

ДИАГНОСТИКА ХИМИЧЕСКОЙ АКТИВНОСТИ ПЛАЗМЫ ОТРИЦАТЕЛЬНОЙ КОРОНЫ В ВОЗДУХЕ МЕТОДОМ КРОСС-КОРРЕЛЯЦИОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

Н.С. Бокша, К.В. Козлов, А.М. Морозов, В.Г. Самойлович

*Химический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова,
119992 ГСП-2, Москва, Ленинские горы 1, стр. 3. boksha@kge.msu.ru*

Введение.

Метод кросс-корреляционной спектроскопии (ККС) зарекомендовал себя как мощное средство диагностики низкотемпературной плазмы барьерного [1,2] и коронного [3,4] разрядов. Хотя наиболее ярко преимущества этого метода проявляются при измерениях пространственно-временных структур микрозарядов в суб-миллиметровом и суб-наносекундном диапазонах [1,2], в настоящей работе показано, что даже при отсутствии пространственного разрешения и при использовании микросекундного временного диапазона с его помощью удаётся получить ценную информацию о свойствах отрицательной короны, работающей в воздухе в режиме импульсов Тричела.

Описание экспериментальной установки и использованной методики проведения измерений методом ККС приведено авторами в другой работе, представленной в материалах настоящего симпозиума [5].

1. Статистический анализ результатов измерений

На рис.1 представлен типичный пример результатов пространственно неразрешённых измерений методом ККС ($\lambda=337$ нм) отрицательной короны в воздухе в сопоставлении с соответствующей осциллограммой тока (рисунок с экрана осциллографа, приведённый на рис.1 вверху справа). График экспериментальной зависимости интенсивности излучения $I(t)$ представляет собой последовательность четырёх пиков возрастающей ширины и убывающей амплитуды, причём первый из этих пиков занимает всего 1-2 канала временной шкалы ВАП (40 мкс на 1024 канала), то есть его ширина не превышает 80 нс, а его амплитуда почти на 2 порядка величины выше амплитуд последующих пиков.

Чтобы правильно интерпретировать эти результаты, необходимо принять во внимание как статистическую природу метода ККС, так и специфику исследуемого объекта. Поскольку, как показали измерения на 50-наносекундной временной шкале, реальная длительность световых импульсов не превышает 10-15 нс, а период их следования, как видно из осциллограммы тока на рис.1, составляет около 10 мкс, формы всех пиков после основного определяются не видом реальных импульсов, но статистикой их распределения по времени. Для количественного анализа этой статистики мы использовали две следующие альтернативные модели.

Модель А. (Модель классического марковского процесса).

В соответствии с этой моделью интервал времени между любыми двумя последовательными импульсами рассматривается как случайная величина, функция распределения которой $f(t-T)$ характеризует статистику отклонения мгновенного значения периода процесса от его среднего значения T . Если предположить тождественность импульсов по амплитуде и форме, то регистрируемые методом ККС интенсивности для пиков с номерами n и $n+1$ будут связаны следующим уравнением.

$$I_{n+1}(t) = \int I_n(\tau) f(t - T - \tau) d\tau \quad (1)$$

Поскольку для рассматриваемой временной шкалы (см. рис.1) основной пик можно аппроксимировать δ -функцией:

$$I_0(t) = \delta(t - t_0) \quad (2),$$

подставляя (2) в (1), получим

$$I_1(t) = f(t - T - t_0) \quad (3)$$

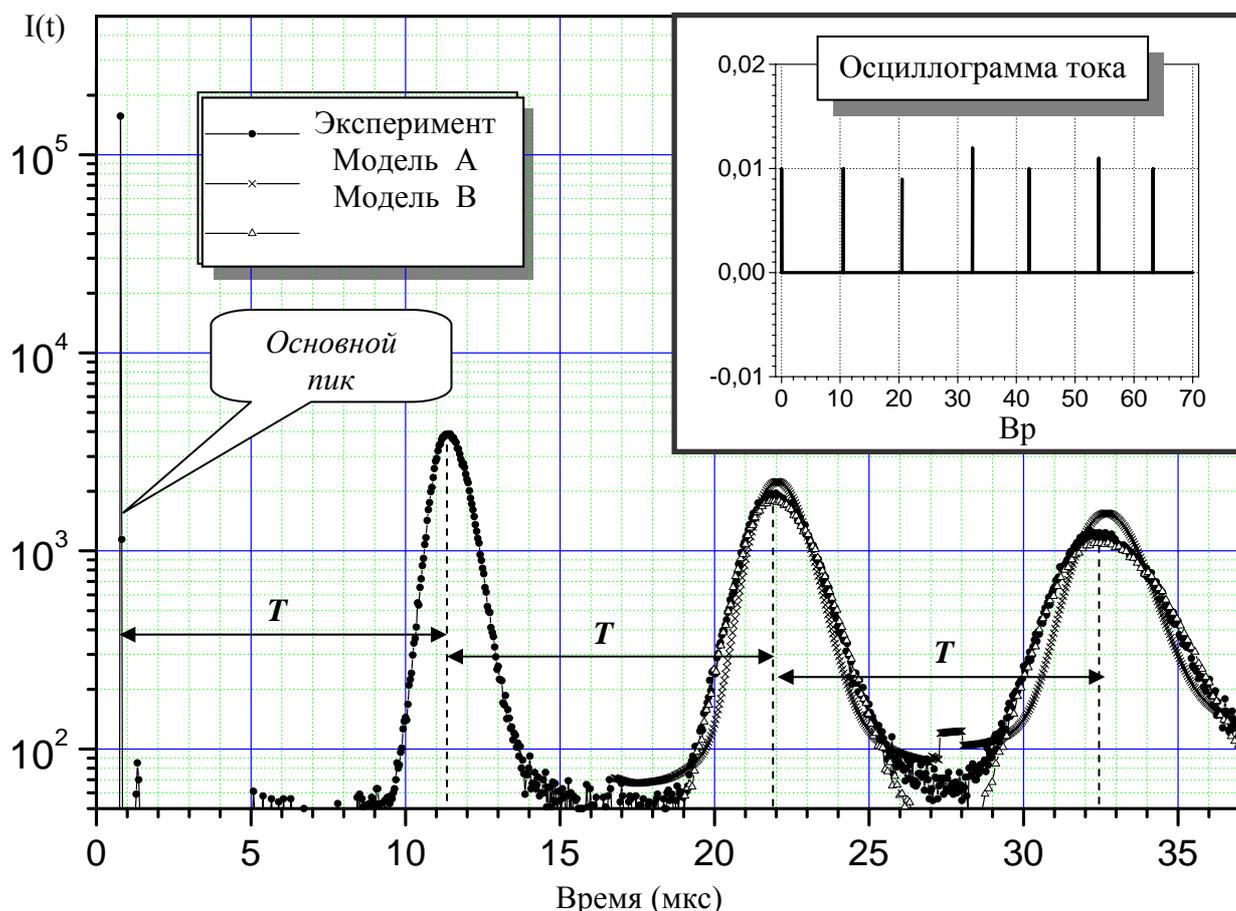


Рис. 1. Анализ результатов ККС отрицательной короны в воздухе. Пояснения в тексте.

Модель В. (Модель периодического процесса с переменной частотой).

Предположим, что рассматриваемую последовательность импульсов можно представить в виде совокупности подпоследовательностей с различной частотой (периодом), относительные вклады которых определяются соответствующей функцией распределения $f(t-T)$. Основной пик, как и в модели А, аппроксимируется δ -функцией (2). Для всех остальных пиков ($n \geq 1$) можно записать:

$$I_n(t) = n^{-1} f\{(t - t_0)n^{-1} - T\} \quad (4)$$

Легко видеть, что при $n=1$ соотношение (4) совпадает с выражением (3).

Таким образом, для обеих моделей вид функции $f(t-T)$ можно определить из экспериментальных данных для «первого» (следующего за основным) пика по уравнению (3), а затем использовать его для моделирования формы остальных сигналов при помощи соотношений (1) и (4). Результаты таких расчётов для $n=2,3$ приведены на рис.1. Как видно из их сопоставления с соответствующими экспериментальными данными, модель В существенно лучше аппроксимирует статистику появления импульсов Тричела. Физический смысл этого результата заключается в доминировании флуктуаций частоты процесса над случайным (стохастическим) разбросом временных интервалов между последовательными импульсами.

Причиной наблюдаемых флуктуаций частоты является, по-видимому, неустойчивость режима горения отрицательной короны, обусловленная «неидеальностью» формы поверхности коронирующего электрода и, как следствие, возможностью перемещения активной прикатодной зоны разряда по этой поверхности. Косвенным подтверждением этой гипотезы можно считать рассмотренный в следующем разделе пример немонотонной зависимости свойств разряда от величины напряжения питания.

2. Диагностика химической активности плазмы

Хорошо известно, что химическая активность низкотемпературной плазмы газовых разрядов в воздухе при атмосферном давлении определяется высокой энергией электронов, которые инициируют цепь химических превращений, приводящих в конечном итоге к образованию озона и окислов азота. При условии отсутствия сильного перегрева газа озон является основным продуктом плазмохимического синтеза, а величина его энергетического выхода определяется прежде всего скоростями процессов диссоциации молекулярного кислорода прямым электронным ударом и возбуждения триплетных электронных состояний молекулярного азота [2,6-8]. Пороговые энергии указанных процессов лежат в диапазоне 6-11 эВ, верхняя граница которого соответствует энергии возбуждения состояния $N_2(C^3\Pi_u)$, ответственного, в частности, и за генерацию излучения 2-ой положительной системы азота:



Таким образом, можно предположить существование определённой корреляции между химической и оптической активностью плазмы (т.е. между величиной энергетического выхода озона и интегральной интенсивностью излучения 2-ой положительной системы азота). Для проверки этой гипотезы мы провели серию экспериментов, выбрав в качестве варьируемого параметра величину напряжения питания (8,75-10,50 кВ). Метод ККС использовался для определения средней частоты импульсов Тричела и интегральной интенсивности излучения для $\lambda = 337 \text{ нм}$. Выход озона устанавливался традиционным титриметрическим методом. На рис.2 сопоставлены результаты всех этих измерений.

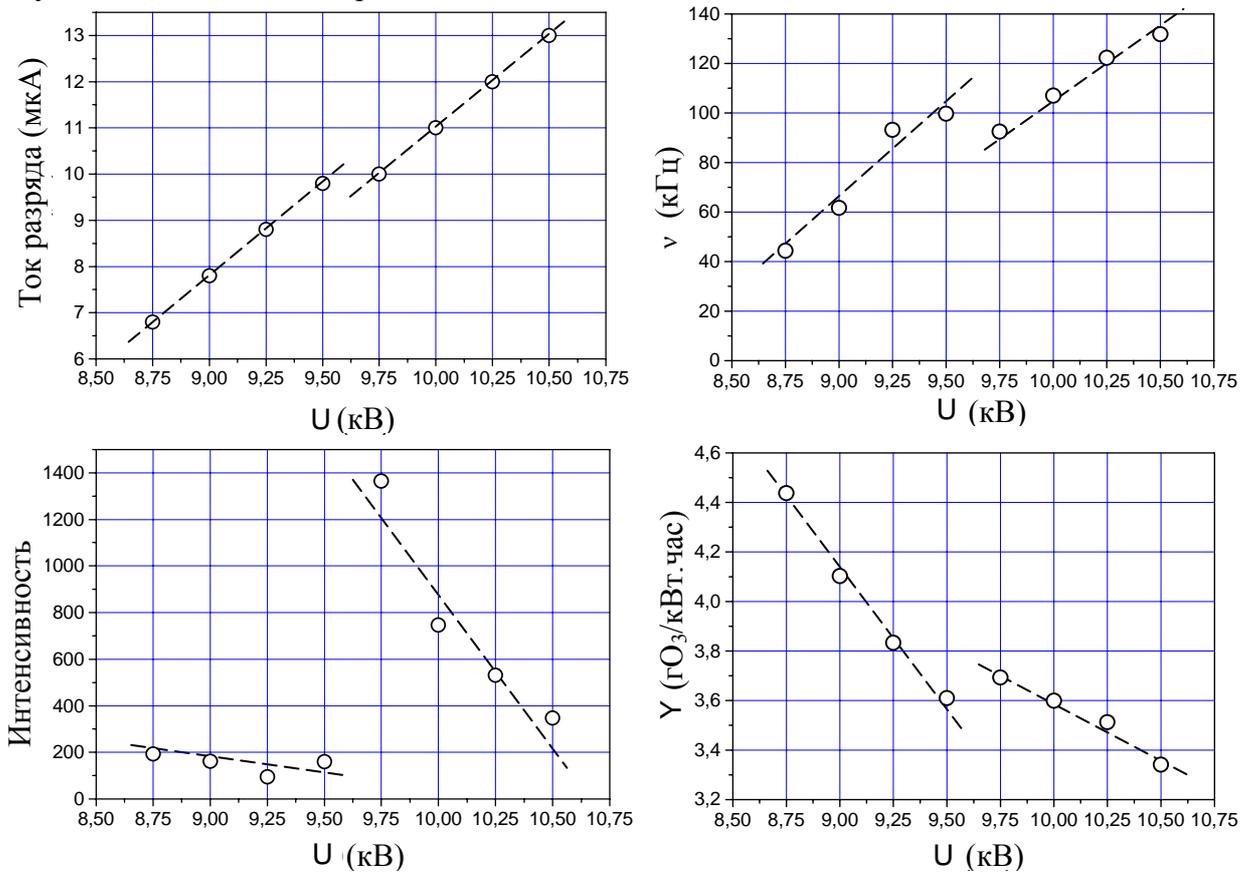


Рис. 2. Зависимости интегрального тока разряда, частоты следования импульсов Тричела, интенсивности свечения отрицательной короны (число отсчётов за 5 минут для $\lambda=337 \text{ нм}$), а также энергетического выхода озона от величины напряжения питания.

Сравнение основных электрических и оптических характеристик коронного разряда с его химической активностью (рис.2) позволяет обнаружить следующие закономерности. Явно выделяются два различных режима горения разряда, соответствующих диапазонам напряжения 8,75–9,50 кВ и 9,75–10,50 кВ. Для обоих режимов повышение напряжения вызывает рост среднего тока и увеличение частоты следования импульсов Тричела, при этом как интенсивность излучения, так и выход озона снижаются. Интересно отметить, что при переходе с одного режима на другой (с 9,50 кВ на 9,75 кВ) наибольшее изменение наблюдается для интегральной интенсивности излучения разряда.

Таким образом, как хорошо видно из приведённых на рис.2 графиков, снижение величины энергетического выхода озона сопровождается уменьшением интенсивности излучения, и наоборот: повышению выхода соответствует рост интенсивности. Эта корреляция, однако, не является универсальной: разным режимам горения разряда соответствуют разные соотношения углов наклона линейных аппроксимаций экспериментальных результатов.

3. Выводы

Метод пространственно неразрешённой кросс-корреляционной спектроскопии использован для анализа статистических свойств последовательностей импульсов Тричела отрицательной короны в воздухе. Показано, что экспериментальные распределения импульсов не соответствуют модели марковского процесса, однако могут быть аппроксимированы в рамках модели периодического процесса с переменной частотой.

Установлено, что диагностика химической активности плазмы исследуемого разряда, проведённая на основе пространственно неразрешённых измерений интенсивности свечения полос 2-ой положительной системы азота, оказывается недостаточной для количественного прогнозирования эффективности синтеза озона. Вместе с тем, на качественном уровне наблюдается определённые корреляции между выходом озона, электрическими и оптическими характеристиками разряда, которые позволяют выделить два различных режима его горения в зависимости от напряжения питания (8,75–9,50 кВ и 9,75–10,50 кВ). При этом оптическая диагностика оказывается наиболее чувствительной к изменениям режима горения короны.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают признательность профессору Ю.С. Акишеву за ценные замечания и рекомендации по улучшению методики проведения экспериментов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Kozlov K.V., Shepelyuk O.S., Samoilovich V.G. // *Proc. 11th Int. Conf. on Gas Discharges and Their Applications. IEE of Japan, Tokyo. 1995. V.2. p.142-145.*
2. Kozlov K. V., Wagner H.-E., Brandenburg R., and Michel P. // *J. Phys. D: Appl. Phys. 2001. V.34. P.3164-3176.*
3. Teich T.H. // *NATO ASI Series, Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution Control, ed. by Penetrante B.M. and Schultheis S.E., Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. 1993. V. G34, Part A. P.230-247.*
4. Kondo K., Ikuta N. // *J. Phys.D: Appl. Phys. 1980. V.13. P.L33-38.*
5. Морозов А.М., Козлов К.В., Бокша Н.С., Самойлович В.Г. // “Пространственно-временная структура излучения отрицательной короны в воздухе”, материалы настоящего Симпозиума.
6. Самойлович В.Г., Гибалов В.И., Козлов К.В. // *Физическая химия барьерного разряда. М., Изд. МГУ, 1989.*
7. Kossyi I. A., Kostinsky A. Yu., Matveyev A. A., and Silakov V. P. // *Plasma Sources Sci. Technol. 1992. V.1. P.207-220.*
8. Kogelschatz U., Eliasson B., and Egli W. // *J. Physique. 1997. V.IV C4. P.47-66.*