

Краткие сообщения

04

Возможность реализации низковольтного разряда в чистом молекулярном водороде

© Ф.Г. Бакшт, В.Г. Иванов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия
e-mail: baksh@mail.ioffe.ru

(Поступило в Редакцию 26 сентября 2013 г.)

Теоретически исследуется возможность горения низковольтного разряда в чистом (без наличия легко ионизирующейся примеси) молекулярном водороде. В качестве примера рассматривается разряд с катодным падением $\phi_1 = 10 \text{ V}$, межэлектродным расстоянием $L = 2 \text{ cm}$ и полной концентрацией водорода в зазоре $N_{\text{H}_2}^{(0)} \approx 2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Рассчитаны параметры плазмы, включая концентрацию N_{H^-} отрицательных ионов H^- . Максимум концентрации H^- сосредоточен в прианодной плазме и достигает величины $(N_{\text{H}^-})_{\text{max}} \approx 0.5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. Концентрация N_{H^-} может быть увеличена в несколько раз за счет добавления в разряд малого количества цезия $N_{\text{Cs}}^{(0)} \leq 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. При этом цезий полностью ионизируется и скапливается в узких приэлектродных слоях, которые были обеднены плазмой в чисто водородном разряде. Исследованные модификации разряда могут представить интерес в качестве объемно-плазменного низковольтного источника ионов H^- в условиях, когда нежелательно наличие большой концентрации цезия в плазме источника.

1. Низковольтный (НВ) разряд характеризуется тем, что может гореть при весьма малом падении напряжения U на разрядном промежутке. Это связано с тем, что распределение потенциала $\phi(x)$ в НВ-разряде образует потенциальную яму для электронов. При этом плазма разряда ограничена потенциальными барьерами ϕ_1 и ϕ_2 соответственно в прикатодном и прианодном лэнгмюровском слоях пространственного заряда. Барьеры ϕ_1 и ϕ_2 таковы, что они ускоряют электроны по направлению от электрода в плазму. Прикатодное падение ϕ_1 может быть меньше наименьшего потенциала U_1 возбуждения газа, если в зазоре вследствие межэлектронных столкновений интенсивно протекает процесс максвеллизации электронов с энергией $\epsilon \sim eU_1$. Образующиеся при этом быстрые электроны с энергией $\epsilon > eU_1$ инициируют ступенчатую ионизацию газа. Такая ситуация реализуется в разряде, если длина L_{ϵ_1} максвеллизации электронов с энергией $\epsilon_1 = eU_1$ меньше зазора L . Здесь $L_{\epsilon} = \sqrt{D_0(\epsilon)\tau_{\epsilon}^{(ee)}(\epsilon)}$, D_0 — коэффициент диффузии быстрых электронов, $\tau_{\epsilon}^{(ee)} = \epsilon^2 / (2\pi e^4 v_0 n_e \Lambda)$ — время релаксации энергии быстрых электронов вследствие межэлектронных столкновений, $v_0 = \sqrt{2\epsilon/m_e}$, n_e — концентрация электронов плазмы, Λ — кулоновский логарифм.

Наиболее подробно изучены НВ-разряды в парах Cs [1] и в смесях Cs с H_2 [2–6], а также в инертных газах и их смесях с H_2 ([7] и цитированные там работы). Отметим, что все предыдущие исследования посвящены НВ-разрядам, плазма которых образовывалась вследствие ионизации атомарного газа или легкоионизирующейся атомарной присадки, например Cs, в молекулярном

водороде. При этом молекулы H_2 оставались неионизованными или почти неионизованными, как в НВ-ксенон-водородном разряде [7]. В [2–7] молекулярный водород, хотя и вводился в разряд в большом количестве по сравнению с Cs, но использовался лишь для получения в плазме достаточно большой концентрации N_v колебательно-возбужденных (КВ) молекул H_2 (v — уровень колебательного возбуждения). Это приводило к генерации ионов H^- в плазме вследствие диссоциативного прилипания (ДП) тепловых электронов к КВ молекулам H_2 [8,9]. Нам не известны работы, в которых исследовался бы НВ-разряд в чистом (без примеси легкоионизирующейся присадки) молекулярном газе и, в частности, в чистом H_2 .

2. Цель настоящей работы — показать возможность существования НВ-разряда в чистом молекулярном газе на примере H_2 . Попутно определяется концентрация N_{H^-} ионов H^- , которая создается в плазме такого НВ-разряда. Это позволяет сравнить объемную генерацию ионов H^- в чисто водородном и цезий-водородном НВ-разряде (в последнем случае см., например, работы [1–6]). Отметим, что НВ-разряд в чистом H_2 , как и должно быть, горит при более высокой температуре T_e электронов плазмы, чем НВ-цезий-водородный разряд (ср. приведенный ниже рис. 1 с рис. 3, а в [3] и с работами [4–6]). Более высокое значение T_e в чисто водородном разряде объясняется как большим потенциалом ионизации U_i водорода по сравнению с Cs, так и быстрым уходом ионов водорода из разряда на электроды в связи с малой массой иона водорода: $(\sqrt{M_{\text{H}}/M_{\text{Cs}}} \approx 1/500)$.

Изучение чисто водородного НВ-разряда представляется также практический интерес. В предыдущих рабо-

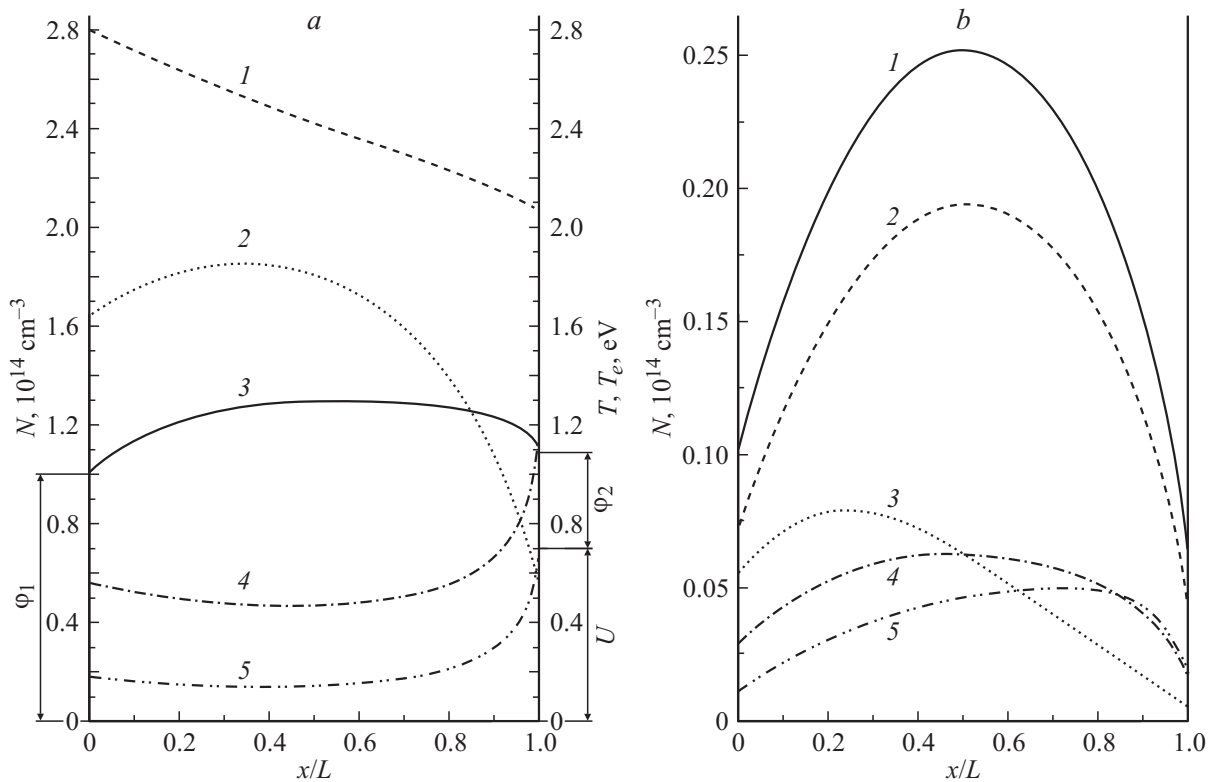


Рис. 1. *a* — распределение по зазору параметров плазмы НВ чисто водородного разряда. $L = 2 \text{ cm}$, $p_0 = 50 \text{ Pa}$, $j_{es} = 15 \text{ A/cm}^2$, $\phi_1 = 10 \text{ eV}$, $\gamma_H(0) = 0.05$, $\gamma_H(L) = 0.2$, $U = 9.6 \text{ V}$, $j = 17.1 \text{ A/cm}^2$, $\phi_2 = 1.4 \text{ eV}$, $N_{H_2}^{(0)} = 2.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. 1 — T_e , 2 — $10 \cdot T$, 3 — $0.1 \cdot \phi$, 4 — $0.1 \cdot N_H$, 5 — $0.01 \cdot N_{H_2}$; *b* — распределение по зазору концентрации заряженных частиц в НВ чисто водородном разряде. Параметры разряда те же, что на рис. 1, *a*: 1 — n_e , 2 — N_{H^+} , 3 — $10 \cdot N_{H_2^+}$, 4 — $N_{H_3^+}$, 5 — $10 \cdot N_{H^-}$.

тах [2–6], посвященных теории НВ-цезий-водородного разряда обычно рассчитывался оптимизированный режим по величине $N_{Cs}^{(0)} = \langle N_{Cs^+} + N_{Cs} \rangle$, которая представляет собой полную усредненную по длине газоразрядного промежутка концентрацию цезия в разряде. Оптимизация проводилась для достижения максимальной концентрации ионов H^- в прианодной плазме, откуда ионы H^- могут быть сравнительно легко извлечены сквозь отверстие в аноде. Оптимальное значение $N_{Cs}^{(0)}$ в разряде составляло $N_{Cs}^{(0)} \approx 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ [6], а концентрация ионов H^- в прианодной плазме была близка к $N_{H^-} \approx (0.6–0.8) \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ (такой разряд может служить объемно-плазменным источником ионов H^{-1}). В ряде случаев наличие большой концентрации Cs в разряде (источнике H^-) нежелательно. Тогда использование чисто водородного разряда или разряда с малой концентрацией Cs может оказаться предпочтительным.

3. Для расчета НВ-разряда (чисто водородного или цезий-водородного с малым содержанием Cs) в настоящей работе используются уравнения, аналогичные уравнениям (1)–(13) в [3] или (A1)–(A14) в [2]. Основное отличие использованной в настоящей работе системы уравнений от уравнений в [2,3] состоит в том, что в настоящей работе дополнительно учитывались следующие процессы. Прежде всего это процессы об-

разования ионов H^+ , H_2^+ и H_3^+ . Для этого в уравнениях непрерывности для ионов учитывались ионизация молекулярного [10] и атомарного [11] водорода, конверсия ионов H_2^+ в ионы H_3^+ (уравнение (28) в [12]), диссоциативная рекомбинация молекулярных ионов водорода с электронами в соответствии с уравнениями (22) и (23) в [12] и взаимная нейтрализация H_2^+ и H_3^+ с H^- ((35) и (36) в [12]).

В ряде процессов конверсии, диссоциативной рекомбинации и ионизации атомов H возникают атомарные ионы водорода. Существенно также образование нейтрального атомарного водорода вследствие диссоциации молекул H_2 в плазме [13] и в результате ДП-электронов к КВ-молекулам H_2 [8,9], когда одновременно с ионами H^- образуются атомы H. Образование атомарного водорода существенно, так как скорость его ионизации заметно превышает скорость ионизации H_2 и так как атомарный водород существенно уменьшает концентрацию КВ-молекул H_2 (см., например, рис. 6 в [13]), так как константы $v-t$ -обмена H_2 с H значительно превышают константы $v-t$ -обмена между молекулами H_2 .

Для определения скорости диссоциации Γ_d молекул H_2 использовалась система уравнений колебательной кинетики (уравнения (1)–(5) в [13]) для основного электронного состояния $X^1\Sigma_g^+$ молекулы H_2 . При этом

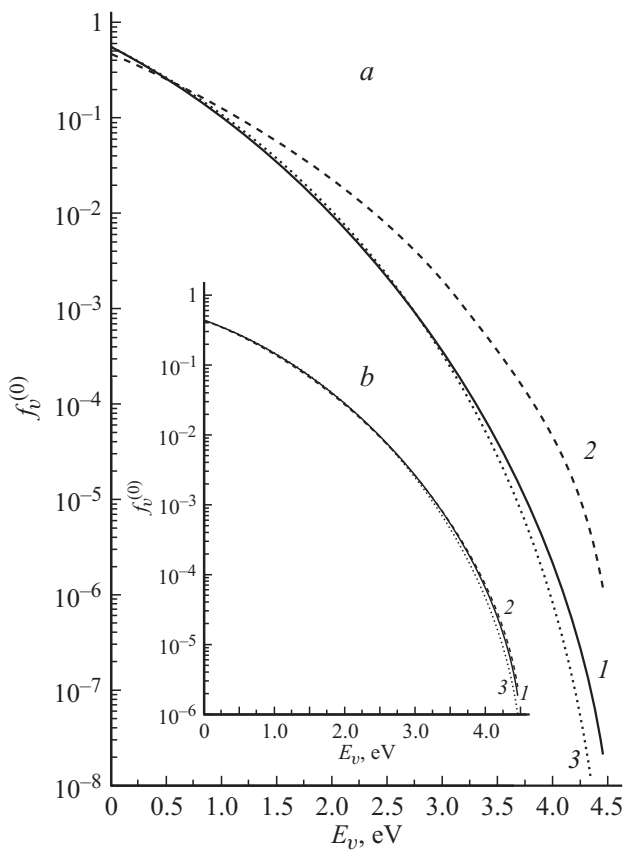


Рис. 2. Нормированная на единицу колебательная функция распределения молекул H_2 в основном электронном состоянии $X^1\Sigma_g^+$: *a* — чисто водородный НВ-разряд, параметры разряда те же, что на рис. 1; *b* — цезий-водородный НВ-разряд, $L = 2$ см, $p_0 = 50$ Па, $j_{es} = 15$ А/см², $\phi_1 = 10$ эВ, $\gamma_H(0) = 0.05$, $\gamma_H(L) = 0.2$, $N_{Cs}^{(0)} = 0.9 \cdot 10^{13}$ см⁻³, $U = 7.34$ В, $j = 15.9$ А/см², $\phi_2 = 3.44$ эВ, $N_{H_2}^{(0)} = 1.6 \cdot 10^{15}$ см⁻³: 1 — $x = 0.1L$, 2 — $x = 0.5L$, 3 — $x = 0.9L$.

находились заселенности N_v основного ($v = 0$) и колебательно возбужденных ($v > 0$) состояний $X^1\Sigma_g^+(v)$ молекул H_2 и определялась скорость ступенчатой диссоциации H_2 в основном электронном состоянии, равная скорости ступенчатого возбуждения молекул вплоть до порога диссоциации $v \approx 14$. Определялась также скорость прямой диссоциации молекул H_2 электронным ударом при возбуждении разлетного термина $b^3\Sigma_u^+$ и последующего распада этого состояния при разлете на два атома $H(1S)$ (см., например, [14]). По известным константам скорости ДП $\langle v\sigma \rangle_{DA}$ [9], определялось число актов ДП, т.е. число актов возбуждения разлетного термина иона H_2^- состояния $B^2\Sigma_g^+$ [14]) с дальнейшим распадом этого состояния на атом $H(1S)$ и ион $H^-(1S^2)$. Как показывает расчет, в плазме НВ чисто водородного разряда $N_H \sim N_{H_2}$. Это приводит к сильному опустошению возбужденных ($v > 0$) колебательных уровней молекулы H_2 в состоянии $X^1\Sigma_g^+$ вследствие быстрой $v-t$ -релаксации на атомах H . Поэтому ступенчатая диссоциация H_2 , т.е. последовательное возбуждение колеба-

тельных уровней от $v = 0$ до $v \approx 14$ малосущественно. Диссоциация H_2 происходит в основном путем заселения и последующего распада низколежащих разлетных состояний $B^2\Sigma_g^+$ и $b^3\Sigma_u^+$. В расчетах были учтены оба варианта диссоциации молекулы H_2 : „ступенчатый“ и „разлетный“. В итоге были сформулированы уравнения непрерывности для атомарного водорода и ионов водорода, которые решались совместно с соответствующими уравнениями движения. Отдельно из условия равенства нулю полной скорости рождения и гибели ионов H^- [15] определялась концентрация N_{H^-} .

4. Результаты расчетов иллюстрируются рис. 1–3. На рис. 1, 2, *a* изображены результаты расчета чисто водородного НВ-разряда, на рис. 2, *b*, 3 — результаты расчета НВ цезий-водородного разряда с весьма малым содержанием Cs: здесь $N_{Cs}^{(0)} = 0.9 \cdot 10^{13}$ см⁻³, т.е. на порядок меньше своего оптимального значения в [6].

Остановимся вначале на расчете чисто водородного НВ-разряда. На рис. 1, *a* показаны распределения потенциала $\phi(x)$, температуры $T_e(x)$ электронов и $T(x)$ — тяжелых частиц, а также концентрации молекулярного $N_{H_2}(x)$ и атомарного $N_H(x)$ водорода. Все распределения показаны только в области квазинейтральной плазмы. В подписи к рисунку указано полное давление плазмы p [3], межэлектродное расстояние L , ток j -разряда, ток j_{es} -эмиссии катода, средняя по длине газоразрядного промежутка полная концентрация водо-

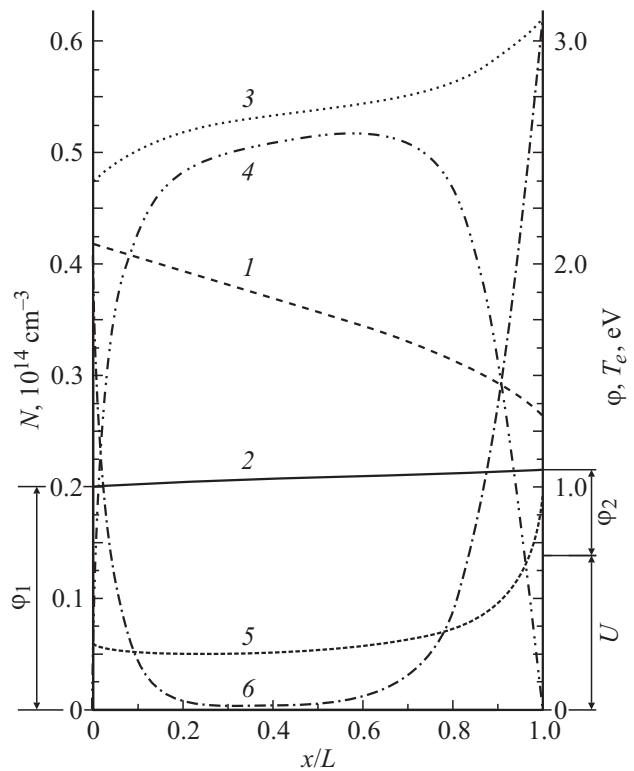


Рис. 3. Распределение по зазору параметров плазмы НВ-цезий-водородного разряда. Параметры разряда те же, что на рис. 2, *b*: 1 — T_e , 2 — $0.1 \cdot \phi$, 3 — n_e , 4 — N_{H^+} , 5 — $10 \cdot N_{H^-}$, 6 — N_{Cs^+} .

рода $N_{\text{H}_2}^{(0)}$ (в пересчете на концентрацию молекул) и величина $N_{\text{Cs}}^{(0)}$. Указаны также температуры T_1 катода (LaB_6) и анода T_2 , коэффициенты поверхностной рекомбинации атомов Н в молекулу H_2 на катоде $\gamma_{\text{H}}(0)$ и на аноде $\gamma_{\text{H}}(L)$: они входят в выражения (19), (20) в [3] и численно совпадают с [16,17].

На рис. 1, *b* приведены распределения по зазору концентрации заряженных компонент плазмы в чисто водородном НВ-разряде. Основным положительным компонентом плазмы являются ионы H^+ , образующиеся в основном вследствие быстрой ионизации атомов Н. Как видно из рис. 1, *b*, в приведенном примере максимум концентрации $N_{\text{H}^+}(x)$ расположен достаточно близко к аноду. Однако концентрация N_{H^-} в максимуме на порядок меньше, чем в оптимизированном НВ-цезий-водородном разряде [6]. Это связано в основном с уменьшением числа актов ДП вследствие уменьшения n_e и отчасти вследствие уменьшения $\langle v\sigma \rangle_{\text{DA}}$ при увеличении T_e в области $T_e > 1 \text{ eV}$ для тех колебательных чисел v , которые вносят основной вклад в ДП (рис. 3 в [6]). На рис. 3, *a* показана колебательная функция распределения (КФР) молекул H_2 в состоянии $X^1\Sigma_g^+$.

5. Остановимся на роли, которую играют малые добавки Cs к НВ-водородному разряду. Рассмотрим, например, введение в плазму малой добавки цезия $N_{\text{Cs}}^{(0)} = 0.9 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Это значение $N_{\text{Cs}}^{(0)}$ на порядок меньше оптимальной концентрации присадки Cs в НВ-цезий-водородном разряде в [6]. Остальные расчетные параметры разряда: $L, p_0, j_{es}, T_1, T_2, \phi_1, \gamma_{\text{H}}(0)$ и $\gamma_{\text{H}}(L)$ — такие же, как в чисто водородном разряде. Рассчитанные значения тока j , потенциального барьера ϕ_2 и полного напряжения U соответственно составляют: $j = 15.9 \text{ A/cm}^2, \phi_2 = 3.44 \text{ V}, U = 7.34 \text{ V}$.

Результаты приведены на рис. 2, *b* и 3: на рис. 2, *b* приведена КФР молекул H_2 , на рис. 3 показаны распределения $T_e(x), \phi(x)$, концентраций заряженных частиц $n_e(x), N_{\text{H}^+}(x), N_{\text{H}^-}(x), N_{\text{Cs}^+}(x)$. Видно, что даже относительно небольшое введение Cs в разряд приводит к заметному понижению $T_e(x)$ (ср. с рис. 1, *a*), что связано с дополнительными потерями энергии электронов на ионизацию цезия. Как и в чисто водородном разряде, приэлектродные области плазмы обеднены ионами H^+ . В цезий-водородном разряде эти области, однако, заполнены ионами Cs^+ . В результате плазма почти однородна по концентрации n_e , что приводит к весьма малому изменению КФР молекул H_2 по длине разряда (рис. 2, *b*).

Отметим, что теперь температура $T_e(x)$ достаточно высока по сравнению с оптимизированным НВ-цезий-водородным разрядом в [6] (ср. с рис. 1, *a* и 2, *a* в [6]). Поэтому десорбирующиеся с электродов атомы Cs ионизируются раньше, чем испытывают рассеяние по импульсу на тяжелых частицах. При этом длина ионизации цезия равна $L_i' \equiv \sqrt{2kT/\pi M_a}/(n_e \bar{v}_e \sigma_0(T_e))$, где $\sigma_0(T_e)$ — эффективное сечение ионизации [1]. В прикатодной плазме, где $n_e \approx 5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}, T_e \approx 2 \text{ eV}$

(рис. 3), $L_i'/L \approx 3 \cdot 10^{-3}$. Вследствие малости L_i'/L десорбирующиеся атомы Cs ионизируются практически мгновенно. Близкая ситуация имеет место и в прианодной области. Приэлектродные слои, где существует неионизованный цезий вследствие их узости на рис. 3 не показаны. Пренебрегая протяженностью этих слоев, можно считать, что приэлектродные области заполнены лишь ионами Cs^+ , и поставить следующие граничные условия для потоков ионов Cs^+ на границах квазинейтральной плазмы с электродами: $I_{\text{Cs}^+}(0) = I_{\text{Cs}^+}(L) = 0$. Эти условия являются следствием выражения (A.14) в [2] и отражают отсутствие перетекания массы цезия на границе электрод-плазма в стационарном разряде. Распределения параметров плазмы в зазоре показаны на рис. 3. Видно, что, несмотря на сравнительную малость концентрации Cs в зазоре ($N_{\text{Cs}}^{(0)}$ в 10 раз меньше своего оптимального значения в [6]), концентрация N_{H^-} в прианодной плазме сравнительно велика и составляет $N_{\text{H}^-}(L) \approx (1-2) \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. Рассмотренный здесь НВ-водородный разряд с относительно малой присадкой Cs весьма далек от оптимизированного НВ-цезий-водородного разряда в [6]. В оптимизированном разряде (ОР) в [6] концентрация $N_{\text{Cs}}^{(0)}$ на порядок больше, а вкладываемая электрическая мощность $P = Uj$ в 2 раза меньше, чем в рассмотренном здесь НВ-разряде с присадкой Cs. Поэтому в [6] температура T_e в ОР существенно ниже, чем в настоящей работе, ионизация водорода сравнительно малосущественна и ионы образуются в плазме в основном вследствие ионизации Cs.

Из проведенного рассмотрения видно, как по мере увеличения $N_{\text{Cs}}^{(0)}$ вследствие малой длины ионизации Cs ионы Cs^+ вначале заполняют приэлектродные области плазмы. Расчеты показывают, что при дальнейшем увеличении $N_{\text{Cs}}^{(0)}$ ионы Cs^+ либо заполняют всю плазму, как это имеет место в ОР при сравнительно малом L и низкой T_e ($L \leq 0.5 \text{ cm}, T_e(x) < 1.5 \text{ eV}$) [6], либо ОР-разряд расслаивается на приэлектродные области, где концентрируются ионы Cs^+ , и центральную часть, где основной вклад в условие квазинейтральности вносят ионы водорода, в основном ионы H^+ ($L \geq 1.5 \text{ cm}, T_{e \text{ max}} \geq 2 \text{ eV}$).

6. Подытожим основные результаты: 1) показана возможность существования НВ-разряда в чистом молекулярном водороде без легкоионизирующейся примеси. Исследована генерация ионов H^- в таком разряде.

2) показано, что в прианодной плазме НВ-разряда в чистом водороде может быть достигнута концентрация ионов H^- : $N_{\text{H}^-} \approx 10^{12} \text{ cm}^{-3}$.

3) исследована генерация ионов H^- в цезий-водородном НВ-разряде с малым содержанием цезия ($N_{\text{Cs}}^{(0)} \approx 10^{13} \text{ cm}^{-3}$). Показано, что в таком разряде цезий полностью ионизован и занимает узкие приэлектродные области плазмы. Остальная плазма образована в основном ионами H^+ . При этом на прианодной границе плазмы вследствие увеличения ДП может быть достигнуто увеличение концентрации N_{H^+} в несколько раз.

Список литературы

- [1] Энциклопедия низкотемпературной плазмы. Сводный том II, С. 132–147. / Под ред. В.Е. Фортова. М.: Наука, 2000.
- [2] *Baksht F.G., Djuzhev G.A., Elizarov L.I., Ivanov V.G., Kostin A.A., Shkolnik S.M.* // *Plasm. Sourc. Sci. Technol.* 1994. Vol. 3. P. 88–98.
- [3] *Бакуит Ф.Г., Елизаров Л.И., Иванов В.Г.* // *Физика плазмы.* 1990. Т. 16. № 7. С. 854–861.
- [4] *Baksht F.G., Ivanov V.G., Kon'kov S.I., Shkolnik S.M., Bacal M.* // *J. Phys. D : Appl. Phys.* 2003. Vol. 36. P. 122–128.
- [5] *Бакуит Ф.Г., Елизаров Л.И., Иванов В.Г., Коньков С.И., Митрофанов Н.К., Школьник С.М.* // *Физика плазмы.* 2003. Т. 29. № 3. С. 256–260.
- [6] *Бакуит Ф.Г., Иванов В.Г.* // *Физика плазмы.* 2005. Т. 31. № 6. С. 572–576.
- [7] *Бакуит Ф.Г., Иванов В.Г.* // *Письма в ЖТФ.* 2007. Т. 33. Вып. 3. С. 39–45.
- [8] *Wadehra J.N.* // *Phys Rev. A.* 1984. Vol. 29. N 1. P. 106–111.
- [9] *Skinner D.A., Brunetau A.M., Berlemont P., Courteille C., Leroj R., Bacal M.* // *Phys. Rev. E.* 1993. Vol. 48. N 3. P. 2122–2132.
- [10] *Sawada K., Fujimoto T.* // *J. Appl. Phys.* 1995. Vol. 78. N 5. P. 2913–2924.
- [11] *Johnson L.C., Hinnov E.* // *JQSRT.* 1973. Vol. 8. P. 333–358.
- [12] *Matvejev A.A., Silakov V.P.* // *Plasm. Sourc. Sci. Technol.* 1995. Vol. 4. P. 606–617.
- [13] *Бакуит Ф.Г., Иванов В.Г.* // *ЖТФ.* 1986. Т. 56. № 8. С. 1562–1568.
- [14] *Sharp T.E.* // *Atom. Data.* 1971. Vol. 2. P. 128–129.
- [15] *Бакуит Ф.Г., Елизаров Л.И., Иванов В.Г., Юрьев В.Г.* // *Физика плазмы.* 1988. Т. 14. № 1. С. 91–97.
- [16] *Лавренко В.А.* Рекомбинация атомов водорода на поверхностях твердых тел. Киев: Наукова думка, 1973.
- [17] *Бакуит Ф.Г., Иванов В.Г.* // *Письма в ЖТФ.* 1986. Т. 12. Вып. 11. С. 672–675.