

02;03;04;10

**СЛАБОПОЛЕВАЯ АБСОЛЮТНАЯ ОТРИЦАТЕЛЬНАЯ ПРОВОДИМОСТЬ
В СМЕСИ Xe : F₂, ИОНИЗИРОВАННОЙ ПУЧКОМ
БЫСТРЫХ ЭЛЕКТРОНОВ**

П. М. Головинский, А. И. Щедрин

Показано, что в смеси Xe : F₂, ионизированной пучком быстрых электронов, при определенных величинах скорости внешней ионизации $S/N^2 \sim 10^{-20} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ и процентном содержании F₂ ($N_{F_2}/N \sim 10^{-3}$) возможно появление инверсной функции распределения электронов и абсолютной отрицательной проводимости.

В работе [1] было показано, что в несамостоятельном разряде в тяжелых инертных газах возможно появление абсолютной отрицательной проводимости. Изменение знака проводимости связано с инверсией функции распределения электронов (ФРЭ) по энергиям. Идея заключалась в следующем. Генерация тепловых электронов происходит сравнительно однородно в широком энергетическом диапазоне по крайней мере до энергии возбуждения атомов (что реализуется при ионизации газа пучком быстрых электронов с энергией порядка сотен кэВ), а гибель электронов (рекомбинация) — при малых энергиях, независимо, меньших энергии минимума Рамзауэра в транспортном сечении рассеяния электронов на атомах. В этом случае рождающиеся тепловые электроны, теряя свою энергию при столкновениях с атомами инертного газа, накапливаются в окрестности минимума Рамзауэра, формируя инверсную ФРЭ. Электроны с еще меньшей энергией быстро рекомбинируют, существенно усиливая инверсию. При достаточно большой инверсии ФРЭ проводимость электронной компоненты плазмы становится отрицательной. Основным механизмом гибели электронов в [1] считалась диссоциативная рекомбинация с молекулярными ионами инертного газа.

Инверсия ФРЭ имеет место, если электрон-электронное ($e-e$) рассеяние не является доминирующим при формировании функции распределения в области тепловых энергий. В слабом электрическом поле $e-e$ столкновениями можно пренебречь, когда частота энергообмена между электронами (ν_{ee}) меньше частоты рассеяния электронов по энергии на нейтральных атомах ($m/M \nu_T$, m и M — массы электрона и атомов) [2]

$$\frac{\nu_{ee}(\varepsilon)}{\frac{m}{M} \nu_T(\varepsilon)} < 1. \quad (1)$$

В случае Xe (1) сводится к $n_e/N < 10^{-8}$ (n_e и N — концентрации электронов и атомов Xe). В терминах скорости внешней ионизации (S) этому неравенству соответствует $S/N^2 < 10^{-23} - 10^{-22} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$. Для таких значений S инверсия ФРЭ выражена слабо [1].

Рассмотрим причины исчезновения инверсии ФРЭ при малых S . Баланс частиц в диапазоне энергий $\varepsilon \leq T_e$ определяется в основном только рекомбинацией и термализацией электронов. Если выполняется неравенство [1]

$$N_{M+\varepsilon} Q_R > \frac{2m}{M} N \frac{d(z^2 Q_T)}{dz}, \quad (2)$$

то исчезновение частиц доминирует над приходом из-за остывания, что приводит к провалу функции распределения в области малых энергий, $\partial f_0/\partial e > 0$. Здесь N_{M^+} — концентрация молекулярных ионов, Q_R — сечение диссоциативной рекомбинации, Q_T — транспортное сечение рассеяния электронов на атомах инертного газа.

Так как $n_e \approx N_{M^+} \sim \sqrt{S}$, то уменьшение S вызывает нарушение неравенства (2). С другой стороны, как уже отмечалось, при больших интенсивностях внешней ионизации $e-e$ рассеяние подавляет процессы, приводящие к инверсии ФРЭ, что не было учтено в [1]. В чистом инертном газе обеспечить интенсивную рекомбинацию электронов при малой степени ионизации газа, т. е. одновременное выполнение условий (1) и (2), затруднительно, поскольку скорость диссоциативной рекомбинации можно увеличить лишь за счет увеличения концентрации молекулярных ионов, равной концентрации электронов. Менее жестким условие (2) может стать в чистом инертном газе при больших давлениях, когда рекомбинация происходит с участием комплексных ионов и характеризуется гораздо большими значениями Q_R .

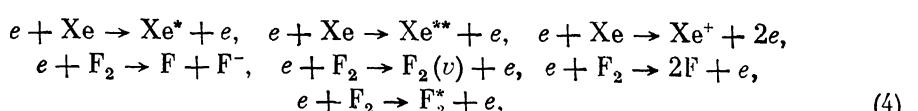
В настоящей работе показано, что добавление к инертному газу малого количества ($\sim 0.1-1\%$) электроотрицательного газа с большой скоростью прилипания, устраниющее жесткую связь между скоростью исчезновения электронов и их концентрацией, позволяет реализовать предложенный в [1] механизм получения инверсной ФРЭ и абсолютной отрицательной проводимости. Убыль электронов в данном случае будет определяться только скоростью прилипания $\sim N_n Q_n$, которую можно варьировать, изменяя концентрацию электроотрицательного газа N_n , а концентрация электронов $n_e \sim S/N_n$. Поэтому даже при малой скорости внешней ионизации (отсутствует максвеллизующая роль $e-e$ рассеяния) можно добиться выполнения неравенства, аналогичного (2).

При анализе симметричной части функции распределения электронов по энергиям мы исходили из уравнения Больцмана [3]

$$\frac{1}{n_e N} \left(\frac{m}{2e} \right)^{1/2} \varepsilon^{1/2} \frac{\partial n_e f_0}{\partial t} - \frac{1}{3} \left(\frac{E}{N} \right)^2 \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left(\sum_i \frac{N_i}{N} Q_{iT} \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \right) - \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left[2 \sum_i \frac{m}{M_i} \frac{N_i}{N} Q_{iT} \varepsilon^2 \left(f_0 + T \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \right) \right] = S_{eN} + S_{ee} + A(\varepsilon), \quad (3)$$

где ε — энергия (эВ), T — температура газа (эВ), $e=1.602 \cdot 10^{-12}$ эрг/эВ, N_i и Q_{iT} — концентрации молекул и соответствующие транспортные сечения рассеяния, S_{eN} и S_{ee} — интегралы неупругих столкновений электронов с нейтральными частицами и $e-e$ рассеяния, $A(\varepsilon)$ — источник вторичных электронов.

Все расчеты в дальнейшем будут проводиться для смеси $Xe : F_2$ ($P \sim 1$ атм). Если ограничиться неравенствами $n_e/N < 10^{-7}$, $S/N^2 < 10^{-19} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$, $N_{F_2}/N < 0.01$, то, как показывают численные оценки, наиболее существенный вклад в уравнение Больцмана вносят процессы, линейные по концентрации электронов



Значения квазистационарных концентраций n_e , Xe^* , Xe_2^* , Xe^+ , Xe_2^+ , F^- , необходимые для оценки вклада процессов второго порядка по концентрации электронов при условии выполнения вышеуказанных неравенств, в предположении $F^- \gg n_e$, $Xe_2^+ \gg Xe^+$ могут быть найдены из простой системы кинетических уравнений

$$\frac{dn_e}{dt} = S - k_1 N_{F_2} n_e, \quad \frac{dN_{Xe^*}}{dt} = \eta S - k_2 N_{Xe^*} N_{F_2}, \quad \frac{dN_{Xe_2^*}}{dt} = k_3 N_{Xe^*} N_{Xe}^2 - \frac{1}{\tau} N_{Xe_2^*}, \\ \frac{dN_{Xe^+}}{dt} = S - k_4 N_{Xe^+} N_{Xe}^2, \quad \frac{dN_{Xe_2^+}}{dt} = k_5 N_{Xe^+} N_{Xe}^2 - k_6 N_{Xe_2^+} N_{F^-}, \quad N_{F^-} \approx N_{Xe_2^+}. \quad (5)$$

После несложных преобразований для концентраций на квазистационарной стадии получаем выражения

$$\begin{aligned} n_e &\approx \frac{S}{k_n N_{F_2}} \approx 10^{11} \text{ см}^{-3}, \quad N_{Xe^*} = \frac{\eta S}{k_r N_{F_2}} \approx \tau_i \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}, \quad N_{Xe_2^*} = \eta \frac{k_r \tau_i}{k_p} \frac{SN_{Xe}^2}{N_{F_2}} \approx \\ &\approx \tau_i (10^{10} - 10^{11}) \text{ см}^{-3}, \quad N_{Xe^+} = \frac{S}{k_p N_{Xe}^2} \approx 0.5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}, \quad N_{Xe_2^+} \approx \\ &\approx N_{\Gamma^-} = \sqrt{\frac{S}{k_p}} \approx 10^{12} \text{ см}^{-3}. \end{aligned} \quad (6)$$

При оценках использовались величины $N_{Xe} = 10^{19} \text{ см}^{-3}$, $S = 10^{18} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$, $N_{F_2} = 10^{16} \text{ см}^{-3}$; значения соответствующих молекулярных констант взяты из работы [4, 5, 6], $\eta \sim 1$. Концентрации $N_{Xe^*} \sim N_{Xe_2^*}$ и $N_{Xe_2^+} \sim N_{Xe_2^*}$.

Приведенные значения (6) указывают на то, что вклад возбужденных атомов и молекул, а также молекулярных ионов в электронные процессы на несколько порядков ниже, чем вклад реакций (4), и падает по мере уменьшения S . Исключение составляет $e-e$ рассеяние. В соответствии с вышесказанным и с учетом процессов (4) интеграл неупругих столкновений электронов с атомами и молекулами газа был выбран в виде

$$S_{e,V} = \sum_j \frac{N_j}{N} [(\varepsilon + \varepsilon_j) Q_j (\varepsilon + \varepsilon_j) f_0 (\varepsilon + \varepsilon_j) - \varepsilon Q_j (\varepsilon) f_0 (\varepsilon)] - \varepsilon Q_{\pi} \frac{N_{F_2}}{N} f_0 (\varepsilon), \quad (7)$$

где Q_j — сечение возбуждения атомов Xe, диссоциации и возбуждения молекул F_2 с квантами ε_j ; Q_{π} — сечение диссоциативного прилипания к F_2 . В расчетах использованы сечения возбуждения Xe из [7], остальные — из [6, 8].

Член $A(\varepsilon)$ описывает ионизацию газа электронами пучка и каскада

$$A(\varepsilon) = \int_{\frac{\varepsilon_{\pi} - \varepsilon_i}{2}}^{\frac{\varepsilon_{\pi} - \varepsilon_i}{2}} \varepsilon' f_0(\varepsilon') q_i(\varepsilon', \varepsilon) d\varepsilon' + \int_{\varepsilon + \varepsilon_i}^{\frac{2\varepsilon + \varepsilon_i}{2}} \varepsilon' f_0(\varepsilon') q_i(\varepsilon', \varepsilon' - \varepsilon_i - \varepsilon) d\varepsilon' - \varepsilon f_0(\varepsilon) \int_0^{\frac{\varepsilon - \varepsilon_i}{2}} q_i(\varepsilon, \varepsilon') d\varepsilon' + \frac{\Gamma_{\pi} q_i(\varepsilon_{\pi}, \varepsilon)}{n_e \sqrt{\frac{2e}{m}}}. \quad (8)$$

Здесь ε_{π} , Γ_{π} — энергия электронов пучка и плотность потока; $q_i(\varepsilon', \varepsilon)$ — дифференциальное сечение рассеяния налетающего электрона с энергией ε' и образования вторичного электрона с энергией ε ; ε_i — энергия ионизации. Первые два интеграла описывают рождение электронов с энергией ε , третий — исчезновение. Последний член в (8) соответствует рождению вторичных электронов за счет первичных с энергией ε_{π} . Если $\varepsilon_i \ll \varepsilon_{\pi}$, то вклад последнего члена в ионизацию в интервале энергий $0 - \varepsilon_i$ пренебрежимо мал. Конкретизация вида $A(\varepsilon)$ требует знания функции распределения высокозергетических электронов каскада ($\varepsilon > \varepsilon_i$). Подробное исследование $f_0(\varepsilon > \varepsilon_i)$ в аргоновой плазме, создаваемой пучком быстрых электронов, проведено в работе [9]. Получено простое аналитическое выражение для $f_0(\varepsilon)$

$$f_0(\varepsilon) = k \exp\left(\frac{\alpha}{\varepsilon}\right) \left(\frac{\varepsilon_i}{\varepsilon}\right)^{\beta} \left(1 - \frac{\varepsilon}{\varepsilon_{\max}}\right)^{\lambda} \frac{1}{\sqrt{\varepsilon}}, \quad (9)$$

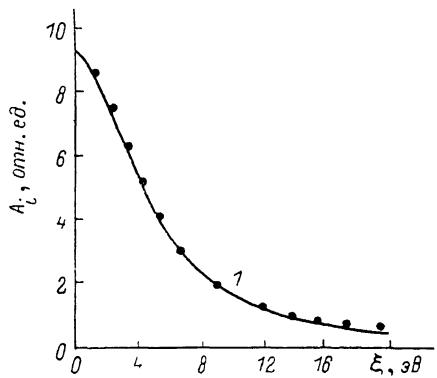


Рис. 1. Скорость рождения вторичных электронов в Ar.

1 — расчеты по формуле (8), точки — аппроксимация (10). $\varepsilon_{\pi} = 10^6 \text{ эВ}$.

где k , α , β , λ — константы, определяемые типом газа и энергией электронов пучка.

На рис. 1 (кривая 1) представлен вид $A(\varepsilon)$, получающийся в результате интегрирования выражения (8) с учетом ФРЭ (9) и дифференциальным сечением из [9] для $\varepsilon_n = 10^5$ эВ. Кривая 1, описывающая $A(\varepsilon)$ в аргоне в области энергий $0 - \varepsilon_i$, с хорошей степенью точности аппроксимируется выражением, аналогичным дифференциальному сечению рассеяния [10] с подгоночным параметром $\varepsilon_0 = 5$ эВ,

$$A(\varepsilon) = \frac{S}{n_e N} \sqrt{\frac{2e}{m}} \varepsilon_0 \left(\frac{\pi}{2}\right) \frac{1}{1 + \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0}\right)^2}, \quad (10)$$

где S — скорость внешней ионизации, $A(\varepsilon)$ нормирована на полную скорость ионизации.

Поскольку дифференциальные сечения рассеяния высокозенергетических электронов в Ar и Xe отличаются слабо [10], то выражение (10) было использовано и в расчетах для Xe.

Интеграл электрон-электронных столкновений имеет вид

$$S_{ee} = \times \frac{n_e}{N} \ln \Gamma \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left[2 \frac{\partial f_0(\varepsilon)}{\partial \varepsilon} \int_0^\varepsilon \times f_0(x) x^{3/2} dx + 3 f_0(\varepsilon) \int_0^\varepsilon f_0(x) x^{1/2} dx \right]. \quad (11)$$

Рис. 2. ФРЭ в смеси Xe : F₂, ионизируемой пучком быстрых электронов.

а: $S/N^2 = 10^{-20}$ см³·с⁻¹: 1 — $N_{F_2}/N = 10^{-5}$, 2 — 10^{-4} , 3 — 10^{-3} , 4 — 10^{-2} , 5 — 10^{-1} ; б: $N_{F_2}/N = 10^{-3}$: 1 — $S/N^2 = 10^{-21}$, 2 — 10^{-20} , 3 — 10^{-19} , 4 — 10^{-18} см⁻³·с⁻¹.

Здесь $\times = 4.33 \cdot 10^{-14}$ (эВ²·см²), $\ln \Gamma$ — кулоновский логарифм.

Функция распределения электронов нормирована условием

$$\int_0^\infty \varepsilon^{1/2} f_0(\varepsilon) d\varepsilon = 1. \quad (12)$$

При численном моделировании ФРЭ предполагалось, что ионизация газовой смеси осуществляется пучком быстрых электронов с энергией $\varepsilon_n > 10^4$ эВ. Последнее связано с условием применимости выражения (10).

На рис. 2 представлены результаты расчета ФРЭ в смеси Xe : F₂ для различного процентного содержания F₂ при фиксированной скорости внешней ионизации S (а) и наоборот (б). Механизм образования инверсии ФРЭ обсуждался в [1]. В отличие от [1] роль рекомбинации здесь выполняет прилипание к молекулам F₂. Это позволило добиться появления участков с $\delta f_0/\delta \varepsilon > 0$ при низких значениях S и соответственно малых концентрациях электронов $n_e/N < 10^{-8}$, когда $e-e$ рассеяние несущественно. Инверсия исчезает при $N_{F_2}/N < 10^{-4}$ либо $S/N^2 > 10^{-18}$ см³·с⁻¹ (что соответствует случаю, рассмотренному в работе [10]) из-за максвеллизации ФРЭ вследствие возрастания n_e .

Условие инверсии функции распределения в смеси Xe : F₂ несколько видоизменяется

$$\frac{N_{F_2}}{N} \varepsilon Q_i \geq \sum_i \frac{2m}{M} \frac{N_i}{N} \frac{d(\varepsilon^2 Q_{iT})}{d\varepsilon} + \frac{N_{F_2}}{N} \Delta \varepsilon \frac{d(\varepsilon Q_v)}{d\varepsilon}, \quad (13)$$

где Q_i и $\Delta \varepsilon$ — сечение и квант энергии колебательного возбуждения молекулы F₂. Равенство (13) соответствует максимуму $f_0(\varepsilon)$.

Временная эволюция ФРЭ и слабополевой проводимости σ_e после включения источника внешней ионизации представлена на рис. 3

$$\sigma_e = q n_e \mu_e = -\frac{1}{3} \sqrt{\frac{2e}{m}} \frac{q n_e}{N} \times \\ \times \int_0^\infty \frac{\varepsilon}{\sum_i \frac{N_i}{N} Q_{iT}} \frac{d f_0}{d\varepsilon}, \quad d\varepsilon. \quad (14)$$

q — заряд электрона (Кл).

Время выхода τ_n функции распределения на квазистационарное состояние определяется скоростью прилипания $\tau_n \approx \frac{1}{k_n N_{F_2}} \approx 10^{-7}$ с (для концентраций Xe и F₂, приведенных на рис. 3).

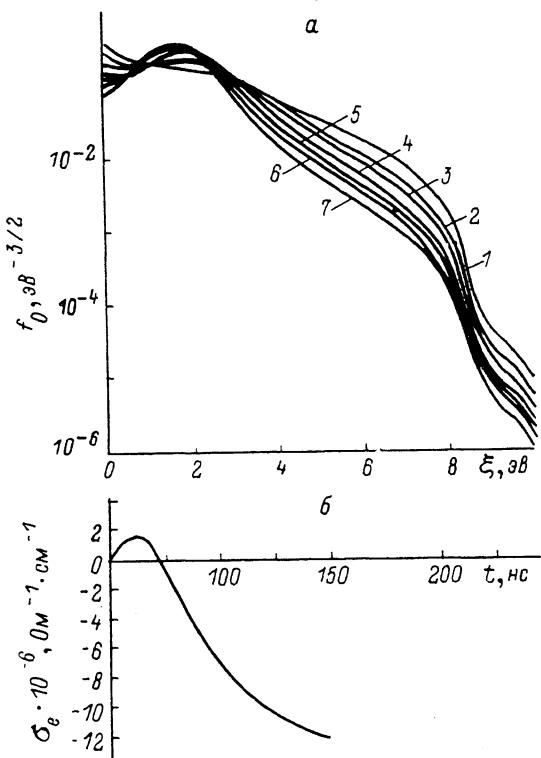


Рис. 3.

а — временная эволюция ФРЭ после включения источника внешней ионизации. $P=0.5$ атм, $S/N^2=10^{-20}$ см³·с⁻¹, $N_{F_2}/N=10^{-3}$, $E=0$. 1 — $t=10$, 2 — 20, 3 — 30, 4 — 50, 5 — 70, 6 — 100, 7 — 200 нс. б — динамика формирования отрицательной проводимости.

Если скорость внешней ионизации фиксирована, то слабополевая отрицательная электронная проводимость существует в определенном интервале концентраций F₂ (рис. 4), который сужается по мере увеличения S. Исчезновение отрицательной подвижности при больших N_{F_2} связано с уменьшением процентного содержания атомов Xe, имеющих ярко выраженный минимум Рамзауэра. Переход μ_e в область положительных значений, когда концентрация фтора (либо скорость внешней ионизации) фиксирована, а S увеличивается (либо N_{F_2} уменьшается), вызван ростом концентрации электронов (рис. 4, б) и соответственно $e-e$ рассеяния. Штриховыми линиями на рис. 4, б отмечена область, где полная проводимость

$$\epsilon = \sigma_e + \sigma_i = q (\mu_e n_e + \mu_{F^-} N_{F^-} + \mu_{Xe_2^+} N_{Xe_2^+} + \mu_{Xe^+} N_{Xe^+}) \quad (15)$$

положительна. Вследствие роста процентного содержания ионов данная область при уменьшении S расширяется так, что постепенно захватывает весь интервал N_{F_2} . Таким образом, диапазон существования полной отрицательной проводимости уже, и максимальные (отрицательные) значения проводимости принимает вблизи значений параметров $N_{F_2}/N \sim 10^{-3}$, $S/N^2 \sim 10^{-20}$ см³·с⁻¹.

Как уже указывалось в [1], электрическое поле приводит к исчезновению инверсии ФРЭ, что иллюстрирует рис. 5. Поскольку в плазме, инициируемой пучком быстрых электронов, существует поле объемного заряда термализованных электронов [11], то предпочтительнее производить ионизацию жестким рентгеновским излучением соответствующей мощности.

В заключение отметим два обстоятельства. Во-первых, все приведенные рассуждения справедливы и для других смесей тяжелых инертных газов (Ar, Ne).

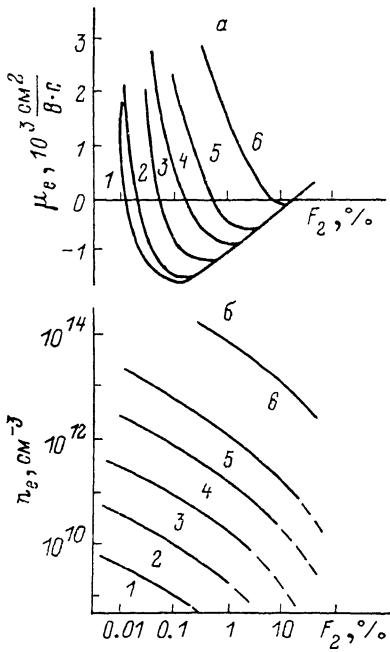
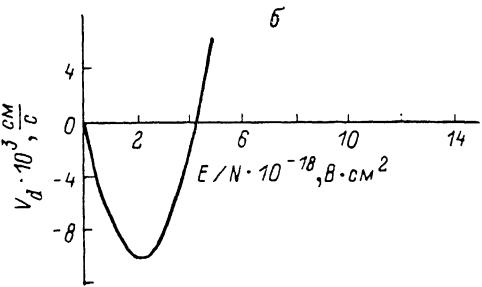


Рис. 4. Зависимость слабополевой подвижности μ_e (а) и концентрации электронов (б) от содержания F_2 при $p=0.5$ атм, $E=0$.

1 — $S/N^2 = 10^{-22}$, 2 — 10^{-21} , 3 — 10^{-20} , 4 — 10^{-19} , 5 — 10^{-18} , 6 — $10^{-16} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$.

Рис. 5.

а — ТПЭ при $S/N^2 = 10^{-20} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$, $N_{F_2}/N = 10^{-3}$ для различных значений электрического поля. 1 — $E=0$, E/N ; 2 — $3 \cdot 10^{-18}$, 3 — 10^{-17} , 4 — $5 \cdot 10^{-17} \text{ В} \cdot \text{см}^2$. б — соответствующая зависимость дрейфовой скорости.



Kг) и электроотрицательных с большим сечением прилипания, например SF₆. Во-вторых, время выгорания F_2 $\tau_b \sim 10^{-4} - 10^{-3}$ с ($N = 10^{19} \text{ см}^{-3}$, $S/N^2 \sim 10^{-18} - 10^{-20} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$). Поэтому возможны оба режима — как импульсный, так и непрерывный с прокачкой газа.

Литература

- [1] Головинский П. М., Щедрин А. И. // Письма в ЖТФ. 1986. Т. 12. Вып. 19. С. 1162—1166.
- [2] Виберман Л. М., Воробьев В. С., Якутов И. Т. Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы. М.: Наука, 1982. 374 с.
- [3] Шкаровский И., Джонстон Т., Бачинский М. Кинетика частиц плазмы. М.: Атомиздат, 1969. 396 с.
- [4] Kannary F., Suda A., Obara M., Fujio T. // IEEE. 1983. Vol. QE-19. N 10. P. 1587—1599.
- [5] Эксимерные лазеры / Под ред. Ч. Роуза. М.: Мир, 1981. 245 с.
- [6] Молчанов А. Ф. // Труды ФИАН. М.: Наука, 1986. С. 54—127.
- [7] Гальцев В. Е., Демьянов А. В., Кочетов И. В. и др. Препринт ИАЭ, № 3156. М., 1979.
- [8] Газовые лазеры / Под ред. И. Мак-Даниэля и У. Нигэна. М.: Мир, 1986. 548 с.
- [9] Bretague J., Delouya G., Godart J., Ruech V. // J. Phys. D. 1981. Vol. 14. P. 1225—1239.
- [10] Bretague J., Godart J., Ruech V. // J. Phys. D. 1982. Vol. 15. P. 2205—2225.
- [11] Бычков Ю. И., Месяц Г. А. Инженерная газовая электроника. Новосибирск: Наука, 1982. 15 с.