

Исследование законов подобия газового разряда при возбуждении смеси Kr/CCl₄ барьерным разрядом

© А.А. Пикулев, В.М. Цветков

Российский федеральный ядерный центр — Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики,
607190 Саров, Нижегородская область, Россия
e-mail: pikulev@expd.vniief.ru

(Поступило в Редакцию 2 марта 2009 г.)

Экспериментально исследованы электрические и люминесцентные характеристики лампы барьерного разряда на основе смеси Kr/CCl₄ (150:1) в зависимости от значения $pd = (7.6-14) \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$. При моделировании по параметрам подобия газового разряда выполняются следующие закономерности: для $pd = \text{const}$ длительность импульса и средняя плотность тока разряда (p — давление) $\tau_j \sim 1/p$, $\langle j \rangle \sim p$; поверхностная плотность заряда на электродах $\sigma \sim \text{const}$; длительность импульса и эффективность УФ-излучения эксиплекса KrCl* (222 nm) $\tau_{\text{rad}} \sim 1/p$, $\eta \sim p^2$. Максимальная эффективность излучения, достигнутая в экспериментах, составляет около 13%. Отклонения от законов подобия газового разряда связаны с филаментарной формой разряда, наблюдавшейся в наших экспериментах. Проведенный качественный анализ показывает, что для данного типа разряда законы подобия также могут выполняться, но уже локально, в пределах одиночного филамента.

Введение

Барьерный рост (БР) в настоящее время является мощным технологическим инструментом. Данный тип разряда может быть использован для генерации УФ-излучения в эксилампах [1], нанесения тонких пленок металлов и полупроводников [2], создания плоских плазменных панелей и дисплеев [3], для дезактивации бактерий [4], обработки медицинских инструментов и изделий [5], очистки воды [6], а также в различных плазменных технологиях [7].

Оптимизация ламп и ячеек БР по условиям создания плазмы разряда и мощности УФ-излучения включает в себя множество параметров: геометрические размеры и форма газоразрядного промежутка и электродов, амплитуда, длительность и частота импульсов напряжения, давление и состав газовой смеси, толщина, форма и материал диэлектрических барьеров. Такое множество параметров делает ячейку БР весьма гибким инструментом управления параметрами разряда и УФ-излучения, но и существенно затрудняет решение вопроса оптимизации и масштабирования ламп и ячеек БР.

Тем не менее для некоторых типов разряда, например для разряда постоянного тока, число свободных параметров может быть существенно уменьшено, что связано с существованием законов подобия газового разряда [8]. Вопрос о выполнении законов подобия газового разряда является важным также в приложении к задачам моделирования электрических и плазмохимических процессов, происходящих в ячейках плазменных панелей на их увеличенных макетах [3,9,10].

В соответствии с законами подобия газового разряда низкого тока в геометрически подобных разрядных ячейках при сохранении величины pd (p — давление

газа; d — расстояние между электродами) и приложенного к разрядному промежутку напряжения U в соответствующие моменты времени t_1 и t_2 ($p_1 t_1 = p_2 t_2$) в соответствующих точках x_1 и x_2 ($p_1 x_1 = p_2 x_2$) должны сохраняться следующие значения (j — плотность тока; $n_{e,i}$ — концентрация электронов и ионов; E — напряженность электрического поля): j/p^2 , $n_{e,i}/p^2$ и E/p [8]. Отсюда следует, что плотность тока $j \sim p^2$, длительность импульса тока $\tau_j \sim 1/p$, а поверхностная плотность заряда на электродах — $\sigma \sim p$.

В случае БР к вышеприведенным условиям необходимо добавить условие, что падение напряжения на барьерах и газовом промежутке для геометрически подобных ячеек должно быть одинаковым. Для выполнения этого условия необходимо, чтобы емкость барьеров на единицу площади поверхности удовлетворяла условию $C/S \sim p$ (S — площадь электродов; C — емкость диэлектрического барьера). Таким образом, для моделирования БР при изменении размеров лампы или ячейки БР и давления газа необходимо соответственным образом не только изменять расстояние между электродами, но и емкость диэлектрических барьеров [3,9,10].

В соответствии с законами подобия газового разряда для геометрических размеров ячейки должно выполняться соотношение $\sim 1/p$ (l — характерный линейный размер), поэтому площадь электродов $S \sim 1/p^2$. Однако в случае плоскопараллельных электродов, когда разряд достаточно однородно заполняет весь газовый промежуток, можно не требовать выполнения этого условия. Поэтому в вашей работе использовались электроды одинакового диаметра. В этом случае, согласно законам подобия газового разряда, в соответствующие моменты времени ($t \sim 1/p$) для тока должно выполняться соотношение $I \sim p^2$, а для перенесенного заряда — $q \sim p$. При

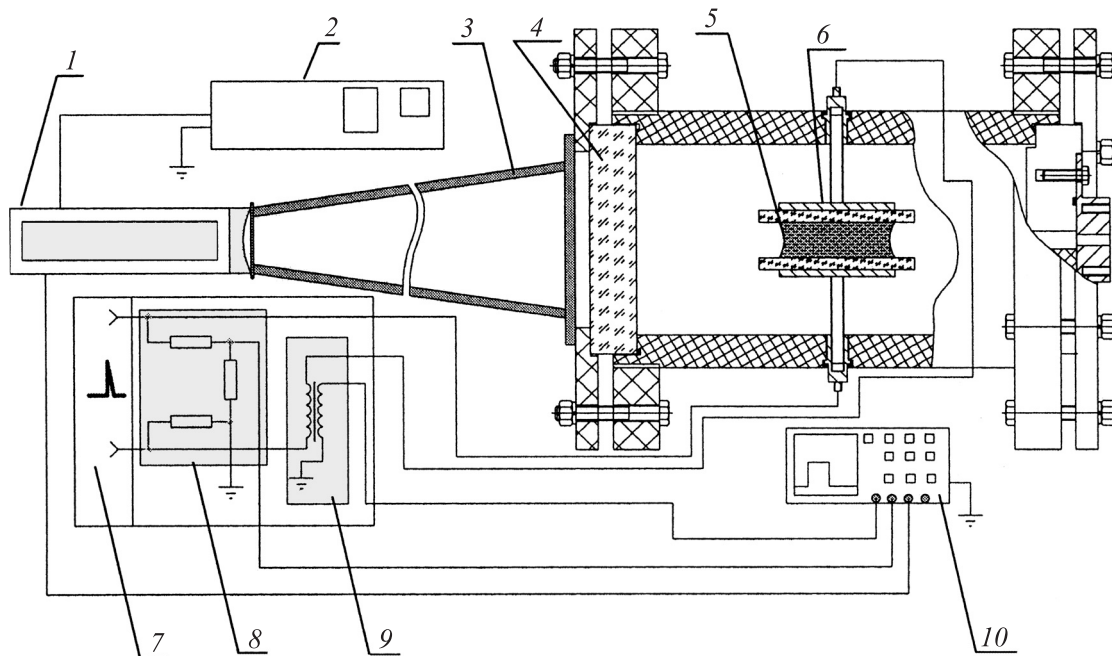


Рис. 1. Схема проведения измерений: 1 — фотоумножитель ФЭУ-39; 2 — источник питания фотоумножителя; 3 — светонепроницаемый тубус; 4 — выходное кварцевое окно; 5 — область разряда; 6 — электрод; 7 — импульсный источник питания; 8 — делитель напряжения; 9 — токовый трансформатор; 10 — цифровой осциллограф.

этом емкость диэлектрических барьеров удовлетворяет условию $C \sim p$.

В настоящей работе были исследованы электрические и люминесцентные характеристики лампы БР с плоскими электродами, заполненной смесью Kr/CCl_4 (150:1), в зависимости от значения pd (в пределах $(7.6-14) \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$) и длительности импульсов приложенного напряжения ($0.5-1.7 \mu\text{s}$ на полувысоте) для двух наборов электродов:

1) два плоских электрода с диэлектриком (стекло) толщиной $b = 2 \text{ mm}$ и с расстоянием между ними $d = 4 \text{ mm}$;

2) электроды с $b = 4 \text{ mm}$, $d = 8 \text{ mm}$.

Частота импульсов напряжения не варьировалась и во всех экспериментах составляла 100 kHz .

Методика проведения экспериментов

Эксперименты проводились на модельной кювете БР, конструкция которой была описана ранее [11,12]. Схема проведения экспериментов представлена на рис. 1. Электроды 6 запитывались от импульсного генератора 7, который вырабатывает двуполярные импульсы напряжения с частотой 100 kHz , регулируемой амплитудой до 5 kV и выходным током до 1 A . Длительность импульсов, выдаваемых генератором, регулируется в интервале от 0.2 до $2 \mu\text{s}$. Генератор состоит из генераторного и нагрузочно-измерительного блока, который представляет собой делитель напряжения 8 и токовый трансформатор 9. Сигналы, соответствующие напряжению,

приложенному к электродам и току, через разрядный промежуток 5 выводились с измерительного блока на цифровой осциллограф TDS 3014B 10.

Для регистрации оптического излучения в относительных единицах использовался фотоумножитель ФЭУ-39 (1). Светонепроницаемый тубус длиной 1420 mm (3), выполненный из зачерненной бумаги, предохранял фотоумножитель от внешней засветки. Абсолютные значения мощности УФ-излучения были получены с помощью измерителя мощности оптического излучения Newport 1830-C с измерительной головкой 818-UV.

Соотношение компонент смеси Kr/CCl_4 (150:1) было выбрано из-за наилучших условий зажигания разряда и хороших параметров УФ-излучения этой смеси. В спектре излучения смеси Kr/CCl_4 (150:1) в диапазоне $180-280 \text{ nm}$ наблюдаются сильный переход $B \rightarrow X$ эксиплекса $KrCl^*$ (222 nm) и гораздо более слабый пик излучения эксимера Cl_2^* (258 nm). При давлении $15 \cdot 10^3 \text{ Pa}$ ширина спектральной линии излучения 222 nm на полувысоте составляет около 5 nm . Излучение $D \rightarrow x$ и $C \rightarrow A$ переходов эксиплекса $KrCl^*$ в спектре отсутствует, что характерно для свечения БР [13,14].

Эксперименты проводились для четырех различных значений pd ($7.6, 9, 12$ и 14) $\cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$ для двух наборов электродов (диаметр электродов составлял 30 mm): 1) два плоских электрода с диэлектриком (стекло) толщиной $b = 2 \text{ mm}$ и с расстоянием между ними $d = 4 \text{ mm}$ и 2) электроды с $b = 4 \text{ mm}$, $d = 8 \text{ mm}$. Давление смеси для первого набора электродов составляло $(19, 23, 30$ и $35) \cdot 10^3 \text{ Pa}$, а для второго — $(9.5, 11.5, 15$ и $17.5) \cdot 10^3 \text{ Pa}$.

Параметры импульсов напряжения

d, mm	4			8		
	$\tau_{1/2U}, \mu\text{s}$	0.5	0.65	0.85	1	1.3
$U_{\text{max}}, \text{kV}$	4.1	4.6	4.8	4.6	4.8	4.3

Примечание. $\tau_{1/2U}$ — длительность импульса напряжения на полувысоте; U_{max} — амплитуда импульса напряжения.

Основные параметры импульсов напряжения приведены в таблице. К сожалению, при настройке источника питания на генерацию импульсов напряжения заданной длительности амплитуда напряжения „плавала“ в пределах 4.1–4.8 kV, поэтому каждая серия экспериментов характеризовалась не только длительностью, но и своей амплитудой напряжения, что несколько осложнило анализ результатов экспериментов.

Электрические параметры разряда

Для выделения активной составляющей тока в каждой серии экспериментов нами были проведены исследования параметров ячейки БР в режиме холостого хода, для чего давление газовой смеси увеличивалось выше пробойного (до $5 \cdot 10^4 \text{ Pa}$). На рис. 2 приведены импульсы напряжения и тока в режимах пробоя ($\tau_{1/2} = 0.85 \mu\text{s}$, $U_{\text{max}} = 4.8 \text{ kV}$, $p = 34.8 \cdot 10^3 \text{ Pa}$) и холостого хода для первого набора электродов ($b = 2 \text{ mm}$, $d = 4 \text{ mm}$). Из рис. 2 видно, что на заднем фронте импульса напряжения наблюдаются довольно сильные осцилляции, что связано с особенностями схемы формирования импульса напряжения источником питания. Импульс тока представляет собой затухающую периодическую функцию, с периодом, совпадающим с периодом осцилляций напряжения. Анализ показывает, что основная часть импульса тока представляет собой ток смещения через емкость, в 6–8 раз превосходящую емкость газового промежутка ($1.6 \cdot 10^{-12} \text{ Ф}$ для $d = 4 \text{ mm}$).

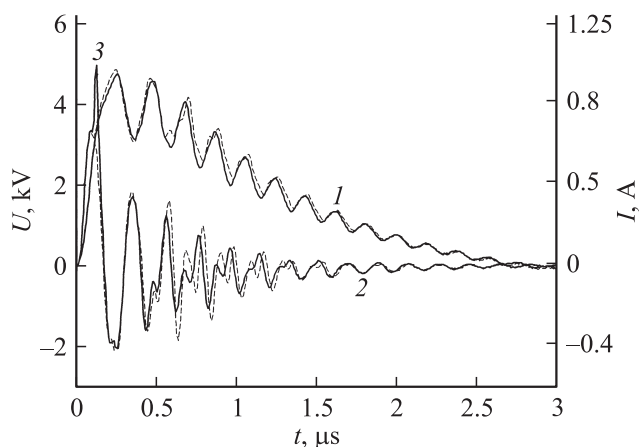


Рис. 2. Импульсы напряжения 1 и тока 2, пикок активного тока 3. Сплошная кривая — при наличии разряда, пунктир — холостой ход.

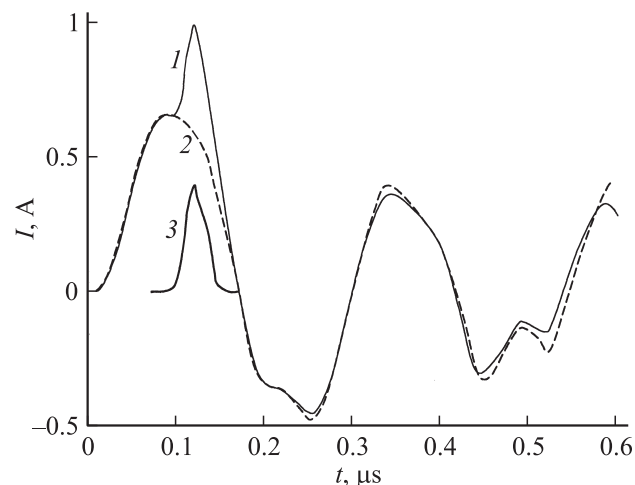


Рис. 3. Импульсы полного тока 1, тока холостого хода 2 и активного тока 3.

Активный ток наблюдается только на фоне первого положительного импульса тока, имеет длительность 10–60 ns и амплитуду 0.05–0.4 Å. В некоторых экспериментах импульс активного тока наблюдался также на первом отрицательном полупериоде суммарного тока, но его амплитуда была более чем на порядок ниже, чем первого импульса активного тока.

Импульсы полного тока, тока холостого хода и активного тока в большем временном разрешении, чем на рис. 2, представлены на рис. 3. Можно видеть, что активный ток по амплитуде и длительности существенно уступает полному току через ячейку. Значения перенесенного заряда и мощности разряда вычислялись с использованием активного тока. Активный ток в течение первого периода импульса напряжения определялся вычитанием из импульса полного тока значения тока холостого хода. В остальные моменты времени активный ток полагался равным нулю.

Зависимости электрических параметров ячейки БР от значения pd и длительности импульса напряжения приведены на рис. 4, 5. Из данных рис. 4 видно, что амплитуда импульсов тока растет с увеличением амплитуды импульсов приложенного напряжения и практически не зависит от их длительности.

Из законов подобия газового разряда следует, что амплитуда активного тока для $d = 4 \text{ mm}$ должна быть в 4 раза выше, чем для $d = 8 \text{ mm}$ (при одинаковой амплитуде напряжения и площади электродов). В нашем случае разброс в значениях амплитуды активного тока составляет 1.7–2.5 раз. Таким образом, для амплитуды импульса тока справедливо приближенное соотношение $I_{\text{max}} \sim p$ (для $pd = \text{const}$), что в пересчете на среднюю по объему разряда плотность тока соответствует соотношению $\langle j \rangle \sim p$ (в отличие от закона подобия $j \sim p^2$).

Снижение амплитуды импульсов тока с повышением pd (при $d = \text{const}$) объясняется повышением пробойного напряжения и коэффициента рекомбинации (ко-

эффицент Ланжевена) с увеличением давления [15]. Резкое снижение амплитуды тока в случае $d = 4 \text{ mm}$, $\tau_{1/2U} = 0.5 \mu\text{s}$, $U_{\text{max}} = 4.1 \text{ kV}$ (рис. 4, кривая 1) при увеличении значения pd выше $7.6 \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$ связано с незначительным превышением амплитуды приложенного напряжения величины пробойного напряжения.

Средняя длительность активного тока в зависимости от значения pd и длительности импульса напряжения приведена на рис. 5. Из рисунка видно, что закон подобия для длительности импульса тока выполняется с неплохой точностью: для $d = 4 \text{ mm}$ $\langle \tau_j \rangle = 20\text{--}30 \text{ ns}$ (низкое значение длительности импульса тока $\sim 10 \text{ ns}$ для $\tau_{1/2U} = 0.5 \mu\text{s}$ при $pd = 140 \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$ не принимаем во внимание), а для $d = 8 \text{ mm}$ $\langle \tau_j \rangle = 45\text{--}55 \text{ ns}$. Отсюда можно сделать вывод, что справедливо следующее соотношение: $\langle \tau_j \rangle \sim 1/p$.

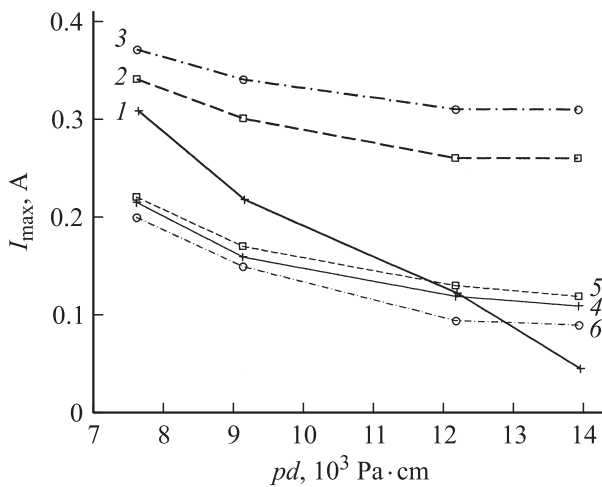


Рис. 4. Амплитуда импульса тока в зависимости от значения pd . Расстояние между электродами $d = 4$ (1–3) и 8 mm (4–6); длительность импульса напряжения на полувысоте $\tau_{1/2U} = 0.5$ (1), 0.65 (2), 0.85 (3), 1 (4), 1.3 (5) и $1.7 \mu\text{s}$ (6).

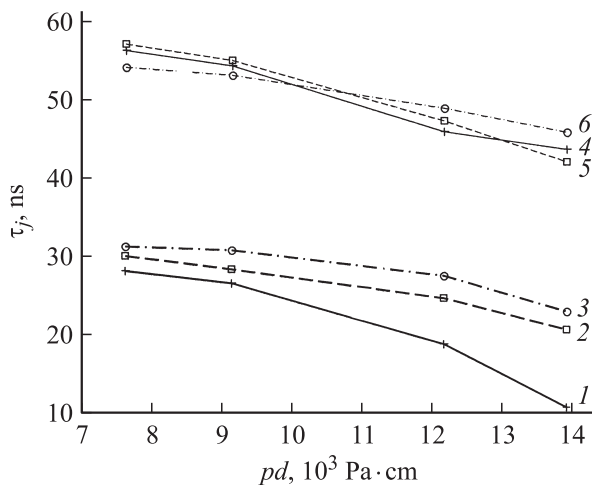


Рис. 5. Средняя длительность импульса тока в зависимости от значения pd . Остальные параметры те же, что для рис. 4.

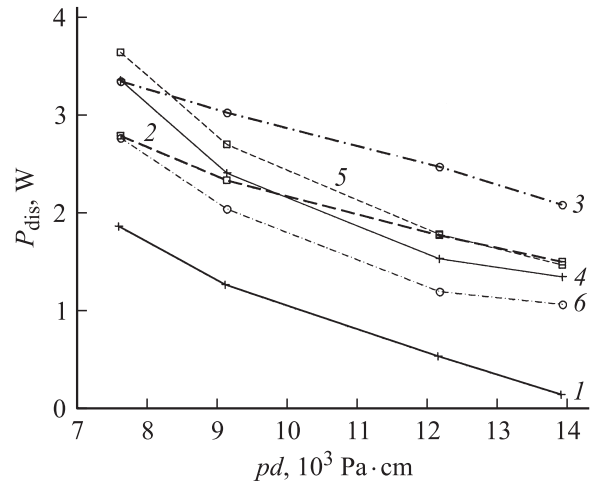


Рис. 6. Мощность разряда в зависимости от значения pd . Остальные параметры те же, что для рис. 4.

Средний заряд, перенесенный одним импульсом тока, несложно определить по формуле $q = \langle \tau_j \rangle I_{\text{max}}$. Результаты расчетов показывают, что в зависимости от условий перенесенный заряд находится в пределах $1\text{--}13 \text{ nC}$. Для перенесенного заряда приблизительно выполняется следующее соотношение: $q \sim \text{const}$, т. е. заряд практически не зависит от давления (в соответствии с законом подобия $q \sim p$). Очевидно, что этот результат связан с тем, что в наших экспериментах при $pd = \text{const}$ для амплитуды и длительности импульса тока справедливы соотношения $I_{\text{max}} \sim p$, $\langle \tau_j \rangle \sim 1/p$.

Средняя мощность, рассеиваемая разрядом, представлена на рис. 6. Максимальная мощность, рассеиваемая зарядом, составляет около 3.7 W . Если отвлечься от результатов, полученных для $\tau_{1/2U} = 0.5 \mu\text{s}$, то можно сделать вывод, что мощность разряда при $pd = \text{const}$ практически не зависит от давления: $P_{\text{dis}} \sim \text{const}$. Данный результат можно легко объяснить, если учесть, что $P_{\text{dis}} \sim \langle \tau_j \rangle I_{\text{max}} U_{\text{max}}$ (частота импульсов напряжения в наших экспериментах была постоянной и не зависела от давления). Отсюда, используя соотношения $U_{\text{max}} \sim \text{const}$, $I_{\text{max}} \sim p$, $\langle \tau_j \rangle \sim 1/p$, получаем: $P_{\text{dis}} \sim \text{const}$.

Таким образом, в проведенных экспериментах законы подобия газового разряда выполняются лишь частично: длительность процесса разряда подчиняется закону подобия, а средняя плотность тока — нет. Поэтому законам подобия не удовлетворяют также значения перенесенного заряда и мощности, рассеиваемой разрядом. Возможные причины такого отклонения от законов подобия будут рассмотрены ниже.

УФ-излучение разряда

Результаты обработки экспериментов по измерению параметров УФ-излучения полосы $B \rightarrow X$ оксиплекса KrCl^* (222 nm) приведены на рис. 7–9.

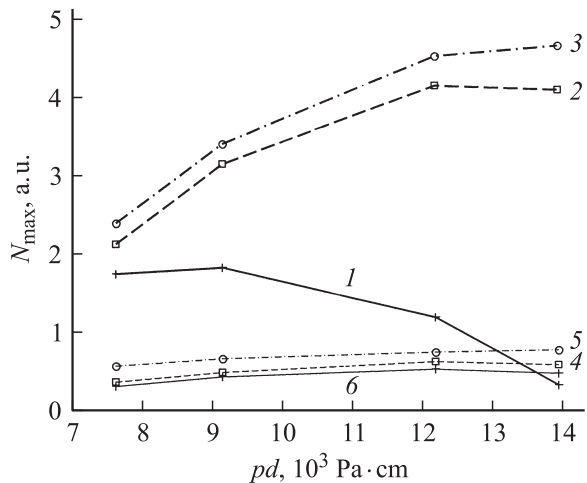


Рис. 7. Амплитуда импульсов УФ-излучения в зависимости от значения pd . Остальные параметры те же, что для рис. 4.

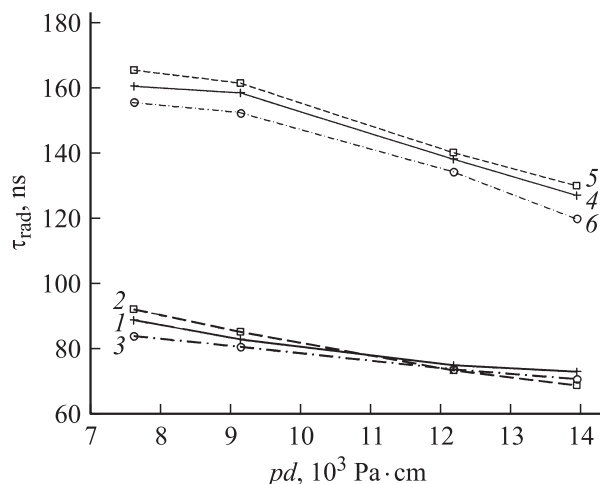


Рис. 8. Средняя длительность импульса УФ-излучения в зависимости от значения pd . Остальные параметры те же, что для рис. 4.

На рис. 7 представлены амплитуды импульсов УФ-излучения в зависимости от значения pd расстояния между электродами и длительности импульса напряжения. Из данных рисунка можно сделать следующие выводы:

- 1) амплитуда импульсов УФ-излучения для случая $d = 4 \text{ mm}$ в 7–9 раз выше, чем в случае $d = 8 \text{ mm}$ (случай $\tau_{1/2U} = 0.5 \mu\text{s}$ исключаем из рассмотрения по причинам, изложенным выше) и при $pd = \text{const}$ $N_{\text{max}} \sim p^3$;
- 2) амплитуда импульсов излучения увеличивается при повышении амплитуды напряжения;
- 3) максимум амплитуды УФ-излучения находится в области $pd = (10–15) \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$, причем при увеличении амплитуды напряжения положение максимума амплитуды УФ-излучения смещается в область больших значений pd .

Средняя длительность импульса УФ-излучения τ_{rad} представлена на рис. 8. Можно видеть, что τ_{rad} для случая $d = 4 \text{ mm}$ составляет 70–90 ns, а для $d = 8 \text{ mm}$ — 120–170 ns, т.е. приблизительно в 3 раза больше, чем длительность импульса тока. Для $d = 8 \text{ mm}$ наблюдается незначительное уменьшение длительности импульса УФ-излучения при понижении амплитуды приложенного напряжения; $d = 4 \text{ mm}$ такой зависимости нами замечено не было. Также отметим монотонное снижение длительности импульса УФ-излучения при повышении значения pd . Таким образом, длительность импульса УФ-излучения при $pd = \text{const}$ удовлетворяет соотношению: $\tau_{\text{rad}} \sim 1/p$.

Средняя мощность УФ-излучения приведена на рис. 9. Полная мощность излучения разряда определялась с помощью соотношения

$$P_{\text{rad}} \approx \frac{4\pi L^2}{S_p T} P_f, \quad (1)$$

где P_{rad} , P_f — полная мощность излучения и мощность излучения, зарегистрированная фотоприемником; L — расстояние от центра области разряда до фотоприемника; S_p — площадь чувствительной области фотоприемника; T — коэффициент пропускания выходного окна кюветы БР на длине волны 222 nm ($T \approx 0.85$).

Оценки, выполненные на основе более точного соотношения, приведенного в работе [11], показывают, что для параметров, использованных в экспериментах, погрешность соотношения (1) не превышает 1%.

Из рис. 9 видно, что максимальная мощность УФ-излучения составляет около 0.23 W. Кроме этого, можно отметить следующее:

- 1) мощность излучения для случая $d = 4 \text{ mm}$ в 3–5 раз выше, чем в случае $d = 8 \text{ mm}$ (случай $\tau_{1/2U} = 0.5 \mu\text{s}$ не рассматриваем);
- 2) мощность УФ-излучения увеличивается при повышении амплитуды напряжения;

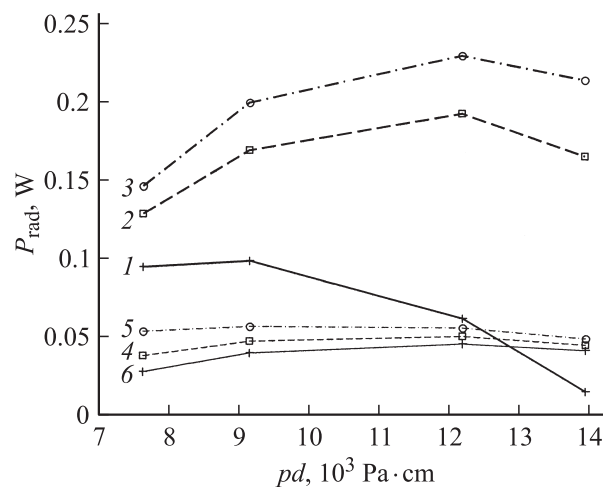


Рис. 9. Мощность УФ-излучения в зависимости от значения pd . Остальные параметры те же, что для рис. 4.

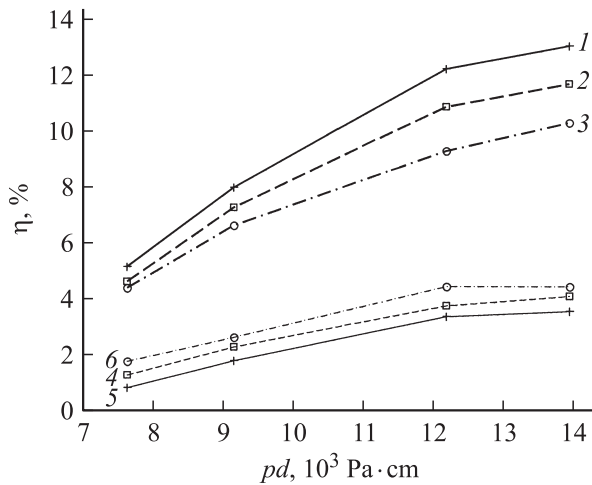


Рис. 10. Эффективность УФ-излучения η в зависимости от значения pd . Остальные параметры те же, что для рис. 4.

3) максимум мощности УФ-излучения находится в области $pd = (12-13) \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$.

Из данных рис. 9 можно сделать следующий вывод: при $pd = \text{const}$ $P_{\text{rad}} \sim p^2$. Это также следует из соотношений: $N_{\text{max}} \sim p^3$, $\tau_{\text{rad}} \sim 1/p$ и $P_{\text{rad}} \sim \tau_{\text{rad}} N_{\text{max}} \sim p^2$ (в экспериментах частота импульсов напряжения не зависела от давления).

На рис. 10 представлена эффективность излучения разряда. Эффективность УФ-излучения η определялась по формуле

$$\eta = \frac{P_{\text{rad}}}{P_{\text{dis}}}. \quad (2)$$

Из рис. 10 видно, что максимальная эффективность излучения составляет около 13% ($\tau_{1/2U} = 0.5 \mu\text{s}$, $pd = 14 \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$), а максимальной мощности излучения 0.23 W ($\tau_{1/2U} = 0.85 \mu\text{s}$, $pd = 9 \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$) соответствует эффективность около 9%. Эти значения близки к эффективности УФ-излучения смеси Kr/Cl_2 , полученной в работе [9].

Для эффективности излучения справедливы следующие закономерности:

1) для случая $d = 4 \text{ mm}$ η в 3–5 раз выше, чем в случае $d = 8 \text{ mm}$;

2) эффективность излучения уменьшается при повышении амплитуды напряжения;

3) в исследованном диапазоне $pd = (7.6-14) \times 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$ эффективность излучения растет (с тенденцией к насыщению) при увеличении pd . Поэтому можно сделать следующий вывод: при $pd = \text{const}$ $\eta \sim p^2$.

В качестве иллюстрации на рис. 11 представлены импульсы активного тока и свечения для $\tau_{1/2U} = 0.85 \mu\text{s}$, $p = 35 \cdot 10^3 \text{ Pa}$ и $\tau_{1/2U} = 1.7 \mu\text{s}$, $p = 17.5 \cdot 10^3 \text{ Pa}$. Видно, что максимум импульса излучения для $\tau_{1/2U} = 1.7 \mu\text{s}$ возникает приблизительно на 50 ns позже, чем максимум импульса излучения для $\tau_{1/2U} = 0.85 \mu\text{s}$. Промежуток

времени импульсами тока и излучения составляет около 100 ns (для $\tau_{1/2U} = 0.85 \mu\text{s}$, $p = 35 \cdot 10^3 \text{ Pa}$) и 120 ns ($\tau_{1/2U} = 1.7 \mu\text{s}$, $p = 17.5 \cdot 10^3 \text{ Pa}$).

Графики зависимости импульсов тока и излучения от давления для случая $\tau_{1/2U} = 0.85 \mu\text{s}$, $d = 4 \text{ mm}$, $U_{\text{max}} = 4.8 \text{ kV}$ приведены на рис. 12. Можно видеть, что при увеличении давления происходит не только уменьшение амплитуды и длительности импульсов токов, но и их незначительное запаздывание по времени (на несколько наносекунд). Очевидно, это связано с тем, что при увеличении pd происходит увеличение значения пробойного напряжения и разряд происходит при несколько больших значениях напряжения, т.е. немного позже по времени. Величина запаздывания определяется крутизной переднего фронта импульса напряжения.

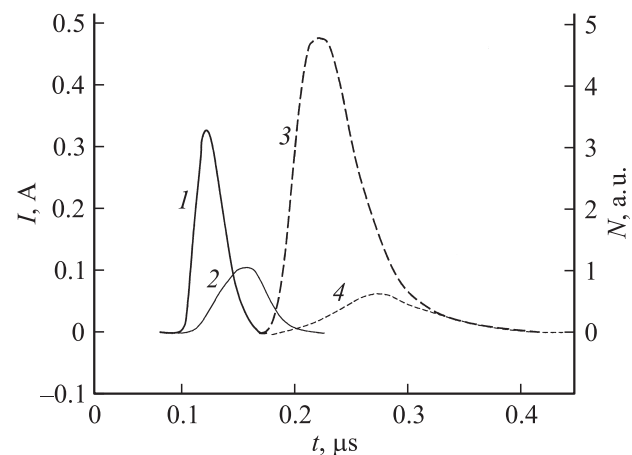


Рис. 11. Импульсы активного тока I , 2 и свечения 3, 4 для $\tau_{1/2U} = 0.85 \mu\text{s}$ ($d = 4 \text{ mm}$, $U_{\text{max}} = 4.8 \text{ kV}$, $p = 34.8 \cdot 10^3 \text{ Pa}$) I , 3 и $\tau_{1/2U} = 1.7 \mu\text{s}$ ($d = 8 \text{ mm}$, $U_{\text{max}} = 4.3 \text{ kV}$, $p = 17.4 \cdot 10^3 \text{ Pa}$) 2, 4.

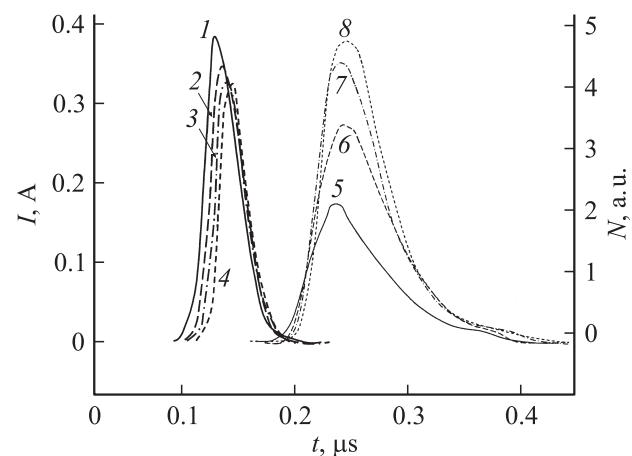
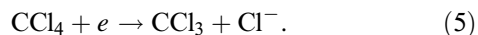
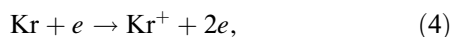
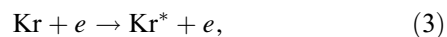


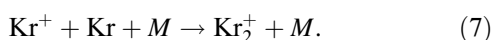
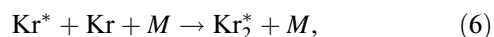
Рис. 12. Импульсы активного тока ($I-4$) и свечения ($5-8$) для $\tau_{1/2U} = 0.85 \mu\text{s}$ ($d = 4 \text{ mm}$, $U_{\text{max}} = 4.8 \text{ kV}$) для различных давлений: 19 (I , 5), 22.8 (2 , 6), 30.4 (3 , 7) и $34.8 \cdot 10^3 \text{ Pa}$ (4 , 8).

Основные плазмохимические процессы

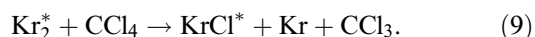
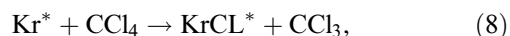
Рассмотрим основные плазмохимические процессы, происходящие в смеси Kr/CCl₄ и приводящие к образованию эксиплексов KrCl* [14,16]. Это, во-первых, процессы ударного возбуждения и ионизации атома Kr и диссоциации молекулы CCl₄.



Во-вторых, процессы образования эксимеров и молекулярных ионов Kr₂^{*}, Kr₂⁺ (*M* — третья частица)



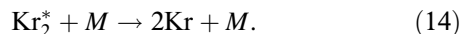
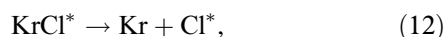
В-третьих, „гарпунные“ реакции



И в-четвертых, процессы ион-ионной рекомбинации



Каналами гибели эксиплекса KrCl* и эксимера Kr₂^{*} являются реакции преддиссоциации и тушение при столкновении с третьей частицей



При умеренных давлениях молекулы KrCl* формируются путем образования в ходе электронного удара возбужденных атомов и ионов криптона (3), (4), и далее в реакциях (5)–(11), но в основном при участии „гарпунной“ реакции (8). Вклад трехчастичных реакций (10), (11), а также „гарпунной“ (9), происходящей с участием эксимера криптона, остается небольшим при давлении до $\sim 10 \cdot 10^3$ Па.

С увеличением давления включаются трехчастичные реакции ион-ионной рекомбинации (10), (11) и „гарпунная“ реакция (9), что сопровождается увеличением мощности УФ-излучения эксиплекса KrCl*. С другой стороны, при высоких давлениях наблюдается увеличение количества процессов безызлучательного распада эксимеров и эксиплексов (13), (14), что приводит к снижению мощности излучения эксиплампы [14].

Плазмохимические процессы с участием электронов

Известно, что разрешенными по отношению к законам подобия газового разряда являются следующие плазмохимические процессы [8]: 1) ионизация при однократных столкновениях; 2) прилипание и отрыв электронов; 3) дрейф и диффузия заряженных частиц; 4) вторичная электронная эмиссия, а также процесс фотоэмиссии с катода; 5) перезарядка ионов и молекул; 6) эффект Пеннинга.

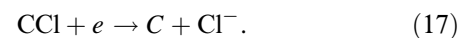
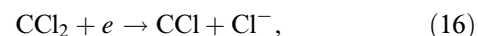
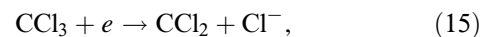
Рассмотрим плазмохимические процессы с участием электронов с точки зрения выполнения законов газового разряда.

Реакция ионизации и возбуждение электронным ударом (3)–(5) являются разрешенными процессами, поскольку в этом случае скорость образования ионов и возбужденных состояний пропорциональна концентрации электронов n_e и нейтральных частиц n_0 : $\partial n/\partial t \sim n_e n_0 \sim p^2$. Кроме того, законам подобия также удовлетворяют процессы прилипания электронов (например, в процессах $\text{CCl}_4 + e \rightarrow \text{CCl}_4$ и $\text{Cl} + e \rightarrow \text{Cl}^-$).

Поскольку закон подобия для длительности импульсов тока в наших экспериментах выполняется, можно считать, что временное поведение плазмохимических процессов, происходящих с участием электронов, подчиняется закону подобия $\tau_e \sim 1/p$. Поэтому ниже будем полагать этот закон справедливым.

С другой стороны, как показывают результаты наших экспериментов, $\langle j \rangle \sim p$, т.е. законы подобия газового разряда для средней плотности тока и, следовательно, для средней концентрации электронов, не выполняются. Объяснение этого эффекта зависит от того, в какой фазе существует разряд — диффузной или филаментарной (нитевидной).

В случае диффузного разряда $\langle j \rangle = j \sim p$ и соответственно $\langle n_e \rangle = n_e \sim p$, т.е. законы подобия нарушаются локально. К процессам, которые могут приводить к нарушению законов подобия, относятся последовательное разложение молекулы CCl₄ электронным ударом (5) и (15)–(17) [17]:



Действительно, если концентрация CCl₃, как это следует из уравнения (5), пропорциональна концентрации электронов (считаем, что $\tau_e \sim 1/p$) $[\text{CCl}_3] \sim n_e$, то для концентраций CCl₂ и CCl выполняются следующие соотношения: $[\text{CCl}_2] \sim n_e^2/p$, $[\text{CCl}] \sim n_e^3/p^2$. Если концентрация электронов удовлетворяет закону подобия $n_e \sim p^2$, то $[\text{CCl}_3] \sim p^2$, $[\text{CCl}_2] \sim p^3$, $[\text{CCl}] \sim p^4$, т.е. в этом случае при повышении давления соотношение для концентрации компонент плазмы разряда не сохраняется. Сохранение соотношений концентраций n_e , $[\text{CCl}_3]$,

[CCl₂] и [CCl], которые активно участвуют в реакциях с электронами, может быть достигнуто при выполнении условия $n_e \sim p$. В этом случае, как это несложно видеть, [CCl₃] \sim [CCl₂] \sim [CCl] $\sim p$.

Таким образом, последовательные реакции разложения CCl₄ (15)–(17) приводят к нарушению законов подобия и ограничению концентрации электронов на уровне $n_e \sim p$. С другой стороны, влияние данных процессов должно сказываться лишь при достаточно высоких давлениях CCl₄. В наших экспериментах парциальное давление CCl₄ не превосходило $2.3 \cdot 10^2$ Па, поэтому вклад процессов (15)–(17) вряд ли является значительным.

Для разряда филаментарного типа важными параметрами являются число филаментов, существующих в данный момент времени N , объем одного филамента V_f и концентрация электронов в филаменте n_e . Объем одиночного филамента зависит от давления следующим образом: $V_f \sim 1/p^2$ (тепловая диффузия электронов приводит к закону расширения радиуса филамента по закону $r \sim l^2 \sim 1/p^2$ [17]). Для средней концентрации электронов в области разряда имеем следующее выражение:

$$\langle n_e \rangle \sim n_e N V_f / V \sim p n_e N. \quad (18)$$

Ниже будут рассмотрены следствия, выведенные как из закона $n_e \sim p$, полученного для случая диффузного разряда, так и в предположении справедливости закона $n_e \sim p^\alpha$ для филаментарного разряда (при этом $\langle n_e \rangle \sim p$), где α — некоторый параметр.

Плазмохимические процессы, приводящие к образованию эксиплексов KrCl*

Рассмотрим плазмохимические процессы, приводящие к образованию эксиплексов KrCl*, с точки зрения законов подобия газового разряда. Ниже будем считать, что выполняются следующие соотношения: $\tau_e \sim 1/p$, $\langle n_e \rangle \sim p$, $n_e \sim p^\alpha$.

Амплитуда импульсов излучения пропорциональна концентрации эксиплексов и объему области излучения V_{rad} : $N_{\text{max}} \sim [\text{KrCl}^*] V_{\text{rad}}$. Для мощности излучения справедливо соотношение $P_{\text{rad}} \sim \tau_{\text{rad}} N_{\text{max}}$. Считая, что $V_{\text{rad}} \approx N V_f$, и пользуясь соотношением (18), имеем $N_{\text{max}} \sim [\text{KrCl}^*] \langle n_e \rangle V / n_e$. В результате получаем следующие соотношения: $N_{\text{max}} \sim [\text{KrCl}^*] / p^\alpha$, $P_{\text{rad}} \sim [\text{KrCl}^*] / p^{\alpha+1}$.

Рассмотрим зависимости концентраций основных компонент плазмы от давления. Например, концентрации резонансных и метастабильных состояний (³P_{1,2}) атомов ксенона Kr*, ионов ксенона Kr⁺ и хлора Cl⁻, в соответствии с процессами (3)–(5), пропорциональны концентрации электронов: [Kr*, Kr⁺, Cl⁻] $\sim n_e \sim p^\alpha$. Получающаяся в результате „гарпунной“ реакции (8) концентрация эксиплексов KrCl* также пропорциональна концентрации электронов: [KrCl*] $\sim n_e \sim p^\alpha$.

В соответствии с реакциями (6), (7) концентрация молекулярных ионов Kr₂⁺ и эксимеров ксенона Kr₂* удовлетворяют следующим соотношениям: [Kr₂⁺, Kr₂*] $\sim p^{\alpha+1}$. Такую же зависимость от давления имеет концентрация эксиплексов KrCl*, нарабатывающихся в результате гарпунной реакции (9): [KrCl*] $\sim p^{\alpha+1}$.

Для реакций ион-ионной рекомбинации (10) и (11) имеем следующие соотношения:

1) для случая образования эксиплексов KrCl* в реакциях рекомбинации атомарных ионов криптона и хлора (10) [KrCl*] $\sim p^{2\alpha}$;

2) для реакции рекомбинации молекулярного иона криптона и иона хлора (11) [KrCl*] $\sim p^{2\alpha+1}$.

В реальных условиях в образовании эксиплексов KrCl* принимают участие все вышеперечисленные реакции (8)–(11). При увеличении давления относительный вклад этих реакций в генерацию эксиплексов KrCl* возрастает в следующей последовательности:

1) гарпунная реакция с участием резонансных и метастабильных состояний (³P_{1,2}) атома ксенона Kr* (8);

2) ион-ионная рекомбинация с участием атомарного иона ксенона Kr⁺ (10);

3) „гарпунная“ реакция с участием эксимера ксенона Kr₂* (9);

4) ион-ионная рекомбинация с участием молекулярного иона ксенона Kr₂⁺ (11).

Для определения параметра α воспользуемся результатами экспериментов, из которых следует, что $N_{\text{max}} \sim p^3$. Получаем следующее соотношение для концентрации эксиплексов: [KrCl*] $\sim p^{\alpha+3}$. Данному соотношению удовлетворяют реакции (10) и (11) для $\alpha = 3$ и 2 соответственно. Следовательно, можно предположить, что в наших экспериментах основной вклад в образование KrCl* вносят реакции ион-ионной рекомбинации (10) и (11), причем разряд происходит в филаментарном режиме (что согласуется с результатами экспериментов).

Из проведенного анализа определить значение α (2 или 3) не представляется возможным, но можно отметить, что значение $\alpha \approx 2$ позволяет удовлетворить законам подобия газового разряда для локальных (в области филаментов) концентраций электронов и ионов. В пользу значения $\alpha \approx 2$ говорят также результаты работ [18,19], в которых исследовался эффект нормальной плотности тока в БР.

Заключение

Анализ экспериментов по исследованию законов подобия газового разряда при возбуждении смеси Kr/CCl₄ (150:1) барьерным разрядом показал следующее:

1) амплитуда активного тока в экспериментах находилась в пределах 0.05–0.4 А. Для амплитуды тока справедлива приблизительная закономерность $I_{\text{max}} \sim p$ ($pd = \text{const}$), что в пересчете на среднюю по объему разряда плотность тока соответствует соотношению

$\langle j \rangle \sim p$, т.е. по отношению к $\langle j \rangle$ закон подобия ($j \sim p^2$) не выполняется;

2) средняя длительность импульса тока составила 10–60 ns и при $pd = \text{const}$ удовлетворяла соотношению $\langle \tau_j \rangle \sim 1/p$, что согласуется с законами подобия;

3) перенесенный заряд находится в пределах 1–13 нС. Для перенесенного заряда при $pd = \text{const}$ приближенно выполняется соотношение $q \sim \text{const}$;

4) мощность, рассеиваемая зарядом, составила 0.2–3.7 W. В наших экспериментах мощность разряда при $pd = \text{const}$ практически не зависела от давления: $P_{\text{dis}} \sim \text{const}$;

5) максимум амплитуды УФ-излучения находится в области $dp = (10-15) \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$ и смещается в область больших значений pd при увеличении амплитуды импульсов напряжения. Для амплитуды импульсов излучения справедливо соотношение: $N_{\text{max}} \sim p^3$;

6) средняя длительность импульсов УФ-излучения составляет 70–170 ns и при $pd = \text{const}$ удовлетворяет соотношению $\tau_{\text{rad}} \sim 1/p$;

7) средняя мощность УФ-излучения составляла 0.02–0.23 W. Максимум мощности УФ-излучения находится в области $pd = (12-13) \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$. При $pd = \text{const}$ для мощности излучения справедливо соотношение $P_{\text{rad}} \sim p^2$;

8) максимальная эффективность излучения составляет около 13%, а случаю максимальной мощности излучения 0.23 W соответствует эффективность около 9%. Эффективность излучения уменьшается при повышении амплитуды напряжения и возрастает при увеличении pd (в диапазоне $(7.6-14) \cdot 10^3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}$). При $pd = \text{const}$ $\eta \sim p^2$.

Качественный анализ, проведенный в данной работе, показывает, что нарушение законов подобия газового разряда по отношению к средней плотности тока связано с тем, что в наших экспериментах разряд происходил не в диффузной фазе, а имел вид отдельных филаментов, что характерно для БР. В случае, если зависимость концентрации электронов от давления описывается соотношением $n_e \sim p^\alpha$ (при этом справедливы зависимости $\tau_e \sim 1/p$, $\langle n_e \rangle \sim p$, $[\text{KrCl}^*] \sim p^{\alpha+3}$), параметр α может принимать значения от 2 до 3 в зависимости от того, вклад какой из следующих реакций преобладает: ион-ионной рекомбинации с участием атомарного иона ксенона Kr^+ ($\alpha = 3$) или ион-ионной рекомбинации с участием молекулярного иона ксенона Kr_2^+ ($\alpha = 2$). В случае $\alpha = 2$ в области филаментов $n_e \sim p^2$, т.е. законы подобия газового разряда выполняются локально. При справедливости данного предположения основным каналом образования эксиплексов KrCl^* является рекомбинация иона хлора Cl^- и молекулярного иона ксенона Kr_2^+ .

Настоящая работа выполнена при поддержке проекта МНТЦ (№ 3098).

Список литературы

- [1] Xu X. // Thin Solid Films. 2001. Vol. 390. P. 237–242.
- [2] Esrom H. // Appl. Surf. Sci. 2000. Vol. 186. P. 1–4.
- [3] Boeuf J.P. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2003. Vol. 36. P. R53–R79.
- [4] Yu H., Xiu Z.I., Ren C.S., Zhang J.L., Wang D.Z., Wang Y.N., Ma T.S. // IEEE Interactions on Plasma Science. 2005. Vol. 33. N 4. P. 1405–1409.
- [5] Dumitrascu N., Topala I., Popa G. // IEEE Trans. on Plasma Sci. 2005. Vol. 33. N 5. P. 1710–1714.
- [6] Oppenländer T., Gliese S. // Chemosphere. 2000. Vol. 40. P. 15–21.
- [7] Kogelschatz U. // Plasma Phys. Control. Fusion. 2004. Vol. 46. P. B63–B75.
- [8] Месяц Г.А. // УФН. 2006. Т. 176. № 10. С. 1069–1091.
- [9] Callegari Th., Ganter R., Boeuf J.P. // J. of Appl. Phys. 2000. Vol. 88. N 7. P. 3905–3913.
- [10] Ouyang J., Canter R., Callegari Th., Boeuf J.P. // IEEE Transact. on Plasma Sci. 2002. Vol. 30. N 1. P. 186–187.
- [11] Пикулев А.А., Цветков В.М. // ЖТФ. 2007. Т. 77. Вып. 9. С. 22–27.
- [12] Pikulev A.A., Tsvetkov V.M. // Proc. SPIE. 2008. Vol. 6938. P. 11–17.
- [13] Ломаев М.И., Скакун В.С., Соснин Э.А., Тарасенко В.Ф., Шутц Д.В., Ерофеев М.В. // УФН. 2003. Т. 173. № 2. С. 201–217.
- [14] Boichenko A.M., Skakun V.S., Sosnin E.A., Tarasenko V.F., Yakovlenko S.I. // Laser Physics. 2000. Vol. 10. N 2. P. 540–552.
- [15] Акопян А.А., Буткевич Г.В., Дмоховская Л.Ф., Кухаркин Е.С., Лебедев Г.А., Разевиг Д.В., Сергеев А.С., Сиrotинский Л.И. Техника высоких напряжений. Ч. 1. М.: Госэнергоиздат, 1951. 292 с.
- [16] Карелин А.В. Физические основы реактора-лазера. М.: „НПП ВНИИЭМ“, 2007. 260 с.
- [17] Ретер Г. Электронные лавины и пробой в газах. М.: МИР, 1968. 392 с.
- [18] Малик Д.А., Орлов К.Е., Смирнов А.С. // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30. Вып. 21. С. 44–48.
- [19] Малик Д.А., Орлов К.Е., Мирошников И.В., Смирнов А.С. // Письма в ЖТФ. 2005. Т. 31. Вып. 12. С. 21–25.