

04;09;12

©1995

## ГЕНЕРАЦИЯ ОЗОНА В ИМПУЛЬСНО-ПЕРИОДИЧЕСКОМ НАНОСЕКУНДНОМ СВЧ РАЗРЯДЕ В ВОЗДУХЕ

*Р.А.Ахмеджанов, А.Л.Вихарев, А.М.Горбачев, О.А.Иванов,  
Н.Г.Колганов, А.Л.Кольско, М.М.Офицеров*

В последнее время был высказан ряд предложений по использованию наносекундного СВЧ разряда в атмосфере для создания искусственного радиозеркала [1], восстановления локальной убыли озона [2,3] и очистки атмосферы [4]. Для реализации этих предложений важны знания плазмохимических процессов, протекающих в разряде, создаваемом мощными СВЧ пучками, формируемыми наземными СВЧ комплексами, а также оценка экологических последствий такого воздействия на атмосферу. Проведенные ранее исследования для СВЧ разрядов микросекундной длительности [5] в воздухе показали преимущественное образование окислов азота и весьма незначительный рост концентрации озона в разрядной области. Эффективная генерация  $O_3$  в микросекундном СВЧ разряде наблюдалась только в кислороде, в смесях  $N_2 : O_2$  с высоким содержанием кислорода или в сильно охлажденном воздухе [5-8].

В данной работе приведены результаты экспериментального исследования динамики озона в разряде другого типа: в импульсно-периодическом наносекундном СВЧ разряде. Использование наносекундных импульсов позволило впервые получить преимущественное образование озона в лабораторном воздухе (при минимальном попутном выходе окислов азота, разрушающих озон) с помощью свободно локализованного СВЧ разряда, создаваемого сходящимся волновым пучком.

В проведенных экспериментах источником СВЧ излучения 8-миллиметрового диапазона длин волн служил релятивистский карсиноotron с импульсной мощностью 10-15 МВт, длительность импульса  $\sim 5$  нс и частотой их следования  $F = 1-10$  Гц. От генератора СВЧ излучение в виде квазигауссова пучка направлялось на металлическое зеркало-параболический цилиндр. Зеркало формировало сходящийся волновой пучок. Разряд зажигался вдоль фокальной линии зеркала и имел форму цилиндра диаметром несколько

миллиметров и длиной  $\sim 30$  см. Эксперименты проводились в воздухе, кислороде и в смесях  $N_2:O_2$  в диапазоне давлений  $p = 10-100$  Тор.

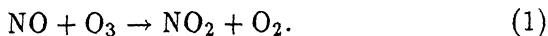
Измерения концентрации озона и двуокиси азота  $NO_2$  проводились по поглощению излучения ртутной лампы вдоль оси разряда на длинах волн 253.7 и 404.0 нм соответственно. Погрешность метода составляла

$$\Delta[O_3] \approx 5 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3} \quad \text{и} \quad \Delta[NO_2] \approx 2 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}.$$

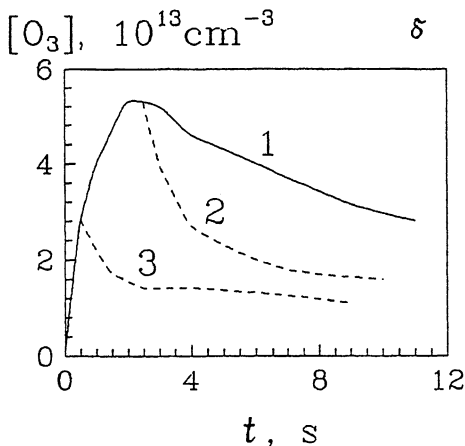
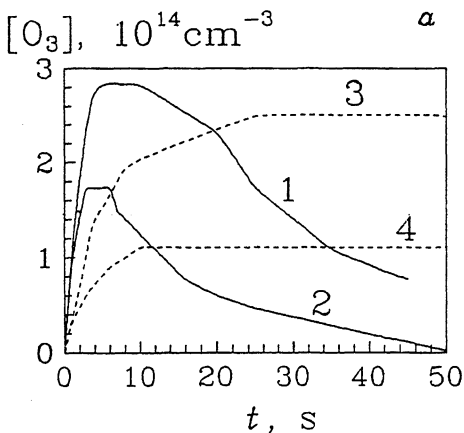
Плазмохимические процессы изучались в двух случаях. Разряд создавался в кварцевой трубке диаметром 2.1 см и длиной 41 см, расположенной вдоль фокальной линии зеркала. В данной постановке эксперимента реализовывался режим накопления продуктов химических реакций и моделировались условия, когда частицы газа за время серии импульсов не успевают покинуть область, занятую разрядом. Во втором случае фокусирующее зеркало помещалось в вакуумную камеру достаточно больших размеров. В этом случае моделировался режим быстрого ухода продуктов плазмохимических реакций из области, занимаемой плазмой.

В первой серии экспериментов (для разряда в трубке) были выяснены следующие закономерности образования озона  $O_3$  в воздухе и кислороде. Качественно динамика  $O_3$  одинакова для различных частот следования импульсов. В течение первых нескольких импульсов концентрация озона линейно нарастает (рис. 1, а). Дальнейшая динамика  $O_3$  в воздухе и кислороде различна: в кислороде происходит насыщение плотности озона, а в воздухе насыщение сменяется плавным падением концентрации озона до низкого уровня (рис. 1, а). После окончания серии импульсов в кислороде концентрация  $O_3$  не меняется, а в воздухе распадается тем быстрее, чем больше импульсов было в серии (рис. 1, б). После распада концентрация озона стабилизируется на некотором уровне.

Предполагая, что уменьшение концентрации озона в воздухе связано с наработкой разрушающих его частиц, и считая, что концентрация разрушителей равна убыли молекул  $O_3$ , а также учитывая время распада (рис. 1, б), можно оценить константу реакции, которая составляет  $k \approx 2 \cdot 10^{-14} \text{ см}^3/\text{с}$ . Такую константу имеет реакция окиси азота с озоном [9]:

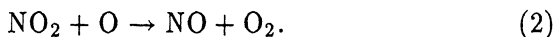


В результате этой реакции накапливается окисел азота  $NO_2$ , который при достаточно больших концентрациях (как



**Рис. 1.** Зависимость от времени концентрации озона при создании разряда в трубке: *a* — при частоте следования импульсов  $F = 4$  Гц, числе импульсов  $N = 200$ : в воздухе: 1 — 75 Тор, 2 — 60 Тор и кислороде: 3 — 30 Тор, 4 — 15 Тор; *б* — воздухе ( $p = 45$  Тор,  $F = 4$  Гц) при различном числе импульсов: 1 —  $N = 200$ , 2 —  $N = 15$ , 3 —  $N = 3$ .

показывают оценки  $\sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$  при  $p \approx 50$  Тор) уводит атомарный кислород из процесса образования озона



Действительно, в эксперименте в серии из 100 импульсов зарегистрировано образование  $\sim 5 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$  двуокиси азота при  $p \approx 90$  Тор.

Влияние окислов азота на динамику озона проверялось для разряда в смеси  $\text{N}_2 : \text{O}_2$ . Уже несколько процентов  $\text{N}_2$

снижают стационарную концентрацию  $O_3$ , а при соотношении  $N_2:O_2 \approx 1:10$  на зависимости  $[O_3](t)$  появляется характерный для экспериментов в воздухе падающий участок. Динамика озона в синтетическом (сухом) воздухе при  $N_2:O_2 = 4:1$  совпадает с динамикой в лабораторном воздухе.

Первоначально NO может образовываться в различных реакциях [9,10], среди которых наибольший вклад в наших условиях может давать реакция с участием колебательно-возбужденных молекул азота в основном электронном состоянии:



Действительно, измерение колебательной температуры азота по относительной заселенности уровней  $v = 0-3$  состояния  $C^3P_u$  (по методике [11]) дало величину  $T_v \approx 0.3$  эВ. При такой колебательной температуре реакция (3) протекает весьма эффективно [10]. Однако из-за большой скорости ( $k \approx 2 \cdot 10^{-11}$  см<sup>3</sup>/с [9]) обратная реакция



ограничивает образование окиси азота.

Эксперименты показали также, что, несмотря на образование окислов азота, большие концентрации двуокиси азота  $NO_2$  ( $\sim 10^{15} - 10^{16}$  см<sup>-3</sup>), предварительно добавляющиеся к воздуху до включения разряда, разрушаются в разрядной плазме до уровня  $\sim 10^{12}$  см<sup>-3</sup>, вероятнее всего за счет реакции (2). При этом озон практически не образуется, а число разрушенных молекул  $NO_2$  близко числу образующихся атомов кислорода. В свою очередь, молекулы окиси азота NO эффективно могут разрушаться в реакции (4).

Таким образом, получение максимально возможной концентрации озона и минимального количества окислов азота в импульсно-периодическом режиме возможно только при небольшом числе наносекундных СВЧ импульсов  $\sim 1-5$ . В этом случае не происходит накопления окислов азота до величины, ограничивающей образование озона. Энергетическая цена образования одной молекулы  $O_3$ , определяемая по полной излученной генератором СВЧ энергии в импульсе, составляет для этих условий 100-500 эВ.

Эффективность генерации озона при небольшом числе импульсов, воздействующих на одну порцию газа, подтвердилась во второй серии экспериментов при создании СВЧ разряда в свободном пространстве, когда продукты реакций достаточно быстро покидают разрядную область (в нашем случае в результате диффузии). В этих условиях падения концентрации озона в течение серии импульсов не на-

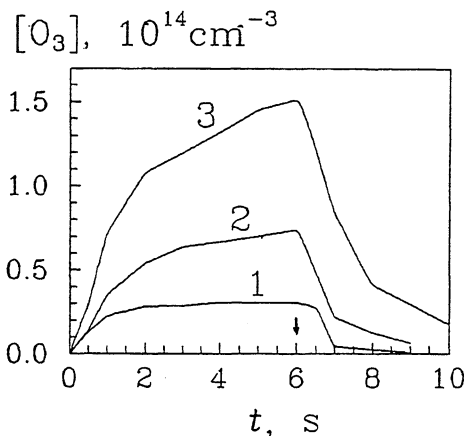


Рис. 2. Динамика озона на фокальной оси зеркала при зажигании разряда в свободном пространстве,  $F = 5$  Гц,  $N = 30$ : 1 — воздух,  $p = 60$  Тор; 2 — смесь  $N_2:O_2 \approx 1:1$ ,  $p = 60$  Тор; 3 — кислород,  $p = 30$  Тор. Стрелкой показан момент окончания серии импульсов.

блюдается (рис. 2) и эффективность наработки озона не снижается с ростом числа импульсов. После окончания серии импульсов концентрация озона на оси разряда уменьшается в результате диффузионных потерь, а образованный озон заполняет весь объем вакуумной камеры.

Таким образом, в результате проведенных экспериментов выяснены основные закономерности динамики озона в импульсно-периодическом наносекундном СВЧ разряде в воздухе. Впервые экспериментально продемонстрированы условия преимущественной генерации озона в воздухе с помощью свободно локализованного СВЧ разряда.

В заключение отметим, что работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 93-02-846).

#### Список литературы

- [1] Гуревич А.В. // УФН. 1980. Т. 132. № 4. С. 685–689.
- [2] Vikharev A.L., Gorbachev A.M., Ivanov O.A. et al. // Phys. Lett. A. 1993. V. 179. N 2. P. 122–126.
- [3] Vikharev A.L., Gorbachev A.M., Ivanov O.A. et al. // J. Geophys. Res. 1994. V. 99D. N 10. P. 21057.
- [4] Аскарьян Г.А., Батанов Г.М., Бархударов А.Э. и др. // Физика плазмы. 1992. Т. 18. В. 9. С. 1198–1210.
- [5] Аскарьян Г.А., Батанов Г.М., Косый И.А. и др. // Физика плазмы. 1991. Т. 17. В. 1. С. 85–96.
- [6] Быков Ю.В. // Химия высоких энергий. 1984. Т. 18. В. 4. С. 347–253.
- [7] Степанов А.Н., Язенков В.В. // Физика плазмы. 1991. Т. 17. В. 9. С. 1159–1161.

- [8] Батанов Г.М., Быков Д.Ф., Грицинин С.И. и др. // Физика и химия газовых разрядов в пучках СВЧ волн. М.: Наука, 1994 (Тр. ИОФАН.Т. 47. С. 117-131).
- [9] Baulch D.L., Cox R.A., Crutzen P.J. et al. // J. Phys. Chem. Ref. Data. 1982. V. 11. N 2. P. 327-497.
- [10] Животов В.К., Русанов В.Д., Фридман А.А. // Химия плазмы. М.: Энергоатомиздат, 1984. В. 11. С. 200-241.
- [11] Животов В.К., Русанов В.Д., Фридман А.А. // Диагностика химически активной плазмы. М.: Энергоатомиздат, 1985. 216 с.

Институт прикладной  
физики РАН  
Н. Новгород

Поступило в Редакцию  
10 января 1995 г.