

04;08.1

## Получение аэрозольных наночастиц в многоазорном газоразрядном генераторе

© А.А. Ефимов, В.В. Иванов, А.В. Багазеев, И.В. Бекетов,  
И.А. Волков, С.В. Щербинин

Московский физико-технический институт, Долгопрудный  
Институт электрофизики УрО РАН, Екатеринбург  
E-mail: newaldan@gmail.com

Поступило в Редакцию 13 мая 2013 г.

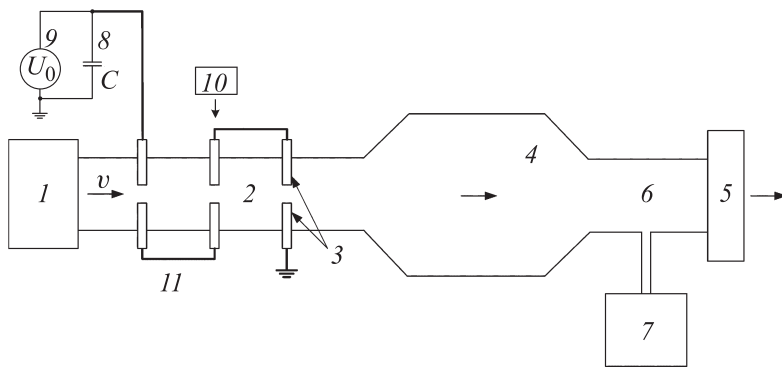
Экспериментально исследовано получение аэрозольных наночастиц, синтезируемых в процессах электроэрозионного износа трех пар электродов, включенных последовательно в разрядную цепь управляемого частотного генератора импульсных токов. В получаемых потоках аэрозолей с помощью диффузионного аэрозольного спектрометра измерялись распределения частиц по размерам при варьировании скорости потока воздуха  $v$ , частоты следования разрядов  $f$  и энергии единичного разряда  $W$ . Установлено, что управление параметрами генератора позволяет получать наночастицы (агломераты наночастиц) в широком диапазоне среднечисленных размеров  $d_{mean}$  от 8 до 75 nm со стандартным геометрическим отклонением (СГО) 1.3–2.0. Процесс роста агломератов наночастиц связан монотонной зависимостью с временем нахождения частиц в газовой атмосфере и их концентрацией.

Быстро возрастающие потребности синтеза слабо агломерированных наноразмерных частиц различных материалов обусловлены расширением спектра их применений, в частности, в технологиях функциональных нанодисперсий, печатной электронике, в технологиях накопителей энергии, в медицинской диагностике и терапии [1,2]. Особый интерес представляют методы синтеза наночастиц с размерами около 10 nm, которые в слабо агломерированном состоянии существуют, как правило, в стабилизированных суспензиях или газовых взвешях (аэрозолях). Каждому из известных методов синтеза наночастиц в газовой фазе (плазменный синтез [3], электрический взрыв проволок [4], лазерное испарение мишеней [5] и другие) свойственны определенные ограничения, например: чрезмерно широкий спектр распределения частиц

по размерам, узкий спектр синтезируемых соединений, ограничения в управлении размерами получаемых частиц. С целью расширения возможностей в последние годы проводятся исследования по развитию метода получения наночастиц в искровом режиме импульсного газового разряда, в котором синтез наночастиц происходит в результате испарения и конденсации электродного материала. В работах [6,7] была продемонстрирована возможность управления изменением среднего размера наночастиц и получения наночастиц с малыми размерами около 10 nm при самопробое газового промежутка. Недостатками такой реализации газоразрядного метода являются нестабильность напряжения самопробоя, приводящая к нестабильности дисперсного состава аэрозоля и недостаточная производительность получения частиц при одном межэлектродном промежутке.

В данной работе предложено развитие газоразрядного метода синтеза наночастиц с целью многократного увеличения его производительности и улучшения стабильности дисперсного состава частиц. Это достигается посредством последовательного включения в разрядную цепь управляемого частотного генератора импульсных токов множества одинаковых межэлектродных промежутков, в данном случае — трех. Разряд импульсного тока через такую последовательность межэлектродных промежутков включается путем подачи потенциального управляющего импульса на один из электродов, по аналогии с включением многоазорных газонаполненных разрядников [8].

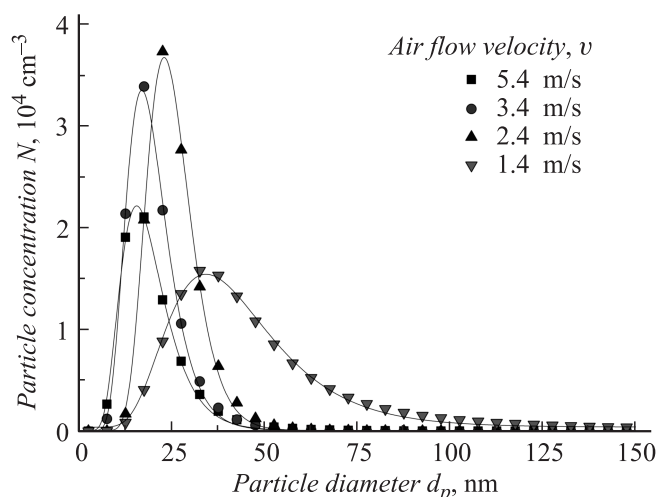
На рис. 1 представлена принципиальная схема многоазорного газоразрядного генератора. В трубчатой разрядной камере 2 с внутренним диаметром 25 mm перпендикулярно ее оси располагались три пары электродов 3 на расстоянии 50 mm друг от друга, зазоры между электродами регулировались в диапазоне 0.5–1.5 mm. Использовались цилиндрические электроды диаметром 5 mm из титана. При управляемом включении разряда емкостного накопителя энергии 8 ( $C = 0.1–3.0 \mu\text{F}$ ) через последовательно включенные межэлектродные промежутки в них формируется газовый искровой разряд длительностью порядка  $1 \mu\text{s}$ , приводящий к эрозионному испарению электродного материала. Зарядка емкостного накопителя энергии до заданного напряжения  $U_0$  осуществлялась с помощью зарядного устройства 9. Разрядные импульсы следовали с определенной частотой, регулируемой до значения  $f = 8 \text{ Hz}$  с помощью блока управляющего импульса 10. Для управления режимом синтеза наночастиц в процессах охлаждения



**Рис. 1.** Схема многогазорного газоразрядного генератора для получения наночастиц: 1 — устройство формирования потока чистого сухого воздуха, 2 — разрядная камера, 3 — разрядные электроды, 4 — камера гомогенизации потока аэрозолей, 5 — выходной фильтр, 6 — канал отбора аэрозоля для измерений, 7 — анализатор аэрозолей, 8 — емкостный накопитель энергии, 9 — зарядное устройство, 10 — блок управляющего импульса, 11 — контур импульсного разрядного тока (жирная линия).

продуктов эрозии электроды обдувались потоком очищенного сухого воздуха с регулируемой скоростью  $v$  от 0 до 6 м/с. Подача потока воздуха обеспечивалась компрессором 1. Сформированный в разрядной камере поток аэрозоля поступал в камеру гомогенизации 4, где за счет большого объема, превышающего объем разрядной камеры в 400 раз, происходило сглаживание периодических пульсаций и достигалось усреднение концентрации наночастиц в потоке. Отбор проб аэрозоля для измерений параметров наночастиц осуществлялся из воздуховода 6, обеспечивающего его транспортировку из камеры гомогенизации в выходной фильтр 5. Характеризация наночастиц в аэрозоле производилась с помощью диффузионного аэрозольного спектрометра 7 (модель ДАС 2702, ООО „АэроНаноТех“, Россия), позволяющего измерять размеры и концентрации наночастиц в диапазоне размеров от 2 до 200 нм [9]. Для контроля стабильности результатов каждое измерение повторялось не менее пяти раз.

Измерения параметров аэрозольных наночастиц, образующихся в многогазорном газоразрядном генераторе проводилось при варьировании энергии емкостного накопителя  $W$ , скорости потока воздуха  $v$  и ча-



**Рис. 2.** Влияние скорости потока воздуха  $v$  на распределение аэрозольных частиц по размерам ( $W = 0.66 \text{ J}$  и  $f = 0.5 \text{ Hz}$ ).

стоты следования разрядов  $f$ . Во всех случаях распределение частиц по размерам генерируемых аэрозолей имело нормально-логарифмический вид с положительной асимметрией.

В случае изменения энергии  $W$ , запасаемой в емкостном накопителе, путем изменения его емкости  $C$  или зарядного напряжения  $U_0$  получены ожидаемые изменения в распределении концентраций наночастиц по размерам. С ростом количества энергии  $W$  в накопителе (с  $0.04$  до  $37.5 \text{ J}$ ) возрастает импульсное выделение энергии в разрядных промежутках, приводящее к увеличению количества продуктов эрозии электродов и, как следствие, к увеличению среднечисленного размера  $d_{mean}$  синтезируемых наночастиц (с  $8$  до  $75 \text{ nm}$ ) и уширению функции распределения частиц по размерам.

С повышением скорости потока воздуха  $v$  в разрядной камере с  $1.4$  до  $5.4 \text{ m/s}$  функция распределения частиц по размерам становится более узкой СГО  $< 1.65$  и сдвигается влево в сторону малых размеров, при этом уменьшается правый „хвост“ больших размеров, отвечающий за агломерацию частиц (рис. 2). Причем динамика таких изменений различна при малых и больших скоростях. Так, увеличение скорости

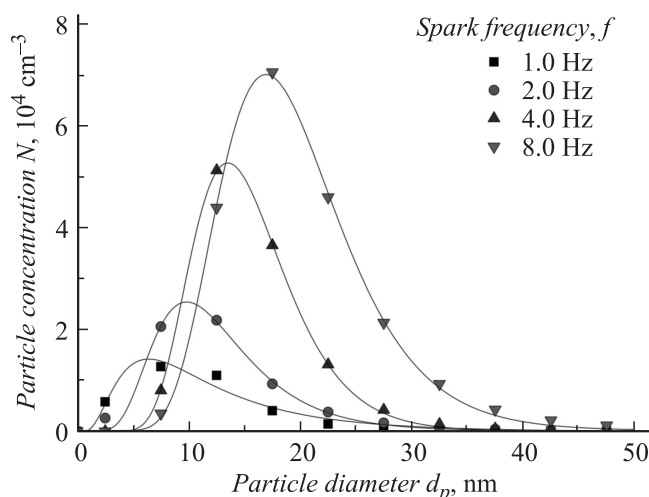
**Таблица 1.** Характеристики распределения частиц по размерам в зависимости от скорости потока воздуха  $v$  ( $W = 0.66$  J и  $f = 0.5$  Hz)

Скорость потока воздуха $v$ , m/s	Среднечисленный диаметр $d_{mean}$ , nm	Модальный диаметр $d_{mode}$ , nm	Общая концентрация частиц $N_{total}$ , $10^4$ cm $^{-3}$	СГО
5.4	20.4	15.6	7.1	1.51
3.4	20.5	16.9	9.8	1.41
2.4	25.9	23.0	11.3	1.31
1.4	50.7	33.7	12.8	1.65

**Таблица 2.** Характеристики распределения частиц в зависимости от частоты разрядов  $f$  ( $W = 0.04$  J и  $v = 3.4$  m/s)

Частота разрядов $f$ , Hz	Среднечисленный диаметр $d_{mean}$ , nm	Модальный диаметр $d_{mode}$ , nm	Общая концентрация частиц $N_{total}$ , $10^{-4}$ cm $^{-3}$	СГО
1.0	10.7	6.3	3.6	1.94
2.0	13.0	9.8	6.1	1.70
4.0	15.9	13.5	11.5	1.38
8.0	20.4	17.0	20.3	1.42

потока воздуха с 1.4 до 2.4 m/s приводило к существенному уменьшению ширины распределения частиц по размерам с 1.65 до 1.31 СГО. При скоростях потока воздуха  $v = 3.4$  m/s и выше форма функции распределения частиц по размерам и значение среднечисленного размера частиц меняются незначительно, и для максимальной скорости потока  $v = 5.4$  m/s среднечисленный размер составляет  $d_{mean} = 20.4$  nm (табл. 1). Кроме того, увеличение скорости потока с 1.4 до 5.4 m/s, как видно из табл. 1, не привело к пропорциональному уменьшению концентрации частиц аэрозоля. При этом скорость потока, а значит и объем прокачиваемого воздуха, увеличились в 3.9 раза, в то время как концентрация частиц снизилась только в 1.8 раза. Эти данные свидетельствуют о снижении роли агломерации частиц при высоких скоростях потока воздуха на всем пути их перемещения до места измерения, включая время пребывания в камере гомогенизации (рис. 1). Напротив, при скоростях потока воздуха менее  $v = 2.4$  m/s агломерация



**Рис. 3.** Влияние частоты разрядов  $f$  на распределение аэрозольных частиц по размерам ( $W = 0.04$  J и  $v = 3.4$  m/s).

частиц аэрозоля может играть значительную роль в формировании распределения частиц по размерам.

Дополнительные свидетельства об агломерации частиц по мере их движения с потоком воздуха дают данные о трансформации функции распределения частиц по размерам в зависимости от частоты следования разрядных импульсов  $f$ . Как можно видеть из рис. 3 и данных табл. 2, при увеличении частоты  $f$  пик распределения частиц по размерам (модальный диаметр частиц  $d_{mode}$ ) смещается в сторону больших размеров. Это указывает на усиление агломерации частиц, поскольку увеличивается количество испаряемого материала электродов в единицу времени. Чувствительным параметром, приводящим к значительной агломерации, в данном случае является общая концентрация наночастиц  $N_{total}$ .

Таким образом, показана возможность получения аэрозолей наночастиц с регулируемой дисперсностью в многозарядном газоразрядном генераторе. При этом наличие крупных частиц, размером порядка 50 nm, связано с агломерацией наночастиц в потоке воздуха. Снижению агломерации способствует увеличение скорости потока несущего газа

и снижение частоты следования разрядов, что приводит к снижению времени пребывания частиц в потоке и общей концентрации частиц  $N_{total}$ . Оба эти параметра могут быть использованы для управления процессами агломерации частиц в потоках аэрозолей. Управление параметрами генератора позволяет получать аэрозольные частицы в широком диапазоне среднечисленных размеров частиц от 8 до 75 nm и со стандартным геометрическим отклонением в диапазоне 1.3–2.0. Для многократного увеличения производительности синтеза наночастиц в газоразрядных генераторах перспективным направлением является использование множества одинаковых межэлектродных промежутков, включенных последовательно в разрядную цепь управляемого частотного генератора импульсных токов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации, соглашение № 14.A18.21.1250.

## Список литературы

- [1] *Gogotsi Y.* Nanomaterials Handbook. Boca Raton: Taylor & Francis Group, 2006.
- [2] *Luo X., Morrin A., Killard A.J., Smyth M.R.* // *Electroanalysis*. 2006. V. 18. N 4. P. 319–326
- [3] *Vollath D.* // *J. Nanopart. Res.* 2008. V. 10. N 1. P. 39–57.
- [4] *Комов Ю.А.* // *Российские нанотехнологии*. 2009. Т. 4. № 1–2. С. 40.
- [5] *Osipov V.V. et al.* // *Laser Phys.* 2006. V. 16. N 1. P. 116–125.
- [6] *Tabrizi N.S. et al.* // *J. Nanopart. Res.* 2009. V. 11. N 2. P. 315–332.
- [7] *Liu Z. et al.* // *Aerosol Sci. Technol.* 2012. V. 46. N 3. P. 333–346.
- [8] *Месяц Г.А.* Импульсная энергетика и электроника. М.: Наука, 2004. 705 с.
- [9] *Julanov Yu.V., Lushnikov A.A., Zagaynov V.A.* // *Atmos. Res.* 2002. V. 62. N 3–4. P. 295–302.