# Excitation and Emission of Argon behind the Front of Shock Waves at Speeds of 4.5 ÷ 7.8 km/s. II. Analysys of Experimental Results

## N.G. Bykova, I.E. Zabelinskii, V.Yu. Levashov, O.P. Shatalov

Institute of Mechanics Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119192, Russia vyl69@mail.ru

#### Abstract

In this paper the analysis of experimental data concerning pure argon radiation behind strong shock wave [1] are presented. These results were obtained in the range of shock wave velocities  $4.5 \div 7.8$  km/s and pressures ahead of the wave front 1Torr. The estimation of electron concentration at which avalanche increase in radiation intensity take place is given on the base of simple argon atom model. The estimation of the electronic states population temperature was done using the argon excitation level concentrations data and assumption of their Boltzmann distribution. The presented estimations are shown that electronic states population temperature are significantly differ from the temperature of the gas behind shock wave front. The discussion concerning initial radiation step is presented.

Keywords: shock wave, experiment, non equilibrium radiation, argon, concentration of free electrons



УДК 533.6.071+533.6.078+533.92+535.23+51.72

# Возбуждение и излучение аргона за фронтом ударных волн при со скоростях 4.5 ÷ 7.8 км/с. II. Анализ экспериментальных результатов

## Н.Г. Быкова, И.Е. Забелинский, В.Ю. Левашов, О.П. Шаталов

НИИ Механики Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, Москва, 119192, Мичуринский проспект, 1

vyl69@mail.ru

#### Аннотация

Настоящая работа является продолжением работы [1]. В работе представлен анализ экспериментальных данных [1] по излучению чистого аргона за фронтом сильной ударной волны в диапазоне скоростей 4.5 ÷ 7.8 км/с и давлений перед фронтом волны 1 Торр. На основе упрощенной модели атома аргона приведены оценки концентрации электронов, при которой начинается резкое увеличение интенсивности излучения. С использованием данных по изменению концентрации возбужденных состояний делаются оценки температуры заселения электронных состояний в предположении их больцмановского распределения. Приведенные оценки показывают, что температура заселения существенно отличается от температуры газа за фронтом ударной волны. Приведено обсуждение начального участка излучения.

Ключевые слова: ударная волна, эксперимент, неравновесное излучение, аргон, концентрация свободных электронов

### 1. Введение

В работе [1] получены данные об излучении аргона в широком диапазоне скоростей ударных волн и в широком спектральном интервале. В частности, измерены времена задержки излучения (или период индукции) за фронтом волны, измерено следующее за периодом индукции время лавинообразного нарастания излучения, получены абсолютные значения интенсивности излучения в различные моменты времени после прохождения ударной волны и их значения в максимуме на различных длинах волн.

Настоящая работа посвящена кинетическому анализу результатов, полученных в [1]. В частности, предложена модель кинетических процессов, ответственных за задержку роста излучения аргона, дана оценка населенности энергетических уровней аргона на этом начальном этапе возбуждения и излучения аргона и приведена оценка влияния электронов на этом этапе.

Процессы возбуждения и ионизации атомов электронным ударом, приводящие, в частности, к лавинообразному нарастанию излучения газа за фронтом ударной волны, рассматривались в литературе достаточно широко [2–4]. В то же время процесс начального накопления электронов и возбуждённых атомов, проявляющийся как период индукции излучения, до последнего времени не имеет однозначной интерпретации. Если в классической работе [3] и в ряде последующих работ этот период связывается с влиянием легко ионизующихся примесей в ударных трубах, то в более поздних исследованиях, например, в [4], основной причиной возникновения ионов аргона на начальной стадии ионизации считаются неупругие столкновения атомов аргона между собой. Это утверждение основывается на низких концентрациях примесей в проводимых экспериментах. Учитывая, что количество неконтролируемых примесей в экспериментах [1] составляла порядка 10 ppm, в настоящей работе также предполагается, что основной причиной возбуждения и ионизации аргона в период индукции являются столкновения невозбуждённых атомов аргона. Это подтверждается и сделанными оценками влияния электронов на концентрацию возбужденных атомов аргона в этот период.

## 2. Анализ экспериментальных данных

### 2.1. Описание модели

Методика регистрации излучения аргона за фронтом ударной волны подробно описана в работе [1]. Здесь отметим лишь важные для дальнейшего анализа результаты. В [1] экспериментально наблюдались следующие спектральные линии излучения аргона: 420, 696.5 и 738 нм. Эксперименты были выполнены на двух ударных трубах (УТД и УТС). Каждая из труб оборудована двумя измерительными секциями с оптическими окнами со щелями порядка 0.1 мм. Наличие двух измерительных секций позволяло в одном эксперименте регистрировать временное и спектральное распределение излучения газа за фронтом ударной волны. Измерение скорости ударной волны осуществлялось с помощью пьезоэлектрических датчиков с точностью не хуже 1 %. Откачка обеих труб осуществлялась с помощью турбомолекулярного насоса HiPace 80 до остаточного давления  $2 \times 10^{-5}$  Topp. Натекание в установках не превышало  $10^{-5}$  Topp/мин и определялось в основном десорбцией газа со стенок. Количество неконтролируемых примесей в экспериментах не превышало  $3 \times 10^{-5}$ Торр. Исследованный в работе диапазон скоростей ударных волн соответствует диапазону температур непосредственно за ударно-волновым скачком от 13800 до 40900 К.

В таблице 1 представлены уровни энергии, переходы между которыми соответствуют наблюдаемым в работе спектральным линиям.

			1 dostitiya 1
$\lambda$ , nm	$E_k$ , эВ	<i>Е</i> <sub><i>i</i></sub> , эВ	$arepsilon_0, \Im { m B}$
738.398	11.624	13.302	2.458
696.543	11.548	13.328	2.432
420.067	11.548	14.499	1.261

Таблица 1

В этой таблице  $E_i$  – энергия верхнего (излучающего) уровня;  $E_k$  – энергия нижнего уровня;  $\varepsilon_0$  – разница энергий между энергией ионизации (15.76 эВ) и энергией верхнего уровня  $E_i$ .

Таким образом, имеется следующая 4-х уровневая модель атома аргона.

Таблица 2

Ν	$E_i$ , э ${ m B}$	$arepsilon_0$ , э ${ m B}$
0	0.00	15.76
1	13.302	2.458
2	13.328	2.432
3	14.499	1.261
4	15.76	0.00

В таблице 2 уровень с номером N=0 соответствует аргону в основном состоянии, а номером N=4 обозначен ион аргона.

Характерный график изменения интенсивности излучения отдельной линии представлен на рис. 1. Из рисунка видно, что после прихода в измерительное сечение ударной волны

(точка A на рисунке) наблюдается медленное нарастание интенсивности излучения (участок AB). В некоторый момент времени (точка B) интенсивность излучения резко возрастает до максимальной величины (участок BC), а далее наблюдается медленный спад интенсивности.



Рис. 1. Характерный график изменения интенсивности излучения линии 696.6нм атома аргона при начальном давлении 1 Торр и скорости ударной волны 6.23 км/с

В настоящей работе основное внимание уделяется начальному этапу возбуждения аргона, т.е. участку между точками A и B на рис. 1. Концентрация аргона в возбуждённом электронном состоянии за фронтом ударной волны на этапе индукции (между точками A и B на рис. 1) определяется скоростью заселения возбуждённого состояния в столкновениях с невозбуждённым аргоном и электронами, последующим обеднением этого состояния при ионизации или при переходе на более высокие энергетические уровни, а также за счет высвечивания. Например, скорость заселения аргона в состоянии с энергией  $E_1$ =13.302эB определяется возбуждением этого состояния в столкновениях с невозбуждённым аргоном и с электронами (т.е. переход 0-1), ионизацией (т.е. переход 1-4), переходами на более высокие энергетические уровни (т.е. переходы 1-2, 1-3) и излучением.

Из таблицы 2 видно, что энергия возбуждения наиболее низкого уровня N=1 (13.3 эВ) значительно превышает энергию, необходимую для последующего перехода из этого состояния на более высокие уровни или на ионизацию (2.458 эВ). Фактически это означает, что основным процессом, лимитирующим скорость изменения концентрации возбуждённого уровня N=1, является процесс его возбуждения в столкновениях 0-1.

Учитывая описанные выше процессы, скорость изменения концентрации k-го возбуждённого уровня ( $n_k$ ) можно записать в следующем виде:

$$N_{A}\frac{\mathrm{d}n_{k}}{\mathrm{d}t} = K_{0-k}^{Ar}n_{0}n_{0} + K_{0-k}^{e}n_{e}n_{0} - K_{k-4}^{Ar}n_{k}n_{0} - K_{k-4}^{e}n_{k}n_{e} - A_{k}N_{A}n_{k}$$
(1)

Здесь  $N_A$  – постоянная Авогадро;  $A_k$  – коэффициент Эйнштейна;  $K_{0-k}^{\text{Ar}}$  – константа образования возбужденного аргона (состояние k) из основного состояния в результате столкновений с аргоном;  $K_{k-4}^{\text{Ar}}$  – константа ионизации (т.е. переход в состояние 4) из возбужденного состояния (из состояние k) в результате столкновений с аргоном в основном со-

стоянии;  $K_{0-k}^{e}$  – константа скорости образования возбужденного аргона из основного состояния в результате столкновений с электроном;  $K_{k-4}^{e}$  – константа скорости ионизации из возбужденного состояния в результате столкновений с электроном.

Для того чтобы воспользоваться выражением (1) необходима информация о соответствующих константах, а также концентрации электронов.

Значения константы  $K_{k-4}^{\text{Ar}}$  вычисляются на основании данных работы [6].

$$K_{k-4}^{\text{Ar}} = 5.4641 \times 10^{10} \cdot T^{\frac{1}{2}} \left(\frac{13.6}{\varepsilon_0}\right)^2 \cdot e^{\frac{-\varepsilon_0}{k_B T}} \left[\frac{1}{2} + \frac{8.617 \times 10^{-5} T}{\varepsilon_0}\right]$$
(2)

Величина константы скорости возбуждения из основного состояния в столкновениях с аргоном в основном состоянии определяется согласно соотношению [7].

$$K_{0-k}^{Ar} = 1.704 \times 10^{10} \left(T\right)^{\frac{1}{2}} \left(\varepsilon_0^{eV}\right)^{-2.26} \left(\varepsilon_0^{eV} + 1.723 \times 10^{-4}T\right) \cdot e^{\frac{-\varepsilon_0^{eV}}{T} \cdot 11604.97}, \quad k = 1, 2, 3$$
(3)

В литературе представлены различные выражения для констант скорости реакции возбуждения аргона электронным ударом (реакция  $Ar_0 + e^- \leftrightarrow Ar_k + e^-$ ). Здесь  $Ar_0 - аргон в$  основном состоянии;  $Ar_k - аргон в k$ -м возбужденном состоянии. В работах [7, 8] эта константа имеет следующий вид:

$$K_{0-k}^{e} = 2 \times 10^{8} T_{e}^{3/2} \left( \frac{\varepsilon_{0}^{K}}{T_{e}} + 2 \right) \exp\left(-\frac{\varepsilon_{0}^{K}}{T_{e}}\right)$$
(4)

Здесь  $\varepsilon_0^K$  – энергия порога реакции в кельвинах (см. таблицы 1 и 2);  $T_e$  – температура газа свободных электронов.

При рассмотрении процесса ионизации аргона электронным ударом из возбужденного состояния (реакция  $Ar_k + e^- \leftrightarrow Ar^+ + e^-$ , здесь  $Ar^+ \equiv Ar_4$  – ион аргона, т.е. аргон в состоянии 4 согласно принятой модели) и из основного состояния (реакция  $Ar_0 + e^- \leftrightarrow Ar^+ + e^- + e^-$ ) используется следующее выражение для константы скорости [9]:

$$K_{k-4}^{e} = 6.022 \times 10^{23} \exp\left(-\frac{\varepsilon_{0}^{K}}{T_{e}}\right) \left(\frac{T_{e}}{\varepsilon_{0}^{K}}\right)^{1/2} \sum_{n=0}^{5} a_{n} \left(\lg\left(\frac{T_{e}}{\varepsilon_{0}^{K}}\right)\right)^{n},$$

$$a_{0} = 9.4727 \times 10^{-8}; \quad a_{1} = 1.491 \times 10^{-9}; \quad a_{2} = -5.9294 \times 10^{-8};$$

$$a_{3} = 1.7977 \times 10^{-8}; \quad a_{4} = 1.2962 \times 10^{-8}; \quad a_{5} = -9.7203 \times 10^{-9}$$
(5)

#### 2.2. Влияние электронов на величину интенсивности излучения

Как отмечалось в [1], наблюдаемое в экспериментах фоновое излучение, являющееся, по-видимому, тормозным излучением электронов, близко по характеру изменения к временной эволюцией излучения атомарных линий. В связи с этим в первом приближении будем считать, что соотношение между интенсивностью линии и интенсивностью фона сохраняется постоянным. Как следствие, можно предположить, что  $n_e/n_k = \text{const} = N_{ek}$ . В этом случае выражение (1) может быть записано следующим образом:

$$N_{A} \frac{\mathrm{d}n_{k}}{\mathrm{d}t} = K_{0-k}^{Ar} n_{0} n_{0} + K_{0-k}^{e} N_{ek} n_{k} n_{0} - K_{k-4}^{Ar} n_{k} n_{0} - K_{k-4}^{e} n_{k} N_{ek} n_{k} - A_{k} N_{A} n_{k} \tag{6}$$

Если предположить, что за время индукции (участок AB) температура за фронтом волны и концентрация основного состояния аргона изменяются мало, тогда, используя выражение (6), а также выражения (2–5), можно рассчитать эволюцию концентрации возбужденного состояния для различных значений величины  $N_{ek}$ , т.е. различной концентрации электронов. На рис. 2. приведены результаты расчетов для скорости ударной волны 4.58 км/с.



Рис. 2. Влияние концентрации электронов на величину заселенности возбужденного состояния в период индукции излучения

Из рисунка видно, что концентрация возбужденного состояния за время ~0.4 мкс достигает своего максимального значения и далее практически не меняется. Из рисунка также видно, что увеличение концентрации электронов (увеличение параметра  $N_{ek}$ ) оказывает влияние на величину концентрации возбужденного состояния. В связи с этим на рисунке ниже (рис. 3) приведено сравнение заселенностей возбужденного состояния, полученных из эксперимента с результатами расчета по выражению (6). Закрашенными точками приведено среднее значение концентрации соответствующего возбужденного состояния за время индукции (участок AB на рис. 1). Расчетные точки даны для момента времени, когда концентрация возбужденного состояния становится постоянной (см. рис. 2).



Рис. 3. Влияние электронов на концентрацию возбужденного состояния в период индукции излучения

Из представленных рисунков видно, что удовлетворительное согласие между расчетными и экспериментальными данными наблюдается в предположении  $n_e \rightarrow 0$ . Таким образом, при рассмотрении эволюции возбужденного состояния на начальном этапе влиянием электронов можно пренебречь. В этом случае выражение (1) запишется следующим образом:

$$N_{A} \frac{\mathrm{d}n_{k}}{\mathrm{d}t} = K_{0-k}^{Ar} n_{0} n_{0} - K_{k-4}^{Ar} n_{k} n_{0e} - A_{k} n_{k} N_{A}$$
(7)

Интенсивность излучения спектральной линией связана с заселенностью излучающего состояния следующим соотношением[5]:

$$I = h v A_i n_i g_i, \tag{8}$$

где I – интенсивность излучения (Вт·см<sup>-3</sup>); h – постоянная Планка;  $\nu$  – частота излучения;  $g_i$  – статвес излучающего состояния.

Используя (8) из полученных в эксперименте временных зависимостей интенсивности излучения можно получить зависимость от времени концентрации возбужденного состояния  $-n_k$  и, как следствие, скорость изменения во времени концентрации возбужденного состояния  $-dn_k/dt$ .

Как видно из рис. 1, а также из данных работы [1], после завершения начального этапа интенсивность излучения резко возрастает (участок ВС на рис. 1). Явление резкого возрастания интенсивности излучения вызвано лавинообразным увеличением числа возбужденных атомов в результате столкновений с возрастающим числом электронов. Сделаем оценку концентрации электронов, при которой начинается процесс "лавинообразования". Из (6) следует

$$n_{e} = \frac{N_{A} \frac{\mathrm{d}n_{k}}{\mathrm{d}t} - K_{0-k}^{Ar} n_{0} n_{0} + K_{k-4}^{Ar} n_{k} n_{0} + A_{k-0} N_{A} n_{k}}{K_{0-k}^{e} n_{0} - K_{k-4}^{e} n_{k}}$$
(9)

При этом, в данном выражении величина скорости изменения концентрации возбужденного состояния определяется из имеющихся экспериментальных данных [1] на участке BC (рис. 4).



Рис. 4. Зависимость скорости нарастания интенсивности излучения аргона от скорости ударной волны

Поскольку (см. выше) роль электронов на начальном этапе, вплоть до момента лавинообразования (точка В на рис. 1) мала, для оценочных расчетов по выражению (9) концентрация возбужденного уровня  $-n_k$  определяется из рис. 2 при условии  $N_{ek} = 0$ . Найденная таким образом критическая концентрация электронов, при которой начинается процесс их лавинообразного нарастания в зависимости от скорости ударной волны, представлена на рис. 5.



Рис. 5. Зависимость начальной концентрации электронов, приводящей к резкому росту излучения (возбуждения) атомов аргона в зависимости от скорости ударной волны. Начальное давление газа перед фронтом волны – 1 Торр

Из рисунка видно, что при увеличении скорости ударной волны концентрация электронов, при которой начинается резкое возрастание интенсивности излучения, уменьшается. Это, по-видимому, является естественным следствием того, что с увеличением скорости ударной волны температура газа за фронтом волны возрастает и, соответственно, возрастает константа скорости возбуждения и ионизации атомов, как и отмеченное в работе [1] сокращение времени индукции излучения.

#### 2.3. Температура заселения возбужденных состояний

Экспериментальные данные и соотношение (8) дают также возможность определить температуру заселения электронных состояний в предположении их больцмановского распределения.

$$\frac{n_i}{n_0} = \frac{g_i}{g_0} e^{-\frac{(E_i - E_0)}{kT_{Bol}}}$$
(10)

Здесь  $g_0, g_i$  – статвеса основного и возбужденного состояния соответственно;  $T_{Bol}$  – температура заселения;  $n_0, n_i$  – концентрация основного и возбужденного состояния соответственно. Результат представлен на рис. 6. На этом рисунке показана зависимость температуры заселения от скорости ударной волны, рассчитанная по выражению (10). Все приведенные результаты относятся к начальному этапу, т.е. к интервалу времени между точками А и В (рис. 1). Приведенные на рисунке данные дают возможность определять температуру заселения возбужденных состояний –  $T_{Bol}$ , что позволяет в свою очередь рассчитывать концентрацию любого возбужденного состояния с использование выражения (10).



Рис. 6. Температура заселения излучающих уровней в зависимости от скорости ударной волны до начала лавинообразного возрастания интенсивности излучения

Интересно сравнить полученные в эксперименте данные о населенности излучающих состояний аргона в период индукции излучения с расчетом в предположении о том, что температура населенностей этих уровней, равна температуре газа. Полученные результаты, представлены на рис. 7. На этом же рисунке приведены экспериментально полученные данные концентраций возбужденных состояний. Данные эксперимента соответствуют концентрациям возбужденного состояния в конце первого этапа возбуждения (для скорости ударной волны V = 6.41 км/с и  $\lambda = 738$  нм, эти данные относятся к точке В на рис. 1).



Рис. 7. Сравнение экспериментально измеряемой и вычисленной по (10) заселенностей возбужденного состояния в предположении  $T_{Bol} = T$ 

Из рисунка видно, что населенности возбужденных уровней, наблюдаемых в эксперименте, соответствует значительно более низкой температуре, чем поступательная температура газа.

## 3. Заключение

В работе представлен анализ экспериментальных данных по излучению аргона в широком диапазоне скоростей ударных волн. На основе упрощенной модели атома аргона анализируется влияние электронов на интенсивность излучения. Показано, что при рассмотрении эволюции возбужденного состояния на начальном этапе влиянием электронов можно пренебречь. Также делаются оценки "критической" концентрации электронов, при которой начинается процесс их лавинообразного нарастания. Представлены данные по расчету температуры заселения электронных состояний в предположении их больцмановского распределения в зависимости от скорости ударной волны.

## Благодарности

Авторы выражают благодарность П.В. Козлову за полезное обсуждение результатов работы.

## Литература

- Быкова Н.Г., Забелинский И.Е., Ибрагимова Л.Б., Козлов П.В., Левашов В.Ю., Шаталов О.П. Возбуждение и излучение аргона за фронтом ударных волн при скоростях 4.5÷7.8 км/с. І. Экспериментальное исследование//Физико-химическая кинетика в газовой динамике. 2017. T.18, вып. 1. http://chemphys.edu.ru/issues/2017-18-1/articles/686/
- 2. Смехов Г.Д., Лобастов Ю.С. К вопросу о начальной стадии ионизации аргона за фронтом ударной волны//ЖТФ. 1970. Т. ХL. № 8. С. 1660–1663.
- 3. Petschek H., Byron S. Approach to Equilibrium Ionization behind Strong Shock Waves in Argon // Annals of physics. 1957. No.1. Pp. 270–315.
- 4. McLaren T.I., Hobson R.M. Initial Ionization Rates and Collision Cross Sections in Shock Heated Argon//Phys. Fluids 1968. V.11. No. 8. Pp. 2162–2172.
- 5. Ельяшевич М.А. Атомная и молекулярная спектроскопия. Изд. 2-е М.: Эдиториал УРСС. 2001. 896 с.
- 6. Kappera M.G. Cambier J.-L. Ionizing Shocks in Argon. Part 1: Collisional-Radiative Model and Steady-State Structure//Journal of Applied Physics. 2011. V.109. P. 113308. doi: 10.1063/1.3585688
- 7. Viĉek J. A collisional-radiative model applicable to argon discharges over a wide range of conditions. I. Formulation and basic data//J. Phys. D: Appl. Phys. 1989. V. 22. No. 5. Pp. 623–631.
- 8. Великович А.Л., Либерман М.А. Физика ударных волн в газах и плазме. М.: Наука. 1987. 295 с.
- 9. Lennon M.A., Bell K.L., Gilbody H.B., Hughes J.C., Kingston A.E., Murray M.J., Smith F.J. Recommended Data on the Electron Impact Ionization of Atom and Ions Fluorine to Nickel//Journal of Physical and Chemical Reference Data. 1988. V.17. № 3. Pp. 1285–1363. doi:10.1063/1.555809

Статья поступила в редакцию 29 января 2018 г.