УДК 537.525:621.327.53

МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ СПЕКТРОВ ИОНОВ И БЫСТРЫХ АТОМОВ У ПОВЕРХНОСТИ ЭЛЕКТРОДА В СЛАБОТОЧНОМ РАЗРЯДЕ В СМЕСИ АРГОНА С ПАРАМИ РТУТИ

© 2019 г. Д. О. Савичкин¹, В. И. Кристя^{1, *}

¹ Московский государственный технический университет имени Н.Э. Баумана, Калужский филиал, 248000 Калуга, Россия *E-mail: kristya@bmstu-kaluga.ru Поступила в редакцию 14.01.2018 г. После доработки 17.02.2018 г. Принята к публикации 20.02.2018 г.

Проведено моделирование методом Монте-Карло движения ионов и быстрых атомов в слаботочном разряде в смеси аргон—ртуть, используемой в газоразрядных осветительных лампах. Так как на этапе зажигания разряда относительное содержание ртути в смеси мало́, были приняты во внимание столкновения быстрых частиц только с медленными атомами аргона. Рассчитаны энергетические спектры потоков ионов и быстрых атомов, бомбардирующих поверхность катода. Показано, что распределение по энергии ионов ртути существенно отличается от найденного ранее из аналитической модели, основанной на использовании приближения непрерывного торможения ионов ртути в аргоне. Вычислены эффективные коэффициенты распыления вольфрамового катода ионами обоих типов и быстрыми атомами, а также плотности потоков распыленных атомов как функции приведенной напряженности электрического поля в разрядном промежутке. Установлено, что при малом содержании атомов ртути в смеси порядка 10^{-3} катод распыляется, главным образом, ионами ртути, причем их вклад в распыление уменьшается при увеличении приведенной напряженности электрического поля и снижении температуры смеси.

Ключевые слова: газоразрядная осветительная лампа, слаботочный разряд, смесь аргон-ртуть, метод Монте-Карло, энергетические спектры ионов и атомов, распыление поверхности катода. **DOI:** 10.1134/S0207352819020112

введение

В газоразрядных осветительных лампах многих типов в качестве рабочего газа используют смесь аргона с парами ртути [1, 2], в которой концентрация атомов аргона не зависит от температуры, а концентрация атомов ртути возрастает с ее увеличением. После включения лампы происходит пробой рабочего газа между ее электродами, и зажигается слаботочный разряд, который затем переходит в тлеющий разряд, а после нагрева электродов и начала термической эмиссии с них – в дуговой разряд. Наиболее интенсивное распыление эмиссионного вещества с поверхности катода бомбардирующими его ионами и атомами, ограничивающее долговечность лампы, реализуется до перехода разряда в дуговую форму (так как долговечность лампы в непрерывном режиме работы значительно больше, чем в режиме ее периодического включения и отключения [3]).

При протекании тока в смеси аргон-ртуть кроме прямой ионизации атомов газов электронами происходит также ионизация атомов ртути при столкновениях с метастабильными возбужденными атомами аргона (реакция Пеннинга) [4, 5]. Поэтому плотность потока ионов ртути на катод на этапе зажигания лампы увеличивается с возрастанием температуры окружающей среды вследствие увеличения их концентрации в разрядном объеме, т.е. они могут вносить существенный вклад в распыление электродов лампы. Распределения ионов компонентов смеси аргонртуть по энергии в слаботочном разряде рассчитывали в [6]. Однако при описании движения ионов ртути в аргоне использовали приближение их непрерывного торможения, не учитывающее стохастический характер ионно-атомных столкновений, в рамках которого можно лишь приближенно рассчитать энергию ионов ртути у катода, а, следовательно, и их вклад в его распыление. Кроме того, в [6] не найдены энергетические спектры быстрых атомов, образующихся при перезарядке и упругом рассеянии ионов на медленных (тепловых) атомах аргона, которые могут существенно влиять на интенсивность распыления катода.

Энергетические распределения ионов и быстрых атомов в газовом разряде и их вклад в распыление катода изучены ранее в достаточно большом числе работ как экспериментальными, так и теоретическими методами (основанными на решении соответствующего кинетического уравнения или на численном моделировании движения частиц в газе с использованием метода Монте-Карло). Однако рассматривали, как правило, разряды в чистых инертных газах [7–12] или в их смесях [13–15], состав которых не зависит от температуры. Для разряда же в смеси аргон–ртуть с зависящим от температуры составом и наличием пеннинговской ионизации атомов ртути этот вопрос до настоящего времени не исследован.

В настоящей работе с использованием метода статистического моделирования Монте-Карло рассчитаны распределения по энергии потоков ионов и быстрых атомов у поверхности катода в слаботочном разряде в смеси аргон-ртуть и рассчитаны вклады основных типов частиц, бомбардирующих катод, в его распыление.

ОПИСАНИЕ МАТЕМАТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ

Пусть к промежутку длиной *d* между плоскими электродами, заполненному смесью аргона с концентрацией $n_{\rm Ar}$ и насыщенными парами ртути с концентрацией $n_{\rm Hg}$, приложено напряжение *U*, достаточное для возникновения слаботочного (таунсендовского) разряда. Если поперечные размеры электродов намного больше *d*, а ось *z* направлена перпендикулярно их поверхности, то, поскольку в таком разряде объемный заряд достаточно мал [16], электрическое поле во всех точках направлено параллельно оси *z*, и его напряженность равна E = U/d.

Ионы аргона образуются в разрядном промежутке в результате ионизации атомов аргона электронами, ускоряемыми полем к аноду, а ионы ртути — в результате ионизации атомов ртути электронами и метастабильными возбужденными атомами аргона. Количество таких ионов Δn_{iAr} и Δn_{iHg} , образующихся в единицу времени в единице разрядного объема в каждом из *s* интервалов длиной $\Delta z = d/s$, на которые разбивается межэлектродный промежуток, может быть рассчитано с использованием гибридной модели слаботочного разряда в смеси аргон-ртуть [17-19]. Под действием поля ионы двигаются к катоду, сталкиваясь с атомами рабочей смеси. При столкновении иона с атомом собственного газа может происходить резонансная перезарядка иона на атоме. В результате возникает медленный ион, скорость которого составляет доли эВ и может считаться равной нулю, и быстрый атом, энергия которого равна энергии иона в момент перезарядки. Кроме перезарядки может происходить упругое рассеяние ионов и быстрых атомов на медленных атомах, в результате которого они теряют часть энергии, а медленные атомы становятся быстрыми, т.е. в результате каждого упругого столкновения образуется новый быстрый атом. Между столкновениями с медленными атомами быстрые атомы двигаются прямолинейно и равномерно.

Так как относительное содержание ртути в колбе лампы на стадии ее зажигания обычно мало $(n_{\rm Ar}/n_{\rm Hg} = 10^{-5} - 10^{-2})$ [4, 19], можно принимать во внимание только столкновения ионов и быстрых атомов с атомами аргона. Следовательно, можно считать, что в рассматриваемой смеси катод бомбардируют ионы аргона и ртути, а также быстрые атомы аргона.

Расстояния, проходимые частицами между столкновениями, тип и характеристики столкновений носят вероятностный характер. Поэтому в настоящей работе моделирование их движения в разрядном объеме осуществлялось с использованием метода статистического моделирования Монте-Карло. Расчет траектории каждой быстрой частицы производился, начиная с точки ее возникновения, путем решения уравнения ее движения последовательно на каждом временном шаге Δt . Величина шага выбиралась достаточно малой, чтобы длина проходимого частицей за время Δt участка траектории была много меньше средней длины ее пробега между столкновениями с атомами смеси. Происходит ли столкновение частицы с атомом на таком участке, тип столкновения, а также направление движения и энергию частицы є после столкновения определяли из соответствующих формул теории столкновений с использованием случайных чисел [10]. Использовали энергетические зависимости сечений перезарядки ионов аргона на атомах аргона и упругого рассеяния ионов и атомов аргона на атомах аргона (которое считалось изотропным) из [20]. Сечение же изотропного упругого рассеяния ионов ртути на атомах аргона вследствие отсутствия экспериментальных данных найдено с использованием газокинетических радиусов атомов аргона и ртути, приведенных в [21] (рис. 1).

Траектория каждого иона рассчитывалась до достижения им катода, а быстрого атома – до достижения катода или до момента, когда его энергия становится меньше 10 эВ, так как такие атомы не вносят вклад в распыление катода, и их число быстро растет с уменьшением энергии. В процессе расчета траекторий ионов аргона и ртути и быстрых атомов аргона получали функции распределения этих частиц по энергии у поверхности катода $f_{\rm Ar}^+(d,\varepsilon)$, $f_{\rm Hg}^+(d,\varepsilon)$ и $f_{\rm Ar}(d,\varepsilon)$. С их использованием могут быть вычислены эффективные (усредненные по энергии частиц) коэффициенты распыления поверхности катода частицами каждого типа, которые определяются выражения-ми [22]:

$$R_{Ar^{+}} = \int_{\epsilon_{tAr}}^{eU} Y_{Ar^{+}}(\epsilon) f_{Ar^{+}}(d,\epsilon) d\epsilon,$$

$$R_{Hg^{+}} = \int_{\epsilon_{rHg}}^{eU} Y_{Hg^{+}}(\epsilon) f_{Hg^{+}}(d,\epsilon) d\epsilon,$$
 (1)

$$R_{Ar} = \int_{\epsilon_{rAr}}^{eU} Y_{Ar}(\epsilon) f_{Ar}(d,\epsilon) d\epsilon,$$

где $Y_{Ar^+}(\varepsilon)$, $Y_{Hg^+}(\varepsilon)$ и $Y_{Ar}(\varepsilon) = Y_{Ar^+}(\varepsilon)$ – коэффициенты распыления материала катода ионами аргона, ртути и атомами аргона с энергией ε , ε_{tAr} и ε_{tHg} – соответствующие пороговые значения энергии распыления.

Плотности же потоков атомов материала катода, распыляемого частицами различных типов с его поверхности, равны:

$$J_{sAr^{+}} = R_{Ar^{+}}J_{Ar^{+}}, \quad J_{sHg^{+}} = R_{Hg^{+}}J_{Hg^{+}}, \quad (2)$$
$$J_{sAr} = R_{Ar}J_{Ar},$$

где J_{Ar^+} , J_{Hg^+} и J_{Ar} – плотности потоков частиц у катода, которые могут быть рассчитаны из гибридной модели слаботочного разряда [17—19].

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

Вычисления проведены для слаботочного разряда в межэлектродном промежутке длиной $d = 10^{-3}$ м, что соответствует расстоянию между основным и вспомогательным электродами дуговой осветительной лампы [23]. Промежуток считали заполненным смесью аргон—ртуть с постоянной концентрацией атомов аргона $n_{\rm Ar} = 6.6 \times 10^{22}$ м⁻³, соответствующей его давлению p = 266 Па при комнатной температуре, и концентрацией атомов ртути $n_{\rm Hg}$, зависящей от температуры T [19], которую считали равной +30°С



Рис. 1. Зависимость сечений межчастичных взаимодействий от энергии налетающей частицы: σ_{cAr^+} – сечение резонансной перезарядки иона аргона на атоме аргона; σ_{eAr^+} – сечение упругого рассеяния иона аргона на атоме аргона; σ_{eHg^+} – сечение упругого рассеяния иона ртути на атоме аргона; σ_{eAr} – сечение упругого рассеяния быстрого атома аргона на атоме аргона.

(при этой температуре $n_{\rm Hg}/n_{\rm Ar} = 2.33 \times 10^{-3}$). Разрядное напряжение *U* изменялось от 200 до 260 В, что обеспечивало величину приведенной напряженности электрического поля E/n, где $n = n_{\rm Hg} + n_{\rm Ar}$, в интервале (3–4) × 10⁻¹⁸ В · м². В процессе моделирования рассчитывали траектории 10⁵ ионов аргона и ртути, координаты возникновения которых выбирали с учетом предварительно рассчитанных распределений величин $\Delta n_{i\rm Ar}$ и $\Delta n_{i\rm Hg}$ вдоль разрядного промежутка при *s* = 200. После этого рассчитывали траектории быстрых атомов, образующихся при столкновениях ионов, а также возникших ранее быстрых атомов, с медленными атомами аргона.

Вычисленные энергетические распределения потоков ионов аргона и ртути, а также быстрых атомов аргона у катода при $E/n = 3.2 \times 10^{-18} \text{ B} \cdot \text{m}^2$ приведены на рис. 2. На нем также изображены энергетические спектры потоков ионов аргона и ртути, найденные в [6] на основе приближенной аналитической модели их движения в газе. Видно, что распределение по энергии ионов аргона, полученное методом Монте-Карло, достаточно хорошо согласуется с их энергетическим спектром, полученным в [6] в рамках аналитической модели, учитывающей только перезарядку ионов аргона на атомах. Это объясняется тем, что, как видно из рис. 1, сечение резонансной перезарядки ионов аргона существенно превосходит сечение их упругого рассеяния, а также иллюстрирует удовлетворительную точность использованного



Рис. 2. Энергетические спектры потоков быстрых частиц у поверхности катода, результаты моделирования для: • – ионов аргона (Ar^+); о – ионов ртути (Hg^+); × – быстрых атомов аргона, возникающих при перезарядке и упругом рассеянии ионов аргона на медленных атомах аргона (Ar1); + – быстрых атомов аргона, возникающих при упругом рассеянии ионов ртути на атомах аргона (Ar2). Штриховая и сплошная линии – результаты расчета для ионов аргона на основе аналитического выражения, учитывающего только их резонансную перезарядку, и для ионов ртути с использованием приближения их непрерывного торможения в аргоне [6].



Рис. 3. Эффективные коэффициенты распыления вольфрамового катода ионами и быстрыми атомами как функции E/n. Обозначения те же, что на рис. 2.

алгоритма численного моделирования. Рассчитанное же распределение по энергии потока ионов ртути существенно отличается от найденного из аналитической модели, что является следствием использования в ней приближения непрерывного торможения ионов ртути в аргоне, в котором не учитывается стохастичность ионноатомных столкновений. Из рис. 2 следует также, что при перезарядке и упругих столкновениях ионов с медленными атомами образуется большое количество быстрых атомов аргона, причем ионы ртути вносят в этот процесс основной вклад, так как значительная их доля имеет энергию, превосходящую энергии ионов аргона.

Рассчитанные из выражений (1) с использованием экспериментальных зависимостей $Y_{Ar^+}(\varepsilon)$, тивных коэффициентов распыления от приведенной напряженности электрического поля в разряде E/n представлены на рис. 3. Эффективные коэффициенты распыления $R_{\rm Ar^+}$ и $R_{\rm Hg^+}$ найдены в расчете на один ион, а $R_{\rm Ar}$ – в расчете на один первичный быстрый атом, образующийся при столкновении иона аргона или ртути с медленным атомом, включает в себя вклады в распыление катода всех вторичных быстрых атомов, возникающих при его упругих столкновениях с атомами аргона. Из рис. 3 видно, что в рассмотренном интервале значений E/n имеет место соотношение $R_{\mathrm{Hg}^+} > R_{\mathrm{Ar}} > R_{\mathrm{Ar}^+}$, т.е. набольший эффективный коэффициент распыления имеют ионы ртути, в силу того что, как следует из рис. 1, энергия их значительной доли превосходит энергию частиц других типов. Наименьший эффективный коэффициент распыления соответствует ионам аргона вследствие того, что при перезарядках на атомах аргона они полностью передают энергию возникающему быстрому атому. Этот результат отличается от сделанного в [6] при использовании приближения непрерывного торможения ионов ртути в аргоне вывода о том, что условие $R_{{
m Hg}^+} > R_{{
m Ar}^+}$ выполняется лишь при достаточно больших величинах E/n.

На рис. 4 представлены найденные зависимости от E/n плотностей потоков атомов материала катода J_{sHg^+} , J_{sAr^+} и J_{sAr} , распыленных с его поверхности ионами ртути, аргона и быстрыми атомами аргона, которые вычислены из соотношений (2) с использованием плотностей потоков ионов у катода $J_{\rm Ar^{*}}$ и $J_{\rm Hg^{*}}$, рассчитанных на основе гибридной модели разряда [17–19]. Видно, что в рассматриваемых условиях, несмотря на то, что содержание ртути в смеси достаточно мало и $J_{{\rm Ar}^+}$ более чем на порядок превосходит $J_{_{\mathrm{H}\sigma^{+}}}$, ионы ртути вносят основной вклад в распыление (который, однако, уменьшается при увеличении $n_{\rm Ar}/n_{\rm Hg}$ и E/n). В случае понижения температуры от +30 до -30°C содержание ртути в смеси уменьшается еще на три порядка, и ртуть должна вносить пренебрежимо малый вклад в распыление катода [18, 19]. Следовательно, этот фактор необходимо учитывать при моделировании процесса



Рис. 4. Плотности потоков атомов, распыленных с поверхности вольфрамового катода ионами и быстрыми атомами, как функции E/n. Обозначения те же, что на рис. 2.

распыления катода в ртутных газоразрядных лампах на этапе их зажигания.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе с использованием метода Монте-Карло выполнено моделирование движения ионов и быстрых атомов в слаботочном разряде в смеси аргона с парами ртути, применяемой в газоразрядных осветительных лампах. В модели учтено, что на этапе зажигания разряда содержание ртути в смеси мало, и можно принимать во внимание столкновения быстрых частиц только с атомами аргона. Основными типами столкновений являются резонансная перезарядка ионов аргона на атомах аргона и упругое рассеяние ионов аргона, ртути и быстрых атомов аргона на медленных атомах аргона. Рассчитаны энергетические спектры потоков ионов и быстрых атомов, бомбардирующих поверхность катода, и вычислены эффективные коэффициенты распыления вольфрамового катода ионами обоих типов и быстрыми атомами, а также плотности потоков распыленных атомов как функции приведенной напряженности электрического поля в разрядном промежутке. Показано, что при малом содержании атомов ртути в смеси порядка 10⁻³ в рассмотренных условиях распыление катода осуществляется, главным образом, ионами ртути, так как их энергия существенно превосходит энергию частиц других типов. Их вклад в распыление уменьшается с увеличением приведенной напряженности электрического поля и при снижении температуры смеси.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена в рамках реализации государственного задания "Организация проведения научных исследований" Минобрнауки РФ в МГТУ им. Н.Э. Баумана (проект № 3.8408.2017/6.7).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Samukawa S., Hori M., Rauf S. et al. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2012. V. 45. № 25. 253001. doi 10.1088/0022-3727/45/25/253001
- Schwieger J., Baumann B., Wolff M. et al. // J. Phys.: Conf. Ser. 2015. V. 655. 012045. doi 10.1088/1742-6596/655/1/012045
- 3. *Hadrath S., Beck M., Garner R.C. et al.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2007. V. 40. № 1. P. 163. doi 10.1088/0022-3727/40/1/009
- Sobota A., van den Bos R.A.J.M., Kroesen G., Manders F. // J. Appl. Phys. 2013. V. 113. № 4. 043308. doi 10.1063/ 1.4789598
- Bondarenko G.G., Fisher M.R., Kristya V.I. // Vacuum. 2016. V. 129. P. 188. doi 10.1016/j.vacuum.2016.01.008
- Кристя В.И., Савичкин Д.О., Фишер М.Р. // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2016. № 4. С. 84. doi 10.7868/S0207352816040119
- Abril I., Gras-Marti A., Valles-Abarca J.A. // Phys. Rev. A. 1983. V. 28. № 6. P. 3677. doi 10.1103/PhysRevA.28.3677
- Mason R.S., Allott R.M. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1994.
 V. 27. № 11. P. 2372. doi 10.1088/0022-3727/27/11/018
- 9. Bogaerts A. // Plasma Sources Sci. Technol. 1999. V. 8. № 2. P. 210. doi 10.1088/0963-0252/8/2/003
- Liu C., Wang D. // J. Appl. Phys. 2002. V. 91. № 1. P. 32. doi 10.1063/1.1421239
- 11. *Ito T., Capelli M.A.* // Phys. Rev. E. 2006. V. 73. № 4. P. 046401. doi 10.1103/PhysRevE.73.046401
- Ito T., Capelli M.A. // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 90. № 10. 101503. doi 10.1063/1.2711416
- Hagelaar G.J.M., Kroesen G.M.W., Klein M.H. // J. Appl. Phys. 2000. V. 88. № 5. P. 2240. doi 10.1063/ 1.1287758
- 14. Capdeville H., Pedoussat C., Pitchford L.C. // J. Appl. Phys. 2002. V. 91. № 3. P. 1026. doi 10.1063/1.1430891
- 15. *Yoon S.J., Lee I.* // J. Appl. Phys. 2002. V. 91. № 4. P. 2487. doi 10.1063/1.1433928
- 16. *Райзер Ю.П.* Физика газового разряда. Долгопрудный: ИД "Интеллект", 2009. 736 с.
- 17. *Кристя В.И., Фишер М.Р.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2010. Т. 74. № 2. С. 298.
- Bondarenko G.G., Fisher M.R., Kristya V.I. // J. Phys.: Conf. Ser. 2012. V. 406. P. 012031. doi 10.1088/1742-6596/406/1/012031
- Бондаренко Г.Г., Фишер М.Р., Кристя В.И. // ЖТФ. 2017. Т. 87. № 2. С. 197. doi 10.21883/ JTF.2017.02.44125.1918
- 20. *Phelps A.V.* // J. Appl. Phys. 1994. V. 76. № 2. P. 747. doi 10.1063/1.357820
- Clementi E., Raimondi D.L., Reinhardt W.P. // J. Chem. Phys. 1967. V. 41. № 4. P. 1300. doi 10.1063/1.1712084
- Abril I., Gras-Marti A., Valles-Abarca J.A. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1984. V. 17. № 9. P. 1841. doi 10.1088/ 0022-3727/17/9/009
- Атаев А.Е. Зажигание ртутных разрядных источников излучения высокого давления. М.: МЭИ, 1995. 168 с.
- Распыление твердых тел ионной бомбардировкой / Ред. Бериш Р. М.: Мир, 1984. 336 с.

САВИЧКИН, КРИСТЯ

Monte Carlo Simulation of the Energy Spectra of Ions and Fast Atoms Near the Cathode Surface in Low-Current Discharge in a Mixture of Argon with Mercury Vapors D. O. Savichkin, V. I. Kristya

Simulation of ion and fast atom motion in the low-current discharge in an argon-mercury mixture used in gas discharge illuminating lamps is performed by the Monte Carlo method. As at the stage of discharge ignition the mercury relative content in the mixture is small, only collisions of fast particles with slow argon atoms are taken into account. The energy spectra of the ion and fast atom flows bombarding the cathode surface are calculated. The energy distribution of the mercury ions is shown to differ considerably from that found previously from analytical model based on the approximation of continuous slowing down of mercury ions in argon. The effective rates of tungsten cathode sputtering by ions and fast atoms are calculated, as well as the flow densities of sputtered atoms as functions of the reduced electric field strength in the discharge gap. At small mercury content in the mixture of the order of 10^{-3} , the cathode is found to be sputtered mainly by mercury ions. Their contribution to sputtering process decreases with increasing in the reduced electric field strength and decreasing in the mixture temperature.

Keywords: gas discharge illuminating lamp, low-current discharge, argon-mercury mixture, Monte Carlo method, ion and atom energy spectra, cathode surface sputtering.