Маренков В.І., Кучерський А.Ю., Слободенюк О.В.

Одеський національний університет імені І.І. Мечникова, кафедра теплофізики, <u>maren0@ukr.net</u>

Коливні моди макрочастинок конденсованої дисперсної фази в плазмі продуктів згоряння металізованого пального

Багаточастинкова проблема визначення коливних мод заряджених макрочастинок в гетерогенному плазмовому середовищі (ГПС) приведена до ефективної одночастинкової задачі дослідження коливного руху виділеної макрочастинки у збуреному самоузгодженому полі статистичної чарунки електронейтральності ГПС. В рамках модельної теорії одержано аналітичний вираз для амплітудно-частотної функції коливних мод макровключень в гетерогенній плазмі. Досліджено її температурну концентраційну та іонізаційну (від степеню іонізації плазми) залежності. Показано, шо межа коливних нестійкостей макрочастинок в гетерогенній плазмі продуктів згоряння лежить в області 16-120 кГц, що добре узгоджується з наявними експериментами.

У сучасних високотемпературних технологіях, таких як напилення електронних схем, фулерен-технології, креація наночастинок в плазмохімічних реакторах, тощо – контроль мікрофізичних параметрів несучого або реакційного гетерогенного плазмового середовища набуває першочергового значення. Причому найбільш важливою вимогою, в плані функціонування технологічної плазмової установки, є усталеність локальних термодинамічних параметрів ГП в її робочому об'ємі [1]. Гетерогенна плазма (ГП) продуктів згоряння металізованих пальних використовується в ряді технологій як робоче середовище для отримання субмікронних частинок оксидів вузьких монодисперсних фракцій за рахунок паро-газової конденсації в факелі. Турбулентні пульсації, інші небажані впливи контролюються при цьому ретельною підготовкою суміші реагентів, зокрема при горінні диспергованих металів використовують ламінарне пилове полум'я, що утворюється при горінні попередньо змішаної зависі металевого порошку в несучому газі, до складу компонентів якого входить окислюючий газ [2].

В той же час, дія далекосяжних кулонових сил на тлі неконтрольованих зовнішніх параметрів і спричинених ними флуктуацій температури, тиску, заряду макрочастинок і електромагнітних полів ГП призводять до виникнення в плазмовому об'ємі колективних коливних процесів (плазмових хвиль) зумовлених взаємодією вільних зарядів із самоузгодженим електростатичним полем системи. При достатньо великих амплітудах коливань це спричинює розвиток плазмових нестійкостей робочого середовища та порушує стабільний режим функціонування установки [3, 6-8].



Рис. 1.: а) - мікрочіп; б) – схема окремого елементу; в),г) - електронномікроскопічні фотографії нано-елементів чіпу; д) агломерат частинок конденсованої фази з некондиційного чіпу.

Так, у випадку плазмового напилення електронних схем, наявність коливних нестійкостей заряджених конденсованих макрочастинок (МЧ) у газовій фазі плазми супроводжується їх агломерацією (рис. 1.а) - 1.д)), що унеможливлює створення мікрочіпу [3].

В теоретичному плані проблема виникнення та еволюції коливань МЧ в ГП є слабкодослідженою та потребує детального опрацювання щодо досліджень механізму виникнення коливань макрочастинок конденсованої фази (КФ) та залежностей характеристик коливних процесів від визначальних термодинамічних параметрів плазми: температури, зліченних концентрацій компонентів, діелектричних та електронних властивостей речовини МЧ.

Найбільш актуальний аспект проблеми – розбудова фізичної моделі коливних процесів в підсистемі заряджених конденсованих макрочастинок, які разом з іонізованим газом утворюють гетерогенне плазмове середовище – визначає мету та окреслює коло задач, вирішених в роботі.

1. Електростатична взаємодія індивідуальних макрочастинок і мікрополів гетерогенної плазми. Проявом далекосяжної кулонової взаємодії в слабкоіонізованій ГП є випадкові блукання індивідуальних МЧ в «просторі зарядів», які згідно з уявленнями статистичної моделі квазінейтральних чарунок плазми [4,6-8] є спряженими із локалізацією макрочастинки кожного моменту часу в певній миттєвій чарунці електронейтральності Ω_ε. В стані рівноваги, який ми покладаємо в подальшому реалізованим, ці блукання здійснюються випадково і мають стохастичний характер. Але кожне флуктуаційне зміщення МЧ в області локальної термодинамічної рівноваги (ЛТР) внаслідок протилежної полярності електричних зарядів МЧ та її електрон-іонної атмосфери в чарунці призводить до виникнення миттєвої локальної «деформації» електричного поля чарунки і, в кінцевому підсумку, породжує низку релаксаційних плазмових процесів, що відновлюють квазінейтральність плазми. При статистичному осередненні за ансамблем реалізацій системи, підмножина чарунок зі «зміщеними» відносно рівноважного положеннями в електронейтральних чарунках МЧ, дає свій статистичний внесок у загальну картину розподілу локального електростатичного поля в ефективній електронейтральній чарунці, який компенсується протилежними внесками («протилежними», в лабораторній системі відліку, зміщенням МЧ»), що загалом в ізотропній ГП дає середньо сферичний розподіл об'ємного заряду в осередненій квазінейтральній чарунці Ω_{ξ}^{z} . В той же час, наявність в статистичному ансамблі збурених електронейтральних чарунок зі зміщеними макрочастинками дає можливість визначити осереднене електростатичне поле, що діє на макрочастинку, яка змістилась відносно електричного центру чарунки.

Згідно з пропонованою моделлю, сила, що діє в чарунці електронейтральності на «зміщену» МЧ, визначається векторною сумою незбуреного самоузгодженого електростатичного поля плазми і електричного поля «фіктивного заряду» МЧ протилежної полярності («фіктивна МЧ», яка займає місце дійсної МЧ у незбуреній чарунці електронейтральності, див. рис. 2). Електричний заряд виділеної МЧ і самоузгоджене незбурене електростатичне поле в її околі визначаються в рамках «статистичної моделі квазінейтральних чарунок ГП» [5]. Коливні моди індивідуальних МЧ в рівноважній плазмі знайдено шляхом дослідження еволюції флуктуаційного зміщення макрозаряду з положення рівноваги в статистичній чарунці електронейтральності Ω_{ξ}^{z} . «Повертаюча сила», що діє на зміщену МЧ, в слабкоіонізованій плазмі визначається в лінійному наближенні за потенціалом для «моделі чарунок» [5] з рівнянь Пуасона-Больцмана і Пуасона-Фермі, відповідно для розподілів самоузгодженого потенціалу зовні та всередині власного об'єму виділеної макрочастинки

$$\mathbf{f} = -\frac{z^2 \cdot e^2 \cdot \hat{\mathbf{\delta}}}{\varepsilon_G \cdot \delta^3} + \frac{\alpha \cdot z \cdot e \cdot \hat{\mathbf{\delta}}}{\varepsilon_G \cdot \kappa \cdot \delta^3} \cdot \left\{ \kappa \cdot (r_C - \delta) \cdot \cosh[\kappa \cdot (r_C - \delta)] - (1 - \kappa^2 \cdot r_C \cdot \delta \cdot \sinh[\kappa \cdot (r_C - \delta)] \right\}$$
(1)

Тут: *z*,*e*, ε_{G} , κ ,*r*_C - відповідно зарядове число МЧ, заряд протона, діелектрична проникність буферного газу, обернена дебаєва довжина вільних електронів та іонів ГП, радіус чарунки електронейтральності; α – параметр, що його визначено співвідношенням зліченних концентрацій вільних електронів та іонів ГП на межі чарунки та температурою плазми $\alpha = \frac{kT}{e} \cdot \frac{n_{e0} - n_{i0}}{n_{e0} + n_{i0}}$, k – константа Голимича

Больцмана.

Рівняння руху макрочастинки, що пов'язує модуль зміщення МЧ δ і повертаючу силу f, та враховує тільки дальнодіючі електростатичні сили, має вид

$$\mathbf{\mathfrak{S}} = \frac{z^2 e^2}{\varepsilon_G \delta^2 m_p} \cdot \left\{ \frac{kT}{z \cdot \kappa \cdot e^2} \cdot \left[\kappa \cdot (r_C - \delta) \cdot \cosh[\kappa \cdot (r_C - \delta)] - (1 - \kappa^2 \cdot r_C \cdot \delta \cdot \sinh[\kappa \cdot (r_C - \delta)] \right] - 1 \right\}$$

$$(2)$$



Рис. 2. Флуктуаційне зміщення індивідуальної макрочастинки відносно рівноважного положення в статистичній чарунці електронейтральності: а) незбурена чарунка з позитивною МЧ у центрі; б) модель чарунки зі зміщеним центральним макрозарядом.

розв'язок (2) для δ << r_c (r_c - радіус чарунки) фактично є розв'язком диференціального рівняння для руху макрозаряду в ефективному полі чарунки, що його складають незбурене самоузгоджене поле системи та поле дипольного моменту, утвореного «зміщеним» та фіктивним зарядами. Амплітудам коливань МЧ, що порівнюються або перевищують розміри чарунки електронейтральності r_c (δ≥r_c) відповідають стани плазмових нестійкостей зумовлені колективною взаємодією підсистеми макрозарядів ГП з її самоузгодженим електростатичним полем. Таким чином, співвідношення між амплітудними значеннями зміщень макрочастинок та розмірами осереднених чарунок електронейтральності ГП встановлює обмеження на активовані зовнішні впливи на робочий об'єм плазми в області частот, які відповідають незатухаючим модам коливних процесів підсистеми МЧ. На основі одержаних рівнянь модельної теорії створено комплекс підпрограм комп'ютерної симуляції коливних процесів в частинковій підсистемі ГП "KUARYU.M", який має налаштування на інтерактивні режими роботи в середовищі MATLAB'у. результати комп'ютерного експерименту з визначення залежностей амплітудно-частотної характеристики стохастичних коливань підсистеми субмікронних частинок оксиду алюмінію в ламінарному полум'ї газозависі частинок алюмінію в азотно-кисневій суміші наведено в розділі 2. Результати порівняно з даними натурного експерименту [2], щодо аналізу за допомогою АЦП частот спорадичних коливних мод факелу продуктів згоряння газозависі в полі плоского конденсатора.

2. Комп'ютерна симуляція і порівняльний аналіз з даними експерименту. При проведенні розрахунків для плазми продуктів згоряння використані дані експериментів, що проводились в лабораторії Інституту Горіння та Нетрадиційних Технологій ОНУ, що їх описано в статті [2]. Головним моментом при

проведенні плазмового розрахунку в моделі чарунок на основі програм "KUARYU.M" є визначення рівня Фермі електронної підсистеми ГП.

Для широкого діапазону геометричного розміру і концентрацій частинок оксиду алюмінію та для заданої температури T = 3150 К факелі продуктів згоряння визначено 2-D залежності для електрохімічного потенціалу електронного компоненту, потенціалу поверхні та зарядових чисел макрочастинок, осередненого рівня іонізації ГП в площині визначальних параметрів (концентрація – n_p , розмір МЧ – r_p), що змінюються в логарифмічному масштабі та належать відрізкам $n_p \in [10^5, 10^{12}]$ см⁻³; $r_p \in [5 \cdot 10^{-7}, 5 \cdot 10^{-5}]$ см (рис. 3 – 8). Значення відповідних параметрів "впродовж" вісей незалежних змінних у дискретних точках масштабної сітки визначаються за формулами

$$r_{p}^{i} = \exp(\ln r_{p}^{1} + (\ln r_{p}^{N} - \ln r_{p}^{1})/20 \times (i-1));$$

$$n_{p}^{j} = \exp(\ln n_{p}^{1} + (\ln n_{p}^{N} - \ln n_{p}^{1})/20 \times (j-1));$$

$$i, j \in [1, 21].$$
(3)

де верхнім індексом позначено порядок вузлів сіток на вісях

Порівняння з даними натурного експерименту. Висновки запропонованої теорії та залежності параметрів коливних мод макрочастинок у плазмі продуктів згоряння конденсованого пального перевірено з використанням даних натурних експериментів, проведених під керівництвом професора Золотко А.Н. (Флоко О.В., Полетаєв М.І. та інші) в лабораторії Інституту горіння та нетрадиційних проблем ОНУ, заснованих на аналізі коливань діелектричної проникності факелу продуктів згоряння зависі диспергованого алюмінію в киснево-азотній суміші попередньо підготованій таким чином, щоби її склад задовольняв вимогам стехіометрії для екзотермічної реакції окислення алюмінію до оксиду Al₂O₃. Принципову схему експерименту (рис. 9) з виміру коливань струмів витоку з конденсатора з постійною напругою на обкладках та виокремленим, ізольованим від пластин прошарком нейтрального буферного газу, факелом продуктів згоряння між ними, наведено в [2]. Горіння попередньо підготованої суміші диспесргованого алюмінію з середнім радіусом частинок 3-5 мк відбувається згідно з даними [2] в реакційній зоні факелу з утвоенням парогазової фази, воб'ємі якої конденсується продукт реакції - оксиди алюмінію - у виді субмікронних частинок сфеоїдальної форми. Форма та розміри субмікронних частинок алюмінію подібні до тих, що спостерігаються в плазмі подуктів згоряння твердих пальних на основі алюмінію [3, 4], і забезпечується, згідно міркувань, наведених в [4, 5], паро-фазними умовами здійснення реакції поблизу поверхні частинок металевого алюмінію, реакція відбувається у вузькій зоні, і частинки конденсату характеризуються вузькими фракціями розподілу за геометричним розміром з малою дисперсією відносно моди [2-5]. При досягненні певної постійної напруги на пластинах пластинах конденсатора, в ланцюжку пластина-земля (див. рис. 9 з роботи [2]) з'являються спорадичні "спалахи" струмів витоку, що випадково повторюються у часі і швидко затухають.



Рис. 3 рівень Фермі електронів плазми продуктів згоряння, еВ.



Рис.4. Електростатичний потенціал поверхні МЧ, нормований на kT.



Рис.5. Зарядові числа плазмозоля частинок оксиду алюмінію в факелі плазми продуктів згоряння.



Рис.6. Залежність електронної густини від зліченної концентрації та геометричного розміру макрочастинок.



Рис. 7. Мінімальна частота коливних мод макрочастинок Al₂O₃ в ламінарному факелі продуктів згоряння диспергованого алюмінію.



Рис. 8. Максимальна частота коливних мод макрочастинок Al_2O_3 в ламінарному факелі продуктів згоряння диспергованого алюмінію.



Рис. 9. Експериментальна схема для спостереження та визначення частот коливань запорошеної плазми (рисунок з роботи [2]).



Рис. 10. Спектр електричних осциляцій в полум'ї [2].

На основі фур'є-аналізу сигналу, поданого на АЦП авторами [2] визначено спектральний склад сигналу та найбільш ймовірна ("модальна") частота для заданих умов експерименту v^{exper.} ≅ 24.5 кГц (рис. 10).

Порівняння незалежних розрахунків амплітудно-частотної функції коливань "частинкової" компоненти факелу, виконаних на основі пропонуємої моделі в комп'ютерному експерименті без використання підгоночних параметрів, а тільки грунтуючись на визначальних параметрах продуктів згоряння, з даними вимірів [2] в умовах натурного експерименту, свідчить про адекватне якісне та

Таблиця 1

Модельні розрахунки електрофізичних та коливних характеристик плазми продуктів згоряння зависі диспергованого алюмінію в окислюючому газі, що їх проведено для умов експерименту [2]

	Температура МЧ T = 3150 K; робота виходу речовини МЧ				
N⁰	$W^0 = -F^0 = 4.7 eB$.				
П /	Зліченна концентрація та розмір макрочастинок КДФ в полум'ї				
П	$n_p \cdot 10^{-9}, cm^{-3} \Rightarrow$	8.809	8.809	10.00	10.00
	$r_p \cdot 10^{-5}$, см \Rightarrow	0.800	1.000	0.800	1.000
	Параметри ГП, одержані в рамках комп'ютерної симуляції				
1.	F,eB	-5.716	-5.661	-5.225	-5.178
2.	$n_{e0} \cdot 10^{-11}, cm^{-3}$	6.107	7.463	37.296	44.331
3.	Z	71.901	88.563	38.944	46.637
4.	$\kappa^{-1} \cdot 10^{+3}, cm$	4.953	4.480	2.004	1.838
5.	$v^{\overline{\mathrm{mod}}} \cdot 10^{-4}, c^{-1}$	2.205	1.913	3.172	2.641

кількісне відтворення модельною теорією реальних динамічних процесів, що спричинюють колективні коливні збудження в гетерогенній плазмі. В таблиці 1 наведено дані з масивів комп'ютерної симуляції коливань макрочастинок в полум'ї продуктів згоряння попередньо змішаної суміші окислюючого газу та порошку алюмінію в ламінарному режимі горіння з температурою в області продуктів згоряння Т=3150 К. В першому рядку таблиці (ненумерованому) представлено визначальні параметри плазми: зліченну концентрацію -n_p, та радіус – r_n частинок оксиду алюмінію; в другому (№1) – розраховані на основі пропонуємої фізичної моделі значення рівня Фермі електронного компоненту ГП ; в треттьому та четвертому (№№ 2-3) подані – концентрація електронів в газовій фазі – n_{e0} та зарядові числа МЧ – z, i, , в п'ятому (№4) – довжина Дебая електронного компоненту; в останній строчці (№5) для вихідного набору визначальних параметів наведені значення найбільш ймовірної частоти коливних мод МЧ в ансамблі КДФ в означених плазмових умовах. Видно, що найбільш ймовірна частота коливань МЧ $v^{\text{mod}} = \frac{\omega}{2 \cdot \pi} = 2.2054 \text{ к} \Gamma \mu$ (остання ячійка першого стовбця таблиці), що її визначено в рамках пропонуємої моделі добре апроксимує експериментальне значення [2], визначене 3 експерименту $v^{exp er.} = 24.5 \kappa \Gamma II.$

Дещо зменшене порівняно з експериментальним значення модальної частоти коливних мод КЧ пояснюється відсутністю в модельній теорії врахування пондеромоторних сил, що діють на кожну із зміщених МЧ у плазмі і завжди направлені в сторону зростання його неоднорідності, тобто до центру чарунок у рівноважній ГП. Таким чином, при їх врахуванні модуль "повертаючої сили" буде зростати, що призведе також і до зростання частот коливань МЧ. Вплив



Рис. 11. Залежність найбільш імовірної частоти коливань макрочастинок Al_2O_3 в плазмі продуктів згоряння диспергованого алюмінію в окислюючому газі $n_p \in [10^5, 10^{12}] \text{ см}^{-3}$; $r_p \in [5 \cdot 10^{-7}, 5 \cdot 10^{-5}] \text{ см}$.

зліченної концентрації МЧ та їх радіусу пояснюється як зміною електрофізичних параметрів ГП (зростають або зменшуються заряди МЧ та локальне електростатичне поле в їх околі), так і зміною інеційних властивостей макрочастинок – при однаковому утриманні пального та подуктів реакції в факелі, в залежності від радіусу частинок конденсату Al_2O_3 змінюється не тільки розмір індивідуальних МЧ, але і їх концентрація в об'ємі. Тому сумарний вплив комплексу визначальних параметрів факелу на амплітудно-частотну функцію коливних мод ГП носить складний багатопараметричний характер, і загалом в координатах (r_p , n_p) простору визначальних параметрів має вид, що його демонструє рис.11. У випадку «полідисперсної» іонізації макрочастинок, функціональні залежності характеристик коливних мод МЧ можуть бути отриманы шляхом узагальнення одержаних модельних співвідношень на випадок полідисперсного спектру розмірів КДФ з використанням теорії іонізаційних процесів гетерогенної плазми [7-8].

Висновки:

1. Багаточастинкову проблему, щодо визначення коливних мод заряджених макрочастинок в ГП зведено до ефективної одночастинкової задачі – дослідження коливного руху виділеної макрочастинки у збуреному самоузгодженому полі статистичної чарунки електронейтральності. В залежності від визначальних параметрів, отримано спектр рівноважних коливних мод заряджених частинок конденсованої дисперсної фази в слабкоіонізованій гетерогенній плазмі.

- 2. В просторі термодинамічних параметрів досліджено область виникнення нестійкостей ГП, зумовлених частиковою компонентою. Показано, що існує область частот, у якій виникнення плазмових коливних процесів супроводжується неконтрольованими локальними змінами густини частинок КФ, що спричинює їх агломерацію.
- 3. В обчислювальному експерименті отримано значення модальних частот амплітудно-частотної та залежності граничних параметрів коливних мод, які охоплюють множину актуальних для впроваджень параметрів плазми і виокремлюють область виникнення коливних нестійкостей в її об'ємі.

Отримані результати є актуальними для контролю, аналізу та діагностики коливних процесів в гетерогенних плазмових системах, які використовуються у сучасних технологіях в якості робочого середовища.

Література:

- 1. Yaroshenko V.V., Vladimirov S.V., Morfill G.E. Vibrations of a pair microparticles suspended in a plasma sheath // New J. Phys. – 2006. – V. 8. – P. 201.
- Poletaev N.I., Florko A.V., Doroshenko Yu. A., Polishchuk D.D. On a Possibility of the Existence of Dusty Plasma Oscillations in the Front on an Aluminium Particle Flame // Український фізичний журнал. 2008. Т.53, № 11. С. 1066–1073.
- 3. *Маренков В.І., Кучерський А.Ю.* Розмірні та поляризаційні ефекти і самоорганізація наночастинок в процесах плазмового напилення мікросхем. // НАНСИС 2007, Київ 21–23 листопада 2007 // Тези доповідей. – С. 61.
- 4. Маренков В.И., Чесноков М.Н. Физические модели плазмы с конденсированной дисперсной фазой. Киев: УМК ВО. 1989. 188 с.
- 5. Золотко А.Н., Вовчук Я.И. Полетаев Н.И., Флорко А.В., Альтман И.С. Синтез нанооксидов в двухфазных ламинарных пламенах//Физика горения и взрыва. 1996. Т.32. №3. С. 24-33.
- 6. *Marenkov V.I.* Physical modelling of ionization processes in dense hightemperature plasmasol // Journal of Molecular Liquids. -2003. -V. 105, № 2. -P. 299-305.
- 7. *Маренков В.І.* Полідисперсна» іонізація макрочастинок в гетерогенних плазмових системах // Физика аэродисперсных систем. 2002. №. 39. С. 270–280.
- 8. Marenkov V.I. Conceptual aspects of the electrophysical heterogeneous plasma properties theory // icpp2006.kiev.ua/CD/E/E038p.pdf.

Маренков В.И., Кучерский А.Ю., Слободенюк А.В.

Колебательные моды макрочастиц конденсированной дисперсной фазы в плазме продуктов сгорания металлизированного топлива

АННОТАЦИЯ

Многочастичная проблема определения колебательных мод заряженных макрочастиц в гетерогенной плазменной среде (ГПС) приведена к эффективной одночастичной задаче исследования колебательного движения выделенной макрочастицы в возмущенном самосогласованном поле статистической ячейки электронейтральности ГПС. В рамках модельной теории получено аналитическое выражение для амплитудно-частотной функции колебательных мод макровключений в гетерогенной плазме. Исследованы ее температурная, концентрационная и ионизационная (от степени ионизации плазмы) зависимости. Показано, что граница развития колебательных неустойчивостей макрочастиц в гетерогенной плазме продуктов сгорания лежит в области 16-120 кГц, что хорошо согласуется с имеющимися экспериментами.

Marenkov V.I., Kuchersky A.Y., Slobodenuk A.V.

Vibration modes of condensed dispersed phase macroparticles in metallized fuels combustion products plasma

SUMMARY

Multiparticle problem of determining the vibrational modes of charged particles in a hetero-geneous plasma media (HPM) is reduced to an effective single particle problem of investigating the vibrational motion of the selected particulate matter in the perturbed selfconsistent field of statistical cell electroneutrality. In model theory, an analytical expression for the amplitude-frequency vibrational modes macroinclusions function in a heterogeneous plasma. Investigate its temperature, concentration and ionization (the degree of ionization of the plasma) dependence. It is shown that the boundary of oscillatory instability of heterogeneous plasma particles in the combustion products lies in the 16-120 kHz, which agrees well with the available experiments.