<u>ΥCΠΕΧИ ΦИЗИЧЕСКИХ НАУК</u>

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Неоднородная газоразрядная плазма

А.В. Елецкий, Б.М. Смирнов

Рассмотрены механизмы формирования неоднородных пространственных распределений плотности заряженных частиц и температуры газа в газоразрядной низкотемпературной плазме. Проанализированы условия перехода разряда в контрагированное состояние и характер распределения параметров плазмы в этом состоянии. Рассмотрены пространственные распределения температуры и плотности заряженных частиц в условиях локального термодинамического равновесия. Установлена зависимость радиуса плазменного столба от давления и вводимой в разряд мощности при условиях локального термодинамического равновесия. Особое внимание уделено новому типу пространственно неоднородной газоразрядной плазмы — плазме с примесью в виде кластеров. Исследован характер роста кластеров в такой плазме, получены выражения для их предельных размеров. Анализируется возможность использования кластерной плазмы в качестве эффективного источника освещения.

PACS numbers: **52.25.–b**, **52.90.** + z

Содержание

1. Введение (1197).

2. Механизмы сжатия газового разряда (1198).

2.1. Общие представления. 2.2. Радиальное распределение плотности электронов в разрядной трубке. 2.3. Сжатие разряда в результате прилипания электронов. 2.4. Термическая неоднородность разряда. 2.5. Рекомбинационный механизм расконтрагирования разряда. 2.6. Сжатие разряда в молекулярных газах. 2.7. Нетепловой механизм сжатия разряда.

3. Тепловой режим газоразрядной плазмы (1205).

3.1. Локальное термодинамическое и ионизационное равновесие.3.2. Тепловой баланс положительного столба газоразрядной плазмы.3.3. Тепловая неустойчивость газоразрядной плазмы.3.4. Сжатие газоразрядной плазмы в режиме локального ионизационного равновесия.

4. Кластерная плазма (1209).

4.1. Прикладные аспекты плазмы дугового разряда. 4.2. Излучение кластеров в плазме. 4.3. Кинетика процессов в кластерной плазме. 4.4. Кластеры вольфрама в газоразрядной плазме. 4.5. Кластерный источник света.

5. Заключение (1216).

Список литературы (1216).

А.В. Елецкий. Российский научный центр "Курчатовский институт" 123182 Москва, пл. Курчатова 1 Тел. (095) 196-72-80
Е-mail: avel@bezelst.msk.ru
Б.М. Смирнов. Институт высоких температур РАН, 127412 Москва, ул. Ижорская 13/19 Тел./Факс (095) 190-42-22
E-mail: smirnov@termo.msk.su

Статья поступила 4 марта 1996 г.

1. Введение

Газоразрядная плазма представляет собой наиболее распространенный тип плазмы, поддерживаемой за счет протекания электрических токов в газах под действием внешнего электрического или электромагнитного поля. Область, заполненная газоразрядной плазмой, имеет конечные размеры и окружена либо холодными стенками, либо относительно холодным газом. В таком объекте существенную роль играют процессы переноса тепла и частиц, которые протекают совместно с объемными процессами энерговыделения, а также с процессами образования и нейтрализации заряженных частиц. Поэтому газоразрядная плазма всегда отличается весьма высокой степенью пространственной неоднородности.

Сложная кинетика процессов, протекающих в пространственно неоднородной газоразрядной плазме, делает ее привлекательным объектом фундаментального научного исследования. Это связано с богатым разнообразием элементарных процессов, протекающих на микроскопическом уровне и определяющих макроскопическое поведение плазмы. Результаты исследований, выполненных в последние десятилетия, демонстрируют разнообразие форм, в которых проявляются пространственные неоднородности газоразрядной плазмы. Значительный научный интерес представляет также исследование механизмов перехода от одного типа пространственной неоднородности плазмы к другому. Рассматривая механизмы формирования пространственно неоднородной плазмы и характер ее перехода из одного состояния в другое, можно говорить о самоорганизации плазмы как физического объекта с большим числом степеней свободы.

Пространственная неоднородность газоразрядной плазмы определяет возможности ее использования в практических устройствах и установках. Так, выходные характеристики мощных газовых лазеров, возбуждаемых электрическим разрядом, резко снижаются при значительном нарушении пространственной однородности газоразрядной плазмы [1-3]. Пространственная неоднородность плазмы газоразрядных осветительных устройств ограничивает размер светящейся области и, следовательно, светоотдачу лампы [4]. Крайнее проявление пространственной неоднородности плазмы — пространственно протяженные конденсированные структуры (кластеры), образующиеся в газоразрядной плазме при определенных условиях в результате конденсации пересыщенного пара [5-7]. Эти структуры, представляющие самостоятельный научный интерес, могут использоваться в качестве основы нового типа источников света [5-7], обладающего достаточно высокими рабочими характеристиками.

В данной статье рассмотрены общие особенности, характеризующие пространственно неоднородную газоразрядную плазму, и конкретные физические механизмы, определяющие условия формирования и степень неоднородности. Кроме того проанализированы отдельные практические примеры газоразрядных устройств, основу которых составляет неоднородная плазма. При анализе используется современная информация об элементарных процессах, протекающих в газоразрядной плазме и определяющих механизмы образования и нейтрализации заряженных частиц в ней.

2. Механизмы сжатия газового разряда

2.1. Общие представления

Наиболее общее проявление пространственной неоднородности газового разряда — сжатие, или контракция. Это универсальное физическое явление, которое наблюдается в разрядах как постоянного, так и переменного тока при повышенных давлениях или энерговкладах, характеризующих газовый разряд. Оно выражается в резком изменении характера горения разряда при превышении определенного значения давления газа в разряде или разрядного тока. В результате контракции поперечный размер области, занимаемой разрядом, оказывается значительно меньше радиуса разрядной трубки. Контракция приводит к неполному использованию объема разрядной трубки, к резкому нарушению пространственной однородности разряда, а также к снижению степени неравновесности газоразрядной плазмы. Данное явление обычно считается вредным, поскольку оно ограничивает диапазон изменения параметров газового разряда, пригодного для использования в таких практически важных устройствах, как плазмотроны, МГД-генераторы, газовые лазеры и др., областью относительно малых токов и давлений.

Явление сжатия газового разряда уже много лет служит предметом интенсивных экспериментальных и теоретических исследований, ранние из которых достаточно полно отражены в обзорах и монографиях [1, 2, 8– 11]. Интерес к изучению этого явления обусловлен двумя важными обстоятельствами. Прежде всего данное явление определяет предельные выходные характеристики практически важных физических устройств и приборов, поэтому понимание механизмов контракции и знание количественных особенностей ее проявления необходимы для оптимизации работы указанных устройств. Однако исследование контракции газового разряда представляет не только прикладной, но также и фундаментальный, общефизический интерес. Это явление служит одним из показательных примеров самоорганизации газоразрядной плазмы, которая происходит в макроскопическом масштабе как результат взаимного влияния определенных физических процессов и явлений, протекающих на микроскопическом уровне. Теоретический анализ указанных процессов привел к установлению нескольких принципиально различных механизмов контракции, возможность реализации каждого из которых зависит от экспериментальных условий и, в частности, от сорта газа, заполняющего разрядную трубку.

Экспериментальные исследования сжатия, несмотря на его практическую значимость, в течение многих лет отставали от теоретических, что в значительной степени объясняется трудностями измерения радиального распределения плотности электронов в контрагированном столбе разряда. Это обстоятельство, а также имеющаяся неопределенность в значениях констант скорости элементарных процессов в многокомпонентной плазме, определяющих характер сжатия, в течение многих лет служили препятствием для детального количественного исследования механизмов этого явления и установления относительного вклада каждого из процессов в конкретных экспериментальных условиях. Некоторый прогресс в этом вопросе наблюдается в последние годы, когда появилось довольно значительное число подробных экспериментальных исследований характера радиального распределения плотности электронов в разрядной трубке и условий перехода разряда в контрагированное состояние. Анализ этих экспериментов позволяет составить более полную картину явлений, происходящих в положительном столбе разряда при повышенных токах и лавлениях.

Проблема исследования сжатия газового разряда включает в себя два аспекта, заслуживающих внимания. С одной стороны, сжатие разряда относится к классу критических явлений в низкотемпературной плазме, которые имеют характер неустойчивости. При этом предметом исследования служат условия возникновения такой неустойчивости и характер перехода системы из одного стабильного состояния в другое в зависимости от внешних параметров разряда. В силу сложной зависимости основных характеристик разряда от таких параметров, как температура газа, концентрация и средняя энергия электронов, уравнения баланса для плотности электронов и температуры газа в разряде при определенных условиях могут иметь более одного решения. Это означает возможность существования различного типа радиальных распределений плотности электронов и температуры газа при одних и тех же внешних параметрах разряда. Тем самым задача об установлении условий сжатия сводится к задаче об устойчивости решения уравнений баланса для концентрации заряженных частиц и температуры газа в разряде.

Другим важным аспектом проблемы контракции газового разряда является задача установления радиального распределения плотности электронов и температуры газа в контрагированном разряде. Решение этой задачи получается при совместном рассмотрении нелинейных уравнений баланса для концентрации электронов и температуры газа в разряде с учетом сложного баланса объемных и поверхностных процессов образования и нейтрализации заряженных частиц, а также процессов тепловыделения и теплоотвода. Анализ существенно усложняется в случае разряда в многокомпонентных газовых смесях и особенно при наличии молекулярных примесей, что связано с необходимостью учета энергии, запасаемой в колебательных степенях свободы. Ниже при рассмотрении указанных аспектов проблемы сжатия разряда особое внимание уделяется идейной стороне вопроса, что оказывается возможным в результате использования относительно простых физических моделей.

2.2. Радиальное распределение плотности электронов в разрядной трубке

Уравнение баланса. Рассмотрим продольный разряд в длинной цилиндрической трубке радиусом R_0 . Стационарное радиальное распределение плотности электронов $N_e(r)$ в такой трубке является решением уравнения баланса, которое в наиболее часто рассматриваемом случае имеет вид

div
$$D_a \operatorname{grad} N_e + v_{ion} N_e - \alpha_{rec} N_e N_i - \gamma N N_e = 0$$
. (2.1)

В этом уравнении первое слагаемое отражает диффузионный уход заряженных частиц на стенки разрядной трубки (*D*_a — коэффициент амбиполярной диффузии). Такая форма записи справедлива в случае квазинейтральной плазмы, поперечный размер которой много больше радиуса Дебая

$$r_{\rm D} \simeq \left(\frac{T_{\rm e}}{8\pi N_{\rm e} e^2}\right)^{1/2}$$

(*T*_e — температура электронов, *е* — заряд электрона). В плазме газового разряда указанное условие выполняется практически всегда. Второе слагаемое в уравнении (2.1) соответствует образованию заряженных частиц в объеме разряда (v_{ion} — частота ионизации в расчете на один электрон). Используемая форма записи предполагает, что образование заряженных частиц в разряде является результатом соударений свободных электронов с нейтральными атомами или молекулами, и должна быть изменена, например, в случае, если источником образования заряженных частиц служат столкновения с участием возбужденных атомов (ассоциативная ионизация или эффект Пеннинга). Третье слагаемое в (2.1) отражает процесс объемной нейтрализации заряженных частиц (α_{rec} — коэффициент рекомбинации, N_i — концентрация положительных ионов в разряде). При выполнении условия квазинейтральности $N_{\rm e} \approx N_{\rm i}$ форма записи этого слагаемого естественно упрощается. Однако невыполнение указанного условия может быть связано не только с нарушением условия квазинейтральности, но также и с наличием в плазме ионов различного сорта, в частности отрицательных ионов. Эти обстоятельства легко учитываются соответствующим изменением формы записи уравнения (2.1). Последнее слагаемое в (2.1) описывает процесс прилипания электронов к частицам газа (у — константа скорости прилипания, N плотность нейтральных частиц). Данная форма записи также может быть модифицирована с учетом нескольких различных каналов прилипания электронов, а также возможности образования отрицательных ионов различного сорта. В качестве граничных условий, дополняющих уравнение (2.1), обычно используют условия равенства нулю плотности электронов на стенках разрядной трубки

$$N_{\rm e}(R_0) = 0\,, \tag{2.2}$$

а также равенство нулю производной этого параметра на оси трубки

$$\frac{dN_e}{dr}(r=0) = 0.$$
 (2.3)

Смысл этих условий очевиден и не нуждается в пояснениях.

Несмотря на кажущуюся простоту уравнения (2.1), его решение в случае контрагированного разряда сопряжено не только с вычислительными, но и с принципиальными трудностями. Это обусловлено следующими обстоятельствами. Во-первых, входящие в это уравнение коэффициенты, вообще говоря, зависят от радиальной координаты, что связано с наличием радиальных неоднородностей температуры газа, плотностей заряженных и возбужденных частиц различного сорта, вида функции распределения электронов по энергиям, а возможно, и ионного состава плазмы. Поэтому уравнения (2.1) совершенно недостаточно для определения радиальных зависимостей указанных характеристик в разряде, и при строгой постановке задачи это уравнение должно анализироваться совместно с уравнениями баланса для возбужденных и заряженных частиц различного сорта, уравнением теплопроводности, уравнением баланса для колебательной энергии и кинетическим уравнением Больцмана, решение которого определяет вид функции распределения электронов по энергиям. Эти обстоятельства значительно усложняют математическую сторону проблемы. В такой ситуации более плодотворным с точки зрения установления механизмов контракции разряда представляется анализ проблемы на основании рассмотрения отдельных простых моделей, когда имеется возможность раскрыть влияние того или иного фактора на характер решения уравнения (2.1), опираясь, в первую очередь, на факты, которые в настоящее время можно считать достаточно надежно установленными.

Решение Шотки. Проанализируем вначале характер решений уравнения (2.1), когда его коэффициенты постоянны по сечению разрядной трубки. Этот случай реализуется при относительно малых значениях вводимой в разряд мощности, не вызывающих нарушение пространственной температурной однородности объема плазмы. Отметим, что в этом случае учет прилипания электронов к нейтральным частицам не изменяет формы уравнения, а лишь только требует замены коэффициента vion соответствующей эффективной величиной, равной разности $v_{\text{eff}} = v_{\text{ion}} - \gamma N$. Очевидно, стационарный разряд осуществим при условии, когда эта разность положительна. Простейший для анализа случай (случай Шотки) соответствует ситуации, когда объемной рекомбинацией заряженных частиц в плазме можно пренебречь и основной механизм их нейтрализации связан с диффузионным уходом на стенки. В этом случае, который

$$N_{\rm e}(r) = N_{\rm e}(0) J_0\left(\frac{\beta r}{R_0}\right), \qquad (2.4)$$

где $J_0(x)$ — функция Бесселя нулевого порядка, а величина $\beta = 2,405$ определяется граничным условием (2.2). Это же условие устанавливает связь между коэффициентами уравнения (2.1):

$$\frac{v_{\rm eff}R_0^2}{D_{\rm a}} = \beta^2 \equiv 5,77\,, \tag{2.5}$$

которая в свою очередь определяет соотношение между произведением NR_0 и приведенной напряженностью электрического поля E/N.

Последнее соотношение отражает баланс заряженных частиц, которые образуются в объеме разряда и нейтрализуются на его стенках в результате амбиполярной диффузии. Независимо от характера приближений, принятых при анализе уравнения (2.1), решение этого уравнения должно быть дополнено соотношением баланса, аналогичным (2.5) и устанавливающим связь между параметрами разряда. Такая ситуация типична для уравнений переноса с нулевыми условиями на границе.

Учет объемной рекомбинации. Примем во внимание возможность объемной рекомбинации заряженных частиц. Полагая для простоты $N_{\rm e} = N_{\rm i}$, мы можем прийти к выводу, что вклад объемной рекомбинации, пропорциональный квадрату плотности заряженных частиц, наиболее существен в центральной, приосевой области разрядной трубки, где плотность электронов максимальна [13]. В этой области радиальный спад плотности электронов оказывается более плавным, чем при отсутствии объемной рекомбинации. Для сравнения радиальных зависимостей плотности электронов при наличии и отсутствии рекомбинации вблизи стенок разрядной трубки удобно умножить уравнение (2.1), записанное в цилиндрических координатах, на r dr и проинтегрировать его по всему сечению разрядной трубки, от 0 до R_0 . Это дает

$$v_{\rm ion} \int n_{\rm e}(r) \, r \, {\rm d}r = \alpha_{\rm rec} N_{\rm e}(0) \int n_{\rm e}^2(r) \, r \, {\rm d}r - D_{\rm a} R_0 \, \frac{{\rm d}n_{\rm e}}{{\rm d}r} \, (r = R_0) \,.$$
(2.6)

Здесь введена безразмерная плотность электронов $n_e = N_e/N_e(0)$. Заметим, что последнее слагаемое в правой части (2.6) отрицательно, поэтому вклад рекомбинационных и диффузионных потерь суммируется. Выражение в правой части (2.6) пропорционально величине разрядного тока. Как следует из уравнения (2.6), при фиксированном значении разрядного тока увеличение вклада рекомбинационных потерь сопровождается снижением относительной величины последнего слагаемого в (2.6), т.е. уменьшением производной от плотности электронов вблизи стенки. Сравнивая это решение с решением Шотки (2.4), можно сделать вывод, что радиальное распределение плотности электронов в разряде при наличии рекомбинации более плавно спадает от оси к стенкам в приосевой области и более резко

ведет себя вблизи стенок трубки. Решения уравнения (2.1) с учетом и без учета объемной рекомбинации приведены на рис. 1 (кривые a, δ).



Рис. 1. Радиальные пространственные распределения плотности заряженных частиц, установленные на основании решения уравнения (2.1) без учета (*a*) и с учетом (*б*) объемной рекомбинации. Кривая *в* соответствует условию $\alpha_{\rm rec} N_{\rm e}(0) R_0^2/6D_{\rm a} = 10$. Кривые нормированы на одинаковые значения концентрации электронов на оси.

Неоднородная ионизация. Как видно из выполненного выше анализа, пространственное распределение плотности электронов, являющееся решением уравнения баланса (2.1) с постоянными по объему коэффициентами, представляет собой функцию, плавно спадающую от оси к стенкам разрядной трубки. Разряд заполняет практически весь объем трубки и не испытывает сжатия. Рассмотрим, как меняется характер решения уравнения (2.1) в случае непостоянных по объему коэффициентов. При этом, как будет видно из дальнейшего, наиболее резкой радиальной зависимостью обычно характеризуется константа скорости ионизации атомов или молекул электронным ударом, что связано с зависимостью этого параметра от отношения Е/N и от степени ионизации плазмы. Проанализируем уравнение баланса для плотности заряженных частиц (2.1) с учетом резкой радиальной зависимости параметра v_{eff}, пренебрегая вначале объемной рекомбинацией заряженных частиц. Реальную радиальную зависимость этого параметра будем описывать модельной, задавая размер r_0 области, в которой происходит эффективное образование заряженных частиц:

$$v_{\rm eff}(r \leqslant r_0) = v_0; \quad v_{\rm eff}(r > r_0) = 0.$$
 (2.7)

Умножим уравнение (2.1) на r dr и проинтегрируем от 0 до R_0 с учетом (2.7) и пренебрегая объемной рекомбинацией заряженных частиц. Имеем

$$\frac{\mathrm{d}N_{\mathrm{e}}}{\mathrm{d}r}(R_{0}) = \frac{v_{0}}{D_{\mathrm{a}}R_{0}} \int_{0}^{r_{0}} N_{\mathrm{e}}(r) \, r \, \mathrm{d}r \,.$$
(2.8)

Правая часть полученного выражения пропорциональна числу заряженных частиц, образующихся в единицу времени на единице длины плазменного столба. Значение этого параметра определяется значением полного разрядного тока и сравнительно слабо зависит от размера области, в которой заряженные частицы образуются. Отсюда следует, что в отсутствие объемной рекомбинации заряженных частиц производная от плотности электронов $dN_e(R_0)/dr$ не мала, как это было бы в случае контракции. Тем самым оказывается, что в отсутствие рекомбинации даже резкая пространственная неоднородность разрядного столба не приводит к его контракции.

Характер решения уравнения (2.1) качественным образом изменяется, когда, с одной стороны, частота образования заряженных частиц является резко спадающей функцией от оси к стенкам разрядной трубки, а с другой, основной вклад в нейтрализацию заряженных частиц вносят процессы объемной рекомбинации, преобладающие над диффузией. Последнее условие имеет вид

$$\frac{6D_a}{R_0^2} \ll \alpha_{\rm rec} N_e^0 \,, \tag{2.9}$$

где N_e^0 — характерное значение плотности электронов в разрядной трубке. Это условие выполняется в области относительно высоких токов и давлений. Рассматривая уравнение (2.1) в предельном случае высоких давлений, когда роль диффузии пренебрежимо мала, имеем

$$N_{\rm e}(r) = \frac{v_{\rm eff}(r)}{\alpha_{\rm rec}} \,. \tag{2.10}$$

Обычно константа скорости рекомбинации является более слабой функцией радиальной координаты по сравнению с константой скорости ионизации частиц газа, поэтому в отсутствие диффузии радиальная зависимость плотности электронов практически повторяет соответствующую зависимость функции $v_{\rm eff}(r)$. Физические причины, определяющие резкий характер этой зависимости, рассмотрены ниже.

Радиус контрагированного разряда. Следует иметь в виду, что выражение (2.10) не удовлетворяет граничному условию (2.2). Это противоречие имеет формальный характер в случае, когда константа скорости ионизации достаточно резко убывает от оси к стенкам разрядной трубки, так что плотность электронов у стенки пренебрежимо мала. Однако уменьшение плотности электронов в радиальном направлении приводит к увеличению характерного времени рекомбинации заряженных частиц $\tau_{\rm rec} \sim (\alpha_{\rm rec} N_{\rm e})^{-1}$, что в конечном счете вызывает нарушение принятого выше предположения (2.9) о несущественной роли диффузии. Для оценки поперечного размера контрагированного разряда, как и для установления правильного характера спадания плотности электронов в пристеночной области, учет диффузии необходим. Так, если свободные электроны образуются преимущественно в узкой приосевой области разрядной трубки, характерный размер r_c области, заполненной контрагированным разрядом, оценивается как длина, проходимая электроном в процессе амбиполярной диффузии за время рекомбинации

$$r_{\rm c} \sim \sqrt{D_{\rm a} \tau_{\rm rec}} \sim \sqrt{\frac{D_{\rm a}}{\alpha_{\rm rec} N_{\rm c}^0}} \,.$$
 (2.11)

Легко убедиться в том, что при выполнении условия (2.9) радиус области, заполненной разрядом, много меньше радиуса разрядной трубки. Отсюда становится понятным механизм контракции разряда. В условиях пространственно неоднородной разрядной плазмы свободные электроны образуются преимущественно в узкой приосевой области разрядной трубки. При выполнении критерия (2.11) основная часть заряженных частиц нейтрализуется в объеме, не успев достигнуть стенок, поэтому размер области, заполненной током, оказывается много меньше радиуса трубки. В реальной физической ситуации при оценке радиуса области, заполненной заряженными частицами, необходимо учитывать конечный размер области, где происходит их образование. С учетом этого величина r_c несколько превышает результат оценки (2.11).

Отметим, что точное аналитическое решение уравнения баланса для плотности электронов возможно только в рассмотренном выше предельном случае Шотки. В общем случае это нелинейное уравнение не решается аналитически даже при условии постоянства его коэффициентов, так что обычно для нахождения радиального распределения плотности заряженных частиц используются численные методы. Среди этих методов хорошо себя зарекомендовал простой приближенный метод решения уравнения (2.1) [9, 11], основанный на представлении искомой функции через варьируемые параметры C и α , характеризующие абсолютное значение плотности электронов в разряде и степень резкости ее спада в радиальном направлении:

$$N_{\rm e}(\rho) = C\left[\exp(-\alpha\rho^2) - \exp(-\alpha)\right]. \tag{2.12}$$

Здесь $\rho = r/R_0$ — безразмерная радиальная координата. Пробная функция (2.12) автоматически удовлетворяет граничным условиям (2.2), (2.3), что позволяет единым образом описывать как диффузионное (при $\alpha \leq 1$), так и контрагированное (при $\alpha \geq 1$) радиальное распределения заряженных частиц. Значения варьируемых параметров α и *С* определяются на основании решения двух трансцендентных уравнений, одно из которых получается в результате подстановки выражения (2.11) в уравнение (2.1) и интегрирования последнего по *r* d*r* от 0 до R_0 , а другое — в результате подстановки того же выражения в уравнение (2.1), вычисленное при r = 0.

Представление о точности данного метода можно получить, сравнивая полученное с его помощью приближенное решение уравнения (2.1) с постоянными коэффициентами в отсутствие объемной рекомбинации (случай Шотки) с точным решением (2.4). Выполнив указанные выше процедуры, получим следующую систему уравнений:

$$\frac{4D_{\mathrm{a}}\alpha}{R_0^2} = v_{\mathrm{eff}} \left[1 - \exp(-\alpha) \right], \qquad (2.13)$$

$$\frac{4D_{\rm a}\alpha\,\exp(-\alpha)}{R_0^2} = v_{\rm eff} \left[\frac{1-\exp(-\alpha)}{\alpha} - \exp(-\alpha)\right]. \quad (2.14)$$

В силу линейного характера исходного уравнения результат, естественно, не содержит постоянной *С*. Решение системы трансцендентных уравнений (2.13), (2.14) легко вычисляется с помощью калькулятора:

$$\alpha = 0,842;$$

 $v_{\rm eff} \frac{R_0^2}{D_a} = \frac{4\alpha}{1 - \exp(-\alpha)} = 5,9.$ (2.15)

Полученное решение практически не отличается от точного результата (2.4). В этом легко убедиться, вычислив следующий интеграл:

$$I = \int_0^1 \left\{ C \left[\exp(-\alpha \rho^2) - \exp(-\alpha) \right] - J_0(2, 405\rho) \right\}^2 \rho \, \mathrm{d}\rho \,,$$

где постоянная *С* определяется из нормировочного соотношения для радиального распределения плотности электронов:

$$C \int_0^1 \left[\exp(-\alpha \rho^2) - \exp(-\alpha) \right] \rho \, \mathrm{d}\rho = \int_0^1 J_0(2, 405\rho) \rho \, \mathrm{d}\rho \, .$$

Вычисления дают $I = 2,26 \times 10^{-7}$, т.е. приближенное решение практически совпадает с точным. Описанный простой приближенный метод решения уравнения баланса для плотности электронов (2.1) с успехом используется для решения этого уравнения в более сложных ситуациях [11], которые требуют учета объемной рекомбинации и пространственной неоднородности коэффициентов уравнения (2.1).

2.3. Сжатие разряда в результате прилипания электронов

Роль прилипания электронов в формировании пространственного распределения заряженных частиц аналогична уже рассмотренной выше роли объемной рекомбинации заряженных частиц. Так, в случае, когда эффективность образования заряженных частиц резко убывает от оси к стенкам разрядной трубки, а характерное время прилипания электрона $\tau_{\rm at} \sim I/\gamma N$ много меньше времени диффузионного ухода заряженных частиц на стенки разрядной трубки $\tau_{\rm dif} \sim R_0^2/6D_a$:

$$\frac{I}{\gamma N} \gg \frac{R_0^2}{6D_a} , \qquad (2.16)$$

разряд оказывается контрагированным [14, 15]. При этом, однако, диффузия заряженных частиц играет ведущую роль в их балансе и всегда должна учитываться при анализе радиального распределения. Так, если размер r_i области, где происходит преимущественная ионизация, много меньше радиуса трубки R_0 , радиальное распределение заряженных частиц в основной области разрядной трубки, где ионизация не существенна, является решением уравнения

$$\frac{1}{r}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}r}\left(rD_{\mathrm{a}}\frac{\mathrm{d}N_{\mathrm{e}}}{\mathrm{d}r}\right) - \gamma NN_{\mathrm{e}} = 0 \tag{2.17}$$

с граничными условиями $N_{\rm e}(0) = N_0, N_{\rm e}(R_0) = 0.$ Это решение в основной области

$$\left(rac{D_{\mathrm{a}}}{R_{0}^{2}\gamma N}
ight)^{1/2}R_{0} \gg r < R_{0}$$

имеет следующий вид:

$$N_{\rm e}(r) \approx N_0 \left\{ \exp\left[-\left(\frac{\gamma N}{D_{\rm a}}\right)^{1/2} r \right] - \exp\left[-\left(\frac{\gamma N}{D_{\rm a}}\right)^{1/2} R_0 \right] \right\}.$$
(2.18)

Как видно из этого решения, характерный размер области, заполненной электронами, $r_e \sim (D_a/\gamma N)^{1/2}$ можно понимать как расстояние, на которое диффундирует заряженная частица за время прилипания $1/\gamma N$. Таким образом, представленный выше анализ уравнения баланса заряженных частиц в столбе разряда показывает, что контрагированное распределение заряженных частиц по сечению разрядной трубки реализуется при условиях, когда образование заряженных частиц проис-

ходит в узкой приосевой области трубки, а их объемная нейтрализация превалирует над диффузионным уходом на стенки. Ниже рассмотрены конкретные физические ситуации, в которых реализуются указанные условия.

2.4. Термическая неоднородность разряда

Наиболее общей причиной пространственной неоднородности разряда является его термическая неоднородность. Значительная часть энергии, вводимой в разряд, уносится на стенки трубки в результате молекулярной теплопроводности. Это создает перепад температур между осью и стенкой разрядной трубки, который возрастает с увеличением вводимой в разряд мощности. Поскольку давление газа р постоянно по сечению разрядной трубки, пространственная температурная неоднородность разряда в силу уравнения газового состояния p = NT вызывает неоднородность значения приведенной напряженности электрического поля Е/N, что в свою очередь приводит к резкой радиальной зависимости константы скорости ионизации атомов или молекул электронным ударом. Степень резкости указанной зависимости удобно характеризовать ее логарифмической производной:

$$b_{\rm i} = \frac{\mathrm{d}\ln v_{\rm ion}}{\mathrm{d}\ln T} \bigg|_{p=\mathrm{const}} = \frac{\mathrm{d}\ln v_{\rm ion}}{\mathrm{d}\ln(E/N)} \,. \tag{2.19}$$

Величина этого параметра в условиях слабоионизованной плазмы, когда межэлектронные столкновения не влияют на функцию распределения электронов, определяется отношением E/N и не зависит от степени ионизации плазмы. В таблице 1 приведены значения параметра b_i , восстановленные из экспериментальных зависимостей $v_{ion}(E/N)$. Как видно, в широкой области изменения параметров разрядной плазмы значения b_i превышают единицу. Это означает, что при относительно небольших перепадах температуры газа (порядка самой температуры) константа ионизации газа может изменяться на порядки.

Таблица 1. Значения b_i в разряде некоторых газов при различных отношениях E/N [16]

	Значения $b_{\rm i}$ при E/N , 10^{-16} В см ² , равных								
Газ	0,5	1	3	5	10	30	40		
He	_	_	2,8	3,3	1,3	0,84	_		
Ne	3,1	3,1	2,4	2,1	1,3	1,0	0,5		
Ar			4	3,2	2,6	1,9	0,85		
Kr			4	3,2	2,6	1,9	0,85		
Xe			6	4,6	3,0	2,1	1,2		
H_2				10	3,3	1,3	0,54		
D_2				8	2,9	1,3	0,5		
O_2			7,7	4,6	3,0				
CO						3,9	1,3		
N_2				10,4	5	2,3	0,85		
CO ₂	—	—	2	0,6	0,9	1,4	1,0		

2.5. Рекомбинационный механизм расконтрагирования разряда

Преобладание объемной рекомбинации заряженных частиц над поверхностной является необходимым условием сжатия столба разряда. Среди различных механизмов объемной рекомбинации, которые могут реализоваться в газоразрядной плазме, особое место занимает диссоциативная рекомбинация электронов и молекулярных ионов [17–19]

$$\mathbf{e} + \mathbf{A}\mathbf{B}^+ \Rightarrow \mathbf{A} + \mathbf{B}, \tag{2.20}$$

в результате которой один из атомов А или В может оказаться в электронно-возбужденном состоянии. Энергия, выделяющаяся при образовании связанного состояния электрона, преобразуется в кинетическую энергию атомов, поэтому процесс (2.20), не требующий участия третьей частицы, в условиях слабоионизованной газоразрядной плазмы характеризуется весьма высокой интенсивностью. Типичное значение константы скорости указанного процесса при $T_e \approx 1 \div 3$ эВ находится в диапазоне $10^{-8} - 10^{-7}$ см³ с⁻¹, в то время как константа скорости тройной рекомбинации

$$2e + A^+ \Rightarrow A + e \tag{2.21}$$

при аналогичных условиях и $N_e \approx 10^{12}$ см⁻³ оказывается на 7–8 порядков ниже. Отсюда следует, что объемный механизм нейтрализации заряженных частиц преобладает над поверхностным только при условии наличия в газоразрядной плазме молекулярных ионов.

В разряде молекулярного газа молекулярные ионы обычно составляют основной сорт ионов, так что диссоциативная рекомбинация является основным механизмом объемной нейтрализации заряженных частиц. В разряде инертных газов молекулярные ионы преобладают над атомарными в области относительно высоких давлений и умеренных температур газа. Для оценки соотношения между плотностями атомарных N_{1i} и молекулярных N_{2i} ионов в разряде инертного газа можно использовать равновесное выражение

$$\frac{N_{\rm li}N}{N_{\rm 2i}} = \frac{g_{\rm li}g_{\rm a}}{g_{\rm mol}} \exp\left(-\frac{D}{T}\right) \frac{1}{2\pi r_0^2} \sqrt{\frac{\mu T}{2\pi\hbar}} \left[1 - \exp\left(-\frac{\hbar\omega}{T}\right)\right],$$
(2.22)

в котором g_{1i} , g_a , g_{mol} — статистические веса соответствующих частиц, r_0 — равновесное межъядерное расстояние в молекулярном ионе, μ — приведенная масса молекулярного иона, D — его энергия диссоциации, $\hbar\omega$ энергия его колебательного кванта.

Значения энергии связи молекулярных ионов инертных газов *D* находятся в диапазоне $1 \div 2$ эВ, поэтому в соответствии с выражением (2.22) молекулярные ионы преобладают над атомарными лишь при умеренных температурах газа $T \le 1000$ К. В таблице 2 представлены вычисленные на основании выражения (2.22) значения температуры инертного газа, при которых равновесные значения плотности атомных и молекулярных ионов равны друг другу. Естественно, эти значения зависят от плотности нейтральных атомов.

Таблица 2. Температура инертного газа (К), при которой сравниваются равновесные плотности атомных и молекулярных ионов [9]

N, см ⁻³	Температура, К, газов								
	He	Ne	Ar	Kr	Xe				
$10^{16} \\ 10^{17} \\ 10^{17} \\ 10^{18}$	1530 1740 2100 2630	740 870 1010 1230	910 1060 1250 1500	780 900 1050 1250	650 740 860 1010				

Температурная зависимость относительного содержания молекулярных ионов в разряде инертного газа лежит в основе интересного механизма расконтрагирования разряда инертного газа при повышенных энерговкладах, которое наблюдалось в работе В.Ю. Баранова и К.Н. Ульянова [20] и описано теоретически в работах [21, 22]. Согласно этому механизму при умеренных энерговкладах, когда температура газа в центральной области разрядной трубки не превышает значений, указанных в табл. 2, преобладают молекулярные ионы, что способствует контракции разряда. Дальнейший рост энерговклада и связанное с этим увеличение температуры газа в разряде инертного газа приводит к термическому разрушению молекулярных ионов и соответственно к снижению роли объемной нейтрализации в балансе заряженных частиц. Это сопровождается нарушением условия контракции разряда (2.9) и соответственно увеличением поперечного размера области, заполненной разрядным током. Грубая оценка радиуса контракции разряда в этом случае может быть получена на основе решения уравнения теплопроводности как размер области, в которой температура газа настолько велика, что относительное содержание молекулярных ионов пренебрежимо мало [21]. Рост энерговклада сопровождается увеличением размера этой области, что и составляет содержание явления расконтрагирования. Это явление иллюстрируется представленной на рис. 2 зависимостью относительного радиуса контракции разряда в аргоне от тока разряда, измеренной при различных давлениях газа [20].



Рис. 2. Зависимость отношения радиуса контракции r_c к радиусу трубки $R_0 = 1, 3$ см от разрядного тока [20] при различных давлениях аргона.

2.6. Сжатие разряда в молекулярных газах

Основная отличительная особенность разряда в молекулярных газах обусловлена наличием у молекул внутренних степеней свободы, связанных с возможностью их колебательного и вращательного движения. При этом, как следует из результатов многочисленных экспериментальных и теоретических исследований [23, 24], основная доля (обычно свыше 90 %) энергии, вводимой в разряд молекулярного газа, расходуется на возбуждение молекулярных колебаний. Эффективность последующей колебательной релаксации при межмолекулярных столкновениях, приводящей к преобразованию колебательной энергии в тепловую, весьма невелика. Так, для преобразования кванта колебательной энергии молекулы N_2 в тепло при комнатной температуре требуется свыше 10^{10} газокинетических межмолекулярных соударений. В результате этого в широкой области условий горения такого разряда молекулярный газ находится в сильно неравновесном состоянии, которое характеризуется сверхравновесным запасом колебательной энергии. Вероятность преобразования этой внутренней энергии молекул в энергию их поступательного движения, т.е. в тепло, незначительна, так что существенная часть колебательной энергии молекул отводится на стенки трубки в результате диффузии, в то время как поступательная температура такого газа остается относительно невысокой.

С ростом энерговклада и давления газа роль объемных процессов колебательной релаксации в балансе колебательной энергии молекул возрастает. Это сопровождается ростом поступательной температуры газа и соответственно пространственной неоднородности газоразрядного столба. Переход разряда молекулярного газа от режима диффузионного отвода колебательной энергии на стенки к режиму объемной колебательной релаксации может принимать лавинообразный, взрывной характер [25-27], что связано с резкой температурной зависимостью константы скорости колебательной релаксации. Локальный нагрев газа вследствие возможных флуктуаций тока сопровождается резким ростом константы скорости колебательной релаксации молекул, что, в свою очередь, вызывает дальнейший нагрев газа. Если время рассасывания образующейся при этом локальной термической неоднородности в результате молекулярной теплопроводности больше характерного времени колебательной релаксации при локальном значении температуры, происходит лавинообразный рост температуры газа, который сопровождается изменением преобладающего механизма колебательной релаксации. Этот рост имеет характер теплового взрыва, в результате которого газоразрядный столб приобретает пространственную температурную неоднородность, а молекулярный газ оказывается в состоянии, близком к состоянию термодинамического равновесия.

Для анализа условий перехода разряда молекулярного газа от режима диффузионного отвода колебательной энергии на стенки к режиму объемной колебательной релаксации воспользуемся простой моделью [25], включающей в себя уравнения баланса для поступательной и колебательной энергии. Введя среднее число колебательных квантов ε , приходящихся на одну молекулу, будем полагать, что колебательно возбужденные молекулы образуются в результате электронно-молекулярных соударений (константа скорости этого процесса k_{eV}), а разрушаются на стенках трубки в результате диффузии (характерное время τ_D). При данных условиях стационарное уравнение баланса для колебательной энергии имеет следующий вид:

$$\frac{\varepsilon - \varepsilon_0}{\tau_D} = N_e N k_{eV} \,. \tag{2.23}$$

Это уравнение должно анализироваться совместно с уравнением теплопроводности, которое в упрощенной форме записывается как

$$C_V \frac{T - T_0}{\tau_{\rm T}} = \frac{\varepsilon - \varepsilon_0}{\tau_{\rm VT}} \hbar \omega \,. \tag{2.24}$$

При этом предполагается, что, хотя доля колебательной энергии, выделяющейся в объеме в виде тепла, относительно невелика, именно этот процесс является основным источником нагрева газа. Такое предположение оправдано в широкой области параметров разряда, поскольку в разряде молекулярного газа вклад других источников нагрева (упругое электронно-молекулярное рассеяние, возбуждение вращательных состояний молекул) обычно еще меньше. Здесь *С*_V — удельная теплоемкость газа при постоянном объеме, $\tau_{\rm T}$ — характерное время теплопроводности газа, $\hbar\omega$ — энергия колебательного кванта молекулы, индексом "нуль" отмечены равновесные значения параметров є и Т, которые достигаются на стенках разрядной трубки, а τ_{VT} — характерное время колебательной релаксации молекул при столкновениях. Вводя безразмерную температуру

$$\Theta = \frac{T - T_0}{T_0} \tag{2.25}$$

и используя для представления резкой температурной зависимости частоты колебательной релаксации молекул стандартную экспоненциальную форму [28]

$$\frac{1}{\tau_{\rm VT}} = \frac{1}{\tau_{\rm VT}(T_0)} \exp(b_{\rm VT} \,\Theta) \,, \tag{2.26}$$

приводим систему уравнений (2.23), (2.24) к виду

$$\boldsymbol{\Theta} = A \exp(b_{\rm VT} \,\boldsymbol{\Theta}) \,. \tag{2.27}$$

Здесь коэффициент

$$A = \frac{N_{\rm e} N k_{\rm eV} \hbar \omega \, \tau_{\rm T} \, \tau_D}{C_V \tau_{\rm VT}(T_0) \, T_0} \,, \tag{2.28}$$

а параметр

$$b_{\rm VT} = \frac{d\ln(1/\tau_{\rm VT})}{d\ln T} (T = T_0) \gg 1$$
 (2.29)

характеризует степень резкости температурной зависимости константы скорости колебательной релаксации молекул. Значения этого параметра при различных температурах, восстановленные на основании измерений [16], приведены в табл. 3. Как видно, условие $b_{\rm VT} \ge 1$, лежащее в основе разложения (2.26), при умеренных температурах достаточно хорошо выполняется.

Таблица 3. Значения параметра $b_{\rm VT}$, определяемого соотношением (2.29), восстановленные для разных газов из измерений $k_{\rm VT}(T)$

Температура,	Параметр $b_{\rm VT}$ для газов							
K	H_2	D_2	N_2	O_2	СО	Cl ₂		
200 300 500	3,2 4,2 3,7	3,2 6,3 4,8	3,4 10,7 14,2	2,9 4,5 7,0	2,4 5,5 6,7	1,6 2,8 3,8		

Уравнение (2.27) широко используется в химической физике, поскольку оно определяет условие теплового самовоспламенения для экзотермической химической реакции [28]. Легко убедиться в том, что решение этого уравнения существует только при условии

$$A \leqslant \frac{1}{b_{\rm VT}\,\rm e} \tag{2.30}$$

(е — основание натурального логарифма). При выполнении условия (2.30) уравнение (2.27) имеет два решения, одно из которых (низкотемпературное) устойчиво, в то время как высокотемпературное решение неустойчиво относительно температурных флуктуаций. Неравенство, противоположное (2.30), представляет собой условие тепловой неустойчивости разряда молекулярного газа и выполняется при превышении определенного значения разрядного тока или давления газа.

2.7. Нетепловой механизм контракции разряда

Еще один физический механизм, определяющий возможность установления пространственной неоднородности параметров газового разряда, связан с зависимостью функции распределения электронов по энергиям от степени ионизации разрядной плазмы [29–32]. Такая зависимость, характерная для разряда в инертных газах, реализуется при условиях, когда сопоставимый вклад в баланс энергии электронов вносят как межэлектронные, так и упругие электрон-атомные соударения.

Область изменения параметров плазмы, в которой имеет место резкая зависимость константы скорости ионизации частиц газа от степени ионизации, может быть оценена из следующих соображений.

Функция распределения электронов по энергиям не зависит от плотности электронов в двух предельных случаях. Именно, при малой степени ионизации, когда во всей области изменения энергий электронов справедливо соотношение

$$v_{\rm ee} \ll \frac{m}{M} v_{\rm ea} \tag{2.31}$$

(m, M -массы электрона и атома, v_{ee} , $v_{ea} -$ частоты межэлектронных и упругих электрон-атомных соударений соответственно), функция распределения электронов по энергиям $f(\varepsilon)$ определяется главным образом упругими электрон-атомными соударениями и может быть представлена в виде [33]

$$f(\varepsilon) = C \exp\left[-\int_0^{\varepsilon} \frac{\mathrm{d}\varepsilon}{T + e^2 E^2 M/(3m^2 v_{\mathrm{ea}}^2)}\right].$$
 (2.32)

В противоположном предельном случае, когда справедливо соотношение

$$v_{\rm ee} \ll \frac{m}{M} v_{\rm ea} \,, \tag{2.33}$$

имеет место максвелловское распределение электронов по энергиям

$$f(\varepsilon) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} T_{\rm e}^{-3/2} \exp\left(-\frac{\varepsilon}{T}\right) \sqrt{\varepsilon} \,. \tag{2.34}$$

В области изменения степени ионизации плазмы, занимающей промежуточное положение между областями (2.33) и (2.34), функция распределения электронов по энергиям характеризуется зависимостью от степени ионизации плазмы. В отличие от частоты упругих электрон-атомных соударений v_{ea} частота межэлектронных соударений

$$v_{\rm ee} = \frac{2\pi e^4}{\varepsilon^2} N_{\rm e} \sqrt{\frac{2\varepsilon}{m}} \ln \Lambda$$
 (2.35)

($\ln \Lambda$ — кулоновский логарифм) характеризуется резко убывающей энергетической зависимостью. Поэтому типична ситуация, когда в области малых энергий электронов выполняется соотношение (2.33) и функция распределения электронов близка к максвелловской, в то время как в области энергий электронов вблизи порога возбуждения резонансных состояний атомов реализуется противоположное соотношение (2.31) и более подходящим для описания функции распределения электронов оказывается выражение (2.32), которое соответствует более резкому характеру спада функции с ростом энергии электронов.

Область энергий электрона, где происходит переход от максвелловской функции распределения (2.34) к функции (2.32), определяется степенью ионизации плазмы. Отсюда следует, что значения констант скоростей возбуждения резонансных состояний атома, как и константы ионизации атома электронным ударом, являются резко возрастающей функцией степени ионизации плазмы. Вид указанной функции определяется на основании решения кинетического уравнения Больцмана с учетом межэлектронных и электрон-атомных соударений. Приближенные методы решения этого нелинейного интегрального уравнения развиты в работах [34-37], где вычислены зависимости константы скорости ионизации атомов электронным ударом от степени ионизации плазмы инертных газов для ситуации, когда основной механизм образования заряженных частиц в плазме связан со ступенчатой ионизацией атомов.

Резкий возрастающий характер указанной зависимости при наличии объемной рекомбинации заряженных частиц приводит к сжатию разряда даже в отсутствие термодинамической неоднородности, т.е. при относительно невысоких энерговкладах в разряд. Рассматриваемый нетепловой механизм пространственной неоднородности разрядного столба реализуется в области умеренных степеней ионизации плазмы

$$\frac{1}{2\pi} \frac{m}{M} \frac{\sigma_{\text{ea}}(T_{\text{e}}) T_{\text{e}}^2}{e^4 \ln \Lambda} \leqslant \frac{N_{\text{e}}}{N} < \frac{1}{2\pi} \frac{m}{M} \frac{\sigma_{\text{ea}}(I_t) I_t^2}{e^4 \ln \Lambda} .$$
(2.36)

Здесь σ_{ea} — сечение упругих электрон-атомных соударений, e — заряд электрона, T_e — температура электронов, I_t — энергия резонансного уровня атома, $\ln \Lambda \approx 10$ — кулоновский логарифм. При типичных для газоразрядной плазмы инертных газов значениях $T_e \approx 1$ эВ, $I_t \approx 15$ эВ, $\sigma_{ea}(T_e) \approx \sigma_{ea}(I_t) \approx 10^{-15}$ см⁻² условие (2.36) соответствует области изменения степени ионизации плазмы $N_e/N \approx 10^{-6} \div 10^{-4}$.

3. Тепловой режим газоразрядной плазмы

3.1. Локальное термодинамическое и ионизационное равновесие

Рассмотрим режим газоразрядной плазмы, который осуществляется в дуговом разряде высокого давления и носит название локального термодинамического равновесия. В этом режиме благодаря высокой плотности газа и относительно высокой плотности электронов столкновительные процессы в рассматриваемой точке пространства оказываются существеннее, чем процессы переноса. Поэтому пространственная неоднородность параметров плазмы сравнительно невелика, и в каждой точке пространства поддерживается состояние, близкое к состоянию термодинамического равновесия при локальных значениях газовой T и электронной T_e температур, что соответствует максвелловской функции распределения атомов и электронов по скоростям.

Эти температуры устанавливаются в результате протекания процессов взаимодействия электронов с внешними полями и переноса тепла в поперечном сечении разряда. Однако связь между электронной и газовой температурами определяется только внешними полями и столкновительными процессами, так что процессы переноса не оказывают на нее воздействия. В частности, если газоразрядная плазма поддерживается постоянным электрическим полем напряженностью *E*, то разность электронной и газовой температур равна [33, 35]:

$$T_{\rm e} - T = \frac{Ma^2}{3} \frac{\langle v^2 / v \rangle}{\langle v^2 v \rangle} , \qquad (3.1)$$

где M — масса атома, a = eE/m, e — заряд электрона, угловые скобки означают усреднение с использованием максвелловской функции распределения электронов по скоростям v, v — частота столкновения электрона с атомами. В частности, если v не зависит от скорости электрона, формула (3.1) принимает вид [33, 38, 39]

$$T_{\rm e} - T = \frac{Mw^2}{3} , \qquad (3.2)$$

где *w* — дрейфовая скорость электронов.

Локальное термодинамическое равновесие для электронов и атомов газа имеет место при условии, согласно которому время обмена энергией для электрона при столкновении с другими электронами должно быть мало по сравнению со временем переноса электронной энергии в другие области пространства, и этот же критерий должен выполняться для атомов газа. Далее мы рассмотрим случай локального ионизационного равновесия, который требует выполнения более жесткого критерия. В этом случае плотность электронов N_e в данной точке газоразрядной плазмы связана с плотностью атомов N формулой Саха [33]

$$\frac{N_{\rm e}^2}{N} = \frac{g_{\rm e}g_{\rm i}}{g_{\rm a}} \left(\frac{mT_{\rm e}}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{J}{T_{\rm e}}\right). \tag{3.3}$$

Для простоты мы рассматриваем однокомпонентный газ. Здесь J — потенциал ионизации атома, m — масса электрона, \hbar — постоянная Планка, $g_e = 2$, g_i , g_a статистические веса для электрона, иона и атома соответственно. При этом в силу условия $T_e \ll J^1$ плотность возбужденных атомов мала по сравнению с плотностью атомов в основном состоянии, так что возбужденные состояния не вносят вклада в полную плотность атомов. Кроме того, газоразрядная плазма квазинейтральна: $N_e = N_i$.

Критерий справедливости локального ионизационного равновесия может быть записан в виде

$$\tau_{\rm rec} \ll \tau_{\rm dif} \,, \tag{3.4}$$

где $\tau_{\rm rec} \propto (KN_e^2)^{-1}$ — характерное время рекомбинации для отдельного электрона, а $\tau_{\rm dif} = R_0^2/(5,78D_{\rm a})$ — характерное время диффузии электрона из области, занимаемой плазмой. Здесь *K* — константа скорости тройной рекомбинации электронов и ионов, которая может быть выражена формулой [18]

$$K = 6, 4 \times 10^{-22} \,\mathrm{cm}^{6} \,\mathrm{c}^{-1} \,\left(\frac{1000}{T_{\mathrm{e}}}\right)^{9/2},$$

где T_e — температура электронов, в градусах К, R_0 — радиус области, занимаемой плазмой, D_a — коэффициент амбиполярной диффузии, который выражается через коэффициент диффузии ионов D_i :

$$D_{\rm a}=D_{\rm i}\left(1+\frac{T_{\rm e}}{T}\right).$$

Тем самым условие локального ионизационного равновесия выполняется, если параметр

$$\eta = \frac{\tau_{\rm dif}}{\tau_{\rm rec}} = \frac{K N_{\rm e}^2 R_0^2}{5,8 D_{\rm a}}$$
(3.5)

является большим. Далее мы будем проверять выполнение критерия (3.5) при анализе конкретной газоразрядной плазмы.

3.2. Тепловой баланс положительного столба газоразрядной плазмы

Рассмотрим тепловой баланс положительного столба газового разряда, считая, что теплоотвод определяется теплопроводностью газа. Тогда уравнение теплового баланса в цилиндрической разрядной трубке имеет вид

$$\frac{1}{r}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}r}\left(\varkappa(T)r\frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}r}\right) + p(r) = 0, \qquad (3.6)$$

где $\varkappa(T)$ — коэффициент теплопроводности, p(r) = iE — удельная мощность тепловыделения (здесь i — плотность разрядного тока, E — продольная напряженность электрического поля в разряде).

Уравнение (3.6) позволяет определить перепад температуры между стенками и осью разрядной трубки. Пусть распределение плотности электронов по сечению дается формулой Шотки (2.4), которая соответствует случаю, когда тепловыделение в результате прохождения электрического тока через газ не влияет на характер распределения электронов по сечению разрядной трубки. При этом последнее слагаемое в уравнение (3.6) имеет вид

$$p(r) = p_0 J_0\left(\frac{2,4r}{R_0}\right).$$

Аппроксимируем температурную зависимость коэффициента теплопроводности степенной функцией

$$\chi(T) = \chi_0 \left(\frac{T}{T_0}\right)^n,$$

где T_0 — температура газа вблизи стенок разрядной трубки. Полученное таким образом уравнение имеет следующий вид:

$$\frac{\chi_0}{(n+1)} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} T^{n+1} \right) = -p_0 T_0^n J \left(2, 4 \frac{r}{R_0} \right).$$
(3.7)

¹ В данной статье температура выражается в энергетических единицах.

Двукратное интегрирование этого уравнения с учетом граничных условий, введенных выше, дает

$$T(r) = T_0 \left[1 + \frac{0.13(n+1)P_l J_0(2, 4r/R_0)}{\chi_0 T_0} \right]^{1/(n+1)}, \quad (3.8)$$

где $P_l = iE = 1, 3p_0R_0^2$ — мощность, выделяемая на единице длины разрядной трубки. Данное выражение справедливо при условии, когда доля энергии, уносимая излучением, относительно невелика.

Из полученного выражения (3.8) следует соотношение для перепада температур между осью и стенками разрядной трубки

$$T(0) - T_0 = T_0 \left[1 + \frac{0.13(n+1)P_l}{\chi_0 T_0} \right]^{1/(n+1)}.$$
 (3.9)

Для большинства газов значение параметра *n* меньше или порядка единицы, поэтому с хорошей точностью можно считать, что перепад температуры в разрядной трубке пропорционален корню квадратному из величины полной мощности, вводимой в разряд.

Рассмотрим данную проблему в более общем виде. Зададим распределение удельной мощности тепловыделения по сечению в форме

$$p = p_0 \left[1 - \left(\frac{r}{R_0} \right)^{\alpha} \right].$$

В этом случае мощность тепловыделения, приходящаяся на единицу длины разрядной трубки, составляет

$$P = \pi p_0 \, \frac{R_0^2 \alpha}{\alpha + 2} \, ,$$

а перепад температур выражается соотношением (3.9) с численным коэффициентом, зависящим от параметра α:

$$T(0) - T_0 = T_0 \left[1 + \frac{f(\alpha)(n+1)P_l}{\chi_0 T_0} \right]^{1/(n+1)},$$
(3.9a)

где $f(\alpha) = (\alpha + 4)/4\pi(\alpha + 2)$. Как видно, величина перепада температуры в разряде крайне слабо чувствительна к характеру распределения источников тепловыделения. Так, при $(n + 1)P_l/\chi_0 T_0 = 1$ изменение параметра α от 1 до 10 приводит к снижению относительного перепада температур в разряде на 1,5 %, а при $(n + 1)P_l/\chi_0 T_0 = 10$ такое снижение не превышает 8 %. Таким образом, как перепад, так и характер радиального распределения температуры в разряде практически однозначно определяются величиной вводимой мощности P_l .

Соотношение (3.9) дает перепад температур в разрядной трубке и полезно для анализа теплового режима тлеющего разряда. Продемонстрируем это на следующем примере. Мощность излучения CO₂-лазера возрастает по мере увеличения вкладываемой в разряд мощности. Однако с ростом температуры газовой смеси ускоряются процессы колебательной релаксации, связанные с тушением колебательно возбужденных молекул в результате столкновения с атомами гелия и друг с другом. Поскольку константа скорости этого процесса резко зависит от температуры, то при определенной температуре происходит срыв генерации. Этот фактор и определяет максимальную удельную мощность CO₂-лазера.

Температура срыва лазерной генерации близка к 700 К [1]. Исходя из этого и полагая, что активная среда в рассматриваемой лазерной установке заключена в длинную цилиндрическую трубку, охлаждаемую молекулярной теплопроводностью, на основе формулы (3.9) получаем для максимальной вводимой в лазер удельной мощности P = 8 Вт см⁻¹. Учитывая типичное значение коэффициента полезного действия СО2-лазера, равное примерно 15%, находим максимальную удельную мощность лазера равной 1 Вт см⁻¹, что соответствует типичным параметрам практических лазерных установок. Из соотношения (3.9) следует, что полученная мощность лазера, приходящаяся на единицу длины разрядной трубки, не зависит от радиуса разрядной трубки. Таким образом, простое соотношение позволяет проанализировать температурный перепад в плазме положительного столба газового разряда и получить надежные опенки.

3.3. Тепловая неустойчивость газоразрядной плазмы

Сильное нагревание газа под действием разрядного тока, которое имеет место в дуговом разряде, сопровождается повышенным тепловыделением. В стационарных условиях это должно компенсироваться повышением интенсивности теплоотвода, что в свою очередь требует изменения характера распределения тока по сечению разряда. В результате область, занимаемая током, сжимается и занимает лишь часть разрядной трубки. Это одно из проявлений сжатия или контракции разряда, механизмы возникновения которого в случае тлеющего разряда обсуждались в предыдущем разделе. Далее рассмотрен характер контракции в случае термической плазмы дугового разряда, состояние которой соответствует условиям локального термодинамического равновесия.

Проанализируем уравнение теплового баланса (3.6), которое запишем в виде

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}x}\left(x\,\frac{\mathrm{d}\Theta}{\mathrm{d}x}\right) + A\exp(b\Theta) = 0\,. \tag{3.10}$$

Здесь

$$\Theta = \frac{T - T_0}{T_0}, \quad A = \frac{R_0^2 p T_0}{4 T_0 \varkappa T_0}, \quad b = T_0 \frac{\mathrm{d} \ln p}{\mathrm{d} T} T_0$$

 T_0 — температура стенок. При этом мы считаем, что мощность энерговыделения *р* зависит от сечения разрядной трубки через температуру газа, причем эта зависимость резкая, т.е. $b \ge 1$. Например, при наличии термодинамического равновесия в плазме дугового разряда имеем

$$p \propto N_{\rm e} \propto \exp\left(-\frac{J}{2T_{\rm e}}\right),$$
 (3.11)

где *N*_e — плотность электронов, *J* — потенциал ионизации атома. Отсюда

$$b = \frac{J}{2T_0} \gg 1 \,.$$

Решение уравнения (3.10) дается формулой Фока

$$\Theta = \frac{1}{b} \ln \frac{2\gamma}{Ab(1+\gamma x)^2}, \qquad (3.12)$$

где γ — постоянная интегрирования. В этом решении учитывается граничное условие $dT/d\rho = 0$ на оси. Условие $\Theta(x = 1) = 0$ приводит к следующему уравнению для параметра γ :

$$2\gamma = Ab(1+\gamma)^2$$

Как видно, действительные решения уравнения существуют при условии Ab < 1/2. Нарушение этого условия означает, что теплоотвод за счет теплопроводности не может скомпенсировать тепловыделение в объеме и поэтому сопровождается развитием тепловой неустойчивости, которая вызывает сжатие разряда. Уменьшение размера области, в которой происходит тепловыделение, соответствует росту теплоотвода, что обеспечивает баланс тепла в данной системе.

Порог возникновения неустойчивости соответствует условиям $\gamma = 1$; Ab = 1/2, т.е. $b\Theta = \ln[2/(1+x)]$. Отсюда имеем для мощности тепловыделения в центре разрядной трубки p_0 и вблизи стенок $p(T_0)$:

$$\frac{p_0}{P(T_0)} = 4. ag{3.13}$$

Радиус r_e области, занимаемой током, определяется условием совпадения полных мощностей тепловыделения и теплоотвода. Это дает

$$r_{\rm e}^2 \sim \frac{\varkappa(T_0)}{{\rm d}p/{\rm d}T}$$

3.4. Сжатие газоразрядной плазмы в режиме локального ионизационного равновесия

Рассматриваемый случай тепловой неустойчивости может быть проанализирован более детально для дуговой плазмы высокого давления при наличии локального ионизационного равновесия. Тогда можно получить аналитические выражения для распределения плазмы по сечению цилиндрической трубки, что позволяет исследовать детали данного явления. При этом в уравнение теплового баланса плазмы (3.6) наряду с переносом тепла за счет теплопроводности газа включим перенос тепла в результате электронной теплопроводности:

$$\frac{1}{r}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}r}\left\{r\left[\varkappa(T)\frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}r}+\varkappa_{\mathrm{e}}(T_{\mathrm{e}})\frac{\mathrm{d}T_{\mathrm{e}}}{\mathrm{d}r}\right]\right\}+p(r)=0.$$
 (3.14)

Здесь r — расстояние от центра разрядной трубки, T, T_e — газовая и электронная температуры, $\varkappa(T)$, $\varkappa_e(T_e)$ коэффициенты газовой и электронной теплопроводности, p(r) = i(r) E — мощность энерговыделения в единице объема, так что i(r) — плотность электрического тока, E— напряженность электрического поля. Это уравнение занимает центральное место при анализе плазмы дугового разряда и носит название уравнения Элленбааса– Хелера [40, 41].

Упрощающим фактором в рассматриваемой ситуации является малость электронной температуры по сравнению с потенциалом ионизации атома ($T_e \ll J$). В силу этого величина плотности электронов весьма чувствительна к небольшим изменениям электронной температуры. Соответственно в области, занимаемой плазмой, электронная и газовая температуры меняются слабо. Это позволяет, опираясь на малый параметр T_e/J , достаточно надежно определить распределение плотности электронов по сечению разрядной трубки. Введем безразмерный параметр

$$y = \frac{\left[T_{\rm e}(0) - T_{\rm e}(r)\right]J}{2T_{\rm e}^2(0)}.$$
(3.15)

Тогда согласно формуле (3.11)

$$N_{\rm e}(r) = N_{\rm e}(0) \, \exp(-y) \, .$$

Соответственно мощность энерговыделения меняется по сечению следующим образом: $p(r) = p_0 \exp(-y)$, где $p_0 = p(0)$. Как видно, параметры плазмы весьма чувствительны к малым изменениям электронной температуры. Поэтому в области плазмы, определяющей ее энергобаланс, относительное изменение температуры электронов и газа невелико.

Учитывая это, введем параметры

$$\Delta T_{\rm e} = T_{\rm e}(0) - T_{\rm e}(r), \quad \Delta T = T(0) - T(r).$$
 (3.16)

Связь между этими параметрами получим из уравнения (3.12). Считая, что зависимость частоты столкновения v от скорости электрона имеет степенной вид $v \propto v^{\alpha}$, находим

$$\Delta T = \Delta T_{\rm e} \, \frac{1 + \alpha - \alpha T/T_{\rm e}}{2T_{\rm e}/T - 1} \,. \tag{3.17}$$

Подставляя это соотношение в уравнение (3.14) и используя переменную $x = r^2/R_0^2$, приведем его к виду

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}x}\left[x(\exp(-y)+\xi)\,\frac{\mathrm{d}y}{\mathrm{d}x}\right] - A\exp(-y) = 0\,. \tag{3.18}$$

Мы учли, что коэффициент электронной теплопроводности пропорционален плотности электронов, и выделили эту зависимость. Параметры уравнения (3.18) даются следующими выражениями:

$$\xi = \frac{T \varkappa(T) \left(1 + \alpha - \alpha T/T_{\rm e}\right)}{\varkappa_{\rm e}(T_{\rm e}) \left(2T_{\rm e} - T\right)} , \qquad A = \frac{p_0 R_0^2 J}{8T_{\rm e}^2 \varkappa_{\rm e}(T_{\rm e})} .$$
(3.19)

Отметим, что все параметры в формуле (3.19) берутся на оси разрядой трубки. Кроме того, $A \ge 1$.

Уравнение (3.18) является уравнением теплового баланса плазмы положительного столба, поэтому первое слагаемое описывает теплоотвод за счет газовой и электронной теплопроводности, второе слагаемое характеризует тепловыделение, обусловленное прохождением электрического тока через плазму. Рассмотрим последовательно два режима теплоотвода, в первом из которых теплоотвод определяется газовой теплопроводностью, во втором — электронной. В первом режиме $\xi \ge 1$ и слагаемым $\exp(-y)$ можно пренебречь. Тогда уравнение баланса принимает вид уравнения Фока (3.10), которое имеет решение

$$y = 2\ln\left(1 + \frac{Ax}{2\xi}\right). \tag{3.20}$$

Это отвечает следующему распределению плотности электронов по сечению:

$$N_{\rm e}(\rho) = N_{\rm e}(0) \exp(-y) = \frac{N_{\rm e}(0)}{(1 + r^2/a^2)^2},$$

$$a^2 = \frac{16T_{\rm e}^2 T \varkappa(T) (1 + \alpha - \alpha T/T_{\rm e})}{p_0 J (2T_{\rm e} - T)}.$$
 (3.21)

Интегрируя по сечению разрядной трубки, получим соотношение для полного тепловыделения и теплоотвода:

$$P = IE = \int p_0 \exp(-y) 2\pi r \, dr =$$

= $\frac{16\pi T_e^2 T \varkappa(T) (1 + \alpha - \alpha T/T_e)}{J (2T_e - T)}$. (3.22)

В другом предельном случае $\xi \ll 1$ рассмотрим две области изменения функции *y*, так что в области *y* > ln(1/ ξ) решение уравнения (3.18) дается формулой (3.20). В области *y* < ln(1/ ξ) введением новой переменной *Y* = $N_{\rm e}(r)/N_{\rm e}(0) = \exp(-y)$ приведем уравнение (3.18) к виду

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}x}\left(x\,\frac{\mathrm{d}Y}{\mathrm{d}x}\right) + AY = 0\,. \tag{3.23}$$

Решение этого уравнения с граничным условием Y(0) = 1 выражается через функцию Бесселя:

$$Y = J_0(2\sqrt{Ax}). \tag{3.24}$$

Область плазмы, где распределение электронной температуры дается формулой (3.24), вносит основной вклад в полный ток разряда. Отсюда вытекает соотношение для полной мощности разряда

$$IE = \int p_0 Y 2\pi r \, \mathrm{d}r = 1,30 \, p_0 r_0^2 \,, \tag{3.25}$$

где радиус плазменного столба r_0 отвечает обращению в нуль функции Бесселя:

$$r_0^2 = 5,78 \frac{R_0^2}{A} = \frac{46T_e^2 \varkappa_e(T_e)}{p_0 J}$$
 (3.26)

Это дает следующее выражение для полной мощности разряда:

$$P = IE = \frac{15\pi T_{\rm e}^2 \varkappa_{\rm e}(T_{\rm e})}{J} \,. \tag{3.27}$$

Объединяя выражения (3.19) и (3.27), получим выражение для мощности тепловыделения на единицу длины разрядной трубки для обоих режимов:

$$P = IE = \frac{15\pi T_{\rm e}^2 \left[0.8T\varkappa(T)(1 + \alpha - \alpha T/T_{\rm e}) + 3.4(2T_{\rm e} - T)\varkappa_{\rm e}(T_{\rm e}) \right]}{J(2T_{\rm e} - T)}.$$
(3.28)

Как видно, энергобаланс в положительном столбе рассматриваемого дугового разряда не зависит от радиуса разрядной трубки, поскольку плазма сосредоточена в узкой приосевой области трубки. Эффективный радиус плазмы дается формулами (3.21), (3.26), из которых следует, что он обратно пропорционален p_0 , т.е. по мере возрастания энерговклада в плазму занимаемый ею объем сокращается.

Удобно объединить формулы (3.21) и (3.26). Для этого определим радиус плазмы на основании соотношения

$$\int N_{\rm e}(r) 2\pi r \, {\rm d}r = 1,30 N_0 r_0^2 \,,$$

5 УФН, т. 166, № 11

которое справедливо в случае распределения Бесселя (3.24). Это дает $r_0^2 = 2,31a^2$. Сшивая формулы (3.21) и (3.26) с учетом этого соотношения, получим выражение для размера области, занимаемой плазмой:

$$r_0^2 = 44,8T_e^2\varkappa_e(T_e)\,\frac{1+3,4\xi}{p_0J}\,.$$
(3.29)

Как следует из представленного выше анализа, газоразрядная плазма, находящаяся в состоянии локального термодинамического равновесия, с достаточной полнотой описывается в рамках модели, основанной на малом отношении температуры электронов к потенциалу ионизации атомов. В этом случае радиальные распределения электронной и газовой температур, а также плотностей электронов и разрядного тока при заданном давлении и сорте газа однозначно определяются полным энерговкладом. В таблице 4 представлены вычисленные на основании изложенного подхода параметры плазмы положительного столба аргоновой дуги, находящейся в состоянии локального термодинамического равновесия. Расчеты проводились для различных значений электронной и газовой температур на оси разрядной трубки. Указанные в левом столбце таблицы значения T, T_e, N, $N_{\rm e}, w$ и p_0 соответствуют оси разрядной трубки.

Таблица 4. Параметры аргоновой плазмы положительного столба высокого давления при наличии локального ионизационного равновесия

Параметр	араметр		Значение параметра в случае					
	1	2	3	4	5	6		
<i>T</i> , 10 ³ K	2	1	1	2	2	2		
$T_{\rm e}, 10^3 {\rm K}$	6	6,5	6,5	7	8	8		
Давление, атм	2	1	3	2	1	2		
$N, 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	7,3	7,3	22	7,3	3,7	7,3		
$N_{\rm e},10^{14}~{ m cm^{-3}}$	0,71	2,4	4,2	7,1	29	40		
<i>w</i> , 10 ⁵ см с ⁻¹	1,58	1,85	1,85	1,77	1,94	1,94		
$E, \mathbf{B} \mathbf{c} \mathbf{M}^{-1}$	6,1	11	33	9,2	6,4	13		
ξ	13	1,1	1,9	1,0	0,11	0,15		
$P, { m Bt} { m cm}^{-1}$	4,1	2,8	2,2	9,7	65	47		
<i>I</i> , A	0,67	0,26	0,07	1,1	10	3,7		
$p_0, { m Br} { m cm}^{-3}$	11	79	410	180	570	1600		
ρ_0, cm	0,36	0,14	0,051	0,17	0,28	0,14		
$\eta = \tau_{\rm dif}/\tau_{\rm rec}$	8	7	8	82	930	960		

4. Кластерная плазма

4.1. Прикладные аспекты плазмы дугового разряда

Рассматриваемая здесь пространственно неоднородная плазма имеет широкую область приложений, среди которых в первую очередь следует упомянуть плазмотроны [42, 43]. В них плазма дугового разряда в виде движущегося потока служит теплоносителем в разных прикладных задачах техники, химии и металлургии. Обычно используемый объект в виде порошка или пыли вводится в поток газа, который далее проходит через область дугового разряда. Образующийся на выходе поток газоразрядной плазмы, содержащий, как правило, небольшую примесь частиц и/или химически активных радикалов, применяется для разных приложений. Так, поток плазмы, содержащий частицы порошка, направляется для обработки поверхности. Плазма, содержащая активные радикалы или атомный пар, используется для осуществления химических превращений.

Основанное на этом методе важнейшее направление диагностики металлов, широко применяемое в металлургии, носит название эмиссионной спектроскопии. Исследуемый металл в виде порошка или раствора вводится в движущийся поток газа, проходящий через зону дугового разряда, и далее по спектру свечения плазмы расшифровывается его состав. Описанный метод позволяет определить содержание примесей в металле и является важным инструментом современной металлургии.

С возникновением новых проблем рассматриваемая плазма находит новые приложения. Одно из них связано с производством фуллеренов, представляющих собой многоатомные молекулы углерода, в которых атомы регулярным образом расположены на поверхности сферы или сфероида в виде правильных шестиугольников и пятиугольников [44-46]. В этом случае используется высокая температура газоразрядной плазмы, высокий градиент температуры и простая возможность введения в газоразрядную плазму фрагментов углерода в результате термического разрушения графитовых электродов. Образующиеся при этом фрагменты углерода, представляющие собой комбинации из шестиугольных элементов поверхности графита [47], объединяются в фуллерены, после чего вместе с конвекционным потоком газа выносятся на холодную границу плазменной области, где происходит закалка. Эта технология используется не только для производства фуллеренов, но также и для получения нанотрубок. Кроме того, добавление в графитовые электроды некоторого количества металлической пудры приводит к образованию эндоэдральных молекул [48, 49], представляющих собой молекулы фуллеренов, внутри которых заключен один или несколько атомов.

Далее для демонстрации возможностей пространственно неоднородной газоразрядной плазмы рассмотрим еще одно из новых прикладных направлений ее использования, связанное с введением в нее металлических кластеров. Образующаяся при этом кластерная плазма является своеобразным физическим объектом, свойства которого мы проанализируем более подробно. Сама газоразрядная плазма следующим образом влияет на свойства кластеров. Поскольку потенциал ионизации кластеров находится между потенциалом ионизации атомов и работой выхода металлической поверхности, кластеры в газоразрядной плазме легко ионизуются. Это отражается на их поведении. В частности, явление электрофореза, проявляющееся в действии электрического поля газового разряда на ионы газоразрядной плазмы, вызывает направленное движение заряженных кластеров от анода к катоду. Это упрощает введение кластеров в газоразрядную плазму. Во-первых, если ввести металлические нейтральные кластеры в области анода, они быстро ионизуются и в результате дрейфа и диффузии распределяются по всему объему плазмы. Вовторых, кластеры являются эффективными излучателями, которые в условиях газоразрядной плазмы ответственны за ее свечение. Это открывает возможность использования газоразрядной кластерной плазмы в качестве эффективного источника света. В-третьих, в рассматриваемой плазме возникает цепь процессов, связанных с разрушением и ростом кластеров, которая определяет их судьбу. Совокупность этих процессов рассмотрена ниже.

4.2. Излучение кластеров в плазме

Введенные в горячий газ макроскопические частицы или кластеры при определенных условиях определяют излучение такой системы. Этот эффект, обнаруженный в пламенах еще в прошлом веке [50, 51], лежит в основе давно обсуждаемой возможности создания газоразрядного источника света с частицами в качестве излучателей [52]. Анализируя газоразрядный источник света, в котором излучение создается находящимися в плазме кластерами, рассмотрим сначала особенности излучения кластеров. Кластеры — более эффективные излучатели, чем другие частицы в плазме. Действительно, при отсутствии кластеров излучение непрерывного спектра в плазме является результатом парных столкновений. Например, излучение фотосферы Солнца, которое содержит основную часть света, доходящего до Земли, обусловлено процессом

$$e + H \to H^- + \hbar\omega \,. \tag{4.1}$$

Излучение мощных дуговых ламп имеет фоторекомбинационную природу и определяется столкновением электронов и ионов:

$$\mathbf{e} + \mathbf{A}^+ \to \mathbf{A}^* + \hbar\omega \,. \tag{4.2}$$

Все эти процессы относительно малоэффективны, поскольку зависят от малого параметра — отношения плотности электронов к характерной атомной плотности. Подобный параметр исчезает, если переходы происходят между дискретными состояниями атомной системы, как это имеет место в кластере. Спектр излучения, возникающего при переходе между связанными состояниями атомов, состоит из отдельных спектральных линий. По мере перехода от атомов к молекулам и далее к кластерам линии спектра преобразуются сначала в полосы, которые далее приобретают форму непрерывного спектра. Поэтому металлические кластеры являются эффективными излучателями в непрерывной области спектра. Преимущество таких излучателей перед макроскопическими системами состоит в том, что мощность излучения пропорциональна числу атомов в кластере, тогда как в макроскопической системе вклад в излучение вносит некоторый поверхностный слой ато-MOB.

Однако для излучения кластеров необходимо, чтобы рассматриваемая область спектра была активной, т.е. чтобы существовали механизмы, вызывающие излучательные переходы в этой области спектра. Далее мы рассмотрим металлические кластеры, у которых активность излучения в оптической области спектра определяется резонансом в области плазменных частот

$$\omega_p = \left(\frac{4\pi N_e^2 e^2}{m_*}\right)^{1/2},$$
(4.3)

где N_e — плотность электронов в зоне проводимости, m_* — эффективная масса электрона, e — заряд электрона. Это и вызывает эффективное излучение нагретых металлических кластеров.

Излучение кластеров приводит к потерям энергии газоразрядной плазмы. Включая этот процесс в тепло-

вой баланс газоразрядной плазмы, перепишем уравнение баланса (3.22) в виде

$$P = IE = \frac{20\pi T_e^2 \varkappa_e(T_e)(1+0,8\xi)}{J} + P_{\rm rad}, \qquad (4.4)$$

где *P*_{rad} — мощность излучения плазмы. При заданной температуре электронов на оси, а следовательно, при заданной плотности электронов на оси это приводит к увеличению объема, заполненного плазмой. Эффективный радиус столба газоразрядной плазмы теперь дается формулой

$$r_0^2 = \frac{15T_e^2 \varkappa_e(T_e)(1+3,4\xi)}{p_0 J} + \frac{P_{\rm rad}}{p_0} \,. \tag{4.5}$$

Сечение поглощения света на длине волны λ малой сферической макроскопической частицей радиусом r имеет вид [53]

$$\sigma_{\rm abs} \sim \pi r^2 \frac{r}{\lambda} \,, \tag{4.6}$$

т.е. содержит поперечник частицы и малый параметр r/λ . Отсюда следует, что сечение поглощения света малой частицей пропорционально ее объему или числу атомов n в ней.

Этот вывод подтверждается результатами измерений для металлических кластеров различного типа (Ag, Li, K) [54–57], которые будут использованы нами в дальнейшем. Представим сечение поглощения фотона кластером в виде резонансной формулы

$$\sigma_{\rm abs}(\omega) = \sigma_0 \Gamma^2 \left[\left(\hbar \omega - \hbar \omega_0 \right)^2 + \Gamma^2 \right]^{-1}, \qquad (4.7)$$

где Γ — ширина резонанса, ω_0 — резонансная частота и σ_0 — максимальное сечение поглощения, пропорциональное числу атомов кластера. Параметры этой формулы слабо зависят от размера кластера. Статистическая обработка экспериментальных данных [54] для кластерных ионов Ag⁺ и Ag⁺₂₁ дает $\hbar\omega_0 = 3, 9 \pm 0, 1$ эВ, $\Gamma = 0, 59 \pm 0, 03$ эВ, $\sigma_0/n = (9 \pm 1) \times 10^{-17}$ см²; для кластерных ионов K⁺₉-K⁺₉₀₀ [55, 56] приводит к следующим параметрам: $\hbar\omega_0 = 2,00 \pm 0,05$ эВ, $\Gamma = 0,26 \pm 0,10$ эВ, $\sigma_0/n = (34 \pm 6) \times 10^{-18}$ см², а для кластерных ионов Li⁺₁₃₉-Li⁺₁₅₀₀ [57] эти параметры равны $\hbar\omega_0 =$ = $3, 1 \pm 0, 1$ эВ, $\Gamma = 1, 12 \pm 0, 15$ эВ, $\sigma_0/n = (52 \pm 8) \times \times 10^{-18}$ см². Далее мы используем приведенные значения для определения излучательных характеристик систем, содержащих кластеры.

Перейдем от сечения поглощения кластеров к мощности излучения горячего кластера. Согласно закону Кирхгофа спектральная мощность излучения системы $I(\omega)$ связана с сечением поглощения излучения этой системы соотношением [58, 59]

$$I(\omega) = 4\pi c \sigma_{\rm abs}(\omega) \, i(\omega) \,, \tag{4.8}$$

где c — скорость света, $i(\omega)$ — спектральная мощность излучения абсолютно черного тела, приходящаяся на единицу объема и единицу телесного угла:

$$i(\omega) = \frac{\hbar\omega^3}{4\pi^3 c^3 [\exp(\hbar\omega/T) - 1]} .$$
(4.9)

Из полученных формул следует, что полная мощность излучения плазмы за счет содержащихся в ней кластеров

пропорциональна полной массе кластеров в этом объеме и не зависит от распределения кластеров по размерам. Этот результат, справедливый также для излучения горячего газа, создаваемого содержащимися в нем частицами [58, 60], следует из теории излучения малых макроскопических частиц и подтверждается экспериментами для некоторых металлических кластеров.

Используя данные измерения сечений поглощения для указанных металлических кластеров, приведем далее параметры излучения газоразрядной плазмы, содержащей такие кластеры. Таблица 5 содержит мощность излучения газоразрядной плазмы на единицу массы кластеров, которая равна

$$P = \int \frac{I(\omega) \,\mathrm{d}\Omega}{M} \,, \tag{4.10}$$

где *М* — масса кластеров. При этом существенно, что полная мощность излучения кластеров, содержащихся в плазме, пропорциональна полной массе. Таблица 6 содержит значения световой отдачи для излучения газоразрядной плазмы, содержащей соответствующие кластеры. Эта величина определяется формулой

$$\eta = \frac{\int I(\omega) V(\omega) \, \mathrm{d}\omega}{\int I(\omega) \, \mathrm{d}\omega} \,, \tag{4.11}$$

где $I(\omega)$ — спектральная мощность излучения кластеров, функция видности $V(\omega)$ характеризует цветовое восприятие глаза и имеет максимум, равный 683 лм Вт⁻¹ при длине волны излучения $\lambda = 555$ нм. Сравнивая с приведенными в табл. 6 значениями световой отдачи абсолютно черного тела, видим, что рассматриваемые кластеры являются более эффективными источниками света, чем черное тело, поскольку инфракрасная часть спектра излучения металлических кластеров существенно обеднена.

Таблица 5. Удельная мощность излучения (P, 10^7 Вт г⁻¹) для металлических кластерных ионов

Ион	<i>Р</i> при температуре								
	3000 K	3200 K	3400 K	3600 K	3800 K	4000 K			
Li K Ag	21 2,8 0,64	28 10 0,89	38 14 1,2	51 20 1,7	67 27 2,3	87 34 3,1			

Таблица 6. Световая отдача (лм Bt^{-1}) для излучения металлических кластеров

Ион	Световая отдача при температуре						
	3000 K	3200 K	3400 K	3600 K	3800 K	4000 K	
Li K Ag	51 108 51	63 122 62	74 135 71	85 146 79	94 156 84	102 165 88	
Черное тело	22	29	36	43	50	57	

4.3. Кинетика процессов в кластерной плазме

Кластеры, введенные в рассматриваемую газоразрядную плазму, вследствие высокой температуры частично испаряются. В результате в газоразрядной плазме образуется атомный пар материала кластера, который составляет малую примесь к основному газу и находится в равновесии с кластерами. Эволюция кластеров в газоразрядной плазме сопровождается процессами испарения кластеров и прилипания атомов к ним. При этом, как следует из классической теории конденсации [61-63], при заданных плотности атомов и температуре существует критический радиус кластера, так что кластеры больших размеров растут, а кластеры меньших размеров разрушаются. В данном случае критический размер кластера является параметром самосогласованной задачи. Естественно, что кластеры и их атомный пар могут выйти за пределы газоразрядной плазмы в результате дрейфа и диффузии. Это определяет их время жизни в плазме. Однако для газоразрядной плазмы высокого давления это время достаточно велико, хотя именно оно определяет некоторые параметры кластеров в газоразрядной плазме. Далее мы проанализируем кинетику процессов, определяющих поведение металлических кластеров в газоразрядной плазме, а также параметры этих кластеров.

Важным параметром металлического кластера, находящегося в газоразрядной плазме, является его температура, которая лежит между температурой атомов буферного газа и температурой электронов. В частности, скорость испарения кластера в плазме резко зависит от его температуры, и если температура кластера высока, его время жизни в газоразрядной плазме по отношению к испарению становится относительно малым. Поэтому использование газоразрядной кластерной плазмы в качестве источника излучения возможно в ограниченной области изменения температуры кластеров в ней.

Далее мы определим температуру кластеров в газоразрядной плазме на основе простой модели [59, 64], согласно которой сталкивающиеся с кластером электроны и ионы сильно взаимодействуют с ним. Это означает, что при одном столкновении с кластером атом в среднем забирает от него энергию $3(T_{\rm cl} - T)/2$, а электрон в среднем передает ему энергию $3(T_{\rm e} - T_{\rm cl})/2$, где $T, T_{\rm e}, T_{\rm cl}$ — температура атомов, электронов и кластеров соответственно. Используя это в уравнении баланса для энергии кластера, имеем

$$\frac{3}{2}(T - T_{\rm cl}) N \bar{v}_{\rm a} \sigma_{\rm a} + \frac{3}{2}(T_{\rm e} - T_{\rm cl}) N_{\rm e} \bar{v}_{\rm e} \sigma_{\rm e} (T - T_{\rm cl}) = \\ = \varepsilon_n (v_{\rm at} - v_{\rm ev}) .$$
(4.12)

Здесь N, N_e — плотности атомов буферного газа и электронов, \bar{v}_{a}, \bar{v}_{e} — средние скорости атомов и электронов соответственно ($\bar{v}_a = \sqrt{8T/\pi m}, \ \bar{v}_e = \sqrt{8T/\pi m_e},$ где m — масса атома, $m_{\rm e}$ — масса электрона), $\sigma_{\rm a}$ — сечение столкновения атома с кластером, σ_e — сечение столкновения электрона с кластером, ε_n — энергия связи для атома кластера, v_{at} и v_{ev} — частота прилипания атома к поверхности кластера и частота испарения атома с его поверхности. Далее мы примем, что в силу малости времен соответствующих процессов в газоразрядной плазме имеется равновесие для процессов роста и испарения кластеров: v_{ev} = v_{at}. Примем сечение столкновения атома с кластером равным поперечнику кластера $\sigma_a = \pi r^2$, где *r* — радиус кластера, а в сечении столкновения электрона с кластером учтем также кулоновское взаимодействие между их зарядами, так что это сечение

равно

$$\sigma_{\rm e} = \pi r^2 \left(1 + \frac{Ze^2}{rT_e} \right), \tag{4.13}$$

где Z — заряд кластера. Отсюда получаем для температуры кластера

$$T_{\rm cl} = \frac{T + \zeta T_{\rm e}}{1 + \zeta} , \qquad (4.14)$$

где

$$\zeta = \left[1 + \frac{Ze^2}{rT_e}\right] \frac{N_e}{N_{\rm at}} \left(\frac{m}{m_e}\right)^{1/2}.$$

Как видно, температура кластера находится между электронной и газовой температурой. Из соотношения (4.14) следует, что заряд кластеров влияет не только на их дрейф под действием полей, но также и на температуру кластера.

Далее мы определим средний заряд кластеров в газоразрядной плазме, считая, что кластеры находятся в ионизационном равновесии с электронами, так что степень ионизации кластеров определяется формулой Саха. Введем вероятность $P_Z(n)$ того, что кластер, содержащий *n* атомов, имеет заряд *Z*. Тогда по аналогии с формулой Саха имеем

$$\frac{P_Z(n) N_e}{P_{Z+1}(n)} = 2\left(\frac{mT_e}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2} \exp\left[-\frac{J_Z(n)}{T_e}\right],$$
(4.15)

где $J_Z(n)$ — потенциал ионизации кластерного иона, имеющего заряд Z и состоящего из n атомов. Для большого металлического кластера

$$J_Z(n) = J_0(n) + \frac{Ze^2}{r} \,,$$

где *г* — радиус кластера. Представим потенциал ионизации нейтрального кластера в виде

$$J_0(n) = W_0 + Cn^{-1/3}$$
.

Здесь W_0 — работа выхода металла. В результате получим выражение для потенциала ионизации большого металлического кластера с зарядом Z:

$$J_Z(n) = W_0 + Cn^{-1/3} + \frac{Ze^2}{r} .$$
(4.16)

В частности, в случае кластеров вольфрама (см. ниже) потенциал ионизации атома $J_0 = W_0 + C = 7,98$ эВ, а работа выхода $W_0 = 4,4$ эВ [65, 66], что дает C = 3,58 эВ. Перепишем формулу (4.16) в виде

$$J_Z(n) = W_0 + \frac{C}{n^{1/3}} + \frac{Z\gamma}{n^{1/3}}, \qquad (4.16a)$$

причем в случае кластеров вольфрама параметр $\gamma = e^2 n^{1/3}/r = 9, 2 \Im B.$

Примем, что средний заряд кластерного иона Z_n удовлетворяет соотношению $P_Z(n) = P_{Z+1}(n)$. Тогда из полученных формул следует

$$Z_n = \frac{T_e n^{1/3}}{\gamma} \ln\left\{\frac{2}{N_e} \left(\frac{mT_e}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{W_0}{T_e}\right)\right\} - \frac{C}{\gamma} .$$
(4.17)

В таблице 7 представлены вычисленные на основании приведенных выше соотношений значения среднего заряда кластеров вольфрама, находящихся в газоразрядной плазме ксенона, при среднем размере кластеров $n = 10^3$.

Таблица 7. Параметры плазмы ксенона с кластерами вольфрама и кластерных ионов и вольфрама*

Параметр	Значение параметра в случае						
	1	2	3	4	5	6	
р, атм	1	3	2	3	3	3	
T, 10 ³ K	2	2	2	2	2	2	
$T_{\rm e}, 10^3 {\rm K}$	5,5	5,5	5,6	5,6	5,7	5,8	
$N, 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	3,67	11	7,3	11	11	11	
$N_{\rm e},10^{15}~{ m cm}^{-3}$	0,48	0,84	8,7	1,1	1,4	1,7	
$E, B cm^{-1}$	5,0	15	11	16	17	18	
<i>I</i> , A	5,8	1,6	2,8	1,7	1,8	2,0	
$P, Bт см^{-1}$	29	25	29	27	31	35	
p_0 , BT cm ⁻³	20	103	77	140	190	260	
<i>r</i> ₀ , см	1,04	0,42	0,53	0,38	0,34	0,32	
$\eta = \tau_{\rm dr} / \tau_{\rm rec}$	9800	$4,3 \times 10^{4}$	$3,0 \times 10^{4}$	$5,2 \times 10^{4}$	$6,3 \times 10^{4}$	$7,6 \times 10^{4}$	
$[W^+]/[W]$	0,095	0,055	0,073	0,059	0,064	0,070	
Ζ	3,0	2,75	2,88	2,77	2,79	2,82	
$T_{\rm cl}, 10^3 {\rm K}$	3,45	2,96	3,36	3,17	3,40	3,65	
$\mathcal{P}_{rad}, 10^7 \operatorname{Bt} \Gamma^{-1}$	9,4	4,1	7,9	6,0	8,6	13	
$w_{\rm B}, {\rm cm} {\rm c}^{-1}$	5,3	4,8	5,4	5,2	5,5	5,8	
dm/dt, мг ч ⁻¹	10	2,9	3,2	1,9	1,3	0,89	
η , лм Вт $^{-1}$	46	30	43	39	44	50	

* N, N_e — плотность атомов ксенона и электронов; T, T_e, T_{cl} — температура газа, электронов и кластеров; E, I — напряженность электрического поля и полный разрядный ток; r₀ — радиус плазменного столба; $\eta = \tau_{dr}/\tau_{rec}$ — критерий онизационного равновесия; p₀ — удельная мощность тепловыделения на оси трубки; [W⁺]/[W] — степень ионизации атомного пара вольфрама; Z — средний заряд кластерных ионов; w_B — дрейфовая скорость кластерных ионов в направлении катода. Согласно выбранным условиям излучение кластеров содержит половину мощности, вкладываемой в разряд, так что η — световая отдача с учетом тепловых потерь в разряде; dm/dt — полная масса кластерных ионов, проходящая в единицу времени в направлении катода при этих условиях ($dm/dt = \pi r_0^2 EI/\mathcal{P}_{rad}$, \mathcal{P}_{rad} — удельная мощность излучения).

Исследуя поведение систем, содержащих большие металлические кластеры, удобно использовать модель жидкой капли, согласно которой кластер ведет себя во всех процессах подобно жидкой капле. В частности, применяя эту модель ранее, мы использовали для сечения столкновения атома с кластером поперечник кластера $\sigma_a = \pi r^2$, где r — радиус кластера, который в рамках модели жидкой капли может быть найден из соотношения $n = 4\pi r^3 \rho/(3m_a)$. Здесь ρ — массовая плотность материала кластера в макроскопической системе, m_a — масса атома. Эти соотношения позволяют определить подвижность кластерного иона в электрическом поле на основании соотношения Чепмена–Энскога [67, 68]:

$$K = 3\sqrt{\pi} e \left(8N\sigma_{\rm a}\sqrt{2Tm}\right)^{-1},\tag{4.18}$$

где *m* — масса атома буферного газа, *N* — плотность этих атомов. Поскольку сечение столкновения атом-кластер σ_a пропорционально $n^{2/3}$, подвижность кластерных ионов обратно пропорциональна $n^{2/3}$. Значения дрейфо-

вой скорости кластерных ионов вольфрама размером $n = 10^3$ для рассмотренных режимов газоразрядной плазмы представлены в табл. 7.

Подвижность кластерных ионов определяет их дрейф в газоразрядной плазме как в продольном, так и в поперечном направлении. В частности, проанализируем дрейф кластерных ионов в направлении, перпендикулярном оси разрядной трубки. Определим напряженность электрического поля газоразрядной плазмы из условия, что в масштабах ионных потоков поток электронов на стенку равен нулю:

$$j_{\rm e} = -D_{\rm e} \nabla N_{\rm e} + e E K_{\rm e} N_{\rm e} = 0 \,,$$

где D_e — коэффициент диффузии электронов. Используя соотношение Эйнштейна между подвижностью и коэффициентом диффузии электронов ($eD_e = K_eT_e$), получаем для напряженности поперечного электрического поля в газоразрядной плазме: $eE = T_e \nabla N_e / N_e$. Для ранее рассмотренного режима газоразрядной плазмы, когда можно ввести электронную и газовую температуры, это соотношение принимает вид

$$eE = \frac{4T_{\rm e}r^2}{r_0^2(1+r^2/r_0^2)^3} \,. \tag{4.19}$$

Это соотношение имеет максимум $eE_{\text{max}} = 2T_{\text{e}}/r_0$, что определяет максимальную дрейфовую скорость кластерных ионов $w_{\text{max}} = ZKE_{\text{max}}$ для рассмотренных режимов газоразрядной плазмы.

Перейдем к анализу процессов роста и испарения кластеров в газоразрядной плазме. Отметим, что поскольку кластерные ионы заряжены, столкновения между кластерами, а также между кластерами и ионами плазмы несущественны. Поэтому основные процессы роста и испарения кластеров развиваются по схеме

$$A_n + A \rightleftharpoons A_{n+1} \,. \tag{4.20}$$

При этом в соответствии с моделью жидкой капли для кластеров частоты прилипания атома к кластеру *v*_{at} и испарения атома с поверхности кластера *v*_{ev} равны [59, 69]

$$v_{\rm at} = \sqrt{\frac{8T}{\pi m}} \sigma_{\rm a} N;$$

$$v_{\rm ev}(t) = \sqrt{\frac{8T}{\pi m}} \sigma_{\rm a} N_{\rm sat}(T) \exp\left[-\frac{\varepsilon_n - \varepsilon_\infty}{T}\right], \qquad (4.21)$$

где N — плотность свободных атомов материала кластеров, $N_{\text{sat}}(T)$ — плотность насыщенных паров атомов при заданной температуре, σ_a — сечение прилипания атомов к кластеру, которое равно поперечнику кластера, ε_n — энергия связи атома в кластере, содержащем n атомов, ε_{∞} — энергия связи атомов в макроскопической системе. В рамках модели жидкой капли энергия связи атомов в кластере является монотонной функцией от числа атомов в кластере:

$$\varepsilon_n = \varepsilon_\infty - \Delta \varepsilon n^{-1/3} \,. \tag{4.22}$$

В соответствии с моделью жидкой капли, справедливой при $n \ge 1$, частота и константа скорости прилипания атома к кластеру равны [59, 69]:

$$v_{\rm a} = Nk_n$$
, $k_n = k_0(T)\xi n^{2/3}$. (4.23)

Здесь ξ — вероятность прилипания атома к поверхности кластера при их контакте (очевидно, для большого

кластера она такая же, как для макроскопической поверхности), а параметр

$$k_0 = 1,93T^{2/3}m^{1/6}\rho^{-2/3}.$$
(4.24)

Полученные выражения составляют основу для количественного анализа кинетики кластерной газоразрядной плазмы.

Рассмотрим эволюцию кластеров в исследуемой газоразрядной плазме при их взаимодействии с собственным паром. Обозначим N_n плотность кластеров в газоразрядной плазме, содержащих *n* атомов. Тогда полная плотность атомов в составе кластеров равна $N_{\text{tot}} = \sum_n nN_n$. Отметим, что равновесие между процессами испарения и прилипания атомов устанавливается относительно быстро, так что эволюция кластеров в собственном паре определяется испарением малых кластеров и ростом больших. Проследим за этим процессом. Уравнение баланса для плотности кластеров имеет вид

$$\frac{\partial N_n}{\partial t} = Nk_{n-1}N_{n-1} - Nk_nN_n - v_nN_n + v_{n+1}N_{n+1}.$$
 (4.25)

Здесь $k_n = k_0(T) \xi n^{2/3}$ — константа скорости прилипания атомов к кластеру, v_n — частота испарения кластера, причем согласно принципу детального равновесия

$$v_{n+1} = k_n(T_{\rm cl}) N_{\rm sat}(T_{\rm cl}) \exp\left[\frac{\Delta\varepsilon}{T_{\rm cl} n^{1/3}}\right].$$
(4.26)

Используя это соотношение в уравнении баланса (4.25), получаем для случая $n \ge 1$:

$$\frac{\partial N_n}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial n} \left\{ k_0(T) \xi \, n^{2/3} \left[N N_n - N_{\text{sat}}(T_{\text{cl}}) \left(\frac{T_{\text{cl}}}{T} \right)^{1/2} \times \exp\left(\frac{\Delta \varepsilon}{T_{\text{cl}} n^{1/3}} \right) N_{n+1} \right] \right\}.$$
(4.27)

Уравнение баланса для плотности свободных атомов принимает вид

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial t} \sum nN_n = \int n \, \mathrm{d}n \, k_0(T) \xi \, n^{2/3} \times \\ \times \left[NN_n - N_{\mathrm{sat}}(T_{\mathrm{cl}}) \left(\frac{T_{\mathrm{cl}}}{T}\right)^{1/2} \exp\left(\frac{\Delta\varepsilon}{T_{\mathrm{cl}}n^{1/3}}\right) N_{n+1} \right] = 0 \,.$$
(4.28)

Проанализируем эти соотношения, используя простейший вид функции распределения кластеров по размерам:

$$N_n = A \exp\left(-\frac{n}{\bar{n}}\right),\tag{4.29}$$

где нормировочная постоянная $A = N_{tot}/\bar{n}$. Введем параметр n_0 , при котором подынтегральное выражение равно нулю, и разложим экспоненту в (4.28) вблизи этого значения. Имеем

$$\int \mathrm{d}n\,\xi k_0(T)\,n^{2/3}NN_n \left[1 - \exp\left(\frac{\Delta\varepsilon}{T_{\rm cl}n^{1/3}} - \frac{\Delta\varepsilon}{T_{\rm cl}n_0^{1/3}}\right)\right] =$$
$$= \int \mathrm{d}n\,\xi k_0(T)\,n^{2/3}NN_n\,\frac{\Delta\varepsilon}{T_{\rm cl}}\left[\left(\frac{n}{n_0}\right)^{1/3} - 1\right] = 0\,.$$

Из этого уравнения получаем

$$n_0 = \bar{n} \left[\frac{\Gamma(5/3)}{\Gamma(4/3)} \right]^3 = 1,033\bar{n}.$$
(4.30)

Это ведет к следующему уравнению для среднего размера кластера *n*:

$$\frac{\mathrm{d}\bar{n}}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{N_{\mathrm{tot}}} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} \int n^2 \,\mathrm{d}n \,N_n = \frac{1}{N_{\mathrm{tot}}} \int n^2 \,\mathrm{d}n \,\frac{\partial N_n}{\partial t} =$$

$$= \frac{1}{N_{\mathrm{tot}}} \int \mathrm{d}n \,\xi k_0(T) \,n^{5/3} N N_n \,\frac{\Delta\varepsilon}{T_{\mathrm{cl}}} \left[\left(\frac{n}{n_0} \right)^{1/3} - 1 \right] =$$

$$= 0,6\xi N k_0(T) \,\frac{\Delta\varepsilon}{T_{\mathrm{cl}}} \,\bar{n}^{1/3} \,. \tag{4.31}$$

Его решение дает

$$\bar{n} = \left(\frac{t}{\tau}\right)^{3/2}, \quad \text{где} \quad \frac{1}{\tau} = 0, 4\xi N k_0(T) \frac{\Delta \varepsilon}{T},$$
(4.32)

что позволяет определить время прорастания кластера до среднего размера \bar{n} :

$$t_{\rm gr} = \tau \bar{n}^{2/3} \,. \tag{4.33}$$

Для нахождения характерного размера кластера в газоразрядной плазме следует приравнять это время роста кластера его времени жизни в рассматриваемых условиях τ_0 . Это дает

$$\bar{n} = \left(\frac{\tau_0}{\tau}\right)^{3/2}.\tag{4.34}$$

Таким образом, эволюция кластеров в газоразрядной плазме, которая является результатом протекания процессов прилипания атомов к кластеру и испарения кластеров, удовлетворительно описывается в рамках модели жидкой капли. В соответствии с этой моделью кластер представляется в виде сферы, содержащей большое число атомов $n \ge 1$. Такой подход позволяет определить характер роста кластеров со временем, а также функцию распределения кластеров по размерам и средний размер кластера.

4.4. Кластеры вольфрама в газоразрядной плазме

Параметры газоразрядной плазмы, содержащей кластеры, как и параметры процессов с участием последних, определяются параметрами самих кластеров. Эти параметры для ряда металлических кластеров, полученные в результате обработки справочных данных [66], приведены в табл. 8. Далее мы сосредоточим внимание на кластере вольфрама как наиболее тугоплавкого элементарного металла. Для кластера вольфрама параметр k₀, определяемый формулой (4.24), равен $k_0 = 9, 1 \times 10^{-12}$ см³ с⁻¹ при температуре T = 2000 К. Кроме того, вероятность прилипания атома вольфрама к поверхности вольфрама при их контакте равна $\xi = 0,566$, как это следует из данных по давлению насыщенных паров вольфрама и скорости испарения атомов с поверхности вольфрама в области температур 3000-3600 K.

Равновесие между кластерами разного размера в газоразрядной плазме осуществляется через атомный пар, который образуется в результате испарения кластеров. Однако под действием электронов этот атомный пар

Металл	$T_{\rm m}, { m K}$	$T_{\rm b}, {\rm K}$	$\epsilon_{\infty}, \Im B$	$\Delta \epsilon$, $\Im B$	<i>Q</i> , эВ	<i>p</i> ₀ , 10 ⁵ атм	<i>W</i> ₀ , эВ
Be	1560	2744	3,02	0,89	3,12	6,1	3,92
Ti	1885	3560	4,25	2,00	4,51	23	3,95
V	2190	4665	4,62	2,30	4,96	85	4,12
Fe	1811	3145	3,63	1,86	3,88	22	4,58
Со	1765	3230	3,90	1,86	4,08	31	4,41
Ni	1728	3070	3,84	1,75	4,12	46	4,50
Cu	1360	2816	3,13	1,35	3,26	7,1	4,40
Pd	1827	3300	3,66	1,79	3,55	2,7	4,8
Ag	1234	2440	2,60	1,25	2,74	5,6	4,3
W	3693	5930	7,99	3,04	7,97	22	4,54
Pt	2045	4100	5,30	2,20	5,33	24	5,32
Au	1333	3150	3,43	1,53	3,58	6,8	4,3

Таблица 8. Параметры кластеров для ряда тугоплавких металлов*

*В данной таблице приведены параметры: $T_{\rm m}$ — температура плавления; $T_{\rm b}$ — температура кипения, при которой давление насыщенных паров металла равно 1 атм; ε_{∞} , $\Delta\varepsilon$ — параметры формулы (4.22); давление насыщенного пара аппроксимируется формулой $p_{\rm sat}(T) = p_0 \exp(-Q/T)$; W_0 — работа выхода поликристаллического металла. Некоторое расхождение между $T_{\rm b}$ и параметрами формулы для давления насыщенного пара связано с точностью данных и точностью используемой аппроксимации, параметры которой берутся для жидкого состояния металла при температуре плавления.

может стать ионизованным, причем процесс ионизации, забирающий на себя часть кластерного материала, может рассматриваться как вредный. Поэтому при оптимальных с точки зрения максимального использования кластеров условиях газоразрядной плазмы степень ионизации этого атомного пара должна быть низкой. В связи с этим рассчитаем константу ионизационного равновесия для атомного пара вольфрама (W с W⁺ + e). Константа равновесия для этого процесса дается формулой Саха:

$$K = \frac{[\mathbf{W}^+] N_{\mathrm{e}}}{[\mathbf{W}]} = \frac{g_{\mathrm{e}} g_{\mathrm{i}}}{g_{\mathrm{a}}} \left(\frac{m_{\mathrm{e}} T_{\mathrm{e}}}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{J}{T_{\mathrm{e}}}\right).$$

Здесь [X] — плотность частиц соответствующего сорта, статистические веса равны $g_e = 2$ для электрона, $g_i = 12$ для иона (основное состояние ⁴P) и $g_a = 25$ для атома (основное состояние ⁵D); потенциал ионизации атома вольфрама равен J = 7,98 эВ. Значения константы равновесия для области оптимальных электронных температур 5000–7000 К приведены в табл. 9.

Таблица 9. Константа ионизационного равновесия *К* (см⁻³) для атомарного пара вольфрама

<i>T</i> , 10 ³ К	5,0	5,2	5,4	5,6	5,8	$^{6,0}_{2,1 imes 10^{14}}$
<i>K</i> , см ⁻³	7,4×10 ¹²	1,6×10 ¹³	3,3×10 ¹³	6,4×10 ¹³	1,2×10 ¹⁴	
<i>T</i> , 10 ³ К	6,2	6,4	6,6	6,8	7,0	_
<i>K</i> , см ⁻³	3,7×10 ¹⁴	6,1×10 ¹⁴	1,0×10 ¹⁵	1,6×10 ¹⁵	2,4×10 ¹⁵	

Рассмотрим характер роста кластеров вольфрама в представленном режиме, когда это осуществляется в условиях равновесия со своим паром. Поскольку плотность атомного пара определяется температурой кластеров, то и время роста задается температурой кластеров. Эта величина для кластеров вольфрама в соответствии с формулами (4.32) и (4.33) составляет для среднего размера кластера в распределении $\bar{n} = 1000 t_{gr} = 1,1$ с;

при $T_{\rm cl} = 3400$ K; $t_{\rm gr} = 0,66$ с при $T_{\rm cl} = 3500$ K; $t_{\rm gr} = 0,33$ с при $T_{\rm cl} = 3600$ K.

Отметим, что условие, ограничивающее степень ионизации атомного пара вольфрама, накладывает также ограничение на величину электронной температуры газоразрядной плазмы. Отсюда следует, что потенциал ионизации буферного газа должен быть не слишком высоким. По этой причине в качестве буферного газа при демонстрации отдельных свойств рассматриваемой газоразрядной кластерной плазмы мы выбрали ксенон.

4.5. Кластерный источник света

Как было отмечено выше, газоразрядная плазма, содержащая кластеры, обладает высокими световыми характеристиками и в перспективе может использоваться в качестве основы для источника света нового типа. Рассмотрим эти возможности подробнее в практическом плане. Впервые лампы, в которых в качестве источника излучения использовались металлические кластеры вольфрама, рения и других материалов, были созданы Шоллом с сотрудниками [70-73]. В основе работы лампы лежит микроволновый разряд мощностью примерно 100 Вт, который создает плазму в небольшой области пространства, где образуются кластеры, являющиеся источником излучения. Световая отдача лампы при использовании кластеров вольфрама и рения составляет 53 и 62 лм Вт⁻¹ соответственно. Хотя эти значения несколько ниже, чем для лучших газоразрядных ламп, они значительно превышают соответствующие значения для ламп накаливания (13 лм Вт⁻¹) и вполне приемлемы для практических целей. Тем более, что температура в кластерных лампах заметно ниже, чем в газоразрядных. На рисунке 3 представлены спектры излучения, характеризующие кластерные лампы на основе вольфрама и рения. Цветовая температура таких ламп при использовании кластеров вольфрама, рения и гафния составляет 5100, 5500 и 5600 К соответственно. Отметим, что температура кластеров находится в пределах 3000-4000 К. Это заметно ниже цветовой температуры их излучения, поскольку спектры излучения кластеров обеднены инфракрасным излучением по сравнению с излучением абсолютно черного тела.



Рис. 3. Спектры излучения кластерных ламп на основе рения (а) и вольфрама (б).

Принципиальная особенность установки Шолла и др. [70-73] — химическая регенерация материала кластеров. Подбирается некоторое химическое соединение, в которое материал кластеров переходит при низкой температуре. Это соединение содержится в газовой фазе и не реагирует со стенками. При высокой температуре оно разлагается на компоненты, один из которых образует кластеры. Такими соединениями является WO₂Br₂ в случае вольфрама, Re₂O₇ в случае рения, MoO₂Br₂ в случае молибдена, HfCl₄ в случае гафния и ZrI₄ в случае циркония. Подходящие химические соединения имеются также для таких переходных металлов, как тантал, ниобий, титан. При низкой температуре рассматриваемый переходный металл входит в состав газообразного соединения, а при высокой температуре это соединение распадается, и один из полученных компонентов образует кластеры. В случае вольфрама эти кластеры, видимо, состоят из WO2. Таким образом, в газоразрядной плазме поддерживается химическое равновесие, поэтому в холодной области находятся газообразные молекулы, а в горячей — кластеры, которые создают излучение этой плазмы. Для ряда переходных металлов (Ir, Pt, Ru, Rh, V, Cr, Mn и Fe) не удается подобрать такое химическое соединение, которое переводило бы эти металлы в газовую фазу при низкой температуре, тогда как при высокой температуре его молекулы распадались бы на фрагменты, которые могли бы образовывать кластеры.

Описанный способ химической регенерации материала кластера позволяет сохранить его от прилипания к холодным стенкам и тем самым является важным элементом в практической реализации концепции кластерной лампы. Однако изменение химического состава кластеров ведет к изменению их энергетических, кинетических и излучательных параметров. Поэтому на стадии теоретического анализа мы вынуждены отказаться от рассмотрения сложных систем, подобных описанным выше системам с химической регенерацией кластерообразующего материала, ввиду отсутствия необходимой информации. В данном случае наиболее плодотворный путь к разработке и оптимизации источников света рассматриваемого типа связан с экспериментальным моделированием.

Как видно из проведенного анализа, кластерная лампа является новым перспективным источником света. В то же время кластерная лампа оказывается сложным технологическим устройством, и ее практическое использование требует проработки большого числа технологических проблем, связанных с поведением кластеров тугоплавких материалов. Во всяком случае, проведенные экспериментальные [72–73] и теоретические [7, 74] исследования свидетельствуют о конкурентоспособности кластерных ламп с другими источниками света.

5. Заключение

Физика газового разряда — одно из старейших направлений физической науки. Многие ее результаты стали классическими и нашли свое место на страницах учебников и монографий; ее достижения имеют широкие применения в технологических и научных областях. В настоящее время интерес к исследованиям в области физики газового разряда смещается в сторону приложений. Однако и теперь в этой области возникают новые идеи, основанные на результатах исследования фундаментальных свойств объекта. Развитие таких идей не только углубляет наши знания о поведении объекта в различных условиях, но также открывает возможности развития новых направлений исследований, имеющих прикладное значение. Хорошей иллюстрацией этого развития может служить рассмотренный здесь круг вопросов, относящихся к пространственно неоднородной газоразрядной плазме. Многие из ее свойств известны давно и достаточно подробно описаны, однако только в последние годы возрождается интерес к ней как к объекту фундаментального исследования. Это связано с развитием исследований в области кластеров. Газоразрядная плазма, содержащая кластеры, — характерный пример пространственно неоднородной плазмы. Процессы, протекающие в ней при участии кластеров, сравнительно мало исследованы и представляют фундаментальный интерес. Высокие излучательные характеристики кластеров, находящихся в составе газоразрядной плазмы, указывают на возможность использования такой плазмы в качестве основы источника оптического излучения с параметрами, не уступающими показателям лучших газоразрядных ламп. Об этом свидетельствуют также результаты первых экспериментов, выполненных в данном направлении.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований.

Список литературы

- 1. Елецкий А В, Смирнов Б М Физические процессы в газовых лазерах (М.: Энергоатомиздат, 1985)
- 2. Райзер Ю П Физика газового разряда (М.: Наука, 1992)
- 3. Веденов А А Физика электроразрядных СО₂-лазеров (М.: Энергоиздат, 1982)
- Финкельбург В, Меккер Г Электрические дуги и термическая плазма (М.: ИЛ, 1961)
- 5. Смирнов Б М *УФН* **164** (7) 665 (1994)
- 6. Smirnov B M Plasma Chem. Plasma Proces. 13 673 (1993)
- 7. Smirnov B M Phys. Scripta 51 380 (1995)
- 8. Елецкий А В, Рахимов А Т Химия плазмы 4 123 (1977)
- 9. Елецкий А В Химия плазмы 9 151 (1982)
- 10. Елецкий А В, Чифликян Р В Химия плазмы 15 2663 (1989)
- 11. Синкевич О А, Стаханов И П Физика плазмы (М.: Высшая школа, 1991)
- 12. Gieseler H, Grotrian W Z. Phys. 25 342 (1924)
- 13. Фабрикант В А *ДАН СССР* **24** 531 (1939)
- 14. Бычков В Л, Елецкий А В *ТВТ* 17 1153 (1979)
- 15. Арутюнян Г Г, Галечян Г А ЖТФ 48 631 (1978)
- Елецкий А В Дисс... докт. физ.-мат. наук (М.: ИАЭ им. И.В. Курчатова, 1977)
- 17. Елецкий А В, Смирнов Б М *УФН* **136** 25 (1982)
- Смирнов Б М Ионы и возбужденные атомы в плазме (М.: Атомиздат, 1974)
- Елецкий А В, в кн. Физические величины (Под ред. И С Григорьева, Е З Мейлихова) гл. 18 (М.: Энергоатомиздат, 1991)
- 20. Баранов В Ю, Ульянов К Н *ЖТФ* **39** 249 (1969)
- 21. Ульянов К Н *ЖТФ* **43** 570 (1973); Ульянов К Н, Менахин Л П *ЖТФ* **41** 2545 (1971)
- 22. Бычков В Л, Елецкий А В Физика плазмы 4 942 (1978)
- Елецкий А В, Палкина Л А, Смирнов Б М Явления переноса в слабоионизованной плазме (М.: Энергоиздат, 1975)
- Бычков В Л, Елецкий А В, Смирнов Б М Химия плазмы 10 146 (1983)
- 25. Елецкий А В, Старостин А Н Физика плазмы 1 684 (1975)
- 26. Елецкий А В, Старостин А Н Физика плазмы 2 838 (1976)
- 27. Елецкий А В, Кутвицкий В А Физика плазмы 3 880 (1977)
- Франк-Каменецкий Д А Диффузия и теплопередача в химической кинетике (М.: Наука, 1987)

- 29. Каган Ю М, Лягущенко Р И Опт. и спектр. 17 168 (1964)
- Голубовский Ю Б, Каган Ю М, Лягущенко Р И ЖЭТФ 57 2222 (1969)
- 31. Голубовский Ю Б, Лягущенко Р И *ЖТФ* **47** 1852 (1977)
- 32. Eletskii A V, Chiflikyan R V, in *Rev. Plasma Chemistry* Vol. 2 (New York, London: Plenum Publ., 1993) p. 317
- 33. Смирнов Б М Физика слабоионизованного газа (М.: Наука, 1985)
- Гуревич А В ЖЭТФ 37 304 (1959)
 Гинзбург В Л, Гуревич А В УФН 70 201 (1960)
- 35. I инзоург В Л, Гуревич А В $\mathcal{Y}\mathcal{Y}\mathcal{P}\mathcal{H}$ /0 201 (1960)
- Биберман Л М, Воробьев В С, Якубов И Т Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы (М.: Наука, 1982)
- 37. Smith M, Prins M *Physica C* **29** 243; 262 (1979)
- 38. Смирнов Б М Газоразрядная плазма (М.: Изд-во МФТИ, 1992)
- Huxley L G, Crompton W The Diffusion and Drift of Electrons in Gases (New York: Wiley, 1974)
- 40. Hoyaux M F Arc. Physics (New York: Springer, 1968)
- 41. Neuman W The Mechanism of the Thermoemitting Arc Cathode (Berlin: Academic-Verlag, 1987)
- Технологическое применение низкотемпературной плазмы (Под ред. Н Н Семашко) (М.: Энергоатомиздат, 1983)
- 43. Туманов Ю Н *Химия плазмы* **13** 163 (1987)
- 44. Krätschmer W et al. *Nature* (London) **347** 354 (1990)
- 45. Taylor R et al. J. Chem. Soc. Chem. Commun. 1423 (1990)
- 46. Haufler R E et al. J. Phys. Chem. 94 8634 (1990)
- 47. Елецкий А В, Смирнов Б М УФН 165 (9) 977 (1995)
- 48. Chai Y et al. J. Phys. Chem. 95 7654 (1991)
- 49. Johnson R D et al. *Nature* (London) **355** 239 (1992)
- Faraday M The Chemical Nature of Candle (New York: Crowell, 1957)
- 51. Gaydon A G, Wolfhard H G *Flames, Their Structure, Radiation and Temperature* (London: Chapman and Hall, 1979)
- 52. Magasa E Patent 32-7247 Japan (1957)
- Ландау Л Д, Лифшиц Е М Электродинамика сплошных сред (М.: Наука, 1976)

- 54. Tiggesbäumker J et al. Chem. Phys. Lett. 190 42 (1992)
- 55. Brechignac C et al. Phys. Rev. Lett. 70 2036 (1993)
- 56. Brechignac C et al. Chem. Phys. Lett. 164 433 (1989)
- 57. Brechignac C et al. Phys. Rev. Lett. 68 3916 (1992)
- Смирнов Б М УФН 163 (7) 51 (1993); Smirnov B M Int. J. Theor. Phys. 32 1453 (1993)
- 59. Смирнов Б М *УФН* **164** (7) 665 (1994)
- Луизова Л А, Смирнов Б М, Хахаев А Д ДАН СССР 309 1359 (1989)
- 61. Френкель Я И Кинетическая теория жидкостей (М.: Наука, 1975)
- Ландау Л Д, Лифшиц Е М Статистическая физика Ч. 1 (М.: Наука, 1976)
- 63. Abraham F F *Homogeneous Nucleation Theory* (New York: Academic Press, 1974)
- 64. Луизова Л А и др. *ТВТ* **28** 897 (1990)
- Фоменко В С Эмиссионные свойства метериалов (Киев: Наукова думка, 1981)
- 66. Chemical Physics Reference Book 67 Ed (New York: CRC, 1989)
- 67. Chapman S, Cowling T G *The Mathematical Theory of Non-uniform Gases* (Cambridge: Cambridge University Press, 1952)
- 68. Ferziger J H, Kaper H G Mathematical Theory of Transport Processes in Gases (Amsterdam: North Holland, 1972)
- 69. Smirnov B M Plasma Chem. Plasma Proces 13 673 (1993)
- 70. Weber B, Scholl R J. Illumin. Eng. Soc. Summer 1992, p. 93
- Weber B, Scholl R, in *Physics and Chemistry of Finite Systems: from Clusters to Crystals* (Eds P Jena, S N Khana, B K Rao) (Dodrecht: Kluver Academic Publ., 1992)
- 72. Weber B, Scholl R J. Appl. Phys. 74 2274 (1993)
- Scholl R, Natour G Proc. 22 Int. Conf. Ionized Phen. Gas. Invited Papers (Eds K H Becker, W E Carr, E E Kunhardt) (New Jersey: Stevens Ins. Technology, 1995)
- 74. Smirnov B M Phys. Scripta 53 608 (1996)

Nonuniform gas discharge plasma

A.V. Eletskiĭ

Russian Research Center 'Kurchatov Institute' pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia Tel. (7-095) 196-7280 E-mail: avel@bezelst.msk.ru **B.M. Smirnov** Institute of High Temperature, Russian Academy of Sciences ul. Izhorskaya 13/19, 127412 Moskow, Russia Tel./Fax (7-095) 19-4222 E-mail: smirnov@termo.msk. su

Formation mechanisms for spatially nonuniform temperature and charged particle density distributions in a low-temperature gas discharge plasma are reviewed. Conditions for the occurrence of, and parameter distributions in, the constricted state of the discharge are analysed. Spatial temperature and electron density distributions and the pressure and power-input dependence of the plasma column radius are determined in local thermodynamic equilibrium. Special attention is given to a cluster-containing plasma. For this new type of spatially nonuniform discharge plasma, the cluster growth process is studied and the limiting cluster size evaluated. The potential application of the cluster plasma as an illumination source is assessed and performance characteristics of such a source are calculated.

PACS numbers: 52.25.-b, 52.90. + z

Bibliography — 74 references

Received 4 March 1996