

04;12

## Особенности распада плазмы послесвечения импульсного разряда низкого давления в кислороде

© А.А. Кудрявцев, А.Л. Куранов, В.Г. Мишаков, Т.Л. Ткаченко, И.Н. Скобло, М.О. Чайка

Санкт-Петербургский государственный университет,  
198904 Санкт-Петербург, Россия  
E-mail: akud@ak2138.spb.edu

(Поступило в Редакцию 24 февраля 2000 г.)

Выполнены исследования в слабоионизованной плазме послесвечения импульсного разряда в кислороде низкого давления (0.05–0.15 Torr). Проведена зондовая диагностика и выполнены измерения проводимости плазмы путем подачи дополнительного зондирующего импульса тока в нужный момент послесвечения. Для дополнительного контроля за поведением концентраций заряженных частиц проведены также измерения интенсивностей свечения спектральных линий. Измерения временного поведения концентрации электронов в плазме послесвечения кислорода, выполненные различными методами, подтверждают сделанный ранее вывод о обострении их диффузионного ухода из объема и образовании ион-ионной плазмы. Показана также возможность реализации противоположного предельного случая — отлипательного режима распада с ростом концентрации электронов до концентрации положительных ионов на первой стадии и переходом к электрон-ионной плазме на второй стадии.

В последние годы возрос интерес к исследованию пространственных и временных характеристик импульсной плазмы электроотрицательных газов. В значительной мере это связано с экспериментально выявленными возможностями существенного улучшения работы различных приборов и устройств при их переходе к импульсному питанию. Примерами могут служить ионные источники [1], реакторы для плазменного травления [2] и другие устройства современных плазменных технологий [3]. Путем варьирования длительности активной фазы и скважности разряда, вкладываемой мощности и других характеристик импульсного режима удается достаточно гибко управлять параметрами различных компонент плазмы. При этом были обнаружены довольно неожиданные эффекты и явления. Например, во многих таких исследованиях сообщалось, что на начальных стадиях распада на фоне монотонного уменьшения концентраций положительных ионов  $N_p$  и электронов  $N_e$  может наблюдаться абсолютный рост концентрации отрицательных ионов  $N_n$  [1–4]. Основанием для этого являлся регистрируемый резкий рост потока отрицательных ионов на стенку при масс-спектрометрических измерениях или рост зондового тока при лазерном фотоотрыве, который пропорционален отношению концентраций  $N_n/N_e$ . Эти эффекты связываются в литературе с увеличением скорости процессов образования отрицательных ионов по отношению к их гибели за счет столкновений в объеме в послесвечении в отличие от их равенства в активной фазе разряда.

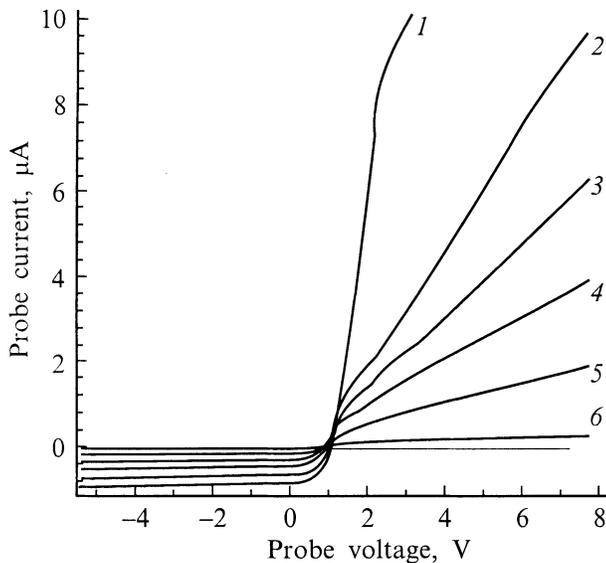
Подобная точка зрения была подвергнута критике в [5], где было предложено альтернативное объяснение, связанное со спецификой диффузионной гибели заряженных частиц в плазме электроотрицательных газов [7]. Как было показано ранее в [6,7], даже в простейшем случае, когда плазмохимическими процессами можно

пренебречь, т.е. когда диффузионный распад простой электроположительной плазмы имеет обычный экспоненциальный характер, в электроотрицательных газах могут наблюдаться две стадии распада. До тех пор пока  $N_n/N_e < b_e/b_n$  ( $b$  — соответствующие подвижности), плазма обедняется электронами и положительными ионами, а отрицательные ионы заперты в объеме самосогласованным радиальным полем и пристеночным скачком потенциала. Вторая стадия распада при  $N_n/N_e > b_e/b_n$  определяется ион-ионной амбиполярной диффузией при практически полном отсутствии электронов. Резкое изменение режима распада плазмы, согласующееся с такой картиной, наблюдалось экспериментально еще в [8] при малой начальной степени электроотрицательности  $\alpha_0 = N_n/N_e \ll 1$ . В [9] было установлено, что переход к ион-ионной плазме происходит с обострением, т.е. практически все электроны уходят из объема за конечное время  $t_0$ , определяемое главным образом величиной  $\alpha_0$ . Как показано в [9], при большой степени электроотрицательности  $\alpha_0 > 1$  этот уход происходит при относительно малом изменении концентрации положительных и отрицательных ионов. Поскольку это интересное явление имеет, по-видимому, достаточно общий и универсальный характер, то представляет интерес провести его дальнейшее исследование.

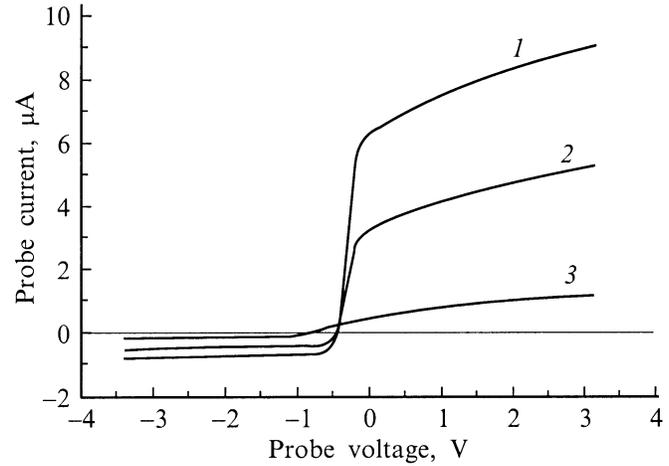
В данной работе продолжены исследования [9] плазмы послесвечения кислорода. Кроме зондовых выполнены также измерения проводимости плазмы путем подачи дополнительного зондирующего импульса тока в нужный момент послесвечения. Для дополнительного контроля за поведением концентраций заряженных частиц проведены также измерения интенсивностей свечения спектральных линий. Эксперименты выполнялись в паузах тока амплитудой  $i = 6 - 600$  mA импульсного разряда длительностью активной фазы  $50 \mu\text{s}$  с периодом

повторения 4 ms в кислороде в диапазоне давлений  $p = 0.04 - 0.15$  Торр. Использовалась стеклянная трубка радиусом  $R = 1.7$  см с холодными никелевыми электродами и впаянными подвижными электрическими зондами.

Измерительная схема позволяла регистрировать зондовые вольт-амперные характеристики (ВАХ) с временным разрешением 5–10  $\mu$ s. Вид и временные зависимости измеренных ВАХ аналогичны полученным ранее в [9] (рис. 1). Видно, что на начальной стадии распада плазмы зондовые характеристики имеют обычный вид, когда токи насыщения отрицательных частиц больше соответствующих токов положительных частиц  $i_{es} + i_{ns} \gg i_{ps}$ . Это связано с тем обстоятельством, что электронный ток насыщения  $i_{es} \gg i_{ns}$  даже при  $N_e < N_n$  в силу меньшей массы электронов  $m \ll M$  и соответственно их большей скорости. Затем к моменту  $t_0$  (для условий рис. 1  $t_0 \approx 600 \mu$ s) происходит существенное уменьшение тока отрицательных частиц, и при  $t > t_0$  величина  $i_{es} + i_{ns}$  становится сравнимой с  $i_{ps}$ . На второй стадии ( $t > t_0$ ) зондовые характеристики практически симметричные, что, естественно, было интерпретировано в [9] как образование ион-ионной (безэлектронной) плазмы. Другими словами, плазма на этой стадии должна состоять преимущественно из положительных и отрицательных ионов при исчезающе малой концентрации электронов. Отметим, что столь необычное поведение  $N_e$  в послесвечении не может наблюдаться в простой плазме без отрицательных ионов, поскольку там всегда  $N_e = N_p$  и соответственно  $i_{es} \gg i_{ps}$ . Контрольные измерения в послесвечении неона показывают, что, хотя абсолютные значения токов насыщения там и уменьшаются в процессе распада, как и следовало ожидать, отношение  $i_{es}/i_{ps} \gg 1$  в любой из регистрируемых моментов после-



**Рис. 1.** Зондовые ВАХ в послесвечении кислорода.  $p = 0.07$  Торр,  $i = 6$  mA. Время задержки,  $\mu$ s: 1 — 25, 2 — 125, 3 — 225, 4 — 325, 5 — 525, 6 — 625.



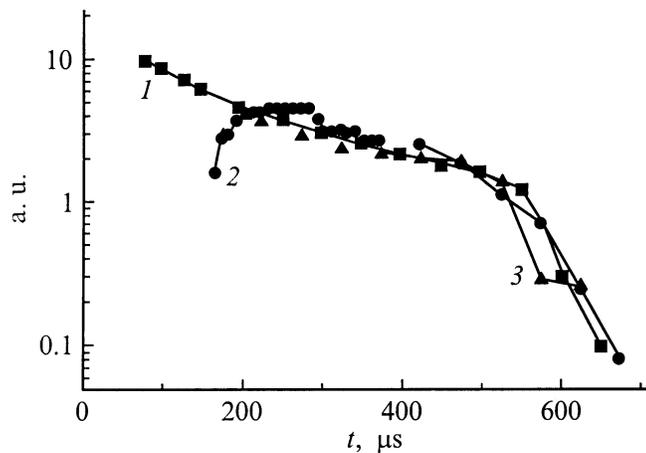
**Рис. 2.** Зондовые ВАХ в послесвечении неона.  $p = 0.07$  Торр,  $i = 6$  mA. Время задержки,  $\mu$ s: 1 — 225, 2 — 425, 3 — 845.

свечения (рис. 2). Поскольку величины токов насыщения пропорциональны концентрациям соответствующих компонент, то их зависимости, снятые при фиксированном потенциале зонда, позволяют судить о временном ходе концентраций положительных и отрицательных частиц. По зондовым ВАХ рис. 1, на рис. 3 представлены временные зависимости токов насыщения отрицательных  $i_{es} + i_{ns}$  и на рис. 4 — положительных  $i_{ps}$  частиц на зонд при потенциалах зонда соответственно  $\pm 3$  eV. Видно, что на первой стадии распада ток отрицательных частиц, определяемый электронами, терпит резкий излом в момент времени  $t_0 \approx 600 \mu$ s и становится близким к ионному току. Эти результаты указывают, что распад концентрации электронов представляет собой типичный режим с сильной положительной обратной связью, т. е. режим с обострением [10]. При этом поведение тока положительных ионов  $i_{ps}$  не имеет подобных особенностей и его изменение близко к обычному экспоненциальному закону с постоянной спада  $\tau \approx 350 \mu$ s (рис. 4). Эта величина хорошо соответствует времени амбиполярной диффузии для положительных ионов [11]

$$t_p = R^2(2D_p(2.4)^2). \quad (1)$$

Для  $p = 0.07$  Торр и коэффициента диффузии положительных ионов  $D_p = 0.07$  cm<sup>2</sup>/s из (1)  $t_p \approx 400 \mu$ s. Далее на временах  $t > t_0$  токи положительных и отрицательных частиц близки по величине (следовательно, и  $N_n \approx N_p$ ) и имеют одинаковый темп спада во времени.

В начальные времена распада регистрируемые отличия ( $i_{es} + i_{ns}$ ) от  $i_{ps}$  составляют 10–50 раз, что является пределом наших возможностей слежения за изменением зондового электронного тока относительно ионного в исследуемых условиях. К сожалению, в экспериментах крайне редко достигается теоретический предел  $\sqrt{M/m}$  даже для обычной плазмы с положительными ионами и электронами [12]. В недавних работах [13,14] сообщалось, что в аналогичных экспериментальных условиях



**Рис. 3.** Временные зависимости характеристик электронов.  $p = 0.07$  Торр,  $i = 6$  мА. 1 — по данным рис. 1 токи насыщения отрицательных частиц  $i_{es} + i_{ns}$  при потенциале зонда  $+3$  В, 2 — результаты измерений  $i_d/E$ , 3 — результаты измерений  $I_\lambda$  в подогревающем импульсе.

регистрируемые ионные токи насыщения могут превышать свои теоретические значения, рассчитанные по теории орбитального движения (OML), до 10 раз. Причины этого могут быть весьма разнообразны и зависят, в частности, от температур и концентраций электронов, ионов и других параметров, определяющих на практике значения токов насыщения.

Таким образом, по измерению зондовых токов мы можем проследить за динамикой относительного уменьшения электронной концентрации по отношению к ионной не более чем в несколько десятков раз. Дальнейшее ее изменение маскируется током отрицательных ионов. Для независимой проверки столь необычного поведения концентрации электронов по сравнению с ионными концентрациями можно попытаться использовать другие методы, в частности измерения проводимости плазмы. Как известно, во внешнем поле  $E$  в плазме течет ток, который определяется концентрациями и подвижностями  $b_j$  заряженных частиц,

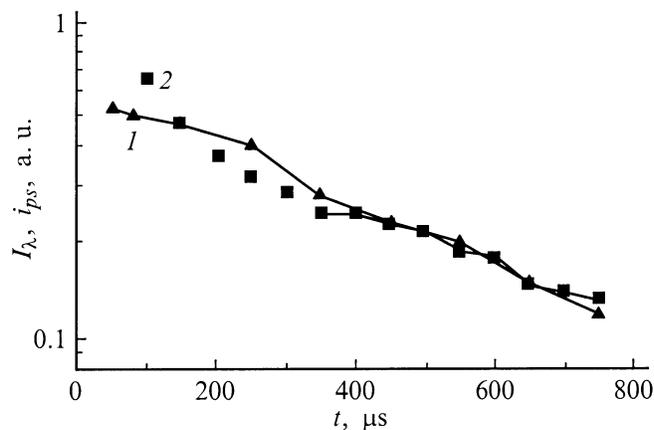
$$i_d = e\pi R^2(\bar{N}_e b_e + \bar{N}_p b_p + \bar{N}_n b_n)E, \quad (2)$$

где  $\bar{N}_j$  — усредненная концентрация  $i$ -й заряженной компоненты ( $j = e, n, p$ ) по сечению трубки радиусом  $R$ .

Для бесселевского профиля  $\bar{N}_j = 0.43N_j(0)$ . Поскольку  $b_e \gg b_p, b_n$ , то до тех пор, пока  $N_n/N_e < b_e/b_n$ , измеряемый через разрядную трубку ток практически равен электронному. При известных  $i_d$ ,  $E$  и  $b_e$  по (1) можно сравнительно простым образом определить величину  $N_e$ . Экспериментальные зависимости  $b_e(E/p)$  для кислорода приведены, например, в [15]. Анализ этих данных показывает, что в исследуемом диапазоне  $E/p = (0.03 - 0.3) \text{ В}/(\text{см} \cdot \text{Торр})$   $b_e \approx 1000 - 1200 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$  и меняется слабо. Поскольку  $b_p = 2.2 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ ,  $b_n = 3.2 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$  [11], то экспери-

ментальные временные зависимости  $i_d/E$  должны быть пропорциональны  $N_e(t)$  вплоть до  $(N_p + N_n)/N_e \lesssim 200$ .

Для измерения проводимости плазмы в нужный момент времени послесвечения на электроды трубки подавался дополнительный импульс напряжения, создающий продольное электрическое поле [16]. Величина тока в импульсе определялась по падению напряжения на известном сопротивлении, а поля — по разности потенциалов между двумя зондами. Как известно, к параметрам зондирующего импульса предъявляется ряд требований [16,17]: а) приложенная к электродам разность потенциалов должна быть больше приэлектродных падений, чтобы создать самостоятельный разряд через распадающуюся плазму и тем самым добиться появления фиксированного значения электрического поля  $E$  в столбе плазмы; б) длительность импульса и величина поля в нем не должны быть слишком большими, чтобы не вызывать заметного изменения концентрации электронов за счет диффузии на стенки и ионизации. В наших экспериментах использовались зондирующие импульсы длительностью  $10 - 30 \mu\text{s}$  и амплитудой  $100 - 600 \mu\text{s}$ . На рис. 3 также представлены результаты измерений  $i_d/E$  в различные моменты времени для тех же условий  $p = 0.07$  Торр и  $i = 6$  мА. Для наглядности эти кривые были нормированы на зондовый ток насыщения при  $t = 200 \mu\text{s}$ . Видно, что временные зависимости  $N_e(t)$ , определенные разными способами, качественно подобны друг другу и указывают на обострение распада электронной концентрации со временем. На рис. 5 для сравнения представлены результаты соответствующих измерений при одном и том же разрядном токе для двух давлений  $p = 0.07$  и  $0.15$  Торр. Видно, что зависимости качественно похожи друг на друга и отличаются только тем, что характерное время ухода электронов увеличилось примерно в два раза. Этот факт естественно связывается с уменьшением коэффициента диффузии, который пропорционален давлению газа  $p$  (см. (1)).



**Рис. 4.** Временные зависимости характеристик ионов.  $p = 0.07$  Торр,  $i = 6$  мА, 1 — по данным рис. 1 токи насыщения положительных ионов  $i_{ps}$  при потенциале зонда  $-3$  В, 2 — интенсивности  $I_\lambda$ .

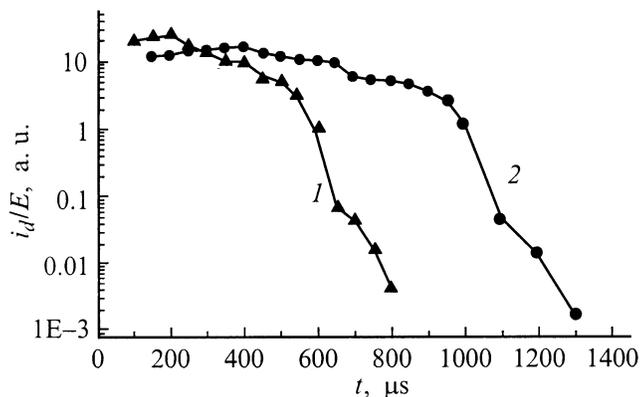


Рис. 5. Результаты измерений  $i_d/E$  в различные моменты времени.  $i = 6$  mA;  $p$ , Torr: 1 — 0.07, 2 — 0.15.

Отметим еще одно любопытное обстоятельство. Как видно из рис. 3 и 5, измеряемые зависимости  $i_d/E$  слабо меняются в начальные моменты послесвечения и даже имеют тенденцию к росту. Это может свидетельствовать о возможном увеличении  $N_e(t)$ , которое в зондовых измерениях до сих пор не наблюдалось.

Для того чтобы иметь простой и независимый способ контроля за поведением концентраций ионов в распадающейся плазме, можно использовать измерения свечения различных спектральных линий. В кислородной плазме для этих целей удобна линия  $\lambda = 777$  nm атомарного кислорода, интенсивность свечения которой в послесвечении определяется ион-ионной рекомбинацией [18] и, следовательно, пропорциональна произведению концентраций ионов  $N_p(t)N_n(t)$ . На рис. 4 также приведены измеренные зависимости интенсивности  $I_\lambda$  для того же самого давления газа и тока 200 mA, нормированные для удобства на величину ионного тока при  $t = 150 \mu\text{s}$  (кривая 2). Видно, что они имеют экспоненциальный спад во времени, близкий к спаду зондового тока положительных ионов  $i_{ps}(t)$  (кривая 1). Это, с одной стороны, подтверждает вывод о заселении исследуемого излучающего уровня ион-ионной рекомбинацией, с другой стороны, дает возможность для независимого контроля за поведением ионов в послесвечении. Исключение составляет малый участок начального спада  $I_\lambda$  после выключения разряда, когда интенсивность меняется более быстро. На этих временах температура электронов еще велика и более эффективным процессом заселения может являться электронное возбуждение. Скорость этой реакции экспоненциально зависит от  $T_e$ , поэтому соответствующий участок спада  $I_\lambda$  связан с быстрым начальным уменьшением электронной температуры. Поскольку этот участок не отражает поведение концентрации ионов, то его следует исключить из анализа.

С другой стороны, можно попытаться использовать регистрируемое излучение тех же спектральных линий для контроля и за поведением  $N_e(t)$  в послесвечении. Для этого были проведены измерения  $I_\lambda$  в подогре-

вающем импульсе такой амплитуды, чтобы заселение возбужденных состояний определялось возбуждением электронным ударом. Тогда при фиксированном значении поля  $E$ , а следовательно, и электронных температур  $T_e$  измеряемые интенсивности будут пропорциональны концентрации электронов  $N_e$  в каждый момент времени послесвечения. Поскольку константы возбуждения имеют экспоненциальную зависимость от  $T_e$ , то необходимо проводить измерения при одном и том же значении поля  $E$ . На рис. 3 также представлены нормированные для удобства на величину электронного тока при  $t = 200 \mu\text{s}$  относительные интенсивности  $I_\lambda$ , измеренные в подогревающем импульсе примерно одинаковой амплитуды. Видно, что эта зависимость хорошо соответствует изменению  $N_e(t)$ , определяемому другими используемыми методами.

Таким образом, измерения концентраций электронов и ионов, проведенные различными способами, хорошо соответствуют друг другу и подтверждают выявленные ранее в [9] особенности диффузионного распада плазмы электроотрицательных газов. В первую очередь они связаны с довольно необычным временным поведением концентрации электронов в послесвечении.

Простейшая модель распада плазмы электроотрицательных газов, позволяющая понять основные наблюдаемые закономерности, была предствалена в [5,9]. В послесвечении низкого давления, когда объемными плазмохимическими процессами можно пренебречь по сравнению с диффузией, имеем

$$dN_p/dt = -N_p/t_p \quad (3)$$

и распад положительных ионов происходит по обычному экспоненциальному закону

$$N_p(t) = N_{p0} \exp(-t/t_p). \quad (4)$$

В (3), (4) для характерного времени амбиполярной диффузии положительных ионов  $t_p$  на первой стадии можно использовать (1). Более общее выражение для коэффициента их амбиполярной диффузии  $D_{ap}$  в предположении бальмановского распределения электронов и отрицательных ионов по сечению разрядного объема представлено в [11]. При пренебрежении  $b_p$  и  $b_n$  по сравнению с  $b_e$  из [11] имеем

$$D_{ap} = D_p \frac{1 + K + 2K\alpha}{1 + K\alpha}, \quad (5)$$

где  $K = T_e/T$  — отношение температур электронов и тяжелых частиц.

Из (5) видно, что в присутствии отрицательных ионов при  $\alpha > 1$   $D_{ap} = 2D_p$  в соответствии с (1). На первой стадии распада, при выполнении условия даже незначительного превышения  $T_e$  над  $T$  [7], т. е. при

$$K - 1 > 2N_p b_p / (N_e b_e) \quad (6)$$

поток  $N_n$  оказывается направлен от стенок внутрь разрядного объема. Отрицательные ионы заперты в объеме амбиполярным электрическим полем и их поток на стенки равен нулю. При этом меняется лишь их пространственное распределение, в то время как средняя концентрация отрицательных ионов остается постоянной [7]. Тогда из (4) следует, что концентрация электронов

$$N_e(t) = N_{p0} \exp(-t/t_p) - N_{n0} \quad (7)$$

за время

$$t_0 = t_p \cdot \ln(N_{p0}/N_{e0}) \quad (8)$$

резко уменьшается и при  $t > t_0$  в объеме остаются практически только положительные и отрицательные ионы, так что  $N_p \sim N_n > N_e$ . Амбиполярный потенциал при этом резко меняется, он перестает удерживать отрицательные ионы внутри объема. Поэтому начало второй стадии сопровождается резким нарастанием тока отрицательных ионов на стенки [7]. В процессе уменьшения  $N_e$  при достижении неравенства  $N_e b_e < N_p b_p + N_n b_n$  электроны мгновенно (в режиме свободной диффузии) уходят на стенки и в объеме остаются только положительные и отрицательные ионы  $N_p = N_n$ . Поэтому на второй стадии  $t > t_a$  распад плазмы определяется ион-ионной амбиполярной диффузией

$$N_p = N_n = N_p(t_0) \exp(-t/t_i), \quad (9)$$

где  $t_i$  — характерное время ион-ионной амбиполярной диффузии.

Физическая причина обострения распада  $N_e$  со временем связана с тем фактом, что на первой стадии распада отрицательные ионы заперты в объеме и их поток на стенку равен нулю. Поэтому равенство потоков положительных и отрицательных частиц на границы обеспечивается электронами и положительными ионами, т.е. должно выполняться соотношение

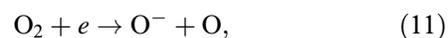
$$N_p/t_p \approx N_e/t_e. \quad (10)$$

Поскольку  $N_p = N_n + N_e > N_e$ , то условие (10) требует выполнения неравенства  $t_p > t_e$ . Чем меньше становится  $N_e$  по сравнению с  $N_n$ , тем быстрее электроны уходят на стенку, т.е. этот процесс непрерывно обостряется. Как отмечено в [9], при высокой начальной электроотрицательности, т.е. когда  $\alpha_0 > 1$  и  $t_e \ll t_p$ , уход всех электронов из объема происходит при малых изменениях концентрации ионов.

Представленная выше модель диффузионного распада объясняет основные наблюдаемые нами закономерности в поведении концентраций заряженных частиц в послесвечении. Концентрация положительных ионов экспоненциально спадает по (4), в то время как электроны за время  $t_0$  (8) уходят из объема в соответствии с представленной на рис. 1–5 картиной. Вне рамок этой модели остается лишь наблюдаемый выше рост  $i_d/E$ , а следовательно, и  $N_e(t)$  в начальные моменты времени, который, очевидно, не может быть объяснен лишь

одними диффузионными процессами. С другой стороны, монотонное изменение электронного тока на зонд при этом, как видно из рис. 3, скорее свидетельствует о соответствующем изменении и концентрации электронов. Поэтому, прежде чем выяснять причины несоответствия экспериментальных данных, представляется целесообразным проанализировать сначала принципиальные возможности роста  $N_e$  в послесвечении разряда низкого давления в электроотрицательных газах.

Выше при анализе распада слабоионизованной плазмы низкого давления на временах  $t \lesssim t_0 \lesssim t_p$  пренебрегалось всеми объемными плазмохимическими реакциями с участием заряженных частиц. Далее рассмотрим их возможное влияние более подробно. Процессы ионизации имеют большой энергетический порог, и соответствующая константа  $k$  этих процессов резко падает в послесвечении за счет быстрого остывания электронов. Поэтому этими реакциями в послесвечении можно пренебречь. По этой же причине можно не учитывать и процессы диссоциативного прилипания ( $k_a$ ) с основного состояния



которые, согласно литературным данным (см., например, [11,19]), определяют образование отрицательных ионов в активной фазе разряда.

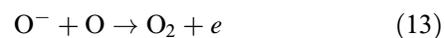
В последнее время в литературе обсуждается также процесс диссоциативного прилипания через высоковозбужденные состояния молекул, примыкающие к границе диссоциации



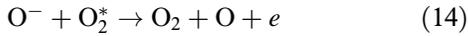
Важная роль этого процесса в образовании отрицательных ионов водорода в сильноточном импульсном разряде отмечалась еще в [20], а в последнее время они привлекаются и для интерпретации экспериментальных данных в сильноионизованной плазме низкого давления кислорода [18,21]. Константа  $k_a^{**}$  беспороговой реакции (12) слабо зависит от  $T_e$  и соответственно незначительно меняется при выключении разряда. В [21] при обработке экспериментальных данных был сделан вывод, что  $k_a^{**}$  даже может резко возрастать при падении  $T_e$ . Подробно свою точку зрения на выводы работ [18,21] мы высказали в [22]. Здесь же отметим, что, поскольку в наблюдаемых нами зависимостях процессы прилипания, приводящие к уменьшению  $N_e$ , не проявляют себя явно, далее при анализе условий возможного роста  $N_e$  мы их рассматривать не будем.

Для типичных значений констант диссоциативной и ион-ионной рекомбинаций  $k_r \approx 10^{-7} \text{ cm}^3/\text{s}$  [11] и концентраций  $N_p \leq 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  характерное время рекомбинации  $t_r \gg t_p \simeq t_0$ , т.е. рекомбинационной гибелью ионов на временах  $t \lesssim t_0$  можно также пренебречь.

Рассмотрим процессы отлипания, которые приводят к увеличению концентрации  $N_e$  и соответственно к уменьшению  $N_n$ . Эти реакции протекают по каналам столкновений с атомарным кислородом



и метастабильными молекулами кислорода



с константами скоростей соответственно  $k_{d1} = 1.9 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$  и  $k_{d2} = 3 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$  [11]. Поскольку соответствующие состояния  $N$  и  $N_2^*$  являются долгоживущими и их концентрации могут довольно медленно меняться во времени, а константы отлипания не зависят от  $T_e$ , то эффективность процессов (13), (14) может слабо изменяться при переходе от активной фазы разряда к послесвечению. Результаты многочисленных исследований указывают, что относительные концентрации атомов кислорода и метастабильных молекул кислорода (обозначим их как  $N$  и  $N_2^*$ ) в разряде могут составлять несколько процентов от плотности газа (см., например, [11,19,23]), т.е. весьма значительны. Соответственно характерные времена отлипания могут составлять в рассматриваемых условиях величины от десятков до сотен микросекунд, что сопоставимо с  $t_0$ . Поэтому в первую очередь процессы отлипания оказывают влияние на баланс электронов при распаде слабоионизованной плазмы. В рамках рассмотренной выше модели, считая для простоты частоту отлипания  $\nu_d$  постоянной, вместо (7) получим

$$N_e(t) = N_{p0} \exp(-t/t_p) - N_{n0} \exp(-\nu_d t). \quad (15)$$

Видно, что могут быть реализованы, грубо говоря, два резко различных предельных случая. При  $\nu_d t_p < 1$  (режим обострения), когда образование электронов за счет отлипания менее эффективно, чем их диффузионная гибель, концентрация электронов убывает со временем. Этот случай аналогичен рассмотренному выше, когда пренебрегалось всеми объемными процессами. Соответственно и физическая причина обострения распада концентрации электронов с последующим образованием ион-ионной плазмы здесь останется такой же, как при учете одних только диффузионных процессов. Различие заключается лишь в том, что характерное время ухода  $t_{0d}$  несколько увеличивается по сравнению с  $t_0$  (8) из-за дополнительного образования электронов в результате отлипания

$$t_{0d} = t_0 / (1 - \nu_d t_p). \quad (16)$$

Тем не менее распад электронов обостряется во времени и спустя характерное время  $t_{0d}$  происходит переход к ион-ионной (безэлектронной) плазме.

Обратный случай  $\nu_d t_p > 1$  сильного влияния отлипания должен реализовываться при повышении давления газа, поскольку  $\nu_d t_p \sim p^2$ . Здесь, наоборот, сначала должен наблюдаться монотонный рост концентрации  $N_e(t)$ , которая асимптотически приближается к  $N_p(t)$  за характерное время

$$t_m = (t_p / (1 - \nu_d t_p)) \ln(N_{p0} / (\nu_d t_p N_{e0})). \quad (17)$$

Далее, на второй стадии, когда отрицательных ионов должно быть мало, доминирует обычная электрон-ионная амбиполярная диффузия. Поведение  $N_e(t)$  в этом

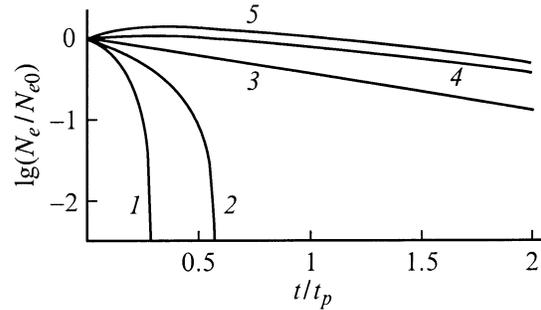


Рис. 6. Зависимости  $\lg(N_e(t)/N_e(0))$  по (15) при  $N_n(0)/N_n(0) = 3$ .  $\nu_d t_p$ : 1 — 0, 2 — 0.5, 3 — 1, 4 — 1.5, 5 — 2.

режиме, который можно назвать отлипательным, диаметрально противоположно рассматриваемому ранее чисто диффузионному распаду электроотрицательной плазмы. Условие  $\nu_d t_p = 1$  по сути есть точка бифуркации, разделяющая режим обострения ухода электронов из объема от случая их роста до концентрации положительных ионов за счет отлипания. На рис. 6 для примера представлены модельные зависимости  $N_e(t)$  по (15) при различных значениях  $\nu_d t_p$ . Видно, что при изменении параметра  $\nu_d t_p$  происходит переход от распада с обострением ( $\nu_d t_p < 1$ ) к отлипательному при  $\nu_d t_p > 1$ .

Поскольку отлипание может так драматически повлиять на характер распада слабоионизованной плазмы электроотрицательных газов низкого давления, то на практике желательно иметь возможность заранее это прогнозировать. Наиболее просто это можно увидеть по соотношению между основными потоками заряженных частиц в активной фазе разряда. Поскольку в стационарных условиях разряда баланс отрицательных ионов определяется прилипанием и отлипанием, т.е.

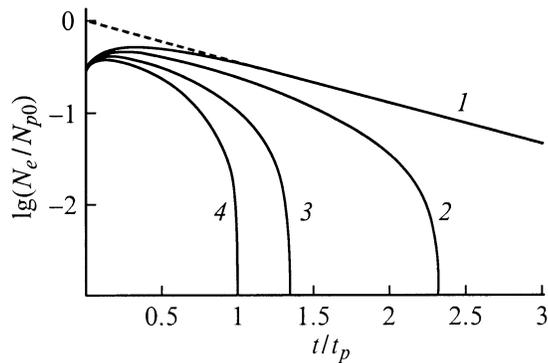
$$\nu_a N_{e0} = \nu_d N_{n0}, \quad (18)$$

а положительных ионов — ионизацией и диффузией на стенку

$$\nu_i N_{e0} = N_{p0} / t_p, \quad (19)$$

то при  $\nu_a > \nu_i$  будет выполняться  $\nu_d N_{n0} > N_{p0} / t_p$ . Тогда на начальной стадии распада, когда константы  $k_a$  и  $k_i$  резко уменьшаются при неизменной  $k_d$ , будет выполняться  $\nu_d N_n - N_e / t_e > 0$ , т.е. должен наблюдаться локальный рост  $N_e(t)$ . В обратном случае после выключения разряда будет  $dN_e/dt < 0$  и процессы отлипания, как уже отмечалось выше, смогут лишь незначительно замедлить спад концентрации электронов в процессе распада.

Таким образом, осуществление того или иного из возможных сценариев распада во многом зависит от соотношения между прилипанием и ионизацией (или соответственно диффузией ионов) в активной фазе разряда. Детально вопрос о диффузии заряженных частиц в положительном столбе разряда в электроотрицательных газах проанализирован в [24]. По классификации этой работы реализация интересующих нас режимов определяется



**Рис. 7.** Решение модельной задачи распада (3), (20) при  $N_e(0)/N_p(0) = 0.3$  с экспоненциальным уменьшением частоты отлипания по (21).  $\nu_{d0}t_p = 4\nu^*t_p$ : 1 — 0, 2 — 2, 3 — 4, 4 — 6. Штриховая кривая — зависимость  $\lg(N_p(t)/N_p(0))$  по (4).

величиной безразмерного прилипания  $\alpha$  ( $\alpha = k_{at_{an}}$ , где  $t_{an} = R^2 T_i / (D_n T_e (2.4)^2)$  — амбилярное время жизни отрицательных ионов). При  $\alpha > 1$  процессы прилипания более эффективны, чем ионизация, в то время как в обратном случае частота ионизации близка к обычному режиму Шоттки  $\nu_{it_p} \approx 1$  [24]. На практике перехода от  $\alpha < 1$  к  $\alpha > 1$  следует ожидать при повышении давления газа и для трубок радиусом  $R \sim 1$  см это соответствует давлению  $p \sim 0.1 - 1$  Торр.

Таким образом, реализация указанных выше двух предельных случаев зависит в первую очередь от величины параметра  $\nu_{d}t_p$ . В реальной ситуации частота отлипания  $\nu_d = k_{d1}N + k_{d2}N_2^*$  может уменьшаться со временем из-за падения концентраций атомов и метастабильных молекул кислорода. Поэтому на практике при слабом изменении величины  $t_p$  может наблюдаться комбинация обоих рассмотренных выше предельных случаев, когда на начальном этапе распада  $\nu_{d}t_p > 1$ , т. е. реализуется отлипательный режим распада и концентрация электронов возрастает. Затем по мере упоминаемого выше уменьшения  $\nu_d$  диффузия начинает доминировать и картина распада завершается в конечном счете быстрым уходом электронов из объема. Для иллюстрации сказанного на рис. 7 представлено решение модельной системы из уравнения (3) и

$$dN_e/dt = \nu_d N_n - N_p/t_p, \quad (20)$$

с частотой отлипания  $\nu_d$ , которая уменьшается во времени по экспоненциальному закону

$$\nu_d = \nu_{d0} \exp(-\nu^*t). \quad (21)$$

Видно, что при этом действительно может реализовываться немонотонное изменение концентрации электронов при распаде плазмы, так что наблюдаемый на рис. 3 и 5 рост зависимостей  $i_e/E$  в начальные моменты послесвечения, отражающий поведение  $N_e(t)$ , в принципе возможен. Регистрируемое при этом монотонное изменение электронного тока на зонд, которое, казалось

бы, противоречит этому, может быть связано с более резким падением  $T_e$  в начальные моменты после обрыва импульса возбуждения разряда, маскирующим более слабый рост  $N_e$ . Оценки по данным работ [19,23] для рассмотренных здесь условий низких давлений показывают, что в активной фазе разряда скорее всего реализуются промежуточные соотношения между эффективностями прилипания и ионизации. Из сказанного следует, что из совокупности всех представленных экспериментальных данных мы пока не можем сделать однозначный вывод в пользу обсуждаемого выше отлипательного режима распада. Для более детальной экспериментальной реализации этого несомненно интересного явления необходимо провести дополнительные исследования.

Таким образом, в данной работе проведена зондовая диагностика и выполнены измерения проводимости плазмы путем подачи зондирующего импульса тока в нужный момент послесвечения. Для дополнительного контроля за поведением концентраций заряженных частиц, проведены также результаты измерения интенсивностей свечения спектральных линий. Измерения временного поведения концентрации электронов в плазме послесвечения кислорода, выполненные различными методами, подтверждают сделанный ранее нами вывод об обострении их диффузионного ухода из объема и образовании ион-ионной плазмы. Показана также возможность реализации противоположного предельного случая — отлипательного режима распада с ростом концентрации электронов до концентрации положительных ионов на первой стадии и переходом к электрон-ионной плазме на второй стадии.

Авторы выражают благодарность Л.Д. Цендину за полезные обсуждения.

Работа выполнена при поддержке грантов РФФИ № 98-02-17778 и Минобразования РФ № 97-0-5.3-33.

## Список литературы

- [1] Hopkins M.V., Bakal M., Graham W.G. // J. Appl. Phys. 1991. Vol. 70. P. 2009–2015.
- [2] Samukawa S., Ohtake H.E. // J. Vac. Sci. Technol. 1996. Vol. A14(6). P. 3049–3058.
- [3] Lieberman M.A., Ashida S. // Plasma Sources Sci. Technol. 1996. Vol. 5. P. 145–158.
- [4] Hayashi D., Kadota K. // J. Appl. Phys. 1998. Vol. 83 (2). P. 697–702.
- [5] Кудрявцев А.А. Письма в ЖТФ. 1996. Т. 22. Вып. 17. С. 11–14.
- [6] Цендин Л.Д. // ЖТФ. 1985. Т. 55. № 12. С. 2318–2322.
- [7] Рожанский А.В., Цендин Л.Д. Столкновительный перенос в частично ионизованной плазме. М.: Энергоатомиздат, 1988. 248 с.
- [8] Smith D., Dean A.G., Adams N.G. // J. Phys. D. 1974. Vol. 7. P. 1944–1962.
- [9] Гуцев С.А., Кудрявцев А.А., Романенко В.А. // ЖТФ. 1995. Т. 65. Вып. 1. С. 77–85.

- [10] Режимы с обострением. Эволюция идеи. Сер. Кибернетика / Под ред. И.М. Макарова. М.: Наука, 1999. 255 с.
- [11] Мессу Г. Отрицательные ионы. М.: Мир, 1979. 754 с.
- [12] Демидов В.И., Колоколов Н.Б., Кудрявцев А.А. Зондовые методы исследования низкотемпературной плазмы. М.: Энергоатомиздат, 1996. 238 с.
- [13] Sudit I.D., Woods R.C. // J. Appl. Phys. 1994. Vol. 76 (8). P. 4488–4498.
- [14] Johnsen R., Shun'ko E.V., Gougousi T. // Phys. Rev. E. 1994. Vol. 50. N 5. P. 3994–4004.
- [15] Мак-Даниэль И. Процессы столкновений в ионизованных газах. М.: Мир, 1967. 832 с.
- [16] Герасимов Г.Н., Лягущенко Р.И., Старцев Г.П. // Опт. и спектр. 1971. Т. 30. № 4. С. 606–611.
- [17] Иванов В.А., Скобло Ю.Э. // ЖТФ. 1981. Т. 51. Вып. 7. С. 1386–1392.
- [18] Ishikawaa T., Hayashi D., Sasaki K., Kadota K. // Appl. Phys. Lett. 1998. Vol. 72. N 19. P. 2391–2393.
- [19] Gousset G., Ferreira C.M., Pinheiro M. et al. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1991. Vol. 24. P. 290–300.
- [20] Кучинский В.В., Мишаков В.Г., Тиболов А.С., Шухтин А.М. // Опт. и спектр. 1975. Т. 34. № 6. С. 1043–1048.
- [21] Hayashi D., Kadota K. // Jpn. J. Appl. Phys. 1999. Vol. 38. P. 225–230.
- [22] Кудрявцев А.А., Цендин Л.Д. // Письма в ЖТФ. 2000. Т. 26. Вып. 13. С. 93–105.
- [23] Ivanov V.V., Klopovskiy K.S., Lopaev D.V. et al. // IEEE Trans. on Plasma Sci. 1999. Vol. 27. N 5. P. 1279–1287.
- [24] Цендин Л.Д. // ЖТФ. 1989. Т. 59. Вып. 1. С. 21–28.