

## КИНЕТИКА ТЕРМОЭМИССИИ ИЗ ЧАСТИЦЫ АЭРОЗОЛЯ

*H. H. Белов*

*(Москва)*

Один из механизмов поставки «затравочных» электронов в ходе развития плазмы оптического разряда — термоэлектронная эмиссия (ТЭЭ) с поверхности мишени [1]. В [1] изучен случай массивной мишени. В настоящей работе исследованы особенности ТЭЭ из частиц аэрозоля, которые можно рассматривать как изолированные мишени. Для них характерно увеличение задерживающего электростатического поля по мере увеличения эмиттированного заряда [2].

**1. Постановка задачи.** При ТЭЭ в аэрозоле стационарное состояние достигается в результате обмена электронами между частицами [2]. Характерное время достижения термоэмиссионного равновесия в аэрозоле составляет  $> 10^{-6}$  с [2]. Таким образом, при  $t \leq 10^{-6}$  с задача ТЭЭ в аэрозоле сводится к ТЭЭ из отдельной частицы.

В воздухе при нормальных условиях для мелкодисперсной фракции аэрозоля длина свободного пробега электрона в газе, окружающем частицу, значительно превосходит размеры частицы. И хотя с ростом радиуса частицы это соотношение нарушается, процесс ТЭЭ из отдельной вакуумированной частицы можно рассматривать как первое приближение для многих реальных ситуаций. Пусть температура поверхности сферической частицы изменяется в соответствии с формулой

$$(1.1) \quad T = T_0 + (T_k - T_0)[1 - \exp(-kt/\tau)],$$

пригодной для описания влияния процессов теплоотдачи от частицы с внутренними источниками тепла. Если пренебречь влиянием теплоотдачи от частицы, то изменение во времени температуры поверхности частицы можно аппроксимировать модельными зависимостями типа

$$(1.2) \quad T = T_0 + (T_k - T_0)(t/\tau)^s.$$

Формулы (1.1) и (1.2) моделируют кинетику температуры частицы наиболее важных типов разогрева частицы, например, за счет поглощения электромагнитного излучения. Зависимость (1.2) при  $s = 1$  соответствует разогреву частицы в случае, если теплоемкость  $C$  частицы и подводимая к частице мощность  $W$  не зависят от времени. При  $s = 2$  формула (1.2) описывает линейное нарастание  $W$  во времени при  $C = \text{const}$ . Можно указать реальные аналоги для других значений констант (1.1) и (1.2). В качестве верхней границы температуры  $T_k$  нагреваемой частицы целесообразно выбрать температуру кипения  $T_v$  материала частицы. Это обусловлено тем, что большинство процессов нелинейной оптики предполагает высокотемпературный разогрев частиц до  $T_v$ . С другой стороны, роль ТЭЭ в зарядке частицы при температурах, больших  $T_v$ , снижает биполярная ионизация продуктов испарения.

**2. Методы численного исследования зарядки частиц.** Кинетику изменения заряда  $z$  частицы описывает система уравнений

$$(2.1) \quad J \equiv dz/dt = 4\pi a^2 e^{-1} j;$$

$$(2.2) \quad T = T(t),$$

где  $J$  — поток электронов ТЭЭ с поверхности частицы;  $j$  — плотность тока с единицы поверхности частицы, определяемая формулой Ричардсона — Дешмана

$$(2.3) \quad j = 4\pi m e (k_b T)^2 h^{-3} \exp(-A/k_b T);$$

$a$  — радиус частицы;  $m$ ,  $e$  — масса и заряд электрона;  $h$  и  $k_b$  — постоянные Планка и Больцмана;  $A$  — работа выхода электрона из частицы. Ниже в качестве (2.2) используется одна из формул (1.1) и (1.2). Величина  $z$  указывает число и знак нескомпенсированных элементарных зарядов частицы ( $z > 0$  для положительно заряженной частицы). Поверх-

ность частицы покидает любой электрон, кинетическая энергия которого на границе частицы превосходит работу выхода  $A_0$  из вещества частицы. На электрон, покидающий заряженную частицу, действует задерживающее кулоновское поле. Поток ТЭЭ из частицы образуют электроны, энергия которых превышает эффективную  $A$  [2]:

$$(2.4) \quad A = A_0 + e^2 z a^{-1}.$$

Поставленная задача сводится к задаче Коши, заключающейся в решении линейного обыкновенного дифференциального уравнения  $dz/dt = f(z, t)$  на интервале времени  $t \in [0, \tau]$  при начальном условии  $z(0) = z_0$ . В данной работе эта задача решалась численно. К ее решению привлечены метод Эйлера, исправленный метод Эйлера, метод Рунге–Кутта четвертого порядка, экстраполяционный метод Адамса первого порядка, интерполяционный метод Адамса и разностная аппроксимация метода Пикара [3–6] с использованием представления (2.1) в конечных разностях:

$$z_{n+1} = z_n + \Delta\tau \left[ \sum_{i=1}^k \varphi_i(\tau_m, z_m) \right]$$

( $\tau_m$  — сетка по времени с шагом  $\Delta\tau$ ,  $z_m$  — сеточная функция заряда). Вид и число функций, применяемых в конечно-разностном уравнении, описаны в [3–6] для каждого из методов решения дифференциального уравнения (2.1). Кинетика зарядки рассчитывалась с шагом  $10^{-8}$  с в интервале времени  $[0, 1 \text{ мкс}]$ , за который частица разогревается от 300 К до температуры кипения вещества частицы. Расчеты проведены для частиц алюминия, меди, железа, серебра, золота, вольфрама и молибдена радиусом от  $10^{-6}$  до  $0,1$  см (см. таблицу). Результаты, рассчитанные методом Пикара для начального этапа процесса, согласуются до второго — третьего знака с полученными остальными методами. Однако начиная с  $t = 0,3$ — $0,5$  мкс ошибка расчета методом Пикара быстро возрастает, увеличиваясь до сотен и тысяч процентов к  $t = 10^{-6}$  с. По-видимому, это обусловлено тем, что начальное приближение первой итерации ( $i = 0$ ,  $z_n = z_0$ ) существенно далеко от окончательного решения. В то же время результаты расчета методами Эйлера, Рунге — Кутта и Адамса хорошо согласуются между собой. Например, при  $k = 1$  в (1.1) для частиц алюминия радиусом  $0,1$  см они совпадают между собой лучше, чем до третьего знака. Некоторое различие в значениях  $z_n$  в области наибольшего роста температуры (при равенстве  $dz/dt$  лучше, чем до третьего знака) обусловлено различием разностных схем этих методов, на что указывает быстрое улучшение согласия между ними по мере уменьшения шага разбиения временной сетки. Высокую надежность разработанной программы подтвердило также совпадение результатов численного дифференцирования задачи с результатами, найденными аналитическими методами (см. (3.1)) при  $T = \text{const}$ . Расчеты показали, что распределения во времени потока ТЭЭ из частиц разных металлов при одинаковых зависимостях  $T(t)$  весьма сходны (рис. 1).

На рис. 1 приведены результаты расчета изменения во времени потока электронов из частиц ( $a = 10^{-5}$  см) алюминия — кривые 7, 11, железа — 4, 10, меди — 3, серебра — 8, 12, золота — 9, вольфрама — 1, 5, молибдена — 2, 6. Изменение во времени температуры частиц рассчитано по (1.2) при  $s = 0,5$  (кривые 1—4, 7, 8) или при  $s = 2$  (кривые 9—12, 5, 6). Одно деление по оси ординат для линий 1—4, 7, 8 отвечает  $10^8 \text{ с}^{-1}$ , а для 9—12, 5, 6 —  $2 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$ . Видно, что частицы разных металлов дают близкие термоэмиссионные кривые. В то же время смена вида кинетики разогрева существенно изменяет вид зависимости  $J(t)$  для любой рассматриваемой частицы. Максимум потока электронов приходится на начало высокотемпературной части греющего импульса. В большинстве случаев на завершающей стадии импульса быстрорастущее кулоновское поле в основном блокирует эмиссию. Заряд  $z_k$ , который достигается на частице к концу импульса, определяется в первую очередь температурой частицы

Номер кривой на рис. 1	Металлы	$T_v$ , К [9]	$A_0, 6 \text{ эВ}$ [10]
6	Молибден	5073	4,3
7	Вольфрам	6173	4,54
8	Золото	3120	4,3
9	Серебро	2436	4,3
10	Железо	3443	4,31
11	Медь	3150	4,4
12	Алюминий	2621	4,25

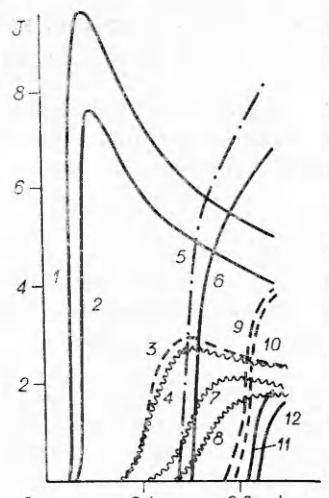


Рис. 1

к концу импульса и слабо зависит от  $T(t)$ . Это положение иллюстрирует рис. 2, где показано изменение  $z_k$  с уменьшением времени  $t_m$  релаксации температуры частицы к конечному значению  $T_v$  (при увеличении  $k$  в (1.1)  $t_m$  уменьшается). Данные рис. 2 получены для частиц молибдена, меди, железа и алюминия (линии 1—4) радиусом 0,1 см, нагреваемых до температуры кипения соответствующего вещества за  $10^{-6}$  с. Видно, что для  $k \geq 3$  значение  $z_k$  практически не зависит от темпа разогрева частиц.

Рис. 3 дает представление о зависимости  $z_k$  от конечной температуры вещества частицы металла радиусом 0,1 см, в его масштабе различия в  $z_k$  частиц одного радиуса, но разных металлов (алюминий, медь, железо, серебро, золото) незаметны. Поэтому кривые можно использовать для оценки заряда любого из этих металлов. Кривая 3 получена в результате численного решения системы (1.1), (2.1)–(2.4) для частиц указанных металлов, нагреваемых за  $10^{-6}$  с от 300 К до конечной температуры  $T$  (ось абсцисс на рис. 3) при  $k = 5,7$  и 10. Видно, что в области высоких температур зависимость  $z(T_k)$  становится почти линейной, тогда как при низких температурах она имеет экспоненциальный характер.

3. На  $z_k$  весьма существенно влияет радиус частицы. На рис. 4 кривая 4 — зависимость  $z_k(a)$ , полученная решением системы уравнений (1.1), (2.1)–(2.4) для молибденовых частиц, нагреваемых от  $T_0 = 300$  К до  $T_v$  за время  $10^{-6}$  с ( $k = 1$ ). Видно, что для функции  $z_k(a)$  пригодна линейная аппроксимация — заряд пропорционален радиусу частицы. Поток ТЭЭ из частицы также пропорционален ее радиусу (при прочих равных условиях). Отметим, что при  $T(t) = \text{const}$  у системы (2.1)–(2.4) есть

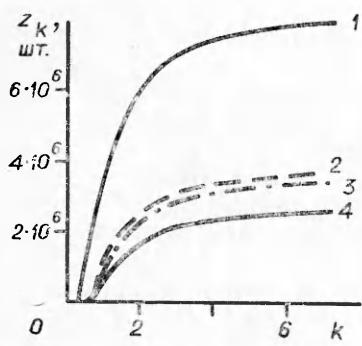


Рис. 2

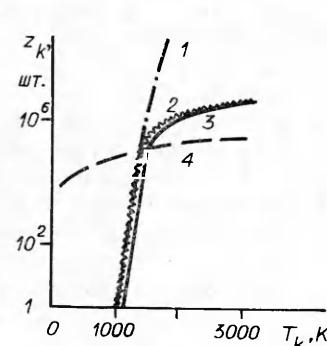


Рис. 3

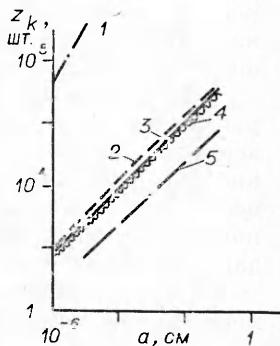


Рис. 4

аналитическое решение, которое при начальном условии  $z_0 = 0$  имеет вид  
(3.1) 
$$z(t) = ak_b Te^{-2} \ln [BatT \exp (-A_0/k_b T) + 1]$$

( $B = mk_b(4\pi e)^2 h^{-3}$ ). В единицах CGS  $B = 1,575004 \cdot 10^{19}$ . Если выражение под знаком логарифма мало отличается от единицы, то заряд пропорционален площади частицы:

$$(3.2) \quad z_1(t) = Btk_b(aT)^2 e^{-2} \exp (-A_0/k_b T).$$

Если же выражение под знаком логарифма значительно превосходит единицу, то зависимость заряда частицы от ее радиуса отличается от линейной на логарифмически малую добавку:

$$(3.3) \quad z_2(t) = ak_b Te^{-2} [-A_0/k_b T + \ln (BatT)].$$

Результаты численных расчетов  $z_k$  весьма удовлетворительно согласуются с результатами расчета  $z_k$  по формуле (3.1) при  $T = T_k$  и  $t = \tau$ . Результаты расчета  $z_k$  по (3.1) и (3.2) на рис. 3 представляют кривые 1 и 2, а по (3.3) — кривая 2 при  $T \geq 1500$  К. Видно, что (3.1) дает удовлетворительную оценку заряда частицы во всей области температур, (3.2) — при низких, а (3.3) — при высоких температурах. На рис. 3 (кривая 4) приведена также оценка зависимости заряда частиц по формуле

$$(3.4) \quad z = ak_b Te^{-2}.$$

Видно, что эта оценка, как правило, дает слишком большую ошибку. На рис. 4 результаты численного нахождения  $z_k(a)$  (кривая 4) сопоставлены с результатами расчета по формулам (3.1)–(3.4) — линии 2, 1, 3, 5. Кривая 1 значительно удалена от точного решения из-за того, что при рассматриваемой температуре непригодно низкотемпературное приближение (3.2). Из (3.1) следует, что если температура частицы неизменна, то:  
а)  $z$  логарифмически слабо зависит от времени, б)  $z$  пропорционален радиусу и температуре частицы (с точностью до логарифмически слабой добавки). Данные, приведенные выше, показывают, что эти особенности присущи решению  $z(t)$  системы (2.1)–(2.4) при  $T(t) \neq \text{const}$ , если начиная с некоторого момента нарастание  $T$  становится пренебрежимо мало. Таким образом, формулу (3.1) можно применять для оценки заряда частицы, подставляя в нее максимальное значение температуры частицы. Оценкой по (3.1) можно пользоваться в случае, если время  $t$  экспозиции частицы при высокой  $T$  превосходит время достижения квазиравновесного заряда

$$t_z = e^{-2} h^3 (4\pi)^{-2} (ak_b m T)^{-1} \exp (A_0/k_b T).$$

**4. Поглощение электромагнитного излучения прыгающими электронами.** Границы частицы непрерывно пересекают электроны, вылетающие из частицы. Этот поток электронов можно разбить на две группы. В первой группе объединим электроны, энергия  $\epsilon$  которых достаточна для преодоления эффективной работы выхода  $\epsilon > A$ . Этот электронный поток  $J$  и составляет собственно термоэлектронную эмиссию из частиц, рассмотренную выше. Плотность тока термоэлектронной эмиссии находится из формулы Ричардсона — Дешмана (2.3), в которой работа выхода  $A$  определена уравнением (1.1).

Ко второй группе отнесем электроны с энергией  $\epsilon \in [A_0, A]$ , характерная особенность их движения — возврат каждого из них на поверхность частицы, спустя некоторое время после выхода из частицы. Таким образом, электроны этой группы можно назвать прыгающими. В процессе своего движения над поверхностью частицы прыгающие электроны поглощают часть падающего излучения, которую затем при падении передают частице.

Оценить число этих электронов, покидающих частицу в единицу времени, можно по формуле

$$J_p = [1 - \exp (-e^2 z / ak_b T)] (4\pi ak_b)^2 m h^{-3} \exp (-A_0/k_b T) T^2 t.$$

Каждый прыгающий электрон отбирает от электромагнитного поля и передает частице некоторую энергию  $\Delta\epsilon$ . По аналогии с обратным тормозным излучением [7, с. 21] можно сказать, что один прыжок электрона в поле заряженной частицы увеличивает его энергию на

$$\Delta\epsilon = 2\epsilon_k \omega^2 (\omega^2 + t_p^{-2})^{-1},$$

где  $\epsilon_k = e^2 E_0^2 / (2m\omega^2)$  — кинетическая энергия колебаний электрона в ЭМ-поле напряженностью  $E_0$ ;  $\omega$  — круговая частота ЭМ-поля;  $t_p$  — время движения электрона в кулоновском поле частицы. Энергия, отбираемая прыгающими электронами у ЭМ-поля, расходуется на нагрев частицы при захвате электрона в конце траектории или на ионизацию молекул газа, окружающего частицу. Оба эти канала преобразования энергии падающего излучения ведут к развитию оптического разряда (первый — по механизму теплового взрыва частицы, второй — традиционным механизмом лавинной ионизации, в котором заряженная частица играет роль основного рассеивателя [8]). Элементарные оценки в условиях, характерных для развития оптического разряда под действием коротких ИК-импульсов, показывают, что несколько финитных электронов, резонансных по отношению к частоте лазерного излучения, сообщают субмикронной частице энергию, достаточную для теплового взрыва. Число  $N$  таких электронов, необходимых для теплового взрыва частицы, можно оценить следующим образом:

$$(4.1) \quad N = (4/3)\pi a^3 C \gamma T_v t_p (\Delta\epsilon)^{-1}$$

( $C$ ,  $\gamma$ ,  $T_v$  — теплоемкость, плотность и температура кипения вещества частицы радиуса  $a$ ). Согласно (4.1), частицу радиусом  $10^{-8}$  м ( $C = 1$  Дж/град,  $\gamma = 1$  г/см<sup>3</sup> и  $T_v = 3 \cdot 10^3$  К), находящуюся в поле излучения с  $\lambda = 10,6$  мкм ( $\tau = 10^{-6}$  с,  $I = 10^8$  Вт/см<sup>2</sup>), нагревают до  $T_v \sim 3 \cdot 10^3$  три прыгающих электрона, если время их прыжка  $t_p \approx (5-6) \times 10^{-15}$  с. Поскольку при начальной температуре частицы ( $\sim 300$  К) термоэмиссия из частицы пренебрежимо мала, то развитию термоэмиссионной неустойчивости предшествует разогрев частицы за счет собственного поглощения излучения веществом частицы либо автоэлектронная или многофотонная эмиссия электронов в начале воздействия электромагнитного излучения на частицу.

#### ЛИТЕРАТУРА

- Бочков Н. В., Четверушкин Б. И. Об одном алгоритме численного решения уравнений кинетики пробоя.— М., 1985.— (Препр./Ин-т прикл. математики АН СССР; № 123).
- Аршинков А. А., Мусин А. К. Равновесная ионизация в дисперсных системах // РЭ.— 1962.— Т. 7, № 5.
- Самарский А. А. Теория разностных схем.— М.: Наука, 1977.
- Рихтмайер Р. Д. Разностные методы решения краевых задач.— М.: ИЛ, 1969.
- Волков Е. А. Численные методы.— М.: Наука, 1982.
- Иотягайло А. Ю. Введение в численные методы решения задач теплопроводности и диффузии.— Л.: ЛИТМО, 1982.
- Райзэр Ю. П. Лазерная искра и распространение разрядов.— М.: Наука, 1974.
- Белов Н. И. Термоэлектронная эмиссия из частиц металлов // Тез. докл. 14-й Все-союз. конф. «Актуальные вопросы физики аэродисперсных систем».— Одесса: ОГУ им. И. И. Мечникова, 1986.— Т. 2.
- Справочник химика.— М.; Л.: ГНТИ, 1962.— Т. 1.
- Фоменко В. С., Подчерняева И. П. Эмиссионные и адсорбционные свойства веществ и материалов— М.: Атомиздат, 1975.

*Поступила 12/XI 1987 г.,  
в окончательном варианте — 2/II 1988 г.*