

04

© 1992 г.

ВЛИЯНИЕ НЕЛОКАЛЬНОСТИ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО СПЕКТРА ЭЛЕКТРОНОВ НА КИНЕТИКУ ВЧ РАЗРЯДА В ЭЛЕКТРООТРИЦАТЕЛЬНЫХ ГАЗАХ

*Е. А. Волкова, А. М. Попов, О. Б. Поповичева, Т. В. Рахимова,
В. А. Феоктистов*

Построена последовательная самосогласованная модель ВЧ разряда в электроотрицательных газах на основе совместного решения уравнения Больцмана для функции распределения электронов в переменном пространственно неоднородном поле, диффузионно- дрейфовых уравнений для концентрации различных компонент плазмы и уравнения для определения электрического поля разряда. Проанализировано влияние пространственной нелокальности энергетического спектра на параметры плазмы ВЧ разряда.

Исследование высокочастотных (ВЧ) разрядов мегагерцового диапазона частот вызывает большой интерес в связи с использованием таких разрядов в плазмохимии и различных задачах плазменной обработки материалов. Ряд теоретических моделей (аналитических и численных) таких разрядов подробно обсуждался в работах [1–5]. Эти модели основаны на совместном решении уравнений неразрывности для концентраций электронной и ионной компонент плазмы и уравнения Пуассона (или заменяющего его уравнения полного тока) для определения распределения электрического поля в межэлектродном зазоре. При этом, как правило, предполагается, что кинетические коэффициенты (подвижность, коэффициент диффузии, константа скорости ионизации электронным ударом и др.) определяются мгновенным значением электрического поля в данной точке пространства [3, 4]. Такое приближение известно как приближение локального поля. К такому подходу близко также гидродинамическое приближение [5], в котором дрейфовая скорость электронов определяется из уравнения Эйлера. Однако если приложенное электрическое поле E является функцией пространственной координаты и времени, то при выполнении условий

$$\frac{1}{E} \left| \frac{\partial E}{\partial x} \right| \Lambda_\varepsilon \geq 1, \quad \nu^* \leq \omega \ll \nu \quad (1)$$

(Λ_ε — длина релаксации энергии электронов; ν, ν^* — транспортная частота и частота потери энергии соответственно; ω — частота ВЧ поля) необходимо учитывать пространственную нелокальность и временную нестационарность энергетического спектра электронов. В инертных газах, где в широком диапазоне энергий электрон испытывает только упругие столкновения с атомами, можно считать, что $\nu^* \approx (m/M)\nu \approx 10^{-4} - 10^{-5}\nu$, $\Lambda_\varepsilon \approx d\sqrt{(M/m)}$ (M — масса атома, d — длина свободного пробега). В молекулярных газах наличие низколежащих колебательных и электронных уровней приводит к увеличению частоты релаксации ν^* и уменьшению длины Λ_ε в области малых энергий, что

приводит к увеличению области применимости приближения локального поля. Однако оценки показывают, что в ВЧ разряде мегагерцевого диапазона частот неравенства (1) выполнены при давлениях $p \approx 1$ Тор.

Чтобы учесть влияние пространственной нелокальности функции распределения электронов по энергиям (ФРЭ) на кинетику ВЧ разряда в [6, 7] было предположено, что скорость ионизации газа $\langle \sigma_i v \rangle$ является функцией средней энергии электронов $\langle \epsilon \rangle$, которая определяется из уравнения переноса энергии электронов в межэлектродном зазоре. При этом зависимость $\langle \sigma_i v \rangle$ от средней энергии определялась из стационарного пространственно однородного уравнения Больцмана. Следует, однако, иметь в виду, что константа скорости ионизации определяется «хвостом» функции распределения, в то время как $\langle \epsilon \rangle$ — областью малых энергий. Поскольку коэффициент пространственной диффузии электронов и время установления стационарной ФРЭ в различных энергетических интервалах могут существенно различаться, зависимость константы скорости ионизации от средней энергии не отражает реальной зависимости $\langle \sigma_i v \rangle$ и $\langle \epsilon \rangle$. Поэтому последовательная модель ВЧ разряда должна основываться на определении ФРЭ в нестационарном пространственно неоднородном поле.

Такая задача применительно к ВЧ разряду была решена в [8] методом Монте-Карло и в [9] на основе решения уравнения Больцмана в двучленном приближении. Однако в [8], так же как и в [9], распределение электрического поля задавалось независимо от протекающих в плазме процессов. Вместе с тем изменение ФРЭ в результате учета диффузионно-дрейфового движения электронов и связанное с ним изменение кинетических коэффициентов могут привести к существенному искажению распределения электрического поля в разряде, что в свою очередь может привести к увеличению различия ФРЭ, рассчитанных с учетом и без учета диффузионно-дрейфового движения электронов.

Данная работа посвящена изучению влияния пространственной нелокальности ФРЭ на значения кинетических коэффициентов и кинетику плазмохимических процессов в ВЧ разряде в электроотрицательных газах на основе самосогласованного решения кинетического уравнения Больцмана для ФРЭ в пространственно неоднородном поле, уравнений ионно-молекулярной кинетики для различных компонент плазмы и уравнения полного тока для определения электрического поля в разряде.

В [10] при изучении энергетического спектра электронов в сильно неоднородном поле катодного слоя тлеющего разряда было показано, что ФРЭ, рассчитанные в рамках двучленного приближения, совпадают с результатами расчетов методом Монте-Карло. Поскольку структура распределения электрического поля в приэлектродных слоях ВЧ разряда аналогична структуре катодного слоя, то двучленное приближение может быть использовано и при расчетах в плазме ВЧ разряда.

В двучленном приближении в пространственно неоднородном поле ВЧ разряда уравнение для функции распределения электронов по энергии $f(\epsilon, x, t)$ записывается в виде:

$$\frac{\partial f \sqrt{\epsilon}}{\partial t} = -\frac{\partial J_x}{\partial x} - \frac{\partial J_\epsilon}{\partial \epsilon} + N(Q_{el}(f) + Q_{in}(f)), \quad (2)$$

где

$$J_x = -D_x \frac{\partial f}{\partial x} - D_{x\epsilon} \frac{\partial f}{\partial \epsilon},$$

$$J_\epsilon = -D_x \frac{\partial f}{\partial \epsilon} N - D_{x\epsilon} \frac{\partial f}{\partial x}$$

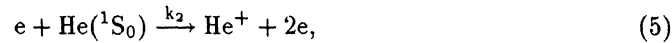
потоки электронов в координатном и энергетическом пространствах (выражения для коэффициентов D_x , D_ϵ , $D_{x\epsilon}$ даны в [9]), N — концентрация атомов

или молекул, $Q_{el}(f)$ и $Q_{in}(f)$ — интегралы упругих и неупругих соударений. Поскольку ФРЭ $f(x, \epsilon, t)$ нормируется в соответствии с условием

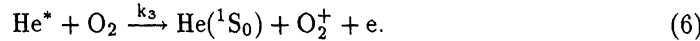
$$\int f(\epsilon, x, t) \sqrt{\epsilon} d\epsilon = n_e(x, t), \quad (3)$$

то уравнение (2) несет информацию не только об энергетическом спектре, но и о распределении концентрации электронов в межэлектродном зазоре.

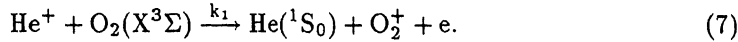
В данной работе исследовался разряд в смеси $He:O_2 = 0.975:0.025$ при давлении $p = 9$ Тор. Величина межэлектродного зазора составляла 1 см, а частота поля $\omega = 6.28 \cdot 10^7$ МГц. В таких условиях длина релаксации энергии Λ_ϵ определяется в основном неупругими столкновениями электронов с молекулами кислорода и составляет величину $\approx 0.1-1$ см, что сопоставимо с длиной разрядного промежутка, т.е. ФРЭ должна определяться с учетом эффекта пространственной нелокальности. Анализ кинетики ионизации в такой смеси показывает, что основными каналами являются процессы ионизации O_2 и He электронным ударом



а также ионизация Пеннинга



Для ионов He^+ мы учитывали также процесс перезарядки



Константы реакций k_1 и k_2 рассчитывались нами по ФРЭ, полученной из решения (2), а k_3 и k_4 взяты из работ [11, 12]. Существенно, что характерное время протекания реакций (6), (7) $\tau \approx (k_3 k_4 N_{O_2})^{-1}$ (N_{O_2} — концентрация молекул O_2) в плазме в наших условиях не превышает нескольких мкс, что существенно меньше характерного времени диффузии ионов и возбужденных атомов He из объема разряда к приэлектродным слоям. Это позволяет не рассматривать кинетику ионов и возбужденных атомов He в разряде и считать, что ион O_2^+ является основным положительным ионом в плазме.

Заметим, что конверсия иона O_2^+ в ион O_4^+ в реакции $O_2^+ + O_2 + M \rightarrow O_4^+ + M$ с константой $k = 2.6 \cdot 10^{-30}$ см⁶/с в области рассматриваемых давлений мала, а образование иона O^+ в реакции диссоциативной ионизации мало ввиду малости сечения процесса.

Основным отрицательным ионом является ион O^- , образующийся в реакции диссоциативного прилипания. Конверсия его в ион O_3^- ($k = 1.4 \cdot 10^{-30}$ см⁶/с) мала. Также можно пренебречь образованием иона O_2^- в реакции трехтельного прилипания.

С учетом сказанного система уравнений ионно-молекулярной кинетики может быть записана в виде

$$\frac{\partial n_+}{\partial t} = -\frac{\partial J_+}{\partial x} + k_1 N n_e - \beta_1 n_+ n_1 - \beta_e n_+ n_e, \quad (8)$$

$$\frac{\partial n_-}{\partial t} = -\frac{\partial J_-}{\partial x} + k_a N_{O_2} n_e - \beta_1 n_+ n_1, \quad (9)$$

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = -\frac{\partial J_e}{\partial x} + k_1 N n_e - k_a N_{O_2} n_e - \beta_e n_1 n_e, \quad (10)$$

$$\frac{1}{4\pi} \frac{\partial E}{\partial t} + E(J_+ - J_e - J_-) = j_0 \cos \omega t. \quad (11)$$

Здесь n_+ , n_- , n_e — концентрации ионов O_2^+ , O^- и электронов; J_+ , J_- , J_e — соответствующие им потоки, определяемые как $J = -D(\partial n/\partial x) + nv$, где D — коэффициент диффузии, v — скорость дрейфа; β_i , β_e — константы ион-ионной и электрон-ионной рекомбинации; k_a — константа скорости диссоциативного прилипания $e + O_2 \rightarrow O + O^-$; k_i — эффективная константа ионизации молекул O_2 , учитывающая процессы (4)–(7); E — электрическое поле в разряде; j_0 — плотность протекающего через разряд электрического тока, эта величина в расчетах полагалась заданной $j_0 = 0.5$ мА/см².

Следует отметить, что уравнение (10) является «лишним», поскольку может быть получено из (2) в результате интегрирования по энергии. Таким образом, система уравнений (2), (8), (9), (11) представляет замкнутую систему уравнений для моделирования ВЧ разряда в электроотрицательном газе в режиме заданного тока.

Следует отметить, однако, что при численном интегрировании системы для уменьшения погрешности при интегрировании (2) и повышения точности определения пространственно-временного распределения электрического поля в межэлектродном зазоре уравнение (10) использовалось для поднормирования величины $n_e(x, t)$, полученной из (2). При этом кинетические коэффициенты v_e и D_e , входящие в (10), (11), определялись по ФРЭ $f(\epsilon, x, t)$ как

$$v_e(x, t) = \int D_{x\epsilon} \frac{\partial t}{\partial \epsilon} d\epsilon / n_e(x, t),$$

$$D_e(x, t) = \int D_x f d\epsilon / n_e(x, t). \quad (12)$$

Значения кинетических коэффициентов v_{\pm} и D_{\pm} рассчитывались по формулам

$$v_{\pm} = \mu_{\pm} E, \quad D_{\pm} = \mu_{\pm} T_g / e, \quad n_{\pm}$$

где $T_g = 300$ К — газовая температура, μ_{\pm} — подвижность ионов O_2^+ и O^- в гелии [12].

Величина тока разряда 0.5 мА/см² соответствует ВЧ разряду, горящему в слаботоочном режиме. Это позволяет не учитывать процессы вторичной электронной эмиссии электродов. Поэтому граничные условия для $n_e(x, t)$ и $f(\epsilon, x, t)$ записывались в виде

$$-D_x \frac{\partial f}{\partial x} - D_{x\epsilon} \frac{\partial f}{\partial \epsilon} \Big|_{x=0, (d)} = \sqrt{2/mf\epsilon/4} \Big|_{x=0, (d)}, \quad (13)$$

$$-D_e \frac{\partial n_e}{\partial x} + n_e v_e \Big|_{x=0, (d)} = \frac{1}{4} n_e v_T \Big|_{x=0, (d)}, \quad (14)$$

где v_T — тепловая скорость электронов, рассчитываемая по средней энергии.

Отметим, что условие (14) может быть получено из (13) в результате интегрирования по энергии. Условия (13), (14) с физической точки зрения означают отсутствие электронных потоков с поверхности электродов в объем плазмы, т.е. отсутствие γ -процессов.

Граничные условия для уравнений (7), (8) записывались в виде

$$n_{\pm}(x=0, t) = n_{\pm}(x=d, t) = 0. \quad (15)$$

Граничные условия для ФРЭ в энергетическом пространстве выбирались в виде

$$f(\epsilon = \epsilon_{\max}, x, t) = 0, \quad (16)$$

$$-D_{\epsilon} \frac{\partial f}{\partial \epsilon} - D_{x\epsilon} \frac{\partial f}{\partial x} \Big|_{\epsilon=0} = k_i n_e N, \quad (17)$$

где k_i — усредненная по ϵ скорость ионизации.

Величина максимальной энергии ϵ_{\max} выбиралась из условия, что истинное значение $f(\epsilon_{\max}, x, t)$ на несколько порядков меньше величины $f(\epsilon \approx 0, x, t)$. В этом случае выбор граничного условия в виде (16) не приведет к существенной ошибке в рассчитываемых по ФРЭ кинетических коэффициентах. Мы полагали $\epsilon_{\max} = 100$ эВ.

Мы провели моделирование ВЧ разряда в описанных выше условиях как с учетом пространственной нелокальности ФРЭ, так и без него. В последнем случае мы полагали, что в уравнении (2) $D_x = D_{x\epsilon} = 0$, а коэффициенты D_{ϵ} и v_{ϵ} рассчитывались по тем же формулам (12).

Расчеты проводились нами до достижения периодического квазистационарного режима. Это время составляло $\sim 3 \cdot 10^{-4}$ с (несколько тысяч периодов ВЧ поля). Поскольку шаг интегрирования системы (2), (8)–(11) по времени не должен превышать величины 0.01–0.02 T (T = $2\pi/\omega$ — период ВЧ поля), то затраты машинного времени на решение задачи (на ЭВМ IBM PC 386) оказываются слишком велики. Поэтому при численном решении задачи мы использовали следующий прием. В рассматриваемых нами условиях ионы практически неподвижны в пределах периода и медленно дрейфуют в усредненном по периоду поле [13]. Это среднее поле, а также усредненные по периоду электронные кинетические коэффициенты плазмы могут быть вычислены в результате расчета ФРЭ в пределах нескольких периодов ВЧ поля. Затем полученные таким образом кинетические коэффициенты используются для решения с большим шагом по времени уравнений для n_+ , n_- и электрического поля. Через несколько периодов поля, когда появится отличие в распределении электрического поля по межэлектродному зазору, для уточнения энергетического спектра и рассчитываемых по нему коэффициентов снова решается с мелким шагом полная система уравнений (2), (8)–(11). Далее вся процедура повторяется до достижения квазистационарного периодического режима.

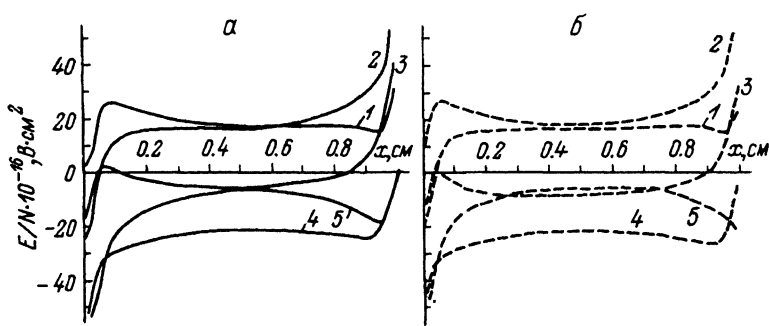


Рис. 1. Пространственные распределения параметра E/N в разряде в моменты времени $\omega t = 0$ (1), 0.2 (2), 0.4 (3), 0.6 (4), 0.8 (5).

На рис. 1 приведены пространственные распределения электрического поля в разряде в различные моменты времени, рассчитанные в рамках систем уравнений (2), (8)–(11) с учетом (а) и без учета (б) пространственной нелокальности энергетического спектра электронов. Как видно, эти распределения близки между собой. В то же время диффузионно-дрейфовое движение электронов в пространственно неоднородном поле оказывает существенное влияние на вид энергетического спектра электронов. Это видно из данных, представленных

на рис. 2, где приведены ФРЭ в различных пространственных точках разряда

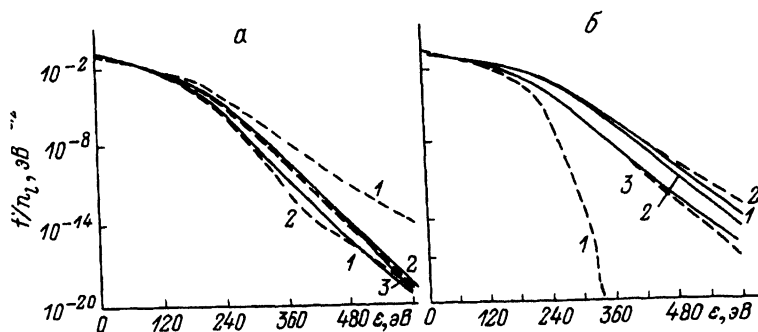


Рис. 2. ФРЭ в ВЧ разряде при $\omega t = 0$ (а) и $\omega t = \pi/2$ (б) в пространственных точках $x = 0$ (1), 0.1 (2), 0.5 см (3).

Расчет с учетом (сплошные кривые) и без учета (штриховые кривые) пространственной нелокальности ФРЭ.

в моменты времени, соответствующие $j = j_0$ (а) и $j = 0$ (б), рассчитанные как с учетом, так и без учета эффекта пространственной нелокальности. Наиболее существенным эффектом пространственной нелокальности является в приэлектродных областях разряда, где абсолютная величина и градиент электрического поля являются максимальными.

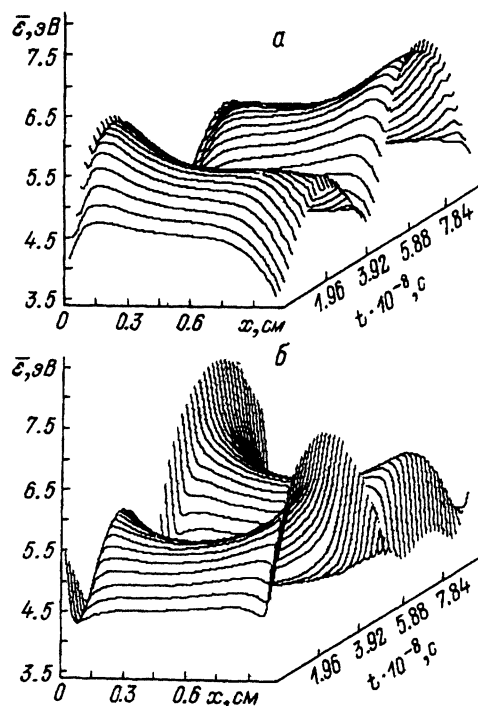


Рис. 3. Пространственно-временное распределение средней энергии электронов ВЧ разряда. Расчет с учетом (а) и без учета (б) пространственной нелокальности ФРЭ.

Пространственно-временные распределения рассчитанных по ФРЭ средней

энергии электронов и эффективной константы скорости ионизации представлены на рис. 3, 4. Эти распределения имеют не только количественные, но и качественные различия. Как и следовало ожидать, пространственная нелокальность спектра оказывает наибольшее влияние на распределение скорости ионизации. В приэлектродных слоях отличие расчетов достигает двух порядков величины. Следует также обратить внимание на то, что учет влияния пространственного движения электронов приводит не только к уменьшению абсолютного значения k_i , но и к перемещению максимума k_i от одного электрода к другому. Физическая причина этого обстоятельства, на наш взгляд, может быть объяснена следующим образом. При расчете ФРЭ в приближении локального поля область, в которой средняя энергия электронов и константа скорости ионизации максимальны, совпадает с областью максимального по межэлектродному промежутку электрического поля. Как видно из рис. 1, для моментов времени $0 < \omega t < \pi/2$ она расположена вблизи правого электрода ($x = 1$ см). С другой стороны, сила,

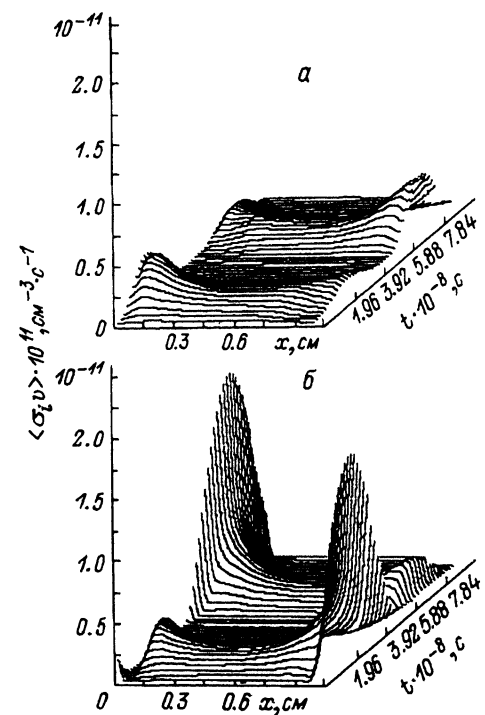


Рис. 4. Пространственно-временное распределение константы скорости ионизации электронным ударом.

а, б – то же, что и на рис. 3.

действующая на электроны в этой области пространства, направлена к центру разрядного промежутка. Это приводит к тому, что электроны, движущиеся по направлению к правому электроду, теряют в этом поле энергию и охлаждаются. Кроме того, энергия электронов, родившихся в непосредственной близости от электрода, как правило, невелика (мы полагали, что они рождаются с нулевой энергией). В результате энергия электронов у правого электрода оказывается минимальной, несмотря на максимальное значение поля (рис. 3, а). Поскольку для рассматриваемой части периода ВЧ поля электрическое поле в объеме близко к максимальному (и всего в два раза меньше, чем поле в приэлектродном слое), то электроны, дрейфуя в направлении электрического поля, постепенно набирают

энергию, так что ФРЭ характеризуется максимальными значениями $\bar{\epsilon}$ и $\langle \sigma_{i\nu} \rangle$ у противоположного электрода $x = 0$ (рис. 3, а, 4, а).

Заметим, что в условиях, близких к описанным, при моделировании ВЧ разряда в He перемещения максимумов в пространственном распределении $\bar{\epsilon}$ и $\langle \sigma_{i\nu} \rangle$ не наблюдалось [14]. Такое отличие в динамике процессов в разрядах в He и He:O₂ объясняется следующим образом. В случае разряда в электроотрицательном газе, как правило, $n_e \ll n_+$, т.е., так что распределение электрического поля в зазоре определяется прежде всего пространственными распределениями n_+ и n_- . В результате среднее значение электрического поля в приэлектродных слоях оказывается значительно меньше, чем для разряда в He, являющегося электроположительным газом. Некоторому уменьшению напряжения горения разряда в смеси He:O₂ способствуют также реакции Пеннинга (6) и перезарядки (7), увеличивающие скорость ионизации в рассматриваемой смеси. Поскольку процесс набора энергии электроном пропорционален величине $(E/N)^2$, в то время как слагаемое, описывающее дрейфовое движение электронов, $\approx E/N$, то с уменьшением отношения E/N происходит относительное увеличение роли дрейфовых членов по сравнению с членом, описывающим диффузию в пространстве энергий, т.е. эффект пространственной нелокальности энергетического спектра в смеси He:O₂ оказывается более существенным, чем для разряда в He.

Таким образом, диффузионно-дрейфовое движение электронов оказывает существенное влияние на кинетические коэффициенты в плазме ВЧ разряда в смеси He:O₂ уже при давлениях $p \sim 10$ Тор.

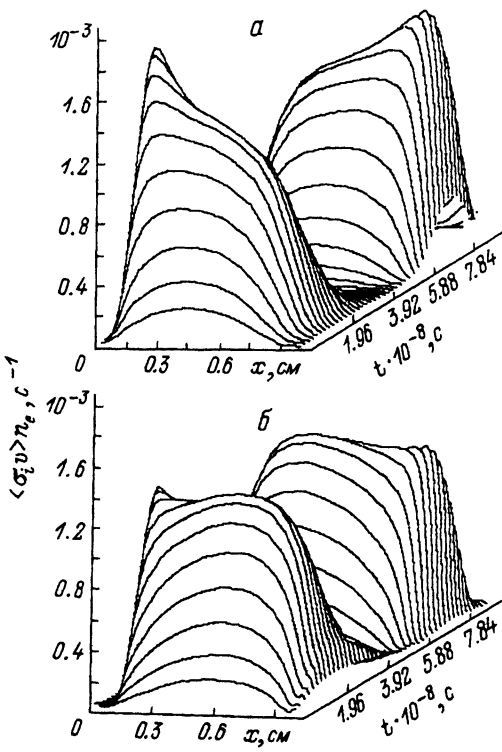


Рис. 5. Пространственно-временное распределение источника рождения электронов в плазме ВЧ разряда.
а, б – то же, что и на рис. 3.

С физической точки зрения более интересным является сопоставление объем-

ного источника $k_1 n_e N$, рассчитанного в приближении пространственно локальной и нелокальной ФРЭ. Такие распределения приведены на рис. 5. Как видно, скорость рождения электронов в пространственно нелокальном случае оказывается выше, причем пространственные максимумы величин E/N и $k_1 n_e N$ также достигаются у противоположных электродов. Причиной этого являются вынос быстрых электронов из приэлектродных областей в объем плазмы и увеличение в центре зазора константы скорости ионизации по сравнению со случаем локальной ФРЭ. Удаление области ионизации от электродов в объем плазмы приводит к увеличению времени диффузии рождающихся электронов к электродам и, как следствие, к более эффективному размножению электронов в объеме разряда.

В заключение остановимся на результатах расчета усредненных по периоду распределений различных компонент плазмы. Такие распределения для n_+ , n_-

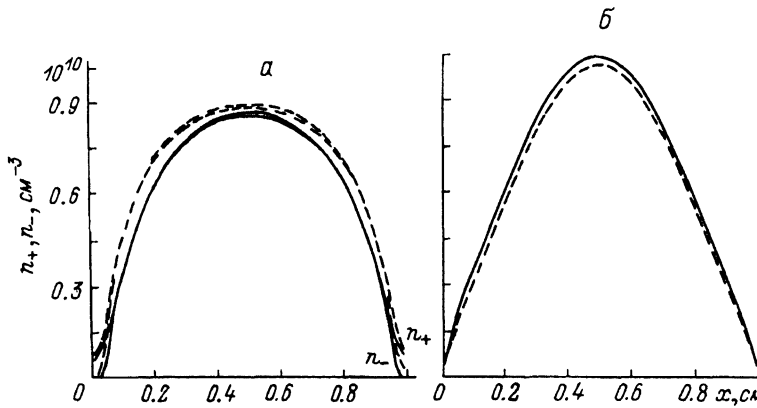


Рис. 6. Усредненные по периоду ВЧ поля пространственные распределения n_+ , n_- и n_e в плазме разряда.

Сплошная и штриховая кривые – то же, что и на рис. 2.

и n_e , полученные в приближении локальной и нелокальной ФРЭ, представлены на рис. 6. Как видно, в рассматриваемых условиях количественное отличие расчетов невелико, поэтому может быть сделан вывод, что вплоть до давлений ~ 10 Тор моделирование ВЧ разряда в электроотрицательных газах может проводиться без учета пространственной нелокальности ФРЭ. С практической точки зрения большой интерес в настоящее время вызывают ВЧ разряды в электроотрицательных газах при давлениях $p < 1$ Тор. Проведенные нами расчеты показывают, что использование приближения локального поля для моделирования таких разрядов является необоснованным.

Список литературы

- [1] Райзер Ю.П. // Физика плазмы. 1979. Т. 5. С. 408–416.
- [2] Смирнов А.С. // ЖТФ. 1984. Т. 54. С. 61–66.
- [3] Voeuf J.P. // Phys. Rev. A. 1987. Vol. 36. P. 2782–2792.
- [4] Бойко В.В., Манкелевич Ю.А., Рахимов А.Т. и др. Физика плазмы. 1989. Т. 15. С. 218–225.
- [5] Barnes M.S., Cotler T.J., Elta M.E. // J. Comput. Phys. 1988. Vol. 77. P. 53–57.
- [6] Graves D.B. // J. Appl. Phys. 1987. Vol. 62. P. 88–95.
- [7] Richards A.D., Thompson B.E., Sawin H.H. // Appl. Phys. Lett. 1987. Vol. 50. P. 492–494.
- [8] Kushner M.J. // IEEE Trans. Plasma Sci. 1986. Vol. 14. P. 188–196.
- [9] Волкова Е.А., Попов А.М., Поповичева О.Б., Рахимова Т.В. // Физика плазмы. 1990. Т. 16. С. 738–742.

- [10] Швейгерт В.А. // ПМТФ. 1989. № 5. С. 3–7.
- [11] Мак-Даниэль И., Мярэ Э. Подвижность и диффузия в газах. М.: Мир, 1976.
- [12] Бекефи Дж. Плазма в лазерах. М.: Мир, 1982.
- [13] Смирнов А.С., Цендин Л.Д. // Тез. IV Всесоюз. конф. по физике газового разряда. Ч. I. Махачкала, 1988. С. 127–128.
- [14] Волкова Е.А., Попов А.М., Поповичева О.Б. и др. // Физика плазмы. 1991. Т. 17. С. 481–488.

Московский университет им. М.В.Ломоносова
Научно-исследовательский институт ядерной физики

Поступило в Редакцию
9 января 1991 г.
В окончательной редакции
5 ноября 1991 г.