V. P. Konovalov, É. E. Son, Ionization of atoms and molecules in a weakly ionized plasma in an external electric-field,
TVT, 1982, Volume 20, Issue 3, 412–417

УДК 533.951

ИОНИЗАЦИЯ АТОМОВ И МОЛЕКУЛ В СЛАБОИОНИЗОВАННОЙ ПЛАЗМЕ ВО ВНЕШНЕМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

Коновалов В. П., Сон Э. Е.

Рассматривается кинетическое уравнение для функции распределения электронов в электрическом поле. Решение уравнения строится с помощью модели «бесконечного стока», использующей резкое убывание функции распределения электронов за порогом электронного возбуждения молекул. Получена формула для константы скорости ионизации молекул, проведено сравнение с точными численными расчетами в различных газах. Результаты распространяются также на случай ионизации газа под действием светового импульса и позволяют оценить величину пробойного поля.

Определение константы скорости ионизации молекул электронным ударом, а также других величин, интегрально зависящих от функции распределения электронов по энергии (ФРЭЭ), является важной задачей физики газового разряда. Для этих целей обычно применяется численное решение кинетического уравнения, что вызывает сложности из-за необходимости учета большого числа неупругих процессов. В данной работе на основе приближенного решения кинетического уравнения предлагается аналитическое выражение для константы скорости ионизации молекул электронами под действием электрического поля, удобное для практических оценок. Проведено сравнение этого выражения с результатами численных решений и экспериментальными данными.

Решение уравнения строится с помощью модели «бесконечного стока», использующей резкое убывание ФРЭЭ за порогом электронного возбуждения молекул [1—4].

Кинетическое уравнение Больцмана для ФРЭЭ $f(\varepsilon)$ в электрическом поле E имеет следующий вид:

$$\frac{d}{d\varepsilon}\left(\rho D\frac{df}{d\varepsilon}+\rho\mu f\right)+\sum_{\substack{k\\(v,j,i)}} f\rho\nu_k\Big|_{\varepsilon}^{\varepsilon+\varepsilon_k}+\langle\nu_i\rangle\delta(\varepsilon)=0, \tag{1}$$

$$\int_0^\infty f\rho d\varepsilon=1,\quad \rho=\varepsilon^{1/2}, \tag{2}$$

$$\langle\nu_i\rangle=\int_{\varepsilon_i}^\infty f\nu_i\rho d\varepsilon, \tag{3}$$

где $D=D_E+D_T+D_R=2(eE)^2\varepsilon/3m\nu_м+\delta_м\varepsilon\nu_м T+\varepsilon_r\nu_r T$ — коэффициент «диффузии»; $\mu=\delta_м\varepsilon\nu_м+\varepsilon_r\nu_r$ — «подвижность» электронов при движении по энергетической оси; $\delta_м=2m/M$ — доля энергии, теряемой электроном в упругом столкновении с молекулой; e, m — заряд и масса электрона; M — масса молекулы; ε_k и $\nu_k=Nv(\varepsilon)\sigma_k(\varepsilon)$ — порог и частота вращательных r, колебательных v, электронных j возбуждений и ионизации i молекул; N — концентрация молекул; $v(\varepsilon)$ — скорость электрона; $\sigma_k(\varepsilon)$ — сечение соответствующего неупругого процесса; $\sigma_м(\varepsilon)$ и $\nu_м=Nv(\varepsilon)\sigma_м(\varepsilon)$ — транспортное сечение и частота столкновений с молекулами; T — температура газа.

В уравнении (1) предполагается, что рождающийся при ионизации вторичный электрон имеет нулевую энергию. При условии $\varepsilon_v \ll \varepsilon$ колебательное возбуждение можно учитывать, вводя соответствующую «подвижность» $\mu_v = \sum_v \varepsilon_v \nu_v$.

Уравнение (1) описывает установившуюся ФРЭЭ в стационарной пространственно-однородной плазме. Следует отметить, что временная эволюция ФРЭЭ в процессе установления, а также процессы гибели электронов в реакциях прилипания и рекомбинации и возникающие пространственные градиенты концентрации электронов могут влиять на кинетические коэффициенты. В [5] построена функция Грина нестационарного кинетического уравнения, и вычислены времена задержки возбуждения и ионизации молекул, а в [6] показано, что влияние пространственных градиентов или нестационарности ФРЭЭ на кинетические коэффициенты особенно заметно в электроотрицательных газах.

Приближенное решение уравнения (1)

$$f(\varepsilon)=f(0)\exp\left(-\int_0^\varepsilon \beta d\varepsilon\right)-\langle\nu\rangle\int_0^\varepsilon \frac{\exp\left(-\int_\varepsilon^{\varepsilon'}\beta d\varepsilon''\right)}{\rho D}d\varepsilon', \quad 0<\varepsilon\leqslant\varepsilon_j, \tag{4}$$

$$f(\varepsilon)=f(\varepsilon_j)\exp\left(-\int_{\varepsilon_j}^{\varepsilon}\beta_j d\varepsilon'\right), \quad \varepsilon\geqslant\varepsilon_j, \tag{5}$$

$$\beta=\beta_м+\beta_v=\mu/D+\mu_v/D, \qquad \beta_j=(\nu/D)^{1/2},$$

$$\nu=\sum_j \nu_j+\nu_i, \quad \langle\nu\rangle=\int_0^\infty f\nu\rho d\varepsilon. \tag{6}$$

Формула (4) не учитывает особенности вблизи $\varepsilon=0$, связанной с накоплением в этой области электронов, совершивших неупругое возбуждение молекулы, а также вторичных электронов. Квазиклассическое решение (5) справедливо при условии $\beta_j \gg \beta_м + 1/\varepsilon$, которое ограничивает параметр eE/N со стороны малых и со стороны больших полей. В случае не очень слабого электрического поля, когда именно им определяется «диффузия» электронов по энергетической оси и можно полагать $D=D_E\gg D_T, D_R$, ограничения приводят к неравенствам

$$\left(\frac{\sigma_м}{\sigma_j}\right)^{1/2}(\delta_м\varepsilon_j\sigma_м+\varepsilon_r\sigma_r)\left[1+\left(\frac{T\sigma_j}{\delta_м\varepsilon_j\sigma_м+\varepsilon_r\sigma_r}\right)^{1/2}\right]\ll\frac{eE}{N}\ll\varepsilon_j(\sigma_м\sigma_j)^{1/2}, \tag{7}$$

которые обычно выполняются в диапазоне полей $10^{-17}\leqslant E/N\leqslant 10^{-15}$ В·см².

Константы $f(0)$, $f(\varepsilon_j)$ и $\langle\nu\rangle$ определяются условиями нормировки $f(\varepsilon)$, непрерывности $f(\varepsilon)$ в точке $\varepsilon=\varepsilon_j$ и непосредственным определением $\langle\nu\rangle$ по формуле (6). В качестве третьего условия с равным основанием можно использовать непрерывность производной $df/d\varepsilon$ в точке $\varepsilon=\varepsilon_j$, которая следует из уравнения (1). Резкое убывание ФРЭЭ за порогом электронного возбуждения и пренебрежение вкладом запороговой области в нормировку составляют условия метода «бесконечного стока», который предполагает нулевое значение ФРЭЭ в низшем пороге электронного возбуждения [1, 4]. При этом суммарная частота электронных возбуждений и ионизации молекул

$$\langle\nu\rangle=-\left(\rho D\frac{df}{d\varepsilon}\right)\Bigg|_{\varepsilon=\varepsilon_j}=$$

$$=\left[\int\limits_0^{\varepsilon_j}\frac{\exp\left(\int\limits_0^{\varepsilon}\beta d\varepsilon''\right)}{\rho D}d\varepsilon\int\limits_0^{\varepsilon}\exp\left(-\int\limits_0^{\varepsilon'}\beta d\varepsilon''\right)\rho d\varepsilon'\right]^{-1}. \tag{8}$$

С помощью (4), (8) $f(\varepsilon)$ может быть представлена в виде

$$f(\varepsilon)=\langle\nu\rangle\int\limits_{\varepsilon}^{\varepsilon_j}\frac{\exp\left(\int\limits_{\varepsilon}^{\varepsilon'}\beta d\varepsilon''\right)}{\rho D}d\varepsilon',\quad 0\leqslant\varepsilon\leqslant\varepsilon_j. \tag{9}$$

Диффузионное приближение позволяет вычислить частоту ионизации

$$\langle\nu_i\rangle=\frac{\int\limits_{\varepsilon_i}^{\infty}\exp\left(-\int\limits_{\varepsilon_j}^{\varepsilon}\beta_j d\varepsilon'\right)\nu_i\rho d\varepsilon}{\int\limits_{\varepsilon_j}^{\infty}\exp\left(-\int\limits_{\varepsilon_j}^{\varepsilon}\beta_j d\varepsilon'\right)\nu\rho d\varepsilon}\langle\nu\rangle=$$

$$=\left(\frac{d\sigma_i}{d\varepsilon}\varepsilon_i\Big/\frac{d\sigma_j}{d\varepsilon}\varepsilon_j\right)\exp\left(-\int\limits_{\varepsilon_j}^{\varepsilon_i}\beta_j d\varepsilon\right)\langle\nu\rangle, \tag{10}$$

а также дрейфовую скорость электронов

$$v_{\text{др}}=\frac{1}{3}\left(\frac{eE}{N}\right)^2\left(\frac{2}{m}\right)^{1/2}\int\limits_0^{\infty}\frac{\varepsilon}{\sigma}\left(-\frac{df}{d\varepsilon}\right)d\varepsilon$$

и их среднюю энергию

$$\langle\varepsilon\rangle=\int\limits_0^{\infty}\varepsilon^{3/2}f d\varepsilon.$$

Экспоненциальная функция в формуле (10) содержит основную зависимость, поэтому при выводе предэкспоненциального множителя приближенно считалось, что параметр убывания ФРЭЭ за порогом β_j постоянен, а сечения σ_i и σ_j вблизи порогов линейно зависят от энергии.

Предположим, что колебательное возбуждение представляет собой сильный узкий резонанс при $\varepsilon=\varepsilon_*$. В этом случае оно может быть описано как возникновение на энергетической оси источника электронов, выражаемого через производную δ-функции, двукратное интегрирование которой дает ступенчатый разрыв в точке $\varepsilon=\varepsilon_*$ [7]. С помощью (8), (9) можно получить явные выражения для константы скорости ионизации молекул, дрейфовой скорости и средней энергии электронов.

В атомарном газе в отсутствие колебательного возбуждения

$$k_i=\frac{\langle\nu_i\rangle}{N}=\left(\frac{d\sigma_i}{d\varepsilon}\varepsilon_i\Big/\frac{d\sigma_j}{d\varepsilon}\varepsilon_j\right)\frac{(eE/N)^2}{\int\limits_0^{\varepsilon_j}mv\sigma_{\text{м}}d\varepsilon}\times$$

$$\times \exp\left[-\frac{N}{eE}\int\limits_{\varepsilon_j}^{\varepsilon_i}\left(3\sigma_{м}\sum_j \sigma_j\right)^{1/2} d\varepsilon\right] = A\left(\frac{eE}{N}\right)^2 \exp\left(-B_1\frac{N}{eE}\right), \tag{11}$$

$$v_{др} = \frac{\varepsilon_j}{\int\limits_0^{\varepsilon_j} mv\sigma_{м} d\varepsilon}\frac{eE}{N} = C\frac{eE}{N};$$

$$\langle\varepsilon\rangle = \frac{3}{5}\frac{\int\limits_0^{\varepsilon_j}\varepsilon v\sigma_{м} d\varepsilon}{\int\limits_0^{\varepsilon_j} v\sigma_{м} d\varepsilon} = \text{const}. \tag{12}$$

В случае молекулярного газа

$$k_i = \frac{\frac{d\sigma_i}{d\varepsilon}\varepsilon_i}{\frac{d\sigma_j}{d\varepsilon}\varepsilon_j}\frac{(eE/N)^2}{\int\limits_{\varepsilon_*}^{\varepsilon_j} mv\sigma_{м}(\varepsilon_*/\varepsilon)^{3/2} d\varepsilon}\times$$

$$\times \exp\left[-\frac{N}{eE}\int\limits_{\varepsilon_j}^{\varepsilon_i}\left(3\sigma_{м}\sum_j\sigma_j\right)^{1/2} d\varepsilon\right]\exp\left[-\left(\frac{N}{eE}\right)^2\int\limits_0^{\varepsilon_j} 3\sigma_{м}\sum_v \varepsilon_v\sigma_v d\varepsilon\right] =$$

$$= A\left(\frac{eE}{N}\right)^2 \exp\left(-B_1\frac{N}{eE}\right)\exp\left[-B_2\left(\frac{N}{eE}\right)^2\right], \tag{13}$$

$$v_{др} = \frac{1}{m\sigma_{м}(\varepsilon_*)v(\varepsilon_*)}\frac{eE}{N} = C\frac{eE}{N}, \quad \langle\varepsilon\rangle = \frac{3}{5}\varepsilon_* = \text{const}. \tag{14}$$

Выражение для константы ионизации содержит таунсендовский множитель $\exp(-B_1N/eE)$, играющий главную роль в области больших значений параметра eE/N. Диффузионное приближение приводит к линейной зависимости дрейфовой скорости и постоянному значению средней энергии электронов в диапазоне параметра eE/N, определяемого неравенствами (7).

Газ	Ar	Kr	Xe	CO	N_2	O_2	Воздух	
							N_2	O_2
$A\cdot10^{12}$	3,67	1,60	1,47	3,29	9,53	2,07	4,5	1,5
B_1	11,0	13,5	15,9	59,1	59,4	27,0	55	41
B_2	—	—	—	58,7	26,2	0,07	38	13
$C\cdot10^{-6}$	0,9	0,8	0,5	1,1	1,2	2,2	1,3	

В таблице представлены коэффициенты A, B_1, B_2, C, найденные из сравнения полученных зависимостей со строгими численными расчетами [8—10] для различных газов в диапазоне полей $10^{-16}<E/N<3\cdot10^{-15}$ В·см^2. Параметр E/N измеряется в 10^{-16} В·см^2, k_i — в см^3·с$^{-1}$, $v_{др}$ — в см·с$^{-1}$.

Коэффициенты A, B_1, C с погрешностью ~20% могут быть определены из формул (11)—(14). Коэффициент B_2 оценивается лишь по порядку величины, что связано с приближенным описанием колебательного возбуждения, поскольку энергии колебательных резонансов сравнимы с порогами возбуждения верхних колебательных уровней.

Отметим, что частота неупругих возбуждений (8) в случае $D\sim\varepsilon$ выражается формулами

$$\langle\nu\rangle\simeq D(\varepsilon_j)/\varepsilon_j^2 \text{ — в атомарном газе,}$$
$$\langle\nu\rangle\simeq[D(\varepsilon_*)/\varepsilon_*^2]\exp\left(-\int\beta_v d\varepsilon\right) \text{ — в молекулярном газе,} \tag{15}$$

которые просто получаются из размерных оценок и имеют наглядный физический смысл. Действительно, частота неупругих возбуждений определяется вероятностью достижения диффузионным потоком электронов порога неупругого возбуждения. При этом частота ионизации

$$\langle\nu_i\rangle\simeq\frac{D(\varepsilon_*)}{\varepsilon_*^2}\exp\left(-\int\beta_v d\varepsilon\right)\exp\left(-\int\beta_j d\varepsilon\right) \tag{16}$$

оказывается не зависящей от сечения ионизации и определяется вероятностью прохождения диффузионным потоком электронов «узкого места», формируемого неупругими потерями — колебательными и электронными. Полученные закономерности представляют собой естественное обобщение известных результатов [2] на случай зависящих от энергии частот столкновений электронов с молекулами.

В случае ионизации газа под действием светового импульса обоснованием диффузионного приближения является малость кванта излучения $\hbar\omega$ в сравнении с энергией электрона и квазилинейный характер коэффициентов тормозного фотопоглощения $a_\omega(\varepsilon)$ и фотоизлучения $b_\omega(\varepsilon)$. Движение электронов по энергетической оси описывается в этом случае коэффициентом диффузии $D=D_F=NF(\hbar\omega)^2(a_\omega+b_\omega)/2$, где F — плотность потока квантов.

При описании нестационарного процесса развития электронной лавины в правой части кинетического уравнения (1) появляется член $\langle\nu_i\rangle f_0$. Из-за резкого убывания ФРЭЭ в молекулярном газе за порогами колебательного возбуждения этот член существенно сказывается на ФРЭЭ лишь в малой окрестности вблизи $\varepsilon=0$. Можно показать, что квазиклассическое решение уравнения в этой окрестности совпадает с точным решением при $D\sim\varepsilon$, рассмотренным в [2].

Из формул (13), (16) следует, что константа скорости ионизации газа потоком квантов может быть оценена как

$$k_i=A_\omega F\exp\left(-B_\omega/F^{1/2}\right)\exp\left(-C_\omega/F\right),$$
$$A_\omega\simeq(\hbar\omega)^2\frac{a_\omega(\varepsilon_*)+b_\omega(\varepsilon_*)}{2\varepsilon_*^2},\quad B_\omega=\int\limits_{\varepsilon_j}^{\varepsilon_i}\left[\frac{2v\sum\limits_j\sigma_j}{(\hbar\omega)^2(a_\omega+b_\omega)}\right]^{1/2}d\varepsilon, \tag{17}$$
$$C_\omega=\int\limits_0^{\varepsilon_j}\frac{2v\sum\limits_v\varepsilon_v\sigma_v d\varepsilon}{(\hbar\omega)^2(a_\omega+b_\omega)}.$$

Множитель $\exp(-C_\omega/F)$, учитывающий влияние потерь энергии электрона на колебательные возбуждения молекул, аналогичен предложенному в [11]. Пороговая интенсивность, при которой наступает пробой, определяется условием

$$\langle\nu_i\rangle=\langle\nu_\text{д}\rangle,\quad \langle\nu_\text{д}\rangle=k_\text{д}N=\frac{1}{3\Lambda^2}\left\langle\frac{v^2}{\nu_\text{м}}\right\rangle,$$

где $\langle \nu_д \rangle$ — частота ухода электронов из фокальной области вследствие пространственной диффузии; Λ — диффузионная длина. Подчеркнем, что диффузионное приближение не может дать осцилляционной картины в спектре электронов при пробое молекулярного газа [12], однако может применяться для оценки интегральных характеристик и, в частности, частоты ионизации $\langle \nu_i \rangle$.

Авторы выражают благодарность А. А. Белевцеву за критические замечания.

Московский физико-технический институт

Поступила в редакцию 6.IV.1981

ЛИТЕРАТУРА

1. *Мак-Дональд А.* Сверхвысокочастотный пробой в газах. М.: Мир, 1969, с. 91.
2. *Райзер Ю. П.* Лазерная искра и распространение разрядов. М.: Наука, 1974, с. 115.
3. *Кружилин Н. А., Якубов И. Т.* Ионизация электронным ударом в неравновесной плазме в электрическом поле.– ТВТ, 1975, т. 12, № 1, с. 181.
4. *Атражев В. М.* Скорость возбуждения в слабоионизованной плазме в сильном внешнем поле.– ЖТФ, 1976, т. 46, № 10, с. 2070.
5. *Белевцев А. А.* К теории релаксации распределения электронов по энергиям.– ТВТ, 1979, т. 17, № 6, с. 1138.
6. *Александров Н. Л., Кочетов И. В., Напартович А. П. и др.* Электронные кинетические коэффициенты в слабоионизованной плазме при наличии сильного прилипания.– Физика плазмы, 1980, т. 6, № 6, с. 1365.
7. *Allis W. P., Haus H. A.* Electron distribution in gas lasers.– J. Appl. Phys., 1974, v. 45, N 2, p. 781.
8. *Александров Н. Л., Кончаков А. М., Сон Э. Е.* Функция распределения электронов и кинетические коэффициенты азотной плазмы.– Физика плазмы, 1978, т. 4, № 1, с. 169.
9. *Александров Н. Л., Кончаков А. М., Сон Э. Е.* Функция распределения электронов и кинетические коэффициенты СО.– ЖТФ, 1979, т. 49, № 6, с. 1194.
10. *Александров Н. Л., Кончаков А. М., Сон Э. Е.* Влияние электронных столкновений на кинетические коэффициенты электронов в плазме инертных газов.– ЖТФ, 1980, т. 50, № 3, с. 481.
11. *Афанасьев Ю. В., Беленов Э. М., Полуэктов И. А.* Оптический пробой молекулярных газов.– Письма в ЖЭТФ, 1972, т. 15, с. 60.
12. *Phelps A. V.* Theory of growth of ionisation during laser breakdown. In: Physics of Quantum Electronics, N. Y., McGraw-Hill, 1966, p. 538.