

**ИССЛЕДОВАНИЕ КИНЕТИКИ ЗАСЕЛЕННОСТЕЙ ВОЗБУЖДЕННЫХ
УРОВНЕЙ АРГОНА В РЕКОМБИНИРУЮЩЕЙ ПЛАЗМЕ**

Г. Д. СМЕХОВ, В. А. ФОТИЕВ

(Москва)

Детальное исследование электрон-ионной рекомбинации требует кроме изучения макрохарактеристики этого процесса — константы скорости рекомбинации ионов, более подробных данных о кинетике заселенностей отдельных электронных возбужденных состояний атома. Ряд работ, связанных с решением поуровневой задачи рекомбинирующей плазмы различного состава с целью исследования возможности получения инверсной заселенности электронно-возбужденных уровней атомов, подробно анализируется в обзорной статье [1]. Следует отметить установленный в экспериментах факт существования ионизационной и температурной неравновесности в расширяющейся плазме, например [2]. Представляет интерес изучение релаксации возбужденных атомных уровней. Настоящая работа посвящена теоретическому и экспериментальному исследованию процесса рекомбинации аргоновой плазмы, нагретой в отраженной ударной волне, при ее газодинамическом расширении в сопле. Расчет неравновесного течения в сопле учитывал релаксацию семи возбужденных уровней атомов аргона, кинетику электронов и электронной энергии. В расчетах вычислялся коэффициент поглощения непрерывного и дискретного спектра в инфракрасной области. Экспериментальное изучение неравновесного течения проводилось с помощью ударной трубы, нагрев аргона осуществлялся отраженной ударной волной. Измерялся коэффициент поглощения аргона вдоль сопла на длине волны $\lambda = 3.39$ мкм гелий-неонового лазера. Проводится сравнение измеренных и рассчитанных значений коэффициентов поглощения.

1. Решение поуровневой задачи требует детального рассмотрения микроскопических процессов, происходящих в плазме, не находящейся в состоянии локального термодинамического равновесия. Для определения заселенностей возбужденных состояний необходимо решить систему дифференциальных уравнений, описывающих все столкновительные и радиационные процессы.

При составлении уравнений приняты следующие предположения: 1) течение в сопле одномерно; 2) влияние вязкости, теплопроводности и диффузии не учитывается; 3) тяжелые частицы и электроны имеют максвелловские распределения по скоростям, каждая со своей температурой; 4) внешние электрические и магнитные поля отсутствуют; 5) плазма состоит из нейтральных атомов, однозарядных ионов и электронов и в целом нейтральна; 6) процессы фотоионизации и фоторекомбинации не учитываются; 7) столкновительные переходы учитываются только между соседними уровнями.

С учетом этих предположений была рассмотрена задача о кинетике заселенностей семи нижних возбужденных состояний атома аргона. Рассматривалось три типа процессов: ионизация атомов из возбужденных состояний при столкновении с электронами, ступенчатое возбуждение атомов электронами и радиационное высвечивание возбужденных уровней. При расчете заселенностей тонкая структура уровней учитывалась лишь в суммарном статистическом весе каждого уровня. Полная система элементарных процессов включала в себя 35 реакций, протекающих в обоих направлениях.

Полная система уравнений, описывающих стационарное течение неравновесного газа в сопле, состоит из двух групп. Первую группу состав-

ляют газодинамические уравнения неразрывности, импульса и энергии:

$$(1.1) \quad \rho v S = j = \text{const}, \quad \rho v \frac{dv}{dx} = - \frac{dp}{dx}, \quad \frac{H}{\mu} + \frac{1}{2} v^2 = \text{const}$$

В этих уравнениях ρ , v , p , μ , H — плотность, скорость, давление, молекулярный вес и молярная энтальпия соответственно, S — площадь сечения сопла, зависящая от координаты вдоль течения, j — величина массового расхода сопла. К этим уравнениям присоединяется уравнение состояния ионизованного газа

$$(1.2) \quad p = nkT + n_e kT_e$$

где k — постоянная Больцмана; n , n_e — плотности тяжелых частиц и электронов; T , T_e — температуры тяжелых частиц и электронов.

Вторую группу составляет уравнение для энтальпии единицы массы, выраженной через молярные энтальпии отдельных компонентов H_i (N — общее число компонентов), и система кинетических уравнений, описывающих релаксацию возбужденных атомов и иона аргона, а также релаксацию электронной энергии

$$(1.3) \quad \frac{H}{\mu} = \sum_{i=1}^N \gamma_i H_i, \quad \gamma_i = \frac{n_i}{n_0} \frac{\rho}{\rho_0}$$

$$(1.4) \quad \frac{d\gamma_k}{dt} = W_k, \quad \frac{d\gamma_+}{dt} = W_+$$

$$(1.5) \quad \frac{d\gamma_E}{dt} = W_E, \quad \gamma_E = \frac{E_e}{n_0 k T_0} \frac{\rho}{\rho_0}$$

В приведенных выражениях использованы относительные эквивалентные концентрации компонентов γ_i (n_i — число частиц i -го сорта в 1 см^3 ; n_0 , ρ_0 — полная плотность частиц и плотность газа в ресивере) и соответствующая величина для описания электронной энергии γ_E , где E_e — энергия электронов в единице объема (1 см^3) и T_0 — температура газа в ресивере. В уравнениях (1.4) значения индекса $k=1, 2, \dots, 7$ описывают концентрации атомов аргона в возбужденных состояниях $4s, 4p, 3d, 5s, 5p, 4d$ и $6s$ соответственно. Выражения для скоростей реакций W_i частиц брались из работы [1] в соответствующем образом обезразмеренной форме, в выражении для скорости изменения энергии электронов W_E учитывался обмен энергией между электронами и тяжелыми частицами (атомами и ионами), а также нагрев электронов энергией, освобождающейся при рекомбинации ионов. Константы скоростей ионизации и возбуждения рассчитывались по формулам, приведенным в [3], данные об излучательной дезактивации возбужденных состояний почерпнуты в [4]. Константы скоростей противоположных процессов рассчитывались на основании значений исходных констант скоростей и констант равновесия реакций. Температура электронов T_e находилась исходя из вычисленного значения энергии электронов в единице объема $E_e = \frac{3}{2} n_e k T_e$, плотность электронов n_e находилась из условия электронейтральности плазмы, плотность атомов в основном состоянии — из баланса общего числа атомов. В результате решения всей совокупности уравнений рассчитывалось распределение всех величин вдоль сопла.

2. Интегрирование системы кинетических уравнений неравновесного течения в сопле осуществлялось численно с использованием неявной разностной схемы.

Выбором соответствующей величины расхода газа обеспечивался переход через критическую точку течения, причем учитывалась неравновесность течения как в сверхзвуковой, так и в дозвуковой областях сопла.

Для исследования были выбраны температуры и давления в предсопловой камере, которые можно реализовать в экспериментах, нагревая газ ударной волной в ударной трубе. Этот диапазон соответствует изменению начального давления аргона в камере низкого давления ударной трубы в пределах 5–25 мм рт. ст. и скорости ударной волны от 2 до 4 км/сек. Для вычисления концентрации атомов аргона, находящихся в различных возбужденных состояниях, рассчитывали параметры газа и его состав в отраженной ударной волне с помощью законов сохранения во фронте ударной волны и уравнения ионизационного равновесия (уравнения Саха).

Расчеты проводили для клиновидного сопла длиной 100 мм с критическим сечением 0.5 мм. Профиль сопла имел диффузную часть длиной 40 мм с углом полуоткрыва 4.5°, которая затем переходила в плоскопараллельную часть.

Для характеристики степени возбуждения уровней удобно использовать величину условной «температуры» уровня

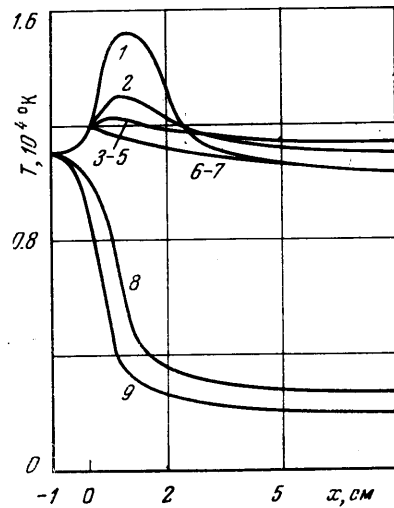
$$(2.1) \quad T_i = \frac{\theta_i}{\ln(n_0 g_i / n_i)}$$

где θ_i — энергия возбуждения i -го уровня, выраженная в °К; n_i — заселенность i -го состояния; g_i — его статистический вес; n_0 — плотность атомов в основном состоянии аргона.

Фиг. 1 показывает распределение «температур» уровней, а также газовой и электронной температуры; 1–7 — температуры возбуждения уровней 4s–6s; 8 — электронная температура; 9 — поступательная температура (0 на оси абсцисс соответствует критическому сечению сопла).

Фиг. 1 демонстрирует высокую степень замороженности возбужденных состояний, так как при равновесном течении температура уровней равнялась бы поступательной температуре частиц. По сравнению с поступательной температурой различие температур уровней невелико. Это означает, что возбужденные уровни находятся в состояниях, близких к равновесному, со средней температурой возбуждения, которая даже может превышать равновесную температуру в отраженной ударной волне.

Эти особенности вполне объясняются картиной рекомбинации электронов и ионов. На первых этапах рекомбинации заселяются верхние уровни, а на более поздних этапах электроны задерживаются на нижних возбужденных уровнях. Обмен энергией между возбужденными состояниями происходит значительно интенсивнее обмена энергией с основным состоянием. Поэтому они образуют подсистему, температура которой превышает газовую температуру. Далее из расчетов следует, что электронная температура в рассматриваемом случае не сильно отрывается от газовой температуры и следит за ее изменением. Это означает, что охлаждение электронного газа при взаимодействии с ионами, имеющими температуру, равную газовой, происходит более интенсивно, чем его нагрев энергией, выделяющейся при рекомбинации.



Фиг. 1

Распределение заселенностей уровней и температур частиц вдоль сопла в выбранном диапазоне начальных параметров качественно остается одним и тем же. Однако с повышением скорости ударной волны значения электронной температуры в сопле возрастают относительно быстрее значений температур уровней, т. е. с повышением температуры в области перед входом в сопло степень неравновесности течения уменьшается.

Полученные результаты согласуются с расчетами, проведенными в [5] для случая рекомбинации ксеноновой и аргоновой плазмы, где отмечается совпадение электронной и газовой температур при малых степенях ионизации в ее начальном состоянии.

Каждое возбужденное состояние аргона представляет собой совокупность сравнительно близко расположенных подуровней, заселенности которых устанавливаются в результате столкновений с электронами. Так как эффективность столкновительного канала растет обратно пропорционально четвертой степени расстояния между уровнями, то подуровни могут находиться в локальном равновесии с электронами. Распределение атомов между уровнями (расстояние между которыми ΔE много больше расстояния между подуровнями $\Delta E'$) будет неравновесным. Критерием установления локального равновесия между подуровнями является приближенное равенство $\Delta E' \sim kT_e$ (T_e — температура электронов).

Электронные уровни атома аргона, расположенные выше 14.6 эв, образуют большую группу близких уровней, отстоящих от континуума на расстоянии $\sim kT_e$. Заселенность этих уровней можно рассчитать из условия равновесия со свободными электронами, т. е.

$$(2.2) \quad \frac{n_k}{g_k} = 3.44 \cdot 10^{-17} \frac{n_e^2}{T_e^{3/2}} \exp\left(\frac{J_k}{kT_e}\right)$$

где n_k — заселенность k -го уровня, g_k — его статический вес, J_k — потенциал ионизации k -го уровня, n_e — концентрация свободных электронов в см^{-3} , T_e — температура электронов в $^\circ\text{К}$. Заселенность уровней, находящихся на расстоянии, большем нескольких kT_e , будет определяться не только электронной температурой, но и эффективной температурой возбуждения остальных уровней рассматриваемой группы. Для ее определения все уровни группы, состоящей из нескольких подуровней, объединяются с соответствующими статическими весами так, чтобы расстояние между ними равнялось нескольким kT_e . Заселенность каждого такого эффективного «блока» уровней и его температуру можно найти, решая общую поуровневую задачу кинетики. Тогда заселенности отдельных подуровней можно определить так же, как и заселенности подуровней, определяемые электронной температурой.

3. Используя описанное выше сопло, были проведены экспериментальные исследования рекомбинирующей плазмы. Методика эксперимента заключалась в измерении коэффициента поглощения инфракрасного излучения гелий-неонового лазера (длина волны 3.39 $\mu\text{м}$) в плазме, нагретой отраженной ударной волной перед входом в сопло, и в рекомбинирующей плазме в нескольких точках вдоль сопла.

Результаты опытов для параметров плазмы, соответствующих фиг. 1, представлены на фиг. 2 в виде точек. На фиг. 2 также нанесены графики расчетных значений коэффициентов поглощения в линейчатом (связанно-связанные переходы) K_L (2) и в непрерывном спектрах (свободно-свободные и свободно-связанные переходы) K_f (1). Графики представлены в полулогарифмическом масштабе. Расчет коэффициента поглощения K_f проводился по формуле Унзольца — Крамерса с поправкой на вынужден-

ное излучение [°]

$$(1.3) \quad K_f(\nu) = \frac{4}{3} \left(\frac{2\pi}{3m} \right)^{1/2} \frac{\xi(\nu) e^6}{hcm\nu^3} g \frac{n_e^2}{(kT_e)^{1/2}} \left(\exp \frac{d\nu}{kT_e} - 1 \right)$$

где ν — частота излучения, $\xi(\nu)$ — функция, введенная для учета неводородоподобности атомов [7], g — фактор Гаунта, учитывающий квантово-механическую поправку к формуле. Остальные обозначения общеприняты.

Коэффициент поглощения для связанно-связанных переходов рассчитывался по формуле [°]

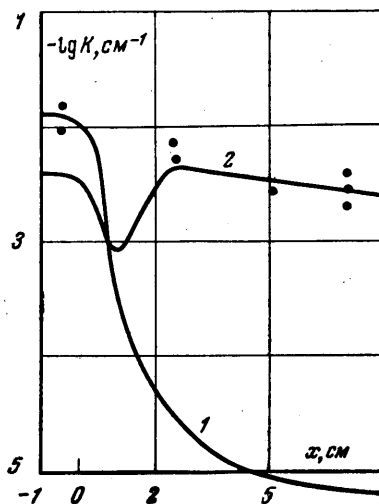
$$(3.2) \quad K_L(\nu) = \frac{h\nu}{c} \varphi(\nu) (n_i B_{ik} - n_k B_{ki})$$

где $\varphi(\nu)$ — профиль линии, принятый при расчете в виде прямоугольной функции с шириной основания, равной штарковскому уширению линии аргона при данных параметрах плазмы; n_i — заселенность нижнего уровня; n_k — заселенность верхнего уровня; B_{ik} и B_{ki} — коэффициенты Эйнштейна для поглощения и вынужденного испускания соответственно.

Было установлено, что длина волны гелийнеонового лазера соответствует переходу $9s' [1/3]_0 - 7p [3/2]_1$. Разница в длинах волн этих линий не превышает величины штарковского уширения линий аргона ($\sim 1 \text{ \AA}$ при $n_e = 10^{15} \text{ см}^{-3}$), которое в условиях опытов является доминирующим. Расчет силы осциллятора указанного перехода AzI проводился по приближенной формуле для переходов между возбужденными водородоподобными уровнями [°], так как высоковозбужденные уровни атома аргона близки к водородоподобным.

Из фиг. 2 видно, что в отраженной ударной волне поглощение определяется главным образом свободно-свободными и свободно-связанными переходами. Это следует из того, что при высокой концентрации свободных электронов n_e в отраженной ударной волне K_f растет пропорционально n_e^2 , а K_L убывает с увеличением ширины линии, которая изменяется пропорционально $n_e^{2/3}$ [°]. С уменьшением концентрации свободных электронов в сопле происходит резкое уменьшение поглощения в непрерывном спектре. Уменьшение поглощения в линиях в начале сопла связано с тем, что при достаточно высоких температурах в этих точках сопла оба уровня ($9s'$ и $7p$) находятся в равновесии с электронным континуумом (2.2), вследствие чего разница в заселенностях этих уровней мала. Дальнейшее снижение температуры электронов вниз по соплу приводит к тому, что в равновесии с континуумом находится только верхний уровень ($9s'$), в результате коэффициент поглощения K_L увеличивается.

Данные эксперимента подтверждают выводы расчета. Совпадение опытных результатов с расчетными в отраженной ударной волне указывает на справедливость сделанного предположения о существовании равновесных условий в плазме перед входом в сопло. Наличие в сопле заметно поглощения в линиях аргона свидетельствует о заморозенности засе-



Фиг. 2

ленностей возбужденных состояний атома AzI в процессе рекомбинации аргоновой плазмы. Замороженность заселенностей возбужденных уровней сохраняется по всей длине сопла, на что указывает слабое изменение коэффициента поглощения в различных точках вниз по соплу.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гудзенко Л. И., Шелепин Л. А., Яковенко С. И. Теория плазменных лазеров. Тр. Физ. ин-та АН СССР, 1975, т. 83, № 100.
2. Козлов Г. И., Ройгенбург Д. И., Ступицкий Е. Л. Расширение частично-ионизованного аргона в гиперзвуковом сопле. ПМТФ, 1969, № 4.
3. Вайнштейн Л. А., Собельман И. И., Юков Е. А. Сечения возбуждения атомов и ионов электронами. М., «Наука», 1973.
4. Гордиец Б. Ф., Дымова И. А., Шелепин Л. А. Релаксационные процессы и инверсная заселенность уровней в аргоновой плазме. Ж. прикл. спектроскопии, 1971, т. 15, вып. 2.
5. Ступицкий Е. Л., Козлов Г. И. Релаксация частично-ионизованного газа в сопле. М., Препринт ИПМ АН СССР, 1972, № 13.
6. Зельдович Я. Б., Райзер Ю. П. Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений. М., «Наука», 1966.
7. Биберман Л. М., Норман Г. Э., Ульянов К. Н. К расчету фотоионизационного поглощения в атомарных газах. Оптика и спектроскопия, 1961, т. 10, вып. 5.
8. Диагностика плазмы. М., «Мир», 1967.