УДК 533.9.02

# АППРОКСИМАЦИЯ ПОДВИЖНОСТИ АТОМАРНЫХ ИОНОВ БЛАГОРОДНЫХ ГАЗОВ В СОБСТВЕННОМ ГАЗЕ

© 2020 г. А. Г. Храпак<sup>1, \*</sup>, Р. И. Голятина<sup>2</sup>, С. А. Майоров<sup>2, \*\*</sup>, С. А. Храпак<sup>1, 3</sup>

<sup>1</sup>Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия
 <sup>2</sup>Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия
 <sup>3</sup>Institut für Materialphysik im Weltraum DLR, Weßling, Germany
 \*E-mail: khrapak@mail.ru
 \*\*E-mail: mayorov\_sa@mail.ru
 Поступила в редакцию 04.03.2020 г.
 После доработки 10.03.2020 г.
 Принята к публикации 10.03.2020 г.

При теоретическом анализе многих явлений в низкотемпературной плазме, таких как амбиполярная диффузия, образование приэлектродных и приповерхностных слоев в газовых разрядах, зарядка и ионное увлечение пылевых частиц, важную роль играет подвижность ионов. В работе предлагается модификация полуэмпирической формулы Фроста для подвижности положительных атомарных ионов в собственных газах. Модифицированное выражение демонстрирует превосходное согласие с экспериментальными результатами для различных ионизованных инертных газов в очень широком диапазоне напряженностей электрического поля и температур.

DOI: 10.31857/S0040364420040067

#### введение

Важной характеристикой слабоионизованной плазмы является подвижность положительных ионов в собственном газе в электрическом поле. Подвижность ионов занимает центральное место в различных явлениях физики газового разряда и химии плазмы [1, 2], в том числе в амбиполярной диффузии [3, 4], в формировании пограничного слоя в газовых разрядах [5-7], в зарядке макрочастиц и силе ионного увлечения в пылевой плазме [8-14], в спектрометрии ионной подвижности [15–18], а также во многих других процессах. Часто делается упрощающее предположение, что ионная подвижность постоянна и не зависит от напряженности электрического поля. Это не согласуется с экспериментальными измерениями, которые показали, что для самого интересного случая атомарных ионов инертных газов в их собственных газах подвижность уменьшается с увеличением напряженности электрического поля [19-22]. Не существует общего выражения для зависимости подвижности ионов от электрического поля. В то же время несколько теоретических приближений были представлены в различное время [3, 23-27]. Среди них одно из самых простых и удобных для практического использования — это полуэмпирическая формула, предложенная Фростом [3]:

$$M = A \left[ 1 + B \frac{E}{N} \right]^{-1/2} \frac{E}{N}.$$
 (1)

Здесь *М* обозначает скорость дрейфа иона, выраженную в единицах его тепловой скорости,  $M = u/v_T$ , где  $v_T = \sqrt{T/m}$ , T – температура ионов в энергетических единицах, m – масса иона (*M* часто называют тепловым числом Маха). Отношение напряженности электрического поля к плотности нейтрального газа E/N выражается в единицах Таунсенда (1 Тд =  $10^{-17}$  В см<sup>2</sup>).

Большая часть экспериментальных исследований и вычислений подвижности ионов в собственных газах выполнены для комнатной температуры. Несмотря на то что свойства криогенных разрядов существенно зависят от температуры газа [28], опубликовано лишь несколько экспериментальных работ по подвижности ионов при криогенных температурах [21, 29]. Низкие температуры типичны для ионосферной плазмы, а также для межпланетного и межзвездного пространства. В экспериментах с ультрахолодной плазмой в магнитных ловушках Паули ионы также дрейфуют в очень холодных газах, имеющих температуру значительно ниже 1 К [30]. С другой стороны, современные плазменные технологии зачастую используют разряды, в которых температура газа существенно превышает комнатную. Все это указывает на важность изучения влияния не только сильных электрических полей, но и температуры на дрейфовые характеристики ионов в плазме.



**Рис. 1.** Нормированная на тепловую скорость подвижность ионов Ne<sup>+</sup> в газообразном Ne в зависимости от E/N: 1 – экспериментальные данные [21], 2 – результаты расчета по формуле Фроста (1), 3 – ее модификации (2).

### МОДИФИЦИРОВАННАЯ ФОРМУЛА ФРОСТА ПРИ КОМНАТНОЙ ТЕМПЕРАТУРЕ

За формулой Фроста (1) стоит следующая простая физика [4, 26]. Элементарные теории ионного дрейфа в электрическом поле дают для скорости дрейфа

$$u=\frac{eE\tau}{m},$$

где e — заряд иона,  $\tau$  — среднее время между его столкновениями с нейтральными атомами

$$\tau = \left\langle \frac{1}{N v \sigma(v)} \right\rangle.$$

Здесь  $\sigma(v)$  – зависящее от скорости сечение передачи импульса, а угловые скобки обозначают соответствующее усреднение по относительным скоростям и между ионами и нейтралами. В режиме слабых электрических полей и дотеплового дрейфа усреднение производится по тепловым скоростям и, следовательно, время столкновения  $\tau \sim 1/Nv_{\tau}\sigma(v_{\tau})$  не зависит от скорости дрейфа и электрического поля. В результате скорость дрейфа прямо пропорциональна Е/N независимо от конкретной формы ион-нейтрального взаимодействия. В противоположном пределе сильных полей и сверхтеплового дрейфа тепловой вклад незначителен  $\tau \sim 1/Nu\sigma(u)$ . Здесь зависимость скорости дрейфа от Е/N определяется природой ион-нейтральных взаимодействий. Например, для (возможно, не очень реалистичного в контексте ион-нейтральных взаимодействий) обратностепенного потенциала взаимодействия ~  $r^{-n}$  получаем  $\sigma(u) \sim u^{-4/n}$ , если  $n \ge 1$ . Это приводит к

зависимости  $u \sim (E/N)^{n/(2n-4)}$ . В пределе взаимодействия твердых сфер  $(n \to \infty)$  получаем  $u \sim (E/N)^{1/2}$ . Этот предельный случай обычно актуален потому, что при высоких энергиях сечения столкновения ион—нейтрал приближаются к постоянным асимптотам. Для ионов, дрейфующих в их собственных газах, при достаточно высоких температурах (доминирующий механизм столкновений — резонансный обмен зарядами) сечение имеет только слабую логарифмическую зависимость от относительной скорости [4, 31].

Таким образом, полуэмпирическая формула Фроста (1) представляет собой только один простой способ интерполяции между предельными режимами слабых и сильных электрических полей. Как правило, она довольно хорошо согласуется с экспериментальными результатами по скоростям дрейфа атомарных ионов инертных газов в их собственных газах при комнатной температуре. Однако существует возможность дальнейшего улучшения согласия. Например, оригинальная формула Фроста завышает подвижность ионов Ar<sup>+</sup> в Ar в режиме слабого электрического поля [32, 33].

Ниже будет продемонстрировано, что незначительная модификация формулы Фроста, предложенная в [34], позволяет достичь отличного согласия с экспериментальными данными для различных газов во всем диапазоне E/N, где данные имеются. Предложенная аппроксимация имеет вид

$$M = A \left[ 1 + \left( B \frac{E}{N} \right)^C \right]^{-1/2C} \frac{E}{N}, \qquad (2)$$

где С – параметр порядка единицы. Эта формула верна при комнатной температуре в соответствуюших пределах слабых и сильных электрических полей. При C = 1 выражение (2) сводится к общепринятой формуле (1). На рис. 1-3 демонстрируется сравнение доступных экспериментальных данных по скоростям дрейфа  $Ne^+$ ,  $Ar^+$  и  $Xe^+$  в их собственных газах с исходной формулой Фроста (1) и с модифицированной формулой (2). Предложенная модификация обеспечивает отличное согласие с экспериментальными результатами. Случай Ne и Ar особенно актуален в свете экспериментов с ПК-4 лабораторией на Международной космической станции [35, 36]. Полученные значения параметров А, В и С приведены в табл. 1. (значения А и В, естественно, несколько отличаются от первоначально предложенных Фростом в формуле (1)). Модифицированная формула Фроста хотя и не приводит к простому аналитическому соотношению между эффективной частотой передачи импульса и нормированной скоростью дрейфа ионов [37], однако для практических численных расчетов она столь же удобна, как и оригинальная формула, а ее точность выше.



**Рис. 2.** Нормированная на тепловую скорость подвижность ионов  $Ar^+$  в газообразном Ar в зависимости от *E/N*: *1* – экспериментальные данные [21], *2* – результаты расчета по (1), *3* – по ее модификации (2).

## ФОРМУЛА ФРОСТА ПРИ ПРОИЗВОЛЬНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Температурная зависимость дрейфовых характеристик атомарных ионов в собственных газах исследована в работах [38-40] методами численного моделирования и анализа экспериментальных данных. Формулы (1) и (2) справедливы при достаточно высоких температурах, когда в рассеянии ионов на атомах основную роль играет процесс резонансной перезарядки. В случае, когда температура газа становится такой низкой, что преобладает поляризационное взаимодействие и столкновения с резонансной перезарядкой не играют существенной роли, характеристики дрейфа радикально меняются. На рис. 4 и 5 приведены результаты расчетов методом Монте-Карло характеристик дрейфа ионов гелия в собственном газе в зависимости от приведенной напряженности электрического поля для различных температур атомов: *T* = 0.1, 1, 4.2, 77, 300 и 600 К. Зависимости приведенного коэффициента подвижности ионов K = u/E от E/N (рис. 4) [40] демонстрируют, что влияние температуры атомов на подвижность в случае криогенных температур атомов газа может быть весьма велико. Особенно сильно это влияние проявляется в области не слишком сильных полей *E*/*N* < 100 Тд.

В работах [38, 39] выполнены расчеты подвижности ионов благородных газов и найдена аппроксимация зависимостей коэффициентов *A* и *B* от температуры атомов:



**Рис. 3.** Нормированная на тепловую скорость подвижность ионов Xe<sup>+</sup> в газообразном Xe в зависимости от E/N: 1 – экспериментальные данные [29], 2 – результаты расчета по (2).

Приведенная подвижность,  $cm^2/B c$  100 г



**Рис. 4.** Зависимости приведенной подвижности ионов гелия в гелии от приведенной напряженности электрического поля при: 1 - T = 4.2 K, 2 - 77, 3 - 300, 4 - 600, 5 - в пределе сильного поля [32 - 34].

**Таблица 1.** Значения параметров в модифицированной формуле Фроста (T = 300 K)

Ион	<i>А</i> , Тд <sup>-1</sup>	<i>B</i> , Тд <sup>-1</sup>	С
He <sup>+</sup>	0.0354	0.0118	1.355
Ne <sup>+</sup>	0.0321	0.0120	1.181
$Ar^+$	0.0168	0.0070	1.238
Kr <sup>+</sup>	0.0136	0.0054	1.422
Xe <sup>+</sup>	0.0119	0.0041	0.947





**Рис. 5.** Зависимости эффективной температуры ионов  $\text{He}^+$  при дрейфе в He от приведенной напряженности электрического поля при: 1-4 – см. рис. 4.

$$A_{T} = \left[\frac{300(\varepsilon_{0} + 300)}{T(\varepsilon_{0} + T)}\right]^{1/2} A,$$

$$B_{T} = \frac{\varepsilon_{0} + 450}{\varepsilon_{0} + 1.5T} B,$$
(3)

где *E*<sub>0</sub> – подгоночный параметр, значения которого для инертных газов приведены в табл. 2. Функция  $A_{T}(T)$  правильно описывает зависимость подвижности ионов от температуры. Действительно, при низких температурах подвижность ионов К в собственном газе определяется процессами упругого рассеяния в поляризационном потенциале, K(T) = const. а при высоких температурах преобладает неупругое рассеяние с резонансной перезарядкой,  $K(T) \sim 1/\sqrt{T}$  [25]. Параметр  $\varepsilon_0$  определяет верхний предел применимости предположения о постоянстве частоты столкновений. При  $T \ll \varepsilon_0$  и  $mu^2/2 \ll \varepsilon_0$  основной вклад в рассеяние иона на атомах дает поляризационное взаимодействие, а скорость дрейфа слабо зависит от электрического поля.

В настоящей работе предлагается дальнейшая модификация формулы Фроста:

$$M = A_T \left( 1 + \left( B_T \frac{E}{N} \right)^{C_1} \right)^{-1/2C_2} \frac{E}{N},$$
 (4)

где  $A_T$  и  $B_T$  зависят от температуры и параметра  $\varepsilon_0$  согласно формуле (3). В табл. 3 представлены коэффициенты аппроксимации подвижности по формуле (4), погрешность экспериментальных данных и относительная погрешность аппроксимации по сравнению с экспериментальными данными. При криогенных температурах модифика-

Система	<i>Т</i> , К	$A_{T}$ , Тд <sup>-1</sup>	$B_T$ , T $\mathfrak{I}^{-1}$	С	$\epsilon_0, K$	
He <sup>+</sup> в He	4.35	0.299	0.0420	1	89.2	
	77	0.107	0.0196	1		
	85.7	0.0984	0.0184	1		
	300	0.035	0.0074	1		
	300	0.035	0.0118	1.355	_	
Ne <sup>+</sup> в Ne	216	0.044	0.0083	1	211.4	
	300	0.034	0.0067	1	211.4	
	300	0.032	0.0120	1.181	_	
Ar <sup>+</sup> b Ar	77	0.0066	0.0445	1	220.9	
	300	0.0171	0.0034	1	229.8	
	300	0.0168	0.0070	1.238	_	
Kr <sup>+</sup> в Kr	300	0.0150	0.0028	1	305.3	
	300	0.0136	0.0054	1.422	_	
Хе <sup>+</sup> в Хе	293	0.0122	0.0023	1	323.9	
	300	0.0120	0.0022	1		
	300	0.0119	0.0041	0.947	_	

**Таблица 2.** Коэффициенты *А*<sub>*T*</sub> и *B*<sub>*T*</sub> для разных температур, вычисленные по формулам (1) и (2) с использованием поправочного коэффициента *С* 

Система	<i>Т</i> , К	<i>Е/N</i> , Тд	ε <sub>0</sub> , Κ	<i>C</i> <sub>1</sub>	<i>C</i> <sub>2</sub>	Погрешность эксперимента, %	Погрешность аппроксимации эксперимента, %
He <sup>+</sup> в Не	4.35-300	5-700	89.2	1.231	0.965	1-5	6.0
Ne <sup>+</sup> в Ne	216, 300	6-1500	211	0.802	0.636	1-3	2.27
Ar <sup>+</sup> в Ar	77.3, 300	2-2000	230	0.933	0.677	2-3	2.42
Kr <sup>+</sup> в Kr	300	40-3000	305	0.833	0.634	5	1.88
Хе <sup>+</sup> в Хе	293, 300	40-800	324	0.839	0.635	0.8	0.57

Таблица 3. Коэффициенты аппроксимации подвижности по формуле (4), погрешность экспериментальных данных и относительная погрешность аппроксимации по сравнению с экспериментальными данными

ция формулы Фроста (4) обладает наилучшей точностью.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложена модификация оригинальной формулы Фроста для подвижностей положительных ионов в их собственных газах. Новые выражения почти так же просты, как и оригинальное, но нахолятся в лучшем согласии с экспериментальными результатами для различных систем во всем диапазоне приведенных напряженностей электрического поля и температур. Показано, что температура газа является важным параметром, определяющим характеристики дрейфа ионов. Расчеты показали, что переход к разряду при сверхнизких температурах газа приводит к сильнейшей анизотропии функции распределения ионов по скоростям. Полученные результаты могут быть использованы при планировании экспериментов с газоразрядной плазмой, анализе экспериментальных данных с пылевой плазмой в криогенном разряде и при комнатной температуре, а также импульсных разрядов с высокой напряженностью электрических и магнитных полей. Они также представляют интерес для специалистов, занимающихся разработкой приборов и развитием экспериментальных методов физики в спектрометрии ионной подвижности.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Радцие А.А., Смирнов Б.М. Коэффициенты переноса ионов в газе в электрическом поле // Химия плазмы. Сб. науч. ст. Вып. 11. М.: Энергоатомиздат, 1984. С. 170.
- Салым Я.Й. Ионы в приземном слое атмосферы // Химия плазмы. Сб. науч. ст. Вып. 17. М.: Энергоатомиздат, 1993. С. 194.
- Frost L.S. Effect of Variable Ionic Mobility on Ambipolar Diffusion // Phys. Rev. 1957. V. 105. P. 354.
- 4. *Raizer Y.P.* Gas Discharge Physics. Berlin: Springer, 2011. 449 p.
- Riemann K.U. The Bohm Criterion and Sheath Formation // J. Phys. D: Appl. Phys. 1991. V. 24. P. 493.

- Riemann K.U. Consistent Analysis of a Weakly Ionized Plasma and its Boundary Layer // J. Phys. D: Appl. Phys. 1992. V. 25. P. 1432.
- Phelps A.V. The Application of Scattering Cross Sections to Ion Flux Models in Discharge Sheaths // J. Appl. Phys. 1994. V. 76. P. 747.
- Barnes M.S., Keller J.H., Forster J.C., O'Neill J.A., Coultas D.K. Transport of Dust Particles in Glow-Discharge Plasmas // Phys. Rev. Lett. 1992. V. 68. P. 313.
- Khrapak S.A., Ivlev A.V., Morfill G.E., Thomas H.M. Ion Drag Force in Complex Plasmas // Phys. Rev. E. 2002. V. 66. P. 046414.
- Khrapak S.A., Ivlev A.V., Zhdanov S.K., Morfill G.E. Hybrid Approach to the Ion Drag Force // Phys. Plasmas. 2005. V. 12. P. 042308.
- Fortov V.E., Ivlev A., Khrapak S., Khrapak A., Morfill G. Complex (Dusty) Plasmas: Current Status, Open Issues, Perspectives // Phys. Rep. 2005. V. 421. P. 1.
- Zobnin A.V., Usachev A.D., Petrov O.F., Fortov V.E. Ion Current on a Small Spherical Attractive Probe in a Weakly Ionized Plasma with Ion-Neutral Collisions (Kinetic Approach) // Phys. Plasmas. 2008. V. 15. P. 043705.
- Khrapak S.A., Thoma M.H., Chaudhuri M., Morfill G.E., Zobnin A.V., Usachev A.D., Petrov O.F., Fortov V.E. Particle Flows in a DC Discharge in Laboratory and Microgravity Conditions // Phys. Rev. E. 2013. V. 87. P. 063109.
- Puttscher M., Melzer A. Dust Particles under the Influence of Crossed Electric and Magnetic Fields in the Sheath of an RF Discharge // Phys. Plasmas. 2014. V. 21. P. 123704.
- Буряков И.А., Крылов Е.В., Макась А.Л., Назаров Э.Г., Первухин В.В., Расулев У.Х. Разделение ионов по подвижности в переменном электрическом поле высокой напряженности // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. Вып. 12. С. 60.
- Буряков И.А. Экспериментальное определение зависимости коэффициентов подвижности ионов в газе от напряженности электрического поля // ЖТФ. 2002. Т. 72. Вып. 11. С. 109.
- Буряков И.А. Определение кинетических коэффициентов переноса ионов в воздухе как функций напряженности электрического поля и температуры // ЖТФ. 2004. Т. 74. № 8. С. 15.
- Буряков И.А. История спектрометрии приращения ионной подвижности // Журн. аналитической химии. 2018. Т. 73. Вып. 12. С. 941.

- Hornbeck J.A. The Drift Velocities of Molecular and Atomic Ions in Helium, Neon, and Argon // Phys. Rev. 1951. V. 84. P. 615.
- Biondi M.A., Chanin L. M. Mobilities of Atomic and Molecular Ions in the Noble Gases // Phys. Rev. 1954. V. 94. P. 910.
- Ellis H., Pai R., McDaniel E., Mason E., Viehland L. Transport Properties of Gaseous Ions over a Wide Energy Range // At. Data Nucl. Data Tables. 1976. V. 17. P. 177.
- Basurto E., de Urquijo J., Alvarez I., Cisneros C. Mobility of He<sup>+</sup>, Ne<sup>+</sup>, Ar<sup>+</sup>, N<sub>2</sub><sup>+</sup>, O<sub>2</sub><sup>+</sup>, and CO<sub>2</sub><sup>+</sup> in their Parent Gas // Phys. Rev. E. 2000. V. 61. P. 3053.
- Wannier G.H. Motion of Gaseous Ions in Strong Electric Fields // Bell System Tech. J. 1953. V. 32. P. 170.
- Fahr H., Müller K.G. Ionenbewegung unter dem Einfluß von Umladungsstößen // Zeitschrift für Physik. 1967. Bd. 200. S. 343.
- Patterson P.L. Temperature Dependence of Helium-Ion Mobilities // Phys. Rev. A. 1970. V. 2. P. 1154.
- Hahn H.-S., Mason E.A. Gaseous Ion Mobility in Electric Fields of Arbitrary Strength // Phys. Rev. A. 1972. V. 6. P. 1573.
- Lampe M., Röcker T.B., Joyce G., Zhdanov S.K., Ivlev A.V., Morfill G.E. Ion Distribution Function in a Plasma with Uniform Electric Field // Phys. Plasmas. 2012. V. 19. P. 113703.
- Антипов С.Н., Асиновский Э.И., Кириллин А.В., Майоров С.А., Марковец В.В., Петров О.Ф., Фортов В.Е. Заряд и структура пылевых частиц в газовом разряде при криогенных температурах // ЖЭТФ. 2008. Т. 133. Вып. 4. С. 948.
- Viehland L.A., Mason E.A. Transport Properties of Gaseous Ions over a Wide Energy Range, IV// At. Data Nucl. Data Tables. 1995. V. 60. P. 37.

- Killian T.C. Ultracold Neutral Plasmas // Science. 2007. V. 316. P. 705.
- 31. *Smirnov B.M.* Theory of Gas Discharge Plasma. N.Y.: Springer Int. Publ., 2015.
- Robertson S., Sternovsky Z. Monte Carlo Model of Ion Mobility and Diffusion for Low and High Electric Fields // Phys. Rev. E. 2003. V. 67. P. 046405.
- Khrapak S., Huber P., Thomas H., Naumkin V., Molotkov V., Lipaev A. Theory of a Cavity around a Large Floating Sphere in Complex (Dusty) Plasma // Phys. Rev. E. 2019. V. 99. P. 053210.
- Khrapak S.A., Khrapak A.G. Modified Frost Formula for the Mobilities of Positive Ions in their Parent Gases // AIP Adv. 2019. V. 9. P. 095008.
- 35. Pustylnik M.Y., Fink M.A., Nosenko V. et al. Particle Charge in PK-4 DC Discharge from Ground-Based and Microgravity Experiments // Rev. Sci. Instrum. 2016. V. 87. P. 093505.
- 36. Antonova T., Khrapak S.A., Pustylnik M.Y. et al. Particle Charge in PK-4 DC Discharge from Ground-Based and Microgravity Experiments // Phys. Plasmas. 2019. V. 26. P. 113703.
- Khrapak S.A. Practical Expression for an Effective Ion-Neutral Collision Frequency in Flowing Plasmas of Some Noble Gases // J. Plasma Phys. 2013. V. 79. P. 1123.
- 38. Голятина Р.И., Майоров С.А. Аппроксимация скорости дрейфа ионов в собственном газе // Краткие сообщения по физике. 2015. Т. 42. № 10. С. 21.
- 39. Голятина Р.И., Майоров С.А. Аппроксимация характеристик дрейфа ионов в собственном газе // Физика плазмы. 2017. Т. 43. № 1. С. 71.
- Майоров С.А., Голятина Р.И., Коданова С.К., Рамазанов Т.С. Исследование влияния температуры атомов на дрейф ионов в газе // Инж. физика. 2019. № 10. С. 22.