

03;04

Эволюция параметров неравновесного аэрозоля в плазме коронно-стримерного разряда

© А.В. Козырев, А.Г. Ситников, Н.С. Сочугов

Институт сильноточной электроники СО РАН

E-mail: kozyrev@to.hcei.tsc.ru

Поступило в Редакцию 21 января 2005 г.

Представлены результаты экспериментального исследования нестационарных параметров аэрозоля, образующегося из ненасыщенных паров стирола и *n*-гексана при осуществлении импульсного коронно-стримерного разряда в воздухе или аргоне атмосферного давления. Концентрация аэрозольных частиц на начальном этапе аэрозолеобразования порядка 10^7 см^{-3} , характерное время деградации неравновесного аэрозоля гексана в экспериментальной камере составляет несколько часов. Функция распределения аэрозольных частиц по размерам имеет бимодальную структуру, причем в первые секунды после образования максимальные размеры частиц не превышали $0.6 \mu\text{m}$, а по истечении нескольких часов граница спектра размеров сдвигается в микрометровый диапазон.

Известно, что химические процессы, протекающие в низкотемпературной плазме, могут приводить к образованию различных аэрозолей. Как правило, такие аэрозоли состоят из нелетучих веществ, появившихся в среде за счет протекания плазмохимических реакций [1]. Но при определенных условиях метастабильный аэрозоль может образоваться даже из ненасыщенных паров органических соединений [2], когда концентрация нелетучих продуктов из-за малости вкладываемой в плазму энергии должна быть заведомо низкой. В данной работе представлены результаты специальных экспериментов, целью которых было определение параметров такого неравновесного аэрозоля и их эволюции во времени.

Процесс образования неравновесного аэрозоля можно представить следующим образом: возникающие в газе ионы являются ядрами конденсации молекул пара, и на ядрах образуются первичные капليзародыши нанометрового размера. Дальнейшая кинетика аэрозоля зави-

сит от относительных скоростей таких взаимосвязанных процессов, как коагуляция заряженных аэрозольных частиц, их перезарядка, испарение и уход на стенки камеры.

Для возбуждения коронно-стримерного разряда использовался генератор импульсов амплитудой 80 kV, длительностью по основанию 5 ns и частотой повторения 100 Hz [3]. Энергия в электрическом импульсе составляла 0.03 J, так что средняя вкладываемая в газовую среду мощность равнялась 3 W. Высоковольтный импульс от генератора по коаксиальной линии с волновым сопротивлением 55 Ω подавался на систему электродов, состоящую из заземленного цилиндрического корпуса внутренним диаметром 110 mm и высоковольтного электрода типа „беличье колесо“, состоящего из 24 параллельных проволочек диаметром 0.2 mm. Межелектродное расстояние равнялось 2 cm. При подаче напряжения благодаря очень малой длительности импульса между электродами возбуждается незавершенный коронно-стримерный разряд.

Газ (аргон или воздух) атмосферного давления, содержащий ненасыщенный пар стирола или *n*-гексана (1–8% от давления насыщения), подавался через входной штуцер в зону разряда объемом 2 l, где инициировался процесс образования аэрозоля. Затем газ поступал в буферную аэрозольную камеру переменного объема 0.63–2.9 l, где газ частично перемешивался. Далее поток поступал в основную аэрозольную камеру объемом 31 l, изготовленную из плоского стекла в виде параллелепипеда с размерами 25 × 31 × 40 cm. Объемная скорость прокачки газа составляла 250 l/h. Измерение расхода массы углеводорода на входе в зону разряда позволило оценить массовую концентрацию углеводорода в объеме плазмы M [g/m³]. При указанных параметрах скорости прокачки газа и мощности генератора удельный энерговклад составил примерно 0.04 J/cm³.

После полного заполнения основной аэрозольной камеры, на что обычно требовалось примерно 20 min, вход и выход ее закрывались и генератор отключался. После отключения генератора в течение нескольких часов проводились измерения спектральной зависимости коэффициента ослабления оптического излучения α [m⁻¹] в диапазоне длин волн $\lambda = 360–750$ nm.

Измерения α проводились следующим образом. Излучение от источника сплошного спектра (галогенная лампа) дважды проходило через аэрозольную камеру, отражаясь от зеркала. Далее, проходя через

коллиматор, образованный двумя параллельными щелями шириной 1 mm и отстоящими друг от друга на 100 mm, свет попадал на вход монохроматора и затем на резистивный фотоприемник, напряжение на выходе которого измерялось цифровым вольтметром. Длина оптического пути света в аэрозольной камере составляла 850 mm. В экспериментах коэффициент ослабления достигал максимальных величин порядка 4.2 m^{-1} .

По результатам измерений зависимости $\alpha(\lambda)$ на основе известного метода решения обратной задачи рассеяния была определена эволюция дисперсного состава аэрозоля. В расчете использовался регуляризирующий алгоритм, основанный на построении сглаживающего функционала по методу А.Н. Тихонова и прямой минимизации его в K -мерном векторном пространстве [4].

Размеры аэрозольных частиц также контролировались и другими способами. В ряде экспериментов со стироловым аэрозолем в аргоне частицы либо осаждались на стеклянные подложки, размещенные в аэрозольной камере, либо выдувались из нее на такие же подложки, после чего полимеризовались ультрафиолетовым излучением. Полученные таким образом осадки аэрозоля исследовались с помощью оптического (МИИ-4) и атомно-силового (NT-MDT Solver P 47) микроскопов.

Эксперименты показали, что образованный из гексана аэрозоль не оставлял заметных следов на стенках камеры. Это убедительно свидетельствует о неравновесности процесса аэрозолеобразования. Аэрозоль, полученный из паров стирола, оседал на дно и стенки аэрозольной камеры. По-видимому, это происходит из-за частичной полимеризации стирола под воздействием радиационных факторов разряда. Чтобы прекратить испарение совсем, необходимо было дополнительно облучать осадок ультрафиолетовым излучением в течение нескольких минут.

На рис. 1 приведены расчетные функции распределения аэрозольных частиц стирола по размерам, полученные при обращении экспериментальных оптических данных путем решения обратной задачи рассеяния. Рисунок иллюстрирует, как меняется с течением времени функция распределения объема аэрозольных частиц $v(r)$ по радиусам. Видно, что время исчезновения аэрозоля из объема камеры составляет несколько часов и аэрозоль имеет бимодальную дисперсную структуру.

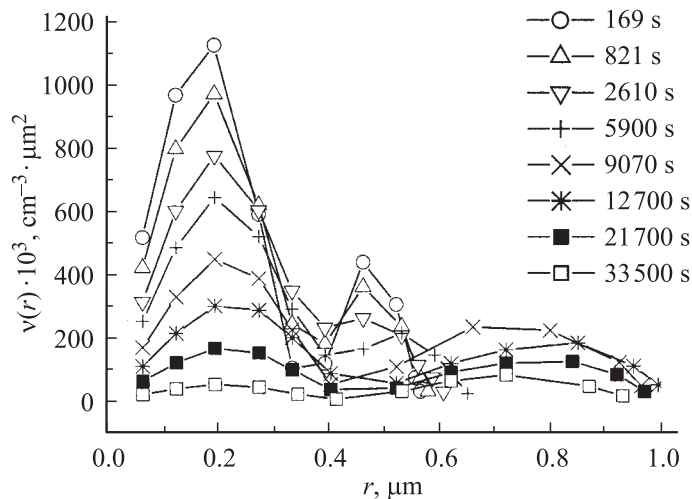


Рис. 1. Динамика объемного распределения частиц по радиусам для стирола в аргоне ($M = 1.4 \text{ g/m}^3$).

Первая группа частиц в распределении имеет модальный радиус около $0.2 \mu\text{m}$ и правую границу спектра размеров $0.4 \mu\text{m}$, причем эти параметры практически не изменяются с течением времени. Функция распределения второй группы частиц заметно меняется в процессе эволюции аэрозоля: увеличивается как модальный радиус распределения, так и ее дисперсия. По мере развития спектра размеров общая концентрация аэрозолей монотонно уменьшается, модальный радиус второй моды достигает $0.75 \mu\text{m}$, а правая граница спектра сдвигается в микрометровую область.

В таблице приведены экспериментальные данные для параметров аэрозоля в начальный момент времени (первые минуты после включения генератора) при температуре среды $T \approx 290 \text{ K}$. Здесь M — массовая концентрация пара углеводорода в газовой среде, M_0 — относительная степень насыщения пара углеводорода в процентах, M_V — массовая концентрация аэрозоля, N_a — счетная концентрация аэрозольных частиц.

Для стирола в аргоновой среде M_V на порядок выше, чем в воздухе при почти одинаковой степени насыщения $M_0 \approx 5\%$. Если принять, что

Параметры аэрозоля

Вещество	Среда	$M, \text{g/m}^3$	$M_0, \%$	$M_V, \text{g/m}^3$	N_a, cm^{-3}
Стирол	Аг	1.4	4.6	0.25	$5.3 \cdot 10^7$
Стирол	Воздух	1.46	5.2	0.09	$1.1 \cdot 10^7$
<i>n</i> -гексан	Аг	3.8	1.0	0.1	$1.1 \cdot 10^7$
<i>n</i> -гексан	Аг	21	5.2	0.07	$1.3 \cdot 10^7$
<i>n</i> -гексан	Аг	31.9	8.0	0.05	$1.4 \cdot 10^7$
<i>n</i> -гексан	Воздух	31.6	7.9	0.55	$3.0 \cdot 10^7$

ионы являются ядрами конденсации для зародышей жидкой фазы, то этот факт можно объяснить тем, что концентрация ионов при разряде в аргоне примерно на порядок больше, чем при разряде в воздухе.

Для гексана наблюдается обратная ситуация — для одинаковой $M_0 \approx 8\%$ в аргоне M_V меньше, чем в воздухе. Вероятно, это связано с тем, что в воздушной среде, содержащей кислород, за счет протекания окислительных плазмохимических реакций из стирола могут образовываться малолетучие вещества, способные к конденсации.

Интересно отметить тот факт, что при увеличении концентрации пара гексана M в аргоне массовая концентрация аэрозоля M_V уменьшается, хотя концентрация аэрозольных частиц N_a незначительно растет. По нашему предположению этот эффект связан с тем, что степень ионизации паров гексана в плазме довольно высока и заряженные молекулы гексана не переходят в конденсированную фазу.

Исследования образцов стиролового аэрозоля, полученного в аргонной среде, с помощью атомно-силового (рис. 2) и оптического микроскопов показали, что на начальном этапе радиусы аэрозольных частиц составляют сотни нанометров, на конечном — микрометры. Это вполне согласуется с данными для размеров частиц, полученными из оптической диагностики.

На рис. 2 можно увидеть, что частицы с радиусами, меньшими $0.5 \mu\text{m}$, представляют собой агломераты из капелек с радиусом порядка $0.1 \mu\text{m}$. Исследования крупных капель микрометрового размера показало, что они представляют собой цельные монолитные объекты с формой, близкой к приплюснутому сфероиду, т.е. представляют собой капельки вещества.

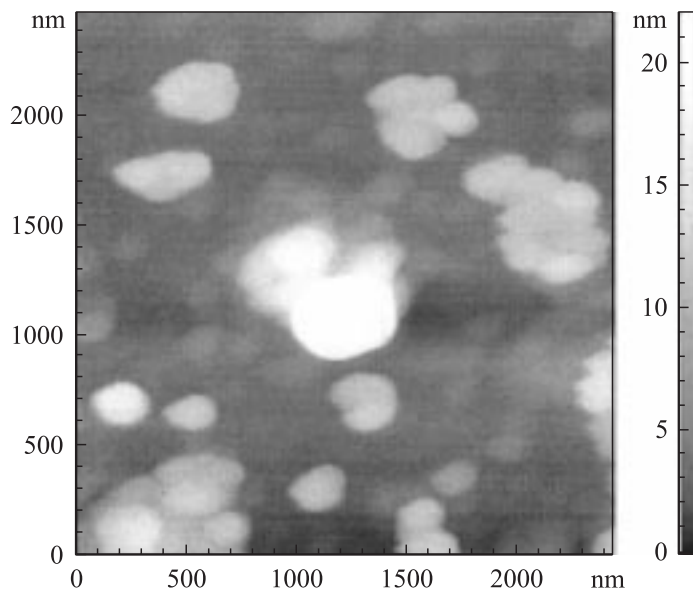


Рис. 2. Микрофотограммы аэрозольных частиц стирола, образованных при разряде в аргоне, выдутых из аэрозольной камеры на предметное стекло через 5 min после выключения генератора ($M = 1.5 \text{ g/m}^3$).

В экспериментах по образованию аэрозоля из ненасыщенных паров массовая концентрация стиролового аэрозоля коррелирует с концентрацией ионов плазмы коронно-стримерного разряда. Предложенный способ генерации аэрозоля может служить основой для получения жидкокапельного аэрозоля, очистки воздуха от органических примесей малой концентрации и получения твердых полимерных частиц субмикронного размера.

Авторы выражают благодарность Э.В. Макиенко и Р.Ф. Рахимову (Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск) за расчет функций распределения частиц по радиусу из данных оптической диагностики аэрозоля, а также К.В. Оскомову (Институт сильноточной электроники СО РАН) за получение микрофотограмм осадка на атомно-силовом микроскопе.

Список литературы

- [1] *Фортон В.Е., Храпак А.Г., Якубов И.Т.* Физика неидеальной плазмы. М.: Физматлит, 2004. 528 с.
- [2] *Бугаев С.П., Козырев А.В., Кувшинов В.А.* и др. // ДАН. 1998. Т. 361. № 5. С. 612–615.
- [3] *Bugaev S.P., Zorin V.B., Kovalchuk V.M.* // Proc. X IEEE Intern. Pulsed Power Conf. Albuquerque. New Mexico, 1995. P. 1206–1210.
- [4] *Наац И.Э.* Теория многочастотного лазерного зондирования атмосферы. Новосибирск: Наука, 1980. 157 с.