

УДК 533.915, 533.92, 533.933 (575.2) (04)

ПАРАМЕТРЫ ЭЛЕКТРОНОВ В СМЕСЯХ Хе-Cl₂

С.В. Автаева

Численно изучено влияние концентрации хлора и приведенного электрического поля на параметры электронов в смесях Хе-Cl₂. Показано, что увеличение концентрации хлора в смеси приводит к снижению средней энергии электронов, уменьшению скорости ионизации и росту скорости прилипания электронов к молекулам. Показано, что в смесях Хе-Cl₂ при малых значениях приведенного электрического поля E/N плазма электроотрицательна. С увеличением E/N происходит переход от электроотрицательной к электроположительной плазме: доля энергии электронов, затрачиваемой на ионизацию атомов и молекул, увеличивается.

Ключевые слова: кинетическое уравнение Больцмана; параметры электронов; смеси Хе-Cl₂

1. Введение

Экцимерные лампы (эксилампы) – относительно недавно появившийся класс источников спонтанного УФ- и ВУФ-излучения, в которых используется неравновесное излучение эксимерных или эксиплексных молекул [1–5]. Особенностью этих молекул является их устойчивость в электронно-возбужденном состоянии и отсутствие прочной связи в основном. Ряд таких молекул имеет интенсивный В-Х переход в УФ- или ВУФ-диапазонах спектра, что позволяет с высокой эффективностью преобразовывать введенную в разряд энергию в оптическое излучение [6–9]. В отличие от люминесцентных и тепловых источников УФ и ВУФ-излучения до 80% общей мощности излучения эксилампы может быть сосредоточено в узкой (не более 10 нм на полувысоте) полосе соответствующей молекулы. При этом удельные мощности излучения превышают величины, характерные для ламп низкого давления на резонансных переходах атомов. К тому же, при использовании многокомпонентных газовых смесей можно получить излучение с соизмеримой интенсивностью на полосах двух и более молекул. К достоинствам эксиламп можно отнести большую энергию фотона (3,5–10 эВ), узкую полосу излучения, относительно высокую удельную мощность излучения, возможность масштабирования и выбора произвольной геометрии излучающей поверхности, отсутствие ртути [2].

В настоящее время эксилампы начинают использовать в фотохимии, микроэлектронике, для очистки и модификации свойств поверхности, для полимеризации лаков и красок, в технологи-

ях обеззараживания промышленных отходов, воды, воздуха, в биологии, медицине [1]. Это стало возможным благодаря успехам в понимании процессов, происходящих в оптических средах эксиламп, и в создании образцов для практического применения. Ряд промышленных компаний освоили выпуск эксиламп, в частности, компания USIO (Japan) [10] выпускает лампы БР с наполнением Ar (126 нм), Kr (146 нм), Хе (172 нм), KrCl (222 нм), ХеCl (308 нм), компания Heraeus (Germany) [11] выпускает лампы БР с наполнением Хе (172 нм), KrCl (222 нм), ХеBr (282 нм) и ХеCl (308 нм) и компания OSRAM (Germany) [12] выпускает Хе эксилампы БР (172 нм).

Для возбуждения рабочей среды эксиламп используют емкостной и барьерный разряды, объемный разряд высокого давления с УФ предионизацией, нормальный и поднормальный тлеющие разряды низкого давления, распределенный искровой, микроволновой разряды, а также микроканальный разряд. Однако наибольшее распространение получили эксилампы барьерного разряда.

Сложившиеся на основе экспериментальных данных представления о структуре, свойствах и динамике возникновения и погасания разряда могут быть значительно расширены и уточнены с помощью метода численного моделирования. Численное моделирование БР с учетом конфигурации разряда, величины и формы подаваемого на электроды сигнала и давления и состава газовой смеси должно стать мощным инструментом для оптимизации параметров эксиламп, позволяя получить максимальную излучательную

эффективность при требуемой величине интенсивности излучения в заданном интервале длин волн. В связи с этим разработку математических моделей БР в эксилампах уделяется достаточно большое внимание.

При моделировании разряда в эксилампах особое внимание следует уделить кинетике электронов. Элементарные процессы взаимодействия электронов с газом играют важную роль в перераспределении энергии в разряде. Скорости этих элементарных процессов определяются параметрами электронов. В свою очередь параметры электронов, такие как функция распределения электронов по энергиям (ФРЭЭ), средняя энергия электронов, транспортные коэффициенты электронов, частота столкновений электронов с атомами и константы скоростей определяются распределением приведенного электрического поля в разряде и элементарными процессами взаимодействия электронов с атомами газа. В данной работе изучено влияние приведенного электрического поля и процентного содержания Cl_2 в смесях Хе- Cl_2 на параметры электронов.

2. Расчет параметров электронов

Для расчета ФРЭЭ, средней энергии и транспортных коэффициентов электронов, констант скоростей упругих и неупругих взаимодействий электронов с атомами, потерь энергии электронов использовалась известная программа Bolsig+ [13], подробно описанная в [14]. Свободно распространяемая программа Bolsig+ составлена для расчета транспортных коэффициентов электронов и констант скоростей, необходимых для моделирования газовых разрядов в рамках гидродинамических моделей. Она позволяет быстро получать решение кинетического уравнения Больцмана для электронов в широком диапазоне разрядных условий (приведенное электрическое поле, степень ионизации, состав газа, частота электрического поля), рассчитывать транспортные коэффициенты и константы скоростей, входящие в уравнения гидродинамических моделей.

В программе Bolsig+ ФРЭЭ рассчитывается решение кинетического уравнения Больцмана в квазистационарном двучленном приближении [14]. Двучленное разложение ФРЭЭ часто используется и интенсивно обсуждалось в литературе [15, 16]. Хотя это приближение становится некорректным в случае больших значений E/N (E – напряженность электрического поля, N – концентрация атомов), когда большинство столкновений неупругие и ФРЭЭ становится сильно анизотропной, в диапазоне обычных условий газовых разрядов ошибки расчета транспортных

коэффициентов и констант скоростей приемлемы для гидродинамических моделей разрядов [14].

В программе Bolsig+ после решения кинетического уравнения Больцмана средняя энергия электронов рассчитывается согласно соотношению [14]

$$\bar{\varepsilon} = \int_0^{\infty} \varepsilon^{3/2} F_0 d\varepsilon,$$

где $\varepsilon = (u/\gamma)^2$ – кинетическая энергия

электрона в электрон-вольтах, $\gamma = (\frac{2e}{m})^{1/2}$, e , m

и u – заряд, масса и скорость электрона, F_0 – изотропная часть ФРЭЭ, нормируемая соотношением $\int_0^{\infty} \varepsilon^{1/2} F_0 d\varepsilon = 1$.

Нормированные транспортные коэффициенты электронов рассчитываются по формулам [14]

$$\mu_e N = -\frac{\gamma}{3} \int_0^{\infty} \frac{\varepsilon}{\sigma_m} \frac{\partial F_0}{\partial \varepsilon} d\varepsilon, \quad D_e N = \frac{\gamma}{3} \int_0^{\infty} \frac{\varepsilon}{\sigma_m} F_0 d\varepsilon.$$

Здесь μ_e и D_e – подвижность и коэффициент диффузии электронов, N – концентрация атомов,

$$\sigma_m = \sum_j x_j \sigma_j, \quad \sigma_j - \text{эффективное сечение пере-}$$

дачи импульса при упругих столкновениях электронов с атомами и молекулами, x_j – мольная доля j -го компонента газовой смеси.

Константы скоростей элементарных процессов рассчитываются как [14] $k_k = \gamma \int_0^{\infty} \varepsilon \sigma_k F_0 d\varepsilon$,

где σ_k – эффективное сечение неупругого столкновения.

$$\text{Доли потерь энергии электронов } \eta_k = \frac{\delta \varepsilon_k}{\sum_k \delta \varepsilon_k}$$

рассчитываются как $\eta_k = \frac{k_k x_j N \Delta \varepsilon_k}{\sum_{k,j} k_k x_j N \Delta \varepsilon_k}$, где $\delta \varepsilon_k$ –

потери энергии электронами в k -м процессе, $\sum_k \delta \varepsilon_k$ – суммарные потери энергии электрона-

ми, $\Delta\epsilon_k$ – пороговая энергия для неупругого

процесса и $\Delta\epsilon_k = \frac{2m}{M_j} \bar{\epsilon}$ для упругих столкнове-

ний, M_j – масса j -го компонента газовой смеси.

Сечения элементарных процессов взаимодействия электронов с атомами ксенона взяты из [13], с атомами и молекулами хлора – из [17].

3. Результаты и обсуждения

На рис. 1 показаны зависимости средней энергии электронов $\bar{\epsilon}$ от приведенного электри-

ческого поля E/N при различных содержаниях хлора Cl_2 в смеси $He-Cl_2$, а также в чистых ксеноне и хлоре.

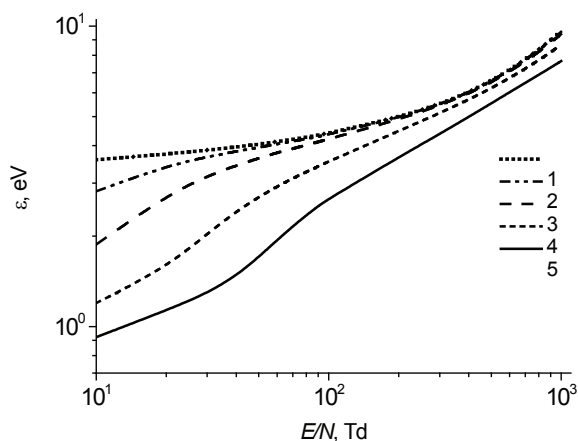


Рис. 1. Средняя энергия электронов в зависимости от E/N в смесях $He-Cl_2$, а также в чистых ксеноне и хлоре. 1 – чистый Xe; 2 – 1% Cl_2 ; 3 – 5% Cl_2 ; 4 – 30% Cl_2 ; 5 – чистый Cl_2 .

Как видно из рис. 1, для обоих газов и их смесей средняя энергия электронов растет с E/N . Наибольших значений $\bar{\epsilon}$ достигает в чистом

ксеноне, с ростом содержания хлора в смеси $He-Cl_2$ средняя энергия электронов уменьшается, минимальные значения $\bar{\epsilon}$ реализуются в чистом хлоре. Зависимость $\bar{\epsilon}$ от содержания Cl_2 более

сильная при небольших значениях $E/N < 100$ Тд. С ростом E/N влияние хлора на среднюю энергию электронов в смесях $He-Cl_2$ уменьшается.

На рис. 2, 3 представлены нормированные на концентрацию атомов подвижность (рис. 2) и коэффициент диффузии (рис. 3) электронов в за-

висимости от E/N и концентрации хлора в смесях $He-Cl_2$. Как видно из рис. 2, нормированная на концентрацию атомов подвижность электронов при $E/N < 100$ Тд растет с увеличением содержания хлора в смеси, при $E/N > 100$ Тд – падает. Аналогично, нормированный на концентрацию атомов коэффициент диффузии электронов при $E/N < 30$ Тд растет с увеличением содержания хлора в смеси, при $E/N > 30$ Тд – падает (рис. 3).

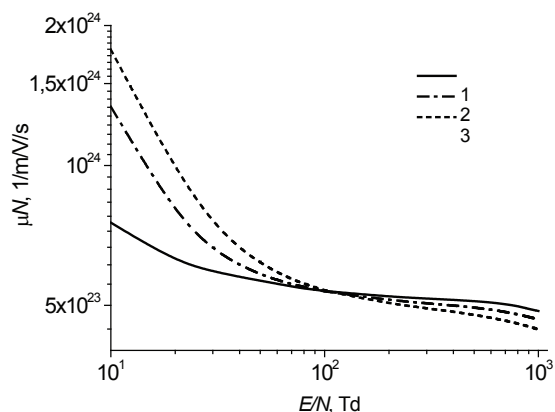


Рис. 2. Нормированная на концентрацию атомов подвижность электронов в зависимости от E/N и концентрации хлора в смесях $He-Cl_2$; 1 – 1%, 2 – 5%, 3 – 10% Cl_2 .

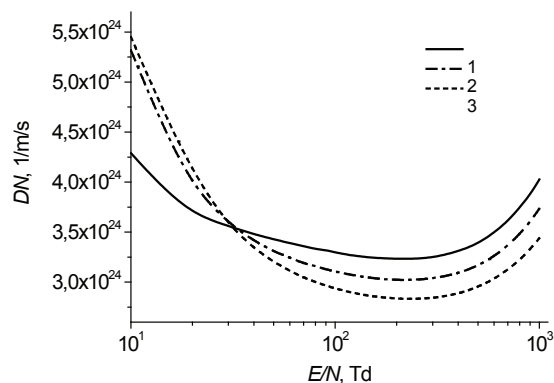


Рис. 3. Нормированный на концентрацию атомов коэффициент диффузии электронов в зависимости от E/N и концентрации хлора в смесях $He-Cl_2$; 1 – 1%, 2 – 5%, 3 – 10% Cl_2 .

На рис. 4 показаны частоты прилипания электронов к молекулам хлора и ионизации при столкновениях электронов с молекулами хлора и атомами ксенона и хлора в зависимости от E/N и концентрации хлора в смесях $He-Cl_2$. Как видно из рис. 4 в смесях $He-Cl_2$ при низких значениях

E/N частота прилипания электронов к молекулам хлора превышает частоту ионизации, с ростом E/N ионизация начинает преобладать над прилипанием электронов. На рис. 5 показана зависимость критического приведенного электрического поля, при котором частота ионизации сравнивается с частотой прилипания электронов, от содержания хлора в смесях Хе-Cl₂.

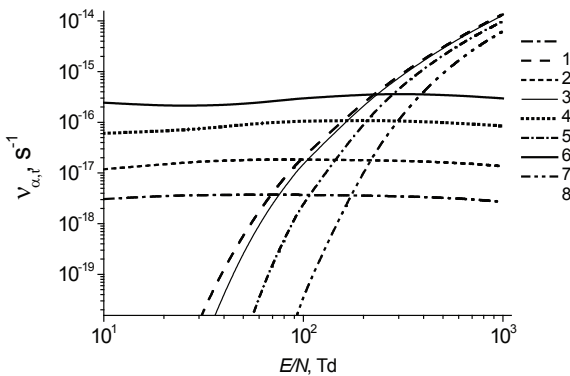


Рис. 4. Частоты прилипания электронов к молекулам хлора и ионизации при столкновениях электронов с молекулами хлора и атомами ксенона и хлора в зависимости от E/N и концентрации хлора в смесях Хе-Cl₂. 1, 3, 5, 7 – прилипание; 2, 4, 6, 8 – ионизация; 1, 2 – 1% Cl₂; 3, 4 – 5% Cl₂; 5, 6 – 30% Cl₂; 7, 8 – 100% Cl₂.

При E/N больше критического плазма в смесях Хе-Cl₂ будет электроположительной вследствие преобладания ионизации над прилипанием электронов, при E/N меньше критического плазма в смесях Хе-Cl₂ будет электроотрицательной. По-

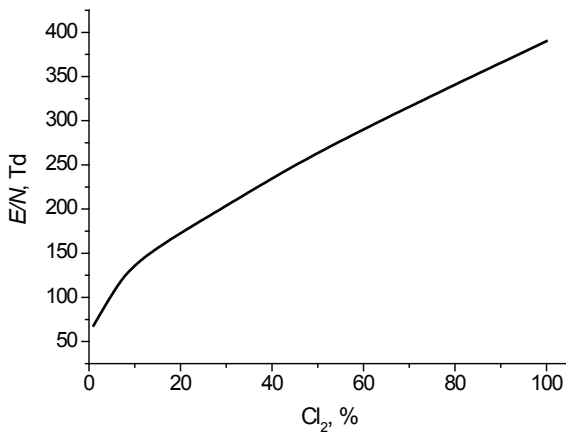


Рис. 5. Зависимость критического приведенного электрического поля E/N от содержания хлора в смесях Хе-Cl₂.

скольку в случае электроотрицательной плазмы размножение электронов ограничено прилипанием электронов, существование самостоятельного электрического разряда в смесях Хе-Cl₂ при значениях E/N меньше критических затруднено. Величина критического E/N уменьшается с уменьшением концентрации хлора в смесях Хе-Cl₂, соответственно, для поддержания самостоятельного разряда требуется меньшее напряжение.

На рис. 6 показаны суммарные потери энергии электронов в единице объема в единицу времени в зависимости от E/N при концентрации хлора в смеси Хе-Cl₂ 1%.

Как видно на рис. 6 потери энергии минимальны при $E/N \approx 90-100$ Тд. При $E/N < 90$ Тд

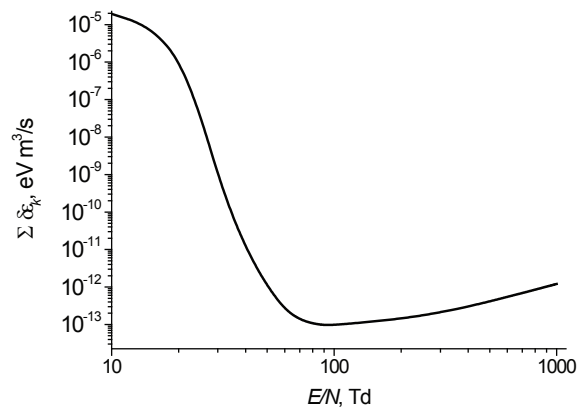


Рис. 6. Суммарные потери энергии электронов в единице объема в единицу времени в зависимости от E/N . Концентрация хлора в смеси Хе-Cl₂ равна 1%.

потери энергии растут с уменьшением E/N , что связано в основном с ростом потерь энергии на возбуждение атомов хлора. При $E/N > 100$ Тд потери энергии растут с увеличением E/N , что связано в основном с ростом потерь энергии на ионизацию и возбуждение атомов ксенона. При $E/N < 80$ Тд потери энергии существенно превышают эти потери при $E/N > 100$ Тд, что приводит к значительному снижению средней энергии электронов при увеличении концентрации хлора в смеси Хе-Cl₂ в диапазоне $E/N < 80$ Тд (рис. 1).

На рис. 7 показаны относительные доли потерь энергии электронов на упругие столкновения с молекулами и атомами, ионизацию, прилипание электронов к молекулам хлора, диссоциацию молекул хлора, полярную диссоциацию молекул хлора, колебательное возбуждение молекул хлора и электронное возбуждение атомов и молекул

в смеси Хе-Cl₂ при концентрации хлора 1%. Как видно из рис. 7, при малых $E/N < 70$ Тд преобладают потери на электронное возбуждение атомов и молекул. С ростом E/N значительную долю потерь энергии электроны начинают составлять потери энергии на прилипание электронов к молекулам Cl₂, ионизацию и диссоциацию молекул Cl₂.

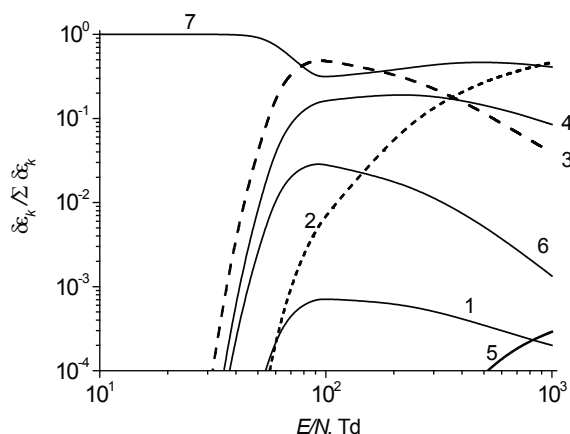


Рис. 7. Относительные доли потерь энергии электронов при столкновениях с атомами и молекулами в смеси Хе-Cl₂; 1 – упругие столкновения, 2 – ионизация, 3 – прилипание, 4 – диссоциация, 5 – полярная диссоциация, 6 – колебательное возбуждение, 7 – электронное возбуждение. Концентрация хлора в смеси равна 1%.

Среди потерь энергии на ионизацию атомов Хе, Cl и молекул Cl₂ преобладающими являются потери на ионизацию молекул Cl₂. Среди потерь энергии электронов на возбуждение электронных уровней атомов Хе, Cl и молекул Cl₂ при малых E/N основные потери приходятся на электронное возбуждение атомов хлора, с ростом E/N эти потери быстро падают; в диапазоне $90 < E/N < 280$ Тд преобладают потери на электронное возбуждение молекул Cl₂, в диапазоне $E/N > 280$ Тд – потери на возбуждение атомов Cl и Хе.

Таким образом, при увеличении содержания хлора в смесях Хе-Cl₂ параметры электронов сильно меняются: средняя энергия электронов значительно уменьшается, частота прилипания электронов к молекулам резко увеличивается, частота ионизации падает. При E/N , характерных для электроположительной плазмы, увеличение содержания хлора в смесях Хе-Cl₂ приводит к уменьшению подвижности и коэффициента диффузии электронов.

В смесях Хе-Cl₂ при E/N , характерных для электроотрицательной плазмы, преобладают потери на электронное возбуждение атомов и молекул и прилипание электронов к молекулам Cl₂; при E/N , характерных для электроположительной плазмы, преобладают потери на электронное возбуждение атомов и молекул и ионизацию.

4. Заключение

Численно изучено влияние концентрации ксенона и приведенного электрического поля на параметры электронов в смесях Хе-Cl₂. Показано, что увеличение концентрации хлора в смеси приводит к снижению средней энергии электронов, уменьшению скорости ионизации и росту скорости прилипания электронов к молекулам. Показано, что в смесях Хе-Cl₂ при малых значениях приведенного электрического поля E/N плазма электроотрицательна. С увеличением E/N происходит переход от электроотрицательной к электроположительной плазме: доля энергии электронов, затрачиваемой на ионизацию атомов и молекул, увеличивается. При E/N , характерных для электроположительной плазмы, увеличение содержания хлора в смесях Хе-Cl₂ приводит к уменьшению подвижности и коэффициента диффузии электронов.

В смесях Хе-Cl₂ при E/N , характерных для электроотрицательной плазмы, преобладают потери на электронное возбуждение атомов и молекул и прилипание электронов к молекулам Cl₂; при E/N , характерных для электроположительной плазмы, преобладают потери на электронное возбуждение атомов и молекул и ионизацию.

Литература

1. Kogelschatz U. // Appl. Surf. Sci. 1992. V. 54. P. 410–423.
2. Ломаев М.И., Скакун В.С., Соснин Э.А. и др. // УФН. 2003. Т.173. № 2. С. 201–217.
3. Eliasson B. and Kogelschatz U. // Appl. Phys. B. 1988. V.46. P. 299–303.
4. Mildren R.P., Carman R.J. and Falconer I.S. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2001. V.34. P. 3378–3382.
5. Guivan N.N., Janca J., Brablec A. et al. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2005. V.38. P. 3188–3193.
6. Герасимов Г.Н., Крылов Б.Е., Логинов А.В., Щукин С.А. // УФН. 1992. Т. 162. № 5. С. 123–159.
7. Герасимов Г.Н. // УФН. 2004. Т. 174. № 2. С. 155–175.
8. Мак-Каскер М. Эксимеры инертных газов // Эксимерные лазеры / Под ред. Ч. Роудза. М.: Мир. 1983. С. 70–117.
9. Брау Ч. Эксимерные лазеры на галогенидах инертных газов // Эксимерные лазеры / Под ред. Ч. Роудза. М.: Мир. 1983. С. 118–172.

-
10. <http://www.usnio.com.org/>
 11. <http://www.heraeus-noblelight.com/>
 12. <http://www.osram.com/>
 13. *BOLSIG+2005 CPAT*: <http://www.codiciel.fr/plateforme/plasma/bolsig/bolsig.php>
 14. *Hagelaar G.J.M. and Pitchford L.C.* // *Plasma Sources Sci. Technol.* 2005. V. 14. P. 722.
 15. *Голант В.Е., Жилинский А.П., Сахаров И.Е.* Основы физики плазмы. М.:Атомиздат, 1977. С. 108.
 16. *Голубовский Ю.Б., Кудрявцев А.А., Некучаев В.О. и др.* Кинетика электронов в неравновесной газоразрядной плазме. СПб.: Изд-во СПб. ун-та, 2004. С. 29.
 17. *Thorsteinsson E.G., Hjartarson A.Th. and Gudmundsson J.T.* A critical review of the reaction set for a low pressure chlorine processing discharge. RH-16-2008. Science Institute, University of Iceland.