

УДК 533.6.011.8:535.21

© 1990 г.

А. Э. БАЗЕЛЯН

## ИССЛЕДОВАНИЕ ТОЧНОСТИ МОДЕЛЕЙ СВЕТОИНДУЦИРОВАННОЙ ДИФФУЗИИ ГАЗОВ МЕТОДОМ ПРЯМОГО СТАТИСТИЧЕСКОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

Светоиндукционная диффузия активного газа в буферном, возникающая за счет различия газодинамических сечений возбужденной и невозбужденной частиц активного газа и за счет отстройки частоты излучения от частоты центра линии перехода [4], традиционно рассматривалась в модели сильных столкновений [2-4] и 13-моментным методом Грэда [5].

Метод Грэда и модель сильных столкновений используют частоту столкновений, не зависящую от относительной скорости сталкивающихся частиц, что строго выполняется только для максвелловских частиц и псевдомакселловских сфер. Модель сильных столкновений предполагает, что столкнувшиеся частицы максвеллизуются без сдвиговой скорости. Модель хорошо описывает качественную сторону явления, но содержит некоторую ошибку, связанную с аппроксимацией интегралов столкновения.

При расчете скоростей диффузии в сильном поле, когда не удается применить метод Грэда [5], для сопоставимых числовых плотностей активного и буферного газов, когда не работает модель сильных столкновений, единственным средством получения результата является метод прямого статистического моделирования.

В данной работе предложен вариант метода прямого статистического моделирования для расчета скорости диффузии в плотном буферном газе; с его помощью исследована точность модели сильных столкновений для наиболее часто встречающихся в эксперименте режимов диффузии атомов; исследована точность приближения, использующего постоянную частоту столкновений, путем сравнения скоростей диффузии, полученных для различных потенциалов взаимодействия частиц.

1. Сложность явления вынуждает строить простые модели. Случай монохроматического излучения и модель двухуровневого активного газа [3, 5, 6] наиболее употребительны и сводят задачу к трем уравнениям для матрицы плотности [2] и уравнению Больцмана для бесструктурного буферного газа. Отказ от учета переходов с возбужденного подуровня на другие подуровни тонкой структуры, нерезонансные излучению, а также сверхтонкого расщепления основного состояния не приводит к потере качества и позволяет сопоставлять различные модели, но значительно облегчает численное решение. Система обычно упрощается предположением об отсутствии фазовой памяти при столкновениях, что позволяет перейти к обычным кинетическим уравнениям. Будем рассматривать далее установившийся процесс в «оптически тонких» средах. В этом случае задача описывается уравнениями

$$\xi \frac{\partial f_p}{\partial x} = \sum_{q=1}^3 \int (f_p' f_{1q}' - f_p f_{1q}) |\xi_p - \xi_{1q}| d\sigma_{pq} d\xi_{1q} + Q_p \quad (1.1)$$

$$Q_1 = -P(\xi) [g_2 f_1 - g_1 f_2] + \Gamma_s f_2, \quad Q_2 = -Q_1, \quad Q_3 = 0$$

$$P(\xi) = 2|G|^2 \Gamma [\Gamma^2 + (\Omega - \mathbf{k}\xi)^2]^{-1}$$

Здесь  $f_1(x, \xi)$ ,  $f_2(x, \xi)$  — функции распределения невозбужденных и возбужденных частиц активного газа,  $f_3(x, \xi)$  — функция распределения частиц буферного газа,  $\Gamma_s$  — частота спонтанного распада,  $g_1$  и  $g_2$  — ста-

тистические веса основного и возбужденного уровней,  $G=Ed_{21}/2\hbar$ ,  $\mathbf{k}$  — волновой вектор излучения,  $\Omega$  — отстройка частоты излучения от частоты центра линии перехода,  $\Gamma$  — полуширина перехода,  $E$  — амплитуда электрического поля,  $d_{21}$  — дипольный момент перехода; здесь пренебрегается световым давлением, столкновительным «тушением» и резонансным обменом. Последнее условие не имеет значения в случае плотного буферного газа, когда столкновения частиц активного газа между собой на нескольких порядков более редкие, чем столкновения с буферным газом.

Применение метода прямого статистического моделирования к расчету скорости светоиндуцированной диффузии имеет две особенности. Первая состоит в том, что задача сильно нелинейная, а скорости диффузии очень малы. Максимальные скорости достигнуты в экспериментах с парами натрия в инертных газах и оцениваются в 1–3% от тепловой скорости частиц [7, 8]. Вторая особенность — резкое изменение вероятности поглощения в зависимости от скорости частицы. Если первая сложность преодолевается накоплением статистики на большом числе моделирующих частиц, то вторая вынуждает решать задачу с минимальным временным шагом.

Принятая в данной работе модифицированная схема Берда [9] с линейной связью числа моделирующих частиц и времени расчета устраняет перечисленные выше сложности. Большое число частиц каждого сорта в ячейке  $N_0 \sim (2-8) \cdot 10^3$  позволяет использовать в схеме Берда малый временной шаг и сильно ослабляет корреляции. Ввод в схему Берда розыгрыша одного из событий — столкновения или перехода из сорта в сорт для каждой выбранной частицы активного газа — также снижает корреляции и позволяет работать с более крупным шагом по времени. Консервативный по импульсу и энергии розыгрыш начального максвелловского распределения исключает начальную флуктуационную ошибку в импульсе смеси.

В силу малости скоростей светоиндуцированной диффузии вопрос о консервативности расчетной схемы является принципиальным. В пространственно однородной задаче единственным источником неконсервативности служит весовая схема, флуктуационный «шум» которой оказывается сопоставимым с самой получаемой величиной скорости. Если ограничиться случаем сопоставимых числовых плотностей активного и буферного газов и рассматривать не слишком слабые режимы, то число частиц всех сортов оказывается одного порядка, что при большом числе моделирующих частиц дает возможность решать задачу без весовой схемы.

В наиболее часто встречающейся в экспериментах ситуации, когда плотность и числовая плотность буферного газа много больше соответствующих плотностей активного газа, также можно обойтись без весовой схемы. Плотный буферный газ представляет собой термостат с заданной температурой, так что влияние стенки на скорость светоиндуцированной диффузии распространяется только в кнудсеновском слое и решение внешней задачи совпадает с решением пространственно однородной задачи. В этом случае диффузия полностью описывается уравнениями

$$\int (f_1' f_B - f_1 f_B) |\xi_1 - \xi_B| d\sigma_{1B} d\xi_B + Q_1 = 0 \quad (1.2)$$

$$\int (f_2' f_B' - f_2 f_B) |\xi_2 - \xi_B| d\sigma_{2B} d\xi_B - Q_1 = 0 \quad (1.3)$$

$$f_B = n_B \left( \frac{m_B}{2\pi k_B T_0} \right)^{3/2} \exp\left( -\frac{m_B \xi^2}{2k_B T_0} \right)$$

Здесь  $m_B$  — масса частицы буферного газа,  $T_0$  — температура буферного газа,  $k_B$  — константа Больцмана,  $n_B$  — числовая плотность буферного газа.

Задача прямого статистического моделирования сводится к розыгрышу столкновений моделирующих частиц активного газа с моделирующими частицами буферного газа, неизменно распределенными в соответствии с консервативно разыгранной максвелловской функцией.

При разумных затратах машинного времени можно получить результаты с относительной ошибкой 3–4%. Тестами служили случаи отсутствия диффузии – равенство газодинамических сечений возбужденных и невозбужденных частиц активного газа, а также случай симметрии функций распределения  $\Omega=0$ .

Если  $d\sigma_{2B}/d\sigma_{1B}=\beta=\text{const}$ , то существует еще одна проверка точности расчетов. Сумма уравнений (1.2) и (1.3) дает

$$\int (f_{ef}' f_B' - f_{ef} f_B) |\xi_{ef} - \xi_B| d\sigma_{efB} d\xi_B = 0$$

$$d\sigma_{efB} = d\sigma_{1B}, \quad f_{ef} = f_1 + \beta f_2$$

Решением этого уравнения является равновесная функция

$$f_{ef} = f_1 + \beta f_2 = [\beta n_A + n_1 (1 - \beta)] \left( \frac{m_A}{2\pi k_B T_0} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{m_A \xi^2}{2k_B T_0}\right) \quad (1.4)$$

Здесь  $m_A$  – масса частицы активного газа,  $n_A = n_1 + n_2$ ,  $n_1$ ,  $n_2$  – числовые плотности компонентов активного газа. Из (1.4) следует равенство

$$U = -(\beta - 1) \frac{n_2 U_2}{n_A} = \frac{(\beta - 1) n_1 U_1}{\beta n_A}, \quad U = \frac{n_1 U_1 + n_2 U_2}{n_A} = \frac{Uk}{k} \quad (1.5)$$

точность выполнения которого позволяет оценить ошибку расчета. Здесь  $U_1$  и  $U_2$  – скорости компонентов активного газа.

Во всех приведенных ниже расчетах относительная ошибка составляет не более 3–4%.

Уравнения (1.2), (1.3) в модели сильных столкновений имеют вид

$$v_1 n_1 W - v_1 f_1 + Q_1 = 0, \quad v_2 n_2 W - v_2 f_2 - Q_1 = 0 \quad (1.6)$$

$$W = \left( \frac{m_A}{2\pi k_B T_0} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{m_A \xi^2}{2k_B T_0}\right)$$

Модель сильных столкновений (1.6) дает выражение, аналогичное (1.5). В силу постоянства частоты столкновений  $v$ , используемой в модели, оно имеет вид

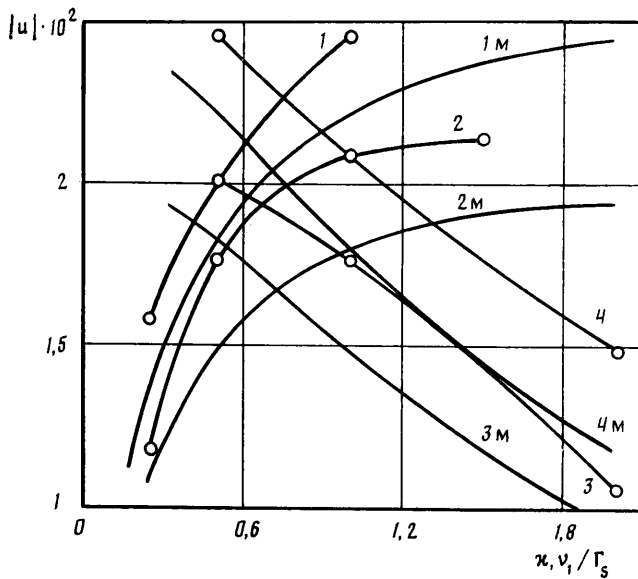
$$U = -\frac{(v_2 - v_1) n_2 U_2}{v_1 n_A} = \frac{(v_2 - v_1) n_1 U_1}{v_2 n_A}$$

2. Анализ точности модели сильных столкновений проведен для наиболее скоростных, а потому часто встречающихся в эксперименте режимов диффузии атомов. Диапазон изменения давления буферного газа  $v_1/\Gamma_s = 0,5 - 2$  (соответствует давлениям в несколько десятков торр). Параметр однородного насыщения  $\kappa$  варьируется в пределах

$$\kappa = 2|G|^2 g_2/k_B v_0 \Gamma_s = 0,25 - 1,5, \quad v_0 = (2k_B T_0/m_A)^{1/2}$$

В этом разделе предполагается, что частицы рассеиваются как псевдомакселловские сферы. При таком рассеянии наиболее просто интерпретируются не зависящие от относительной скорости частиц частоты столкновений, входящие в модель сильных столкновений. В этом разделе под  $u$  следует понимать скорость диффузии, обезразмеренную к тепловой скорости  $v_0$ .

Из (1.6) следует, что в модели сильных столкновений величина скорости диффузии при заданной частоте столкновений не зависит от отношения масс частиц активного и буферного газов. Однако анализ уравнений



Фиг. 1

движения для элементарного акта рассеяния приводит к существованию такой зависимости. В тяжелом буферном газе частицы активного газа быстрее максвеллизуются. Для того чтобы исследовать процесс максвеллизации для различных соотношений  $m_B/m_A$  в чистом виде, при одних и тех же спектроскопических величинах, во всех расчетах приняты некоторые характерные для диффузии атомов параметры

$$\frac{\nu_2 - \nu_1}{\nu_1} = 0,37, \quad \frac{\Omega}{k\nu_0} = 0,6, \quad g_1 = 2, \quad g_2 = 4,$$

$$\frac{\Gamma}{k\nu_0} = \frac{1/2\Gamma_s + \gamma}{k\nu_0} = 0,071 \left( \frac{1}{2} + \frac{\gamma}{\Gamma_s} \right)$$

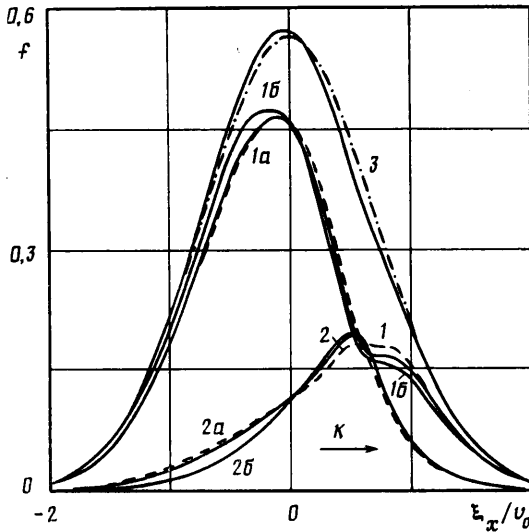
Столкновительная полуширина перехода  $\gamma$  обычно порядка частоты столкновений и принята равной  $\gamma = 2\nu_1$ .

Функции  $f_1$  и  $f_2$  связаны выражением (1.4). Если поле достаточно сильное и частота столкновений мала по сравнению с частотами светоиндуцированных переходов, то интегралы столкновений в (1.2), (1.3) играют незначительную роль в определении функций  $f_1$  и  $f_2$ , а значит, согласно (1.5), и в определении скорости диффузии. Если частота столкновений велика, то функции  $f_1$  и  $f_2$  «размываются» столкновениями и не сильно отличаются от максвелловских, а частицы активного газа лучше максвеллизуются после столкновения.

Таким образом, ошибка модели должна проявляться наиболее сильно, когда частоты столкновений и светоиндуцированных переходов одного порядка.

На фиг. 1 показаны зависимости скорости диффузии от параметра однородного насыщения  $\kappa$  при постоянном давлении (кривые 1-1M -  $\nu_1/\Gamma_s = 0,5$ , 2-2M -  $\nu_1/\Gamma_s = 1$ ) и от давления (от  $\nu_1/\Gamma_s$ ) при фиксированном параметре насыщения (кривые 3-3M -  $\kappa = 0,5$ , 4-4M -  $\kappa = 1$ ). Кривые 1M-4M являются решениями в модели сильных столкновений, кривые 1-4 - решениями уравнений Больцмана. Отношение масс  $m_B/m_A = 3,6435$ .

Как и следовало ожидать, наибольшая относительная ошибка модели  $|(u - u_M)/u|$  имеет место в области близких частот. При  $\kappa = 0,25$  эта ошибка уменьшается с ростом давления; при  $\kappa = 0,5$  она увеличивается для



Фиг. 2

$v_1/\Gamma_s \approx 0,5-1,5$  и медленно падает для  $v_1/\Gamma_s \approx 1,5-2$ ; при  $\kappa=1$  наблюдается рост ошибки с увеличением давления.

Рассмотренный случай наиболее благоприятен для модели сильных столкновений, так как рассеяние происходит в тяжелом буферном газе, и в проведенных расчетах ошибка модели невелика, однако и здесь она составляет 10–20%.

Ниже представлена зависимость скорости диффузии от соотношения масс частиц для типичной ситуации  $v_1/\Gamma_s=1$  при двух характерных параметрах насыщения:  $\kappa=0,5$  и 1, которым в модели сильных столкновений соответствуют скорости  $U_M=-0,0148$  и  $-0,0180$ :

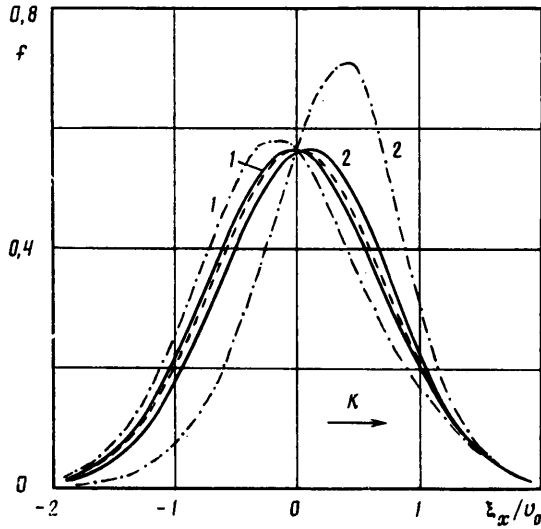
$m_B/m_A$	3,6435	1,7365	0,1739
$\kappa=0,5$	-0,0177	-0,0182	-0,0241
$\kappa=1$	-0,0209	-0,0218	-0,0270

Сравнение этих значений показывает, что ошибка модели для относительно легкого ( $m_B/m_A \approx 0,2$ ) буферного газа может достигать 30–40%.

На фиг. 2 показаны функции распределения  $f_1$  и  $f_2$  при  $\kappa=0,5$  и  $v_1/\Gamma_s=1$  для отношений масс  $m_B/m_A=3,6435$ , (сплошные кривые 1а и 2а соответственно) и 0,1739 (сплошные кривые 1б и 2б), а также  $f_1$  и  $f_2$ , полученные в модели сильных столкновений (штриховые кривые 1 и 2). Если буферный газ тяжелый, то модельные функции распределения близки к точным, в противном случае они заметно различаются. Кривая 3 — функция распределения всего активного газа и построена для  $m_B/m_A=3,6435$ , штрихпунктирная кривая — равновесная максвелловская функция.

Степень максвеллизации столкнувшейся группы частиц иллюстрируется фиг. 3, где даны функции распределения столкнувшихся невозбужденных (кривые 1) и возбужденных (кривые 2) частиц активного газа для приведенных на фиг. 2 двух случаев. Сплошные кривые соответствуют  $m_B/m_A=3,6435$ , штрихпунктирные  $m_B/m_A=0,1739$ , штриховая кривая — максвелловская функция модели сильных столкновений. В относительно легком буферном газе максвеллизация за одно столкновение не происходит, что и приводит к большой ошибке модели. В тяжелом буферном газе ( $m_B \gg m_A$ ) степень максвеллизации велика и модель сильных столкновений является достаточно точной.

3. Зависимость скорости светоиндуцированной диффузии от потенциала взаимодействия частиц исследована для псевдомакселловских сфер,



Фиг. 3

твердых сфер и степенных потенциалов отталкивания  $F=\alpha/r^2$ , где  $F$  — сила, действующая на частицы. Расчеты выполнены для  $\eta=9$ ,  $\eta=7$  — аналог потенциала Ван-дер-Ваальса,  $\eta=5$  — максвелловский потенциал. Предполагалось, что все частицы взаимодействуют по одному и тому же закону. Неизвестный параметр  $\alpha$  определялся из условия совпадения равновесных средних транспортных частот столкновений с частотами  $\nu_{hs}$  в модели твердых сфер, использующей «номинальный диаметр» частицы.

Выражение для транспортной частоты имеет вид

$$\nu_t = n \int c_r (1 - \cos \chi) b db d\epsilon \quad (3.1)$$

Здесь  $n$  — числовая плотность газа (в случае  $n_B \gg n_A$   $n=n_B$ ),  $c_r$  — относительная скорость,  $b$  — прицельный параметр,  $\epsilon$  — азимутальный угол,  $\chi$  — угол рассеяния в системе центра масс. Из (3.1) для степенных потенциалов нетрудно получить

$$\nu_t = 2\pi n \left( \frac{\alpha}{m_r} \right)^l c_r^{1-2l} A_1(\eta) \quad (3.2)$$

$$A_1(\eta) = \int_0^\infty (1 - \cos \chi) W_0 dW_0, \quad W_0 = b \left( \frac{m_r c_r^2}{\alpha} \right)^{1/2}$$

Здесь  $m_r$  — приведенная масса,  $l=2/(\eta-1)$ .

Усреднение (3.2) и приравнивание результата к средней частоте столкновений твердых сфер дает

$$\alpha^l = \frac{(2k_B T_0)^l \sigma_{hs}}{2\pi A_1(\eta) \Gamma(2-l)}$$

Здесь  $\Gamma(x)$  — гамма-функция,  $\sigma_{hs}$  — сечение столкновения твердых сфер.

Следуя [3–5], полуширина перехода  $\Gamma$  принята не зависящей от скорости частицы. Таким образом, исследуется влияние потенциалов на «чистую» газодинамику.

В верхней части таблицы даны скорости диффузии для рассмотренного выше случая  $\nu_t/\Gamma_s=1$ ;  $\kappa=0,5$ ;  $m_B/m_A=3,6435$ . Скорость диффузии не сильно зависит от потенциала взаимодействия и приближение постоянной частоты работает удовлетворительно. Уменьшение скорости диффу-

Скорости	Псевдомаксвелловские сферы	$\eta=5$	7	9	Твердые сферы
$U/v_0$	-0,0177	-0,0174	-0,0163	-	-0,0159
$U_A/v_{0B}$	-0,0136	-0,0171	-0,0146	-0,0132	-0,0134
$U_B/v_{0B}$	0,0085	0,0107	0,0091	0,0082	0,0083

зии при возрастании «жесткости» потенциала и совпадение результатов для максвелловских частиц и псевдомаксвелловских сфер в пределах точности расчета можно объяснить слабым влиянием неізотропности рассеяния на плотном буферном газе при  $m_B \gg m_A$ . Главную роль играет зависимость частоты столкновений от относительной скорости и эта частота оказывается выше равновесной частоты, за исключением случая  $v = \text{const}$ , когда они совпадают. Чем больше частота столкновений, тем сильнее «размываются» пик и провал в функциях распределения компонентов активного газа вблизи резонанса поглощения, направленная скорость компонентов уменьшается. Согласно (1.5), это приводит к снижению скорости диффузии.

Если буферный газ не плотный, задача описывается уравнениями (1.1). Функция распределения буферного газа близка к равновесной. Столкновения активного газа с буферным обладают прежними свойствами, а столкновения возбужденных частиц между собой, наоборот, наиболее сильно размажут относительно узкий пик в случае, когда частота столкновений не зависит от относительной скорости. В условиях частичной компенсации этих факторов может проявиться влияние неізотропности рассеяния.

В нижней части таблицы приведены скорости активного ( $U_A$ ) и буферного ( $U_B$ ) газов в пространстве без стенок для  $\Omega/kv_{0B}=0,9$ ;  $g_1=4$  и  $g_2=10$ ;  $\Gamma/kv_{0B}=0,2$ ;  $m_B/m_A=2$ ;  $\kappa=2|G|^2g_2/kv_{0B}\Gamma_s=2,5$ ;  $v_0/\Gamma_s=3,27$ ;  $d_1/d_3=-0,75$   $d_2/d_1=1,4$ ;  $n_B/n_A=0,8$ .

Здесь  $d_1, d_2, d_3$  — «номинальные диаметры» частиц,  $v_0$  — средняя равновесная частота столкновений в газе,  $v_{0B} = (2k_B T_0/m_B)^{1/2}$ . Наибольшее различие скоростей получено для максвелловских частиц и псевдомаксвелловских сфер. Результаты для последних, твердых сфер, а также частиц с  $\eta=9$  совпадают в пределах точности расчетов. В этих условиях решающего влияния неізотропности рассеяния приближение постоянной частоты столкновений также может привести к ошибке. Наконец, из таблицы видно, что при изменении потенциала взаимодействия скорость диффузии может меняться на 10–30%.

Автор благодарит М. Н. Когана за внимание к работе и полезные обсуждения, А. А. Абрамова и М. С. Иванова за советы по методике расчета, С. В. Иванова за полезные обсуждения.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гельмуханов Ф. Х., Шалагин А. М. Светоиндуцированная диффузия газов // Письма в ЖЭТФ. 1979. Т. 29. Вып. 12. С. 773–776.
2. Раугиан С. Г., Смирнов Г. И., Шалагин А. М. Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул. Новосибирск: Наука, 1979. 310 с.
3. Гельмуханов Ф. Х., Шалагин А. М. Светоиндуцированный ток в слабоионизированной плазме // Квантовый электрон. 1981. Т. 8. № 3. С. 590–594.
4. Панфилов В. Н., Струнин В. П., Чаповский П. Л. Исследование светоиндуцированного дрейфа молекул  $\text{CH}_3\text{F}$  // ЖЭТФ. 1983. Т. 85. Вып. 3(9). С. 881–892.
5. Gel'mukhanov F. Kh., Pichov L. V., Shalagin A. M. Kinetic theory of light-induced drift of gas particles // Physica. 1986. V. 137A. № 3. P. 502–530.
6. Гельмуханов Ф. Х., Шалагин А. М. Теория явления светоиндуцированной диффузии // ЖЭТФ. 1980. Т. 78. Вып. 5. С. 1672–1686.
7. Атугов С. Н., Ермолаев И. М., Шалагин А. М. Исследование светоиндуцированного дрейфа паров натрия // ЖЭТФ. 1987. Т. 92. Вып. 4. С. 1215–1227.
8. Atutov S. N., Lesjak St., Pod'jachev S. P., Shalagin A. M. Movement of a Na-vapor cloud by light-induced drift // Opt. Commun. 1986. V. 60. № 1–2. P. 41–44.
9. Берд Г. Молекулярная газовая динамика. М.: Мир, 1981. 319 с.

Москва

Поступила в редакцию  
11.IX.1989