03969) и Международного научного фонда (грант № V16000).

#### Список литературы

- [1] Цендин Л.Д. // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 12. С. 2318–2322; 1989. Т. 59. Вып. 1. С. 21–28.
- [2] Рожанский А.В., Цендин Л.Д. // Столкновительный перенос в частично-ионизированной плазме. М.: Энергоатомиздат, 1988. 248 с.
- [3] Ferreira C.M., Gousset G., Touzeau M. // J. Phys. D. 1988. Vol. 21. P. 1403–1413.
- [4] Daniels P.G., Franklin R.N. // J. Phys. D. 1989. Vol. 22. P. 780–785; 1990. Vol. 23. P. 823–831.
- [5] Puckett L.J., Kregel M.D., Teague M.W. // Phys. Rev. A. 1971. Vol. 4. P. 1659.
- [6] Smith D., Dean A.G., Adams N.G. // J. Phys. D. 1974. Vol. 7. P. 1944–1962.
- [7] Колоколов Н.Б., Кудрявцев А.А. // Химия плазмы / Под ред. Б.М. Смирнова. Вып. 15. М.: Энергоатомиздат, 1989. С. 127–162.
- [8] Мессу Г. Отрицательные ионы. М.: Мир, 1979. 754 с.
- [9] Rempt R.D. // 18<sup>th</sup> Intern. SAMPE Techn. Conf. Seattle, 1986. P. 761–768.