

УТВОРЕННЯ ЕКСИМЕРНИХ МОЛЕКУЛ KrF* В ПЛАЗМОВИХ СТРУЯХ НА СУМІШАХ He-Kr-F₂ І He-Kr-SF₆

Богачова С.П., Розулич В.С., Шевера В.С.

ВСТУП

У зв'язку з проблемою створення ексімерних лазерів неперервної дії викликають інтерес експериментальні і теоретичні дослідження ексімерних молекул в плазмовій струї. Фізичною основою для цього є те, що при розльоті плазми температура її складових компонент швидко зменшується і створюються сприятливі умови для протікання іон-іонної рекомбінації - одного з найважливіших процесів утворення ексімерних молекул. Вперше експерименти по одержанню ексімерних молекул в неперервній плазмовій струї, зокрема на галогенідах інертних газів, були виконані в Ужгородському університеті [1,2].

В даній праці проведено моделювання плазмодинамічної струї і виконано розрахунки параметрів і характеристик плазми на газових сумішах He-Kr-F₂ і He-Kr-SF₆ з метою виявлення оптимальних умов утворення найбільш важливої ексімерної молекули KrF*.

1. МОДЕЛЮВАННЯ ПЛАЗМИ І КОНСТАНТИ ПРОЦЕСІВ

Ми базувались на наступних експериментальних даних [1,2]:-концентрація компонент плазми N_{Kr} , N_{SF_6} , $N_{F_2}=10^{14} \dots 10^{16} \text{ см}^{-3}$, $N_{He}=10^{16} \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ -електронна температура $T_e \sim T_{\text{газ}} = 0,4 \dots 1,2 \text{ еВ}$.

Розглядається стаціонарне розширення плазми з швидкістю більше $10^5 \text{ см} \cdot \text{с}^{-1}$, за початковий момент розльоту прийнято 10^{-5} с . Для спрощення ми приймаємо, що в соплі плазмотрона струмінь вільно розширюється у двох вимірах простору (константа розширення $m=2$), а після виходу поширюється по циліндричному каналу ($m=1$).

Кінетику процесів зіткнення частинок будемо описувати на основі системи диференціальних рівнянь

$$\frac{dN_m}{dt} = \sum K_{mm'} \cdot N_m - \mu \frac{N_m}{t}, \quad (1)$$

де $K_{mm'}$ - швидкість реакцій зіткнення з участю m і m' частинок плазми, N_m - концентрація m -сортів частинок плазми, m - константа розширення плазми.

Член $\mu \frac{N_m}{t}$ враховує розліт плазми в часі t . В робочих газових сумішах He-Kr-F₂ і He-Kr-SF₆ врахована релаксія в часі 15 сортів частинок $m = Kr, Kr^-, Kr^+, Kr_2^+, Kr_2^-, KrF^+, Kr_2F^+, F_2, F, F^-(SF_6, SF_6^-, SF_5^-), He^+, He^*, He_2^+, He_2^+$ і електронів.

Спільно з системою рівнянь (1) розглядалась динаміка балансу тепла електронної і газових компонент плазми, аналогічно як і в роботі [3]. Система диференціальних рівнянь (1) інтегрувались методом Гіра. Швидкість реакцій частинок $K_{mm'}$ для трьохкомпонентної He-Kr-F₂ плазми взяті із праць [3,4,5]. Для He-Kr-SF₆ плазми константи швидкості реакцій розраховувались нами самостійно і зведені в таблиці 1.

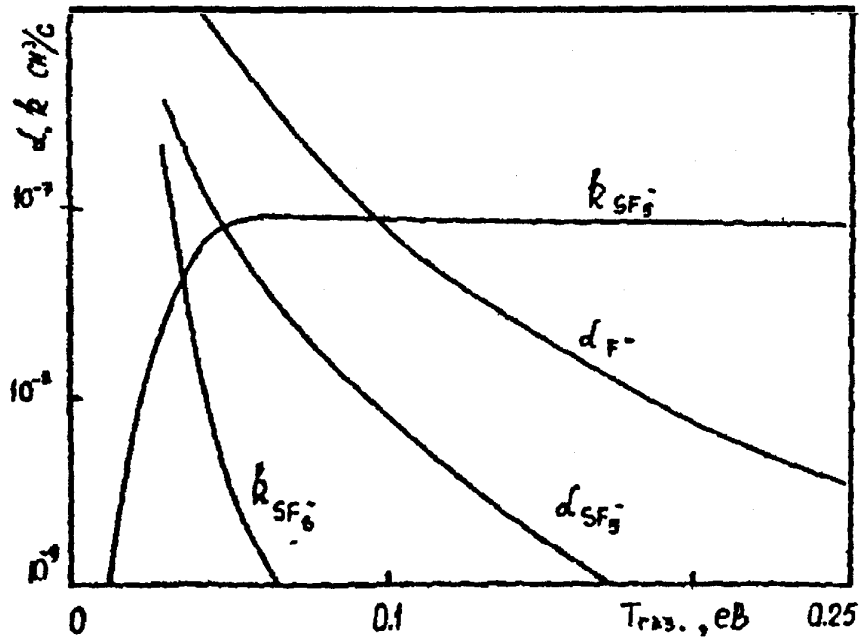
Таблиця 1

Основні процеси в плазмовій струї на суміші газів He-Kr-SF₆

№п/п	Процеси	Константа см ³ /с, см ⁶ /с	Літера -тура
1.	$\left\{ \begin{array}{l} \text{SF}_6^- \\ \text{SF}_5^- \\ \text{F}^- \end{array} \right\} + \text{Kr} \rightarrow \text{KrF}^* + \text{п ро.}$	розрахунок по Фланнері	6
2.	$\text{Kr}^+ + \text{SF}_6 \rightarrow \text{Kr}^+ + \text{SF}_5$	$2.5 \cdot 10^{-10}$	10
3.	$\text{Kr}^+ + \text{F} + \text{He} \rightarrow \text{Kr}^+ + \text{He}$	$5 \cdot 10^{-32}$	3
4.	$\text{Kr}^+ + \text{F} \rightarrow \text{Kr}^+ + \text{Kr}$	$4 \cdot 10^{-9} / \text{Te}^{1.5}$	3
5.	$\text{Kr}^+ + \text{F} \rightarrow \text{KrF}^+ + \text{Kr}$	$3 \cdot 10^{-10}$	3
6.	$\text{Kr}^+ + \text{F} \rightarrow \text{KrF} + \text{e}$	$2 \cdot 10^{-9}$	3
7.	$\text{e} + \text{SF}_6 \rightarrow \left\{ \begin{array}{l} \text{SF}_6^- \\ \text{SF}_5^- \\ \text{F}^- \end{array} \right\} + \text{п ро.}$	$1.8 \cdot 10^{-8} / \text{Te} (1-\text{CK})$ $1.8 \cdot 10^{-8} / \text{Te CK}$ $4 \cdot 10^{-10}$ $\text{CK} = \frac{N_{\text{SF}_5^-}}{N_{\text{SF}_6^-}} = 700 \cdot (T_{\text{газ}}(\text{эВ}) \cdot 10)$	7, 8, 9
8.	$\text{F}^- + \text{e} \rightarrow \text{F} + 2\text{e}$	$3.5 \cdot 10^{-7} / \text{Te}$	3
9.	$\text{F} + 2\text{e} \rightarrow \text{F}^- + \text{e}$	$9 \cdot 10^{-28} / \text{Te}^{2.25}$	3
10.	$\text{F} + \text{F} + \text{He} \rightarrow \text{F}_2 + \text{He}$	$1 \cdot 10^{-34}$	4
11.	$\text{Kr}^+ + \text{Kr} + \text{He} \rightarrow \text{Kr}_2^+ + \text{He}$	$1 \cdot 10^{-31}$	4
12.	$\text{Kr} + \text{Kr} + \text{He} \rightarrow \text{Kr}_2 + \text{He}$	$5 \cdot 10^{-32}$	4
13.	$\text{He}_2 + \text{Kr} \rightarrow \text{Kr}^+ + 2\text{He}$	$1.85 \cdot 10^{-11}$	4
14.	$\text{He} + \text{Kr} \rightarrow \text{Kr}^+ + \text{He} + \text{e}$	$1 \cdot 10^{-10}$	3
15.	$\text{He} + \text{Kr} + \text{He} \rightarrow \text{Kr}^+ + 2\text{He} + \text{e}$	$0.86 \cdot 10^{-30}$	3
16.	$\text{He}_2 + \text{Kr} \rightarrow 2\text{He} + \text{Kr}^+ + \text{e}$	$1 \cdot 10^{-10}$	3
17.	$\text{He}_2 + \text{Kr} + \text{He} \rightarrow 3\text{He} + \text{Kr}^+ + \text{e}$	$0.86 \cdot 10^{-30}$	3
18.	$\text{Kr}_2^+ + \text{F} + \text{He} \rightarrow \text{Kr}_2\text{F}^+ + \text{e}$	$1 \cdot 10^{-25}$	3
19.	$\text{Kr}_2^+ + \text{F} \rightarrow \text{Kr}_2\text{F}^+ + \text{e}$	$2 \cdot 10^{-9}$	3
20.	$\text{KrF}^+ + \text{Kr} + \text{Kr} \rightarrow \text{Kr}_2 + \text{F}^+ + \text{Kr}$	$3 \cdot 10^{-36} / \Gamma^{3.3}$	3
21.	$\text{KrF}^+ + \text{Kr} + \text{He} \rightarrow \text{Kr}_2\text{F}^+ + \text{He}$	$5 \cdot 10^{-31}$	4
22.	$\text{KrF}^+ \rightarrow \text{KrF} + \text{h}\nu$	$t = 6.5 \cdot 10^{-9}$	4
23.	$\text{KrF}^+ + \text{e} \rightarrow \text{Kr} + \text{F} + \text{e}$	$3.5 \cdot 10^{-8}$	3
24.	$\text{KrF}^+ + \text{SF}_6 \rightarrow \text{Kr} + \text{F} + \text{SF}_6$	$1 \cdot 10^{-11}$	5, 4
25.	$\text{KrF}^+ + \text{Kr} \rightarrow \text{Kr} + \text{FKr}$	$1 \cdot 10^{-12}$	5, 4
26.	$\text{KrF}^+ + \text{F} \rightarrow \text{Kr} + 2\text{F} + \text{e}$	$2 \cdot 10^{-9}$	3
27.	$\text{Kr}_2\text{F}^+ + \text{e} \rightarrow 2\text{Kr} + \text{F} + \text{e}$	$3.5 \cdot 10^{-8}$	3
28.	$\text{Kr}_2\text{F}^+ + \text{F} \rightarrow 2\text{Kr} + 2\text{F} + \text{e}$	$2 \cdot 10^{-9}$	5

Коефіцієнти іон-іонної рекомбінації α для процесу (1) розраховані по формулі Фланері-Натансона [6], а константи швидкості утворення від'ємних іонів для процесів

(7) одержано при обробці даних із праць [7-9]. Температурні залежності α і k приведені на мал.1. Із цих даних випливає, що $k_{SF_5^-}$ досить високою в інтервалі 0,05-0,25 eВ і це може свідчити про важливу роль електронегативного іону SF_5^- в утворенні ексимерної молекули.

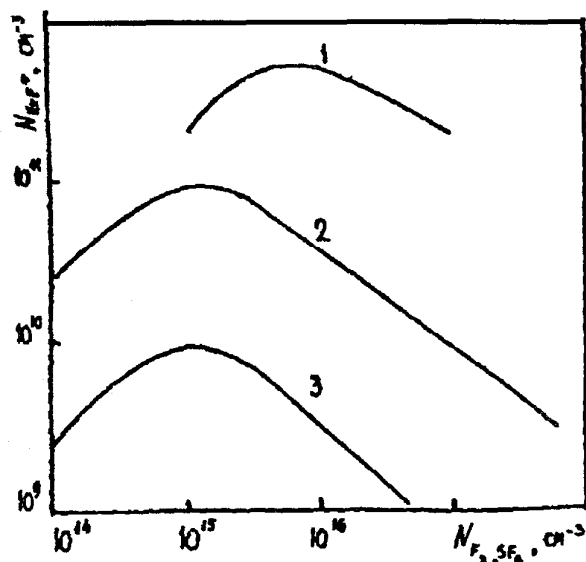


Мал.1. Температурні залежності коефіцієнтів іон-іонної рекомбінації α_{F+Kr+} та α_{SF_5+Kr} і швидкостей утворення від'ємних іонів (при $T_e = 0,2$ eВ) N_{SF_5} та k_{SF_6} для N плазми $= 2,69 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

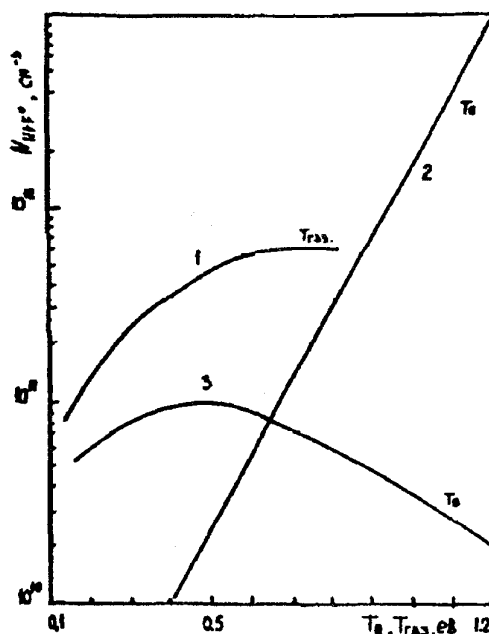
2. РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Ми приведемо основні результати, які описують вихід ексимерних молекул в газових сумішах He-Kr-F₂ і He-Kr-SF₆ в залежності від концентрації галогеносіїв і електронної та газової температури.

Залежність густини ексимерних молекул Kr* від концентрації F₂ і SF₆ приведено на мал.2. Ці дані показують, що вихід KrF* в суміші He-Kr-SF₆ є більшим для He-Kr-F₂. Ефективне утворення KrF* лежить в інтервалі концентрацій галогеносіїв $2 \cdot 10^{15} \dots 8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Виявлено, що оптимальна концентрація F₂ приблизно рівна концентрації електронів в плазмі. Це пояснюється тим, що практично всі електрони з малими енергіями приймають участь в утворенні від'ємних іонів F⁻ при зіткненні з молекулами F₂. Якщо ж збільшувати долю F₂, то зростання кількості F⁻ та KrF* не спостерігається, а навпаки - концентрація KrF* зменшується, із-за тушачих зіткнень KrF* з молекулами F₂. Аналогічні процеси відбуваються і в He-Kr-SF₆ плазмовій суміші.



Мал.2. Залежність концентрації ексимерних молекул в плазмовій струї від початкової концентрації галогеноносіїв SF_6 і F_2 для He-Kr- SF_6 плазми (крива 1) та He-Kr- F_2 плазми (крива 2- $N_{Kr}=3,4 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$, крива 3- $N_{Kr}=3,4 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$)



Мал.3. Температурні залежності KrF^* криві 1 і 2 для He-Kr- SF_6 , крива 3 для He-Kr- F_2 .

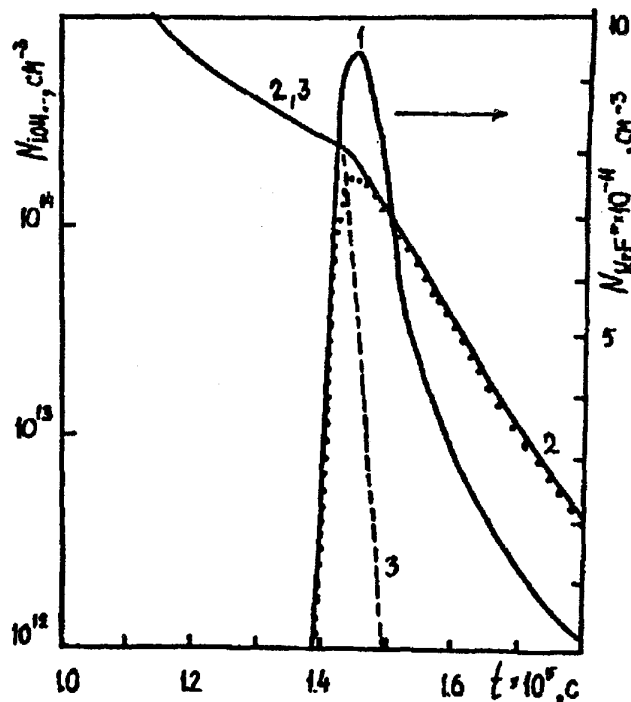
Не приводячи конкретних даних замітимо, що зростання концентрації кріптон у плазмі приводить до росту кількості KrF^* , у зв'язку з збільшенням концентрації Kr^+ .

Залежність густини ексимерних молекул KrF^* від початкової температури електронів T_e та важких частинок плазми $T_{газ}$ подано на мал.3. Для плазми на суміші He-Kr- SF_6 вихід ексимерних молекул є оптимальним в інтервалі $T_{газ} = 0,5-0,9$ еВ (крива 1) і різко зростає від T_e (крива 2). При малих газових температурах в плазмотронному соплі електронна температура може знизитись до таких значень, щоб електрони ефективно прорекомбінувати з іонами плазми, в результаті чого за соплом умови для утворення ексимерних молекул KrF^* не будуть оптимальними. Підвищення $T_{газ}$ до значень більших 0,9 еВ є також не бажаним, оскільки в плазмі сповільнюються процеси іон-іонної рекомбінації.

Однак, для плазми на суміші He-Kr- F_2 збільшення T_e не приводить до зростання N_{KrF^*} (крива 3, мал.3). Це пояснюється тим, що швидкість утворення іонів F^+ при зіткненні електронів з молекулами F_2 менше, чим при зіткненнях електронів з SF_6 . Тому концентрація електронів в He-Kr- F_2 плазмі довгий час залишається досить великою, а електрони дуже ефективно гасять молекули KrF^* .

Накінець розглянемо часову динаміку важливих компонент плазмової струї. Детально результати розрахунків приведені на мал.4.

В He-Kr- SF_6 плазмі (мал.4а), внаслідок великої константи тіворення від'ємних іонів (7, табл.1), накопичуються SF_5^- і F^- , при цьому концентрація їх в часі зменшиться на кілька порядків. Із-за швидкого витрачання іонів Kr^+ і SF_6 крива (1) для N має вузький максимум. У зв'язку з цим галогеноносієм SF_6 слід вводити у He-Kr плазмову струю після виходу плазми із сопла.



Мал.4. Часова релаксація основних компонент He-Kr-SF₆ плазми (а) та He-Kr-F₂ плазми (б)
 1-N_{KrF*}, 2-N_{Kr++}, 3-N електр., 4-N_F · 10³, позначено ...-N_{SF5}.

В He-Kr-F₂ плазмі (мал.4б) від'ємні іони накопичуються повільніше, тому крива (1, мал.4б) для KrF* має більш пологий максимум.

Таким чином, підсумовуючи результати розрахунків приходимо до висновку, що при однакових початкових параметрах в He-Kr-SF₆ плазмовій струї утворюється більше ексимерних молекул KrF*, ніж у суміші He-Kr-F₂. У зв'язку з цим така газова суміш може бути перспективною для одержання більш високих концентрацій KrF* ніж було одержано раніше в роботі [2]. Для одержання в плазмовій струї концентрації ексимерних молекул більше 10¹² см⁻³ рекомендується вибрати наступні параметри:

- N_{Kr} > 5 · 10¹⁶ см⁻³,
- N_{SF6} ≈ початковій концентрації електронів,
- N_{He} > 10¹⁸ см⁻³,
- Te > 1 еВ, T_{газ} > 0,5 еВ.

ЛІТЕРАТУРА

1. Шевера В.С., Рогоulich В.С., Стародуб В.П. Излучение эксимеров KrF* и XeF* в плазменной струе.- Письма в ЖТФ, 1986, т.12, вып.10, с.606-609.
2. Рогоulich В.С., Стародуб В.П., Шевера В.С. Об эффективности образования эксимерных молекул в плазменной струе на смесях инертных газов с SF₆ и CCl₄.- ЖТФ, 1988, т.58, вып.10, с.1893-1896.
3. Лакоба С.Н., Сыцько Ю.И., Якубцева Е.Д. Численное моделирование локальной кинетики релаксации среды KrF - лазера.- Труды ФИАН, 1984, т.145, с.131-159.
4. Молчанов А.Г. Теория активных эксимерных лазеров.- Труды ФИАН, 1986, т.171, с.54-1267.
5. Эксимерные лазеры. Под ред. Ч.Роуза.- М., Мир, 1981.
6. Лакоба И.С., Сучкова Е.Д., Сыцько Ю.И. Вычисление коэффициентов ион-ионной рекомбинации с учетом температурной зависимости. - Препринт ФИАН, 1981, №8, с.1-33.
7. Газовые лазеры под ред. И.Мак-Даниэля. М.: Мир, 1986, с.552.

8. Chan C.L., Chantry P.J. Photon-enhanced dissociative electron attachment in SF₆ and its isotopic selectivity.- J. Chem. Phys. 1979, v.71, N10, p.3897-3907.

9. Mullen J.H. e.a. Measurement of electron attachment process in a high-temperature plasma.- Proc. IEEE, 1971, v.59, N4, p.605-609.

10. Куклин А.Е., Ханов Ю.И. Константы скоростей реакций образования и тушения оксифторных молекул /Институт автоматики и электрометрии.- Препринт /ИАЕ СО СССР: N301.- Новосибирск, 19866 с.24.

SUMMARY

The plasma parameters calculation is made for He-Kr-F₂ and He-Kr-SF₆ mixture. The temperature dependence of ion-ion recombination constants and negative ion formation constants is found. The dependence of eximer molecules formation from Kr, F₂, SF₆ concentration and from plasma temperature is investigated in the region of 10¹⁴-10¹⁷ sm⁻³ and 0,1-1,2 ev. The optimal initial plasma parameters area is found for the formation of

$B^2\Sigma_{1/2}^+ \rightarrow X^2\Sigma_{1/2}^+$ V inverse population in KrF* more that 10¹²sm⁻³.