

01;02;03;04

Колебательная накачка молекул H_2 в потоке водорода, протекающего сквозь цезий-водородный разряд

© Ф.Г. Бакшт, В.Г. Иванов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 2 июня 1997 г.)

Рассчитывается колебательная функция распределения молекул H_2 , образующаяся в потоке молекулярного водорода. Предполагается, что поток водорода течет в плоском канале и последовательно проходит сквозь две секции. В первой секции реализуется цезий-водородный разряд и осуществляется предварительная колебательная накачка молекул H_2 . Во второй секции, где разряд отсутствует, в процессе $\nu-\nu$ -обмена происходит существенное увеличение концентрации колебательно-возбужденных молекул в определенной, верхней части колебательного спектра. Обсуждается возможность использования созданной таким образом колебательной функции распределения для целей генерации отрицательных ионов водорода в результате последующего диссоциативного прилипания электронов к колебательно-возбужденным молекулам.

1. В настоящее время в связи с целым рядом приложений (ионные источники, плазмохимия и др.) проявляется весьма существенный интерес к генерации колебательно-возбужденных молекул водорода. Как правило, генерация таких молекул осуществляется в различного типа разрядах, содержащих либо чисто водородную плазму, либо водородную плазму с примесью легко ионизирующихся компонент, в частности цезия. В зависимости от конкретных приложений используются различные схемы колебательного возбуждения H_2 . Например, в существующих объемных источниках отрицательных ионов водорода, в которых генерация ионов H^- осуществляется в процессе диссоциативного прилипания (ДП) тепловых электронов к колебательно-возбужденным молекулам H_2 в основном электронном состоянии $X^1\Sigma_g^+$ [1], колебательное возбуждение часто осуществляется каскадным путем за счет излучательного девозбуждения синглетных электронно-возбужденных состояний $B^1\Sigma_u^+$, $C^1\Pi_u^*$ и др. [2]. В источниках ионов H^- , использующих такую двухступенчатую схему генерации колебательно-возбужденных молекул $H_2(X^1\Sigma_g^+)$, процессы колебательного возбуждения и ДП, как правило, разделены в пространстве [3–5]. Такое разделение достигается либо путем организации отдельной разрядной камеры, в которой образуются возбужденные молекулы H_2 (двухкамерный источник), либо посредством создания так называемого гибридного источника [3,4], в котором это разделение достигается в единой разрядной камере, где быстрые катодные электроны, возбуждающие молекулы H_2 , удерживаются вблизи стенок камеры за счет дрейфа в скрещенных E -, H -полях. При этом ионы H^- генерируются в процессе ДП в центральной части камеры, где быстрые или горячие тепловые электроны, разрушающие ионы H^- , отсутствуют, а электронная температура $T_e \sim 1$ eV, т.е. она оптимальна для процессов ДП [6]. Среди ряда работ, посвященных теории двухкамерных и гибридных источников, отметим [4], где проведена оптимизация источников H^- и D^- по току разряда и электронной температуре и выполнено сравнение теории с экспериментальными данными.

Отметим, что пространственное разделение процессов колебательного возбуждения H_2 и процессов генерации ионов H^- может быть весьма целесообразным еще по одной причине, на которой мы остановимся здесь в связи с возможным использованием для генерации колебательно-возбужденных молекул H_2 низковольтного (НВ) цезий-водородного разряда [7]. Поскольку такой разряд может быть реализован при сравнительно высокой концентрации как электронов, так и молекул H_2 (см., например, [8,9]), то в нем процессы колебательного возбуждения могут интенсивно протекать непосредственно в основном электронном состоянии $X^1\Sigma_g^+$ как в процессах $e-\nu$, так и $\nu-\nu$ -обмена. В то же время в ряде приложений, в частности в источниках H^- для целей УТС, желательно иметь сравнительно низкое давление водорода в той области, из которой извлекаются ионы H^- . По этой причине также выгодно разделить в пространстве генерацию колебательно-возбужденных молекул (первая камера с относительно высоким давлением) и образование и последующее извлечение ионов H^- (вторая камера с низким давлением). Нужный перепад давления между камерами можно осуществить за счет истечения со звуковой скоростью V_s колебательно накачанного водорода из первой камеры во вторую.

В настоящей работе будет показано, что при соответствующей организации течения колебательная функция распределения (КФР) истекающих из первой камеры молекул H_2 может быть заметно улучшена, в частности, и в той области колебательных чисел ν , которая существенна для процессов ДП. Предварительные результаты опубликованы в [10].

2. Рассматриваемая здесь модель течения иллюстрируется рис. 1, а. Поток молекулярного водорода течет в канале между двумя параллельными стенками и проходит последовательно сквозь секции I и II (протяженностью соответственно h_1 и h_2). В секции I реализуется НВ цезий-водородный разряд между двумя плоскими электродами. Здесь осуществляется первоначальная колебательная накачка водорода. Затем поток водорода

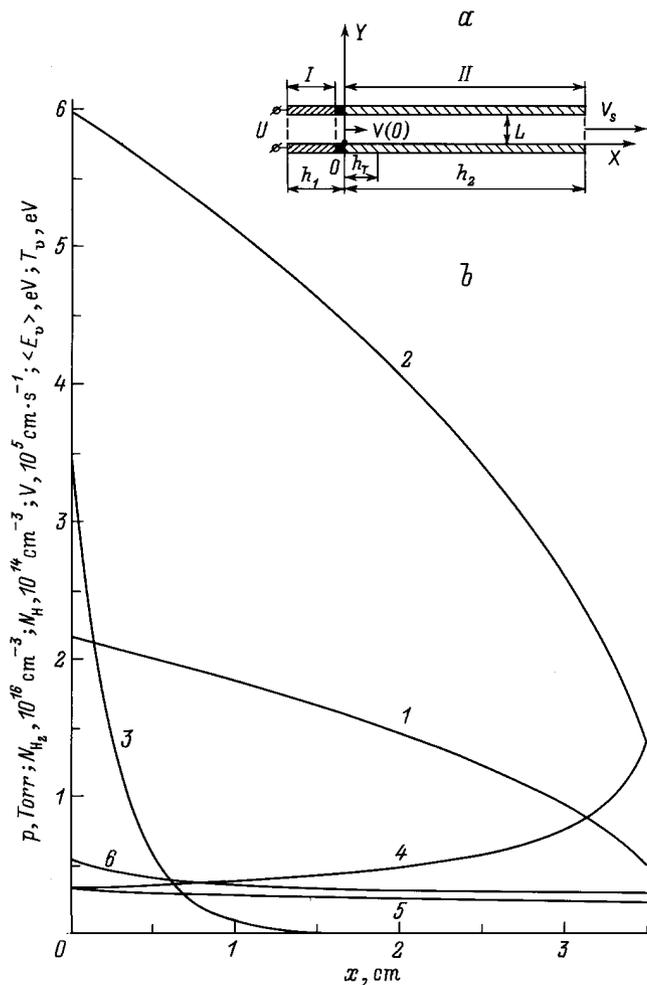


Рис. 1. *a* — схема течения водорода в канале: *I* — разрядная зона, *II* — течение колебательно-накачанного газа в канале; *b* — распределение по длине канала основных параметров течения: 1 — p , 2 — N_{H_2} , 3 — N_H , 4 — V , 5 — $\langle E_v \rangle$, 6 — $T_v = (E_1/k) / \ln(N_0/N_1)$. Параметры разряда: $L = 0.3$ см, $h_1 > 1$ см, $N_{H_2}^{(0)} = 3 \cdot 10^{16}$ см $^{-3}$, $N_H^{(0)} = 1.62 \cdot 10^{14}$ см $^{-3}$, $T_e = 0.88$ эВ, $N_{Cs}^{(0)} = 7 \cdot 10^{13}$ см $^{-3}$, $n_e = 2.07 \cdot 10^{13}$ см $^{-3}$, $N_{H^-}^{(0)} = 5.1 \cdot 10^{12}$ см $^{-3}$, $\langle E_v \rangle = 0.366$ эВ, $T_v = 0.59$ эВ. Температура газа в разряде $T_0 = 0.08$, в канале $T = 0.04$ эВ.

проникает в секцию *II*, изолированную от секции *I*. На срезе канала ($x = h_2$) секции *II* происходит истечение водорода со скоростью звука V_s . Стенки секции *II* поддерживаются при температуре, близкой к комнатной. В этой секции в процессе нерезонансного $v-v$ -обмена в холодном газе происходит усиление колебательной накачки молекул H_2 в определенной, верхней части колебательного спектра.

Изменение давления $p(x)$ и концентрации $N_{H_2}(x)$ молекулярного водорода по длине канала в секции *II* можно приближенно определить по аналогии с вязким течением газа в трубе круглого сечения (ср. с [11]). Для достаточно длинного ($h_2/L \gg 1$) канала, усредняя газодинамическую скорость [12, с. 81] по поперечному

сечению, получаем следующее выражение для средней скорости V течения в плоском канале:

$$V = -\frac{L^2}{12\eta} \frac{dp}{dx}, \quad (1)$$

где η — вязкость молекулярного водорода.

Полагая, что на срезе канала $V = V_s$, получаем распределение давления молекулярного водорода по длине канала

$$p(x) = \left[p_0^2 - (p_0^2 - p_s^2) x/h_2 \right]^{1/2}. \quad (2)$$

Здесь $p_0 = p(0)$ — давление водорода на входе в канал, т.е. приближенно давление в разряде; p_s — давление на срезе. Длина h_2 и ширина L канала связаны соотношением

$$h_2/L = (R_s/24)(c_p/c_v)^{-1} \left[(p_0/p_s)^2 - 1 \right], \quad (3)$$

где $R_s = \rho_s L V_s / \eta$ — число Рейнольдса, рассчитанное по поперечному сечению L канала и по параметрам потока на срезе; $\rho_s = M_{H_2} p_s / kT$ — плотность водорода при $x = h_2$; T — температура газа в канале.

Параметры плазмы в исходном НВ разряде (секция *I*) и параметры газа в канале (секция *II*) считались однородными по сечению. В качестве примера на рис. 1, *b* приведено распределение по длине канала в секции *II* основных параметров течения: давления p , концентрации N_{H_2} молекулярного водорода и скорости течения V , а также средней колебательной энергии $\langle E_v \rangle$ молекул, их колебательной температуры T_v , определенной через заселенности N_0 и N_1 основного и первого возбужденного колебательных уровней, концентрации N_H атомарного водорода (см. ниже).

3. Остановимся на основных моментах расчета компонентного состава плазмы и КФР в исходном НВ разряде. Расчет параметров плазмы НВ цезий-водородного разряда проводился по методике [13], разработанной для однородного газоразрядного промежутка. Рассматривалась достаточно плотная плазма разряда, когда катодный пучок релаксирует в плазме на парных межэлектронных столкновениях и энергия пучка расходуется на нагрев тепловых электронов [14]. Расчет проводился в два этапа [9]. На первом этапе при заданной электронной температуре T_e решалась система уравнений, определяющая электронно-колебательную кинетику в разряде. Из решения этой системы находились все параметры плазмы, включая КФР $f_v^{(0)}$ молекул H_2 и потоки ионов j_1 , отводимые из плазмы на каждый из электродов. На втором этапе при известных параметрах плазмы разрешалась система граничных условий, описывающая баланс заряженных частиц и энергии электронов на прикатодной и прианодной границах плазмы. Из решения этой системы определялись прикатодный φ_1 и прианодный φ_2 потенциальные барьеры в лэнгмюровских слоях и потоки электронов j_{e1} и j_{e2} , отводимые из плазмы на катод и анод. В результате находились напряжение $U = \varphi_1 - \varphi_2$ и ток разряда $j = j_{e2} - j_1$, соответствующие определенному на первом этапе набору параметров плазмы. Отметим

одно существенное обстоятельство, которое отличает исследуемые в настоящей работе режимы горения НВ цезий-водородного разряда в плотной, столкновительной плазме от аналогичных режимов, которые теоретически исследовались ранее, в частности от [13]. Рассматриваемые в настоящей работе режимы горения НВ Cs-H₂ разряда характеризуются сравнительно небольшими токами эмиссии $j_s < 10 \text{ A/cm}^2$, что весьма облегчает их практическую реализацию. Это иллюстрируется рис. 2, где приведены зависимости φ_1 , φ_2 , U и j от j_s . Видно, что типичный НВ режим, в котором $\varphi_1 < E_d/q$ (E_d — порог прямой диссоциации H₂ электронным ударом), реализуется в интервале умеренных значений тока эмиссии катода $5 < j_s < 10 \text{ A/cm}^2$. Что касается нужной колебательной накачки молекул H₂ на высоких колебательных уровнях, то теперь она достигается не только в разряде, но также за счет последующего увеличения концентрации N_v колебательно-возбужденных молекул при соответствующей организации течения в канале.

Вследствие достаточно малой скорости V_0 течения газа в разрядной зоне расчет НВ разряда проводился по методике, разработанной для газоразрядного промежутка с покоящейся плазмой. Вместе с тем следует проанализировать два обстоятельства, специфические для разряда в движущейся плазме. Во-первых, это — относительно большое время колебательной релаксации молекул, что в ряде случаев приводит к сравнительно медленному формированию КФР $f_v^{(0)}$ молекул H₂ в разряде. Для учета этого обстоятельства при расчетных параметрах плазмы, характерных для рассматриваемого цезий-водородного разряда, рассчитывалось установление КФР молекул. Методика расчета изложена в [15]. Дополнительно к [15] в настоящих расчетах в процессе колебательной релаксации учитывалась зависимость от времени сравнительно медленно устанавливающихся концентраций атомов водорода N_H и отрицательных ионов N_{H^-} . На рис. 3 результаты расчетов представлены в виде отношений текущей КФР $f_v(t)$ к ее установившемуся в разряде значению $f_v^{(0)} \equiv f_v(\infty)$. Расчеты выполнены для двух значений поступательной температуры T_0 газа в разряде. Видно, что характер колебательной релаксации зависит от T_0 (ср. рис. 3, *a* и *b*). При более высокой температуре T_0 на зависимостях $f_v(t)/f_v(\infty)$ появляются характерные максимумы, свидетельствующие о немономонном характере релаксации заселенностей $N_v(t)$ верхних уровней к своему установившемуся значению $N_v^{(0)} \equiv N_v(\infty)$. Эти немономонности связаны с $v-t$ -обменом, который при повышенной температуре T_0 газа проявляется сильнее и начинает существенно влиять на заселенности верхних колебательных уровней, заметно уменьшая их в конце процесса колебательной релаксации. Отметим, что по этой причине при более высокой температуре газа ($T_0 = 0.08 \text{ eV}$) установившееся значение заселенностей $N_v^{(0)}$ на верхних колебательных уровнях, а вместе с ними и концентрации атомов $N_H^{(0)}$ оказываются заметно ниже, чем при низкой температуре ($T_0 = 0.026 \text{ eV}$). Время полной колебательной релакса-

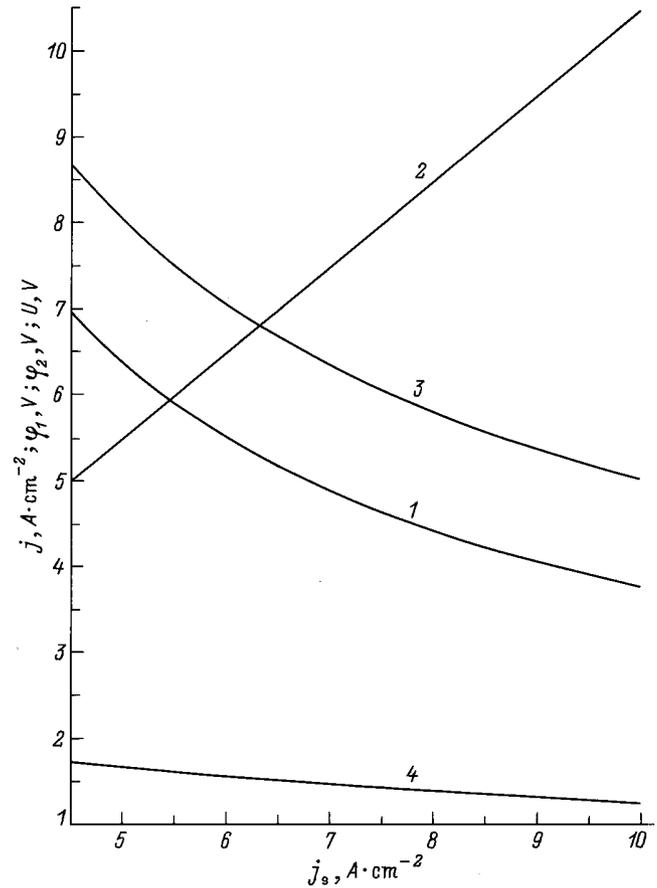


Рис. 2. Зависимость напряжения, тока разряда и приэлектродных потенциальных барьеров в лэнгмюровских слоях от тока эмиссии катода: 1 — U , 2 — j , 3 — φ_1 , 4 — φ_2 . Параметры разряда: $L = 0.3 \text{ cm}$, $h_1 > 1 \text{ cm}$, $N_{H_2}^{(0)} = 3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $N_H^{(0)} = 1.8 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, $T_e = 0.65 \text{ eV}$, $N_{Cs}^{(0)} = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, $n_e = 3.26 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, $N_{H^-}^{(0)} = 3.8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$, $\langle E_v \rangle = 0.335 \text{ eV}$, $T_v = 0.55 \text{ eV}$.

ции в обоих примерах составляет $\tau_v^{(0)} \cong 15 \mu\text{s}$, а соответствующая длина полной колебательной релаксации $l_v^{(0)} = V_0 \tau_v^{(0)} \cong 1 \text{ cm}$.

Во-вторых, специфика разряда в движущейся плазме проявляется в довольно медленном установлении поступательной температуры T_0 газа в разряде. Это обстоятельство существенно, поскольку, как указывалось выше, поступательная температура T_0 заметно влияет на процесс колебательной релаксации и характер установившегося колебательного распределения в разряде. В рассматриваемых условиях разогрев газа в разрядном промежутке связан в основном не с тепловыделением в плазме разряда (при упругих столкновениях электронов с тяжелыми частицами или при $v-t$ - и нерезонансном $v-v$ -обмене), а с контактом газа с горячим эмиттером, т.е. с образованием вблизи эмиттера расширяющегося теплового пограничного слоя. Оценивая длину h_T эмиттера, при которой толщина δ_T теплового пограничного слоя сравняется с межэлектродным расстояни-

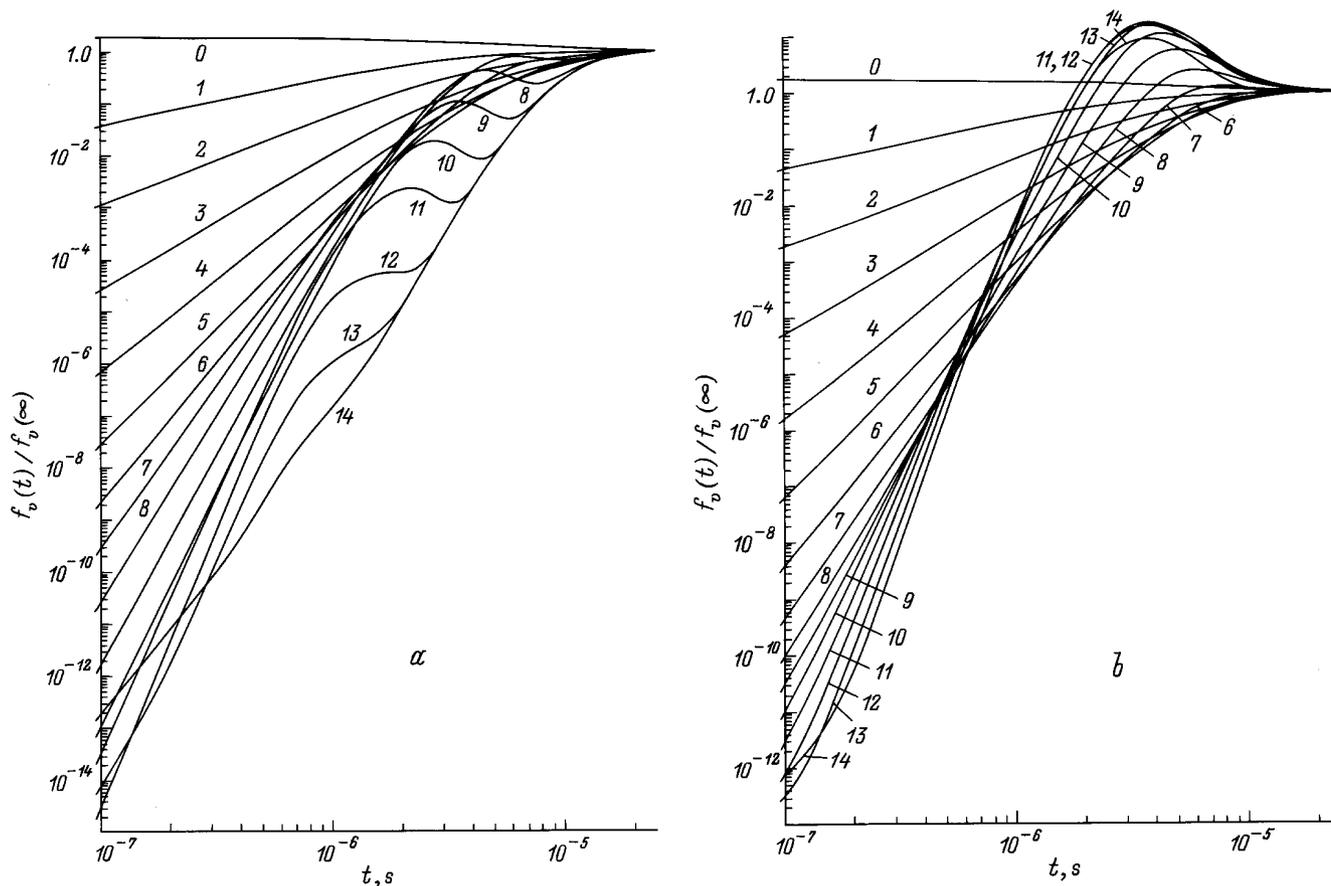


Рис. 3. Колебательная релаксация молекул H_2 в плазме низковольтного разряда (на кривых указаны номера колебательных уровней): $N_{H_2}^{(0)} = 3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $N_{Cs}^{(0)} = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, $T_e = 0.8 \text{ eV}$, $n_e = 5.8 \cdot 10^{13}$ (a), $5.4 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (b); $N_H^{(0)} = 7.8 \cdot 10^{14}$ (a), $3.3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ (b); $N_{H^-}^{(0)} = 6.6 \cdot 10^{12}$ (a), $7 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ (b); $T_0 = 0.026$ (a), 0.08 eV (b).

ем L [16], получаем $h_T = \theta \cdot Pr \cdot R_0 L$, где $Pr = \eta_0 c_p / \kappa_0$ — число Прандтля; $R_0 = \rho_0 L V_0 / \eta_0$ — число Рейнольдса, рассчитанное по параметрам потока в разрядной зоне (κ_0 , η_0 и ρ_0 — теплопроводность, вязкость и плотность водорода в газоразрядном промежутке; c_p — удельная теплоемкость при постоянном давлении); $\theta \sim 0.1$ — численный множитель. В результате при типичных параметрах разряда и течения, рассматриваемых здесь, температура T_0 газа, характерная для стационарного разряда, устанавливается в разрядной зоне на расстоянии $h_T \cong 0.2 \text{ cm}$, т.е. быстрее, чем КФР. Остальные времена и соответствующие характерные длины (максвеллизации электронов, ионизации атомов Cs [17] и др.) оказываются заметно меньше, чем рассмотренные выше. Таким образом, для того чтобы в разрядной зоне плазма полностью успела срелаксировать к состоянию, характерному для стационарного НВ разряда, в рассматриваемых условиях длина разрядной зоны должна удовлетворять условию $h_1 > 1 \text{ cm}$. Это условие предполагается ниже выполненным.

Для дальнейшего существенно задание температуры T газа в канале, т.е. в секции II. Поскольку вероятности заселения высоковозбужденных колебательных уровней

за счет нерезонансного $v-v$ -обмена существенно увеличиваются (по сравнению с соответствующими вероятностями колебательного девозбуждения) при понижении поступательной температуры T , целесообразно, чтобы температура газа в канале была достаточно низкой. В конкретных расчетах мы будем полагать, что стенки канала находятся при комнатной температуре, а температура T газа в канале несколько превышает комнатную, что приближенно учитывает некоторый подогрев газа в канале при $v-t$ - и нерезонансном $v-v$ -обмене. Ниже в большинстве расчетов $T = 0.03 - 0.04 \text{ eV}$. Поскольку длина h_T , на которой релаксирует газовая температура, весьма мала по сравнению с протяженностью h_2 канала, то мы будем пренебрегать изменением давления p на длине $\sim h_T$ (рис. 1, b) и будем вводить скачок газовой температуры $\Delta T = T_0 - T$ на границе ($x = 0$) газоразрядного промежутка (I) с каналом (II). При непрерывных на границе давлении p и потоках нейтралов это приводит к соответствующим скачкам концентрации N_{H_2} и N_H и скорости течения V на границе. При этом колебательная функция распределения f_v и степень диссоциации водорода остаются непрерывными. Значения N_{H_2} , N_H и V в разрядной зоне, т.е. до скачка, обозначаются

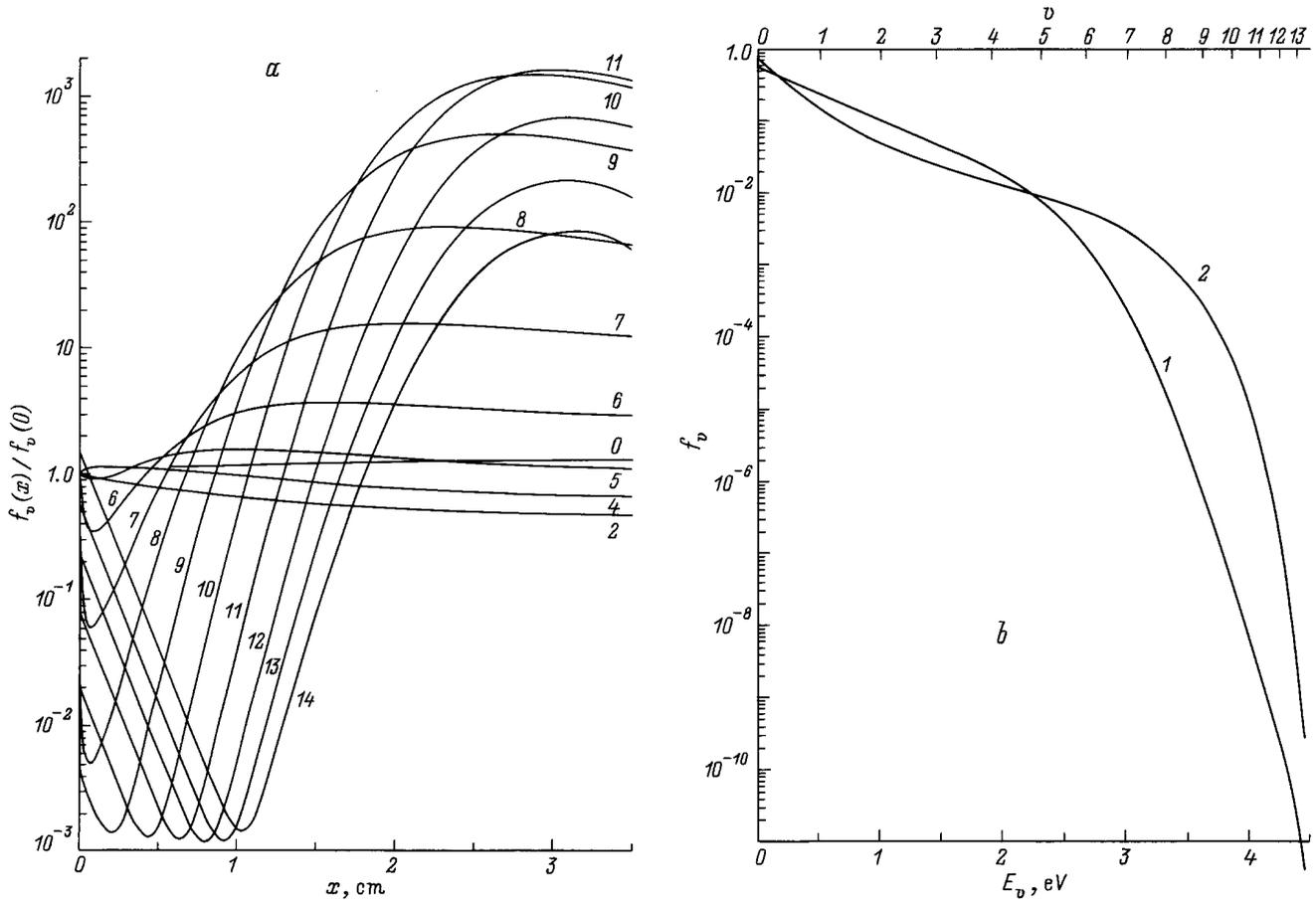


Рис. 4. Изменение колебательной функции распределения при течении водорода в канале: *a* — по длине канала (на кривых указаны номера колебательных уровней); *b* — колебательная функция распределения в начале и в конце канала: 1 — $f_v(0)$, 2 — $f_v(h_2)$; $h_2 = 3.5$ см; параметры разряда и температура газа в канале те же, что и на рис. 1, *b*.

как $N_{\text{H}_2}^{(0)}$, $N_{\text{H}}^{(0)}$ и V_0 . Соответствующие величины за скачком температуры обозначаются как $N_{\text{H}_2}(0)$, $N_{\text{H}}(0)$ и $V(0)$.

4. КФР молекул H_2 в канале секции II определялась из решения системы уравнений

$$\frac{d}{dx}(N_v V) = I_v^{(vv)}\{N_v\} + I_{vM}^{(vt)}\{N_v\} + I_{vA}^{(vt)}\{N_v\} + I_v^{(w)}\{N_v\} \quad (4)$$

$(v = 0, 1, 2, \dots, 14),$

где $N_v(x)$ — концентрация колебательно-возбужденных молекул в канале на уровне v .

Слагаемые в правой части (4) последовательно учитывают $v-v$ -обмен, $v-t$ -обмен с молекулами и атомами водорода и колебательную релаксацию молекул на стенках канала. Соответствующие выражения формулируются единообразно как для разрядной секции I, так и для канала II. Слагаемые, описывающие $v-v$ - и $v-t$ -обмен, записываются так же, как в [8,13].

Остановимся отдельно на слагаемых $I_v^{(w)}\{N_v\}$, описывающих взаимодействие молекул со стенками канала. В противоположность разрядной секции I, в канале II, где $e-v$ -обмен отсутствует, конкретный вид слагаемых

$I_v^{(w)}$ весьма существен, так как сильно влияет на формирующуюся там КФР $f_v(x)$. Учет потерь колебательно-возбужденных молекул на стенках удобно описывать путем введения соответствующего эффективного времени жизни τ_v , так что $I_v^{(w)}\{N_v\} = -N_v/\tau_v$. Для покоящегося газа, находящегося в зазоре с параллельными плоскими стенками, выражение для τ_v может быть записано по аналогии с [18] в виде

$$\tau_v = \frac{\Lambda^2}{D_{\text{sd}}} + \frac{L}{\bar{v}} \frac{2 - \gamma_v}{\gamma_v}. \quad (5)$$

Здесь $\Lambda = L/\pi$ — эффективная длина диффузии для плоской геометрии; $D_{\text{sd}} = (3\pi/16\sqrt{2})v l_{\text{H}_2}$ — коэффициент самодиффузии молекул H_2 [19]; $\bar{v} = \sqrt{8kT/\pi M_{\text{H}_2}}$; $l_{\text{H}_2} = 1/N_{\text{H}_2} \bar{\sigma}^{(1)}$ — длина свободного пробега молекулы H_2 , возбужденной на уровень v . Первое слагаемое в правой части (5) существенно превышает второе, если $\gamma_v \gg (3\pi^2/8\sqrt{2})(l_{\text{H}_2}/\Lambda)$. В этом случае $\tau_v = \tau_d \equiv \Lambda^2/D_{\text{sd}}$, где τ_d — время диффузионного ухода молекулы на стенку, которое не зависит от γ_v . Так как $l_{\text{H}_2}/\Lambda \ll 1$, то данный предел во всяком случае реализуется при $\gamma_v \sim 1$. В противоположном предельном

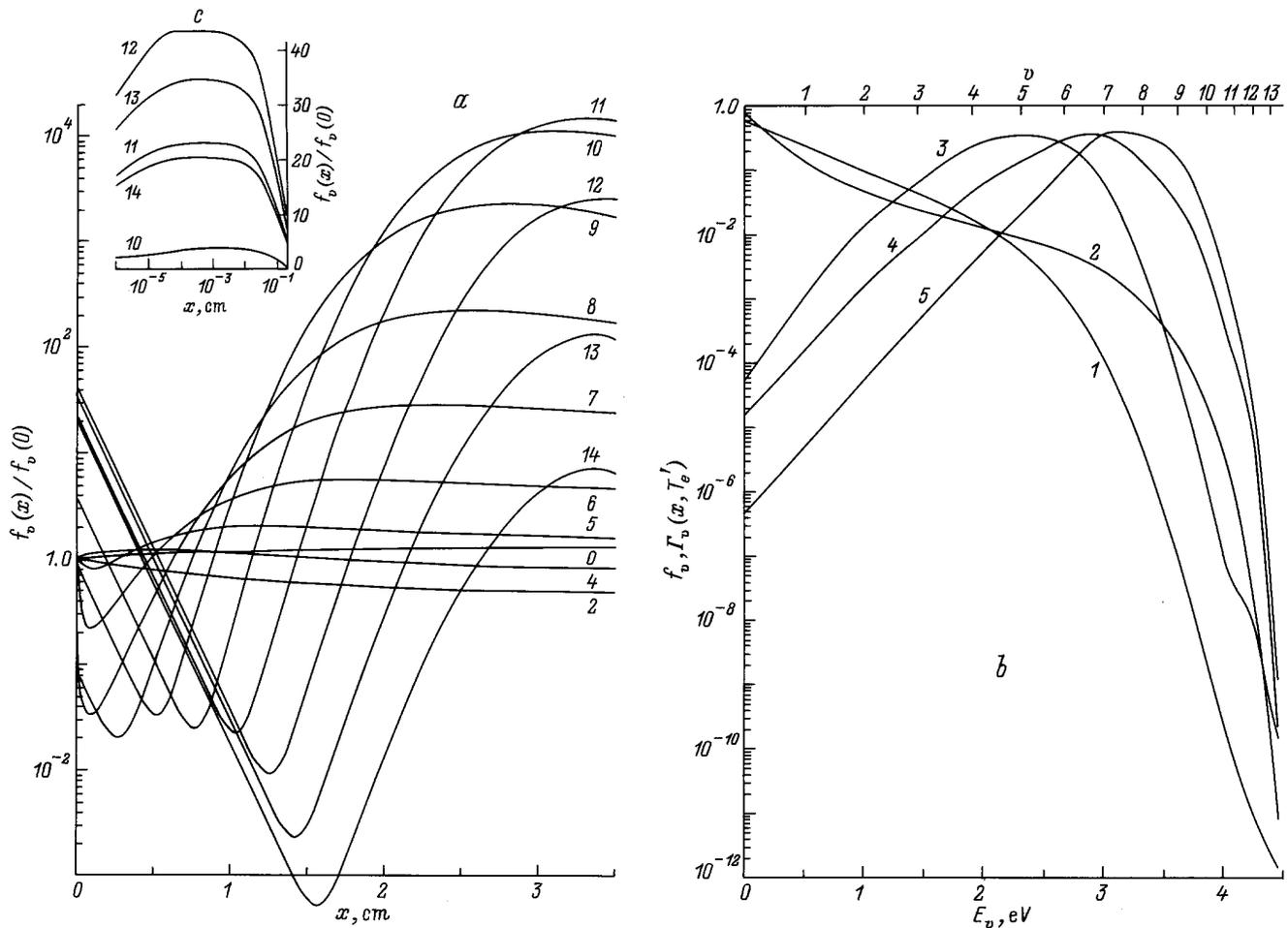


Рис. 5. То же, что на рис. 4: *a* — по длине канала (у кривых — номера колебательных уровней); *b* — колебательные функции распределения и относительный вклад различных уровней в процесс диссоциативного прилипания в начале и в конце канала: 1 — $f_v(0)$, 2 — $f_v(h_2)$, 3 — $\Gamma_v(0, 0.7 \text{ eV})$, 4 — $\Gamma_v(h_2, 0.7 \text{ eV})$, 5 — $\Gamma_v(h_2, 0.2 \text{ eV})$; *c* — начальный этап колебательной релаксации в канале: параметры разрядной плазмы те же, что для рис. 2; температура газа в разряде $T_0 = 0.06 \text{ eV}$, в канале $T = 0.03 \text{ eV}$; $j_s = 4.5 \text{ A/cm}^2$, $j \cong 5 \text{ A/cm}^2$, $U \cong 7.9 \text{ V}$, $\varphi_1 = 8.65 \text{ V}$, $\varphi_2 = 0.75 \text{ V}$.

случае, когда γ_v весьма мало ($\gamma_v \ll (3\pi^2/8\sqrt{2})(I_{H_2}/\Lambda)$), $\tau_v = 2L/(\gamma_v v)$ и время жизни существенно превышает время диффузии τ_d . В Приложении показано, что при выполнении определенных условий выражение типа $I_v^{(w)}\{N_v\} = -N_v/\tau_v$, в котором τ_v определяется из (5), правильно описывает уход частиц (молекул, атомов и т.п.) из потока газа на стенки. Поскольку второе слагаемое в (5) в пределе весьма малых γ_v довольно очевидно и его использование применительно к покоящемуся или движущемуся газу не требует обоснования, то рассмотрение проведено в Приложении на примере вычисления потерь частиц из потока в противоположном, диффузионном пределе, когда $\gamma_v \sim 1$ и $\tau = \tau_d$. Конкретные расчеты выполнены на примере вычисления потерь атомарного водорода, диффундирующего из потока на стенки канала в секции II. Коэффициент диффузии D_{12} атомарного водорода в молекулярном заимствован из [20].

5. Остановимся на вычислении вероятностей γ_v поверхностной дезактивации молекул на стенках канала. Расчеты, выполненные в настоящей работе как с учетом, так и без учета поверхностной дезактивации молекул H_2 с использованием выражения (5), показывают сильную зависимость КФР $f_v(h_2)$ молекул H_2 на высоких колебательных уровнях от γ_v . Это приводит к необходимости учета конкретного механизма взаимодействия молекул H_2 со стенками при теоретическом рассмотрении течения колебательно-возбужденного водорода в канале.

Естественно, что для уменьшения потерь колебательно-возбужденных молекул на стенках необходимо, чтобы стенки канала были выполнены из материала с возможно большим значением потенциального барьера для адсорбции молекулярного водорода на поверхности. Ниже в качестве примера такого материала рассматривается медь, для которой найдены значения барьера в интервале 0.8–1.5 eV [21–24]. Наиболее полные известные нам

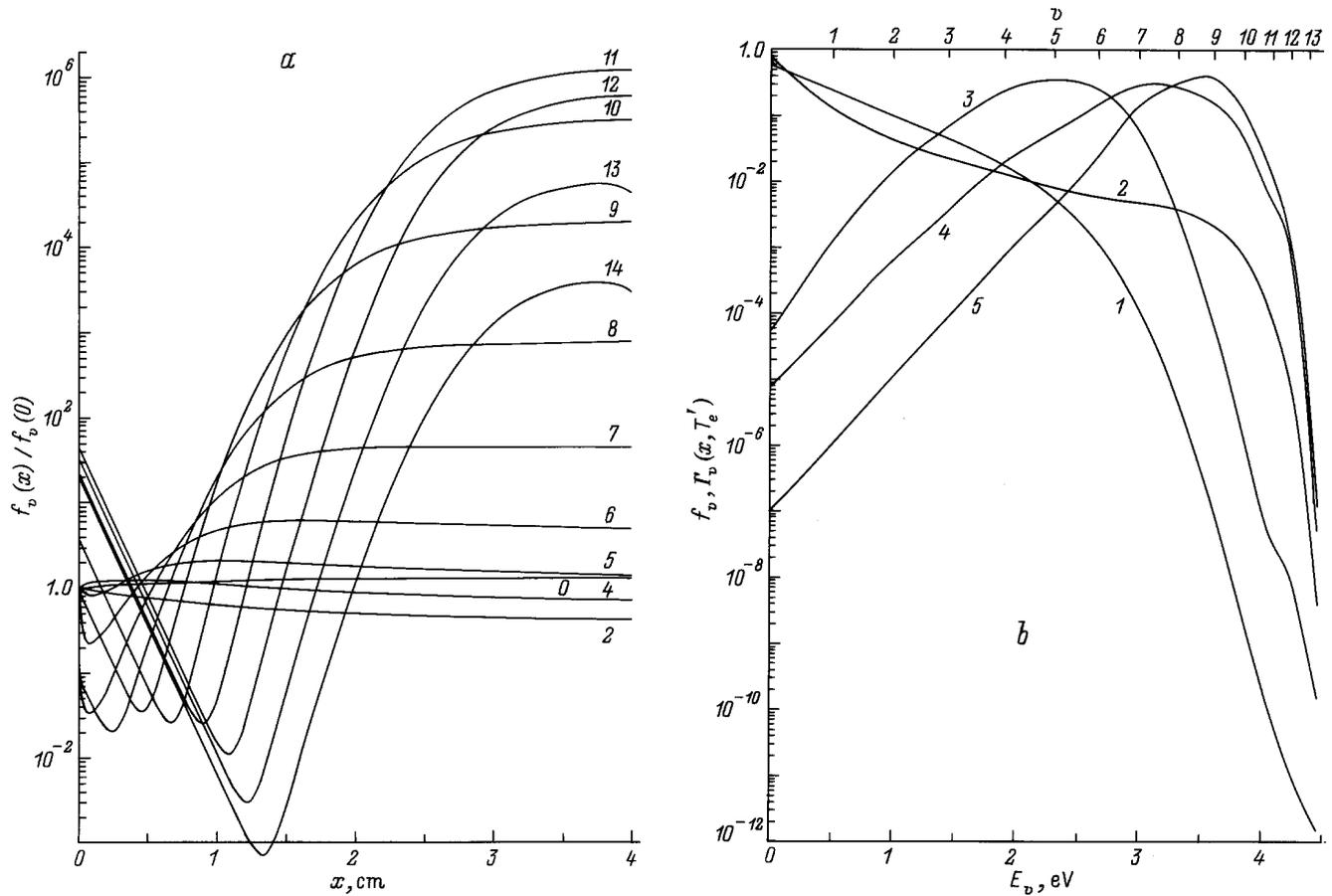


Рис. 6. То же, что на рис. 5, но без учета колебательной дезактивации молекул на стенках канала.

данные о вероятностях поверхностной дезактивации молекул H_2 на меди содержатся в [23]. В [23] показано, что для рассматриваемых в настоящей работе сравнительно малых кинетических энергий ($E_{kin} < 0.1$ eV) взаимодействующих со стенкой молекул H_2 поверхностная дезактивация связана с туннелированием молекулы H_2 сквозь поверхностный потенциал барьер, и определена вероятность такого туннелирования $w_v(E_{kin})$ как функция колебательного квантового числа v для $v \leq 10$ и кинетической энергии E_{kin} молекулы для $E_{kin} > 0.1$ eV. В настоящей работе в расчетах полагалось $\gamma_v = w_v(E_{kin})$. При этом данные [23] экстраполировались в область колебательных чисел $v = 11-14$. Поскольку экстраполяция данных [23] в область $E_{kin} < 0.1$ eV затруднительна, то в настоящей работе в расчетах использовались значения w_v , рассчитанные для $E_{kin} = 0.1$ eV, что для ряда значений v заметно увеличивает вероятность w_v поверхностной дезактивации молекул. Предполагалось, что при стационарном течении газа взаимодействие со стенкой не меняет полное число молекул H_2 в потоке, т.е. уменьшение числа колебательно-возбужденных молекул при их релаксации на стенке компенсируется десорбцией со стенки молекул в основном состоянии

($v = 0$). В [23] получены две совокупности данных, соответствующие двум различным ориентациям оси молекулы по отношению к поверхности (параллельно и перпендикулярно поверхности) при нахождении молекулы на вершине потенциального барьера на границе твердое тело–газ. Расчеты показали, что результаты слабо зависят от ориентации молекулы. Нами использовались данные, относящиеся к тому случаю, когда молекула, находящаяся на вершине потенциального барьера, ориентирована перпендикулярно поверхности.

6. Рассмотрим результаты расчетов. В расчетах одновременно с определением КФР молекул H_2 из системы уравнений (4) находилось распределение концентрации $N_H(x)$ атомов водорода по длине канала (см. Приложение), которое в соответствии с (П8) определялось из уравнения

$$\frac{d}{dx}(N_H V) = -N_H / \tau_d^{(H)}. \quad (6)$$

При $x = 0$ в качестве начальных условий к (4) и (6) использовались известная КФР $f_v^{(0)}$ и известные концентрации молекул $N_{H_2}(0) = N_{H_2}^{(0)} T_0 / T$ и атомов

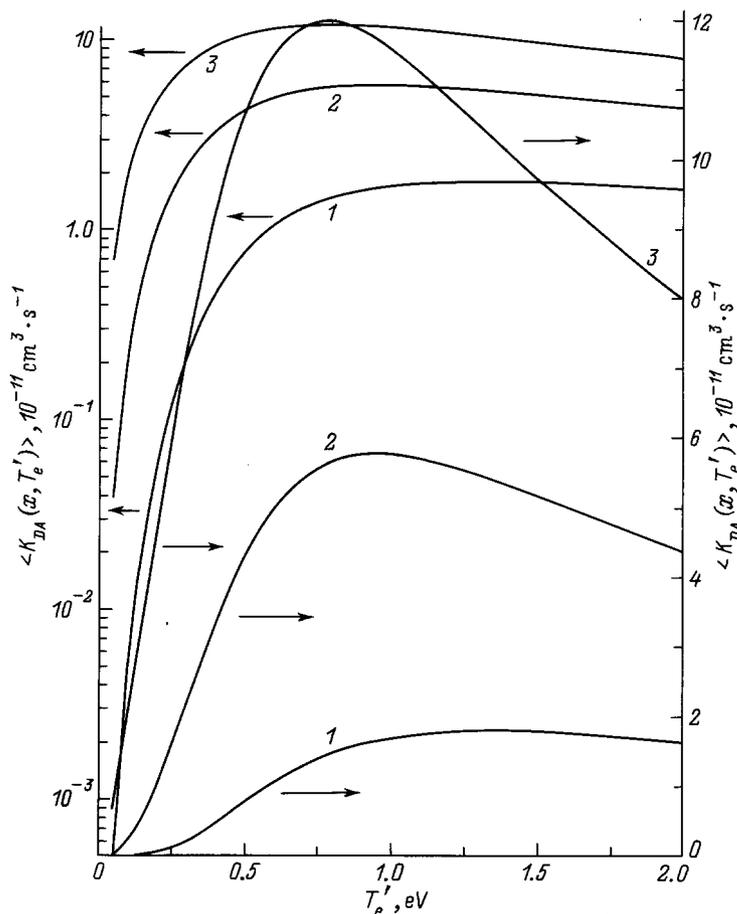


Рис. 7. Зависимость эффективной константы $\langle K_{DA}(x, T_e') \rangle$ диссоциативного прилипания от температуры T_e' электронов (параметры разряда и течение в канале те же, что на рис. 5 и 6): 1 — для $x = 0$; 2, 3 — для $x = h_2$; 2 — расчет с учетом колебательной дезактивации молекул водорода на стенках канала; 3 — без учета. Шкалы на вертикальных осях отличаются только масштабом.

$N_H(0) = N_H^{(0)} T_0 / T$, установившиеся за скачком температуры газа, при входе в канал. Результаты расчетов показаны на рис. 1, b и 4–6.

На рис. 4, a–6, a приведено отношение КФР $f_v(x)$, которая образуется при течении водорода в канале, к начальной КФР $f_v(0) = f_v^{(0)}$, образующейся в разряде. Видно, что процесс установления КФР $f_v(x)$ в канале можно разделить на два этапа. На первом этапе происходит резкое уменьшение заселенностей высоковозбужденных колебательных состояний, связанное с быстрой ν - t -релаксацией на атомах водорода, что является следствием весьма больших констант ν - t -обмена молекул H_2 с атомами H. На втором этапе происходит весьма сильное (для некоторых уровней на много порядков) увеличение заселенностей за счет колебательной накачки при нерезонансном ν - ν -обмене в охлажденном газе. Отметим, что увеличение заселенностей колебательно-возбужденных молекул H_2 при ν - ν -обмене наблюдалось ранее в работах [25–27] в послесвечении разрядов, содержащих колебательно-возбужденный водород. На рис. 5, c в увеличенном масштабе отдельно показан начальный этап деформации КФР молекул на входе в канал.

Рис. 5, c в основном относится к нескольким верхним уровням и иллюстрирует первоначальное возрастание (ср. с рис. 5, a) заселенностей самых верхних уровней за счет их рекомбинационного заселения при понижении температуры газа на величину ΔT .

Результаты, приведенные на рис. 4 и 5, получены с учетом колебательной дезактивации молекул H_2 на стенках канала. Результаты, приведенные на рис. 6, получены для тех же параметров разряда и течения, что на рис. 5, но без учета колебательной дезактивации на стенках, т.е. при $\gamma_\nu = 0$. Сравнение рис. 5, a и 6, a показывает, что в рассматриваемом примере учет дезактивации молекул H_2 на стенках канала примерно на два порядка уменьшает КФР $f_v(h_2)$ для тех колебательных уровней, заселенности которых наиболее интенсивно усиливаются в канале. В целом ряде других примеров отличие между собой результатов расчетов, учитывающих и не учитывающих поверхностную дезактивацию, значительно меньше. Например, при параметрах расчетов, соответствующих рис. 4, это отличие не превышает порядка.

На рис. 4, b, 6, b приведены начальные $f_v(0) = f_v^{(0)}$ и конечные $f_v(h_2)$ КФР молекул. На рис. 5, b и 6, b кривые

этого отложены величины

$$\Gamma_v(h, T'_e) = \frac{f_v(h)K_v(T'_e)}{\langle K_{DA}(h, T'_e) \rangle}, \quad (7)$$

где

$$\langle K_{DA}(h, T'_e) \rangle = \sum_v f_v(h)K_v(T'_e) \quad (8)$$

— эффективная константа ДП, дающая полную скорость образования ионов H^- за счет прилипания электронов ко всем колебательным уровням.

Величина Γ_v представляет собой нормированную на единицу вероятность образования иона H^- в процессе ДП электронов, имеющих температуру T'_e , к молекулам, возбужденным на уровень v и имеющим КФР $f_v(h)$. Здесь $K_v(T'_e)$ — соответствующая константа ДП [6], h — длина канала. Величина Γ_v характеризует относительный вклад различных колебательных уровней в процесс ДП. Предполагается, что этот процесс реализуется в камере, куда истекает колебательно накачанный водород и где электроны распределены по Максвеллу с температурой T'_e . Видно, как после прохождения канала максимум Γ_v сдвигается в область больших v , т.е. в область больших значений констант ДП [6]. В настоящей работе не проводилась оптимизация параметров канала и течения с целью получения наибольшего усиления эффективной константы $\langle K_{DA}(h, T'_e) \rangle$ в результате прохождения канала колебательно накачанным водородом. Этому будет посвящено специальное сообщение. Здесь мы рассмотрим лишь вопрос о выборе оптимальной для диссоциативного прилипания температуры T'_e электронов в камере, куда истекает колебательно накачанный водород. На рис. 7 (ср. с рис. 8 в [4]) эффективная константа ДП отложена как функция T'_e для нескольких вариантов расчета: без усиления в канале (кривая 1) и после "усиления" колебательного распределения в канале (кривые 2 и 3 соответственно с учетом и без учета колебательной дезактивации молекул на стенках канала). Видно, что наибольшее усиление величины $\langle K_{DA} \rangle$ получается при низкой температуре T'_e , когда основной вклад в ДП вносят сравнительно высокие колебательные уровни ($v \cong 7 - 9$), заселенности которых заметно усиливаются вследствие колебательной накачки в канале. Наиболее сильное увеличение колебательной накачки молекул H_2 в канале достигается на уровнях $v \cong 9 - 12$. Хотя эти уровни уже вносят относительно небольшой вклад в ДП, их колебательная накачка может быть весьма существенна в целом ряде плазмохимических приложений.

Таким образом, показано, что при соответствующей организации течения колебательно накачанного водорода в канале может быть получено весьма существенное увеличение заселенностей колебательных состояний молекулы водорода в достаточно высокой части колебательного спектра.

Работа выполнена при поддержке гранта INTAS № 94-316.

Авторы благодарны Ю.З. Ионику и С.М. Школьнику за полезное обсуждение.

Приложение

Диффузия атомов H в потоке молекулярного водорода описывается уравнением

$$\mathbf{V} \cdot \nabla N_H - D_{12} \nabla^2 N_H = 0, \quad (П1)$$

где $\mathbf{V} \equiv \mathbf{V}(0)$ — скорость потока на входе в канал сечения II .

В (П1) пренебрегается рекомбинацией атомарного водорода в молекулу H_2 внутри канала [28] и изменением скорости течения \mathbf{V} на начальном участке канала. Граничные условия к уравнению (П1) соответствуют заданию начального распределения $N_H(0, y)$ атомов на входе в канал и равенству нулю концентрации N_H на поглощающих стенках и на бесконечности

$$N_H(x, 0) = N_H(x, L) = 0, \quad N_H(\infty, y) = 0. \quad (П2), (П3)$$

Разлагая $N_H(x, y)$ в ряд Фурье

$$N_H(x, y) = \sum_{k=1}^{\infty} \tilde{N}_k(x) \sin \frac{\pi k y}{L} \quad (П4)$$

и подставляя (П4) в (П1), находим

$$N_H(x, y) = \sum_{k=1}^{\infty} \tilde{N}_k(0) \times \exp \left\{ - \left[\sqrt{1 + (\delta k)^2} - 1 \right] \frac{x}{\delta \Lambda} \right\} \sin \frac{\pi k y}{\Lambda}, \quad (П5)$$

где $\delta = 2\Lambda/V\tau_d^{(H)}$, $\tau_d^{(H)} = \Lambda^2/D_{12}$.

Из (П5) определяем усредненную по сечению канала концентрацию $\langle N_H \rangle$ атомарного водорода

$$\langle N_H \rangle = \sum_{k=1}^{\infty} \tilde{N}_k(0) \exp \left\{ - \left[\sqrt{1 + (\delta k)^2} - 1 \right] \frac{x}{\delta \Lambda} \right\} \times \frac{1 + (-1)^{k+1}}{\pi k}. \quad (П6)$$

В рассматриваемых здесь условиях $\delta < 1$ ($\delta \cong 0.5$) и существенны такие x , когда $x \sim V\tau_d^{(H)}$, т.е. $\Lambda/x \cong \delta/2$. Тогда в сумме по k в (П6) достаточно учесть лишь слагаемое с $k = 1$. Это дает

$$\langle N_H \rangle \cong \frac{2\tilde{N}_1(0)}{\pi} \exp \left[- \frac{x}{V \cdot \tau_d^{(H)}} \right] \quad (П7)$$

и

$$\frac{dI_H}{dx} = - \frac{\langle N_H \rangle}{\tau_d^{(H)}}, \quad (П8)$$

где $I_H = V \langle N_H \rangle$ — усредненная по сечению плотность потока атомарного водорода.

Из (П8) видно, что введенные выше величины Λ и $\tau_d^{(H)}$ действительно имеют смысл соответственно эффективной длины и эффективного времени диффузии атомарного водорода из ядра потока на стенку канала. При выполнении условия $2\Lambda < V\tau_d$ уравнение типа (П8) приближенно описывает потери на стенках канала и других примесей, присутствующих в потоке.

Список литературы

- [1] *Bacal M., Hamilton G.W.* // Phys. Rev. Lett. 1979. Vol. 42. N 23. P. 1538–1540.
- [2] *Hiskes J.R.* // J. Appl. Phys. 1980. Vol. 51. N 9. P. 4592–4594.
- [3] *Bacal M.* // Nucl. Instr. Meth. Phys. Rev. 1989. Vol. B37/38. P. 28–32.
- [4] *Skinner D.A., Bruneteau A.M., Berlemont P., Courteille C.* et al. // Phys. Rev. E. 1993. Vol. 48. N 3. P. 2122–2132.
- [5] *Bacal M., Skinner D.A.* // Comments. At. Mol. Phys. 1990. Vol. 23. N 6. P. 283–299.
- [6] *Wadehra J.M.* // Phys. Rev. A. 1984. Vol. 29. N 1. P. 106–110.
- [7] *Бакит Ф.Г., Иванов В.Г.* // ЖТФ. 1992. Т. 62. Вып. 2. С. 195–200.
- [8] *Бакит Ф.Г., Елизаров Л.И., Иванов В.Г.* // Физика плазмы. 1990. Т. 16. N 7. С. 854–861.
- [9] *Vaksht F.G., Djuzhev G.A., Elizarov L.I.* et al. // Plasma Sources, Sci., Technol. 1994. Vol. 3. N 2. P. 88–98.
- [10] *Бакит Ф.Г., Иванов В.Г.* // Письма в ЖТФ. 1997. Т. 23. Вып. 9. С. 59–63.
- [11] *Дэшман С.* Научные основы вакуумной техники. М.: Мир, 1964. 714 с.
- [12] *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Гидродинамика. М.: Наука, 1986.
- [13] *Бакит Ф.Г., Елизаров Л.И., Иванов В.Г., Юрьев В.Г.* // Физика плазмы. 1988. Т. 14. № 1. С. 91–97.
- [14] *Бакит Ф.Г., Иванов В.Г.* // Физика плазмы. 1986. Т. 12. № 3. С. 286–293.
- [15] *Бакит Ф.Г., Иванов В.Г.* // ЖТФ. 1996. Т. 66. Вып. 9. С. 58–63.
- [16] *Шлихтинг Г.* Теория пограничного слоя. М.: Наука, 1974. 711 с.
- [17] *Бакит Ф.Г., Дюзев Г.А., Марциновский А.М.* и др. Термоэмиссионные преобразователи и низкотемпературная плазма. М.: Наука, 1973. 480 с.
- [18] *Ионих Ю.З.* // Опт. и спектр. 1981. Т. 51. № 1. С. 76–83.
- [19] *Елецкий А.В., Палкина Л.А., Смирнов Б.М.* Явления переноса в слабоионизованной плазме. М.: Атомиздат, 1975. 336 с.
- [20] *Blyth G.* et al. // J. Chem. Soc. Faraday Trans. I. 1987. Vol. 83. N 3. P. 751–757.
- [21] *Madhavan P., Whitten J.L.* // J. Chem. Phys. 1982. Vol. 77. N 5. P. 2673–2683.
- [22] *Harris J., Anderson S.* // Phys. Rev. Lett. 1985. Vol. 55. N 15. P. 1583–1586.
- [23] *Sacciatore M., Billing G.D.* // Surf. Sci. 1990. Vol. 232. N 1/2. P. 35–50.
- [24] *Reitner C.T., Auerbach D.J., Michelsen H.A.* // Phys. Rev. Lett. 1992. Vol. 68. N 8. P. 1164–1167.
- [25] *Gorse C., Capitelli M., Bacal M.* et al. // Chem. Phys. 1987. Vol. 117. P. 172–195.
- [26] *Бакит Ф.Г., Елизаров Л.И., Иванов В.Г.* и др. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. Вып. 22. С.39–43.
- [27] *Бакит Ф.Г., Иванов В.Г., Никитин А.Г., Школьник С.М.* // Письма в ЖТФ. 1994. Т. 20. Вып. 22. С. 84–89.
- [28] *Бакит Ф.Г.* // ЖТФ. 1982. Т. 52. Вып. 1. С. 3–9.