

На правах рукописи

ГОЛОВИЦКИЙ Александр Петрович

**ТЛЕЮЩИЙ РАЗРЯД В СМЕСЯХ ИНЕРТНЫЙ ГАЗ – ХЛОР —
АКТИВНАЯ СРЕДА ИСТОЧНИКОВ МОЩНОГО
УЛЬТРАФИОЛЕТОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

01.04.04 – физическая электроника

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Санкт-Петербург – 2011

Работа выполнена в Государственном образовательном учреждении высшего профессионального образования «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет».

Научный консультант: доктор физико-математических наук, профессор
Фотиади Александр Эпаминондович

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, профессор
Бакшт Федор Григорьевич,

доктор физико-математических наук, профессор
Герасимов Геннадий Николаевич

доктор физико-математических наук, профессор
Цендин Лев Дандинсурунович,

Ведущая организация: Санкт-Петербургский государственный
университет

Защита состоится «27» октября 2011 г. в 16-00 на заседании диссертационного совета Д 212.229.01 при ГОУ ВПО «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет», 195251, Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29, II учебный корпус, аудитория 470.

С диссертацией можно ознакомиться в фундаментальной библиотеке ГОУ ВПО «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет».

Автореферат разослан “ ____ ” _____ 2011 г.

Ученый секретарь диссертационного совета,
доктор техн. наук, профессор

А.С. Коротков

I. ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Работа посвящена систематическому и детальному изучению физических свойств и особенностей кинетики плазмы тлеющего разряда низкого и среднего давления в смесях инертных газов (ксенон, криптон) и хлора — новой активной среды мощных, высокоэффективных, экологически безвредных и простых в конструкции источников некогерентного ультрафиолетового (УФ) излучения непрерывного действия.

Актуальность темы. Потребность современного общества в источниках непрерывного узкополосного УФ излучения повышенной мощности: ватты, десятки ватт и более, очень велика. Такие источники — когерентные и некогерентные — находят широкое применение в технике, фотохимических и полупроводниковых технологиях, медицине, при утилизации вредных отходов и т. д. Достоинствами некогерентных источников УФ излучения являются низкая стоимость, простота обслуживания, возможность обрабатывать большие площади и объемы, что важно при фотохимическом укреплении красителей, обеззараживании воды, воздуха в помещениях, и т. д. В некоторых процессах полупроводниковых технологий, например, при фотолитическом осаждении тонких пленок, выгодно использовать именно некогерентные источники, так как пленки, получаемые с их помощью, не имеют таких микрошероховатостей, которые получаются при использовании лазеров.

До середины 1990-х гг. единственными источниками некогерентного УФ излучения, обладавшими КПД до 60% при мощностях от единиц до тысяч ватт, являлись ртутные лампы. Но, несмотря на отличные энергетические характеристики и простоту конструкции, эти лампы обладают и существенными недостатками: спектр излучения ртути не является оптимальным для многих фотохимических процессов и технологий, а производство и утилизация ртутных ламп являются вредными и опасными и для персонала, и для окружающей среды. К началу 1990-х гг. появились первые безртутные некогерентные УФ излучатели, в которых в качестве активных частиц использовались эксимерные молекулы — галогениды инертных газов (ИГ), называемые эксимерными или эксиплексными лампами. Однако как по составу (ИГ + галогеноноситель + буферный газ) и давлению (высокому) газовых смесей, так и по способу возбуждения (импульсный разряд постоянного тока с предыонизацией или СВЧ разряд), а также по стоимости они практически мало чем отличались от эксимерных лазеров. Излучение таких ламп — импульсное, их средняя мощность не

превышала единиц ватт, а КПД — единиц процентов, что наряду со сложностью конструкции делало эти лампы неконкурентоспособными со ртутными лампами. Но достоинством эксимерных ламп являлась возможность варьирования спектра излучения посредством выбора соответствующей пары инертный газ – галоген.

В начале 1990-х гг. был предложен новый тип некогерентных эксимерных УФ излучателей (ламп) на основе барьерного разряда; КПД таких ламп на переходах молекулы Xe_2^* достигал 10%. На галогенидах ИГ КПД названных ламп был, впрочем, гораздо ниже. Излучение таких ламп — также только импульсное при длительностях 10 – 100 нс. По сравнению с вышеупомянутыми первыми эксимерными лампами, конструкции ламп на барьерном разряде были проще: они не требовали предионизации. Источниками питания служили либо мощные импульсные высоковольтные генераторы с большой частотой повторения, либо генераторы высоковольтного (до 10 кВ) синусоидального ВЧ (до 1 МГц) напряжения. Подобные источники питания по-прежнему оставались сложными и дорогими.

Итак, несмотря на назревшую потребность в альтернативных ртутным лампам мощных источниках непрерывного некогерентного УФ излучения, ничего, хотя бы отдаленно сопоставимого по простоте реализации и выходным энергетическим параметрам с ртутными лампами, создано не было.

Вышесказанное определяет актуальность исследований, направленных на поиск и комплексное изучение физических свойств новых активных сред, не содержащих ртути и способных эффективно эмиттировать мощное узкополосное УФ излучение.

Цель диссертационной работы: создание и изучение новых активных сред мощных, эффективных и экологически безвредных источников узкополосного УФ излучения на основе непрерывного тлеющего разряда низкого и среднего давления в смесях инертных газов и хлора, наряду с установлением как общих закономерностей, так и особенностей кинетики физических процессов, протекающих в плазме такого разряда, а также с определением относительной роли этих процессов в формировании зависимости выходной мощности испускаемого эксимерными молекулами УФ излучения разряда от внешних, легко контролируемых разрядных параметров.

Достижение поставленной цели потребовало решения следующих **научных задач:**

1). Определить компонентный состав смеси газов, типы и режимы разрядов, использование которых позволит создать активную среду безртутных источников УФ

излучения, способных при простоте практического осуществления обеспечить непрерывную эмиссию некогерентного мощного узкополосного УФ излучения с КПД в десятки процентов.

2). Разработать новые экспериментальные методики, позволяющие в единых условиях эксперимента провести комплексное систематическое исследование плазменно-оптических и излучательных характеристик тлеющего разряда низкого и среднего давления в смесях инертный газ – галоген в широком диапазоне изменения разрядных параметров. Оптимизировать параметры разряда с точки зрения получения максимальной мощности и КПД выхода УФ излучения. В эксперименте установить связь внешних, контролируемых параметров разряда с параметрами его плазмы.

3). На основе всестороннего анализа протекающих в исследуемых разрядах радиационных, столкновительных и диффузионных процессов выявить элементарные физические процессы, играющие наиболее существенную роль в механизмах возбуждения и дезактивации атомных и молекулярных состояний газовой смеси и определяющие ее излучательные характеристики. В случае отсутствия количественной информации об этих процессах — получить ее самостоятельно, выполнив соответствующие экспериментальные или теоретические исследования.

4). Составить замкнутую кинетическую модель активной среды источников мощного УФ излучения на основе тлеющего разряда постоянного тока в электроотрицательных смесях хлора с инертным газом, адекватную всему комплексу протекающих в среде взаимосвязанных физических процессов, позволяющую по внешним, легко контролируемым параметрам разряда определять и предсказывать как характеристики излучения разряда, так и физические свойства его плазмы.

Научная новизна работы состоит в том, что впервые

1). Обнаружено, что тлеющий разряд низкого и среднего давления в бинарных смесях ИГ и галогенов является эффективным источником непрерывного узкополосного УФ излучения, испускаемого эксимерными молекулами — галогенидами инертных газов. Достигнуты значения КПД выхода УФ излучения до 34% и удельных мощностей до 1,15 Вт/см³.

2). Установлена эффективность непрерывного высокочастотного разряда низкого давления в смеси ИГ с хлором как безртутной активной среды компактных люминесцентных источников света. Получены значения светотдачи до 40 лм/Вт.

3). Обнаружено существование двух стадий тлеющего разряда постоянного тока при наличии галогенов, в частности, хлора — сильноточной и слаботочной — со скачкообразным переходом из одной стадии в другую при изменении тока разряда. Установлено, что отличия физических свойств этих стадий определяются доминированием различных механизмов ухода электронов из пристеночных областей плазмы: у сильноточной стадии преобладает диффузионный уход, а у слаботочной — прилипание электронов.

4). Выполнен теоретический расчет коэффициента поглощения УФ излучения молекулярным хлором при температурах свыше 1000 К.

5). Посредством теоретического расчета получена зависимость сечения прилипания электронов к молекулам хлора от энергии электрона и от температуры газа от 300 до 3000 К.

6). Развита модель положительного столба тлеющего разряда низкого и среднего давления (5 – 40 Торр) в электроотрицательной смеси ИГ с хлором при плотностях токов до 50 мА/см². Новым является введение в модель функции распределения электронов по энергиям (ФРЭЭ), рассчитываемой из кинетического уравнения Больцмана, радиальной неоднородности газовой температуры и степени диссоциации молекул хлора на атомы, а также ступенчатой ионизации. Учтен и нагрев ионов электрическим полем. Рассчитанные в модели радиальные профили концентраций заряженных частиц не только качественно согласуются с ранее разработанными теориями электроотрицательных разрядов, но и количественно соответствуют экспериментальным данным. Модель позволяет воспроизвести наблюдаемые в эксперименте зависимости мощности эксимерного УФ излучения от разрядного тока в широком диапазоне составов и давлений газовой смеси, обеспечить хорошее количественное соответствие расчетных и измеренных в эксперименте радиальных распределений концентраций электронов и эксимерных молекул, а также дать физическое объяснение наблюдаемым в эксперименте зависимостям.

7). Установлено, что для достижения адекватного количественного соответствия расчетных и экспериментальных данных необходимо учитывать и саму диссоциацию молекул галогена электронным ударом, и ее радиальную неоднородность. Показана важность, а в некоторых случаях — даже необходимость учета реальных радиальных распределений температуры газа.

8). Экспериментально, а также при моделировании установлено, что и формы радиальных профилей концентраций заряженных частиц, и их абсолютные величины, а также масштабы расслоения плазмы на ион-ионную и электрон-ионную составляющие не являются однозначно связанными только с давлением и составом газового наполнения, как это постулировалось в имевшихся моделях. Показано, что структура и свойства плазмы разряда в значительной мере изменяются (иногда очень резко, например, при переходе из слаботочной стадии в сильноточную) и при изменении разрядного тока, а основным физическим процессом, ответственным за указанные изменения, является диссоциация молекул галогена электронным ударом.

Практическая значимость результатов определяется тем, что

1). Бинарные смеси инертных газов с галогенами низкого и среднего давления, предложенные в данной работе для тлеющего разряда в качестве активной среды УФ ламп, могут быть использованы (и используются) в других видах разрядов в эксимерных лампах, например, емкостном или барьерном. Экологическая безопасность таких ламп обеспечивается за счет малого содержания в них хлора — не более 0,02 – 0,1 мг.

2). Мощные (до 2 кВт) эффективные источники УФ излучения на тлеющем разряде в смесях инертных газов и галогенов уже созданы трудами сотрудников лаборатории оптических излучений института сильноточной электроники СО РАН (Томск), и успешно применяются на практике в микроэлектронике, фотохимии, медицине.

3). Разработанная в диссертации модель позволяет с достаточной для проектирования количественной точностью предсказывать выходные параметры эксимерных ламп на тлеющем разряде и обеспечивать достижение у них заданных выходных характеристик.

4). Полученная в рамках диссертации новая физическая информация о таких элементарных физических процессах, как прилипание электронов, поглощение УФ излучения молекулами хлора, дрейфовая скорость электронов в смеси инертный газ – хлор, температурная зависимость гарпунной реакции, — будет полезна для широкого круга исследователей физических свойств газового разряда.

Характер результатов. Совокупность полученных в работе экспериментальных данных и теоретических положений можно рассматривать как крупный вклад в физику активных сред приборов газоразрядной электроники, как решение крупной

научной проблемы, имеющей важное хозяйственное значение. На основе результатов теоретического и экспериментального исследования комплекса взаимосвязанных физических процессов и кинетических реакций, протекающих в положительном столбе тлеющего разряда в смеси галоген – ИГ и их кинетики, предложена новая активная среда эффективных, мощных, экологически безопасных, простых в осуществлении, и недорогих источников непрерывного узкополосного УФ излучения.

Основные положения, выносимые на защиту:

1). Тлеющий разряд постоянного тока низкого и среднего давления в смесях инертных газов и хлора является мощным и эффективным источником ультрафиолетового излучения, эмиттируемого образующимися в разряде эксимерными молекулами — галогенидами инертных газов.

2) Высокочастотный безэлектродный тлеющий разряд низкого давления в смесях инертных газов с хлором может являться активной средой экономичных, компактных и экологически безвредных люминесцентных источников света.

3). Для тлеющего разряда в смесях галогенов и инертных газов с соотношением парциальных давлений напуска более 1 : 60 характерно наличие двух существенно разных по физическим свойствам стадий — слаботочной и сильноточной. Различия их физических свойств определяются доминированием различных механизмов ухода электронов из пристеночных областей плазмы: у сильноточной стадии преобладает диффузионный уход, у слаботочной — прилипание электронов.

4). Для сечения прилипания электронов к молекуле хлора при повышении температуры от 300 до 1500 К характерны сильное возрастание сечения для энергий электронов от 0 до 4 эВ, но лишь незначительные изменения сечения для больших энергий электронов.

5). Максимальные значения концентраций эксимерных молекул и мощности УФ излучения разряда в смеси ИГ – галоген реализуются при таких его условиях, когда средние по сечению разряда скорости доминирующих механизмов гибели метастабильных атомов ИГ — ступенчатой ионизации и гарпунной реакции с молекулами галогена — становятся сравнимыми по величине.

6). Диссоциация молекул хлора электронным ударом, наряду с неоднородностью радиального распределения ее степени, является главным физическим фактором,

влияющим при изменении разрядного тока и на свойства плазмы разряда, и на образование эксимерных молекул, и на характеристики УФ излучения разряда.

Достоверность полученных результатов обусловлена успешной реализацией на практике основных научных результатов; хорошим совпадением результатов с данными, полученными другими авторами; выбором в качестве исходных принципов положений, соответствующих фундаментальным физическим законам; использованием современных методик эксперимента, современных аналитических и численных методов; хорошим количественным совпадением результатов теоретической модели с экспериментальными данными.

Личный вклад автора. Все результаты работы получены автором лично или при его определяющем участии.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения. Она содержит 317 страниц, 114 рисунков, 8 таблиц и библиографию из 210 наименований.

Апробация работы. Работы, положенные в основу диссертации, прошли апробацию на XIX, XX и XXI Intern. Conf. on Phenomena in Ionized Gases: ICPIG-XIX (Belgrad, Jugoslavia, 1989), ICPIG-XX (Pisa, Italy, 1991), ICPIG-XXI (Bochum, Germany, 1993), Междун. конф. «Физика и техника плазмы» (Минск, 1994), Всеросс. научно-техн. конф. «Инновационные наукоемкие технологии для России». (Санкт-Петербург, 1995), IV Междун. конф. «Актуальные проблемы электронного приборостроения АРЕИЕ – 98» (Новосибирск, 1998), IV Междун. выставка-конгресс «Высокие технологии. Инновации. Инвестиции»: High-Tech-99. (Санкт-Петербург, 1999), X Всеросс. конф. по физике газового разряда ФГР – 2000. (Рязань, 2000), V Междун. конф. «Актуальные проблемы электронного приборостроения АРЕИЕ – 2000» (Новосибирск, 2000), IV Междун. светотехнической конф., (Вологда, 2000).

Публикации. Результаты работы изложены в 27 публикациях, в числе которых 16 статей в изданиях, рекомендованных ВАК России и две монографии.

II. КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во **Введении** изложены мотивация и проблемы создания мощных и эффективных источников непрерывного УФ излучения, альтернативных ртутным лампам, кратко описаны свойства эксимерных молекул, а также принципиальные отличительные

особенности разрядов в электроотрицательных газах. Показана актуальность исследований, поставлена их цель и определены задачи.

Глава 1 посвящена экспериментальному изучению тлеющего разряда низкого и среднего давления в таких смесях газов, где в плазме разряда образуются эксимерные молекулы. Изложены результаты исследований вольт-амперных (ВАХ), энергетических и спектральных характеристик разряда.

Экспериментальным путем показано, что тлеющий разряд низкого давления (ТРНД) в смесях газов, используемых в импульсных эксимерных лазерах высокого давления (таких, например, как $\text{Xe} + \text{HCl} + \text{Ne}$), как источник непрерывного УФ излучения малоэффективен. В последующих исследованиях впервые обнаружено, что ТРНД в бинарных смесях ИГ (Xe или Kr) с молекулярным хлором является мощным и эффективным эмиттером непрерывного УФ излучения, вызванного оптическими переходами эксимерных молекул XeCl^* и KrCl^* . Поэтому далее в работе исследован тлеющий разряд в смесях Xe и Kr с хлором при соотношениях $(5 - 60):1$, общих давлениях $6 - 40$ Торр и токах до 50 мА. Опытным путем установлено, что для предотвращения продольной неоднородности излучения разряда газоразрядный прибор должен иметь обводной канал, а оптимальный внутренний диаметр разрядной трубки (при котором реализуются максимальные удельные мощности УФ излучения разряда) близок к 12 мм. При бóльшем диаметре трубки разряд испытывал тенденцию к контракции, а при меньшем — наблюдалась продольная неоднородность излучения разряда, удельная мощность УФ излучения спадала.

Исследования спектральных характеристик разряда показали, что форма спектров эксимерного УФ излучения (рис. 1) слабо зависит от условий разряда; наблюдалось лишь незначительное сужение пиков при увеличении давления смеси от 6 до 40 Торр. Вклад перехода В–Х в интегральное излучение разряда составлял $\approx 70\%$ для KrCl^* и $\approx 85\%$ для XeCl^* , а вклад перехода D–Х — соответственно ≈ 30 и 15% .

При исследовании вольт-амперных характеристик (ВАХ) разрядов обнаружено существование двух стадий ТРНД в смесях ИГ и хлора: слаботочной и сильноточной. Для возникающей сразу после пробоя слаботочной стадии разряда характерны: малые плотности тока (≤ 3 мА/см²) при высоком напряжении на разряде ($4 - 10$ кВ при длине прибора 17 см), радиальная однородность и малая интенсивность видимого свечения разряда — намного меньшая, чем интенсивность УФ излучения. Слабое

повышение напряжения источника приводило к скачкообразному переходу разряда во вторую — сильноточную стадию. Ток возрастал почти на порядок, в несколько раз возрастали интенсивности и УФ, и, особенно, видимого излучения, а напряжение на разряде спадало в 1,5 – 3 раза. Разряд и на этой стадии носил диффузный характер для всех исследованных смесей и давлений, но центральные области разряда светились ярче пристеночных. Хотя удельная мощность УФ излучения на слаботочной стадии не превышала $0,15 \text{ Вт/см}^3$, что в 5 – 7 раз меньше, чем на сильноточной, но значения КПД доходили до 34%, а температура разрядной трубки была близка к комнатной, что привлекательно для практических применений разрядов на слаботочной стадии.

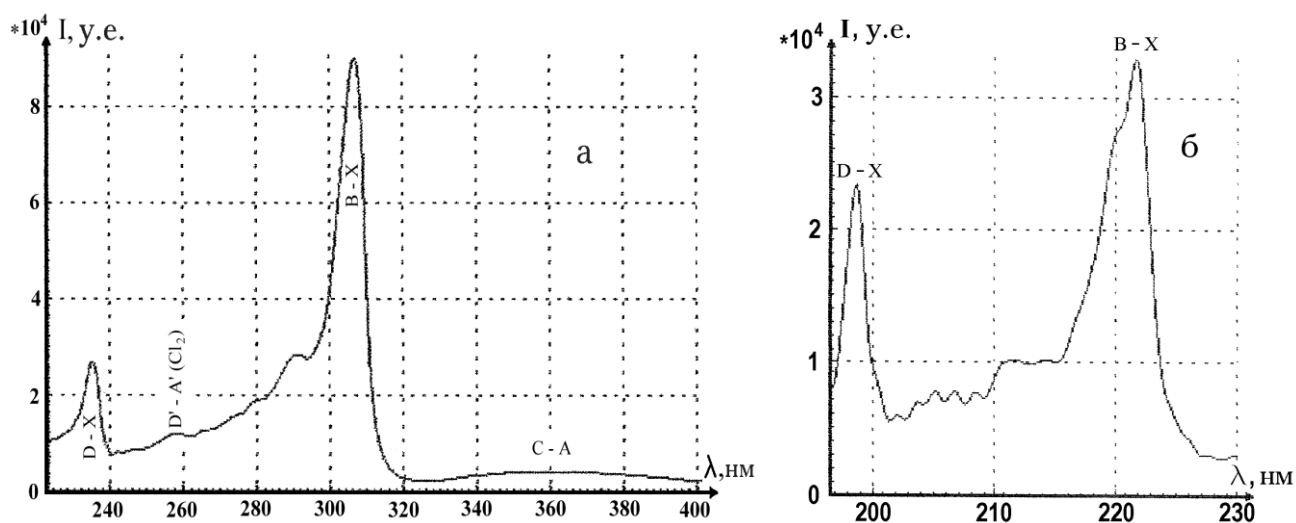


Рис. 1. Спектры излучения разряда в УФ диапазоне: а – смесь 18 Торр Хе и 0,7 Торр Cl_2 , б – смесь 18 Торр Кг и 1 Торр Cl_2

ВАХ разряда для всех составов и давлений исследованных в диссертации смесей оказались падающими. При фиксированном токе напряжение горения разряда уменьшалось при снижении доли хлора в исходном составе смеси (при напуске). Поэтому высказано предположение, что наблюдаемый на ВАХ спад напряжения при росте тока вызван уменьшением концентрации молекул хлора из-за роста степени их диссоциации. Последнее подтвердилось при моделировании разряда (гл. 4).

При изучении энергетических характеристик исследуемых сред было обнаружено, что на зависимостях мощности УФ излучения W_{UV} от разрядного тока на сильноточной стадии имеется максимум, сдвигающийся в сторону больших токов при росте общего давления и/или доли хлора в смеси (рис. 2). Оптимальные соотношения парциальных давлений (при которых достигаются большие величины W_{UV}) для смесей Хе или Кг с Cl_2 лежат в диапазоне (15 – 30):1. Наибольшие значения W_{UV}

получены на сильноточной стадии разряда при давлениях смеси 22 – 32 Торр и составляли до $1 - 1,15 \text{ Вт/см}^3$ (до 22 Вт с прибора длиной 17 см) при кпд 11 – 17%; бóльшие давления характерны для смеси $\text{Kr} + \text{Cl}_2$. Наибольшие же значения кпд (около 30 – 34%), наблюдались на слаботочной стадии и при давлениях в 3 – 4 раза меньших, чем те, при которых реализуются наибольшие W_{UV} , однако оптимальные соотношения между парциальными давлениями ИГ и хлора при этом сохраняются. Таким образом, по удельной мощности и кпд эксимерные лампы непрерывного тлеющего разряда оказываются сравнимыми со ртутными лампами. Немаловажными достоинствами эксимерных ламп на тлеющем разряде являются возможность вариации спектра излучения путем смены компонентов состава ИГ – галоген, простота конструкции и экологичность, благодаря отсутствию трудноутилизуемой и токсичной ртути и крайне малому содержанию хлора — не более 0,02 – 0,1 мг.

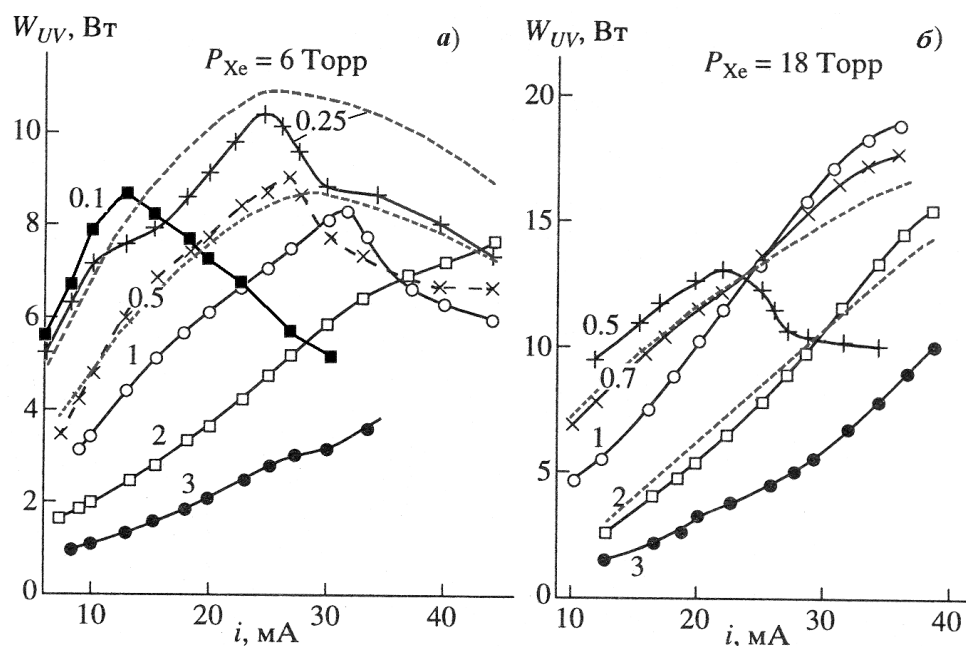


Рис. 2. Зависимости интегральной мощности эксимерного УФ излучения от разрядного тока, прибор длиной 17 см, радиус трубки 6 мм, сильноточная стадия разряда: *а* – парциальное давление Хе 6 Торр, *б* – парциальное давление Хе 18 Торр; парциальные давления Cl_2 приведены у кривых (в Торр); пунктир — результаты модельных расчетов (описаны в гл. 4)

Проанализированы результаты экспериментов, проведенных другими исследователями. Особенно впечатляет факт достижения в [1] мощностей УФ излучения эксимерных молекул XeCl^* и KrCl^* до 2 кВт в секционированном приборе длиной 4 м и общим объемом 20 л на тлеющем разряде переменного тока 50 Гц.

Проведены исследования падения напряжения на положительном столбе (ПС) разряда U_{PC} (по методу подвижного анода) и величины продольного электрического

поля в ПС E_z — параметра, определяющего скорости столкновительных процессов в плазме. Отношение U_{PC} к полному напряжению на разряде в пределах погрешностей измерений не зависело от состава и давления смеси и составляло 0,85 – 0,9; оно лишь незначительно увеличивалось с ростом разрядного тока. Величины E_z на сильноточной стадии разряда составили 60 – 150 В/см. Большие поля наблюдались для больших давлений и/или при большей доле хлора в составе смеси.

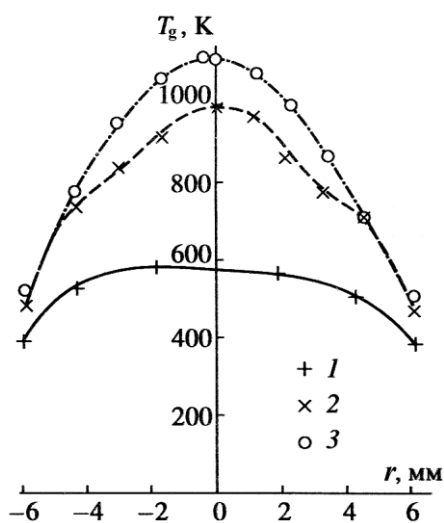
С использованием предложенного метода инверсии Абеля изучались радиальные распределения концентраций возбужденных компонентов плазмы: атомов, ионов и эксимерных молекул в зависимости от условий разряда. Обнаружено, что формы радиальных профилей всех возбужденных компонентов и, особенно, эксимерных молекул сильно зависят от тока разряда (некоторые экспериментальные результаты приведены ниже на рис. 10). Результаты этих исследований позволили предположить снижение электроотрицательности разряда и спад концентрации молекул Cl_2 с ростом тока из-за возрастания скорости диссоциации Cl_2 электронным ударом.

В экспериментальных исследованиях безэлектродного индукционного высокочастотного (ВЧ) ($f=13,56$ МГц) разряда низкого давления в смеси ИГ с хлором показана эффективность такого разряда как безртутной активной среды компактных люминесцентных источников света. Получены значения светоотдачи до 40 лм/Вт.

Глава 2 посвящена экспериментальному изучению параметров плазмы исследуемых разрядов.

Изложены теоретические предпосылки и результаты экспериментов по определению степени диссоциации молекул хлора в плазме разряда. Рассчитан (по методу Кондона [2]) коэффициент поглощения УФ излучения молекулами хлора при температурах выше 1000 К. Результаты измерений концентрации молекулярного хлора (по методу абсорбции зондирующего УФ излучения ртутной лампы), показали, что в центральной части разряда имеет место сильная диссоциация молекул Cl_2 . В пристеночной области разряда диссоциация оказалась слабее: концентрации Cl_2 в центре и у стенок могли отличаться более чем на порядок. Измерения температуры газа позволили установить, что зарегистрированная степень диссоциации в любой точке плазмы и при любых токах разряда оказывается намного большей, чем она была бы при чисто термической диссоциации, что свидетельствует в пользу гипотезы о сильной диссоциации молекул хлора электронным ударом.

Радиальные зависимости концентрации $n_e(r)$ и температуры $T_e(r)$ электронов в ПС изучаемых разрядов определялись на основе результатов спектроскопических измерений радиальных профилей интенсивностей спектральных линий по методу, основанному на решении системы уравнений баланса возбужденных уровней атомов в предположении максвелловской функции распределения электронов по энергиям (ФРЭЭ) в изучаемых разрядах. Точность определения $n_e(r)$ и $T_e(r)$ обеспечивала соответствие форм рассчитанных и экспериментально измеренных радиальных профилей населенностей атомарных уровней ИГ в пределах 8%. Обеспечивалось и соответствие форм расчетного и экспериментально измеренного распределения концентрации эксимерных молекул, однако абсолютные ее величины, рассчитанные через найденные $n_e(r)$ и $T_e(r)$, оказались заниженными в 2 – 3 раза по сравнению с опытными данными. Последнее позволило предположить невыполнение гипотезы максвелловской ФРЭЭ в плазме изучаемых разрядов. Некоторые результаты измерений $n_e(r)$ показаны ниже на рис. 9.



Методом, основанным на сопоставлении экспериментально измеренных и теоретически рассчитанных форм спектров молекулярных полос, с точностью не хуже 6% были определены радиальные распределения температуры газа $T_g(r)$ в плазме разряда (пример — на рис. 3).

Рис. 3. Поперечные распределения температуры газа, смесь 6 Торр Хе и 0,25 Торр Cl₂ при разных токах разряда: 1 – 10 мА, 2 – 25 мА, 3 – 35 мА

Глава 3 посвящена анализу элементарных столкновительных процессов, реализующихся в плазме изучаемых разрядов и выявлению тех из них, которые определяющим образом влияют на физические свойства разряда.

С использованием литературных данных о константах равновесия для реакции термодиссоциации получены аналитические выражения для степени термической диссоциации галогенов в газовом разряде — и в чистом галогене, и в его смеси с ИГ для изобарного и изохорного случаев. Показано, что наличие инертного газа мало

влияет на термодиссоциацию галогенов, которая остается почти такой же, как для чистого галогена при давлении, равном его парциальному давлению в смеси (рис. 4).

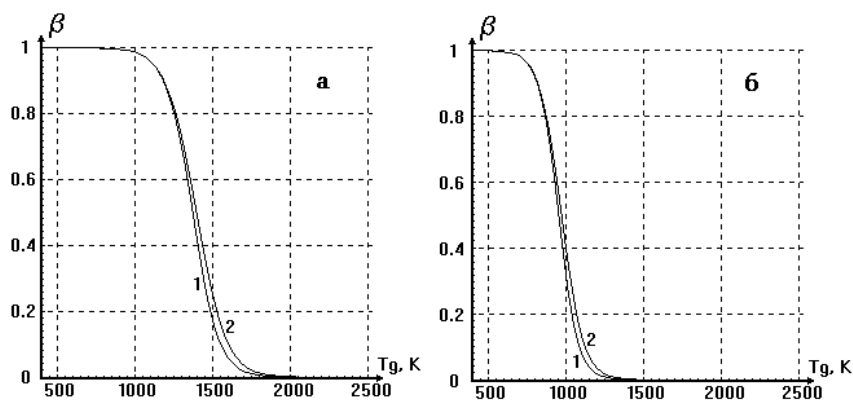


Рис. 4. Зависимость доли не подвергшихся диссоциации молекул галогена от температуры газа для случая постоянного давления: *а* – хлор, 1 – чистый хлор при давлении 0,25 Тор, 2 – смесь 6 Тор Хе и 0,25 Тор Cl_2 ; *б* – бром, 1 – чистый бром при давлении 0,25 Тор, 2 – смесь 6 Тор Хе и 0,25 Тор Br_2

Проведен анализ литературных данных о столкновительных процессах диссоциации молекул хлора с использованием полученных экспериментальных данных о параметрах плазмы в изучаемых разрядах. Установлено, что среди процессов распада молекул Cl_2 в ТРНД доминируют процессы непосредственной диссоциации молекулы электронным ударом через возбуждение состояний $B^1\Pi_u$ и $B^3\Pi_u$, совместная скорость которых в 30 – 40 раз превышает скорость всех прочих механизмов распада молекул как электронным ударом, так и в столкновениях с тяжелыми частицами (атомами, молекулами, ионами). Показано, что процессами распада молекул Cl_2 , связанными с фотодиссоциацией, можно пренебречь даже при максимальных зарегистрированных уровнях УФ излучения разряда.

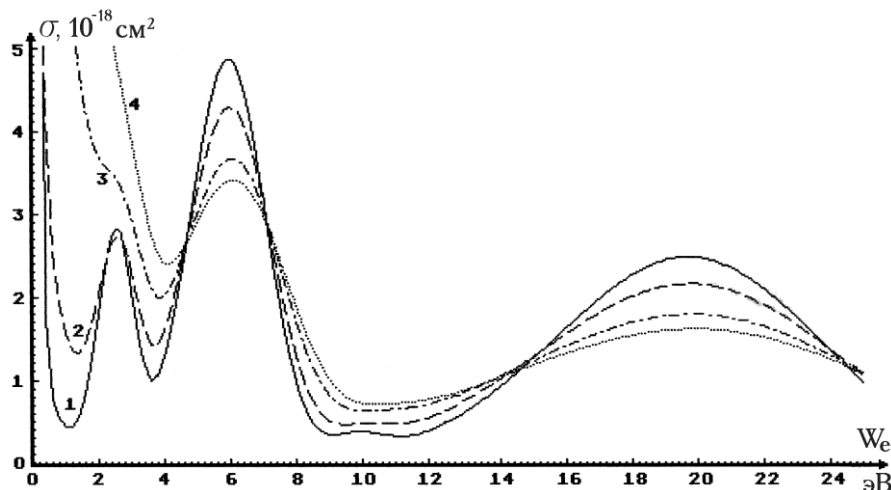


Рис. 5. Сечение диссоциативного прилипания электронов к молекуле хлора при различных температурах: 1 – 300 К, 2 – 500 К, 3 – 800 К, 4 – 1000 К

По методу отражений Кондона [2] посредством оригинального квантовомеханического расчета получена зависимость сечения прилипания

электронов к молекуле хлора как от энергии электрона, так и от температуры газа; последнее важно для определения скорости рождения отрицательных ионов в изучаемых разрядах, где значения $T_g(r)$ могут достигать до 1500 К. Показано, что при повышении температуры от 300 до 1500 К имеет место сильное возрастание сечения прилипания для энергий электронов от 0 до 4 эВ; для больших же энергий изменения сечения не так значительны — рис. 5.

Показано, что коэффициент объемной атомной рекомбинации K_{ar} по реакции $Cl + Cl + M \xrightarrow{K_{ar}} Cl_2 + M$ в смесях хлора с тяжелыми инертными газами при преобладании последних слабо зависит от сорта инертного газа М. Из анализа литературных данных получено аналитическое выражение для зависимости абсолютной величины K_{ar} от температуры газа: $K_{ar(Ar,Kr,Xe)} = 6,2 \cdot 10^{-29} \cdot T_g^{-3/2}$ см⁶/с (T_g — в К). Показана малость стеночной рекомбинации атомов по сравнению с объемной в условиях изучаемых разрядов.

Произведены оценки коэффициентов ион-ионной рекомбинации (для ионов Cl^- с ионами Cl_2^+ , Xe^+ и Xe_2^+) и их зависимостей от температуры газа. Получено значение коэффициента ион-ионной рекомбинации для реакции $Cl_2^+ + Cl^- \xrightarrow{\beta_i} Cl^* + Cl + Cl$, оно составляет $\beta_i \cong 2,9 \cdot 10^{-9} \sqrt{T_g}$ см³/с (T_g в К). В проведенном с учетом процессов перезарядки анализе ионного состава установлено, что при выполнении условия $\frac{N_{Cl_2}}{N_{Cl^-}} \geq 1/150$ в исследуемых разрядах среди положительных ионов должны преобладать ионы Cl_2^+ .

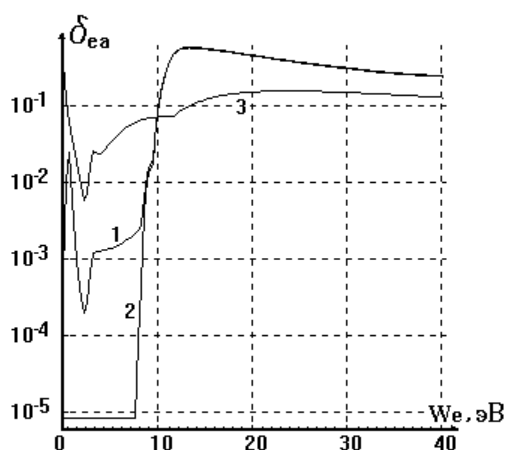
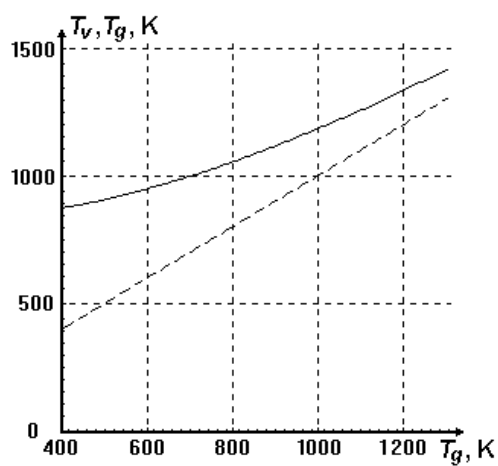


Рис. 6. Коэффициент потерь энергии электрона: 1 — в смеси Xe и Cl_2 (6 : 1), 2 — в чистом Xe, 3 — в чистом Cl_2

Выполнены расчеты релевантных сечений неупругих столкновений электрона с нейтральными компонентами разряда, а также коэффициента потерь энергии электрона при столкновениях в ксеноне, хлоре и их смеси, информация о величине

которого важна при расчетах нелокальности ФРЭЭ. Получены также выражения для доли энергии электрона, затрачиваемой на протекание какого-либо одного конкретного процесса, например, на возбуждение колебательных уровней молекулы.

Расчетным путем установлена аналитическая связь между колебательной T_v и газовой T_g температурами молекул Cl_2 в тлеющем разряде — с учетом VT- и VV-релаксации, термодиссоциации, а также диссоциации электронным ударом. Показано, что T_v в условиях тлеющего разряда лишь незначительно — не более фактора 2 — превышает T_g , причем разница убывает с ростом T_g , и при T_g свыше 1000 К не превосходит 15 – 20% (рис. 7). Связано это с достаточно малым значением энергии



колебательного кванта молекулы Cl_2 (0,0694 эВ) и со значительными потерями колебательных квантов, в основном, вследствие диссоциации молекул электронным ударом и VT-релаксации.

Рис. 7. Зависимости колебательной температуры от газовой температуры (дополнительно показана пунктиром). Показаны данные расчета для условий: напуск 6 Тор Хе и 0,25 Тор Cl_2 ; вложенная в разряд плотность мощности 1,06 Вт/см³ (соответствует току 10 мА)

Получены выражения, связывающие концентрации атомарного и молекулярного хлора в разряде при наличии диссоциации электронным ударом.

Проведен анализ существующих моделей положительного столба (ПС) разряда в электроотрицательных (ЭО) газах. Наиболее подробно рассмотрены результаты работ [3 – 8]. Главным образом, анализ был направлен на предмет возможного использования имеющихся моделей для описания конкретных исследуемых в диссертации разрядов во всем диапазоне их внешних условий, а также на выяснение достаточной полноты учета физических процессов, важных для адекватного количественного описания всего комплекса свойств разрядов, обнаруженных в экспериментах. Проанализированы детали составления модельных уравнений, их составляющие, области применимости тех или иных предположений и допущений. Отдельное внимание обращено на проблемы численного решения модельных уравнений, на упрощающие подстановки и иные приемы know-how (там, где они

упомянуты), которые позволяют упростить процесс нахождения решения, повысить его устойчивость и сократить время вычислений. Анализ выявил и недостатки имеющихся моделей. Во-первых, ни одна из них не является в полной мере самосогласованной, из них нельзя определить величину электрического поля в ПС, требуемую для поддержания разряда. Во-вторых, во всех моделях постулируется постоянство состава и концентраций компонентов нейтрального газа по радиальной координате плазмы. Для изучаемых же в диссертации разрядов, как показали экспериментальные исследования гл. 2, концентрации даже инертного газа в центре и у краев разрядной трубки могут отличаться в 2 раза (см. рис 4), а молекул хлора — более чем на порядок. В-третьих, свойства изучаемых разрядов в значительной мере зависят от разрядного тока: например, отмечена сильная зависимость от тока формы распределений концентрации эксимерных молекул, обнаружен скачкообразный переход из слаботочной стадии в сильноточную. В имеющихся же моделях связь свойств плазмы с током разряда вообще не прослежена. Сделан вывод, что ряд идей, изложенных в [3 – 8], являются, безусловно, ценными и они могут быть использованы, но непосредственно применить для описания исследуемых разрядов какую-либо из имеющихся моделей не представляется возможным.

Глава 4 посвящена разработке моделей изучаемых разрядов и анализу результатов моделирования. В работе в развитие существующих моделей ПС разрядов в ЭО газах последовательно создано несколько оригинальных моделей, которые совершенствовались и дополнялись по мере выявления их достоинств и недостатков при сравнении результатов моделирования с экспериментальными данными.

Первый вариант модели строился подобно предложенной в [3] эволюционной модели ПС разряда в ЭО газах. Новым явилось следующее: 1) полагалось, что и энергетические параметры плазмы, и концентрации нейтральных частиц зависят от радиальной координаты, 2) ФРЭЭ не считалась априори «максвелловской», она вычислялась из кинетического уравнения Больцмана, 3) учтены процессы диссоциации молекул Cl_2 на атомы и сложный ионный состав (ионы Cl^- , Cl_2^+ , Xe^+ и Xe_2^+), при разной подвижности ионов. Квазинейтральность плазмы разряда заранее не постулировалась; степень квазинейтральности явилась одним из результатов моделирования. Эволюционная модель представляла собой систему уравнений, состоящую из пяти *нестационарных* уравнений баланса для различных заряженных

частиц, уравнения Пуассона для радиального электрического поля, уравнений для потоков заряженных частиц, и уравнения баланса метастабильных атомов (далее — метастабилей) ИГ. Граничные условия (ГУ) формулировались следующим образом:

$$\left. \frac{dn_j}{dr} \right|_{r=0} = 0 \forall j; \quad n_e|_{r=R} = 0; \quad n_n|_{r=R} = 0 \quad \text{и} \quad \left. \frac{dn_n}{dr} \right|_{r=R} = 0, \quad \text{где } j = e, n, p \text{ — индексы,}$$

соответствующие электронам, отрицательным и положительным ионам. Процедура решения состояла в том, что вначале вычислялись левые части уравнений баланса заряженных частиц для произвольных стартовых профилей их концентраций,

удовлетворяющих ГУ; тем самым находились величины $\frac{\delta n_j}{\delta t}$. Далее задавалось

малое значение Δt и рассчитывались приращения концентраций заряженных частиц во времени, затем снова вычислялись левые части уравнений и т.д., моделируя процесс эволюции плазмы к стационарному состоянию, пока приращения концентраций не станут близкими к нулю. Извне задавались напряжение на разряде U_D , величина балластного сопротивления (в которую мысленно включалось и сопротивление приэлектродных частей разряда), парциальные давления газов при напуске, а также известные из эксперимента радиальные профили температуры газа $T_g(r)$ и радиус трубки R_0 . Все остальные величины, включая ток разряда I_D , вычислялись в модели.

Для ускорения расчетов и ФРЭЭ, и значения релевантных скоростных коэффициентов были вычислены заранее при помощи программы BOLSIG [9] как функции 4-х переменных: E/N , T_g , δ_{Cl_2} и δ_{Cl} — процентного содержания молекул и атомов хлора в смеси. Рассчитаны 13 четырехмерных массивов следующих величин: подвижность и коэффициент диффузии электронов μ_e и D_e ; частоты ионизации $\nu_{Xe,i}$, $\nu_{Cl_2,i}$, $\nu_{Cl,i}$; частота прилипания ν_a ; частота возбуждения метастабильных и резонансных уровней ИГ электронным ударом ν_M ; частота возбуждения бр-конфигурации Xe (5p для Kr) электронным ударом ν_{6p} ; частота ионизации с метастабильных и резонансных уровней ИГ ν_{Mi} ; $\nu_{B^1\Pi}$, $\nu_{B^3\Pi}$, $\nu_{C,D(Cl_2)}$ (в сумме эти три частоты дают частоту диссоциации молекулы Cl_2 электронным ударом) и частота e - i -рекомбинации ν_{ei} . Массивы считывались программой, решавшей

систему модельных уравнений. Для получения значений скоростей при промежуточных значениях аргументов (E/N , T_g , δ_{Cl_2} и δ_{Cl}) выполнялось линейное субтабулирование данных указанных массивов. Описанная методика вычисления скоростей столкновительных процессов соответствует приближению локальной ФРЭЭ. Учет нелокальности ФРЭЭ в эволюционной модели описан ниже.

Результаты эволюционного моделирования исследуемой среды показали, что во внутренней области разряда концентрации ионов намного превышает концентрацию электронов. Отчетливо наблюдалось расслоение плазмы на ион-ионную сердцевину и пристеночную область электрон-ионной плазмы, причем ширина последней уменьшалась с увеличением доли Cl_2 в разряде. Это хорошо согласуется с основными результатами имеющихся моделей и теоретических работ по разряду в ЭО газах [3 – 8]. Новым явилось обнаружение зависимости размеров областей ион-ионной и электрон-ионной плазмы от разрядного тока.

Эволюционная модель дала и другую ценную информацию. Подтвердилось предположение о преобладании Cl_2^+ среди положительных ионов в исследуемой плазме. Основным механизмом образования ионов Cl_2^+ оказался процесс перезарядки $Cl_2 + He^+ \rightarrow Cl_2^+ + He$, обеспечивающий как преобладание ионов Cl_2^+ , так и, несмотря на бóльшую скорость прямой ионизации He , сравнительно малую концентрацию ионов He^+ . Результаты моделирования также показали, что квазинейтральность в разрядах с отрицательными ионами соблюдается даже лучше, чем в ЭП разряде в чистом ИГ.

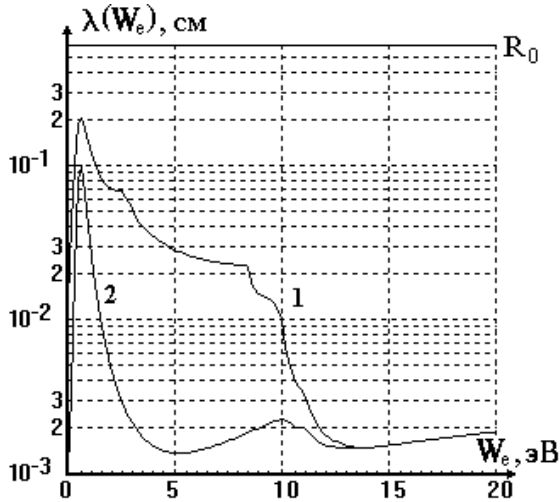
Но у данной модели выявился очень заметный недостаток, крайне затруднявший ее использование: процесс счета на персональном компьютере IBM PC занимал очень длительное время — более 80 часов для одного набора внешних условий. Этот недостаток потребовал применения радикально иной методики моделирования.

Проанализирована проблема возможной нелокальности ФРЭЭ в изучаемых разрядах. Если определить факт релаксации энергии электрона как снижение в e раз вероятности *сохранения* электроном его исходной энергии W_e после k соударений

подряд, т.е.
$$\left[\frac{\sigma^{el}(W_e)}{\sigma^{full}(W_e)} \right]^{k(W_e)} = \frac{1}{e}$$
 (здесь $\sigma^{full}(W_e)$ и $\sigma^{el}(W_e)$ — полное сечение

любых соударений и сечение упругих соударений), то длина релаксации энергии

будет $\lambda_W(W_e) = \sqrt{k(W_e)} \cdot \lambda_e(W_e) = \frac{\sqrt{k(W_e)}}{N_{\text{Xe}} \sigma_{\text{Xe}}^{\text{full}}(W_e) + N_{\text{Cl}_2} \sigma_{\text{Cl}_2}^{\text{full}}(W_e)}$ (здесь $\lambda_e(W_e)$ —



длина свободного пробега; для конкретности формула написана для смеси Хе и Cl_2). Из рис. 8 можно заключить, что величина $\lambda_W(W_e)$ в изучаемых разрядах мала: гораздо меньше радиуса трубки R_0 .

Рис. 8. Зависимости от энергии электрона: 1 — длины релаксации энергии электрона $\lambda_W(W_e)$, 2 — длины свободного пробега электрона $\lambda_e(W_e)$. Напуск 6 Тор Хе и 0,25 Тор Cl_2 , ток 10 мА, сверху показано значение радиуса трубки $R_0 = 0,6$ см

В эволюционной модели нелокальность ФРЭЭ учитывалась посредством двумерной пространственной свертки локальной ФРЭЭ с гауссовым ядром, ширина которого равна длине релаксации энергии электрона $\lambda_W(W_e)$. При оценке последней учитывался и нагрев медленных ($0,5 < W_e < 2$ эВ — см. рис. 8) электронов радиальным полем, приводивший для этих электронов к добавочному уменьшению $\lambda_W(W_e)$ в периферийной области электрон-ионной плазмы, где и сосредоточено радиальное поле. В итоге оказалось, что степень нелокальности ФРЭЭ в изучаемых разрядах мала, а влияние нелокальности на величины скоростных коэффициентов и на результаты моделирования — слабое. Для давления смеси 6,25 Торр наибольшая разница зафиксирована у скоростей прямой ионизации — около 1,6%, причем лишь в области не далее 0,5 мм от стенки трубки, где электронов вообще мало. Разница в скоростях прилипания, где процесс поддерживается, в основном, медленными электронами, оказалась еще меньше — около 1%. Причина заключается в малости длины релаксации $\lambda_W(W_e)$, вызванной значительными потерями энергии электрона даже при небольших его энергиях при возбуждении вращательных, колебательных и электронных состояний молекул хлора и при прилипанию. Поэтому ФРЭЭ при дальнейшем моделировании полагалась локальной.

На основе информации, полученной при эволюционном моделировании, была составлена не только более совершенная, но и более простая *стационарная* модель. Преобладание положительных ионов одного сорта и выполнение условия

квазинейтральности позволили сократить количество уравнений баланса заряженных частиц до двух и удалить уравнение Пуассона, а так как для стационарного состояния справедливо $\Gamma_p - \Gamma_n - \Gamma_e = 0$, то можно сократить до двух и число уравнений для радиальных потоков. В модель были добавлены процессы диссоциации молекул хлора электронным ударом и ступенчатой ионизации метастабилей ИГ, а также учтен нагрев ионов полем. Таким образом, модель представляла собой систему из 4-х уравнений и являлась самосогласованной задачей с двумя собственными значениями. Задаваемыми параметрами были парциальные давления газов при напуске, радиальные профили температуры газа $T_g(r)$, радиус трубки R_0 и ток разряда I_D . Процесс счета занимал в 20 – 40 раз меньше времени, чем в эволюционной модели. Было разработано несколько вариантов стационарной модели.

В первом варианте стационарной модели для расчета скоростных коэффициентов столкновительных процессов использовалась максвелловская ФРЭЭ. Полученные в результате моделирования формы радиальных распределений концентраций заряженных частиц находились в удовлетворительном согласии с экспериментом и с данными других моделей разряда в ЭО газах. Однако *количественного* соответствия с данными экспериментов по измерениям мощности УФ излучения разряда и распределений концентраций эксимерных молекул эта модель не обеспечила: она занижала мощность УФ излучения в 2 – 3 раза. Сделан вывод о том, что для получения количественно адекватных результатов, необходимо введение и в стационарную модель ФРЭЭ, рассчитываемую из кинетического уравнения Больцмана применительно к изучаемым разрядам.

Поэтому последующий вариант стационарной модели строился с учетом ФРЭЭ, рассчитываемой из кинетического уравнения Больцмана. Процедура расчета ФРЭЭ и скоростей столкновительных процессов была такой же, как в эволюционной модели. Проведенный анализ влияния процесса ступенчатой ионизации метастабильных атомов ИГ на ФРЭЭ показал, что хотя этот процесс и играет важную роль в балансе населенностей как самих метастабильных атомов, так и эксимерных молекул, его воздействие на ФРЭЭ крайне незначительно ввиду относительно малой концентрации метастабильных атомов, которая в исследуемых условиях разряда никогда не превышала 0,2% от концентрации атомов ИГ в основном состоянии. На основании этого сделан вывод о правомочности выполнения расчета ФРЭЭ, исходя из

плазменного инварианта E/N . В качестве собственных значений задачи были избраны величина продольного поля E_z и отношение концентраций отрицательных ионов и электронов на оси: $N_0 = n_{n0}/n_{e0}$. Все дальнейшие расчетные результаты получены именно из данного, окончательного варианта стационарной модели.

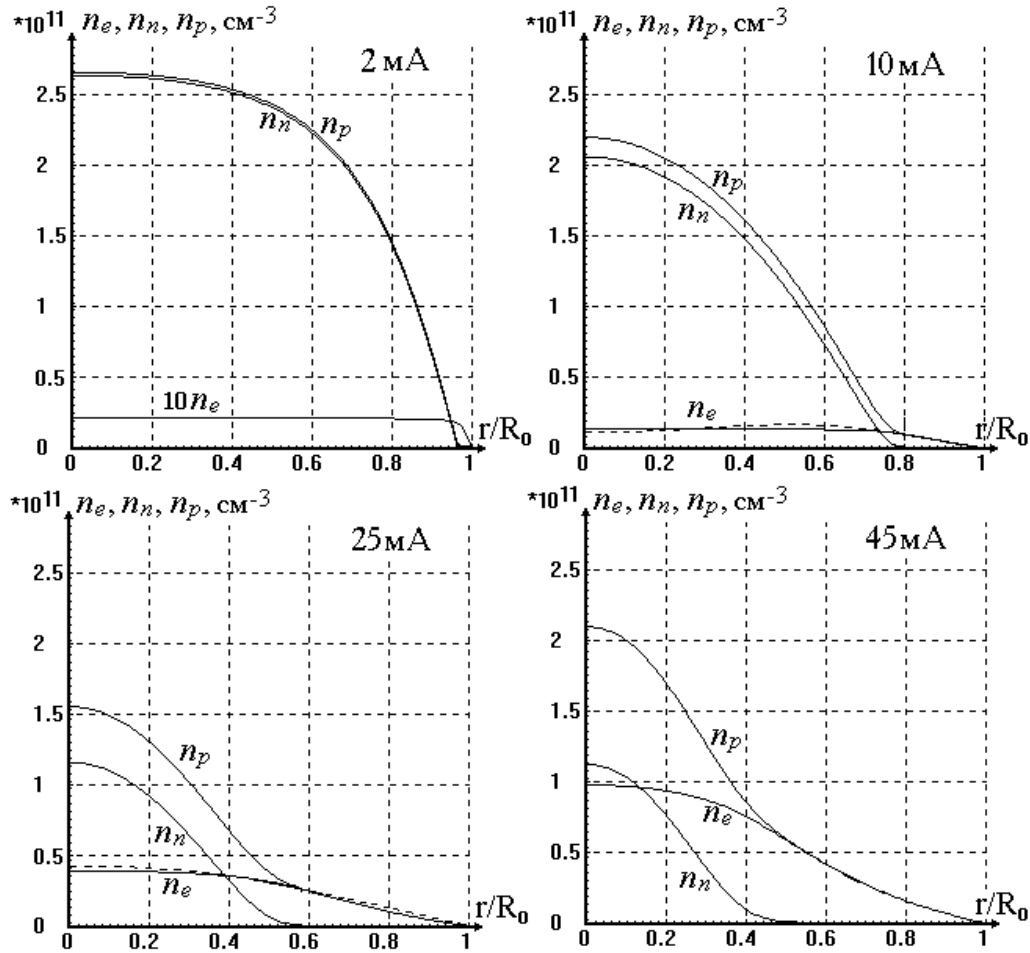


Рис. 9. Радиальные профили концентраций электронов (n_e), отрицательных (n_n) и положительных (n_p) ионов в ПС разряда; смесь 6 Торр Хе и 0,25 Торр Cl_2 , радиус R_0 6 мм, значения тока показаны на графиках; пунктир — экспериментальные данные о $n_e(r)$ (гл. 2)

Рассчитанные в рамках этого варианта модели значения E_z удовлетворительно соответствовали экспериментальным данным. Полученные в модели радиальные профили концентраций заряженных частиц не только качественно согласовывались с теориями ЭО разрядов, но и количественно соответствовали экспериментальным данным по определению $n_e(r)$ — рис. 9. Установлено, что не только абсолютные величины концентраций заряженных частиц, но и формы их радиальных профилей, а также масштабы расслоения плазмы на ион-ионную и электрон-ионную составляющие значительно изменяются при изменении разрядного тока (см. рис. 9),

что не могло быть описано ранее имевшимися моделями. Основным физическим процессом, ответственным за указанные изменения, как позволяют утверждать результаты моделирования, является диссоциация молекул Cl_2 электронным ударом.

Проведенные контрольные расчеты позволили заключить, что при моделировании ПС тлеющего разряда в смеси инертных газов и хлора обязателен учет 1) ФРЭЭ, вычисляемой из кинетического уравнения (а не максвелловской идеализации), 2) радиальных зависимостей скоростей столкновительных процессов 3) радиальной неоднородности степени диссоциации молекул хлора, 4) влияния продольного поля E_z на ионные температуры и 5) влияния ступенчатой ионизации на концентрацию метастабильных атомов ИГ. Только при учете названных факторов модель наиболее адекватно описывает весь комплекс протекающих в среде взаимосвязанных физических процессов, позволяет проводить анализ последних, *количественно* воспроизводит наблюдаемые в экспериментах (причем, не только автора диссертации, но и других авторов) зависимости мощности УФ излучения от разрядного тока в широком диапазоне составов и давлений газовой смеси (см. рис. 2), а также обеспечивает соответствие расчетных и измеренных в эксперименте радиальных распределений концентраций эксимерных молекул (рис. 10).

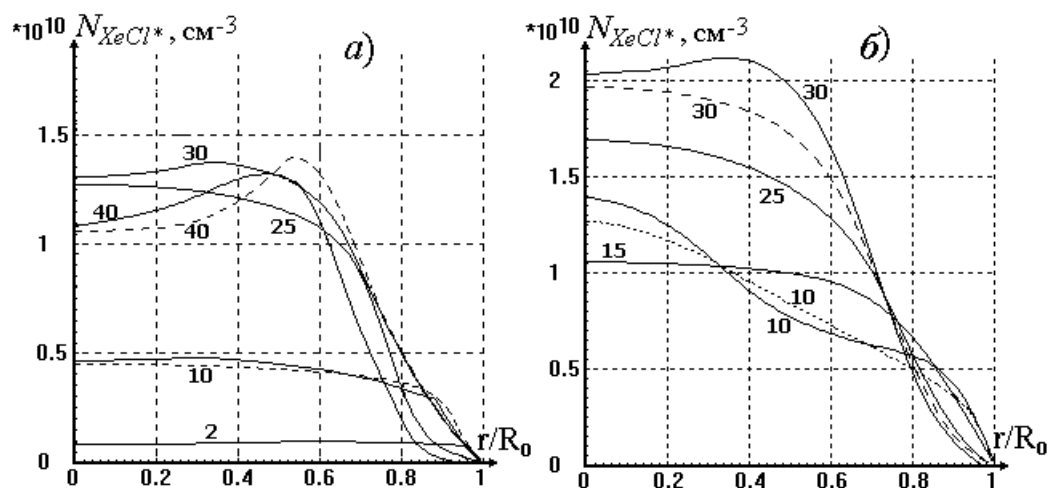


Рис. 10. Радиальные распределения концентрации эксимерных молекул N_{HeCl^*} по данным модели, пунктир — экспериментальные данные (гл. 1); а – смесь 6 Торр Хе и 0,5 Торр Cl_2 , б – 18 Торр Хе и 0,7 Торр Cl_2 ; значения тока (в мА) приведены у кривых

Анализ результатов моделирования позволил детально изучить взаимосвязь внутренних процессов в разряде и их кинетику при изменении внешних условий разряда (ток, давление, состав газовой смеси), а также дать адекватное физическое объяснение наблюдаемым в эксперименте фактам, а именно:

а). Существованию двух стадий разряда — слаботочной и сильноточной — и неустойчивости перехода между ними. На слаботочной стадии в пристеночной области разряда среди механизмов гибели электронов прилипание преобладает над диффузией, в то время как на сильноточной стадии доминирующим механизмом гибели и положительных ионов, и электронов всюду в плазме является диффузионное устранение (рис. 11). Неустойчивость перехода между двумя стадиями при принудительном увеличении тока вызвана ослаблением скорости прилипания из-за диссоциации молекул Cl_2 электронным ударом и стимулированным этим процессом лавинообразным возрастанием n_e .

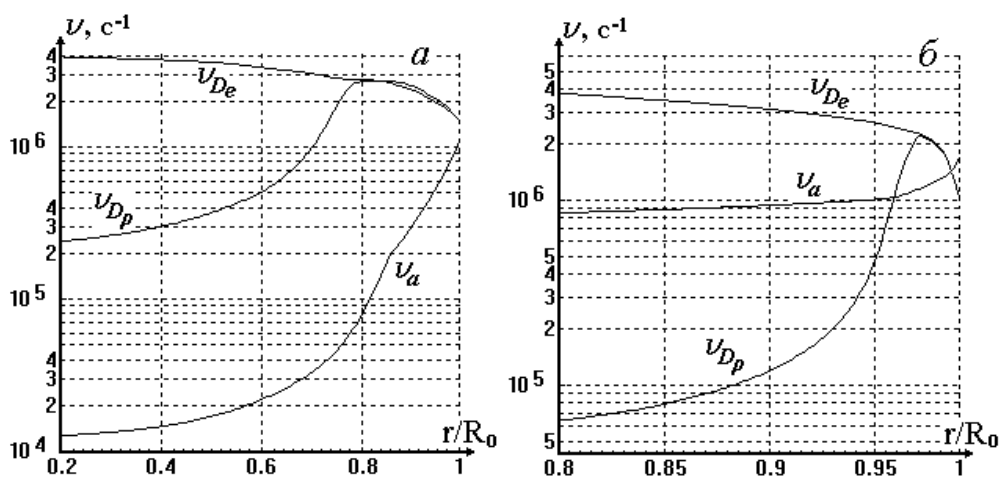


Рис. 11. Радиальные профили частот гибели заряженных частиц: прилипания электронов (ν_a), диффузионного устранения электронов (ν_{De}) и положительных ионов (ν_{Dp}) в пристеночных областях разряда при напуске 6 Торр Хе и 0,25 Торр Cl_2 , радиус трубки R_0 6 мм: а – ток 10 мА (сильноточная стадия), б – ток 2 мА (слаботочная стадия)

б). Незначительности видимого свечения разряда на слаботочной стадии. При малых разрядных токах слаботочной стадии степень диссоциации молекул хлора мала, поэтому величина $N_{\text{Cl}_2} k_h$ (скорость релаксации неметастабильных состояний ИГ в гарпунной реакции с молекулами Cl_2 : $\text{Xe}^* + \text{Cl}_2 \xrightarrow{k_h} \text{XeCl}^* + \text{Cl}$) велика: она оказывается соизмеримой со скоростью спонтанного распада или даже может превышать последнюю. Тем самым гарпунная реакция сильно снижает населенности неметастабильных состояний ИГ, что ослабляет интенсивность видимого свечения разряда. Но с другой стороны, гарпунная реакция с неметастабильными атомами ИГ приводит к увеличению концентрации эксимерных молекул и способствует

возрастанию КПД выхода УФ излучения, который именно на слаботочной стадии достигает величин 30 – 34%.

При переходе в сильноточную стадию усиливается диссоциация молекул хлора, скорость гарпунной реакции спадает. Последнее ведет и к росту концентрации неметастабильных состояний, и к тому, что в их релаксации доминирует спонтанный распад, поэтому разряд светится гораздо ярче, чем на слаботочной стадии.

в). Наличие максимума на зависимости мощности УФ излучения от разрядного тока (см. рис. 2). На сильноточной стадии концентрацию эксимерных молекул (для примера XeCl^*) N_{XeCl^*} можно представить выражением:

$$N_{\text{XeCl}^*} \cong \frac{N_{\text{Xe}} n_e \langle \sigma_{0M} v_e \rangle N_{\text{Cl}_2} k_{h(M)} \tau_{\text{XeCl}^*}}{n_e \langle \sigma_{Mi} v_e \rangle + N_{\text{Cl}_2} k_{h(M)}}, \quad (4.1)$$

где N_{Xe} , N_{Cl_2} — концентрации ксенона и молекулярного хлора, $k_{h(M)}$ — константа скорости гарпунной реакции между метастабильными Xe и молекулами Cl_2 (ведущей к образованию эксимерных молекул XeCl^*), τ_{XeCl^*} — время спонтанной релаксации молекул XeCl^* , σ_{0M} и σ_{Mi} — сечения возбуждения и ионизации метастабилей Xe электронным ударом. При небольших токах n_e мала, а диссоциация хлора слаба и $N_{\text{Cl}_2} k_{h(M)} \gg n_e \langle \sigma_{Mi} v_e \rangle$, поэтому $N_{\text{XeCl}^*} \cong N_{\text{Xe}} n_e \langle \sigma_{0M} v_e \rangle \tau_{\text{XeCl}^*}$ и непосредственно не зависит от N_{Cl_2} , а рост электронной концентрации с ростом тока вызывает возрастание N_{XeCl^*} . Но дальнейший рост n_e , вызывая рост $n_e \langle \sigma_{Mi} v_e \rangle$, одновременно вызывает уменьшение N_{Cl_2} из-за диссоциации Cl_2 электронным ударом, что снижает величину $N_{\text{Cl}_2} k_{h(M)}$. В случае соизмеримости слагаемых знаменателя (4.1) — величин $n_e \langle \sigma_{Mi} v_e \rangle$ и $N_{\text{Cl}_2} k_{h(M)}$ — концентрация эксимерных молекул N_{XeCl^*} станет зависеть от N_{Cl_2} , а поскольку N_{Cl_2} с ростом n_e из-за диссоциации убывает (а непосредственная зависимость N_{XeCl^*} от n_e ослабевает), то и N_{XeCl^*} при дальнейшем росте тока разряда станет убывать. Таким образом, максимум N_{XeCl^*} и мощности эксимерного УФ излучения реализуется при таких условиях разряда, когда скорости доминирующих механизмов гибели метастабилей ИГ — ступенчатой ионизации и гарпунной реакции с молекулами галогена — становятся сравнимыми по величине.

г). Смещению этого максимума в сторону больших токов при увеличении процентного содержания хлора (см. рис. 2). Оно обусловлено увеличением скорости гарпунной реакции наряду с уменьшением электронной концентрации в связи с ростом прилипания; поэтому критерий наличия максимума, названный в п. в), реализуется при бóльших токах.

д). Смещению этого максимума в сторону больших токов и увеличению абсолютной мощности УФ излучения в максимуме при увеличении давления (см. рис. 2). Рост давления способствует росту скорости атомной рекомбинации — процесса, противодействующего диссоциации молекул галогена — и, соответственно, ведет к увеличению скорости гарпунной реакции, поэтому критерий максимума, названный в п. в), реализуется при бóльших n_e . Увеличение же n_e вместе с увеличением концентрации атомов ИГ вызывает рост частоты возбуждения метастабилей ИГ, что наряду с указанным ускорением гарпунной реакции дает увеличение концентрации эксимерных молекул и мощности УФ излучения.

е). Снижению мощности эксимерного УФ излучения при высоком содержании галогена (см. рис. 2). Оно обусловлено снижением электронной концентрации из-за возрастания частоты прилипания.

ж). Наличие экспериментально наблюдаемого минимума радиального распределения концентрации эксимерных молекул в центре разряда при повышенных токах на сильноточной стадии (пример: рис. 10, а ток 40 мА). Величины n_e и N_{Cl_2} не постоянны по сечению трубки, а зависят от радиальной координаты: n_e максимальна в центре разряда (см. рис. 9), а N_{Cl_2} там минимальна, ибо вблизи оси разряда

диссоциация электронным ударом наиболее сильна. Поэтому величина $\frac{N_{\text{Cl}_2} k_{h(M)}}{n_e \langle \sigma_{\text{Mi}} v_e \rangle}$

(отношение слагаемых знаменателя (4.1)) может сделаться при повышенных токах меньше единицы в центральных областях плазмы, тогда как на краю эта величина еще сохранит большое значение. Такая неоднородность в соответствии с (4.1) приводит к тому, что концентрация эксимерных молекул в центре разряда станет убывать с ростом тока, а с краю — убывать не будет, и таким образом на радиальной зависимости $N_{\text{XeCl}^*}(r)$ в центре разряда сформируется минимум.

з). Наличие при повышенных давлениях и малых токах сильнооточной стадии такого вида радиальных профилей концентраций электронов $n_e(r)$ и эксимерных молекул $N_{\text{XeCl}^*}(r)$ (см. рис. 10, б, ток 10 мА), который заметно отличается от плоских профилей, предсказываемых имеющимися в литературе теориями и моделями. Причиной этого является неравномерность радиального распределения газовой температуры $T_g(r)$: она максимальна на оси разряда. Величина E/N там также максимальна, причем такова, что ионизация в центре разряда превалирует над прилипанием. Но на периферии разряда E/N спадает, и при повышенных давлениях и малых токах прилипание преобладает над ионизацией, так как там величины E/N недостаточны для эффективного размножения электронов. Поэтому вблизи оси разряда формируется локальный источник электронов, к периферии же он иссякает, а электроны оказываются там, в основном, путем диффузии из центра. В результате формируются профили $n_e(r)$ и $N_{\text{XeCl}^*}(r)$ с отчетливым максимумом в центре, т.е. с явным отличием формы от плоской. Дальнейший рост тока ведет к росту степени диссоциации молекул галогена электронным ударом, что ослабляет прилипание, а также к разогреву газа (а значит, и к росту E/N), и ионизация начинает преобладать над прилипанием всюду в объеме. Пока еще сохраняется значительная концентрация галогена, электроотрицательность разряда высока, и профили $n_e(r)$ и $N_{\text{XeCl}^*}(r)$ расширяются и уплощаются (см. рис. 10, б, ток 15 мА). При еще бóльших токах, когда диссоциация молекул галогена электронным ударом начинает заметно снижать электроотрицательность разряда, профиль $n_e(r)$ снова начинает возрастать в центре (см. рис. 9) — там, где прилипание наименьшее, а профиль $N_{\text{XeCl}^*}(r)$ снова приобретает вид кривой с максимумом в центре (см. рис. 10, б, ток 25 мА).

Таким образом, составленная в данной диссертации самосогласованная модель ПС ТРНД позволила не только адекватно описать и дать физическое объяснение наблюдаемым в эксперименте свойствам и характеристикам непрерывных УФ излучателей на основе тлеющего разряда в смеси ИГ и хлора, но и расширить физические представления о свойствах плазмы разряда в молекулярных электроотрицательных газах.

III. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В диссертации подведены итоги цикла исследований по детальному изучению физических свойств и особенностей кинетики плазмы тлеющего разряда низкого и среднего давления в бинарных смесях инертных газов и хлора — предложенной в данной работе новой активной среды эффективных, мощных, экологически безопасных и конструктивно простых источников непрерывного УФ излучения.

С помощью разработанных в диссертации методов исследования впервые в единых условиях эксперимента проведен комплекс измерений плазменных, излучательных и оптических характеристик тлеющего разряда постоянного тока в смесях ИГ с хлором в широком диапазоне разрядных условий, характерных для работы эксимерных УФ ламп. Получен большой объем количественной информации о локальных значениях параметров плазмы ПС исследуемых разрядов, о радиальных распределениях концентраций как заряженных, так и нейтральных частиц (включая эксимерные молекулы), изучена их кинетика при изменении разрядных условий.

Обнаружено существование двух стадий тлеющего разряда в сильно электроотрицательных газах — слабotoчной и сильноточной — с резким переходом из одной стадии в другую при изменении разрядного тока. Установлено, что отличия физических свойств этих стадий разряда определяются доминированием различных механизмов ухода электронов из пристеночных областей плазмы: у сильноточной стадии преобладает диффузионный уход, а у слабotoчной — прилипание электронов.

Подробно изучены элементарные физические процессы рождения и гибели заряженных частиц плазмы изучаемых разрядов, а также процессы возбуждения и дезактивации атомных и молекулярных компонентов разряда, определяющие его излучательные характеристики: прилипание электронов, ион-ионная рекомбинация, гарпунная реакция, термическая диссоциация галогенов в присутствии ИГ, диссоциация хлора в столкновениях с электронами и с тяжелыми частицами, фотодиссоциация, атомная рекомбинация. Впервые получены количественные данные о поглощении УФ излучения молекулярным хлором при повышенных температурах свыше 1000 К, а также о температурной зависимости сечения прилипания электронов к молекулам хлора. Установлена связь между колебательной и поступательной температурами молекул Cl_2 в изучаемых разрядах.

Построена замкнутая кинетическая модель ПС изучаемых разрядов. Установлено, что самосогласованная кинетическая модель ПС тлеющего разряда постоянного тока в сильно электроотрицательных газах и, в частности, в смесях инертный газ – хлор, должна строиться при условии обязательного учета в ней 1) радиальных зависимостей плазменных параметров, скоростей столкновительных процессов, газовой температуры; 2) ФРЭЭ, вычисляемой из кинетического уравнения, а не максвелловской идеализации; 3) пространственной неоднородности степени диссоциации молекул хлора; 4) влияния нагрева ионов в продольном электрическом поле E_z . Только тогда модель способна адекватно описать весь комплекс протекающих в среде взаимосвязанных физических процессов, а также проводить их анализ с количественной точностью, определять внутренние характеристики разряда и параметры излучения, проследить их кинетику при изменении внешних, легко контролируемых разрядных параметров.

Показано, что и абсолютные величины, и формы радиальных распределений концентраций заряженных частиц, а также масштабы расслоения плазмы на ион-ионную и электрон-ионную составляющие не являются однозначно связанными только с парциальными давлениями газов и радиусом трубки, как это принималось в имевшихся моделях. Излучательные характеристики, структура, состав и свойства плазмы разряда в значительной мере изменяются (иногда очень резко, например, при переходе из слаботочной стадии в сильноточную) и при изменении разрядного тока. Установлено, что основным физическим процессом, ответственным за названные изменения, является диссоциация молекул галогена электронным ударом.

Установлено, что предложенная активная среда УФ источников на тлеющем разряде постоянного тока может обеспечить на переходах эксимерных молекул удельную мощность узкополосного (не более 5 – 10 нм) УФ излучения более 1 Вт/см³, а КПД до 34%, и тем самым такие источники способны послужить достойной альтернативой традиционным газоразрядным лампам на парах ртути.

Продемонстрирована возможность использования безэлектродного ВЧ индукционного разряда низкого давления в смесях ИГ с хлором (при крайне малом содержании хлора: не более 0,005 мг) как активной среды компактных, безртутных и экологически безвредных энергосберегающих люминесцентных источников света.

ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

- 1) Skakun V.S. High-power UV exilamps excited by a glow discharge [Текст] / V.S. Skakun, M.I. Lomaev, V.F. Tarasenko et al. // Laser and Particle Beams. 2003. V. 21. P. 115 – 119.
- 2) Condon E.U. Nuclear motion associated with electron transitions in diatomic molecules [Текст] / E.U. Condon // Phys. Rev. 1928. V. 32. No 6. P. 858 – 872.
- 3) Volynets V.N. Experimental and theoretical study of the CF₄ DC glow discharge positive column [Текст] / V.N. Volynets, A.V. Lukyanova, A.T. Rakhimov, D.I. Slovetsky, N.V. Suetin // J. Phys. D: Appl. Phys. 1993. V. 26. P. 647 – 656.
- 4) Цендин Л.Д. Диффузия заряженных частиц в плазме электроотрицательных газов [Текст] / Л.Д. Цендин // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 12. С. 2318 – 2322.
- 5) Цендин Л.Д. Расслоение газоразрядной плазмы в электроотрицательных газах [Текст] / Л.Д. Цендин // ЖТФ. 1989. Т. 59. Вып. 1. С. 21 – 28.
- 6) Franklin R.N. Characteristics of electric discharges in the halogens: the recombination-dominated positive column [Текст] / R.N. Franklin, P.G. Daniels, J. Snell // J.Phys.D: Appl. Phys. 1993. V. 26. P. 1638 – 1649.
- 7) Franklin R.N. The recombination-dominated positive column with finite ion temperature [Текст] / R.N. Franklin, J. Snell // J. Phys. D: Appl. Phys. 1994. V. 27. P. 2102 – 2106.
- 8) Lichtenberg A.J. Modelling plasma discharges at high electronegativity [Текст] / A.J. Lichtenberg, I.G. Kouznetsov, Y.T. Lee, M.A. Liebermann, I.D. Kaganovich, L.D. Tsendin // Plasma Sources Sci. Technol. 1997. V. 6. P. 437 – 449.
- 9) Boeuf J.P. BOLSIG (freeware). SIGLORF (freeware) [Электронный ресурс] / J.P. Boeuf, L.C. Pitchford // Kinema Research & Software [web-сайт]: – Режим доступа: <http://www.sni.net/siglo/>

СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

(Издания из списка ВАК выделены жирным шрифтом)

- 1) Головицкий А.П. Спектроскопический метод определения параметров плазмы разрядов в узких трубках в смесях газов, содержащих гелий [Текст] / А.П. Головицкий, В.А. Кружалов, Т.М. Перчанок, А.Э. Фотиади // **ЖПС**. 1987. Т. 46. Вып. 1. С. 32 – 37.

- 2) Головицкий А.П. Возможности создания эффективных ультрафиолетовых излучателей на основе непрерывного тлеющего разряда в смесях инертных газов и галогенов [Текст] / А.П. Головицкий // **Письма в ЖТФ**, 1992, Т. 18, Вып. 8, С. 73 – 76.
- 3) Golovitski A. Incoherent UV light emission from low pressure glow discharges in rare gas – halogen mixtures [Текст] / A. Golovitski, S. Kan // Proc. of the ICPIG XXI, Bochum, Germany, 1993, p. 619 – 620.
- 4) Головицкий А.П. Характеристики ультрафиолетового эксимерного излучения непрерывного тлеющего разряда низкого давления [Текст] / А.П. Головицкий, С.Н. Кан // **Оптика и спектроскопия**. 1993. Т. 75, №3, С. 604 – 609.
- 5) Головицкий А.П. Определение населенностей колебательных уровней основного состояния молекулы N_2 и температуры газа в газовом разряде спектроскопическим методом [Текст] / А.П. Головицкий, С.В. Романов, А.Э. Фотиади // **Оптика и спектроскопия**. 1994. Т. 77, №6, С. 921 – 924.
- 6) Головицкий А.П. Разработка источников УФ излучения на основе тлеющего разряда постоянного тока в смесях хлор – инертный газ [Текст] / А.П. Головицкий, С.Н. Кан, С.В. Романов, А.Э. Фотиади // **Лазерная физика**. 1994. №7. С. 41-42.
- 7) Головицкий А.П. Коэффициент поглощения ультрафиолетового излучения молекулярным хлором при повышенных температурах [Текст] / А.П. Головицкий, Г.Н. Михайлов // **Оптика и спектроскопия**. 1996. Т. 81, №4, С. 586 – 589.
- 8) Головицкий А.П. Радиальные распределения плазменно-оптических характеристик эксимерных ультрафиолетовых излучателей тлеющего разряда в смеси $He + Cl_2$ [Текст] / А.П. Головицкий, С.В. Лебедев // **Оптика и спектроскопия**. 1997. Т. 82, №2, С. 251 – 255.
- 9) Головицкий А.П. Спектроскопические измерения газовой температуры в газоразрядных приборах [Текст] / А.П. Головицкий // Труды IV межд. конф. «Актуальные проблемы электронного приборостроения АРЕИЕ-98» т. 2. С. 153 – 154, Новосибирск, 1998.
- 10) Головицкий А.П. Индуктивный высокочастотный разряд низкого давления в смеси инертных газов и галогенов для экономичных безртутных люминесцентных источников света [Текст] / А.П. Головицкий // **Письма в ЖТФ**. 1998, Т. 24, № 6. С. 63 – 67.

- 11) Габов А.А. Моделирование разряда низкого давления в электроотрицательных газах с учетом радиальной неоднородности плазмохимических процессов [Текст] / А.П. Головицкий, А.А. Габов // Труды X Всеросс. конф. по физике газового разряда ФГР-2000, С. 206 – 209. Рязань, 2000.
- 12) Головицкий А.П. Температурная зависимость прилипания электронов к молекулам хлора [Текст] / А.П. Головицкий // **ЖТФ**. 2000. Т. 70. Вып. 5. С. 12 – 16.
- 13) Габов А.А. Моделирование ВЧ разряда низкого давления в безртутных эксимерных УФ и люминесцентных лампах [Текст] / А.А. Габов, А.П. Головицкий // Труды V межд. конф. «Актуальные проблемы электронного приборостроения АРЕИЕ-2000» т. 2. С. 36, Новосибирск, 2000.
- 14) Габов А.А. Электрические характеристики ВЧ разряда низкого давления в эксимерных УФ и люминесцентных лампах [Текст] / А.А. Габов, А.П. Головицкий // Труды IV Междун. светотехнической конф., Вологда, 2000. С. 220 – 221.
- 15) Головицкий А.П. Измерения характеристик поперечного высокочастотного емкостного разряда, интегрированного в колебательный контур возбуждающего генератора [Текст] / А.П. Головицкий // Труды СПбГТУ. 2006. № 500. С. 113 – 119.
- 16) Головицкий А.П. Термическая диссоциация молекул галогенов при стационарном газовом разряде низкого давления в их смесях с инертными газами [Текст] / А.П. Головицкий // **Научно-технические ведомости СПбГТУ**. Естественные и технические науки. 2006, Т. 1, № 5-1 (47). С. 26 – 31.
- 17) Головицкий А.П. Измерения радиофизических характеристик плазмы высокочастотного разряда, возбуждаемого индуктором в электроотрицательных газах [Текст] / А.П. Головицкий // **Научно-технические ведомости СПбГТУ**. 2007, № 51. С. 145 – 150.
- 18) Головицкий А.П. Оценка ионного состава и ион-ионной рекомбинации в тлеющем разряде низкого давления в смесях инертного газа и хлора [Текст] / А.П. Головицкий // Труды СПбГТУ. 2008. № 507. С. 229 – 233.
- 19) Головицкий А.П. Предварительные оценки величин концентрации и температуры электронов в плазме тлеющего разряда в электроотрицательных газах [Текст] / А.П. Головицкий // Труды СПбГТУ. 2008. №507, С. 233 – 242.

- 20) Головицкий А.П. Коэффициент потерь энергии электрона при столкновениях в ксеноне, хлоре и их смеси [Текст] / А.П. Головицкий // **Научно-технические ведомости СПбГПУ**. 2008, № 3. С. 87 – 94.
- 21) Головицкий А.П. Связь параметров плазмы поперечного емкостного разряда в узком капилляре с его радиофизическими характеристиками [Текст] / А.П. Головицкий, М.Ю. Опилкин // **Научно-технические ведомости СПбГПУ**. Физико-математические науки. 2008, № 6 (67). С. 79 – 84.
- 22) Головицкий А.П. Обратные задачи экспериментальной физики. Практические аспекты. 1. Восстановление зависимостей [Текст] / А.П. Головицкий – **Санкт-Петербург, изд-во СПбГПУ, 2008. – 206 с.**
- 23) Головицкий А.П. Обратные задачи экспериментальной физики. Практические аспекты. 2. Обработка данных косвенных экспериментов [Текст] / А.П. Головицкий – **Санкт-Петербург, изд-во СПбГПУ, 2008. – 223 с.**
- 24) Головицкий А.П. Оценка колебательной температуры и степени диссоциации молекул хлора в его смесях с инертным газом в плазме тлеющего разряда [Текст] / А.П. Головицкий // **Научно-технические ведомости СПбГПУ**. Физико-математические науки. 2009, № 2 (77). С. 105 – 112.
- 25) Головицкий А.П. Моделирование положительного столба тлеющего разряда в смеси инертных газов и хлора с учетом диссоциации молекул хлора [Текст] / А.П. Головицкий // **ЖТФ**. 2011. Т. 81. Вып. 3. С. 45 – 54.
- 26) Головицкий А.П. Моделирование газоразрядных источников ультрафиолетового излучения с тлеющим разрядом в смеси ксенона и хлора [Текст] / А.П. Головицкий // **ЖТФ**. 2011. Т. 81. Вып. 3. С. 55 – 64.
- 27) Головицкий А.П. Слаботочный тлеющий разряд низкого давления в электроотрицательных газах [Текст] / А.П. Головицкий // **Научно-технические ведомости СПбГПУ**. Физико-математические науки. 2011, № 1 (116). С. 111 – 115.