

03;04;06

Распределение частиц по размерам в коагулирующей пылевой плазме

© И.А. Белов, А.С. Иванов, Д.А. Иванов, А.Ф. Паль,
А.Н. Старостин, А.В. Филиппов

Российский научный центр "Курчатовский институт", Москва

Поступило в Редакцию 18 марта 1999 г.

В рамках модифицированной классической теории коагуляции в диффузионном приближении изучены некоторые аномалии в поведении функции распределения частиц по размерам. Установлено, что в отличие от обычного аэрозоля в пылевой плазме с течением времени возможно уменьшение дисперсии распределения и среднего размера частиц.

Исследование процесса коагуляции частиц в пылевой плазме и, в частности, поведения функции распределения частиц по размерам актуально в проблеме переноса вещества и загрязнения поверхностей при производстве полупроводниковых приборов в микротехнологии [1–3]. Близкие вопросы возникают и в задачах, связанных с плазмохимическими технологиями получения порошковых материалов [4]. В последнем случае коагуляция является одним из основных механизмов роста пылинок. Вопрос о распределении микрочастиц по размерам является важным также для исследований по ядерной батарее на основе пылевой плазмы, создаваемой радиоактивными частицами микронных размеров в эксимерном газе, например ксеноне [5], и для создания новых технологий нанесения покрытий [6]. Существенным отличием рассматриваемой ситуации от обычного аэрозоля является возможность монополярной зарядки частиц сравнительно большими зарядами при сохранении интегральной электронейтральности среды.

Известно [7], что для монополярно заряженного аэрозоля электростатическое отталкивание приводит к удалению одноименно заряженных частиц друг от друга, снижает скорость коагуляции и вызывает уменьшение концентрации аэрозоля. Особенности поведения частиц в пылевой плазме связаны, с одной стороны, с подавлением коагуляции вследствие монополярной зарядки в области размеров частиц меньше

дебаевского радиуса экранирования R_d и, с другой, с нивелированием этого обстоятельства для размеров больше R_d .

При попадании в плазму дисперсные частицы заряжаются отрицательно вследствие того, что подвижность электронов существенно превышает подвижность ионов. Характерное время зарядки частиц составляет $10^{-5} - 10^6$ с [8]. Следует отметить, что характерное время разрядки, определяемое диффузией и дрейфом ионов, заметно больше приведенных цифр, но все же существенно меньше характерных времен изменения функции распределения частиц по размерам за счет коагуляции в широком диапазоне размеров и концентрации n_d пылинок. В связи с этим задачи зарядки частиц и формирования функции распределения могут быть разделены и решены последовательно.

Рассмотрим для определенности случай, когда ионизация в плазме создается быстрыми частицами. Этот пример характерен для пылевой плазмы ядерной батареи [5], где в зависимости от типа радиоактивности это могут быть электроны или α -частицы. Состав плазмы определяется уравнениями сохранения заряда (условие квазинейтральности плазмы) и непрерывности для электронов и ионов [5,9]. Анализ этих уравнений показывает, что отношение заряда пылевых частиц q к их радиусу r_d и средние по объему концентрации ионов \bar{N}_+ и электронов \bar{N}_- при заданной мощности источника ионизации Q являются функциями произведения $\xi = n_d r_d$ и определяются соотношениями подобия:

$$\bar{N}_- = f_1(\xi, Q); \quad \bar{N}_+ = f_2(\xi, Q); \quad \frac{q}{r_d} = f_3(\xi, Q). \quad (1)$$

Если положить, что $q \sim r_d$, т.е. $f_3(\xi, Q) = \text{const}$, то ξ пропорционально суммарному заряду, собранному на частицах аэрозоля. При этом соотношения (1) имеют достаточно простой смысл, заключающийся в том, что состав плазмы определяется только мощностью источника и суммарным зарядом, собранным диспергированным в ней аэрозолем.

Согласно расчетам, проведенным с использованием соотношений [5] с учетом (1), кривая q/r_d (рис. 1) по форме напоминает слегка размытую ступеньку Ферми. Как видно из рис. 1, величина q/r_d и соответственно плавающий потенциал частиц $U = eq/r_d$ остаются постоянными в широком интервале изменения параметров пылевой компоненты плазмы вплоть до некоторого значения $\xi = \xi_0$, определяемого мощностью источника ионизации. Если исходные концентрации и размеры частиц аэрозоля удовлетворяют условию $\xi \leq \xi_0$, то в процессе коагуляции,

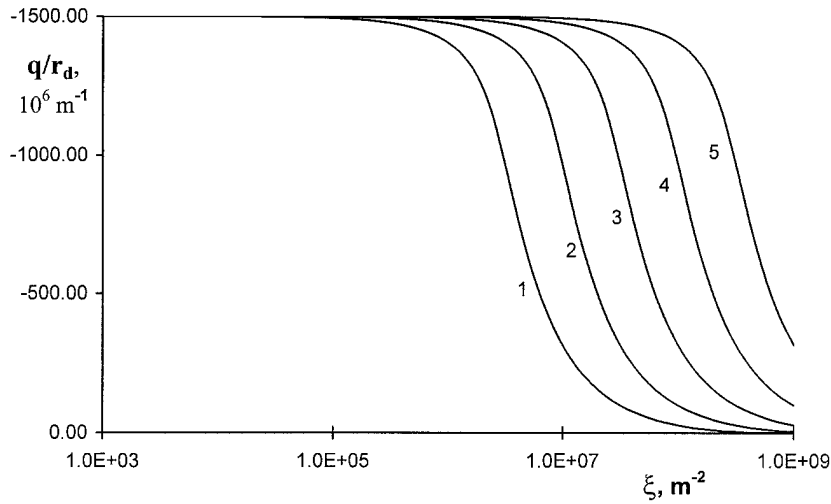


Рис. 1. Отношение заряда к радиусу пылевых частиц в плазме ксенона в зависимости от параметра ξ . Нумерация кривых на рисунке соответствует различным скоростям ионизации: $(1, 2, \dots, 5) \rightarrow Q = 10^{19}, 10^{20}, \dots, 10^{23} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$.

сопровождающейся снижением концентрации частиц и ростом их размеров, неравенство $\xi \leq \xi_0$ остается в силе. Это позволяет провести исследование процесса коагуляции пылевых частиц при условии $U = \text{const}$.

Описание коагуляции полидисперсной системы с произвольным начальным распределением частиц по размерам основано на решении системы уравнений Смолуховского

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_d(r_k, t)}{\partial t} = & - \sum_i \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{ik} \right) G(r_i, r_k) n_d(r_i, t) n_d(r_k, t) \\ & + \frac{1}{2} \sum_i \sum_j G(r_i, r_k) \theta_{ij}^k n_d(r_i, t) n_d(r_j, t), \end{aligned} \quad (2)$$

где $n_d(r_k, t)$ — концентрация частиц с радиусами от r_k до r_{k+1} в момент времени t ; $G(r_i, r_j)$ — константы коагуляции частиц с радиусами r_i и r_j соответственно; δ_{ik} — символ Кронекера; θ_{ij}^k — коэффициенты интерполяции; $i, j = 1, 2, 3, \dots, N$ [10].

Учет влияния заряжения частиц на форму функции распределения осуществляли путем перенормировки констант коагуляции в уравнениях (2). Эту процедуру проводили в рамках подхода, развитого Фуксом [7], однако в качестве потенциала электростатического взаимодействия частиц использовали экранированный кулоновский потенциал $\varphi_i(r)$. При этом отношение констант коагуляции заряженных и незаряженных частиц пыли γ_{ik} равно:

$$\gamma_{ik} = \left(\int_0^1 \exp \left\{ \frac{1}{kT} \Psi_{ik} \left(\frac{r_i + r_k}{x} \right) \right\} dx \right)^{-1}, \quad \Psi_{ik}(r) = eq_k \varphi_i(r), \quad (3)$$

где $eq_k = r_k U$ — заряд частицы радиусом r_k .

Характер поведения констант коагуляции заряженных частиц в плазме радикально изменяется. С возрастанием размера частиц падение констант коагуляции, обусловленное электростатическим отталкиванием, сменяется их ростом, вызванным дебаевским экранированием зарядов. Немонотонная зависимость констант коагуляции от размеров частиц существенно меняет поведение функции распределения частиц по размерам с течением времени. Выполненные нами с учетом сказанного расчеты зависимостей концентраций от размеров частиц приведены на рисунке 2, *a, b*. Для сравнения даны графики $n_d(r_k, t)$ незаряженного аэрозоля в различные моменты времени (рис. 2, *a*). В качестве исходного выбрано нормально-логарифмическое распределение частиц по размерам со стандартным геометрическим отклонением, равным двум, и средним радиусом $\bar{r}_i = 10^{-6}$ м (исходная полная концентрация пылевых частиц равна 10^{14} м^{-3}). Расчеты проведены для плазмы с дебаевским радиусом $R_d = 8.4 \cdot 10^{-6}$ м и плавающим потенциалом $U = 0.15$ В. Разбиение интервала изменения размеров частиц ($r_{\min} = 10^{-8}$ м, $r_{\max} = 3 \cdot 10^{-5}$ м) проведено в соответствии с соотношением $(m-1) \ln(r_k/r_{k-1}) = \ln(r_{\max}/r_{\min})$, где m — число точек разбиения ($m = 60$). Для того чтобы частицы максимального размера не накапливались в системе и не деформировали функцию распределения, введено их эффективное осаждение.

Согласно полученным результатам, зарядка частиц приводит к общему торможению процесса коагуляции. Вместе с тем качественно меняется и характер поведения функции распределения. В начальный период времени интенсивно выедается мелкая фракция, испытывающая существенно меньшее торможение коагуляции по сравнению с более

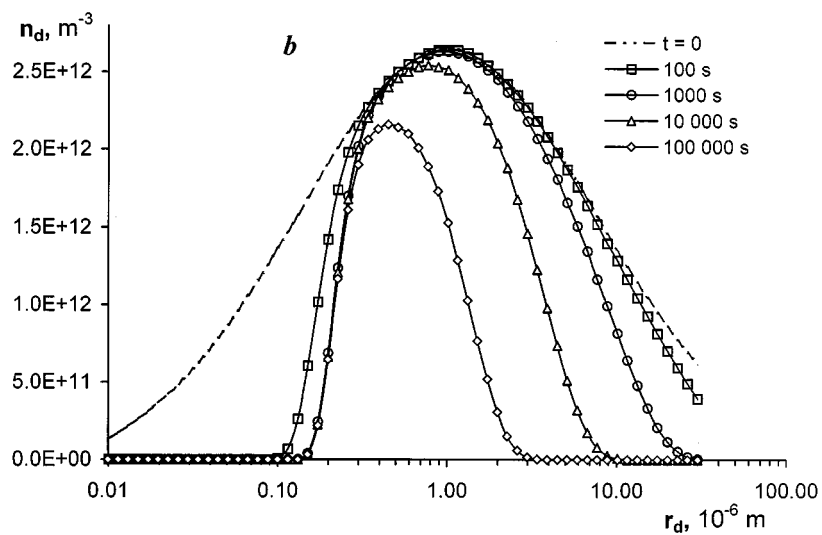
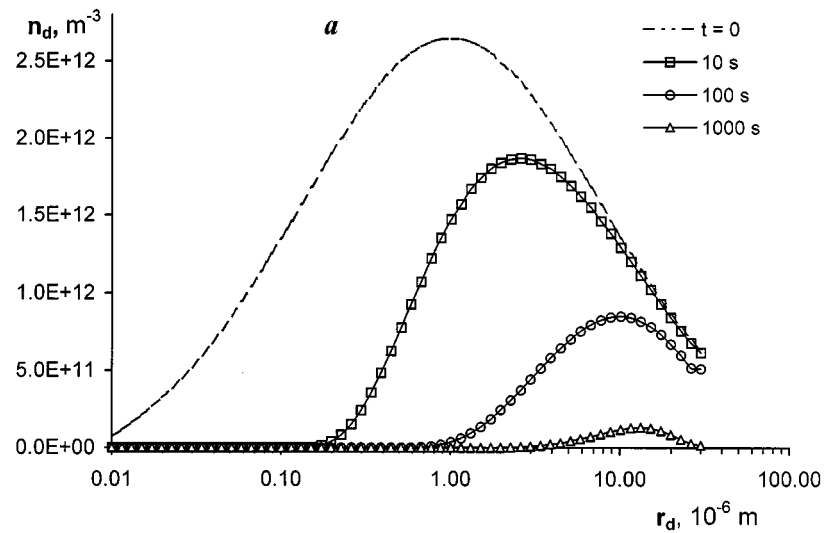


Рис. 2. Динамика изменения распределения частиц по размерам в единице объема: *a* — незаряженного полидисперсного аэрозоля, *b* — пылевой плазмы.

крупными частицами. За счет этого, по-видимому, появляются кластеры со структурой типа "цветной капусты", состоящие из множества мелких частиц. Столкновения более крупных частиц затруднены возникающим кулоновским барьером. В своем движении в сторону увеличения размера частиц функция распределения как бы "наталкивается" на кулоновский барьер. Однако для частиц с размерами, сравнимыми или превышающими дебаевский радиус, эффект электростатического отталкивания снижается и их коагуляция оказывается вполне вероятной. Это приводит к "выеданию" и более крупной фракции в распределении частиц по размерам. Распределение сужается и его дисперсия уменьшается. Еще одной интересной особенностью поведения функции распределения в рассматриваемых условиях является возможность уменьшения среднего размера частиц с течением времени.

Таким образом, поведение распределения частиц по размерам в пылевой плазме аномально и обладает рядом интересных особенностей, которые могут привести к некоторым необычным физическим явлениям, важным для создания ядерной батареи [5], например левитации долгоживущей "квазижидкой" пылевой структуры в электростатической ловушке. Вместе с тем практически очевидны и возможные технологические применения рассмотренных эффектов, в частности сюда следует отнести возможность выработки мер управляемого воздействия для предотвращения загрязнения поверхностей в процессах ионного травления.

В заключение мы хотим выразить благодарность В.Ю. Баранову, В.Е. Фортову, А.В. Демьянову и Ю.В. Петрушевичу за полезные обсуждения настоящей работы.

Список литературы

- [1] Цытович В.Н. // УФН. 1997. Т. 167. № 1. С. 57–99.
- [2] Choi S.J., Kushner M.J. // J. Appl. Phys. 1993. V. 74. N 2. P. 853–861.
- [3] Huang F.J., Kushner M.J. // J. Appl. Phys. 1997. V. 81. N 9. P. 5960–5965.
- [4] Крапивина С.А. // Плазмохимические технологические процессы. Л.: Химия, 1981. 248 с.
- [5] Баранов В.Ю., Белов И.А., Демьянов А.В., Иванов А.С. и др. Препринт ИАЭ-6105/6, М.: РНЦ "Курчатовский институт", 1998. 39 с.
- [6] Shin H.S., Goodwin D.G. // Materials Letters. 1994. V. 19. P. 119–122.
- [7] Фукс Н.А. Механика аэрозолей. М.: Изд. АН СССР, 1955. 252 с.

- [8] *Райст П.* Аэрозоли. Введение в теорию. М.: Мир, 1987. 278 с.
- [9] *Смирнов Б.М.* Аэрозоли в газе и плазме. М.: ИВТАН, 1990. 102 с.
- [10] *Bunz H., Kouro M., Schock W.* NAUA Mod 4. Karlsruhe, KfK 3554, 1983. 66 p.