

Импульсно-периодический диффузный разряд с автоионизацией в потоке газа

© С.Н. Буранов, В.В. Горохов, В.И. Карелин, В.Д. Селемир, А.С. Ширшин

Российский федеральный ядерный центр — Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики,
607188 Саров, Россия
e-mail: shirshin@ntc.vniief.ru

Поступило в Редакцию 28 мая 2019 г.

В окончательной редакции 28 мая 2019 г.

Принято к публикации 12 ноября 2019 г.

Приведены результаты исследований импульсно-периодического диффузного разряда, возбуждаемого в потоке воздуха атмосферного давления, с автоионизацией в резко неоднородном кольцевом промежутке. Разряд является источником слабоионизованной неравновесной плазмы, в которой обеспечивается эффективный синтез оксида азота. Установлено, что формирование диффузных токовых каналов происходит последовательно по длине кольцевого промежутка в направлении потока воздуха в такт с частотой высоковольтных импульсов. Анализ экспериментальных данных дает основания предполагать, что эффект автоионизации обусловлен смещением отрицательных ионов кислорода, нарабатываемых в токовых каналах, а механизмом появления затравочных электронов в новых областях пробоя является отлипание электронов от ионов кислорода.

Ключевые слова: импульсно-периодический диффузный разряд, кольцевой промежуток, автоионизация, синтез оксида азота.

DOI: 10.21883/JTF.2020.05.49175.220-19

Введение

Одним из перспективных подходов к лечению сердечно-легочных заболеваний является ингаляционная терапия оксидом азота (NO-терапия) [1,2]. В настоящее время NO синтезируют на стационарных установках, а к месту проведения лечебных процедур доставляют в баллонах. Малый срок хранения и высокая стоимость NO, а также логистические проблемы ограничивают доступность NO-терапии, что стимулирует многочисленные исследования устройств синтеза оксида азота в электрическом разряде из воздуха непосредственно на месте проведения лечения [2]. Генераторы NO для ингаляционной терапии разрабатываются на основе дуговых и искровых разрядов [2,3]. Это объясняется тем, что в высокотемпературной плазме разрядов озон практически не нарабатывается, а концентрация двуокиси NO₂ по отношению к NO низка и составляет 5–20% [2–5]. Однако плазма таких разрядов близка к равновесной и значительная доля энергии расходуется на разогрев газа, который для фиксации NO необходимо резко охлаждать. Охлаждать газ необходимо и для целей ингаляции. Синтез NO осуществляется и в неравновесных плазмохимических системах [6,7], однако техническая реализация этих систем (несамостоятельные объемные разряды, инициируемые или поддерживаемые сильноточными пучками релятивистских электронов, СВЧ-разряды в магнитном поле) достаточно сложна.

В настоящей работе приведены результаты исследований импульсно-периодического высоковольтного диф-

фузного разряда атмосферного давления, обеспечивающего синтез NO в неравновесной низкотемпературной плазме. Озон в газовой смеси на выходе разрядной камеры не обнаружен, соотношение [NO₂]/[NO] составляет 15% и менее, а температура выходного газа близка к комнатной. На основе такого разряда разработан аппарат для ингаляционной терапии оксидом азота [8,9].

Экспериментальная аппаратура

Исследовались характеристики импульсно-периодического разряда, возбуждаемого в воздухе атмосферного давления в промежутке с резко неоднородной геометрией электрического поля. Принципиальная схема экспериментальной установки (рис. 1) включает источник питания, разрядную камеру (РК) и диагностическую аппаратуру. Источник питания 1 представляет собой инвертор с последовательным резонансным контуром и высоковольтным трансформатором [10]. По оценкам межвитковая емкость трансформатора составляет $C_t \approx 20$ пФ. На электродах РК источник формирует квазисинусоидальные импульсы длительностью $7 \mu\text{s}$ чередующейся полярности со скоростью нарастания напряжения $2.7 \cdot 10^9$ В/с. Частота следования импульсов от однократных до $f = 10.5$ кГц. Сопротивление источника ≥ 20 кΩ.

Разрядный промежуток — кольцевой. Он образован отрезком трубы 2 внутренним диаметром 60 мм из дюралюминия и коаксиально расположенным диском 3 диаметром 52 мм из нержавеющей стали. Толщина

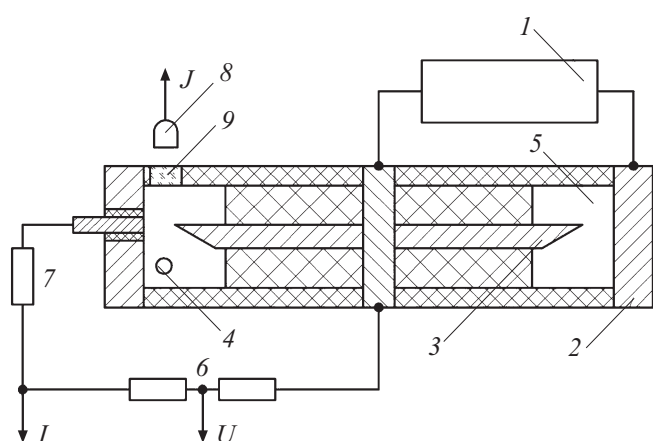


Рис. 1. Принципиальная схема экспериментального стенда (пояснение в тексте).

диска 3 мм, угол заострения 30° , радиус заострения ~ 0.1 мм. Межэлектродное расстояние равно 4 мм. Емкость камеры $C_k \approx 10$ пФ. Боковые фланцы камеры изготовлены из оргстекла. В экспериментах использовался осушенный воздух. Ввод воздуха в кольцевой промежуток и его вывод производился через отверстия 4, 5 по касательным. Расход воздуха 1 л/мин. Исследования проводились при комнатной температуре.

В экспериментах регистрировались напряжение U между электродами, ток разряда I , интенсивность излучения J , спектр разряда, концентрации NO , NO_2 и O_3 . Внешний вид разряда фотографировался. Измерения временных и амплитудных характеристик сигналов производились с помощью осциллографа с полосой пропускания 500 МГц и скоростью оцифровки 2 Гс/с. Для регистрации напряжения использовался малоиндуктивный делитель 6 с полосой пропускания 75 МГц. Ток разряда измерялся шунтом 7 с измерительной площадки диаметром 2 мм, выделенной на трубе. Чтобы обеспечить одинаковый уровень площадки относительно электрода, вся конструкция после сборки полировалась. Шунт изготовлен из высококачественного резистора, помещенного в обратный токопровод. Временное разрешение шунта: время нарастания импульса 2.5 нс, полуширина импульса на полувысоте 5 нс. Фотографирование осуществлялось фотоаппаратом Canon EOS 400D. Экспозиция t_f фотоаппарата варьировалась. Интенсивность излучения J регистрировалась в области $\lambda = 260\text{--}900$ нм микроканальным фотоэлектронным умножителем 8 марки С 1372. Излучение выводилось через окно 9 из кварца КВ-1 во фланце камеры. Перед фотоумножителем помещались светофильтры. Временное разрешение фотоумножителя: время нарастания импульса 3 нс, полуширина импульса на полувысоте 6 нс. Спектр разряда регистрировался спектрометром USB 4000 „Ocean Optics“ в диапазоне 180–850 нм с разрешением 1.5 нм.

Контроль температуры воздуха осуществлялся измерителем ИВТМ-7 с абсолютной погрешностью изме-

рений не более $\pm 0.2^\circ\text{C}$. Для измерения концентраций NO и NO_2 использовались газоанализаторы АГМ-510 двух модификаций: АГМ-510 МН — для низких концентраций и АГМ-510 МВ — для высоких. Пределы допускаемой относительной погрешности газоанализаторов $\pm 10\%$. Измерения концентрации O_3 производились анализатором озона „3.02 П-Р“ с диапазоном измеряемых концентраций до $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Минимальный уровень регистрируемых концентраций озона $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, предел основной погрешности измерений $\pm 20\%$.

Результаты экспериментов

На рис. 2 представлены фотографии разрядного промежутка для различных экспозиций t_f . При t_f меньших времени между последовательными импульсами напряжения $t_i = 1/f$ регистрируются лишь одиночные каналы (рис. 2, а). Установлено, что число изображений каналов возрастает пропорционально t_f (рис. 2, б, в). С учетом того что время существования тока разряда (рис. 3) в канале значительно меньше t_i , это означает, что на интегральных фотографиях отображаются новые токовые каналы. Каналы формируются последовательно в направлении прохождения газа на примерно равном расстоянии друг от друга, постепенно перемещаясь по всему кольцевому промежутку (рис. 2, д), т.е. первый пробой задает начальное положение, а поток газа обеспечивает последовательное перемещение пробоев по промежутку на расстояние, определяемое частотой высоковольтных импульсов и скоростью потока.

Каждый канал представляет собой столб диффузного свечения диаметром 0.3–0.4 мм. У электродов расположены области более интенсивного свечения длиной 0.3–0.7 мм. Расстояние между каналами зависит от частоты; при увеличении f расстояние уменьшается. Установлено, что последовательное перемещение каналов наблюдается при частоте $f \geq 0.25$ кГц. При меньших частотах в промежутке формируются одиночные каналы.

Типичные осциллограммы импульсов напряжения на промежутке, тока и излучения отдельного канала представлены на рис. 3. Видно, что разряд имеет две выраженные фазы: быструю и квазистационарную. Промежуток пробивается при напряжении $U_1 = 3.2\text{--}3.4$ кВ на переднем фронте импульса через $\sim 1.2 \mu\text{s}$ после начала. Фронт спада импульса ≥ 50 нс. После спада практически до нуля напряжение возрастает до $U_2 = 0.3\text{--}0.5$ кВ. Длительность этой фазы составляет 5.5–6 μs . Импульс тока разряда представляет собой передний пик с амплитудой $I_1 = 2.7\text{--}2.8$ А длительностью 200–300 нс. За пиком следует квазистационарная фаза длительностью 4.5–5 μs . Ток в квазистационарной фазе $I_2 = 0.2\text{--}0.3$ А. Влияние полярности напряжения на электрические характеристики разряда не обнаружено, и до частоты $f = 10.5$ кГц они лежат в обозначенных пределах. Сопротивление разряда в первой фазе $R_1 \approx U_1/I_1 = 1.2$ к Ω ,

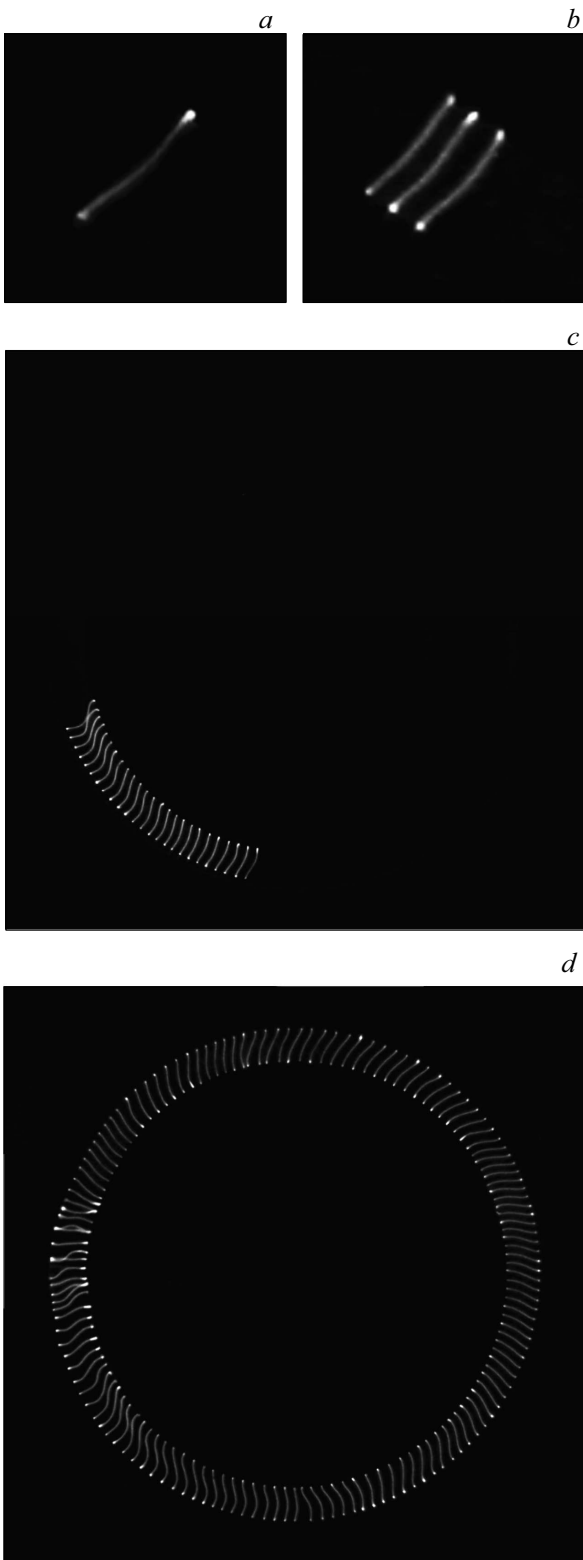


Рис. 2. Интегральные фотографии разрядного промежутка для различных экспозиций: *a* — $t_f = 0.25$ ms, $f = 2.27$ kHz; *b* — $t_f = 2$ ms, $f = 1.56$ kHz; *c* — $t_f = 16.7$ ms, $f = 1.56$ kHz; *d* — $t_f = 92$ ms, $f = 1.56$ kHz. На фотографии *d* экспозиция на 5 ms больше времени, за которое канал перемещается по всему кольцевому промежутку, поэтому изображения восьми каналов частично наложилось друг на друга.

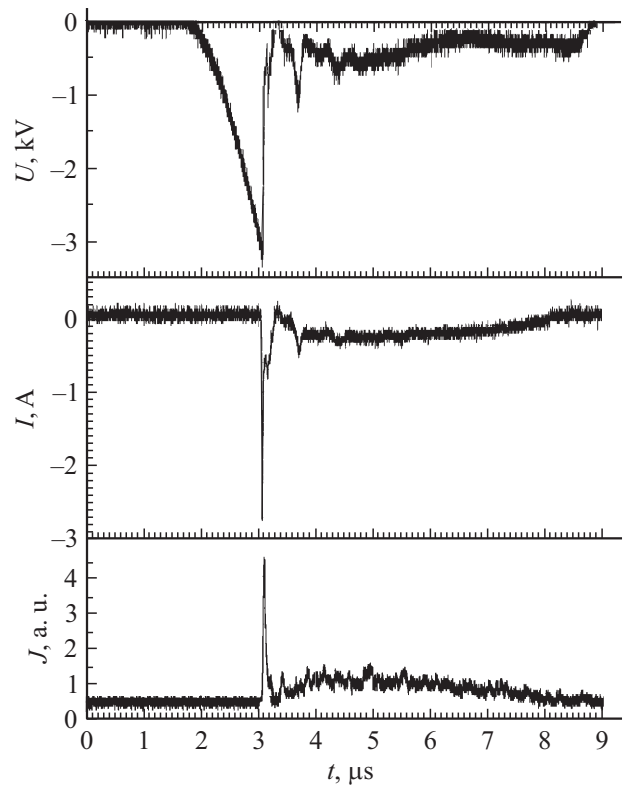


Рис. 3. Осциллограммы импульсов напряжения U , тока I и интенсивности излучения J разряда в диапазоне $\lambda = 440\text{--}700$ nm разряда.

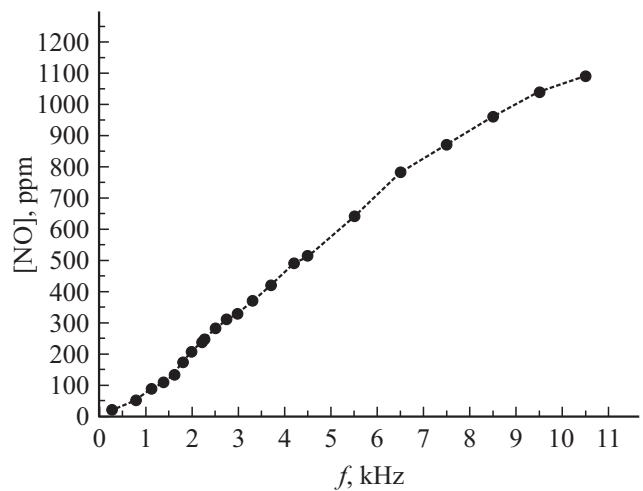


Рис. 4. Зависимость концентрации NO от частоты.

во второй $R_2 \approx U_2/I_2 = 1.6$ kΩ. Форма импульса излучения практически совпадает с формой импульса тока.

В спектре разряда на фоне континуума в диапазоне 200–800 nm зарегистрированы интенсивные полосы второй положительной и первой отрицательной систем азота: $\lambda = 297.7, 315.9, 337.1, 357.7, 380.5$ nm. Наиболее интенсивна полоса второй положительной системы $\lambda = 337.1$ nm.

Концентрация оксида азота зависит от частоты, причем до $f = 6.5$ kHz она близка к линейной (рис. 4). Озон в выходной газовой смеси не обнаружен.

Установлено, что отношение $[\text{NO}_2]/[\text{NO}]$ от частоты зависит слабо. Так, при $f = 0.25$ kHz величина $[\text{NO}_2]/[\text{NO}] = 15\%$. С повышением частоты $[\text{NO}_2]/[\text{NO}]$ уменьшается и при $f = 8.5$ kHz составляет 10%.

Температура выходной смеси от частоты практически не зависит. При температуре воздуха $T = 24.2^\circ\text{C}$ на входе в разрядную камеру температура выходной смеси на конце трубки длиной 30 см для $f = 0.25$ kHz составляет $T = 24.2^\circ\text{C}$, а для $f = 8.5$ kHz она равна 25°C .

Обсуждение

В момент пробоя напряженность электрического поля у поверхности острой кромки ($E \geq 100$ kV/cm) и среднее поле по длине канала ($E_1 \approx 8.3 \cdot 10$ kV/cm) достаточны для формирования и распространения ионизационной волны, а также перекрытия промежутка при обеих полярностях [11]. Ток канала в первой фазе есть сумма токов разрядки емкостей камеры C_k , межвитковой емкости трансформатора C_t и тока источника. Спад напряжения в этой фазе обусловлен переходным процессом разрядки емкостей C_k и C_t .

Судя по однородности свечения столба (исключая приэлектродные области), распределение энерговыделения по длине канала примерно одинаково. Поскольку сечение канала практически постоянно, по-видимому, одинакова и напряженность поля. Оценки плотности электронов, выполненные в предположении однородности поля по длине канала, для максимума тока дают $n_{e1} = j_1/ev_1 \approx 3.5 \cdot 10^{15}$ cm⁻³, что соответствует степени ионизации $n_{e1}/N \approx 1.4 \cdot 10^{-4}$. Здесь $j_1 \approx 2.8 \cdot 10^3$ A/cm² — плотность тока, $v_1 \approx 5 \cdot 10^6$ cm/s [11] — дрейфовая скорость электронов, e — заряд электрона, N — плотность нейтралов.

В квазистационарной фазе разряда после завершения переходного процесса в контурах C_k и C_t , ток определяется источником питания, а напряжение сопротивлением канала. Средняя напряженность поля в этой фазе разряда $E_2 \approx 1$ kV/cm недостаточна для ионизационного размножения. Разряд переходит в режим распада плазмы и сопротивление канала разряда возрастает. Удельный энерговыклад в квазистационарной фазе ~ 1.2 J/cm³. По оценкам концентрация составляет $n_{e2} \approx 2.6 \cdot 10^{15}$ cm⁻³, а $n_{e2}/N \approx 10^{-4}$.

Обе фазы разряда характеризуются резкой неравномерностью. В соответствии с данными [11] температура электронов в первой фазе $T_{e1} \approx 1.1$ – 1.2 eV, а отношение T_{e1} к температуре газа $T_{e1}/T \approx 40$ – 45 . В квазистационарной фазе $T_{e2} \approx 0.3$ – 0.4 eV, а $T_{e2}/T \approx 10$ – 15 и, согласно [6], параметры плазмы удовлетворяют условиям синтеза NO.

Отсутствие озона или его концентрация ниже минимального регистрируемого уровня, по-видимому, объ-

ясняется, с одной стороны, существенным отличием напряженности поля и температуры электронов в исследуемом разряде от $E = 20$ – 40 kV/cm и $T_e = 4$ – 5 eV, при которых озон нарабатывается, с другой — его разрушением при столкновениях с нейтралами [12,13].

Вызывает интерес эффект последовательного перемещения пробоя по кольцевому промежутку. Его можно объяснить смещением продуктов синтеза разряда в направлении газового потока. Механизмом появления затравочных электронов в новой области пробоя, по-видимому, является отлипание электронов от отрицательных ионов кислорода.

Под действием потока исходного газа плазменный канал смещается, оставаясь в области кольцевого промежутка. После спада электрического поля электроны в плазме канала термализуются. Время, затрачиваемое на термализацию электронов в воздухе атмосферного давления, менее 10 ns [14]. После термализации электронов основными процессами, определяющими зарядовую кинетику, являются рекомбинация ионов, прилипание электронов к молекулам кислорода и отлипание электронов. Через время t_i во время очередного высоковольтного импульса в промежутке реализуется высокое электрическое поле. К этому моменту компактное образование смещается на некоторое расстояние от места пробоя. За время t_i , соответствующее частоте $f = 0.25$ kHz, ниже которой в промежутке формируются одиночные каналы, концентрация положительных ионов n_+ вследствие рекомбинации снижается до $n_+ = n_{+0}/(1 + \beta n_{+0} t_i) \approx 1.3 \cdot 10^8$ cm⁻³, а между прилипанием и отлипанием устанавливается приближенное динамическое равновесие [15]. Здесь $n_{+0} \approx 2.6 \cdot 10^{15}$ cm⁻³ — концентрация ионов в квазистационарной фазе, $\beta \approx 2 \cdot 10^{-6}$ cm³/s — коэффициент рекомбинации ионов [11]. Соответствующее равновесию отношение концентраций отрицательных ионов и электронов n_-/n_e сохраняется постоянным, хотя сами концентрации уменьшаются.

Для оценки n_e к моменту t_i воспользуемся экспериментальными данными [15], полученными для кислорода: $n_-/n_e \approx 20$. Отметим, что для воздуха это отношение из-за наличия долгоживущих возбужденных состояний азота, по-видимому, меньше. С учетом равенства $n_+ = n_- + n_e$ для концентрации электронов в момент $t_i = 4$ ms получаем $n_e \approx 10^7$ cm⁻³. При $U_1 = 3.2$ kV объем области, в которой напряженность поля обеспечивает превышение частоты ионизации над частотой потерь электронов (~ 30 kV/cm), составляет $\sim 10^{-4}$ cm³ следовательно в этой области находится $\sim 10^3$ электронов. По-видимому, близкое к этому значению число затравочных электронов является критическим для формирования пробоя в данных условиях. При частотах больших $f = 0.25$ kHz время t_i между импульсами меньше 4 ms соответственно n_e и число электронов в области размножения больше.

Заключение

Экспериментальные данные дают основания утверждать, что диффузный импульсно-периодический разряд, возбуждаемый в потоке воздуха атмосферного давления в кольцевом промежутке с резко неоднородной геометрией электрического поля, является источником слабо-ионизованной неравновесной плазмы и обеспечивает эффективный синтез оксида азота. Обнаруженный эффект последовательного, в такт с частотой высоковольтных импульсов, перемещения пробоя по длине промежутка можно объяснить смещением продуктов синтеза разряда — отрицательных ионов кислорода, в направлении газового потока. Однако следует подчеркнуть, что это лишь предварительные соображения о природе импульсно-периодического пробоя в потоке газа в кольцевых резко неоднородных промежутках. Для более детальных выводов о физических процессах, обуславливающих это явление, необходимы дополнительные исследования.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] *Ванин А.Ф.* // Вестник РАН. 2000. № 4. С. 3–5.
- [2] *Malik M.A.* // Plasma Chem. Plasma Process. 2016. Vol. 36. P. 737–766. DOI: 10.1007/s11090-016-9698-1
- [3] *Yu B., Muenster S., Blaesi A.H., Bloch D.B., Zapol W.M.* // Sci. Transl. Med. 2015. 7(294):294ra107-294ra107. 58
- [4] *Namihira T., Katsuki S., Hackam R., Akiyama H., Okamoto K.* // IEEE Trans Plasma Sci. 2002. Vol. 30. N 5. P. 1993–1998.
- [5] *Hu H., Liang H., Li J., Zhao Q., He J.* // IEEE Trans Plasma Sci. 2007. Vol. 35. N 3. P. 619–625.
- [6] *Русанов В.Д., Фридман А.А., Шолин Г.В.* // Химия плазмы. 1978. Вып. 5. С. 232–241.
- [7] *Русанов В.Д., Фридман А.А., Шолин Г.В.* // УФН. 1981. Т. 134. Вып. 2. С. 165–235.
- [8] Пат. РФ № 2593297. Способ получения газовой смеси, содержащей окись азота. *Буранов С.Н., Карелин В.И., Селемир В.Д., Ширишин А.С.* 2016. Бюлл. № 22.
- [9] *Буранов С.Н., Буянов А.Б., Воеводин С.В., Карелин В.И., Селемир В.Д., Ширишин А.С.* // Биорадикалы и антиоксиданты. 2016. Т. 3. Вып. 3. С. 225–226.
- [10] *Буранов С.Н., Горохов В.В., Карелин В.И., Репин П.Б.* // ПТЭ. 1999. Т. 42. Вып. 1. С. 134–136.
- [11] *Райзер Ю.П.* Физика газового разряда. Долгопрудный: Издат. дом „Интеллект“, 2009. 736 с.
- [12] *Самойлович В.Г., Гибалов В.И., Козлов К.В.* Физическая химия барьерного разряда. М.: МГУ, 1989. 176 с.
- [13] *Лунин В.В., Попович М.П., Ткаченко С.Н.* Физическая химия озона. М.: МГУ, 1998. 480 с.
- [14] *Базелян Э.М., Райзер Ю.П.* Искровой разряд. М.: Изд-во МФТИ, 1977. 320 с.
- [15] *Месси Г.* Отрицательные ионы. М.: Мир, 1979. 760 с.