УДК 537.525

DOI: 10.21779/2542-0321- 2016-31-4-49-56

Д.Н. Поляков, В.В. Шумова, Л.М. Василяк

Тлеющий разряд постоянного тока при криогенном охлаждении

Объединённый институт высоких температур РАН; Россия, 125412, г. Москва, ул. Ижорская 13, стр. 2; cryolab@ihed.ras.ru

В статье представлены экспериментальные данные электрических характеристик разряда постоянного тока с полым катодом в неоне и параметров разряда на границе перехода к нормальному разряду, полученные при уменьшении температуры разряда до температуры кипения жидкого азота. Эксперименты проведены при давлении неона $P = 18\text{--}187$ Па и токах разряда $I = 0,01\text{--}3,5$ мА. Исследован характер трансформации границы перехода к нормальному разряду при охлаждении. Обнаружено, что характер изменения вольт-амперных характеристик разряда (ВАХ) при охлаждении от комнатной температуры до температуры жидкого азота при одинаковом давлении аналогичен изменению ВАХ, наблюдаемому при увеличении давления газа при комнатной температуре. При постоянных значениях температуры и тока разряда с увеличением давления газа наблюдался рост напряжения на разряде и рост напряжённости электрического поля в положительном столбе разряда. При малом токе разряда (около 1 мА), величина которого определялась давлением газа, обнаружены отклонения поведения ВАХ положительного столба разряда от теории Шоттки. При охлаждении газа трансформация ВАХ происходила по траектории, описываемой отношением изменения величины электрического поля к изменению величины тока разряда. В исследуемом диапазоне давлений газа наклон траектории был отрицательный, а её длина зависела от давления и могла быть различной при разном значении тока разряда. В режиме охлаждения при определённом постоянном значении тока разряда изменение температуры газа приводило к смене механизма разряда, где наблюдалась немонотонная зависимость напряжения на исследуемом участке столба разряда от температуры. При охлаждении граница перехода к нормальному разряду смещалась в область меньших токов, напряжённость электрического поля в положительном столбе разряда и на границе перехода к нормальному разряду увеличивалась, а величина приведённой напряжённости электрического поля уменьшалась во всех исследованных диапазонах тока разряда, давления и концентрации неона.

Ключевые слова: *тлеющий разряд, вольт-амперная характеристика, криогенные температуры.*

Введение

Актуальность изучения свойств газоразрядной плазмы, охлаждённой до низких и криогенных температур, диктуется возможностью применения такой плазмы при создании нового класса плазмохимических технологий, а именно криогенных плазменных нанотехнологий. Криогенное охлаждение в реакторе используется при плазменно-химическом синтезе и осаждении для получения сверхчистых материалов [1, 2], гетероструктур, бинарных сплавов и покрытий [3], для функционализации наноструктурированных поверхностей при плазменной обработке и плазменном травлении [4, 5]. Очевидно, что для оптимизации плазмохимического процесса в газовом разряде и расширения сферы его приложений необходимо изучение свойств разряда, в частности, изучение электрофизических характеристик плазмы разряда.

С фундаментальной точки зрения такие исследования актуальны для развития теорий процессов нуклеации, роста и агломерации наноструктур и коагуляции микро- и наночастиц в плазме при низких температурах газа [6, 7]. Изучение характеристик газовых разрядов при низких температурах также необходимо для развития представлений

об элементарных процессах и процессах самоорганизации в пылевой и сильно неидеальной плазме [8]. Например, в пылевой плазме, образованной микро- и наночастицами, для изучения процесса зарядки пылевых частиц [9] и влияния пылевых частиц и образованных ими структур на свойства газовых разрядов [10].

В технологическом плане для оптимизации плазмохимического процесса в газовом разряде и расширения сферы его приложений необходимо изучение свойств разряда, химических реакций, ведущих к образованию новых веществ и соединений, элементарных процессов с участием плазменных частиц и частиц новой фазы, типа, направления и основных стадий плазмохимических реакций и т. д. Начальным звеном в этой области исследований является изучение электрофизических характеристик плазмы разряда, а именно вольт-амперных характеристик (ВАХ). Изучение ВАХ разряда и поведения напряжённости электрического поля при охлаждении газа необходимо для создания моделей описания плазмы разряда, существующей при низких и криогенных температурах.

Известно, что поступающие в плазму газовых разрядов либо образующиеся в ней микро- и наночастицы заряжаются и, взаимодействуя между собой и окружающей плазмой, формируют пылевые структуры [8, 11], оказывающие существенное влияние на параметры плазмы как внутри образующихся структур, так и на окружающую плазму, изменяя электрофизические параметры газоразрядных устройств, в частности, напряжение, электрическое поле [12–16] и вольт-амперные характеристики разрядов [17–19]. Необходимость изучения характеристик плазмы при понижении температуры газа связана также с тем, что характеристики плазмы газовых разрядов в ряде газов при криогенных температурах даже без пылевых частиц существенно отличаются от их характеристик при комнатных температурах [10, 20–23]. Это отличие может существенно повлиять на состав плазмы и параметры её компонент, что соответственно изменит условия синтеза новой фазы и условия энергообмена плазмы с пылевой компонентой или поверхностью воздействия. Это в свою очередь изменит заряд пылевых частиц, приведёт к изменению условий равновесия пылевых структур и пылевых частиц в плазме и в итоге может повлиять на качество модифицируемой поверхности или изменить свойства новой фазы. В настоящий момент существуют немногочисленные экспериментальные данные по изучению влияния криогенной температуры на электрические параметры тлеющего разряда в неоне даже в разряде без пылевых частиц [20–21], что ограничивает изучение возможности более широкого применения такой плазмы в новых технологиях и развитие фундаментальных теорий.

В данной работе исследовались ВАХ разряда, полученные при криогенной и комнатной температуре газа, и электрофизические параметры разряда на границе перехода к нормальному разряду.

Эксперимент

Эксперименты проводились в стеклянной разрядной трубке с внутренним диаметром $d = 1,65$ см и длиной около 20 см, которая была специально разработана для изучения процессов в пылевой плазме при криогенных температурах. Особенности конструкции разрядной трубки заключались в расположении вблизи полого катода на расстоянии 1,5 см двух дополнительных узких кольцевых электродов с расстоянием между ними 4,2 см, которые служили для пространственного удержания пылевых частиц и измерения напряжения в столбе разряда. Полый катод был закрыт конусной диэлектрической диафрагмой с центральным отверстием, расположенным вдоль оси разряда. Разрядная трубка помещалась в оптический криостат, где она могла плавно охла-

ждаться от комнатной температуры $T = 295$ К до температуры кипения жидкого азота $T = 77$ К. Подробная схема экспериментальной установки и её подробное описание приведены в [23]. В эксперименте измерялись значения падения напряжения между кольцевыми электродами и общее напряжение на разрядной трубке при комнатной температуре и температуре кипения жидкого азота в диапазоне давлений неона $P = 18$ – 187 Па и токах разряда $I = 0,01$ – $3,5$ мА. Давление газа в разряде при изменении температуры поддерживалось постоянным. Плотность газа в разрядном устройстве соответствовала измеряемой температуре при данном давлении, а именно изменялась пропорционально изменению отношения комнатной температуры к её текущему значению. Значение температуры измерялось на стенке разрядной трубки, вблизи исследуемого участка разряда. Принималось, что эта температура равна температуре газа.

Результаты эксперимента

Характер поведения вольт-амперных характеристик (ВАХ) разряда при охлаждении от комнатной температуры до температуры жидкого азота при одинаковом давлении аналогичен изменению ВАХ, наблюдаемому при увеличении давления газа при комнатной температуре [18]. При постоянных значениях температуры и тока разряда с увеличением давления газа наблюдаются рост напряжения на разряде и увеличение напряжённости электрического поля в столбе разряда между измерительными электродами (рис. 1а).

Рис. 1. Зависимости напряжённости продольного электрического поля от давления при температуре $T = 295$ К (а) и падения напряжения в столбе разряда между измерительными электродами от температуры при давлении $P = 84$ Па (б) при токе разряда $I = 0,6$ мА

Влияние температуры газа на напряжение разряда изучалось при постоянном значении тока разряда. Тлеющий разряд постоянного тока зажигался при давлении, измеряемом при комнатной температуре, после чего понижалась температура разрядного устройства. Давление газа в разряде при изменении температуры поддерживалось постоянным. Плотность газа в разрядном устройстве соответствовала измеряемой температуре при данном давлении, а именно изменялась пропорционально изменению отношения комнатной температуры к её текущему значению.

В процессе охлаждения газа в определённом диапазоне температур обнаружен немонотонный характер зависимости напряжения между измерительными электродами от температуры газа. Напряжение и соответственно величина напряжённости электрического поля в столбе разряда могла уменьшаться или увеличиваться, если охлаждение плазмы происходило при фиксированном токе разряда. Например, в определённом диапазоне температуры наблюдалось снижение величины напряжения между измери-

тельными электродами (рис. 1б). Диапазон температуры, где наблюдалось снижение величины напряжения, зависел как от величины тока разряда, так и от давления газа. При токах разряда, соответствующих нормальному разряду (НР) (рис. 2а), напряжённость электрического поля при уменьшении температуры всегда увеличивалась (рис. 3). Здесь нормальному разряду соответствует область напряжений разряда, слабо зависящая от тока, а поднормальному разряду (ПНР) соответствует спадающая характеристика напряжения на разряде. На рисунке 2а показано значение тока (4), при котором происходит переход к нормальному разряду, левее этого значения наблюдается характерный рост напряжения на разряде (1), излом и рост напряжения в столбе разряда (2) между измерительными электродами. Наблюдаемое отклонение поведения ВАХ в положительном столбе от теории Шоттки (расчёт по модели [18]) (3), наблюдается и при криогенной температуре. Такое поведение ВАХ при малых токах, возможно, определяется влиянием полого катода. В области поднормального разряда вблизи катода при низких давлениях газа, вероятно, изменяется энергетический спектр электронов, участвующих в переносе тока через эту область разряда, а именно, увеличивается доля быстрых электронов, генерируемых полым катодом. Ранее генерация низкоэнергетического электронного пучка из полого катода была обнаружена по характерным признакам его воздействия на пылевую структуру [24]. В данной работе наблюдалось аналогичное воздействие. На рисунке 2б показаны фрагменты изображений пылевого облака из частиц микронного размера около диафрагмы (5), расположенной над полым катодом, полученные при разных значениях токов разряда. Отверстие диафрагмы показано белым цветом. Образование устойчивых пылевых структур вокруг диафрагм и вблизи полого катода в различных газах и их смесях при давлении свыше 0.1 Тор (13.3 Па) в разрядах аналогичного диаметра наблюдалось ранее [25]. В работе [25] описан (обнаружен) похожий характер изменения формы пылевой структуры в зависимости от величины тока разряда при постоянном давлении и при изменении давления при постоянном токе.

Рис. 2. Вольт-амперная характеристика (а): разряда (1), положительного столба (2), положительного столба расчёт (3), ток перехода к нормальному разряду (4) при $P = 18,7$ Па и $T = 295$ К и изображения пылевых структур (аксиальное сечение) для соответствующих значений тока разряда (б)

По-видимому, электронный пучок выталкивает пылевые частицы из центра на периферию пылевой структуры, в результате чего образуется тёмная область (полость) в центре изображения пылевой структуры. Видно, что с ростом тока размер полости увеличивается. Наблюдаемое увеличение угла рассеяния пучка (рис. 2б) указывает на усиление его рассеяния, связанное с уменьшением доли и энергии электронов пучка при

увеличении тока разряда, что соответствует падению напряжения на разряде и в катодном слое.

Наблюдаемое отклонение поведения ВАХ в положительном столбе от теории Шоттки объясняет немонотонный характер поведения зависимости напряжённости электрического поля от температуры в области малых токов разряда. Из рисунка 3а видно, что при охлаждении ВАХ нормального разряда сдвигаются вдоль траектории (линии трансформации) соответствующей пунктирной линии 2 практически с сохранением вида зависимости. Если предположить, что эта траектория для значения тока I_2 соответствует линейной температурной шкале охлаждения, то получим (восстановленную) линейно растущую зависимость напряжённости электрического поля (напряжения) при уменьшении температуры (рис. 3б). Как правило, для области параметров нормального разряда при фиксированном давлении газа трансформация происходит вдоль траектории одинаковой длины.

Рис. 3. Вольт-амперная характеристика разряда между измерительными электродами в положительном столбе (а) для $T = 295$ К (круги) и $T = 77$ К (квадраты) и изменение напряжённости продольного электрического поля разряда в процессе охлаждения (б) при соответствующих токах разряда I_1 (пунктир) и I_2 (сплошная линия) при $P = 61$ Па

Обнаружено, что смещение ВАХ вдоль линии трансформации при фиксированном значении тока при охлаждении может приводить к смене механизма горения разряда. Для малых токов разряда, например при значении I_1 , зависимость напряжённости электрического поля при сдвиге вдоль траектории 1 имеет спадающий участок, соответствующий в определённом температурном диапазоне переходу от поднормального разряда к нормальному, что качественно соответствует наблюдаемому падению напряжения на рис. 1б, полученному при других параметрах разряда.

В области поднормального разряда линии трансформации электрического поля при понижении температуры, вероятно, имеют одинаковый наклон, но разную длину, что связано с сильной зависимостью элементарных процессов в плазме от температуры и тока разряда. Область изменения температуры перехода к нормальному разряду различна для разных начальных параметров плазмы. Таким образом, при охлаждении газа трансформация ВАХ происходит по траектории, описываемой отношением изменения величины электрического поля к изменению величины тока разряда, это значение задаёт угол наклона и длину траекторий смещения ВАХ (рис. 4а). В исследуемом диапазоне давлений газа этот наклон отрицательный, а длина траекторий зависит от давления и тока разряда.

Рис. 4. Траектории границы (а) и параметры разряда на границе (б) нормального разряда при $T = 295$ К (круги) и $T = 77$ К (квадраты) для разных давлений неона P , Па: 18,7 (1), 37,4(2), 61(3), 72 (4), 133 (5), 187(6)

Параметры точки перехода к нормальному разряду зависят от давления газа (рис. 4б), а граница перехода к нормальному разряду при охлаждении сдвигается в область меньших токов, что сопровождается увеличением напряжённости электрического поля (рис. 4б).

Несмотря на то, что при охлаждении разряда в общем наблюдается растущий характер изменения напряжённости электрического поля, величина приведённой напряжённости электрического поля ниже при криогенной температуре, чем при комнатной, во всем исследуемом диапазоне тока разряда и давления неона [10, 23]. Эта закономерность также сохраняется для поведения зависимостей значений приведённого поля на границе нормального разряда от давления и от концентрации газа (рис. 5). При увеличении концентрации газа зависимость приведённого поля от нее ослабевает и при охлаждении выходит на насыщение.

Рис. 5. Приведённая напряжённость электрического поля на границе нормального разряда в зависимости от: давления P (а) и концентрации неона N (б) при температуре 77 К (квадраты) и 295 К (круги)

Заключение

При низких температурах обнаружены области положительного столба разряда, где наблюдаются отклонения поведения ВАХ от теории Шоттки и переходы между различными формами разряда. Обнаружено, что в исследованном диапазоне давлений при охлаждении разряда граница перехода к нормальному разряду смещается в область меньших токов, напряжённость электрического поля в положительном столбе разряда увеличивается, а величина приведённой напряжённости электрического поля уменьшается. Результаты работы могут быть использованы для создания моделей плазмы разряда при низких и криогенных температурах.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 16-02-00991).

Литература

1. Bessarabov A., Ivanov M., Kvasyuk A., Stepanova T., Vendilo A. Plasma-Cryogenic Synthesis of the High Purity Nanomaterials // Chem. Eng. Trans. – 2013. – Vol. 32. – P. 2281–2286.
2. Бессарабов А.М., Квасюк А.В., Кочетыгов А.Л., Иванов М.Я. Плазменно-криогенный синтез нанодисперсных порошков // Вестник СГТУ. – 2012. – Т. 64, № 1 (2). – С. 221–225.
3. Miyazaki S., Shin H., Okamoto K. and Hirose M. Wide-gap polysilane produced by plasma-enhanced CVD at cryogenic temperatures // MRS Proceedings. – Cambridge University Press, 1992. – Vol. 242. – P. 681–686.
4. Iacopi F., Choi J. H., Terashima K., Rice P. M. and Dubois G. Cryogenic plasmas for controlled processing of nanoporous materials // Phys. Chem. Chem. Phys. – 2011. – Vol. 13. – P. 3634–3637.
5. Dussart R., Tillocher T., Lefauchaux P. and Boufnichel M. Plasma cryogenic etching of silicon: from the early days to today's advanced technologies // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2014. – Vol. 47. – 123001.
6. Cavarroc M., Mikikian M., Couedel L., Boufendi L. Formation of Single-crystal Silicon Nanoparticles at Very Low Gas Temperature in a RF Silane-based Discharge // Europhysics Conference Abstracts. – 2006. – Vol. 30 (I). – 4.043.
7. Asinovskii E.I., Kirillin A.V., Markovets V.V. Plasma coagulation of microparticles on cooling of glow discharge by liquid helium // Phys. Lett. A. – 2006. – Vol. 350. – P. 126–128.
8. Fortov V.E., Ivlev A.V., Khrapak S.A., Khrapak A.G., Morfill G.E. Complex (dusty) plasmas: Current status, open issues, perspectives // Phys. Rep. – 2005. – Vol. 421. – P. 1–103.
9. Ishihara O. Low-dimensional structures in a complex cryogenic plasma // Plasma Phys. Control. Fusion. – 2012. – Vol. 54. – 124020.
10. Polyakov D.N., Vasilyak L.M., and Shumova V.V. Synergetics of Dusty Plasma and Technological Aspects of the Application of Cryogenic Dusty Plasma // Surf. Eng. Appl. Elect. – 2015. – Vol. 51, № 2. – P. 143–151.
11. Boufendi L., Jouanny M.Ch., Kovacevic E., Berndt J. and Mikikian M. Dusty Plasma for Nanotechnology // J. Phys. D: Appl. Phys. – 2011. – Vol. 44. – 174035.
12. Wattieaux G. and Boufendi L. Discharge impedance evolution, stray capacitance effect, and correlation with the particles size in a dusty plasma // Phys. Plasmas. – 2012. – Vol. 19. – 033701.
13. Michau A., Lombardi G., Colina Delacqua L., Redolfi M., Arnas C., Jestin P., Bonnin X., Hassouni K. Field Reversal and Particle Growth in DC Discharge // Plasma Chem. Plasma Process. – 2012. – Vol. 32. – P. 451–470.
15. Sukhinin G. I. and Fedoseev A. V., Antipov S. N., Petrov O. F., and Fortov V. E. Dust particle radial confinement in a dc glow discharge // Phys. Rev. E – 2013. – Vol. 87. – 013101.
16. Kumar K., Couedel L., Arnas C. Nanoparticles in direct-current discharges: Growth and electrostatic coupling // Journal of Plasma Physics. – 2014. – Vol. 80, № 6. – P. 849–854.
17. Abbas Q.A. Perturbation of the cathode Sheath Characteristics by ALO Dust Particles in magnetized Plasma // International Journal of Application or Innovation in Engineering & Management (IJAEM). – 2013. – Vol. 2, Issue 12. – P. 470–478.
18. Vasilyak L., Polyakov D., Shumova V. Glow Discharge Positive Column with Dust Particles in Neon // Contrib. Plasma Phys. – 2013. – Vol. 53, № 4–5. – P. 432–435.
19. Поляков Д.Н., Шумова В.В., Василяк Л.М. Положительный столб тлеющего разряда в неоне с заряженными микрочастицами // Успехи прикладной физики. – 2016. – Т. 4, № 4. – С. 362–371.

20. Mašek K., Peřina V. Influence of neutral gas cooling on longitudinal electric field in neon and helium discharge // Czech. J. Phys. B – 1967. – Vol. 17, Issue 2. – P. 198–201.
21. Асиновский Э.И., Кириллин А.В., Раковец А.А. Криогенные разряды. – М.: Наука, 1988. – 64 с.
22. Golyatina R.I., Maiorov S.A. On ion temperature in cryogenic discharge // Bulletin of the Lebedev Physics Institute. – 2016. – Vol. 43, № 8. – P. 237–241.
23. Polyakov D.N., Shumova V.V., Vasilyak L.M. Formation of structures from dusty clusters in cryogenic plasma of glow discharge // 2014 IEEE ICOPS/BEAMS Proceedings – P. 670–674.
24. Vasilyak L.M., Vasilev M.N., Vetchinin S.P., Polyakov D.N., Fortov V.E. The Action of an Electron Beam on Dust Structures in a Plasma // J. Exp. Theor. Phys. – 2003. – Vol. 96, № 3. – P. 440–443.
25. Vasilyak L.M., Vetchinin S.P., Nefedov A.P., and Polyakov D.N. Ordered Structures of Microparticle in a Glow Discharge // High Temp. – 2000. – Vol. 38, № 5. – P. 675–679.

Поступила в редакцию 21 октября 2016 г.

УДК 537.525

DOI: 10.21779/2542-0321-2016-31-4-49-56

Glow DC discharge at cryogenic cooling
D.N. Polyakov, V.V. Shumova, L.M. Vasilyak

Joint Institute for High Temperatures RAS; Russia, 125412, Moscow, Izhorskaya st., 13; bd.2; cryolab@ihed.ras.ru

The article presents the results of experiments investigating the electrical characteristics of the DC discharge with hollow cathode in neon and the discharge parameters on the boundary of the transition to normal discharge at room gas temperature and the boiling point of liquid nitrogen at a pressure of neon $P=18-187$ Pa and discharge currents of $I=0.01-3.5$ mA. The nature of the transformation of the border of the transition to a normal discharge under cooling was investigated. It was discovered that the nature of change in the CVC of the discharge at cooling from room temperature to the temperature of liquid nitrogen at the same pressure is analogous to the change in the CVC observed with increasing gas pressure at room temperature. At constant temperature and discharge current with gas pressure increase the increase in the voltage on the discharge and the increase of the electric field in the positive column of the discharge was observed.

At small discharge current (about 1 mA), the value of which was determined by the gas pressure the deviations in behavior of CVC of positive column of discharge from the Schottky's theory were detected. When the gas was cooled, the transformation of the CVC followed the trajectory described by the ratio of change in magnitude of the electric field to the change of the value of the discharge current. In the investigated range of gas pressures the slope of the trajectory was negative, and its length depended on the pressure and could be different at different value of discharge current. In the cooling mode at a certain constant value of the discharge current, the change in gas temperature resulted in the change of the discharge mechanism, where non-monotonic dependence of the voltage on the discharge column upon temperature was observed. When cooled, the boundary of the transition to the normal discharge shifted to the lower currents, the electric field in the positive column of the discharge and on the border of the transition to a normal discharge increased, and the magnitude of the reduced electric field strength decreased in all the studied range of the discharge current, pressure and the concentration of neon.

Keywords: *glow discharge, current-voltage characteristic, cryogenic temperatures.*

Received 21 October, 2016