

02; 12

© 1992

ВЛИЯНИЕ ПРИМЕСЕЙ УГЛЕКИСЛОГО ГАЗА И ВОДЫ
НА КОНДЕНСАЦИЮ АЗОТА В СВОБОДНОЙ СТРУЕА.А. В о с т р и к о в, В.В. Г р и г о р ь е в,
Д.Ю. Д у б о в, С.А. Н о в о п а ш и н,
А.А. П е р е п е л к и н, В.Н. Ш у с т о в

Методом соплового молекулярного пучка [1] и рэлеевского рассеяния света в струе [2] исследована конденсация азота при расширении в вакуум. Получены эмпирические зависимости между давлением P_0 , температурой T_0 газа в сопловом источнике и диаметром d_* звукового сопла для определения начала развитой конденсации и среднего размера \bar{N} кластеров $(N_2)_n$. Обнаружено, что присутствие в N_2 даже незначительных примесей ($\leq 8 \cdot 10^{-2} \%$) молекул CO_2 и H_2O вызывает более раннюю конденсацию азота. При расширении смеси масс-спектрометром регистрируется образование смешанных кластеров, содержащих молекулы основной и примесной компонент.

Чистый N_2 получали испарением жидкого азота в предварительно вакуумированной емкости. Дополнительный эффект очистки от легкоконденсирующихся примесей достигался охлаждением баллона с азотом до температуры ~ 240 К.

Необходимую концентрацию молекул CO_2 и H_2O в N_2 получали смешиванием газов либо в сопловом источнике, либо в баллоне для N_2 . Точность определения концентрации примеси составляла $3 \times 10^{-3} \%$.

На рис. 1 показаны зависимости интенсивности рассеянного света $I = \frac{I_0}{n_0}$, нормированные на плотность газа в сопловом источнике n_0 , от давления P_0 для трех значений d_* : кривая 1 - $d_* = 0.47$ мм, 2 - 0.97 мм, 3 и 3' - 1.55 мм. Кривая 3' получена при добавлении в N_2 0.08 % молекул CO_2 . Температура газа $T_0 = 291$ К. Луч импульсного лазера с длиной волны 0.53 мкм и энергией в импульсе $2 \cdot 10^{-2}$ Дж сфокусирован на оси струи на расстоянии $x = 10 d_*$ от среза сопла.

При расширении газа без конденсации $I_0 \sim P_0$, а появление кластеров приводит к резкому увеличению нормированной интенсивности рассеянного света [2]. Начало конденсации N_2 для разных d_* обобщается выражением: $P_0 \cdot d_*^{0.72} = const.$

На рис. 1 показаны также зависимости интенсивности J молекулярного пучка, отобранного с осевой части струи на расстоянии $x = 58$ мм от среза сопла, от давления P_0 для сопла с $d_* = 0.33$ мм и нескольких значений температуры T_0 : кривая 4 - $T_0 = 150$ К, 5 - 185 К, 6 - 201 К, 7 - 220 К, 8 - 238 К.

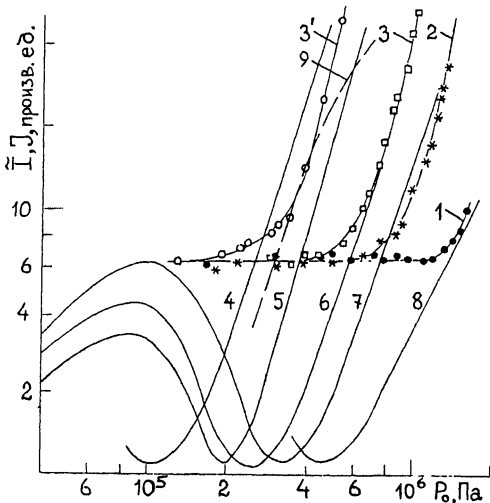


Рис. 1. Влияние диаметра звукового сопла (1–3), температуры газа в сопловом источнике (4–8) и примеси молекул CO_2 (3) на конденсацию азота.

Наличие минимума на кривых 4–8 связано с появлением и ростом среднего размера \bar{N} кластеров в струе [1, 3]. Зависимость \bar{N} от P_0 показана на рис. 1 (кривая 9). Эта зависимость получена при $T_0 = 150 \text{ K}$ и $d_* = 0.33 \text{ мм}$ методом задерживающего потенциала в пучке [4]. Отметим, что зависимость $\bar{N}(P_0)$ сохраняет свой вид при изменении T_0 и d_* . В области средних значений \bar{N} зависимость $\bar{N}(P_0)$ практически совпадает с зависимостью $J(P_0)$.

Значения P_0 и T_0 , соответствующие переходу к развитой конденсации N_2 в струе, обобщаются по минимуму интенсивности на кривых $J(P_0)$ выражением: $P_0 \cdot T_0^{-3.2} = \text{const}$. С учетом зависимости от d_* полное выражение, связывающее переход к развитой конденсации чистого азота в струях за звуковым соплом, имеет вид:

$$P_0 T_0^{-3.2} d_*^{0.72} = 1.5 \text{ ПаК}^{-3.2} \text{ мм}^{0.72}.$$

Значение константы в (1) получено из пучковых измерений $J(P_0, T_0, d_*)$, так как они оказались существенно более чувствительны к конденсации, чем зависимость интенсивности рэлеевского рассеяния света. Это связано с тем, что пучок отбирается на таком расстоянии от среза сопла, где конденсация заканчивалась (прекращались столкновения между молекулами), и тем, что в пучке имеет место эффект обогащения кластерами [3]. Рассеянное излучение измерялось близко к срезу сопла, где еще происходил

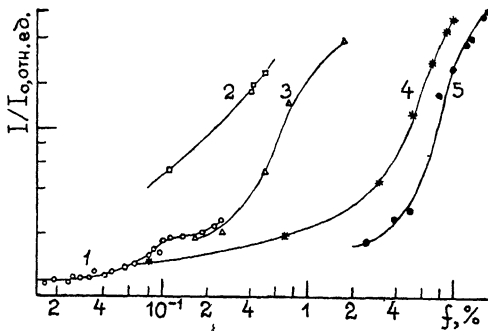


Рис. 2. Влияние концентрации примеси молекул H_2O (1) и CO_2 (2-5) на конденсацию азота.

рост числа и размеров кластеров. Это хорошо видно на зависимостях $\tilde{I}(x)$, полученных для разных P_0 , по характеру роста и величине координаты x , при которой происходило отклонение кривых $\tilde{I}(x)$ от изэнтропы расширения N_2 .

Так как при изменении T_0 , d_* зависимость $\tilde{N}(P_0)$ смещается так же эквидистантно, как и зависимость $J(P_0)$, то используя формулу (1) и кривую 9 на рис. 1, можно приблизительно определить средний размер кластеров азота для любых P_0 , T_0 , d_* . Формулу (1) также можно использовать для оценки возможности конденсации для других сопел, поскольку расширение за звуковым соплом характеризуется максимальной скоростью изменения параметров газа. Если конденсация N_2 , согласно (1), имеет место за звуковым соплом, то она заведомо будет идти при расширении через сопло любой другой конфигурации с такой же площадью критического сечения.

Добавление в азот молекул CO_2 и H_2O , у которых энергия взаимодействия существенно больше, чем у N_2 , приводило (при постоянных P_0 и d_*) к смещению начала роста \tilde{I} и минимума J на кривых $\tilde{I}(P_0)$, $J(P_0)$ в сторону более низких значений P_0 , как это проиллюстрировано на рис. 1 кривыми 3 и 3', т. е. конденсация начиналась раньше. Взаимное влияние на конденсацию основного газа N_2 и примеси CO_2 и H_2O хорошо видно на рис. 2, где показаны зависимости нормированной интенсивности рассеянного света I/I_0 от концентрации f : H_2O (кривая 1) и CO_2 (кривые 2-5) в азоте, полученные при температуре $T_0 = 291 \text{ K}$, $d_* = 0.97 \text{ мм}$, $x = 10d_*$ для нескольких значений P_0 : $P_0 \cdot 10^{-5} \text{ Па}^{-1} = 2.9$ (кривая 1), 4.8 (2), 3.9 (3), 2.9 (4), 1.95 (5). Величина интенсивности рассеянного света определялась для каждого значения P_0 в отсутствие примесной компоненты. Видно, что при $P_0 = \text{const}$ с увеличением f растет I/I_0 , т. е. увеличивается средний размер кластеров в струе (см. рис. 1). То же самое происходит с увеличением P_0 при $f = \text{const}$. Масс-спектрометрические измерения

[5] состава кластеров в пучке показали, что вначале образуется кластеры примесных молекул, а затем смешанные кластеры. Следовательно, при достижении определенного размера и количества кластеров примесной компоненты основной газ становится пересыщенным относительно этих кластеров. Важно, что конденсация примесных компонентов начинается при существенно более низких парциальных давлениях p_0 , чем в отсутствие основного газа, т. е. молекулы основного газа эффективно отводят теплоту конденсации примеси. С увеличением p_0 в масс-спектре пучка наблюдается практически полный переход молекул примеси в гомогенные и смешанные кластеры.

Отметим, что смешанные кластеры могут играть важную роль в атмосферных и в различных газодинамических процессах. Так, конденсация примесных молекул CO_2 и H_2O в мощных CO_2 лазерах с адиабатическим охлаждением и накачкой колебаний молекул N_2 электронами [6] может резко ухудшить рабочие характеристики лазера из-за каталитического воздействия кластеров на скорость колебательной релаксации [7] и высокого сечения прилипания электронов с энергией $E \sim 2$ эВ к кластерам N_2 , CO_2 и H_2O .

Считаем важным также обратить внимание на недопустимость использования без контроля чистоты азота в лабораторных исследованиях физических процессов в струях. Наши результаты показали, что концентрация примесей в баллонах с технически чистым азотом изменяется не только от баллона к баллону, но и с уменьшением давления в нем. Это не позволяло получить сколь-нибудь воспроизводимые результаты по кластерообразованию.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Востриков А.А., Дубов Д.Ю., Предтеченский М.Р. // ЖТФ. 1986. Т. 56. В. 7. С. 1393-1395.
- [2] Новопашина С.А., Перецелкина А.А., Ярыгин В.Н. // Журнал ПМТФ. 1987. В. 4. С. 143-145.
- [3] Востриков А.А., Дубов Д.Ю. // Письма в ЖТФ. 1984. Т. 10. В. 2. С. 31-35.
- [4] Востриков А.А., Предтеченский М.Р. // ЖТФ. 1985. Т. 55. В. 5. С. 887-896.
- [5] V o s t r i k o v A. A., D u b o v D. Y u., // Z. Phys. D. 1991. V. 20. N 1-4. P. 429-432.
- [6] Бородин М.А., Высикайло Ф.И., Гурашвили В.А. и др. // ДАН СССР. 1989. Т. 306. В. 6. С. 1397-1400.
- [7] V o s t r i k o v A. A., M i r o n o v S. G. // Chem. Phys. Lett. 1983. V. 101. N 6. P. 583-587.
- [8] Востриков А.А., Самойлов И.В. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 26. В. 7. С. 58-63.

Поступило в Редакцию
11 сентября 1992 г.