

ISSN 0367-1631

МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ УКРАИНЫ  
ОДЕССКИЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
им. И. И. МЕЧНИКОВА

# **Физика аэродисперсных систем**

**ВЫПУСК 40**

МЕЖВЕДОМСТВЕННЫЙ НАУЧНЫЙ СБОРНИК

*Основан в 1969 г.*

Одесса  
“Астропринт”  
2003

УДК 541.182.2/3:541.126:536.24+66.015.23:533.6

Рассмотрены вопросы испарения, конденсации и коагуляции в водном аэрозоле, а также кинетика горения твердых и порошкообразных горючих. Приведены результаты исследований по тепло- и массообмену в дисперсных системах. Освещены проблемы активного воздействия на метеорологические явления. Рассмотрены некоторые электрические явления при взаимодействии заряженных частичек.

Для физиков, химиков, метеорологов и инженеров.

Розглянуто питання випаровування, конденсації та коагуляції у водному аерозолі, а також кінетика горіння твердих і порошкоподібних паливних. Наведено результати досліджень з тепло- і масообміну в дисперсних системах. Висвітлено проблеми активної дії на метеорологічні явища. Розглянуто деякі електричні явища при взаємодії заряджених частинок.

Для фізиків, хіміків, метеорологів і інженерів.

*Редакционная коллегия:*

д-р физ.-мат. наук, проф. **В. В. Калинин** (гл. ред.);  
д-р физ.-мат. наук, проф. **М. Н. Чесноков** (зам. гл. ред.);  
д-р физ.-мат. наук, проф. **С. К. Асланов** (зам. гл. ред.);  
д-р физ.-мат. наук, проф. **А. Н. Золотко** (зам. гл. ред.);  
д-р физ.-мат. наук, проф. **Н. Х. Копыт** (зам. гл. ред.);  
д-р физ.-мат. наук, проф. **С. М. Контуш**;  
академик НАН Украины **Ю. П. Корчевой**;  
д-р физ.-мат. наук, проф. **А. В. Затовский**;  
д-р физ.-мат. наук, проф. **В. Г. Шевчук**;  
профессор **Анджей Гавдик** (Польша);  
канд. физ.-мат. наук, доцент **Г. С. Драган**;  
канд. физ.-мат. наук **Я. И. Вовчук** (секретарь);  
канд. физ.-мат. наук **С. Г. Орловская** (отв. секретарь);  
**Т. Ф. Смагленко** (техн. секретарь)

*Адрес редакционной коллегии:*

65026, Одесса, ул. Пастера, 27, университет, кафедра теплофизики,  
тел. 23-12-03, 23-62-27.

## СОДЕРЖАНИЕ

### ФИЗИКА АЭРОЗОЛЕЙ

- Асланов С. К.*  
О поверхностном разбрызгивании тяжелой жидкости  
при обдувании газом ..... 7
- Стручаев А. И., Стручаев Н. И., Савенко Г. И., Копыт Н. Х.*  
Модифицирование клетчатки обработкой в генераторе  
перегретой жидкости ..... 14
- Бойко Ю. И., Копыт Н. Х.*  
О подобии диспергирования жидкости под действием  
инерционных и гравитационных сил ..... 23
- Лялин Л. А., Семенов К. И., Копыт Н. Х.*  
Взаимодействие электронов и ионов кислорода с граничной  
сферой при фотоэмиссионной зарядке сферической  
аэрозольной частицы ..... 30
- Липатов Г. Н., Миргород П. И., Копыт Н. Х.*  
Экспериментальное исследование осаждения разбавленного  
аэрозоля NaCl в поле диффузии пересыщенного водяного пара.  
Предварительные результаты ..... 42

### ФИЗИКА ГОРЕНИЯ

- Яровой Т. А., Вовчук Я. И., Золотко А. Н., Полетаев Н. И.*  
Воспламенение, горение и потухание частиц высокозольных  
углей. Часть III. Горение газодисперсных систем частиц  
высокозольных углей ..... 48
- Флорко А. В., Головкин В. В., Копейка А. К.*  
Спектральные исследования факела азидоэтанола ..... 57
- Головкин В. В., Копейка А. К., Никитина Е. А.*  
Особенности теплового взрыва с параллельными реакциями ... 64
- Кондратьев Е. Н., Опятюк В. В., Семенов К. И.*  
Пульсационный режим испарения капли водо-топливной  
эмульсии ..... 71

<i>Скогарев В. Г.</i>	
Визуализация пространственной структуры факела с конденсированной дисперсной фазой .....	82
<i>Курятников В. В., Милова Л. Г.</i>	
Сыпучесть углеродного порошкообразного горючего в системах его подачи в камеру сгорания .....	87
<i>Рябчук Л. И., Чесноков М. Н., Трофименко М. Ю., Федотова В. С.</i>	
Зажигание титана импульсным лазерным излучением .....	94
<i>Коноваленко Л. Д., Макордей Ф. В., Андреев В. И., Барба И. Н.</i>	
Механизмы воспламенения горючих веществ полупроводниковыми мостиками .....	102

## ТЕПЛОМАССОБМЕН

<i>Калинчак В. В., Гулеватая О. Н., Калинчак А. И., Орловская С. Г.</i>	
Высокотемпературный тепломассобмен и кинетика химических реакций пористого углерода с воздухом с учетом стефановского течения .....	106
<i>Turin A. V., Prepelitsa G. P., Kozlovskaya V. P.</i>	
Kinetics of energy and heat exchange in mixture CO <sub>2</sub> -N <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O of atmospheric gases interacting with ir laser radiation: Precise 3-mode kinetical model .....	123
<i>Глушков А. В., Зеленцова Т. Н., Шпинарева И. М., Свиаренко А. А.</i>	
Кинетика энергообмена в молекулах CF <sub>3</sub> Br в среде буферного газа под действием интенсивного лазерного излучения .....	129
<i>Мочалов А. А., Коваль С. В., Коваль С. С.</i>	
Анализ условий тепломассопереноса в области перестройки конвективного потока .....	137
<i>Народицкая Т. В., <span style="border: 1px solid black; padding: 0 2px;">Поповский Ю. М.</span></i>	
Исследование зависимости диэлектрической проницаемости тонких прослоек жидкости от их толщины и температуры .....	143
<i>Орловская С. Г., Калинчак В. В., Грызунова Т. В.</i>	
Высокотемпературное окисление вольфрамового проводника с учетом теплообмена излучением и испарением окисной пленки с его поверхности .....	150

<i>Дроздов В. А., Дроздов М. А., В. В. Ковальчук</i> Синергетика надмолекулярных кластеров в матричных средах .....	162
<i>Алтоиз Б. А., Недялков Д. Д., Дадонова Е. Ю.</i> Мезоморфность, теплоемкость и плавление эпитропного жидкокристаллического слоя в его полуограниченной “цепочной” модели .....	176
<i>Панкратов К. И.</i> Квазиупругое некогерентное рассеяние медленных нейтронов в электролитах .....	193

## ГАЗОДИНАМИКА

<i>Затовский А. В., Сахненко Е. И.</i> Лагранжева корреляционная функция флуктуаций тензора инерции жидкой частицы .....	203
<i>Глушков А. В., Хохлов В. М., Цепенко И. А.</i> Застосування вейвлет-розкладення для аналізу запасів вихрової кінетичної енергії, процесів тепло-, масо-, енергопереносу в атмосфері .....	215
<i>Гирин А. Г.</i> О гидродинамической неустойчивости ускоряющейся поверхности раздела гомогенной и двухфазной сред .....	226
<i>Бобров Р. О., Затовский А. В., Звелиндовский А. В.</i> Образование и устойчивость вихревого движения воздуха между непроницаемой и пористой поверхностями .....	237
<i>Lisy V., Tothova J., Zatoovsky A. V.</i> Long-time tails in the dynamics of polymers in dilute solutions with hydrodynamics memory .....	245

## ЭЛЕКТРОФИЗИКА

<i>Затовский А. В., Кирилюк А. В.</i> Релеевское рассеяние света суспензией анизотропных частиц во внешнем электрическом поле .....	253
--	-----

<i>Вишняков В. И.</i>	
Агломерация частиц дыма в термической плазме . . . . .	263
<i>Вишняков В. И., Драган Г. С., Тамарина Н. А.</i>	
Изолированный зонд в термической плазме . . . . .	274
<i>Loboda A. V.</i>	
Elementary processes in a collisionally pumped plasma: 1. Consistent qed approach to calculation of electron-collision strengths . . . . .	285
<i>Терлецкая Л. Л., Копыт Н. Х., Голубцов В. В.</i>	
Влияние температурных полей на поведение некогерентных неоднородностей в монокристаллах и эпитаксиальных структурах арсенида галлия . . . . .	293
<i>Маренков В. И.</i>	
Наведена поляризація в запиленій плазмі з електричним струмом . . . . .	298
<i>Биллей Д. В., Драган Г. С., Соловьев В. Г., Кочнева В. Ю.</i>	
Анализ применения риск-ориентированных подходов для оптимизации эксплуатационного контроля атомных электростанций . . . . .	313
<i>Козловская В. П.</i>	
Теоретическое определение интенсивности свечения атомов щелочных металлов в водородно-кислородном пламени в присутствии магнитного поля . . . . .	322
<i>Препелица Г. П., Тюрин А. В., Чернякова Ю. Г.</i>	
Особенности спектра излучения плазмы в малоиндуктивной вакуумной искре: релятивистский расчет с учетом КЭД эффектов . . . . .	327
<i>Malinovskaya S. V.</i>	
Thermalized plasma of O- and F-like multicharged ions as an object for observation of new laser-electron nuclear effects . . . . .	333
<i>Ambrosov S. V.</i>	
New optimal scheme for gases and isotopes optically discharged separation with penning and stochastic collisional ionization . . . . .	340
<i>Персоналии</i> . . . . .	353

УДК 551.577

*С. К. Асланов*

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

### **О поверхностном разбрызгивании тяжелой жидкости при обдувании газом**

Построена теоретическая модель расчета разбрызгивания капель с поверхности тяжелой жидкости, обтекаемой потоком газа. С позиций гидродинамической неустойчивости производится математический анализ линейной стадии развития возмущений и процесса непосредственного отрыва капель на существенно нелинейной стадии.

При достаточной интенсивности газового потока, обдувающего поверхность тяжелой жидкости, на ней развивается нелинейное волнообразование большой амплитуды, когда последняя становится соизмеримой с длиной волны. В результате этого местная скорость обтекания гребней волн может в 1,5 — 2,0 раза превосходить основную скорость ветрового потока над жидкой поверхностью (в соответствии с известными случаями обтекания цилиндра и шара). В таких условиях в окрестности вершук гребней возникает гидродинамическая неустойчивость обдуваемого поверхностного слоя жидкости, вследствие чего он подвергается механическому разрушению, разбрызгиваясь в виде мелких капель. Этому способствует, что, поднимаясь к вершинам волнообразования, жидкость будет тормозиться силой тяжести. Порождаемые этим соответствующие силы инерции действуют вертикально вверх и тем самым частично компенсируют вес поднимающейся жидкости. При последующем падении вниз под действием тяжести жидкость будет ускоряться и испытывать действие сил инерции, направленных опять-таки вверх. В результате величина фактического ускорения поверхностного слоя жидкости  $W$ , которое играет стабилизирующую роль в механизме гидродинамической неустойчивости, в том и другом случае оказывается меньше ускорения силы тяжести  $g$ . Аналогична роль поверхностного натяжения жидкости  $\sigma$  и вязкой диссипации  $\mu$ . Единственным дестабилизирующим эффектом обладает местная тангенциальная скорость  $V$  обтекающего газового потока, которая достигает наибольших значений на вершинах гребней ветровых волн по сравнению с её величиной  $V_0$ .

Поэтому гидродинамическая неустойчивость сопряжённого течения жидкость-газ будет развиваться прежде всего в окрестности вершушек ветровых волн. С целью её локального математического анализа граница раздела представляется местной касательной плоскостью к жидкой поверхности, с которой связывается система отсчёта. В качестве основного стационарного течения указанных вязких сред принимается совокупность потоков жидкости ( $y < 0$ ) и обтекающего газа ( $y > 0$ ) параллельно плоскости их сопряжения ( $x, z$ ). Градиент скорости течения жидкости, увлекаемой газовым потоком под действием вязких сил, будет относительно небольшим из-за относительно малой величины вязкости газа и большой плотности жидкости. Поэтому можно пренебречь вязкостью газа и указанным градиентом в жидкости, а, значит, и её основным движением всюду в области ( $y \leq 0$ ). В то же время диссипативное влияние её вязкости на развитие возмущений следует учесть, т.е. рассматривать вязкую неустойчивость для жидкости и невязкую — для газа, что оказывается возможным сделать аналитически благодаря предложенному упрощённому подходу.

С другой стороны, в основном течении газа формируется тонкий пограничный слой ( $0 \leq y \leq \delta$ ), в котором под действием вязких сил создается значительный градиент скорости, быстро убывающий за его пределами ( $y > \delta$ ), где вязкий эффект прилипания газа к жидкой поверхности становится несущественным, а его поток можно считать однородным. В интересах осуществления аналитического подхода целесообразно прибегнуть к двустороннему предельному моделированию, которое отражает асимптотическое представление истинного непрерывного профиля скорости сопряжённых сред (жидкость-газ) внутри и вне погранслоя применительно к масштабам соответственно меньшим и большим толщины  $\delta$ . В первом случае это будет модель постоянного градиента (ПГ) с линейным профилем нарастания скорости газа с удалением от жидкой поверхности. Во втором случае это — модель тангенциального разрыва скорости (ТР) на границе раздела сред, которая применима, когда длина волны  $\lambda$  мелкого волнообразования на вершушках гребней крупного (первичного) ветрового волнообразования заметно превосходит толщину  $\delta$  газового погранслоя ( $y > \delta$ ).

Предлагаемый подход к математическому анализу местной гидродинамической неустойчивости сопряженного течения жидкость-газ был реализован нами ранее [1,2,3] с целью теоретического объяснения процессов дробления капель, ускоряющихся в потоке газа за ударной волной, при детонации аэрозолей и разбрызгивания расплавленного вещества с поверхности метеорных тел, тормозящихся в атмосфере. При этом главным дестабилизирующим фактором служили силы инерции, порождаемые ускорением жидкости по нормали к её поверхности и направленные в сторону обтекающего газа. Как сказано выше, в настоящем исследовании такая роль отводится



местной тангенциальной скорости газа в качестве единственного источника возможной неустойчивости.

Тогда на линейной стадии развития возмущений вида  $\exp(iqx + qfy - i\omega t)$  обезразмеривание собственного значения  $\omega$  и параметра вязкости естественно осуществлять на основе величины  $V$  :

$$\Omega = -i\omega / qV, \quad \beta = qv / V, \quad v = \mu / \rho, \quad q = 2\pi / \lambda \quad (1)$$

где  $\rho$  — плотность жидкости.

В спектре указанных плоских волн экспоненциального типа целесообразно сосредоточить внимание, главным образом, на наиболее нестабильной, каковой является волна с нормалью к ее фронту, направленной параллельно местной скорости обтекающего газа [1,2,4]. Соответствующие решения уравнений Навье-Стокса для вязкой жидкости и идеального газа, убывающие с удалением от их границы раздела, сопрягаются на ней при помощи условий совпадения нормальных составляющих скоростей сред и самой границы, а также совпадения обеих составляющих напряжений в них. В результате совершенно аналогично [1, 2] получается уравнение для определения собственных значений  $\Omega$  которое, в частности, для ТР- модели принимает вид

$$(1 + \gamma)Q^2 + (3\beta + 2i\gamma)Q + 2\beta^2[1 - \sqrt{1 + (Q/\beta)}] = \alpha \\ \alpha = (\gamma - 1)W / (qV^2) + \gamma - \sigma q / (\rho V^2); \quad \gamma = \rho_1 / \rho \sim 10^{-3} \quad (2)$$

где  $\rho_1$  — плотность газового потока и  $W=g$ . Использование этой модели оказывается достаточным для объяснения отрыва капель с диаметром  $d \sim 1$  мм. Действительно, толщина погранслоя в обтекающем газе [4]  $\delta \approx 3\sqrt{\nu_1 h / V}$ ,  $\nu_1 = \mu_1 / \rho_1$ ,  $\mu_1$  — вязкость газа,  $h$  — амплитуда крупного волнообразования жидкой поверхности. Для  $\nu_1 \approx 0,15$  см<sup>2</sup>/с (воздух),  $h \sim (0,1 \div 1,0)$  м,  $V \sim 10$  м/с будем иметь  $\delta \approx 2,5$  мм. Для размера капель, разбрызгиваемых посредством мелкого волнообразования  $d \sim 1/q \approx 1$  мм с длиной  $\lambda = 2\pi / q \approx 2\pi$  мм удовлетворяется условие  $\delta < \lambda$ .

В то же время для жидкости (например, воды)  $\nu \approx 10^{-2}$  см<sup>2</sup>/с,  $\sigma \approx 70$  дин/см, так что  $\beta \approx 10^{-4}$ , и асимптотика по такому малому параметру позволяет найти решение (2):

$$\Omega = \sqrt{\alpha} - \frac{3}{2}\beta - i\gamma\left(1 - \frac{3}{2}\frac{\beta}{\sqrt{\alpha}}\right) + O(\beta^{3/2}) \quad (3)$$

При  $\alpha > 0$ , т.е.  $\text{Re}(-i\omega) > 0$ , оно обладает неустойчивостью колебательного характера в области

$$q_- < q < q_+, \quad q_{\pm} = \frac{\rho\gamma V^2}{2\sigma} \left(1 \pm \sqrt{1 - 4 \frac{\sigma W}{\rho\gamma^2 V^4}}\right) \quad (4)$$

Первостепенную роль в переходе к нелинейной стадии развития неустойчивости будут играть возмущения с наибольшим инкрементом  $\text{Re}(-i\omega)$  нарастания их амплитуды. Последний с точностью до главного члена асимптотики (3) имеет два экстремальных состояния: максимум при  $q = q_m^{(+)}$  и минимум при  $q = q_m^{(-)}$ , где

$$q_m^{(\pm)} = \frac{\rho\gamma V^2}{3\sigma} \left(1 \pm \sqrt{1 - \frac{3\sigma W}{\rho\gamma^2 V^4}}\right) \quad (5)$$

Таким образом, за преимущественный масштаб (5) линеаризованного мелкого (вторичного) волнообразования на вершинах основного (крупного) можно принять окрестность значения

$$\lambda \approx \lambda_m = 2\pi / q_m^+ \approx 0,6977 \text{ см} \quad (6)$$

для принятых выше физических параметров,  $W = g$ .

Тенденция нарастания высоты этих мелких гребешков сохранится и на нелинейной стадии развития возмущений за счет понижения давления обтекающего газа над выпуклыми и повышения — над вогнутыми участками жидкой поверхности. Последнее приводит к выталкиванию жидкости из впадин в выпуклости, которые вытягиваются и утоньшаются, а расширяющиеся ямки уплощаются, нарушая симметричный характер линейного волнообразования. С учетом всего спектра плоских волновых возмущений локальный рельеф жидкой поверхности (на плоскости  $x, z$ ) на вершинах основных гребней примет форму чередующихся бугорков, которые вытягиваются вверх в виде струек, и окружающих их впадин, питающих рост струек вытесненной жидкостью. В результате высота струек становится гораздо больше образующихся между ними углублений. Это позволяет для теоретического объяснения явления отрыва капелек с концов струек воспользоваться геометрически простейшей моделью гиперboloида вращения с параметром  $A$

$$Y = A[(1/X) - (1/X_1)], \quad Y = y/x, \quad X = r/\lambda, \quad r^2 = x^2 + z^2 \quad (7)$$

при  $y \geq 0$  в применении к описанию струйки, а ямку описать с помощью вращения нижней части  $y \leq 0$  той же гиперболы около оси  $X = 1/2$ , смещенной на  $\lambda/2$ .

В предположении локально равномерного характера распределения вытяжений и углублений на плоскости  $(x, z)$  из баланса массы жидкости, перетекающей из вторых в первые, находится величина  $X_1 = 0,182$ , устанавливающая соотношение среднего размера лунок и оснований струек.

Выталкивание жидкости из окружающих каждую струйку углублений создаст кумулятивный эффект, порождая интенсивный разгон жидкости  $\Delta W$  в струйке и её вытяжение вопреки действию силы тяжести. Уменьшаясь вдоль струйки вместе с ослаблением кумулятивного эффекта, такой разгон в применении к её модели (7) должен принимать некоторое ограниченное значение  $W_\infty$  при  $Y \rightarrow \infty$ , а также отсутствовать вначале ( $Y=0$ ). В качестве его простейшего представления можно использовать следующее дробно-линейное выражение с неопределёнными параметрами  $a$  и  $W_\infty$ :

$$\Delta W = \frac{W_\infty Y}{a + Y} \quad (8)$$

Математический расчёт процесса отрыва капелек с концов струек производится ниже, следуя методике, развитой нами в [1, 2, 3]. Гидродинамический напор в сечении струйки  $Y$  оценивается суммарным изменением импульса всего предшествующего участка, начиная от  $Y=0$ . Этот напор служит источником выталкивающей силы для осевого разгона последующей концевой части струйки вплоть до  $Y = \infty$ , оставаясь ограниченным по величине при любом  $Y$ . Порождаемому им давлению внутри жидкости будет противодействовать поверхностное натяжение  $\sigma / r$ , которое неограниченно возрастает вместе с уменьшением радиуса струйки. После достижения равновесия в сечении  $Y_* = Y(X_*)$  при  $Y > Y_*$  под действием избытка поверхностного натяжения произойдёт пережатие струйки и отрыв концевой части  $Y_* < Y < \infty$ , из которого формируется капля. Указанный баланс напряжений на поверхности струйки служит одним из условий, определяющих верхнюю границу размера отрывного сечения  $r = r_*$  ( $X = X_*$ ). Другим условием является баланс осреднённых по сечению интегральных изменений импульса для масс струйки по обе стороны от равновесного сечения  $Y = Y_*$ . Третье условие получается из совпадения масс отрывающегося участка модельной струйки  $(Y_*, \infty)$  и формирующейся из него сферической капли с диаметром  $d$ . В результате приходим к следующей системе трех уравнений:

$$\begin{aligned} \varphi(\zeta) + \frac{2\zeta}{1-\zeta} [a\eta\zeta\varphi(\zeta) - \ln(1+a\eta\varphi)] &= 0 \\ \Theta = a\eta \frac{\zeta\varphi}{1-\zeta}, \quad \frac{3}{4}b^3\zeta a = X_1\Theta^2, \quad b = \frac{2r_*}{d} \end{aligned} \quad (9)$$

где  $\varphi(\zeta) = -\zeta(1 + \frac{\ln \zeta}{1-\zeta})$ ,  $\eta = \frac{\rho X_1 \lambda^2}{2\sigma} W_\infty$ ,  $\Theta = \frac{X_*}{X_1}$ ,  $\zeta = \frac{A}{aX_1}$

для определения введенных модельных характеристик  $\Theta$ ,  $\zeta$ ,  $W_\infty$ ,  $a$ .

Поскольку конечная часть струйки к моменту отрыва капли приобретает квазицилиндрическую форму, величину  $b$  можно оценить с позиций построенной нами [5] теории распада тонких цилиндрических струй в результате их неустойчивости:  $b \approx 0,53$ . При этом оторвавшаяся капля оказывается на расстоянии  $\Delta y \approx 9r_*$  от образующегося конца струйки  $y = y_*$  и уносится обтекающим потоком газа.

Математически замкнуть задачу (9) целесообразно условием минимального значения для введенной модельной характеристики  $W_\infty$  (или  $\eta$ ), обуславливающей интенсивность кумулятивного механизма, в частности, приняв в качестве четвертого уравнения требование  $\min \eta(a)$ . Исключение  $\Theta$ ,  $\eta$  из первого уравнения (9) дает

$$F(\zeta) = \sqrt{Ba\zeta} - \frac{\ln[\sqrt{\zeta} + \sqrt{Ba}(1-\zeta)]}{1-\zeta} - \frac{1}{2} = 0, \quad B = \frac{3b^3}{4X_1} \quad (10)$$

с параметром  $a$ .

Имея тривиальный корень  $\zeta = 1$ , это уравнение обладает вторым корнем только при выполнении  $F(0) = -(0,5 + \ln \sqrt{Ba}) > 0$ , или  $a < 0,6$ , поскольку  $F'(1) > 0$ . Математический анализ параметрического уравнения (10) совместно с требованием  $\min \eta(a)$  показал действительное его наличие при  $a = 0,1467$  с величиной  $\eta_m \approx 4,43$  для принятых выше физических характеристик жидкости и потока газа. Соответствующие этому модельные параметры выражаются:  $A = 0,0243$ ,  $X_* = 0,0521$ ,  $Y_* = 0,333$ , так что  $\lambda_m / d \approx 5,1$ . Отсюда согласно (6) получаем в качестве верхней границы значение  $d \approx 1,37$  мм, согласующееся с исходной оценкой размера  $d \sim 1$  мм;  $W_\infty = 70$  м/с<sup>2</sup>. Таким образом, в отрывном сечении  $Y_*$  по (8) развивается кумулятивный разгон жидкости  $W_* = 48,6$  м/с<sup>2</sup>, или с учетом преодоления действия тяжести 38,8 м/с<sup>2</sup>, что четырехкратно превосходит  $g$ . При этом струйка поднимается над поверхностью жидкости на высоту  $y_* \approx 2,3$  мм, а оторвавшаяся капля — на высоту  $y_* + 9r_* \approx 5,6$  мм.

### Литература

1. Асланов С.К. Гидродинамическая неустойчивость и математическое моделирование процесса механического разрушения жидкой поверхности // Вестник ОДУ. — Одесса. — 2001. — Т.5, вып.3. — С. 94-102.
2. Асланов С.К. О гидродинамическом моделировании процесса абляции поверхностного слоя метеороида // *Астрономический вестник (РАН)*. — Москва. — 2000. — Т.34, №4. — С. 348-356.
3. Асланов С.К. Модель разбрызгивания капель с расплавленной поверхности метеороида при его абляции // *Астрономический вестник (РАН)*. — Москва. — 2003. — Т.37, №3. — С. 245-248.
4. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Гидродинамика. — М.: Наука. — 1986. — 736 с.
5. Асланов С.К. Решение задачи Релея о неустойчивости тонких струй для стадии их распада // *Физика аэродисперсных систем*. — Одесса. — 2001. — Вып. 38. — С. 220-227.

*С. К. Аслаиов*

### **Про поверхнєве розбризкування важкої рідини при обдуванні газом**

#### **АНОТАЦІЯ**

Побудовано теоретичну модель розрахунку розбризкування крапель з поверхні важкої рідини, що обтікається газом. З позицій термодинамічної нестійкості проводиться математичний аналіз лінійної стадії розвитку збурень та процесу безпосереднього відриву крапель на суттєво нелінійній стадії.

*Aslanov S. K.*

### **On the surface spraying of a heavy liquid by means of a gas streamline flow**

#### **SUMMARY**

The theoretical model for the calculation of the spraying of drops from heavy liquid surface by means of gas streamline flow is constructed. On the basis of the hydrodynamic instability the mathematical analysis of the linear stage disturbances and of spontaneous separation drops process during essentially non-linear stage is carried out.

*А. И. Стручаев<sup>1</sup>, Н. И. Стручаев<sup>2</sup>, Г. И. Савенко<sup>3</sup>, Н. Х. Копыт<sup>1</sup>*

<sup>1</sup> *Одесский национальный университет им. И.И. Мечникова,*

<sup>2</sup> *Таврическая государственная агротехническая академия, г. Мелитополь,*

<sup>3</sup> *Одесский государственный медицинский университет*

## **Модифицирование клетчатки обработкой в генераторе перегретой жидкости**

На примере модифицирования клетчатки пшеничной соломы показана перспективность применения генератора перегретой жидкости (ГПЖ) с целью повышения кормовой ценности грубых кормов за счет разрушения лигнин-целлюлозных связей в сырье и увеличения содержания целлюлозы в форме D-глюкозы.

### **Введение**

В предстоящие годы тенденция к прогрессивному росту населения планеты сохранится — по прогнозам экспертов-демографов ООН оно к 2015 году достигнет 10 млрд. человек. Производство же продовольствия отстает от темпов роста населения — в этих условиях сельскохозяйственные животные становятся конкурентами человека в потреблении пищевых продуктов, особенно зерна, превращая эту проблему в глобальную и побуждая к поискам новых источников фуража.

Анализ альтернативных источников пополнения рациона животных показывает, что имеется колоссальный неиспользованный резерв — корма растительного происхождения с высоким содержанием клетчатки. Однако лишь незначительная часть этого резерва в виде соломы зерновых и зернобобовых культур используется в виде корма из-за его малой питательной ценности, хотя потенциально пищевая и энергетическая ценность грубых кормов сопоставима с ценностью зерна.

### **Общие сведения и анализ проблемы**

Важным фактором создания прочной кормовой базы агрохозяйств в условиях нехватки высококалорийных кормов (фуражного зерна, комбикормов и т.п.) является внедрение прогрессивных технологий, улучшающих качество кормов и повышающих их питательную ценность. Это требует более эффективного использования в составе полнорационных кормосмесей важного резерва кормопроизводства — грубых малоценных растительных кормов с богатым содержанием сырой клетчатки, в первую очередь соломы, камыша, виноградной лозы и т.п. В ряду таких кормов так же рисовая солома, кукурузные листья и стебли.

Солома зерновых культур — важная часть рациона крупного рогатого скота. Обладая почти такой же брутто-энергией (теплотой сгорания 18,4 МДж/кг), как и высокоценные зерновые корма, она содержит около 90% органического вещества. Причем, углеводная фракция состоит, в основном, на 40-45% из *целлюлозы*, на 20-30% из *гемицеллюлозы (пентанозы)* и на 15-20% из *лигнина*. Кормовую ценность соломы можно заметно увеличить физико-химической, химико-биологической или ферментной обработкой [1], которая позволяет извлечь находящуюся в ней клетчатку с последующим расщеплением этого природного биополимера до усваиваемой формы — глюкозы.

Сырая растительная клетчатка (целлюлоза) — один из самых распространенных природных биополимеров (степень полимеризации до 10 тысяч), производимый растениями в количестве примерно  $10^{14}$  кг в год. Этот углевод представляет собой основной опорный гомополисахарид (*полиглюкозу*) клеточных стенок растений [2]. В соломе его содержится до 50% по массе, а в древесине — до 60-75%. Макромолекулы целлюлозы ( $C_6H_{10}O_5)_n$ , представляющие собой линейные неразветвленные цепи, построены из 1,4-связанных остатков  $\beta$ -D-глюкозы ( $C_6H_{12}O_6$ ), образующих высокоупорядоченные надмолекулярные структуры. В клеточных стенках пучки молекул целлюлозы, погруженные в матрикс из гемицеллюлоз, лигнина и пектиновых веществ, образуют микрофибриллы, играющие роль армирующего материала.

Моносахарид глюкоза, образующая путем соединения повторяющихся остатков своих молекул полисахарид — *поли- $\beta$ -D-глюкозу*, имеет из шести атомов углерода молекулы четыре хиральных атома с номерами 2, 3, 4 и 5, поэтому у нее много конфигурационных изомеров, которые различаются биологическими свойствами. Если учесть, что у глюкозы в конформации “кресла” все *ОН*-группы лежат в экваториальной плоскости и способны образовать водородные связи с соседними цепями, становится понятным, что эта особенность вместе с жесткостью конформации, обусловленной конфигурацией мономерных звеньев, ведет к способности целлюлозы формировать прочные цепи.

Обычно целлюлоза не расщепляется гидролитическими ферментами желудочно-кишечного тракта большинства млекопитающих. Однако в пищеварительной системе жвачных животных, главным образом в рубце, присутствуют бактерии, которые содержат ферменты из класса *гидролаз*, называемые *целлюлазами*. Они то и катализируют гидролиз  $\beta$ -1,4-гликозидных связей в целлюлозе с образованием глюкозы или восстанавливающего дисахарида *целлобиозы (4-O- $\beta$ -D-глюкопиранозил-D-глюкозы)* [2], т.е. благодаря ферментативному гидролизу животные могут переваривать клетчатку грубых растительных кормов, добавляемую в рацион при откорме. Лигниновые же целлюлозы можно разлагать на основные компоненты посредством щелочной переработки, причем такое разложение представляет собой наиболее экономичный и эффективный метод.

Широко распространенным и доступным кормом для жвачных животных, содержащим большое количество клетчатки, могут быть также камыш и тростник. Учитывая, что площадь, занятая ими на Украине, составляет около 0,14 миллиона га при средней урожайности 200 ц/га, количество дополнительного корма может быть весьма значительным. В качестве потенциальных кормов этой категории, способных заменить часть рациона жвачных животных, можно рассматривать и ежегодные обрезки веток садов и лозы виноградников [3], содержащих большое количество клетчатки, минеральных и питательных веществ — протеина, каротина, витаминов и сахара (см. Таблицу).

Таблица

**Химический состав наиболее распространенных грубых растительных кормов  
(в % от абсолютно сухого вещества)**

Фаза сбора	зола	протеин	жиры	клетчатка	БЭВ	Пит. ценность (корм. ед.)
Солома пшеничная						
Плодоношение	13,4	6,8	1,5	41,1	31,4	0,17-0,20
Камыш озерный						
Цветение	13,0	10,7	2,6	28,5	45,2	0,18
Конец цветения	13,2	12,9	1,4	24,3	48,2	0,16
Плодоношение	16,0	10,0	2,0	35,5	36,5	0,12
Тростник обыкновенный						
Колошение	7,3	11,5	2,4	39,7	39,1	0,18
Цветение	7,3	8,7	2,4	38,3	43,3	0,15
Плодоношение	14,0	6,2	2,0	35,0	42,8	0,13
Лоза виноградная (обрезки)						
Почкование	7,1	8,5	2,2	44,2	28,0	0,30-0,36
Ветки фруктовых деревьев (обрезки)						
Почкование	7,3	5,9	1,9	52,1	32,8	0,22 - 0,28

Что же препятствует более широкому использованию грубых кормов? Это прежде всего плохая поедаемость и перевариваемость, составляющая всего 30-45%.

Упомянутые корма, как уже отмечалось, на 70-75% состоят из полисахаридов, главным образом гомополисахарида целлюлозы и гетерополисахарида гемицеллюлозы. С ними прочно связан химически и физически еще один природный нерегулярный полимер — лигнин. Его разветвленные макромолекулы построены главным образом из остатков замещенных фенолоспиртов, например 3-метокси-4-оксикоричного (кониферилового), 3,5-диметокси-4-оксикоричного (синапового), и соединены с другими компонентами одревесневших растений углерод-углеродными и простыми эфирными связями.

Лигнин-полисахаридный комплекс является главным препятствием в переваривании углеводов в пищеварительном тракте жвачных животных, образуя барьер, защищающий целлюлозу от действия микроорганизмов и



препятствующий ферментативному разрушению ее в рубце. Однако лигнинные целлюлозы можно посредством щелочной обработки (варке при температуре ~400 К) разлагать на основные компоненты, причем такое разложение представляет собой один из наиболее экономичных и наиболее эффективных способов обработки.

#### **Экспериментальная часть**

Выделение целлюлозы из природных материалов основано на разрушении нецеллюлозных компонентов (в основном лигнина) в жестких условиях (щелочная варка стеблей при температуре 380 — 460 К и избыточном давлении 6,5-15 атм в присутствии водного раствора *NaOH* в концентрациях до 20% ).

Применяется несколько способов подготовки грубых кормов к скармливанию в результате которых поедаемость, согласно анализу проведенных экспериментов, возрастает, в среднем, более чем в два раза, а кормовая ценность после обработки достигает 0,45-0,55 корм. ед. благодаря улучшению ее перевариваемости. Однако способы переведения соломы в удобную для переработки форму обладают малым эффектом разложения для получения экономической выгоды. Большинство них требует создания и поддержания в ходе технологического процесса строгого температурного режима, позволяющего сокращая время обработки корма избежать накопления в нем фуруроловых производных.

При исследовании оптимальных режимов для поддержания технологически необходимой температуры в процессе модифицирования сырой клетчатки одним из авторов проведено определение скорости и глубины прогрева слоя обрабатываемой соломы в измерительной ячейке (рис. 1), моделирующей процессы в реальных установках термохимической обработки грубых растительных кормов [5].

Термопары, установленные с постоянным шагом (~20 см) по высоте ячейки, фиксировали изменение во времени локальной температуры при продувании перегретого пара через слой предварительно измельченной и смоченной рабочим раствором соломы, находящейся в измерительной ячейке (так называемый “нестационарный метод”).

Проведенные эксперименты показали, что имеющиеся особенности эксплуатируемых в агрохозяйствах установок термохимической обработки соломы (УТОС) при установленных габаритах [6] не позволяют выдерживать расчетную технологию — часть корма остается практически необработанной. Попытки устранить конструктивные недоработки крупногабаритных УТОС путем увеличения количества парораспределителей в них (в существующих моделях их пять) могут оказаться малоэффективными. Из-за низкой температуро- и теплопроводности слоя грубых волокнистых материалов (у пшеничной соломы коэффициент теплопроводности находится в пределах

0,12-0,15 Вт/м·К) его прогрев до технологически оправданных температур потребует значительного расхода перегретого пара и существенно увеличит время обработки. И то и другое с экономической точки зрения не выгодно.

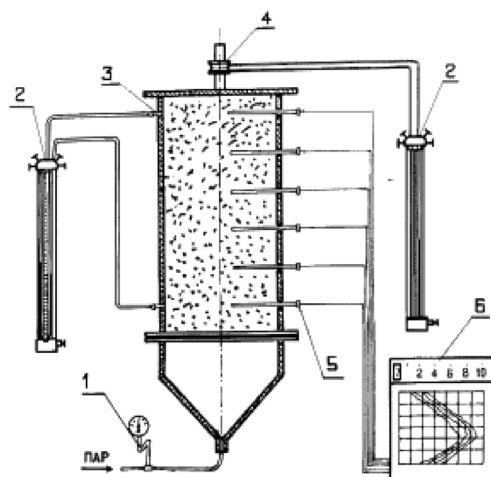


Рис. 1. Схема установки для исследования термохимической обработки соломы “нестационарным методом”:  
1 — манометр, 2 — дифманометры; 3 — измерительная ячейка; 4 — диафрагма; 5 — термопары; 6 — потенциометр

Естественно, при обработке соломы и других волокнистых кормов желательно применять такой метод, который был бы лишен указанных недостатков и давал возможность осуществлять теплообмен не в слое материала, а на отдельных частицах, т.е. проводить управляемое модифицирование клетчатки.

Для этих целей был использован генератор перегретой жидкости [7], в котором термобарохимическая обработка сырой клетчатки пшеничной соломы проводилась в гетерофазном режиме, т.е. в процессе прогрева измельченных стеблей участвовали как жидкая, так и паровая фаза гидролизующего раствора.

Эксперименты проводили с учетом технологического цикла подготовки соломы к скармливанию. Последовательность операций при этом такова: солому измельчали до размера 30-50 мм, смешивали с гидролизующим раствором по одной из указанных в [2] методик и загружали в генератор перегретой жидкости, где она находилась до окончания обработки. (При этом важным элементом на этапе предварительной подготовки соломы являлось точное определение ее исходной влажности (ОСТ 70.2.15-73 “Испытания

сельскохозяйственной техники. Методы определения условий испытаний”), т.к. сезонные колебания этой характеристики в пределах 60-80% могут заметно изменять фактическую концентрацию гидролизующего раствора и влиять на полноту связывания щелочи ацетильными группами соломы.) Затем часть рабочего объема генератора заполняли определенным (расчетным) количеством воды (или разбавленным гидролизующим раствором, содержащим до 6%  $NaOH$ ) и герметично закрывали. После чего вначале нагревали до 350÷370 К при давлении 3÷3,5 атм, а по истечении 0,5 часа увеличивали температуру до 400÷420 К и выдерживали еще 15÷20 мин при давлении 9÷10 атм. Насыщенный пар прогревал увлажненную солому, ускоряя процесс деполимеризации.

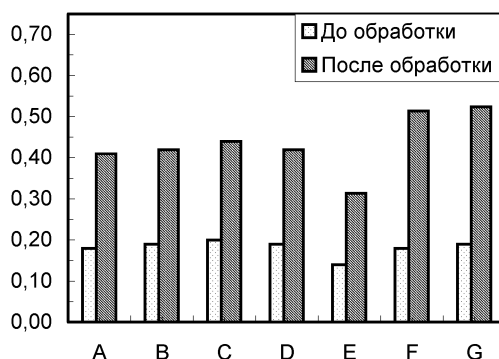
За время нагрева давление в объеме генератора возрастает гораздо выше атмосферного, вследствие чего жидкость прогревается до температур, превышающих температуру кипения в нормальных условиях. Контроль термодинамических параметров в объеме генератора осуществляется с помощью термометров сопротивления и контактного манометра, а изменением мощности встроенного нагревателя через блок питания можно эти параметры регулировать. Когда давление в камере генератора достигает заранее выбранного значения, осуществляется выброс перегретой жидкости: по сигналу от электроконтактного манометра герметичную мембрану из медной фольги просекают кольцевым ножом [8]. При быстрой разгерметизации генератора жидкость, находящаяся как в самом объеме, так и проникшая в каналы стеблей соломы и капилляры их стенок, оказывается в метастабильном (перегретом) состоянии: реализуется “ударный” тепловой режим вскипания. Благодаря этому в момент выпуска происходит еще и механическое разрушение структуры стеблей соломы, способствуя ее дополнительному измельчению, что, в конечном счете, повышает ее перевариваемость. Предварительные эксперименты показали, что обработка гидролизуемой массы в таком режиме приводит к делигнификации целлюлозы за 45-50 мин. С учетом этого производят ее выгрузку: поршневое действие пара, находящегося в генераторе, выбрасывает обработанную массу в виде гетерофазной струи в кормоприемник, где производится последующая нейтрализация до pH 5,5.

Применяемый цикл обработки соломы в генераторе перегретой жидкости имеет еще одно важное преимущество перед другими способами термобарохимической обработки — реакция гидролиза гемицеллюлоз полисахаридов соломы до моносахаридов и отчасти олигосахаридов происходит в водном растворе и довольно быстро. Принципиальная возможность регулирования параметров в объеме генератора в оптимальных пределах 390-420 К устраняет причины излишнего накопления свободных радикалов и соединения их с фурфуролом или его производными полимерного типа при рекомбинации из-за ускорения делигнификации.

Результаты экспериментов, представленные на диаграмме, показывают изменение кормовой ценности сырья в зависимости от вида и технологичес-

кого цикла обработки. Подбирая в ходе экспериментов соотношение между массой модифицируемого корма и массой заливаемого в объем генератора гидролизующего раствора установленной концентрации и варьируя для каждого случая температуру нагрева, можно добиться оптимальных температурно-временных режимов наиболее эффективного кормоприготовления.

Корм. ед. / кг



**Диаграмма:** Влияние способа обработки соломы на ее кормовую ценность: Химический (A — 4,2%  $NaOH$ , 30 мин; B — 5,0%  $NaOH$ , 60 мин; C — 6,5%  $NaOH$ , 120 мин). Запаривание водой (D — 90 мин, 358 К; E — 120 мин). Термобарохимический (F — 4,5%  $NaOH$ ; 30 мин, 393 К и 3,5 атм + 30 мин, 420 К и 8,8 атм; G — 5,2%  $NaOH$ ; 30 мин при 393 К и 3,5 атм + 20 мин при 425 К и 9,1 атм)

Для повышения перевариваемости соломы при ее обработке раствором  $NaOH$  имеют значение четыре основных фактора: концентрация щелочи, температура обрабатываемого материала, давление, при котором происходит разложение, время обработки. Проведенные эксперименты показали, что данные факторы можно варьировать в определенных рамках, не меняя конечного результата, однако наиболее существенным из них, эффективно влияющим на разложение соломы, является концентрация щелочи в гидролизующем растворе с оптимум в диапазоне 4,5-5,5%.

Декомпрессионо-фазоинверсная дезинтеграция грубого корма, предварительно нагретого до 350-400 К и обработанного химическими реагентами, позволяет не только ускорить реакцию делигнификации, но и модифицировать механическую структуру волокнистых кормов до состояния объемных хлопьев. При необходимости обработанная солома может использоваться для приготовления брикетированной или гранулированной кормосмеси с добавлением комбикормов.

Применение описанного способа модифицирования клетчатки грубых кормов в одном из учебных хозяйств ТГАА показало его перспективность.

По результатам анализов Крымской зональной агрохимической лаборатории [9] кормовую ценность соломы, обработанной в генераторе перегретой жидкости, удалось повысить более чем в два с половиной раза (в среднем от 0,19 до 0,51 корм ед./кг корма). Такой рост кормовой ценности модифицированного сырья обусловлен, в первую очередь, разрушением лигнин-целлюлозных связей в клетчатке и увеличением содержания одного из конечных продуктов гидролиза целлюлозы в форме *D*-глюкозы.

*Выводы.* Применение традиционных способов термохимической обработки соломы в слое малоэффективно из-за низкой температуро- и теплопроводности грубых волокнистых кормов. Предлагаемый же способ гетерофазной обработки сырой клетчатки в случае её термобарохимического (ТБХ) модифицирования с помощью генератора перегретой жидкости не только сокращает время нагрева корма до технологически необходимой температуры, значительно снижая при этом расход тепловой энергии, но и существенно повышает кормовую ценность обработанного сырья.

Наиболее существенным фактором, эффективно влияющим на разложение соломы, является концентрация щелочи в гидролизующем растворе, причем, ее оптимальная величина находится в пределах 4,5 ... 5,5%. Питательность соломы после ТБХ-модифицирования повышается в 1,75 ÷ 2,0 раза, а поедаемость возрастает до 2,3÷2,6 раз.

Кроме того, декомпрессионо-фазоинверсная дезинтеграция грубых кормов позволяет производить более равномерную химико-физическую обработку, выгодно изменяя их механическую структуру и повышая кормовую ценность. Это дает возможность исключить из рациона крупного рогатого скота до 2 кг зерна на одну голову в день, значительно повышая экономическую эффективность хозяйствования.

#### Литература

1. Передовая технология в кормопроизводстве / Криворотов В.И., Грачева Л.И., Кратко А.Д., Стручаев Н.И., Грачев А.В. — Киев: Урожай, 1986. — 80 с.
2. Тарчевский И.А., Марченко Г.Н. Биосинтез и структура целлюлозы. — М.: Наука, 1985. — 326 с.
3. Биотехнологическое использование отходов растениеводства / Осадчая А.И., Подгорский В.С., Семенов В.Ф. и др. — Киев: Наук. думка, 1990. — 96 с.
4. Лигнины: Пер. с англ. / Под ред. К. Сарканена. — М.: Мир, 1975. — 629 с.
5. Стручаев Н.И. Обоснование теплотехнических характеристик установок термохимической обработки соломы // Механизация и электрификация сельского хозяйства. — 1983. — №58. — С. 36-42.
6. Рыжов С.В. Механизация переработки соломы на корм. — М.: Колос, 1983. — 239 с.

7. А.с. 1072919 СССР, МКИ<sup>3</sup> В 05 В 17/00.Аэрозольный генератор // Н.Х. Копыт, А.Н. Мацков и др. — Б.И. — 1984, №6.
8. Копыт Н.Х., Стручаев А.И. и др. Горение больших объемов диспергированных топлив и эволюция их продуктов в свободной атмосфере // Физ. горения и взрыва. — 1989. — №3. — С. 21-28.
9. Результаты анализа кормов / Крымская зональная агрохимическая лаборатория. — Министерство сельского хозяйства Украины: Форма № 77, 1991.

***О. І. Стручаєв, М. І. Стручаєв, Г. І. Савенко, М. Х. Копит***  
**Модифікування клітковини шляхом обробки**  
**у генераторі перегрітої рідини**

#### **АНОТАЦІЯ**

На прикладі модифікування клітковини пшеничної соломи показана перспективність застосування генератора перегрітої рідини (ГПР) з метою підвищення кормової цінності грубих кормів за рахунок руйнування лігнін-целюлозних зв'язків у сировині та збільшення вмісту целюлози у формі D-глюкози.

***Stroutchayev A. I., Stroutchayev N. I., Savenko G. I., Kopyt N. Kh.***

**Modifying Cellulose by Processing in the Generator  
of a Overheated Liquid**

#### **SUMMARY**

On an example of a wheaten straw's cellulose modifying is shown application of a generator of overheated liquid (GOL) opportunity with the purpose of a fodder increasing value of rough forages at the expense of destruction ligneous-cellulose of connections in raw material and increases of the contents of cellulose in the form D-glucose.

**Ю. И. Бойко, Н. Х. Копыт**

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

### **О подобии диспергирования жидкости под действием инерционных и гравитационных сил**

Обозначенная возможность подобия проанализирована как аналогия (расширенное подобие) на основании принципа минимума укороченного действия и по обычной схеме — с привлечением представлений о солитоне.

Типичным примером диспергирования жидкости под действием инерционных сил и сил поверхностного натяжения есть распад цилиндрической струи жидкости плотности  $\rho$  с коэффициентом поверхностного натяжения  $\sigma$ , истекающей из отверстия характерного размера  $d$  со скоростью  $V$  [1]. Сходная начальная и конечная стадии геометрии областей среды имеет место и при диспергировании жидкости под действием гравитационных сил и сил поверхностного натяжения в варианте капельного отрыва жидкости, истекающей из канала (капилляра).

Сопоставление процессов, описываемых различными уравнениями, представляет собой исследование их расширенного подобия или аналогии [2]. Основанием ему, помимо отмеченного кинематического подобия, есть принцип эквивалентности инерционных и гравитационных сил. Таким образом, методологической основой сведения указанных процессов к единой схеме описания будет использование критерия подобия Фруда  $Fr_f = f_i / f_g$ , как масштаба подобия в ней инерционных  $f_i$  и гравитационных  $f_g$  сил.

Статическое условие предотрывного равновесия массы жидкости, удерживаемой силами поверхностного натяжения  $f_\sigma$  на теле характерного размера  $d$  в поле силы тяжести, нормальном к направлению определения этого размера (диаметра канала), может быть записано через критерий подобия Бонда  $Bo = f_g / f_\sigma = g\rho d^2 / \sigma$  в виде [3]

$$L_g / d = \sqrt[3]{6 / Bo} \quad (1)$$

где  $L_g$  — протяженность области реализации такого состояния в направлении силы тяжести.

С другой стороны, известно [4], что интегральная кинематическая характеристика такого же рода для инерционного дробления — длина  $L_i$  нерас-

павшегося участка струи жидкости, истекающей из отверстия, представима через критерий Вебера  $W = f_i / f_\sigma = \rho V^2 d / \sigma$

$$L_i / d = c\sqrt{W} \quad (2)$$

где величина  $c$ , при определенных ограничениях, может считаться численным коэффициентом [5,6].

Одинаковость учета сил поверхностного натяжения в обоих процессах определяется критериальным соотношением

$$Fr_f = W / Bo = Fr_e \cdot L / d \quad (3)$$

Правая часть дает переход от него к произведению характеристического комплекса (числа подобия)  $Fr_e = V^2 / Lg$  ( $g$  — ускорение силы тяжести) на характеристический симплекс  $L / d$ . Последний представляет масштаб, на котором реализуется одинаковость учета сил поверхностного натяжения, как одно из условий однозначности ( $L / d = L_g / d = L_i / d$ ), позволяющее рассматривать подобие сопоставляемых процессов. Соответственно (3) целесообразно переписать в виде соотношения, дающего, как и (1), (2), эту интегральную характеристику

$$L / d = \sqrt[3]{Fr_e} \cdot Fr_f$$

Поскольку (1) выражает статическое условие, очевидно также, что общность этой характеристики сопоставляемых процессов прямо связана с возможностью квазистатического подхода к описанию инерционного дробления. Квазистатические процессы являются обратимыми и в них выполняется закон сохранения механической энергии. Поэтому предполагаемая аналогия далее исследуется с помощью адекватного для таких условий механического интегрального вариационного принципа — принципа Мопертюи (минимума укороченного действия). При определении формы траектории протяженностью  $l$  одной материальной точки массой  $m$ , с полной механической энергией  $E$  и потенциальной —  $U$ , между двумя заданными точками пространства, он может быть представлен, по Якоби [7],

$$\delta \int \sqrt{2m(E-U)} dl = 0 \quad (4)$$

Для такого укороченного действия прохождение через конечную точку относится к произвольному моменту времени, что, из соображений симметрии (по отношению к направлению движения струи — для инерционного диспергирования, по отношению к направлению силы тяжести — для гравитационного), позволяет отобразить область развития дробления движением точки, изображающей такую систему, по прямой, на расстояние  $H$ .



Кинематическое условие движения по прямой —  $\delta \int dl = 0$ , обеспечивается из (4) при  $E - U = const$ . Вариант  $U \rightarrow 0$ ,  $E = const \cong T = mV^2 / 2$  ( $T$  — кинетическая энергия системы) удовлетворяет инерционному дроблению, вариант  $E \cong U = mgH$ ,  $const \rightarrow 0$  — гравитационному (при соблюдении указанного выше одинаковости вклада сил поверхностного натяжения в обоих процессах). Их совмещение ведет, наряду с сохранением гамильтониана, к сохранению лагранжиана системы

$$T - U = const \rightarrow 0 \text{ или } T \cong U \quad (5)$$

и дает

$$V^2 / gH \cong 2 \text{ или } Fr_e \cong H / L / 2$$

Отметим, что содержание соотношения (5) соответствует результату применения вириальной теоремы [7] для малых колебаний точки, изображающей развитие области дробления жидкости.

Минимальное значение  $Fr_e = 1$  достигается при  $H = L / 2$  и соответствует наличию оси симметрии области развития дробления и в направлении, перпендикулярном направлению движения жидкости. Максимальное значение  $Fr_e \cong 2$  связано с максимальным приближением центра масс области дробления, как изображающей точки, к крайней точке области дробления —  $H \rightarrow L$ . Поскольку совместное использование (1),(2),(3) дает для исследования подобия соотношение

$$L / d = \sqrt[4]{6c^2 Fr_e} \quad (6)$$

то использование любого  $Fr_e$  из указанного диапазона его значений изменяет левую часть не более чем на 20%. Это позволяет применять (6) для оценок в виде  $L / d \approx 1,6\sqrt{c}$ .

Т.к. нас интересует возможность квазистатического подхода к инерционному дроблению, то в качестве опорного экспериментального результата воспользуемся данными [8], где для предотрывного состояния водяной капли на подвесе получено  $L / d \approx 4,0$ . Чтобы получить результат такой величины в правой части (6), нужно взять близкое к максимальному, с учетом реальных ограничений, значение  $c$ . Из [4] известно, что оно растет при улучшении ламинарности истечения струи, как за счет организации течения в канале (сопле), так и за счет уменьшения скорости истечения (числа Вебера). Таким образом через характеристику  $c$  получаем количественное подтверждение качественно тривиального вывода — квазистатический подход к схеме описания все более оправдан при все меньших скоростях движения

жидкости. Проводимое же рассмотрение дает способ оценки значений параметра  $c$ , выше которых уже допустимо такое, существенно более простое описание процесса диспергирования. Численный результат для  $c \approx 3,75$ , взятый из [4] для ламинарного истечения, и  $Fr_e = 2$  дают  $L/d \approx 3,6$  — расхождение с экспериментом, не превышающее 10%. При этом экспериментальные данные по отношению к расчетной схеме для (1) следует считать завышенными, поскольку обволакивание жидкостью шарика-подвеса ведет к увеличению удерживаемой им массы жидкости.

Расширенное подобие можно исследовать и методами, обычными для теории подобия, если объединить дифференциальные уравнения сопоставляемых процессов, как варианты системы уравнений движения среды Эйлера, за счет повышения их порядка. С этой точки зрения полезен переход от характеристик, связанных с выражением уравнения переноса импульса в области движения среды как дифференциального уравнения 1-го порядка, к характеристикам, связанным со схемой описания, использующей волновые уравнения, более высокого порядка. Предпосылка такого подхода содержится уже в полученном выше при обобщении инерционного и гравитационного дробления сохранении лагранжиана в виде частного случая вириальной теоремы как реализации малых колебаний системы. Существенно то, что применение вириальной теоремы, связывающей средние значения двух видов механической энергии, как и реальный процесс диспергирования, обусловлено изменением волновых характеристик в ограниченной области. К волновым движениям такого рода, которые называют также квазичастицами, относятся волновые пакеты и солитоны. Понятие волнового пакета не адекватно описанию дробления, поскольку в общем случае развитие его идет как “расплывание” квазичастицы — усиление признаков волны, тогда как в ходе диспергирования сплошной среды в состоянии квазичастицы должны усиливаться признаки частицы. Усиление (нарастание) признаков частицы возможно для солитона, за счет изменения его скорости и амплитуды. Для рассматриваемых обратимых (недиссипативных) процессов его, как решение, можно получить из усложненной формы волнового уравнения, учитывающей малые нелинейность и дисперсию — уравнения Кортевега-де Фриса. Его линейное приближение первоначально использовалось в теории волн на поверхности мелкой воды, однако применимо для описания и других возвышений свободной поверхности над ее невозмущенным уровнем [9]. Приближение же обратимости позволяет смотреть на гравитационное дробление и как на втекание некоторого возвышения жидкости в канал (капилляр) — бегущую волну противоположного направления, чем то, развитие процесса в котором ведет к образованию капли.

К квазичастичности (солитонности) решения волнового уравнения Кортевега-де Фриса ведет уравновешивание нелинейности процесса проявлением дисперсии, обусловленной конечностью области его развития. Для каче-

ственной оценки этой ограниченности в плане сопоставления рассматриваемых процессов и в связи с достаточной условностью упомянутого приближения уравнения Кортевега-де Фриса возьмем простейшее дисперсионное уравнение для волновых возмущений поверхности жидкости [10]

$$\omega = \sqrt{gk + \sigma k^3 / \rho} \quad (7)$$

Здесь  $k = 2\pi / \lambda$  — волновой вектор,  $\lambda$  — длина волны,  $\omega$  — ее частота.

Хотя (7) справедливо лишь для волн, амплитуда которых гораздо меньше и длины волны и характеристического размера  $L$  области реализации процессов, в пользу предлагаемого подхода говорит то обстоятельство, что, например, уточнение (7) по влиянию  $L$  сводится к появлению общего множителя к его слагаемым, т.е. не влияет на их соотношение.

Первое слагаемое в (7) определяет развитие волнового возмущения поверхности под действием гравитации, второе — как капиллярный процесс (определяемый конкуренцией сил поверхностного натяжения и инерционных сил). Одинаковость вклада обоих процессов в дисперсию, как выражение их подобия в волновых представлениях, определится условием

$$gk_e = \sigma k_e^3 / \rho$$

являющимся также условием экстремума фазовой скорости  $V_\omega$  такого волнового возмущения поверхности и равенства ее при этом групповой скорости  $V_k$  [10]. В характеристиках развития капиллярного процесса следовательно

$$\omega_e^2 = \left(2\pi/T_e\right)^2 = 2\sigma/\rho \left(2\pi/\lambda_e\right)^3$$

Условие реализации процесса диспергирования в капиллярном аспекте можно сформулировать как окончание за время  $T_i = \alpha T_e$  развития рэлеевского возмущения с периодом  $T_e$  на нераспавшемся участке струи, при условии  $V_\omega = V_k = V$  (т.е.  $T_i = L/V$ , и величина  $1/\alpha = T_e/T_i = VT_e/L = Sr$  приобретает смысл числа Струхала сопоставляемых процессов). Используя соотношение  $\lambda_e = 4,508d$  для длины волны рэлеевского возмущения [1] и соотношение (2), получаем, что обеспечение ими подобия капиллярного и гравитационного аспектов диспергирования как развития волнового возмущения возможно при  $\alpha = 0,37c$ . Таким образом, для  $c = 2,70$ , что менее чем на 10% отличается от расчетной оценки постоянного значения  $c = 2,99$  в [5], имеем

$$\frac{1}{\alpha} = Sr = 1$$

т.е. при сделанных допущениях можно говорить о подобии упомянутых аспектов диспергирования как о реализации его в локальном волновом возмущении ( $T_i = T_e$ ) — солитоне. В соответствии с [11], на отражении солитоном единства физического механизма сопоставляемых процессов и основывается, в таком рассмотрении, их расширенное подобие (аналогия). Следует отметить, что аналогия инерционных и гравитационных сил используется и в предельном случае развития поверхностных возмущений, полностью определяемых силой тяжести [12], когда вводится аналог числа Вебера  $W = \rho gh^2 / \sigma$ , где в качестве характеристической скорости для области  $h$  применяется групповая скорость  $v = \sqrt{gh}$ . Возвращаясь к подходу, базирующемуся на принципе Мопертюи, заметим, что эта скорость совпадает со скоростью материальной точки при падении ее в поле силы тяжести с высоты  $h/2$  при нулевом начальном значении. Следовательно, такая аналогия соответствует симметрии возмущения относительно оси, перпендикулярной направлению его распространения.

Использование представлений о солитоне в описании диспергирования сплошной среды видимо выходит за рамки исследованной аналогии. В частности, для него излишне примененное здесь предположение квазистатичности, что открывает, например, возможность приложения к задаче о соударении капель типа [13]. С другой стороны, отнесение к процессам с автомодельностью второго рода существенно для солитона [9], а это, в силу значимости начальных условий для них, проясняет роль определяемых в решении линейной задачи диспергирования параметров на стадии ее нелинейности [1].

#### Литература

1. Асланов С.К. Решение задачи Рэлея о неустойчивости тонких струй для стадии их распада // Физика аэродисперсных систем. — 2001. — Вып. 38. — С. 220-227.
2. Гухман А.А. Введение в теорию подобия. — М.: Высшая школа, 1973. — 296 с.
3. Тепло- и массообмен. Теплотехнический эксперимент / Под ред. В.А. Григорьева и В.М. Зорина. — М.: Энергоиздат, 1982. — 512 с.
4. Дитякин Ю.Ф., Клячко Л.А., Новиков Б.В., Ягодкин В.И. Распыливание жидкостей. М.: Машиностроение, 1977. — 208 с.
5. Левич В.Г. Физико-химическая гидродинамика. — М.: Физматгиз, 1959. — 700 с.
6. Гунбин В.Ф., Тимохин А.Д. Капиллярная неустойчивость осесимметричных струй жидкости // Труды Моск. энерг. ин-та. — 1983. — №615. — С. 15-43.

7. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Механика. — М.: Наука, 1988. — 216 с.
8. Бойко Ю.И. Массоперенос в упорядоченных дисперсных системах при переходных числах Рейнольдса: Дис. ... канд. физ.-мат. наук. — Одесса, 1991.
9. Баренблатт Г.И. Подобие, автомодельность, промежуточная асимптотика. — Л.: Гидрометеоздат, 1982. — 255 с.
10. Физическая энциклопедия, т.1 / Под ред. А.М. Прохорова. — М.: Советская энциклопедия, 1988. — 704 с.
11. Гухман А.А. Применение теории подобия к исследованию процессов тепло-массообмена. — М.: Высшая школа, 1974. — 328 с.
12. Гершуни Г.З., Жуховицкий Е.М. Конвективная устойчивость несжимаемой жидкости. — М.: Наука, 1972. — 392 с.
13. Асланов С.К., Колпаков А.В., Малярова Л.В. Струя растяжения при частичном слиянии капель // Дисперсные системы, XX конф. стран СНГ, 23-27 сент. 2002. — С. 19-20.

*Ю. І. Бойко, М. Х. Копит*

**Про подібність диспергування рідини під дією інерційних і гравітаційних сил**

**АНОТАЦІЯ**

Можливість означеної подібності проаналізовано як аналогію (розширену подібність) на основі принципу мінімуму вкороченої дії та по звичайній схемі — з застосуванням понять про солітон.

*Yu. I. Boiko, N. Kh. Kopyt*

**On the similarity of dispersing a liquid under inertial and gravitational forces**

**SUMMARY**

Mentioned similarity has been analyzed as the analogy (the extended similarity) on the basis of both principle of shorted least action and by standard scheme using the notion of soliton.

*Л. А. Лялин, К. И. Семенов, Н. Х. Копыт*

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова,  
г. Одесса, ул. Дворянская 2*

### **Взаимодействие электронов и ионов кислорода с граничной сферой при фотоэмиссионной зарядке сферической аэрозольной частицы**

С целью изучения процесса фотоэмиссионной зарядки сферической аэрозольной частицы представлена модель граничной сферы, предполагающая разделение воздушного пространства, окружающего аэрозольную частицу, на кинетическую и диффузионную зоны. Получено выражение для коэффициента отражения фотоэлектронов, эмиттированных поверхностью частицы, от граничной сферы и выражение для потока ионов кислорода от граничной сферы к поверхности частицы. Это позволяет сформулировать условие непрерывности потока заряда через границу кинетической зоны частицы и использовать его в качестве одного из граничных условий задачи диффузионного переноса заряда от граничной сферы в окружающее воздушное пространство.

При исследовании процесса фотоэмиссионной зарядки сферической аэрозольной частицы может быть использована модель граничной сферы [1-9]. Принятая нами модель предполагает окружение частицы радиуса  $r$  концентрической сферой, находящейся от ее поверхности на расстоянии  $l = (l_{O_2} + l_e) / 2$  среднем между длиной свободного пробега иона кислорода  $l_{O_2}$  и электрона  $l_e$ . Эти параметры соотносятся как  $l_e = 4\sqrt{2}l_{O_2}$  [10]. При нормальных условиях  $l_{O_2} = 6 \cdot 10^{-8}$  м [11]. Предполагается, что внутри пространства, ограниченного поверхностью частицы и граничной сферой, электроны и ионы движутся без взаимных столкновений, сталкиваясь лишь с граничной сферой и поверхностью частицы. Это пространство называется кинетической зоной. Взаимодействие потока фотоэмиссионного заряда, испускаемого поверхностью частицы, с граничной сферой приводит к тому, что часть этого потока возвращается на частицу, а часть выходит за граничную сферу, участвуя в диффузионном переносе заряда. Используя условие непрерывности потока заряда через граничную сферу, можно получить уравнение зарядки частицы в явном виде.

Рассмотрим детально процесс столкновения электронов, эмиттированных поверхностью частицы, с граничной сферой в области начального отрицательного заряда частицы. При попадании на поверхность частицы (кап-

ли) потока квантов излучения  $\pi r^2 \Phi_0$ , из неё выбивается поток заряда электронов

$$I_0 = \pi r^2 \Phi_0 \gamma e, \quad (1)$$

где  $\Phi_0$  — интенсивность излучения,  $\gamma$  — квантовый выход,  $e$  — заряд электрона. Все, испускаемые поверхностью частицы электроны, отталкиваются её кулоновским полем и достигают граничной сферы. Часть электронов сталкивается с молекулами кислорода и образует отрицательные ионы  $O_2^-$ , так как энергия сродства к электрону EA у молекулы кислорода положительна и процесс прилипания электрона к ней энергетически выгоден [12]. Некоторое количество ионов кислорода возвращается на поверхность частицы, отдавая ей электроны, если работа выхода электрона с поверхности частицы больше энергии сродства к электрону молекулы кислорода [12]. Другие ионы кислорода выходят за пределы граничной сферы, участвуя в диффузионном переносе заряда.

Электроны, столкнувшиеся с молекулами азота, ионов не образуют, а претерпевают упругие взаимодействия [12,13]. После этого часть рассеянного потока электронов может вернуться на поверхность частицы и захватиться ею. Другая его часть выходит за пределы граничной сферы, участвуя в образовании ионов кислорода  $O_2^-$  и, в конечном счёте, в диффузионном переносе заряда.

При увеличении отрицательного заряда частицы вероятность возврата ионов  $O_2^-$  и электронов на частицу уменьшается и фотоэмиссионный ток с её поверхности может достигнуть состояния насыщения.

Явление фотоэмиссии с поверхности сферической частицы может быть охарактеризовано коэффициентом отражения фотоэлектронов от граничной сферы, который определим как отношение потока электронов, рассеянных на молекулах азота и вернувшихся на поверхность частицы  $I^*$ , к величине фототока насыщения  $I_0$  [14]

$$K(Q) = \frac{I^*}{I_0}. \quad (2)$$

Коэффициент  $K(Q)$  будет являться функцией величины заряда частицы. Важным параметром, связанным с  $K(Q)$ , является телесный угол  $\Omega_0$  рис.1, в пределах которого электроны, рассеянные на граничной сфере, возвращаются на частицу. Для нахождения телесного угла определим сначала связанный с ним предельный угол отскока электронов  $\alpha_0$  от граничной сферы рис.1. Электроны, векторы скоростей которых образуют с поверхностью граничной сферы углы больше  $\alpha_0$ , возвращаются на частицу, электроны, от-

скочившие под меньшим углом, возвращаются к граничной сфере. По-видимому, величина угла  $\alpha_0$  связана с высотой потенциального барьера внутри кинетической зоны, который должен преодолеть электрон, отражённый от граничной сферы, для того, чтобы вернуться на поверхность частицы. Барьер этот обусловлен суперпозицией кулоновского поля отталкивания, действующего на электрон со стороны отрицательно заряженной частицы, и поля притяжения зеркальных сил на малых расстояниях от электрона до поверхности частицы [15].

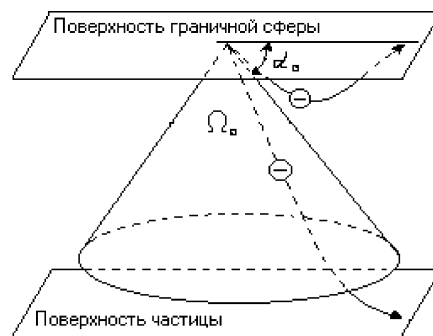


Рис. 1.  $\alpha_0$  — предельный угол отскока электрона от поверхности граничной сферы;  $\Omega_0$  — соответствующий телесный угол.

При условии, что  $r \gg l$  высота потенциального барьера внутри кинетической зоны определяется выражением [5]

$$P = \frac{el}{4\pi\epsilon_0 r^2} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^{\frac{1}{2}}}{2l} \right)^2, \quad (3)$$

где  $\epsilon_0$  — электрическая постоянная,  $Q$  — величина отрицательного заряда частицы. Определим заряд частицы, при котором потенциальный барьер внутри кинетической зоны отсутствует, то есть  $P=0$ . Для этого приравняем правую часть (3) нулю. Откуда  $Q = er^2/4l^2$ .

Для отрицательных зарядов сферической частицы, величина которых удовлетворяет неравенству  $er^2/4l^2 \geq Q > 0$ , электростатическое поле, действующее на электрон внутри кинетической зоны, будет полем притяжения и потенциальный барьер отсутствует.

Перейдем к определению угла  $\alpha_0$  рис.1. Для этого приравняем кинети-



ческую энергию электрона после столкновения с молекулой азота, обусловленную нормальной составляющей скорости  $v \sin \alpha_0$ , высоте потенциального барьера (3)

$$\frac{mv^2}{2} \sin^2 \alpha = \frac{el}{4\pi\epsilon_0 r^2} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^{\frac{1}{2}}}{2l} \right)^2. \quad (4)$$

Столкновения электронов с молекулами азота в наших условиях можно считать абсолютно упругими.

Кинетическую энергию электрона найдём, используя уравнение Эйнштейна, и, учитывая, что пролетая расстояние  $l$  до граничной сферы, электрон получает дополнительную энергию в электростатическом поле, равную высоте потенциального барьера (3)

$$\frac{mv^2}{2} = (h\nu - A_b) + \frac{el}{4\pi\epsilon_0 r^2} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^{\frac{1}{2}}}{2l} \right)^2 \quad (5)$$

Здесь  $h$  — постоянная Планка;  $\nu$  — частота излучения;  $A_b$  — работа выхода. Подставляя (5) в (4), получим выражение, определяющее угол  $\alpha_0$

$$\sin \alpha_0 = \frac{\left( \frac{el}{4\pi\epsilon_0 r^2} \right)^{\frac{1}{2}} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^{\frac{1}{2}}}{2l} \right)}{\left[ (h\nu - A_b) + \frac{el}{4\pi\epsilon_0 r^2} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^{\frac{1}{2}}}{2l} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}}. \quad (6)$$

Зная угол  $\alpha_0$ , перейдём к телесному углу  $\Omega_0$  рис.1

$$\Omega_0 = 2\pi(1 - \sin \alpha_0). \quad (7)$$

Для телесных углов  $\Omega \leq \Omega_0$  все электроны, отражённые от граничной сферы, при столкновениях с молекулами азота возвращаются на частицу, для углов  $\Omega > \Omega_0$  часть электронов возвращается на граничную сферу.

Найдём вероятность столкновения электронов, испущенных поверхностью частицы вследствие фотоэмиссии, с молекулами азота. Для этого будем считать, что воздух на 77% состоит из азота и на 23% из кислорода [16].

Другие его компоненты по причине малой концентрации не влияют существенным образом на рассматриваемый процесс. Тогда эта вероятность будет определяться долей площади поверхности граничной сферы, занятой молекулами азота [1]

$$\frac{S_{N_2}}{S} = \frac{\left(\frac{0,77}{\mu_{N_2}}\right)^{\frac{2}{3}}}{\left(\frac{0,77}{\mu_{N_2}}\right)^{\frac{2}{3}} + \left(\frac{0,23}{\mu_{O_2}}\right)^{\frac{2}{3}}}, \quad (8)$$

где  $\mu_{N_2}$  и  $\mu_{O_2}$  — соответственно молярные массы азота и кислорода.

Будем считать, что после столкновений электронов с молекулами азота положения их векторов скоростей равновероятны по всем направлениям [2]. Если ток с поверхности частицы  $I_0$ , то часть потока электронов, рассеянных на молекулах азота и вернувшихся внутрь граничной сферы, то есть в пределы телесного угла  $2\pi$ , найдём как [2]

$$I = 0,5 I_0 \frac{S_{N_2}}{S}. \quad (9)$$

Введем обозначение  $0,5 \frac{S_{N_2}}{S} = \sigma_{N_2}$ . Из этого потока электронов доля, вернувшихся на частицу, пропорциональна отношению телесных углов  $\Omega_0 / 2\pi$

$$I_1^* = \sigma_{N_2} I_0 \frac{\Omega_0}{2\pi}. \quad (10)$$

Электроны, отскочившие от поверхности граничной сферы в пределах угла  $(2\pi - \Omega_0)$ , возвращаются на сферу

$$I_1 = \sigma_{N_2} I_0 \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right). \quad (11)$$

Из этого потока электронов доля, участвующих в повторном столкновении с атомами азота и вернувшихся на частицу, запишется по аналогии с (10)

$$I_2^* = \sigma_{N_2}^2 I_0 \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right) \frac{\Omega_0}{2\pi}. \quad (12)$$

Соответственно доля потока электронов, вернувшихся на сферу, имеет вид

$$I_2 = \sigma_{N_2}^2 I_0 \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right)^2. \quad (13)$$

Запишем очередную составляющую потока электронов, столкнувшихся с молекулами азота и вернувшихся на поверхность частицы

$$I_3^* = \sigma_{N_2}^3 I_0 \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right)^2 \frac{\Omega_0}{2\pi}. \quad (14)$$

Проводя аналогичные рассуждения, можно показать, что доля потока электронов, обусловленная  $n$ -ным столкновением с граничной сферой и вернувшихся на поверхность частицы равна

$$I_n^* = \sigma_{N_2}^n I_0 \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right)^{n-1} \frac{\Omega_0}{2\pi}. \quad (15)$$

Из приведенных выше рассуждений ясно, что поток электронов, вернувшихся на поверхность частицы после многократных столкновений с молекулами азота, определяется суммой следующего вида:

$$I^* = \sum_{n=1}^{\infty} \sigma_{N_2}^n I_0 \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right)^{n-1} \frac{\Omega_0}{2\pi}. \quad (16)$$

Выражение (16) представляет собой сумму членов бесконечной убывающей геометрической прогрессии, первый член которой  $a_1 = \sigma_{N_2} I_0 \frac{\Omega_0}{2\pi}$ , а знаменатель  $q = \sigma_{N_2} \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right)$ . Это обстоятельство позволяет найти  $I^*$ , используя известную формулу

$$I^* = \frac{a_1}{1-q}. \quad (17)$$

Подставляя  $a_1$  и  $q$  в (17), получим выражение для потока электронов, вернувшихся на поверхность частицы в окончательном виде:

$$I^* = \frac{\sigma_{N_2} I_0 \Omega_0 / 2\pi}{1 - \sigma_{N_2} \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right)}. \quad (18)$$

Учитывая ранее принятое обозначение (2), найдём выражение для коэффициента отражения электронов от граничной сферы

$$K(Q) = \frac{\sigma_{N_2} \Omega_0 / 2\pi}{1 - \sigma_{N_2} \left(1 - \frac{\Omega_0}{2\pi}\right)}. \quad (19)$$

Проводя элементарные преобразования с учётом (7), приведем (19) к виду:

$$K(Q) = \frac{\sigma_{N_2} (1 - \sin \alpha_0)}{1 - \sigma_{N_2} \sin \alpha_0}. \quad (20)$$

Рассмотрим зависимость  $K(Q)$  от величины заряда частицы. Для отрицательного заряда частицы, величина которого  $0 \leq Q \leq er^2/4l$  и для её положительного заряда потенциальный барьер отсутствует, результирующим полем внутри граничной сферы будет поле притяжения,  $\alpha_0 = 0$  и все электроны, рассеянные внутри граничной сферы, захватываются поверхностью частицы. Коэффициент отражения электронов (20) будет постоянной величиной  $K(Q) = \sigma_{N_2}$ . Для отрицательного заряда частицы, величина которого  $Q > er^2/4l^2$  с ростом  $Q$  происходит рост потенциального барьера, соответственно растёт угол  $\alpha_0$  рис.1. Из выражений (6) и (20) следует, что  $Q \rightarrow \infty, \sin \alpha_0 \rightarrow 1$ , и  $K(Q) \rightarrow 0$ . В предельном случае все электроны, отражённые от граничной сферы, возвращаются на сферу, участвуют в повторных многократных рассеяниях на молекулах азота и, в конечном счёте, выходят за её пределы.

Численные оценки величины  $K(Q)$  показывают, что для капель растворов красителей трифенилметанового ряда с  $r = 140$  мкм с которыми производились экспериментальные исследования [5,6] для  $Q = 5 \cdot 10^{-12} - 10^{-11}$  Кл, величина  $K(Q)$  составляет несколько сотых долей единицы. При таких отрицательных зарядах потоком электронов к поверхности частицы практически можно пренебречь.

Часть фотоэлектронов, испускаемых частицей, сталкиваясь с молекулами кислорода на граничной сфере, образуют отрицательные ионы  $O_2^-$ . Найдём концентрацию ионов кислорода на граничной сфере, величина скорости которых заключена в пределах от  $v_{O_2}$  до  $v_{O_2} + dv_{O_2}$ , считая функцию распределения их по скоростям  $f(v_{O_2})$  максвелловской

$$dn_{v_{O_2}} = n_{O_2} f(v_{O_2}) dv_{O_2} \quad (21)$$

где  $n_{O_2}$  — концентрация ионов кислорода на граничной сфере. Из этого количества часть ионов будет иметь скорости, лежащие в пределах элементарного телесного угла  $d\Omega_{\Theta,\varphi}$  рис.2

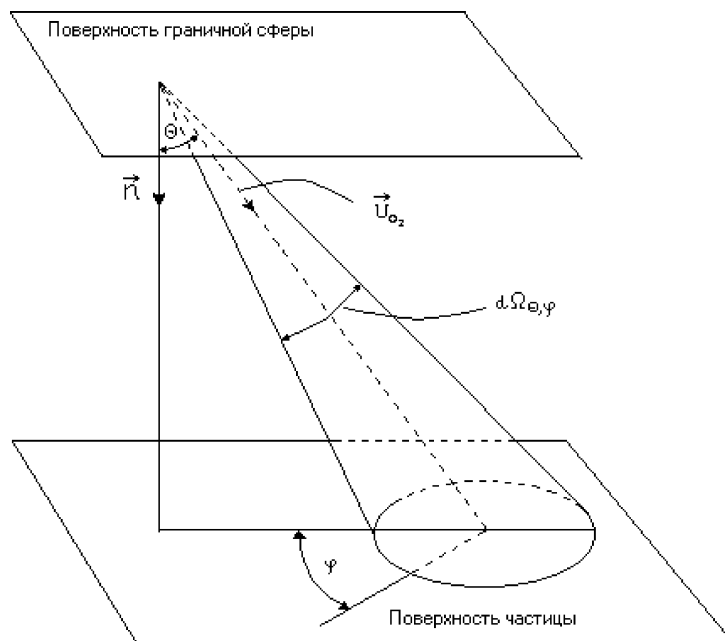


Рис. 2.  $d\Omega_{\Theta,\varphi}$  — элементарный телесный угол,  $\Theta$  — полярный угол,  $\varphi$  — азимутальный угол,  $\vec{v}_{O_2}$  — вектор скорости иона кислорода,  $\vec{n}$  — вектор нормали к поверхности частицы.

$$dn_{v_{O_2},\Theta,\varphi} = dn_{v_{O_2}} \frac{d\Omega_{\Theta,\varphi}}{4\pi} \quad (22)$$

где  $\Theta$  и  $\varphi$  соответственно полярный и азимутальный углы. Количество ионов, которые в данном направлении с данным интервалом скоростей, за единицу времени достигнут единицы площади поверхности частицы, найдём как

$$di_{v_{O_2},\Theta,\varphi} = \frac{dn_{v_{O_2}}}{4\pi} d\Omega_{\Theta,\varphi} v_{O_2} \cos \Theta \quad (23)$$

Расписывая  $d\Omega_{\Theta,\varphi} = \sin\Theta d\Theta d\varphi$ , и подставляя (21) в (23), получим

$$di_{v_{O_2},\Theta,\varphi} = \frac{n_{v_{O_2}} v_{O_2} f(v_{O_2}) dv_{O_2} \sin\Theta \cos\Theta d\Theta d\varphi}{4\pi} \quad (24)$$

Для того, чтобы найти полное количество ударов ионов кислорода об единичную площадку поверхности частицы за единицу времени, следует проинтегрировать (24) по скоростям от 0 до  $\infty$ , по углу  $\varphi$  от 0 до  $2\pi$  и по углу  $\Theta$  от 0 до  $\Theta_0$ , где  $\Theta_0$  — предельный полярный угол. Ион кислорода, вектор скорости которого образует с направлением нормали к поверхности частицы угол меньше  $\Theta_0$ , преодолевает потенциальный барьер, величина которого определяется формулой (3) и сталкивается с поверхностью частицы. Величину угла  $\Theta_0$  найдём из закона сохранения энергии иона кислорода, приравнявая кинетическую энергию теплового движения иона кислорода, определяемую нормальной составляющей скорости, величине потенциального барьера (3)

$$\frac{m_{O_2} v_{O_2}^2}{2} \cos^2 \Theta_0 = \frac{el}{4\pi\epsilon_0 r^2} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^{\frac{1}{2}}}{2l} \right)^2 \quad (25)$$

Откуда

$$\cos^2 \Theta_0 = \frac{el}{2\pi\epsilon_0 r^2 m_{O_2} v_{O_2}^2} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^{\frac{1}{2}}}{2l} \right)^2 \quad (26)$$

Интегрируя (24) в указанных выше пределах по углам  $\varphi$  и  $\Theta$  имеем

$$di_{v_{O_2}} = n_{O_2} \frac{(1 - \cos^2 \Theta_0)}{4} v_{O_2} f(v_{O_2}) dv_{O_2} \quad (27)$$

Последующее интегрирование (27) по скоростям, с учётом явного вида функции распределения Максвелла  $f(v_{O_2}) = \left( m_{O_2} / 2\pi kT \right)^{\frac{3}{2}} \exp(-mv_{O_2}^2 / 2kT) 4\pi v_{O_2}^2$  и выражения (26), даёт полный поток ионов кислорода к единице площади поверхности отрицательно заряженной частицы

$$i_{O_2} = \frac{1}{4} n_{O_2} \left[ v_{O_2} - \frac{el}{(2m_{O_2} kT)^{\frac{1}{2}} \pi^{\frac{3}{2}} \epsilon_0 r^2} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^{\frac{1}{2}}}{2l} \right)^2 \right], \quad (28)$$

где  $\overline{v_{O_2}} = (8kT/\pi m_{O_2})^{\frac{1}{2}}$  — средняя скорость ионов кислорода.

Для отрицательного заряда частицы, величина которого удовлетворяет неравенству  $0 \leq Q \leq er^2/4l^2$ , и для её положительного заряда, тормозящее действие электростатического поля внутри граничной сферы отсутствует, член, зависящий от заряда в правой части выражения (28), равен нулю и данная формула сводится к известному выражению для потока молекул через площадь плоской поверхности равную единице  $i_{O_2} = 1/4n_{O_2}\overline{v_{O_2}}$  [17].

Полагая в (28)  $i_{O_2} = 0$  и решая уравнение относительно  $Q$ , найдём предельный отрицательный заряд, при котором поток ионов кислорода к поверхности частицы от граничной сферы прекращается

$$Q_0 = \left[ \frac{re^2}{2l} + 2 \left( \frac{\pi k T \epsilon_0 r^2}{el} \right)^{\frac{1}{2}} \right]^2. \quad (29)$$

Введем обозначение

$$\Psi(Q) = \frac{el}{(2m_{O_2}kT)^{\frac{1}{2}}\pi^{\frac{3}{2}}\epsilon_0 r^2} \left( Q^{\frac{1}{2}} - \frac{re^2}{2l} \right)^2. \quad (30)$$

С учётом этого, полный поток заряда, создаваемый ионами кислорода к поверхности частицы, найдём, умножая (28) на площадь поверхности граничной сферы  $S = 4\pi(r+l)^2$  и на величину элементарного заряда  $e$

$$I_{O_2} = \pi(r+l)^2 n_{O_2} [\overline{v_{O_2}} - \Psi(Q)] e. \quad (31)$$

При отрицательных зарядах на частице, превосходящих величину  $Q_0$ , определяемую выражением (29), электростатическое поле полностью тормозит поток ионов кислорода от граничной сферы к поверхности частицы  $I_{O_2} = 0$ . В этом случае обмен зарядом между граничной сферой и частицей будет осуществляться только посредством электронов. В условиях нашего эксперимента [5,6]  $Q_0 = 4,5 \cdot 10^{-13}$  Кл.

Поток заряда, выносимый от поверхности сферической аэрозольной частицы за пределы граничной сферы, можно найти как разность между потоком фотоэлектронов с поверхности частицы и потоком заряда от граничной сферы к поверхности частицы

$$I = I_o - K(Q)I_o - \pi(r+l)^2 n_{o_2} e \left[ \overline{v_{o_2}} - \Psi(Q) \right]. \quad (32)$$

Выражение, подобное (32), использовалось для решения диффузионной задачи за пределами граничной сферы в качестве граничного условия [5,6]. Это позволило получить аналитическое выражение для потока фотоэмиссионного заряда с поверхности сферической аэрозольной частицы.

### Литература

1. Лялин Л.А., Суслов А.В. Фотоэмиссия электронов из положительно заряженной аэрозольной частицы// Труды Моск. энерг. ин-та. — 1987. — №149. — С. 110-114.
2. Лялин Л.А., Позигун С.А., Суслов А.В. Влияние газовой среды на фотоэмиссию электронов с аэрозольной частицы, несущей отрицательный заряд// Труды Моск. энерг. ин-та. — 1987. — №149. — С. 115-121.
3. Лялин Л.А., Суслов А.В. Фотоэмиссия жидких аэрозольных частиц// Труды Моск. энерг. ин-та. — 1988. — №185. — С. 63-69.
4. A.V.Suslov, L.A.Lyalin. Exploing the boundary sphere method in modelling photonic emission from a spherical aerosol particle surface // J. aerosol Sci. — 2000. — V. 31. Supp. 1. — P. 761-762.
5. Лялин Л.А. Метод граничной сферы в теории фотоэмиссионной зарядки сферической седиментирующей аэрозольной частицы //Физика аэродисперсных систем. — 2001. — Вып. 38. — С. 36-44.
6. Лялин Л.А., Суслов А.В. Фотоэмиссионная зарядка монодисперсных аэрозольных частиц при атмосферном давлении // Инженерно-физический журнал. — 1991. — Т.60, № 4. — С. 603-610.
7. Лялин Л.А., Семенов К.И. Фотоэмиссионная зарядка коллектива аэрозольных частиц // Инженерно-физический журнал. — 2002. — Т.75, № 2. — С. 196-200.
8. Смирнов В.В. Скорость конденсационного и коагуляционного роста частиц аэрозолей// Труды ЦАО. — 1969. — Вып. 92. — С. 8-105.
9. Верещагин И.П. Левиров В.И., Мирзабекян Г.З., Пашин М.М. Основы электрогазодинамики дисперсных систем. — М.: Энергия, 1974. — 607 с.
10. Капцов Н.А. Электрические явления в газах и вакууме. — М.-Л.: Гостехиздат, 1950. — 833 с.
11. Кикоин И.К., Кикоин А.К. Молекулярная физика. — М.: Физматгиз, 1963. — 500 с.
12. Мак-Даниэль. Процессы столкновений в ионизированных газах: Пер. с англ. — М.: Мир, 1967. — 831 с.
13. Хаксли Л., Кромптон Р. Диффузия и дрейф электронов в газах: Пер. с англ. — М.: Мир, 1977. — 672 с.
14. Суслов А.В., Лялин Л.А., Позигун С.А. Определение коэффициента взаимодействия фотоэлектронов с газовой средой // Актуальные вопросы



- физики аэродисперсных систем: Тез. докл. на XIV всесоюзн. конф.: 29 сентября — 2 октября 1986. — Одесса, 1986. — Т.1. — С.66.
15. Шимони К. Физическая электроника: Пер. с нем. — М.: Энергия, 1977. — 607 с.
16. Пилипенко А.Т. Краткий справочник по химии. — К.: Наук. думка, 1987. — 832 с.
17. Фукс Н.А. Испарение и рост капель в газообразной среде. — М.-Л.-Л.:Гостехиздат, 1950. — 91 с.

*Л. А. Лялин, К. И. Семенов, Н. Х. Копит*

**Взаємодія електронів і іонів кисню з граничною сферою при фотоемісійній зарядці сферичної аерозольної частки**

**АНОТАЦІЯ**

З метою вивчення процесу фотоемісійної зарядки сферичної аерозольної частки представлена модель граничної сфери, що припускає поділ повітряного простору, що оточує аерозольну частку, на кінетичну і дифузійну зони. Отримано вираження для коефіцієнта відображення фотоелектронів, емітованих поверхнею частки, від граничної сфери і вираження для потоку іонів кисню від граничної сфери до поверхні частки. Це дозволяє сформулювати умову безперервності потоку заряду через границю кінетичної зони частки і використовувати його в якості однієї з граничних умов задачі дифузійного переносу заряду від граничної сфери частки в навколишній повітряний простір.

*Lyalin L. A., Semenov K. I., Kopit N. H.*

**Interaction of electrons and ions of oxygen with the boundary sphere under photoemission charging of spherical aerosol particle**

**SUMMARY**

In order to study the process of photoemission charging of a spherical aerosol particle the model of a boundary sphere is represented. This model supposes the division of air space surrounding an aerosol particle into kinetic and diffusion zones. The expression of the reflection of photoelectrons, which had been emitted by the surface of a particle from the boundary sphere, and the expression for the stream of ions of oxygen from the boundary sphere to the surface of a particle are received. It allows formulating the condition of the continuity of a stream of a charge through the boundary of the kinetic zone of a particle and use it as one of the boundary conditions of the problem of the diffusion transfer of a charge from the boundary sphere of the particle to the air space surrounding it.

**Г. Н. Липатов<sup>1</sup>, П. И. Миргород<sup>2</sup>, Н. Х. Копыт<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>*Одесский национальный университет им. И.И. Мечникова,  
кафедра теплофизики,*

<sup>2</sup>*ПНИЛ ФАС*

**Экспериментальное исследование осаждения  
разбавленного аэрозоля NaCl в поле диффузии  
пересыщенного водяного пара.  
Предварительные результаты**

Проведено экспериментальное исследование движения высокодисперсного аэрозоля хлористого натрия в термодиффузионной камере (ТДК). Показано, что при заданном тепловом режиме ТДК можно подобрать соответствующий расход воздушного потока (названный “критическим”), при котором достигается полное осаждение аэрозольных частиц. Проведено обсуждение полученных предварительных данных.

В настоящее время ведутся разработки таких типов аэрозольных фильтров, которые бы могли длительное время работать без процесса регенерации, с одной стороны, а с другой — улавливать с одинаковой эффективностью частицы в широком диапазоне размеров. Известные широко распространённые высокоэффективные фильтры, изготовленные с использованием волокнистых материалов либо мембран, не отвечают этим требованиям, столь важным в ряде производств. Общим для них является то, что они имеют ограниченное время действия, фильтрующий материал после загрязнения не подлежит восстановлению. Кроме того, для них практически невозможно получить полного осаждения частиц. Поэтому проводятся исследования, направленные на поиск новых физических принципов, которые могут лечь в основу создания новых типов аэрозольных фильтров, лишённых тех недостатков, о которых было сказано выше.

Одним из направлений в создании такого рода фильтров является использование сил термо — и диффузиофореза (направленного движения аэрозольных частиц в неоднородных полях температуры и концентрации пара). Для практической реализации применения эффектов удобно использовать термодиффузионные камеры. Однако при создании фильтров, основанных на приведенных выше эффектах, в процессе работы возникает побочный эффект — положительное пересыщение, которое приводит к конденсации пара на аэрозольных частицах и, как следствие, обеднению парогазового потока от активного компонента (пара), то есть к снижению скорости филь-

трации за счёт уменьшения градиентов температуры и концентрации пара [1]. С другой стороны, предложены модели фильтров, в которых происходит конденсация пара на частицах с последующим их осаждением под действием силы тяжести. В такого рода фильтрах необходимо создавать поле пересыщения, величина которого и будет определять скорость конденсационного роста капель.

Анализ экспериментальных [1,2] и теоретических работ [3] по исследованию движения аэрозольных частиц в термодиффузионных камерах (ТДК) позволяет сделать вывод о возможности полного осаждения частиц в такого рода устройствах. Суть предлагаемого метода осаждения заключается в создании таких условий в ТДК, при которых конденсационный рост частиц в поле диффузии пересыщенного водяного пара является определяющим фактором в скорости их осаждения. Интерес представляет ситуация, когда концентрация аэрозольных частиц незначительна (до  $10^5 \text{ см}^{-3}$ ). В этом случае влиянием течения Стефана, термо — и диффузиофореза на скорость осаждения капель, как показывают оценки [1], можно пренебречь.

Исследование проводилось на экспериментальном стенде (схема экспериментальной установки приведена на рис. 1.), основой которого являлась плоская термодиффузионная камера 7, представляющая собой канал, состоящий из двух плоскопараллельных пластин (верхняя — нагреватель 7а, нижняя — холодильник 7б). Длина канала составляла 0.5 м, ширина — 0.1 м, расстояние между нагревателем и холодильником составляло 0.01 м. Поверхность нагревателя и холодильника непрерывно смачивались водой и поддерживались при постоянных температурах с помощью водяных термостатов с точностью  $0.1^\circ\text{C}$ . Во избежание возникновения естественной конвекции ТДК устанавливалась в горизонтальном положении с точностью до  $0.1^\circ$ . Испарение происходило с поверхности пластины нагревателя, которая непрерывно увлажнялась системой подпитки 8.

Экспериментальная установка включала также:

- 1) компрессор 1 и ресивер 2 (рис.1), которые обеспечивали создание стационарного воздушного потока;
- 2) очистку воздуха от аэрозольных частиц в блоке предварительной очистки 3, созданного на базе волокнистого материала марки ФП-15;
- 3) систему кранов 4, позволяющих регулировать воздушные потоки в различных частях установки, расходы которых измерялись реометрами 6;
- 4) генератор аэрозоля NaCl 5 смесительного типа [4], [5];
- 5) камеру 9 с прозрачными боковыми стенками, позволяющими наблюдать за выходящими каплями;
- 6) длиннофокусный микроскоп 11;
- 7) гелий-неоновый лазер 10.

Эксперимент проводился при следующих условиях:

- Воздушный поток, несущий аэрозольные частицы, ламинарный ( $Re < 50$ ).
- Температура холодильника поддерживалась при комнатной темпера-

туре ( $T_c \approx 20^\circ\text{C}$ ), а температура нагревателя изменялась в пределах от  $32^\circ\text{C}$  до  $47^\circ\text{C}$ .

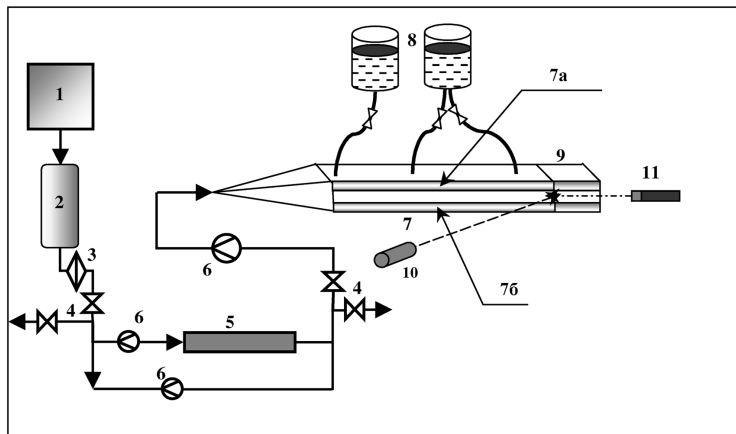


Рис. 1. Упрощённая схема экспериментальной установки.

1 — компрессор, 2 — ресивер, 3 — блок предварительной очистки воздуха от аэрозольных частиц, 4 — регулировочные краны, 5 — генератор монодисперсного аэрозоля, 6 — реометры, 7 — ТДК, 8 — система подпитки, 9 — камера для наблюдения за каплями, 10 — подсветка (лазер), 11 — система наблюдения.

Поток воздуха нагнетался компрессором типа УК — 40 в ресивер, предназначенный для стабилизации расхода газового потока путём сглаживания пульсаций давления. Затем попадал в блок предварительной очистки от аэрозольных частиц. Очищенный от аэрозольных частиц воздушный поток подавался на вход генератора аэрозоля конденсационного типа. Генератор аэрозоля конденсационного типа позволял получать частицы NaCl в диапазоне размеров  $(1 \div 300) \cdot 10^{-10}$  м при объемной скорости прокачивания воздуха через него  $(150 \div 250) \cdot 10^{-6} \text{ м}^3 \text{ с}^{-1}$ . Принцип получения аэрозоля состоял в смешении разнотемпературных потоков воздуха, в результате чего в зоне смешения возникало пересыщение, приводившее к гомогенной конденсации паров NaCl и дальнейшему образованию частиц. Стандартное геометрическое отклонение  $\beta_g$  не хуже 1.4. Средний размер частиц на входе в ТДК при проведении эксперимента составлял  $\langle d \rangle = 0.5$  мкм. Размер частиц и их концентрацию можно было изменять путём изменения температурного режима и расходов смешивающихся воздушных потоков. Из генератора воздушный поток с частицами аэрозоля NaCl поступал на вход ТДК. В канале ТДК аэрозольные частицы обводнялись и укрупнялись в результате конденсации на

них пересыщенных водяных паров, которые диффундировали от нагревателя. Выросшие на частицах капли осаждались на поверхности холодильника под действием силы тяжести.

Наблюдение за выходящими каплями осуществлялось только в центральной части выходного сечения ТДК, чтобы исключить влияние боковых стенок на результаты измерений. Система наблюдения представляла собой объектив (фокусное расстояние составляло 135 мм) и микроскоп, закреплённые в тубусе.

Методика измерений заключалась в подборе некоторого объёмного расхода  $Q^*$  (названного нами “критическим”) для заданного перепада температур между нагревателем и холодильником ТДК, при котором наблюдалось полное осаждение капель внутри канала ТДК. Преимущество такого подхода состоит в том, что необходимо контролировать только “нулевой” коэффициент проскока, избегая его непосредственного измерения.

Основными величинами, измеряемыми в ходе проведения эксперимента, являлись температуры нагревателя  $T_1$  и холодильника  $T_2$ , “критический” расход  $Q^*$ . Дополнительно контролировались температура и относительная влажность входящего воздушного потока. Контроль температур осуществлялся при помощи дифференциальных медь-константановых термопар с точностью до  $0.1^\circ\text{C}$ . Для измерения термо э.д.с. использовался цифровой вольтметр с чувствительностью 1 мкВ.

При изменении расхода  $Q$  воздушного потока, проходящего через ТДК, было замечено изменение числа капель на выходе из неё. Причём с уменьшением  $Q$  уменьшалось и число выходящих капель.

Проведённые измерения показали, что путём последовательного уменьшения расхода воздушного потока (при постоянном тепловом режиме камеры) на входе в ТДК можно найти такое значение  $Q=Q^*$ , при котором все капли осаждаются внутри канала.

С ростом перепада температур возрастал “критический” расход прокачиваемого через ТДК аэрозольного потока (рис.2), то есть величина “критического” расхода зависит от перепада температур  $\Delta T$  между нагревателем и холодильником ТДК.

Относительная ошибка измерений составляла 10 — 12 %.

Величина пересыщения играет основную роль в конденсационном росте частиц, а она определяется относительной концентрацией насыщенных паров воды. Следовательно, чем выше паросодержание, тем больше пересыщение  $\delta$  и тем выше скорость конденсационного роста капли ( $R^2 \sim \delta$ ,  $R$  — радиус капли). Большее увеличение пересыщения и скорости конденсационного роста капли позволяет очищать объёмы с растущим, расходом газа.

Ранее было показано [6], что варьированием условий на входе ТДК (относительная влажность воздушного потока, его температура) можно достичь положительных пересыщений, намного превышающих значения внутри канала, что позволит увеличить скорость конденсационного роста ка-

пель, тем самым сократить время их пребывания в канале до полного осаждения. То есть, интенсифицировать работу термодиффузионной камеры как модели одного из возможных устройств для высокоэффективной очистки газов от аэрозольных частиц. Это будет являться предметом дальнейших экспериментальных исследований.

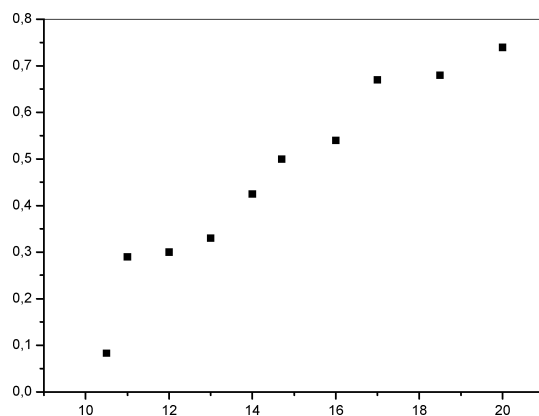


Рис. 2. Данные эксперимента. Зависимость “критического” расхода от перепада температур

#### Литература

1. Баканов С.П., Высоцкий В.В. О влиянии концентрации аэрозольных частиц на эффективность их осаждения в поточной термодиффузионной камере.// Коллоидный журнал. — 1991. — Т.53. — С.793–800.
2. Липатов Г.Н., Скапцов С.А. Экспериментальное исследование фильтрующей способности термодиффузионной камеры с управляющим элементом.// ИФЖ. — 1984. — Т. 47, № 1. — С. 93–100.
3. Барина М.Ф., Щукин Е.Р. О термодиффузиофоретическом захвате аэрозольных частиц в разно температурном плоском канале.// ИФЖ. — 1981. — Т. 81, №1. — С. 47–54.
4. Фуке Н.А., Сутугин А.Г. Высокодисперсные аэрозоли.// Колл. ж. — 1964. — Т. 42, вып. 1. — С. 110–116.
5. Скапцов А.С. Движение частиц высокодисперсного аэрозоля в поле градиента концентрации водяного пара. // Дис. ... канд. физ.-мат. наук. — Одесса, 1984.
6. Шингарев Г.Л. Процессы теплопереноса и движение аэрозольных частиц в поточных термодиффузионных камерах // Дис. ... канд. физ.-мат. наук. — Одесса, 1989.

*Г. М. Ліпатов, П. І. Миргород, М. Х. Копит*

**Експериментальне дослідження осадження розбавленого аерозолі NaCl в полі дифузії пересиченої водяної пари. Попередні результати**

**АНОТАЦІЯ**

Оскільки вимоги до ступеню очищення газів від аерозольних часток невинно зростають ведуться пошуки методів та розробка фільтруючих систем, котрі задовільнювали б наступним вимогам: осадження аерозольних часток не повинно залежати від їх розмірів, повинен бути неперервним процес фільтрації, і не потрібна регенерація фільтруючого матеріалу.

Пропонується модель одного з можливих типів такого роду аерозольних фільтрів. Основа моделі фільтра — щільова термодифузійна камера. Завданням теплового режиму камери може бути досягнуте повне осадження аерозольних часток всередині її об'єму. Метод вимірювання ґрунтується на підбір'ї такого об'ємного розходу газового потоку за заданим тепловим режимом, при якому на виході із ТДК фіксується нуль крапель. Даний тип фільтру можна використовувати в якості доочищуючого приладу для повного осадження аерозольних часток.

*Lipatov G. N., Mirgorod P. I., Kopyt N. H.*

**The experimental research of sedimentation of a dilute aerosol NaCl in the field of supersaturated water vapour. The precut result**

**SUMMARY**

Since the requirements to the degree of filtration of gases from aerosol particles are steadily increasing, the search of methods and creation of filtration systems are conducted, which would meet the following requirements: the sedimentation of aerosol particles shouldn't depend on their sizes, should provide continuity of filtration process and mustn't require the regeneration of filter material.

One of the possible variants of aerosol filters of this sort is examined. Well-known physical processes such as: the condensational growth of aerosol particles in the diffusive field of super-saturated water vapors and their movement in laminar flow under gravity force are put into the basis of the suggested elaboration.

The basis of the filter model is the slip thermal diffusion chamber. Full sedimentation of aerosol particles is reached due to management of a thermal mode of the chamber. The method of measuring consisted in the fixation of zero sudden change of drops when thermal conduction is given and the measuring of volumetrical expenditure of the gas flow.

The given type of the filter is intended for final cleaning gases from aerosol particles.

УДК 536.46

**Т. А. Яровой, Я. И. Вовчук, А. Н. Золотко, Н. И. Полетаев**

*Институт горения и нетрадиционных технологий  
Одесского национального университета им И.И. Мечникова*

**Воспламенение, горение и потухание частиц  
высокозольных углей. Часть III. Горение  
газодисперсных систем частиц высокозольных углей**

Разработана нестационарная теоретическая модель воспламенения и горения газозвеси частиц зольного угля, учитывающая возможность расплавления золы в процессе реагирования. Установлено, что тугоплавкая зола относительно слабо влияет на характер реагирования и времена горения взвесей частиц зольного угля в сравнении с беззольным. Расплавление золы приводит не только к существенному увеличению времени полного реагирования топлива, но и к появлению качественно новых зависимостей времени горения и средней скорости выгорания как функции массовой доли окислителя и количества зольных включений. Качественные изменения механизма реагирования угля с легкоплавкой золой появляются даже при относительно небольших значениях зольности.

В настоящей работе проведено исследование влияния золы на процесс горения газозвеси частиц зольного угля. При построении модели учтены возможности смены агрегатного состояния золы в процессе реагирования, а также изменения доли поверхности частицы угля, покрытой слоем золы.

При моделировании процесса горения газозвеси монодисперсных частиц зольного угля в сухой кислородосодержащей среде были использованы упрощающие предположения, принятые в работе [1], где рассматривалось горение одиночной частицы высокозольного угля.

Для случая газозвеси, в дополнение к уравнению теплового баланса частицы угля:

$$C_p m \frac{d(T)}{dt} = 4 \pi r^2 (1-A) (k_1 q_1 + k_2 q_2) [a_1 \cdot (1-z) + a_2 \cdot z] \rho_g -$$

$$- 4 \pi \lambda \left[ (1-z) r + z (r+h) \right] (T - T_g) -$$

$$- 4 \pi \sigma \left[ \varepsilon_c (1-z) r^2 + \varepsilon_a z (r+h)^2 \right] (T^4 - T_w^4)$$



и уравнению выгорания частицы угля:

$$\frac{dm}{dt} = -4\pi r^2(1-A)(k_1 v_1 + k_2 v_2)[a_1 \cdot (1-z) + a_2 \cdot z] \rho_g$$

необходимо добавить уравнение, определяющее изменение температуры газовой фазы, обусловленное теплообменом между частицами, газом и стенками реактора:

$$\frac{dT_g}{dt} = \frac{3Nu\lambda C_{ок}^0 v (r+h)(T-T_g)}{8\alpha r_0^3 \rho_f C_{pg} (1-A)} - \frac{4Nu_w \lambda (T_g - T_w)}{\rho_g L^2 C_{pg}}$$

Массовые доли кислорода на свободной от золы поверхности частицы угля  $a_1$  и на ее поверхности под слоем золы  $a_2$  определялись с учетом выгорания окислителя в предположении квазистационарности процесса диффузии окислителя к поверхности угольной частицы:

$$a_1 = \frac{a_\infty \left( 1 - \frac{\left(\frac{r}{r_0}\right)^3}{\alpha} \right)}{(k_1 + k_2) \left[ (1-A) \frac{1}{\beta} + \frac{1}{k_1 + k_2} \right]};$$

$$a_2 = \frac{a_\infty \left( 1 - \frac{\left(\frac{r}{r_0}\right)^3}{\alpha} \right)}{(k_1 + k_2) \left[ (1-A) \left( \frac{1}{\beta} + \frac{1}{\beta_A} \right) + \frac{1}{k_1 + k_2} \right]};$$

где  $m$  — масса частицы угля,  $A$  — зольность,  $\beta$  — коэффициент избытка окислителя,  $T$  — температура частицы угля,  $T_g$  — температура окружающей среды,  $T_w$  — температура стенки печи,  $r$  — радиус частицы угля,  $\Omega=1-A$  — пористость слоя золы,  $\rho_g$  — плотность газа,  $a_\infty$  — мольная доля окислителя в окисляющем газе,  $C_p$  — удельная теплоемкость угля,  $k_i$  — константа скорости химической реакции,  $E_i$  — энергия активации,  $q_i$  — тепловой эффект,  $v_i$  — стехиометрические коэффициенты,  $i=1,2$  — номер химической реакции,

$\epsilon_c$  — коэффициент черноты угля,  $\epsilon_a$  — коэффициент черноты золы,  $\sigma$  — постоянная Стефана-Больцмана,  $C_{pg}$  — теплоемкость газа,  $L$  — диаметр печи,  $Nu_w$  — критерий Нуссельта для стенок печи;  $\rho_g$  — плотность газа,  $\rho_f$  — плотность частицы,  $\beta_A = D_z/h$  — скорость диффузии окислителя через золную оболочку толщиной  $h$ ,  $\beta$  — коэффициент массообмена,  $D_z$  — коэффициент диффузии окислителя через слой золы.

Полагалось, что величина  $D_z$  не зависит от химического состава золной оболочки и определяется ее агрегатным состоянием:  $D_z = \Omega \cdot D$  для твердой золы; и  $D_z = D^* \exp(-E_z/(RT))$  для расплавленной золы, где  $D$  — коэффициент газовой диффузии;  $D^*$ ,  $E$  — соответственно, предэкспонент и энергия активации в температурной зависимости коэффициента диффузии кислорода сквозь жидкую золную пленку.

Приведенная система уравнений решалась численно при следующих начальных условиях —  $t=0$ :  $T=T_0$ ,  $m=m_0$ ,  $T_g=T_{g0}$ . Значения параметров задавались согласно [3-8]:

$q_1=2945$  кал/г,  $q_2=1634$  кал/г,  $k_1=0.363 \cdot 10^6$  см/с,  $k_2=0.44 \cdot 10^6$  см/с,  $E_1=24150$  кал/моль,  $E_2=25600$  кал/моль,  $v_1=0.375$ ,  $v_2=0.75$ ,  $v=1.8$ ,  $C_p=0.167$  кал/г·К,  $\rho_c=1.5$  г/см<sup>3</sup>,  $\lambda=5,5 \cdot 10^{-5}(T^*/T_0)^{0.75}$  кал/см·с·К,  $D=0.18(T^*/T_0)^{1.75}$  см<sup>2</sup>/с,  $c_g=1.29 \cdot 10^{-3}(T_0/T^*)$  г/см<sup>3</sup>,  $D^*=64$  см<sup>2</sup>/с,  $E_z=48500$  кал/моль,  $\epsilon_c=0.78$ ,  $\epsilon_a=0.40$ .

Расчет проводился до достижения полноты выгорания в 95%. Значения коэффициентов переноса определялись с учетом их зависимости от температуры при  $T^*=0.5(T+T_g)$ .

Согласно [6,7], зола считалась тугоплавкой, если температуры, достигаемые в процессе реагирования, меньше температуры размягчения золы  $T_1$ , и легкоплавкой, если температура частицы угля в процессе ее реагирования превышает температуру размягчения золы. Для углей с легкоплавкой золой была учтена возможность формирования на поверхности частицы угля очагов расплавленной золы, которые оказывают дополнительное диффузионное сопротивление диффузии окислителя.

Как показано в [1], расплавление золы в случае, когда отдельные ее капли способны сливаться и образовывать “островки” на поверхности одиночной частицы золного угля существенно затягивает процесс ее реагирования. Образование таких участков расплавленной золной пленки практически исключает определенную долю реакционной поверхности из процесса реагирования, так как скорость жидкофазной диффузии на 4-5 порядков меньше газофазной. Это в свою очередь существенно увеличивает время полного реагирования угольной частицы. Чем ниже температура начала размягчения золы, тем раньше в процессе воспламенения и горения угольной частицы на ее поверхности начинается формирование участков расплавленной золной оболочки и тем дольше протекает процесс полного реагирования.

Естественно, что при воспламенении и горении газозвесей, для которых существенен саморазогрев системы, нарастание температуры частицы угля

в составе взвеси и достижение условия расплавления золы происходит значительно быстрее, чем это имеет место для одиночной частицы. Раннее формирование жидкой пленки золы на поверхности частиц газозвеси в сравнении с одиночной частицей обуславливает в целом более медленный процесс реагирования частиц в составе взвеси (Рис. 1, кривые 1 и 2).

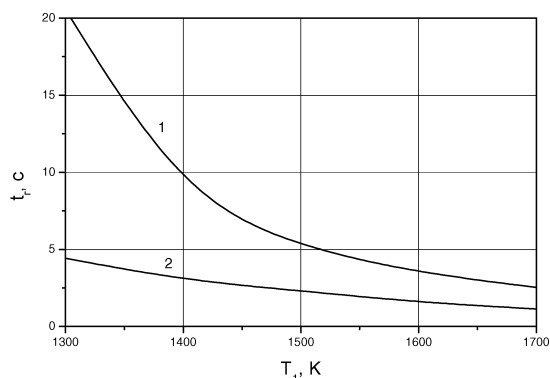


Рис. 1. Зависимость времени горения взвеси частиц угля в воздухе от температуры размягчения золы:

$r_{p0} = 50 \text{ мкм}$ ,  $A = 0.20$ ,  $r_z = 0.5 \text{ мкм}$ ,  $T_{g0} = 1400 \text{ К}$ ,  $\alpha = 1.3$   
 1 — газозвесь частиц; 2 — одиночная частица

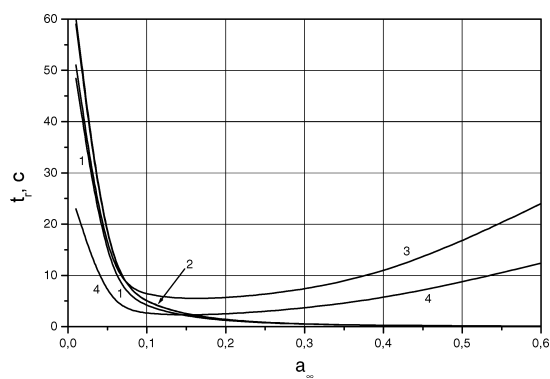


Рис. 2. Зависимость времени горения взвеси от массовой доли кислорода в среде:

$r_{p0} = 50 \text{ мкм}$ ,  $A = 0.20$ ,  $r_z = 0.5 \text{ мкм}$ ,  $T_{g0} = 1400 \text{ К}$ ,  $\alpha = 1.3$ ,  
 1 — газозвесь, беззольный уголь; 2 — газозвесь, тугоплавкая зола; 3 — газозвесь, легкоплавкая зола; 4 — одиночная частица, легкоплавкая зола

Увеличение количества окислителя в окружающей среде при горении беззолного угля и угля с тугоплавкой золой ускоряет процесс реагирования — наблюдается характерная для гетерогенного реагирования в диффузионном режиме картина уменьшения времени горения с ростом концентрации окислителя (рис. 2, кривые 1 и 2). В случае легкоплавкой золы, рост температуры реагирования с увеличением концентрации окислителя (начиная с уровня концентраций  $\alpha = 0.15$ ), приводит к более раннему формированию на поверхности частицы расплавленного зольного покрытия, образование которого существенно снижает скорость реагирования и затягивает его время.

Процесс реагирования взвеси частиц зольного угля с тугоплавкой золой контролируется газофазной диффузией — характерное время горения ( $t_f/r_0^2$ ) практически не зависит от начального размера частицы угля (кривая 3). Для угля с легкоплавкой золой следует отметить существенно недиффузионный характер реагирования (кривая 1), однако контроль концентрации окислителя на поверхности реагирования показал, что количества окислителя там чрезвычайно малы, что нехарактерно для кинетического режима реагирования. Для более детального анализа была исследована одиночная частица с легкоплавкой золой (кривая 2). Характер поведения кривой свидетельствует о том, что для взвеси частиц угля с легкоплавкой золой существенное увеличение характерного времени с уменьшением размера частиц связано с влиянием эффекта саморазогрева частиц в составе взвеси (коллективный эффект), который приводит к возрастанию температуры частиц, и как следствие к плавлению золы и существенному увеличению времени реагирования. Т.о. расплавленная зольная оболочка лимитирует процесс диффузии окислителя к реакционной поверхности — наблюдается диффузионный по зольной пленке режим реагирования (кривая 1).

Следует отметить, что для углей с легкоплавкой золой указанное выше влияние эффекта саморазогрева обуславливает в целом более низкие скорости реагирования частиц в составе газовзвеси в сравнении с одиночной частицей (рис 1, кривые 1 и 2; рис 2, кривые 3 и 4).

Влияния изменения коэффициента избытка окислителя  $\alpha$  на относительное время горения взвеси для случаев легко- и тугоплавкой золы (рис 4, кривые 1 и 2 соответственно) особенно существенно в диапазоне значений  $\alpha$  от 1 до 1.5. Это, по видимому, объясняется существенным увеличением скорости реагирования с ростом  $\alpha$  в данном диапазоне, что обуславливает более раннее формирование расплавленного зольного каркаса и как следствие замедление процесса реагирования. Дальнейшее увеличение  $\alpha$  не приводит к существенному ускорению процесса реагирования — относительное время реагирования незначительно увеличивается.

Рост количества зольных включений увеличивает время реагирования единицы массы горючего, как для случая тугоплавкой золы (рис 5, кривая 3), так и для легкоплавкой золы (кривые 1 и 2), что объясняется уменьшением повер-

хности реагирования с ростом  $A$ , и, как следствие, общим увеличением времени горения. В случае легкоплавкой золы увеличение времени реагирования более существенно, что обусловлено тормозящим влиянием жидкой зольной оболочки. Однако начиная со значений зольности  $A=0.15-0.20$  влияние расплавленной зольной оболочки постепенно уменьшается. Это связано с уменьшением уровней температур, достигаемых в процессе реагирования и с постепенным уменьшением доли поверхности покрытой жидким зольным слоем. В пределе при  $A=0.80$  исчезают различия во временах горения для тугоплавкой и легкоплавкой золы, что является свидетельством того, что при таких зольностях в процессе реагирования не достигаются температуры плавления золы.

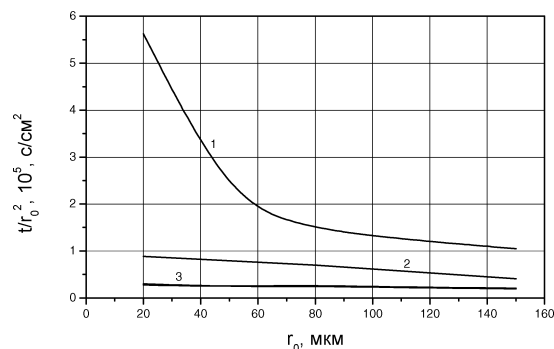


Рис. 3. Зависимость характерного времени ( $t/r_0^2$ ) от начального размера частицы угля в газозвеси:  
 $T_{г0}=1400\text{K}$ ,  $\alpha=1.3$ ,  $A=0.20$ ,  $r_z=0.5\text{мкм}$ ,  $a_{\infty}=0.21$ ;  
 1 — легкоплавкая зола; 2 — одиночная частица с легкоплавкой золой; 3 — тугоплавкая зола

Кривые 1 и 2 соответствуют случаям с разной дисперсностью золы. Для более мелкой золы (кривая 1) процесс реагирования протекает медленней. Это связано с тем, что чем больше дисперсность золы, тем быстрее она покрывает поверхность частицы угля и, соответственно, при достижении температуры начала плавления золы большая поверхность оказывается покрытой расплавленной зольной оболочкой.

Полученные результаты позволяют заключить, что при реагировании газодисперсных систем зольных углей тугоплавкая зола относительно слабо влияет на характер реагирования и времена горения частиц зольного угля в сравнении с беззольным. Расплавление золы приводит не только к существенному увеличению времени полного реагирования топлива, но и к появлению качественно новых зависимостей времени горения и средней скорости выгорания как функции массовой доли окислителя и количества зольных включений. Качественные изменения механизма реагирования угля появля-

ются даже при относительно небольших значениях зольности, если в процессе реагирования зола плавится. Условия, при которых происходит увеличение скорости реагирования, способствуют более раннему формированию на реакционной поверхности расплавленного зольного каркаса, что вызывает дальнейшее торможению процесса реагирования. Это также обуславливает более быстрое реагирование одиночных частиц в сравнении с газозвзвесью для углей с легкоплавкой золой.

Исследования, описанные в данной публикации были выполнены при поддержке гранта АФГИР № RE1-2359-CG-02

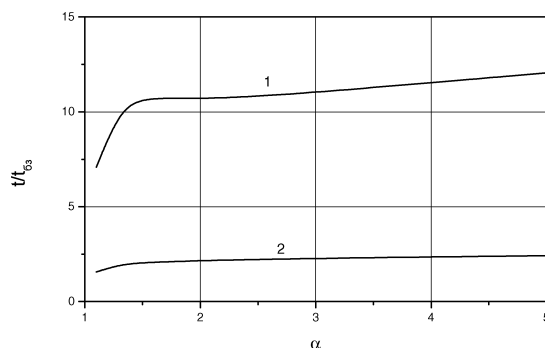


Рис. 4. Зависимость отношения времени горения взвеси зольного угля ко времени горения беззольного угля:

$T_{g0}=1400\text{K}$ ,  $A=0.20$ ,  $r_{p0}=50\text{мкм}$ ,  $r_z=0.5\text{мкм}$ ,  $a_{\infty}=0.21$ ;  
1 — легкоплавкая зола; 2 — тугоплавкая зола

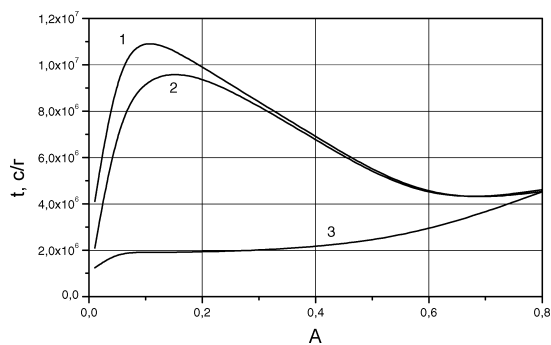


Рис. 5. Зависимость времени горения единицы массы угля от его зольности:

$T_{g0}=1400\text{K}$ ,  $\alpha=1.3$ ,  $r_{p0}=50\text{мкм}$ ,  $r_z=0.5\text{мкм}$ ,  $a_{\infty}=0.21$ ;  
1 — легкоплавкая зола; 2 — легкоплавкая зола,  $r_z=1.0\text{ мкм}$ .;  
3 — тугоплавкая зола.

### Литература

1. Яровой Т.А., Вовчук Я.И., Золотко А.Н., Полетаев Н.И. Воспламенение, горение и потухание частиц высокозольных углей. Часть II. Горение одиночной частицы высокозольного угля // *Физика аэродисперсных систем*. — 2001. — №38. — С. 71-81.
2. Калинин В.В., Орловская С.Г., Прудникова Ю.В., Гануи И. Устойчивые и критические режимы тепломассообмена движущейся углеродной частицы. // *Физика горения и взрыва*. — 1998. — №1. — С. 25-31.
3. Гуревич М.А., Озерова Г.Е., Степанов А.М., Расчет гетерогенного воспламенения совокупности частиц // *Физика горения и взрыва*. — 1971. — №1. — С. 3-9.
4. Основы практической теории горения / Под ред. В.В.Померанцева. — Л.: Энергия, 1973.
5. Канторович Е.В. Основы теории горения и газификации твердых топлив. — М.: АН СССР, 1958. — 599 с.
6. Киро С.В. Критические явления в дисперсных гетерогенных системах со стадийным образованием конечных продуктов: Дис. ... канд. физ.-мат. наук. — Одесса, 1983. — 153 с.
7. Киро С.А., Вовчук Я.И., Золотко А.Н., Клячко Л.А. Воспламенение частиц зольного угля // *Физика горения и взрыва*. — 1983. — Т.19, №5. — С. 36-39.
8. Виленский Т.В., Хзмалян Д.М. Динамика горения пылевидного топлива. — М.: Энергия, 1978. — 248 с.
9. Лавров П.В., Шурыгин А.П. Введение в теорию горения и газификации топлива. — М.: АН СССР, 1962.
10. Бабий В.И., Куваев В.Ф. Горение угольной пыли и расчет пылеугольного факела. — М.: Энергоатомиздат., 1986.
11. Вулис Л.А. О горении зольного угля // *Журнал технической физики*. — 1940. — №10. — Вып.23-24.
12. Юдович Я.Э. Геохимия ископаемых углей. — Л.: Наука, 1978.
13. Агроскин А. А. Химия и технология угля. — М.: Недра, 1969.
14. Белосельский Б.С., Барышев В.И. Низкосортные энергетические топлива. — М.: Энергия, 1978. — 211 с.
15. Hurt R.H., Davis K.A. Near-Extinction and Final Burnout in Coal Combustion // *Twenty-Fifth (International) Symposium on Combustion*. The Combustion Institute. — Pittsburgh, 1994.
16. Hurt R.H., Davis K.A., Yang N.Y.C., Headley T.H., Mitchell R.E. Residual Carbon from Pulverised Coal Fired Boilers 2: Morphology and Physicochemical Properties // *Fuel*. — 1995. — V. 74, № 9. — P. 1297-1306.
17. Золотко А.Н. Теория воспламенения. — Одесса, 1985.

*Т. А. Яровий, А. Н. Золотко, Я. І. Вовчук, М. І. Полетаєв*  
**Займання, горіння і потухання частинок високозольного вугілля.  
Частина III. Горіння газодисперсних систем частинок  
високозольного вугілля**

**АНОТАЦІЯ**

Розроблено нестационарну теоретичну модель запалення і горіння газозавису часток зольного вугілля, що враховує можливість розплавлювання золи в процесі реагування. Встановлено, що тугоплавка зола відносно слабо впливає на характер реагування і час горіння газозавису частинок зольного вугілля в порівнянні з беззольним. Розплавлювання золи приводить не тільки до істотного збільшення часу повного реагування палива, але і до появи якісно нових залежностей часу горіння і середньої швидкості вигорання як функції концентрації окислювача і кількості зольних включень. Якісні зміни механізму реагування вугілля з легкоплавкою золою з'являються навіть при відносно невеликих значеннях зольності.

*Yarovoy T. A., Zolotko A. N., Vovchuk J. I., Poletaev N. I.*  
**Ignition, Combustion and Extinction of Ash-Rich Coal Particles.  
Part III. Combustion of Dusts of Ash-Rich Coal Particles**

**SUMMARY**

In a burning process ash is able to cover a surface of the coal particle and act as a diffusion barrier for oxygen (particularly liquid ash). A model is presented to describe spherical ash coal particles dust combustion in quiescent oxidizing gas and reveal the main factors of an ash influence on this process. Obtained results analysis demonstrates that a fusibility of the inorganic matter is one of the most significant ash coal characteristics. High-fusing ash has a weak influence on the conversion dynamics and burning time of an ash coal in the comparison with an ash free coal. The qualitative change of an ash coal combustion mechanism is able to appear if the temperatures reached in the combustion process exceed the ash fusing temperature. That, in its turn, leads not only to considerable increasing of the particles burning times but to appearance of the qualitatively new dependences of the burning time as a function of ash content and oxidizer mass fraction.



*А. В. Флорко, В. В. Головки, А. К. Копейка*

*Институт горения и нетрадиционных технологий  
Одесского национального университета им. И. И. Мечникова*

## **Спектральные исследования факела азидоэтанола**

Представлены результаты экспериментальных исследований спектра излучения факела горящего азидоэтанола (АЭ) в видимой и ближней УФ области спектра. Обнаружены полосы радикалов CN, NH, и OH. Для оценки концентрации этих радикалов в факеле проведены измерения интенсивности спектральных полос. Получены распределения температуры по высоте факела в зависимости от внешнего давления в диапазоне 0,01÷0,1 МПа.

Горение производных азотисто — водородной кислоты, к которым и относится азидоэтанол (АЭ), представляет интерес, поскольку распространяется за счет тепла, выделяющегося в результате протекания реакции разложения азидной группы. Эта реакция носит название первичной реакции, и протекает с образованием молекулы азота и чрезвычайно реакционноспо-

собного промежуточного соединения нитрена  $RN$  [1]. Дальнейшее превращение нитрена зависит от способа генерации нитрена (термолиз, фотолиз), его спинового состояния, природы нитренового остатка, температуры, и определяет, в основном, выделение энергии, запасенной в азидной группе, а следовательно, и скорость горения.

При горении АЭ в тонких трубках наблюдалось два фронта горения. Первый, расположенный вблизи поверхности жидкой фазы, очевидно, обусловлен реакцией разложения азидной группы [2,3]. Второй, возникающий над срезом трубки, представляет собой устойчивый факел (пламя окисления), в котором протекают реакции окисления — восстановления. Механизм вторичных реакций, протекающих в пламени окисления, связанный с эволюцией нитренового остатка, практически не изучен. Более того, неизвестен и качественный состав реагентов, что в значительной мере затрудняет построение конкретных кинетических схем превращения нитрена в условиях горения органических азидов.

В этой связи, цель настоящей работы состояла в определении качественного и количественного состава продуктов реакций, образующихся в факеле АЭ. Для получения необходимой информации, проводились исследования спектрального состава излучения пламени окисления АЭ и распределения температуры в факеле при атмосферном и пониженных давлениях.

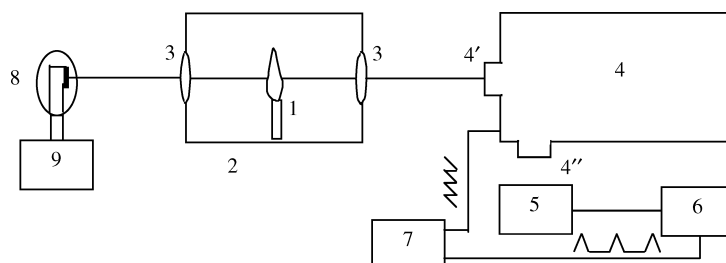


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

Экспериментальные исследования проводились на установке, блок схема которой приведена на рис. 1. Кварцевая трубка (1), наполненная АЭ, помещалась в вакуумную камеру (2) с двумя кварцевыми линзами (3). Излучение факела фокусировалось в плоскости входной щели (4') спектрального дифракционного прибора (4). Разложенное в спектр излучение регистрировалось фотоэлектронным умножителем (5) и запоминающим осциллографом (6). Зеркало, расположенное перед выходной щелью (4'') спектрального прибора, совершало колебания, возбуждаемые генератором пилообразного напряжения (7), что позволяло получать до 100 спектров в секунду в интервале длин волн  $\Delta\lambda=200\text{Å}$ . Спектральное разрешение при этом составило  $R = 5000\div 10000$ . Для регистрации спектра в диапазоне  $\Delta\lambda=1600\div 7500\text{Å}$  использовалось устройство, позволяющее поворачивать дифракционную решетку. Синхронизация осциллографа с работой спектрального прибора осуществлялась с помощью генератора пилообразного напряжения. Температура факела определялась по методу обращения спектральной линии натрия, присутствовавшего в АЭ как естественная присадка, с помощью оптической схемы, состоящей из двух кварцевых линз (3) и банд — лампы СИ-10-300 (8). С помощью банд — лампы проводились также измерения абсолютных значений интенсивности излучения отдельных полос в исследуемом спектре. Питание банд — лампы осуществлялось от блока питания с высокой стабилизацией напряжения (9).

Измерения температуры и ее распределения по высоте факела проводились в интервале давления  $p=0,01\div 0,1\text{МПа}$ . При всех исследуемых значениях внешнего давления распределение температуры в факеле имело параболическую форму, причем максимум температуры приходился на расстояние  $30\div 50\text{мм}$  от среза трубки, в зависимости от величины внешнего давления. Характерное распределение температуры по высоте факела приведено на рис.2. По мере понижения давления в вакуумной камере максимальная температура факела уменьшалась (рис.3), вследствие снижения полноты сгорания продуктов разложения АЭ.

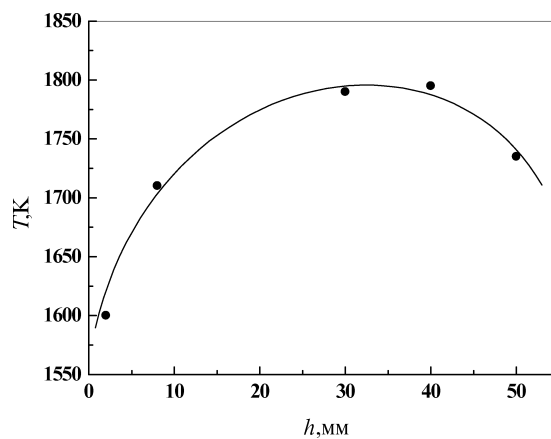


Рис. 2. Распределение температуры по высоте факела АЭ ( $p=0,1$ МПа; диаметр трубки  $d=2$ мм)

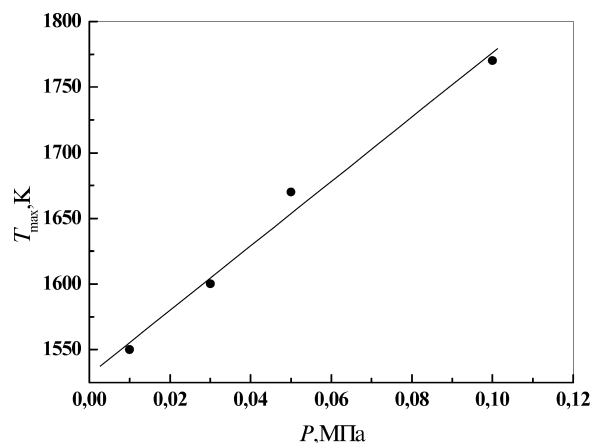


Рис. 3. Зависимость максимальной температуры факела от внешнего давления

Как видно из рис. 3, температура факела достаточно низкая ( $T_{\max} < 1800$ К), поэтому спектр излучения факела оказался бедным, а интенсивности обнаруженных спектральных полос радикалов CN, NH, и OH слабыми (рис.4). Рассмотрение некоторых общих характеристик этих полос показало, что наиболее сильная секвенция полос CN соответствует переходу  $B^2\Sigma^+ - X^2\Sigma^+$  при неизменном квантовом числе  $\nu$ . Полосы имеют фиолетовое оттенение и при-

надлежат к главной системе. Более слабая группа полос CN располагается вблизи  $\lambda=3500\text{\AA}$ . Как отмечалось в [4] полосы CN хорошо проявляются при наличии в системе соединений углерода и активного азота.

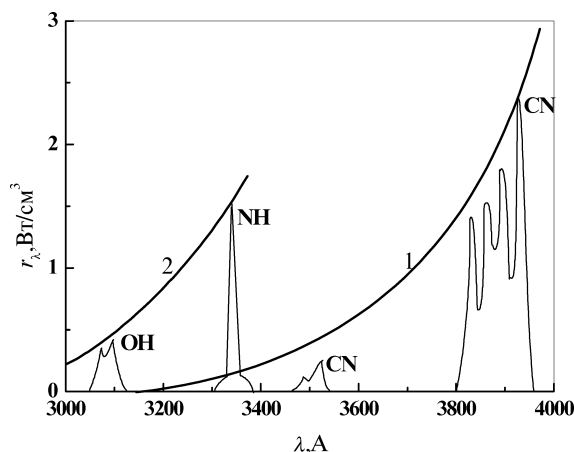


Рис. 4. Спектр излучения факела АЭ при давлении  $p=0,1\text{ МПа}$

Интенсивные полосы NH ( $A^3\Pi-X^3\Pi$ ) обычно заметно оттенены в обоих направлениях так, что Q — ветви образуют интенсивный центральный максимум, а P- и R- ветви симметрично расходятся. Однако, из-за низких температур в пламени АЭ, Q — максимум (1—1), практически, не наблюдался. Действительно, как показывают оценки, в предположении больцмановского распределения в системе колебательных уровней, интенсивность Q — максимума (1—1) должна составлять лишь 4-5% интенсивности Q — максимума, соответствующего переходу (0—0). Столь сильное уменьшение заселенности колебательных уровней с увеличением колебательного квантового числа связано с относительно высоким значением энергии колебательного кванта ( $\Delta E \approx 0,4\text{ эВ}$ ) и низкими температурами ( $T \approx 0,14\text{ эВ}$ ). Эти полосы появляются при самых различных условиях, например, в спектрах аммиачно — кислородного пламени, в присутствии активного азота и хемилюминесценции. В факеле АЭ хемилюминесценция маловероятна, поскольку в спектре излучения наблюдался лишь один Q — максимум (0—0).

Полосы OH ( $A^2\Sigma-X^2\Pi$ ) имеют красное оттенение с четырьмя кантами. Яснее других выражен R — кант большой частоты, другие взаимно перекрываются. Эта система полос встречается в спектрах испускания почти всех источников, где присутствуют водяные пары.

Для количественной оценки концентраций обнаруженных радикалов, необходимо знать величину абсолютной интенсивности соответствующих

полос в спектре излучения факела АЭ. Методика измерения абсолютных интенсивностей основывалась на сравнении световых потоков от исследуемого источника (1) и банд — лампы (8) (рис.1). Для однородного источника интенсивность излучения  $I$  связана со спектральной светимостью  $r_{\lambda}^{\text{б.л.}}$  банд — лампы соотношением:

$$I = \frac{4}{L} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} r_{\lambda}^{\text{б.л.}} \frac{\alpha_{\lambda}}{\beta_{\lambda}} d\lambda,$$

где  $L$  — протяженность исследуемого источника излучения;  $\alpha_{\lambda}$  и  $\beta_{\lambda}$  — показания прибора при регистрации излучения факела АЭ и банд — лампы, соответственно. Интегрирование проводилось в пределах секвенции полос. Результаты измерений интенсивностей  $I$  полос ОН, NH, и CN приведены в таблице:

	ОН	NH	CN
$I$ , Вт/см <sup>2</sup>	$1,3 \cdot 10^{-6}$	$0,7 \cdot 10^{-6}$	$6 \cdot 10^{-6}$
$r_{\lambda}^{\text{max}}$ , Вт/см <sup>3</sup>	0,37	1,54	2,2
$T^{\text{АЧТ}}$ , К	1750	1750	1560
$n \cdot 10^{-16}$ , см <sup>-3</sup>	$1 \cdot 10^2$	3	0,1

В этой же таблице приведены данные о величине спектральной светимости в максимумах полос  $r_{\lambda}^{\text{max}}$  и соответствующие им температуры абсолютно черного тела (АЧТ). Для наглядности на рис.4 изображены зависимости  $r_{\lambda}^{\text{АЧТ}}$  от длины волны для температур  $T_1=1560\text{К}$  и  $T_2=1750\text{К}$  (кривые 1 и 2 соответственно). Как видно из таблицы и рис.4, величины спектральной светимости в максимумах полос ОН и NH соответствуют спектральной светимости АЧТ при  $T_2=1750\text{К}$ , т.е. температуре фронта пламени окисления при давлении  $p=0,1\text{МПа}$ . Этот факт, прежде всего, свидетельствует о достаточно высоких концентрациях ОН и NH во фронте пламени. Максимум спектральной светимости полос CN равен спектральной светимости АЧТ, но при температуре  $T_1=1560\text{К}$ , т.е. более низкой, чем температура фронта пламени окисления при атмосферном давлении.

Расчет максимально возможных концентраций радикалов ОН, NH, и CN проводился исходя из равновесного распределения молекул по энергетическим состояниям. При этом не учитывалось самопоглощение, полагая, что в системе электронно — колебательных уровней реализуется бальмановское распределение. Сделанные допущения позволили связать величину  $n$  концентрации молекул в основном состоянии с интенсивностью излучения  $I$  соответствующих полос в спектре факела АЭ:

$$n = I \times \left[ \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\omega'_e}{T}\right) \right] \exp\left(-\frac{T_e}{T}\right) \sum_{\nu''} \exp\left(-\frac{\omega''_e}{T}\right) A_{\nu'\nu''} h\nu_{\nu'\nu''} \right]^{-1},$$

Здесь  $\nu$  — колебательное квантовое число;  $A_{\nu'\nu''}$  — вероятность электронно — колебательного перехода;  $T_e$  и  $\omega'_e$  — потенциал возбуждения электронного уровня и энергия колебаний кванта, (один штрих относится к основному, а два штриха к возбужденному состоянию).

Принимая во внимание низкие температуры пламени, а также считая, что  $A_{\nu'\nu''} = A = \text{const}$ , получим:

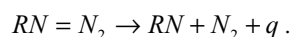
$$n \approx \frac{I}{A \cdot h\nu} \exp\left(-\frac{T_e}{T}\right).$$

Результаты полученных с помощью последнего выражения оценок также представлены в таблице.

Как видно, концентрация радикалов CN существенно ниже концентрации OH и NH. Более того, максимальное значение концентрации CN наблюдалось при температуре ниже, чем температура фронта пламени. Это дает основания предположить, что радикалы CN образуются во внутренних областях факела или вблизи зоны разложения АЭ при внедрении активного

нитрена  $RN$  по связям C—C [5] и гибнут во фронте пламени окисления.

Радикалы OH и NH образуются во фронте пламени окисления, очевидно, вследствие диссоциации водяных паров в присутствии активного азота, образующегося при разложении АЭ по следующей схеме:



Таким образом, температура пламени окисления АЭ выше, чем в зоне разложения ( $T_p = 1170\text{K}$ ), однако спектр излучения пламени в видимой и ближней УФ — области беден и содержит лишь полосы радикалов CN, OH и NH, которые являются промежуточными продуктами при термоллизе АЭ и последующем превращении нитрена.

#### Литература

1. Атkinson P.C. Общая органическая химия / Под ред. Д. Бартона, У. Д. Ол-лиса. — М.: Химия, 1982. — Т.3.
2. Исаев Б.М., Канахин С.П., Кожух М.С., Токарев Н.П. Исследование процессов горения некоторых органических азидов // Химическая физика процессов горения и взрыва. Кинетика химических реакций. Материалы VI Всесоюзного симпозиума по горению и взрыву. — Алма-Ата, 1980. — С.97-101.

3. Головки В.В., Канашин С.П., Флорко А.В., Охрименко Н.А. Горение капли  $\beta$  — азидэтанола при атмосферном и пониженных давлениях // Физика горения и взрыва. — 1990. — Т.26, №5. — С. 61-64.
4. Герцберг Г. Спектры и строение простых свободных радикалов. — М.: Мир, 1974. — С. 208.
5. Иоффе Б.Ф., Семенов В.П., Оглоблин К.А. Нитрены и их роль в химических реакциях // Ж-л Всесоюзного химического общества им. Д. И. Менделеева. — 1974. — Т.19. — С.314-324.

*О. В. Флорко, В. В. Головки, О. К. Копійка*  
**Спектральні дослідження факелу азидетанола**

**АНОТАЦІЯ**

Представлені результати експериментальних досліджень спектру випромінювання факелу азидетанола (АЕ) у доступній для зору та близькій УФ області спектру. Виявлені смуги радикалів CN, NH і OH. Для оцінки концентрації цих радикалів у факелі проводились вимірювання інтенсивності спектральних смуг. Отримані розподіли температури за висотою факелу в залежності від зовнішнього тиску в діапазоні 0,01÷0,1МПа.

*Florko A. V., Golovko V. V., Kopyka A. K.*  
**The spectral study of ethanol azide flame**

**SUMMARY**

The results of spectral study of ethanol azide (EA) flame radiation for visible and ultraviolet spectrum range are presented. The spectral bands of radicals CN, NH, and OH were observed. The calculations of values of radical concentration were determined with used of results measurements of spectral bands intensity. The distributions of temperature as function of flame length under atmospheric and low pressure are obtained.

**В. В. Головки, А. К. Копейка, Е. А. Никитина**

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

### **Особенности теплового взрыва с параллельными реакциями**

Из уравнений теплового и материального баланса для параллельных реакций первого порядка, используя стационарный подход Н.Н.Семенова, были получены критические условия теплового взрыва и проведен их анализ. Показано, что в отличие от теплового взрыва систем с одной экзотермической реакцией, при параллельном протекании реакций, тепловой взрыв может реализовываться при меньших разогревах системы и больших скоростях теплоотвода. Полученные критические условия теплового взрыва хорошо описывают особенности газофазного воспламенения капель азидоэтанола.

В работе [1] было получено критическое условие теплового взрыва при параллельном протекании несамоускоряющихся экзотермических реакций в таком же виде, как и в классической стационарной теории Н.Н.Семенова, но с эффективными значениями кинетических констант реакций. В [2] рассмотрен тепловой взрыв гомогенной системы, когда параллельно реагируют два различных вещества. Вместе с тем, как показали результаты экспериментов по воспламенению капель азидоэтанола [3] и *n*-гептана [4], газофазное воспламенение горючего может осуществляться за счет тепловыделений параллельных реакций окисления и термического разложения молекул горючего, то есть когда одно и то же вещество реагирует по двум направлениям.

Цель настоящей работы — обобщение результатов теории теплового взрыва на случай одновременного протекания в системе двух параллельных реакций первого порядка с различными тепловыми эффектами и энергиями активации.

Как и в стационарной теории теплового взрыва будем считать, что градиенты температуры и концентрации в реагирующей системе отсутствуют.

Кинетическое уравнение для параллельных реакций первого порядка имеет вид:

$$\frac{d\eta}{dt} = (k_1 + k_2)(1 - \eta)$$

где  $\eta$  — глубина превращения вещества;  $k_1$  и  $k_2$  — константы скорости химических реакций.



Систему уравнений теплового и материального баланса представим в виде:

$$\frac{d\Theta}{d\tau} = \left[ 1 + k_{21}(T_0)Q_{21} \exp\left(\frac{\Theta(E_{21}-1)}{1+\beta\Theta}\right) \right] \cdot \exp\left(\frac{\Theta}{1+\beta\Theta}\right)(1-\eta) - \frac{\Theta}{\alpha} \quad (1)$$

$$\frac{d\eta}{d\tau} = \gamma \left[ 1 + k_{21}(T_0) \cdot \exp\left(\frac{\Theta(E_{21}-1)}{1+\beta\Theta}\right) \right] \cdot \exp\left(\frac{\Theta}{1+\beta\Theta}\right)(1-\eta) \quad (2)$$

Здесь

$$\Theta = \frac{E_1}{RT_0^2}(T - T_0); \quad \tau = t \cdot \frac{k_1(T_0)}{\gamma}; \quad \gamma = \frac{c_p RT_0^2}{Q_1 E_1};$$

$$\beta = \frac{RT_0}{E_1}; \quad E_{21} = \frac{E_2}{E_1}; \quad Q_{21} = \frac{Q_2}{Q_1}; \quad k_{21}(T_0) = \frac{k_2(T_0)}{k_1(T_0)};$$

$$k_1(T) = k_{01} \cdot \exp(-E_1/RT); \quad k_2(T) = k_{02} \cdot \exp(-E_2/RT); \quad \alpha = \frac{Q_1 E_1 V}{\alpha \cdot S} \cdot \frac{k_1(T_0)}{RT_0^2}$$

В качестве масштабных величин при переходе к безразмерным параметрам выбраны характеристики первой реакции, имеющей большой тепловой эффект. Считая, что предвзрывной разогрев системы мал, то есть  $\beta\Theta \ll 1$ , пренебрегая выгоранием горючего за предвоспламенительный период и используя стационарный подход Н.Н.Семенова, из (1) можно получить критические условия воспламенения, отвечающие касанию прямой теплоотвода и кривой скорости тепловыделений параллельных реакций:

$$\Theta_{\text{сб}}^* = \frac{1 + k_{21}(T_0) \cdot Q_{21} \exp[\Theta(E_{21}-1)]}{1 + E_{21} k_{21}(T_0) \cdot Q_{21} \exp[\Theta(E_{21}-1)]} \quad (3)$$

$$\alpha_{\text{сб}}^* = \frac{1}{[1 + E_{21} k_{21}(T_0) Q_{21} \exp[\Theta(E_{21}-1)]] \exp \Theta} \quad (4)$$

В предельном случае одной экзотермической реакции в системе приходим к условиям Н. Н. Семенова:  $\Theta_{\text{сб}}^* = 1$  и  $\alpha_{\text{сб}}^* = \frac{1}{\exp}$ .

Для анализа критических условий теплового взрыва в системе с параллельными реакциями удобно представить (3) и (4) в приближенной форме:

$$\Theta_{\text{эд}} = \frac{1+F}{1+E_{21}F} \quad (5)$$

$$\alpha_{\text{эд}} = \frac{1}{\exp \Theta_{\text{эд}}} \cdot \frac{1}{1+E_{21}F} \quad (6)$$

Где  $F$  — относительная скорость тепловыделений реакций:

$$F = k_{21}Q_{21} = k_{021}Q_{21} \exp \left[ \frac{E_1}{RT_0} (1-E_{21}) \right] \quad (7)$$

Как видно из (5), в зависимости от отношения энергий активации химических реакций  $E_{21}$ , предвзрывной разогрев системы  $\Theta_{\text{кр}}$  формально может быть как больше единицы, так и меньше. Однако из (7) следует, что  $E_{21}$  должно быть больше 1, в противном случае скорость теплоотвода ( $\alpha_{\text{кр}} < 1$ ) будет превышать скорость тепловыделений, переводя реагирующую смесь на стационарный режим. Таким образом, при тепловом взрыве с параллельными реакциями должно выполняться условие  $E_{21} > 1$ , и следовательно, предвзрывные разогревы  $\Theta_{\text{кр}} \leq 1$ . Условие равенства скоростей тепловыделения параллельных реакций  $F=1$  позволяет оценить предельные параметры  $\Theta_{\text{кр}}$  и  $\alpha_{\text{кр}}$  в зависимости от величины  $E_{21}$ :

$$\Theta_{\text{эд}} = \frac{2}{1+E_{21}} \quad (8)$$

$$\alpha_{\text{эд}} = \frac{1}{\exp \Theta_{\text{эд}}} \cdot \frac{1}{1+E_{21}} \quad (9)$$

Если вторая реакция не приводит к воспламенению и в области высоких температур среды ее скорость превышает скорость первой, то в уравнениях (1) и (2) можно пренебречь первыми слагаемыми и теплоотводом  $\frac{\Theta}{\alpha}$ . Тогда

адиабатический разогрев системы будет определяться как  $\Theta_{\text{эд}} = \frac{Q_{21}}{\gamma'} \eta$ , то есть в  $Q_{21}$  раз отличается от величины, определенной Н.Н.Семеновым для теплового взрыва системы с одной экзотермической реакцией. При параллельных реакциях расходование вещества с малым тепловыделением, даже при  $\eta \rightarrow 1$ , приводит к тому, что в области быстрого ее протекания явление теплового взрыва может вырождаться. Вырождение теплового взрыва, со-

гласно [5], происходит при  $\gamma=0,1\div 0,2$ . Из уравнения (2) параметр  $\gamma'$  определяется соотношением:

$$\gamma' = \gamma \left[ 1 + k_{21}(T_0) \exp \left( \frac{\Theta(E_{21} - 1)}{1 + \beta\Theta} \right) \right]$$

или принимая во внимание сделанные выше допущения:

$$\gamma' = \gamma \left[ 1 + \frac{F}{Q_{21}} \right]$$

Очевидно, что вырождение теплового взрыва в системе с параллельными реакциями будет наблюдаться при  $\gamma' > \gamma$ . Следовательно, наличие второй экзотермической реакции в системе приводит к расширению переходной области, разделяющей режимы стационарного протекания процесса с небольшим разогревом и теплового взрыва.

Таким образом, в отличие от теплового взрыва систем с одной экзотермической реакцией, при параллельном протекании реакций, тепловой взрыв может реализоваться при меньших разогревах системы ( $\Theta_{\text{вз}} < \Theta_{\text{вз}}^*$ ) и больших скоростях теплоотвода ( $\alpha_{\text{вз}} < \alpha_{\text{вз}}^*$ ). Полученные критические условия теплового взрыва (3) и (4) имеют смысл, когда существует пересечение кривых скоростей тепловыделений двух реакций, в противном случае, тепловой взрыв лимитируется тепловыделением одной реакции с меньшей энергией активации и большим тепловым эффектом.

Проведем сравнение полученных результатов с экспериментальными данными по газофазному воспламенению капель азидэтанол (АЭ). В [3] было показано, что при температурах среды 470÷560К воспламенение капли лимитируется скоростью тепловыделений газофазной реакции окисления

паров АЭ с константой скорости реакции  $k_1 = 7,1 \cdot 10^5 \exp(-14500/RT) \frac{1}{c}$  и тепловым эффектом  $Q_1 = 2200 \text{ кал/г}$ . В диапазоне температур среды 560-620К скорость тепловыделений определяется кинетикой параллельных реакций газофазного окисления и термического разложения молекул АЭ с констан-

той скорости  $k_2 = 8 \cdot 10^{13} \exp(-37800/RT) \frac{1}{c}$  и  $Q_2 = 500 \text{ кал/г}$ . При температурах среды выше 630К тепловое воспламенение вырождалось.

Используя выражения (3) и (4), а также экспериментально полученные значения кинетических констант реакций, были рассчитаны параметры воспламенения  $\Theta$ ,  $\alpha$ ,  $F$ ,  $\gamma'$ ,  $\gamma$  при различных температурах среды. Из зависимости  $\Theta_{\text{кр}} = f(\ln F)$  видно (рис.1), что по мере увеличения температуры среды растет

скорость тепловыделений второй реакции, и уменьшаются критические разогревы системы. При этом  $\Theta$  стремится к адиабатическому разогреву второй реакции, не приводящей к воспламенению,  $\Theta_{\text{ад}} = \frac{Q_{21}}{\gamma'} = 0,4$ .

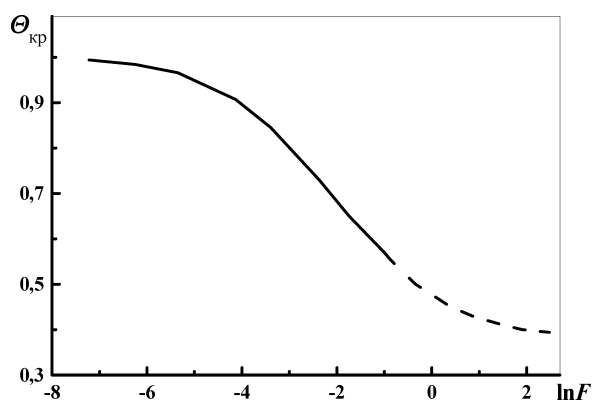


Рис. 1. Зависимость  $\Theta_{\text{кр}}$  от  $\ln F$  при различных температурах среды, (пунктир) — вырождение теплового взрыва.

Предельный разогрев системы, при котором еще может наблюдаться тепловой взрыв, можно оценить по формуле (8),  $\Theta_{\text{кр}} = 0,56$ . Полученное значение соответствует температуре среды 630K и хорошо согласуется с экспериментом.

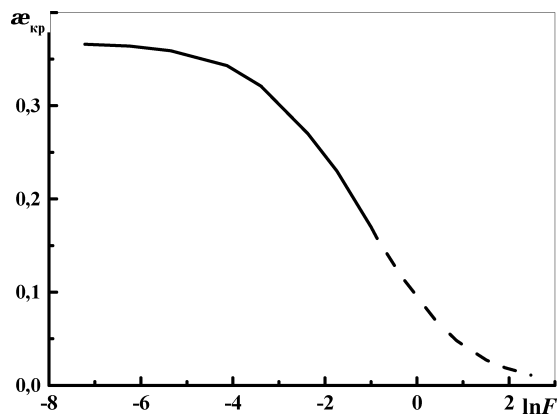


Рис. 2. Зависимость  $\text{æ}_{\text{кр}}$  от  $\ln F$  при различных температурах среды.

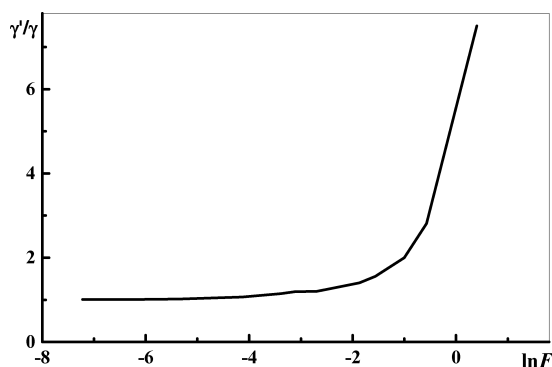


Рис. 3. Зависимость  $\gamma'/\gamma$  от  $\ln F$

При температурах среды 470К+560К значение  $\Theta_{кр}$  близко к 1,  $\alpha_{эб} \approx \frac{1}{exp}$  (рис.1 и 2) и воспламенение капли лимитируется реакцией газофазного окисления паров АЭ, что наблюдалось и экспериментах. С увеличением температуры среды выше 560К становится заметным вклад в тепловыделение второй экзотермической реакции и тепловой взрыв паров АЭ лимитируется уже скоростью тепловыделений параллельных реакций. В этом случае тепловой взрыв может реализоваться при больших скоростях теплоотвода, чем для одной реакции, и как следствие, уменьшается  $\alpha_{кр}$  (рис.2).

Дальнейшее повышение температуры среды в большей степени интенсифицирует скорость слабоэкзотермической реакции и в области температур выше 630К тепловое воспламенение должно вырождаться. Из рис.3 видно,

что  $\frac{\gamma'}{\gamma}$  резко возрастает при  $F=0,25$ , что соответствует температуре среды 630К, начиная с которой в экспериментах наблюдалось вырождение теплового воспламенения капли АЭ.

Таким образом, в отличие от теплового взрыва гомогенных систем с одной экзотермической реакцией, при параллельном протекании реакций тепловой взрыв происходит при меньших разогревах системы и в условиях больших скоростей теплоотвода. Полученные критические условия теплового взрыва хорошо описывают особенности газофазного воспламенения капли АЭ.

#### Литература

1. Абрамов В.Г., Ваганов Д.А., Самойленко Н.Г. Тепловой взрыв реагирующих систем с параллельными реакциями // Физика горения и взрыва. — 1977. — Т.13, №1. — С.48-55.

2. Абрамов В.Г., Ваганов Д.А., Самойленко Н.Г. О критическом условии теплового взрыва при параллельном протекании реакций с сильно различающимися тепловыми эффектами // Физика горения и взрыва. — 1978. — Т.14, №1. — С.124-128.
3. Golovko V.V., Kopeyka A.K., Nikitina E.A. The Ignition of Ethanol Azide Individual Drops // 32<sup>nd</sup> International Annual Conference of Fraunhofer Institut Chemische Technologie. — Karlsruhe, Germany, (July 3-July 6), 2001.
4. Григорьев Ю.М. Испарение и воспламенение n-гептана в окислительной среде // Сборник "Горение и взрыв". — М.: Наука, 1972. — С.221-226.
5. Барзыкин В.В., Мержанов А.Г. и др. К нестационарной теории теплового взрыва // ПМТФ. — 1964. — №3. — С.118-125.

*В. В. Головки, О. К. Копійка, Е. А. Нікітіна*

### **Особенности теплового взрыва с параллельными реакциями**

#### **АНОТАЦІЯ**

З рівнянь теплового і матеріального балансу для паралельних реакцій першого порядку, використовуючи стаціонарний підхід М.М.Семенова, були отримані критичні умови теплового вибуху та проведений їх аналіз. Показано, що на відміну від теплового вибуху систем з одною екзотермічною реакцією, при паралельному протіканні реакцій, тепловий вибух може реалізуватися при менших розігрівках системи і більших швидкостях тепловідводу. Отримані критичні умови теплового вибуху добре описують особливості газофазного спалахування капель азидоетанолу.

*Golovko V. V., Kopeyka A. K., Nikitina E. A.*

### **The features of thermal explosion with simultaneous reactions**

#### **SUMMARY**

The critical conditions of thermal explosion were obtained and their analysis is conducted from the equations thermal and material balance for simultaneous reactions of the first order, by using the Semenov's stationary approach. It was shown, that as against thermal explosion of systems with one exothermic reaction, at availability simultaneous reactions, the thermal explosion can be realized at smaller heating of system and higher rate of a heat loss. The obtained critical conditions of thermal explosion well described features of gas — phase ignition of ethanol azide drops.

***Е. Н. Кондратьев, В. В. Опятюк, К. И. Семенов***

*Институт горения и нетрадиционных технологий  
Одесского национального университета им. И. И. Мечникова*

### **Пульсационный режим испарения капли водо-топливной эмульсии**

В статье приведены результаты эксперимента по испарению капель водо-топливной эмульсии, обратного типа на основе масел. Представлена модель, описывающая предвзрывную динамику разогрева капли ВТЭ при вариации параметров системы, таких, как температура газа, начальный размер капель, размер глобул, концентрация воды. Результаты численного моделирования сопоставляются с аналитическими оценками времени пульсации и экспериментальными данными.

Постоянный дефицит энергоносителей и ухудшающаяся экологическая обстановка выдвигают в число приоритетных технологии, позволяющие без потери качества работы энергоагрегата экономить топливо и уменьшать вредные выбросы.

В настоящее время проблемы сбережения энергоносителей и защиты окружающей среды стали чрезвычайно актуальными. Это выдвинуло на первый план задачи производства и применения альтернативных моторных топлив. Качество альтернативных топлив имеет решающее значение в оценке перспектив их практического применения, поскольку они должны обладать такими же свойствами, как и традиционные топлива и соответствовать действующим стандартам.

Одним из таких топлив является водо-топливная эмульсия (ВТЭ). Известно [1-3], что при сжигании ВТЭ обратного типа глобулы воды, испаряясь, образуют пузырьки пара, которые взрываются внутри оболочки из топлива. Горючее распыляется на мелкие частички, и хорошо перемешиваются с воздухом, что способствует качественному смесеобразованию в камере сгорания двигателей. В жидком состоянии, вода являясь естественным тормозом всех тепловых процессов, приводит к нестабильной работе энергетических установок. В то же время в парообразном виде вода регулирует течение процессов горения, способствует полному выгоранию горючего и, как следствие, улучшает экологические характеристики сжигания тяжелых углеводородов. Поэтому, водоземulsionное топливо целесообразно предварительно подготавливать к горению, путем перевода как можно большей части воды из жидкого состояния в парообразное.

Одним из подходов к решению данного вопроса является организация

процесса предварительного выпаривания воды из состава ВТЭ за счет части тепла, которое выделяется при сжигании ВТЭ в устройствах горения.

В данной работе исследуется поведение капель ВТЭ обратного типа на основе масел при таких температурах среды, когда топливная компонента еще не может воспламениться, а вода закипает. Подобные условия реализуются в энергосиловых установках и котлоагрегатах в процессе подготовки топливной смеси к воспламенению.

Опыты проводились на установке, блок схема которой представлена на рис.1.

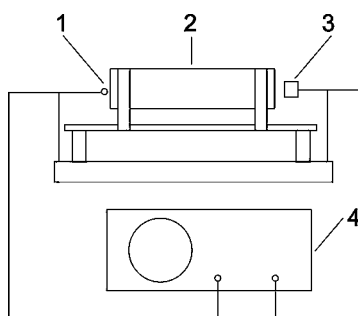


Рис. 1. Блок -схема экспериментальной установки

На подвес, изготовленный из хромель-алюмелевой термопары 1 (диаметр спая 200 мкм) помещалась капля ВТЭ, диаметр которой варьировались в пределах от 1500 до 3000 мкм. При помощи горизонтальной передвижной печи 2 подвес с каплей располагался внутри ее на расстоянии пяти диаметров печи от ее края. Температура капли исследуемой ВТЭ и серии вспышек регистрировалась термопарой 1 и фотодиодом 3. Сигналы с термопары и фотодиода подавались на запоминающий двухканальный осциллограф 4 с последующей фотографической фиксацией осциллограмм.

В ходе проведения опытов варьировались температура разогрева печи от 250 до 500 градусов Цельсия и процентное содержание воды в эмульсии от 10 до 40 процентов. Капля ВТЭ, расположенная на подвесе, нагревалась за счет конвективного теплообмена с воздухом, находящегося внутри печи. Когда температура дисперсионной среды (масла) превышала температуру кипения воды, визуально наблюдалось периодически повторяющееся увеличение капли в размерах, сопровождающимся выбросами масляно-паровой оболочки.

На рисунке 2 изображена типичная осциллограмма ЭДС термопары с каплей ВТЭ (кривая 1), помещенной в печь и ЭДС фотодиода, регистрирующего вспышки диспергированного масла при сбросе оболочек капли (кривая 2). На участке до первой “ступеньки” кривой 1 происходит инертный



прогрев капли ВТЭ до температуры кипения воды от окружающей среды (воздуха). От 1 до 7 секунды прослеживается пульсационная динамика разогрева капли, без горения. Можно заметить ступенчатый характер изменения температуры капли ВТЭ, с периодичностью 0,7-0,8 сек и разностью температур в 30°С. В момент скачка температуры в окрестности горячей стенки печи фотодиодом зафиксированы (кривая 2) вспышки сбрасываемой масляно-паровой оболочки. Видимое резкое увеличение температуры в районе 9 секунды обусловлено возгоранием масла, что представляет отдельный вопрос исследований.

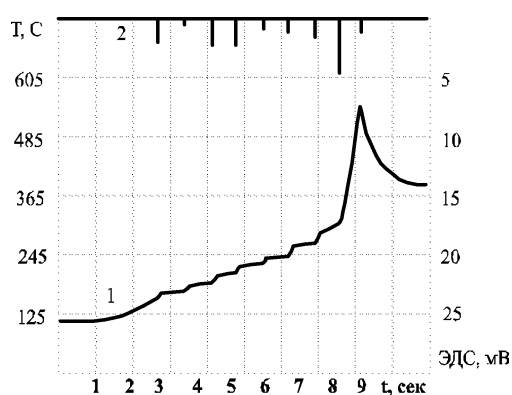


Рис. 2. Типичные осциллограммы полученные в ходе эксперимента

### Физическая интерпретация динамики разогрева и испарения капли ВТЭ

В обычном состоянии ВТЭ представляет собой двухфазную дисперсную систему. Однако, при достаточно интенсивном разогреве, когда тепла, поступающего из окружающей среды достаточно для вскипания воды, появляется третий компонент — пар воды. При этом, вследствие лапласовского давления более крупные включения воды имеют меньшую температуру кипения, чем мелкие глобулы. Поэтому на первой “ступеньке” закипают именно они. Растущие со временем оболочки пара увеличивают объем капли ВТЭ. Сама дисперсионная среда, в данном случае — масло, из-за высокой температуры возгонки (порядка 700 °С) практически не меняет свой объем. Поэтому рост паровых оболочек приводит к структурной перестройке капли. В ее результате объемная доля пара непрерывно увеличивается, а доля масла падает. Ясно, что такой процесс может продолжаться лишь до определенного предела. Неизбежно наступит такой момент, когда будет достигнуто состояние максимального наполнения паровыми оболочками объема капли. Дальнейшее увеличение объема капли без нарушения ее сплошности стано-

вится невозможным и капля разрушается. Сам момент разрушения сопровождается быстрым выбросом в окружающую среду паров воды, части масла и некоторой доли не успевших испариться глобул воды. При не слишком высоких темпах нагрева оставшийся материал капли под действием сил поверхностного натяжения восстанавливает сферическую форму и процесс повторяется. Однако при этом уже вскипают глобулы меньшего размера. Это приводит к увеличению температуры кипения, и, следовательно, к более высокой температуре дисперсионной среды. Подобная динамика разогрева капли подтверждается ступенчатым ростом температуры капли (кривая 1). Процесс такого пульсационного испарения капли ВТЭ идет либо до полного разрушения капли, либо до того момента, пока масло не разогреется до температуры воспламенения, приводящего к горению. Таким образом, наблюдаются колебания поверхности капли, имеющие явно выраженный релаксационный характер. Период этих колебаний оказывается достаточно большим. В отдельных опытах он достигал значения до одной секунды.

#### Период пульсации капли ВТЭ при испарении

Рассмотрим каплю водо-топливной эмульсии обратного типа с моодисперсным законом распределения частиц воды. После достижения температуры кипения вокруг каждой частицы воды начинает образовываться паровая оболочка. Увеличивающийся со временем объем пара  $V_n$  вызывает увеличение объема глобулы  $V$  и соответственно всего объема капли  $V_k$ .

$$V_k = V_M + NV \quad (1)$$

здесь  $N$  — число частиц воды в капле,  $V_M$  — объем дисперсионной среды (масла). Объем глобулы в этом выражении есть:

$$V = V_g + V_n \quad (2)$$

где  $V_g$  — объем частицы воды.

Объем масла, ввиду его высокой условной температуры кипения, будем считать постоянной величиной. А в пренебрежении эффектом коагуляции, также постоянным можно считать число глобул.

Кроме того, в расчетах будем учитывать закон сохранения массы вещества в глобуле:

$$m_{во} = m_n + m_g \quad (3)$$

где  $m_{во}$  — начальная масса воды в глобуле,  $m_n$  и  $m_g$  — текущие массы пара и воды соответственно.

Произведем аналитическую оценку времени периода пульсации. Периодом пульсации будем считать то время, за которое происходит испарение воды внутри объема капли эмульсии до момента диспергирования паров

воды и части масла в окружающую атмосферу. Этот момент определяется условием нарушения сплошности среды, которое удобно описать достижением объемного концентрационного фактора

$$C = NV / V_{\kappa} \quad (4)$$

значения, соответствующему состоянию плотной упаковки глобул  $C^*$ . В частности, для кубической упаковки  $C^*=0,53$ .

Для простоты будем полагать, что кинетика испарения частиц воды подчиняется закону Срезневского:

$$R_{\text{во}}^2 = R_{\text{во}}^2 - kt \quad (5)$$

здесь,  $R_{\text{в}}$ ,  $R_{\text{во}}$  — текущий и начальный радиусы частицы воды, соответственно,  $k$  — так называемая константа испарения при кипении:

$$k = \frac{2\lambda_n}{L_{\text{в}}\rho_{\text{в}}} (T_n - T_{\text{кин}}) \quad (6)$$

где  $L_{\text{в}}$ ,  $c_{\text{в}}$  — теплота парообразования и плотность воды, а  $T_n$ ,  $\lambda_n$  — температура пара и его теплопроводность,  $T_{\text{кин}}$  — температура кипения воды, для данного размера частиц воды.

В этих предположениях, решая систему уравнений (1-5), не трудно получить выражение для периода пульсации:

$$\tau = \frac{R_{\text{во}}^2}{k} \left[ 1 - \left( \frac{\rho_{\text{в}}/\rho_n - (1-C_o)C^*/(1-C^*)C_o}{\rho_{\text{в}}/\rho_n - 1} \right)^{\frac{2}{3}} \right] \quad (7)$$

где  $c_n$  — плотность пара.

Видно, что для высококонцентрированных эмульсий, когда начальная концентрация воды  $C_o \rightarrow C^*$  пульсационный режим испарения вырождается. С другой стороны область существования пульсационного режима оказывается ограниченной по концентрации снизу. Очевидно, в этом случае период пульсации совпадает со временем полного испарения воды в глобуле.

Более простой вид для периода пульсации можно получить учитывая в (7) малость параметра  $\rho_n/\rho_{\text{в}}$

$$\tau = \frac{R_{\text{го}}^2}{k} \frac{\rho_n}{\rho_{\text{в}}} \frac{(1-C_o)C^*}{(1-C^*)C_o} \quad (8)$$

В этом выражении видна явная ниспадающая зависимость периода пульсации от начальной концентрации. Квадратичная зависимость периода пульсации от размера частицы воды на самом деле нивелируется зависимостью константы испарения от температуры кипения, которая, вследствие проявления лапласова давления, растет с уменьшением размера частицы воды.

Таким образом, полученное аналитическое выражение времени пульсации указывает на существование пределов пульсационного испарения капли ВТЭ и предсказывает довольно сильную зависимость этой величины от начального содержания воды в составе ВТЭ.

К сожалению, неопределенность величины перепада температур  $(T_n - T_{\text{кип}})$ , входящее в выражение (6) для константы испарения, затрудняет проведение числовой оценки времени пульсации. Поэтому, с целью получения числового значения периода пульсации, предложена более детальная модель выпаривания воды из состава эмульсии.

#### Модель испарения капли ВТЭ

Как показывают результаты эксперимента и проведенная аналитическая оценка, картина испарения перед воспламенением капли ВТЭ представляется достаточно сложной. Это объясняется влиянием на динамику испарения и самого периода пульсаций различных факторов: содержанием воды в составе эмульсии, дисперсностью глобул, размером капель.

Так как, ввиду не тривиальности, наибольший интерес представляет стадия пульсирующего поведения капли, то в дальнейшем ограничимся рассмотрением именно этой стадии испарения капли ВТЭ. При моделировании учтем, что процесс накопления пара в объеме капли достаточно медленный, поэтому можно рассматривать задачу в квазистационарной постановке. При этом постулируем следующие положения модели:

- капля представляет собой трехкомпонентную систему, состоящую из масла как дисперсионной среды и частиц воды, окруженных паровой оболочкой;
- частицы воды в капле эмульсии подчиняется монодисперсному закону распределения;
- испарение масла не происходит, ввиду того, что температура возгонки масла (700 °С) намного больше температур кипения глобул воды;
- уравнение состояния паров воды подчиняется закону идеального газа  $p = nkT$ , так как система находится далеко от критических условий;
- число подобия Нуссельта принимается равным двум из-за сферичнос-

ти формы капли и небольших скоростей движений глобул воды внутри капли ВТЭ;

– коэффициенты теплопроводности компонентов полагается постоянными, поскольку диапазон перепадов температур для рассматриваемой стадии в эмульсии невелик.

Считая, что капля с момента вскипания представляет трехфазную систему, составим уравнения теплового баланса для каждой фазы.

Уравнения разогрева масла с учетом теплообмена капли с окружающей средой и теплоотдачи глобулам воды в капле имеет вид:

$$c_m \rho_m V_m \frac{dT_m}{dt} = 2\pi\lambda_\infty (T_\infty - T_m) R_k - N Q_{mz} \quad (9)$$

где,  $c_m, \rho_m, T_m$  — теплоемкость, плотность, температура масла, соответственно;  $\lambda_\infty, T_\infty$  — теплопроводность и температура окружающей среды, соответственно;  $R_k$  — радиус капли ВТЭ.

$Q_{mz}$  — поток тепла на границе масло-глобула.

Кинетика испарения глобулы воды определяется уравнением:

$$L \frac{dm_g}{dt} = -Q_{ng} \quad (10)$$

где,  $m_g = \rho_g \frac{4}{3} \pi R_g^3$ ,  $R_g$  — текущий радиус глобулы воды,  $Q_{ng}$  — поток тепла на границе пар-вода.

Потки тепла  $Q_{mz}$  и  $Q_{ng}$ , фигурирующие в уравнениях (9) и (10) в случае квазистационарного течения процесса равны между собой. Их выражения могут быть найдены из решения уравнения Лапласа  $\Delta T = 0$  для распределения температуры внутри паровой оболочки:

$$T(r) = A - \frac{B}{r}, \text{ где } A = T_m - \frac{T_{кип} - T_m}{\frac{R_{об}}{R_g} - 1}, \quad B = \frac{T_m - T_{кип}}{\frac{1}{R_g} - \frac{1}{R_{об}}} \quad (11)$$

где,  $R_{об}$  — радиус паровой оболочки вокруг глобулы воды,  $r$  — радиальная координата для оболочки,  $T_{кип}$  — температура кипения воды для определенного размера глобулы воды, которая находится по формуле Исакова [5]

Тогда, применяя закон Фурье  $\vec{q} = -\lambda \vec{\nabla} T$ , находим

$$Q_{ng} = Q_{mz} = 4\pi\lambda_n \frac{T_m - T_{кип}}{R_{об} - R_g} R_{об} R_g \quad (12)$$

здесь  $\lambda_n$  — теплопроводность пара. Границы оболочки  $R_{об}$  и  $R_g$  подвижны и

связаны между собой интегральным соотношением:

$$m_n = m_{го} - m_г = \int_{R_г}^{R_{гг}} \rho_n dV_n$$

Замыкает систему уравнений (9) — (12) выражение для объема капли:

$$V_{\kappa} = V_{\mathcal{M}} + NV \quad (13)$$

с помощью которого рассчитывается текущий радиус капли  $R_{\kappa}$ .

Система интегрировалась по схеме Рунге-Кутты с коррекцией шага интегрирования по заданной точности. Размер оболочки пара находился из решения трансцендентного уравнения, выражающее баланс массы воды между частицей воды и паром в каждой глобуле. Расчеты производились до момента времени, которому соответствовало равенство  $C_0 = C^*$ . Полученные в результате параметрических расчетов зависимости периода пульсаций от начальной концентрации воды и размеров капель, а также начальных размеров частиц воды представлены на рис.(3)-(5)

### Результаты расчетов и их обсуждение

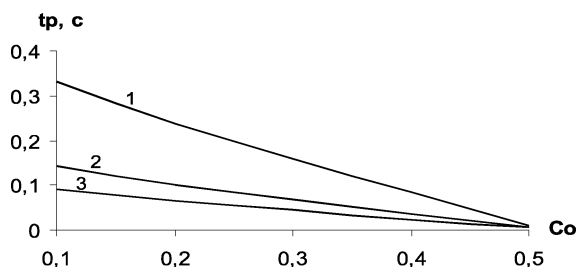


Рис. 3. Зависимость времени периода пульсации от начальной концентрации  
 $T_1=700 \text{ К}; T_2=1000 \text{ К}; T_3=1300 \text{ К}$

Основной целью проведения расчетов являлось изучение динамики изменения температур капли, воды и пара, а также прослеживание кинетики изменения размеров капли, глобул воды в течении одного периода пульсаций. Путем численного моделирования релаксационных колебаний поверхности капли ВТЭ были рассмотрены зависимости величины времени периода пульсации от параметров системы, а именно, от концентрации воды в эмульсии (рис.3), температуры среды (рис.4), начального размера капли (рис.5), и размеров глобул воды (рис.6).

Из представленных зависимостей видно, что:

– с уменьшением концентрации время периода пульсации возрастает. Потому что, для малых концентраций глобул воды, среднее расстояние между

ними больше и увеличивающимся паровым оболочкам требуется больше времени на рост до момента соприкосновения их друг с другом;

– с увеличением температуры среды время периода пульсации уменьшается, так как, при более высоких температурах увеличивается поток тепла подводимого к глобулам. Процесс кипения идет интенсивнее и, соответственно, увеличивается скорость роста паровых оболочек. Эти растущие оболочки быстрее достигают состояния плотной упаковки;

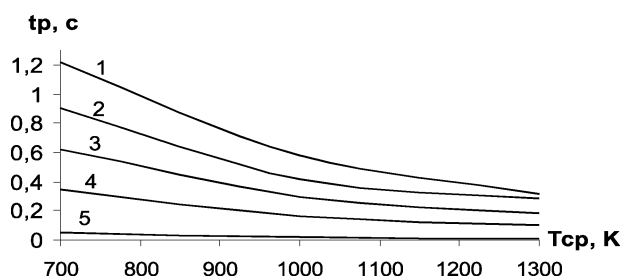


Рис. 4. Зависимость времени периода пульсации от температуры среды  
 $C_1=0.1; C_2=0.2; C_3=0.3; C_4=0.4; C_5=0.5$

– с увеличением размера капли, время периода пульсации увеличивается: чем больше капля, тем больше требуется тепла на ее разогрев. Поэтому при фиксированных температурах внешней среды требуется больше времени для нарушения сплошности капли;

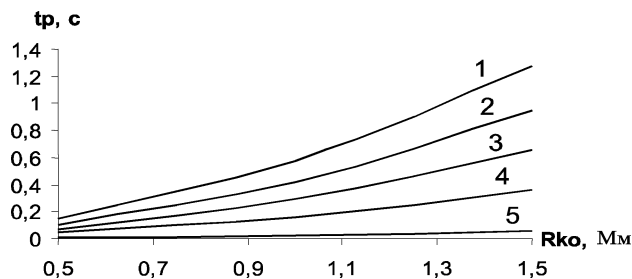


Рис. 5. Зависимость времени периода пульсации от начального размера капли  
 $C_1=0.1; C_2=0.2; C_3=0.3; C_4=0.4; C_5=0.5$

– с увеличением радиуса глобулы воды, при малых температурах среды, время периода пульсации уменьшается незначительно, так как, требуется больше тепла на прогрев и кипение самих глобул. При больших размерах глобулы воды и значительных величинах температуры среды характерно

малое возрастание времени периода пульсации, так как быстрее достигается состояние плотной упаковки.

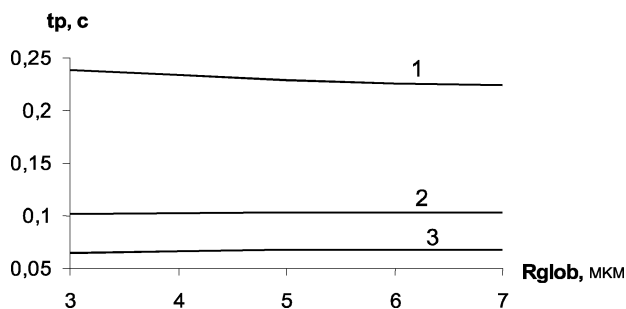


Рис. 6. Зависимость времени периода пульсации от размеров глобул

### Выводы

Таким образом, проведенные экспериментальные и теоретические исследования динамики пульсационного режима испарения капли позволяют заключить, что определяющим механизмом является периодически повторяющийся процесс сравнительно медленного накопления пара и его последующего быстрого выброса после достижения им предельно возможного количества в объеме капли ВТЭ. Восстановление формы капли после диспергирования, вследствие проявления сил поверхностного натяжения обуславливают периодичность процесса. Проведенная аналитическая оценка характеристик периода пульсаций, результаты численного моделирования подтверждают данные эксперимента и объясняют основные зависимости периода пульсаций от параметров эмульсии. Выявленная в целом достаточно протяженная длительность пульсационной стадии испарения капли ВТЭ подтверждает тезис о тормозящем действии воды в жидком виде и требует учета при поиске технологических решений в задачах энергетического преобразования ВТЭ.

### Литература

1. Иванов В.М. Топливные эмульсии. — М.: Изд-во АН СССР, 1962. — 216 с.
2. Яковлев А.В., Дунаева В.А., Гладких В.С. Воспламенение обратных ВТЭ // Химия и технология топлив и масел. — 1984. — № 12. — С. 34.
3. Лебедев О.Н. Некоторые особенности горения капель водо-топливных эмульсий в дизелях // ФГВ. — 1978. — Т. 14, № 2. — С. 45.
4. Исаков А.Я. Некоторые особенности микровзрыва капли водо-топливной эмульсии // ФГВ. — 1985. — Т. 21, № 1. — С. 126.
5. Фролов Ю.Г. Курс коллоидной химии, поверхностные явления и дисперсные системы. — М., 1989. — 464 с.



*Є. Н. Кондратьев, В. В. Опятюк, К. І. Семенов*  
**Пульсаційний режим випаровування краплі  
водо-пальної емульсії**

**АНОТАЦІЯ**

У статті представлені результати експерименту що до випаровування крапель водо-пальної емульсії, зворотного типу на основі олій. Пропонується модель розігріву краплі ВПЕ. На базі цієї моделі отриманні результати чисельного моделювання, що просліджують попередвзривну динаміку розігріву краплі ВПЕ при варіації параметрів системи, таких, як температура газу, початковий розмір краплі, розмір глобул, концентрація води.

*Kondratev E. N., Opyatyuk V. V., Semenov K. I.*  
**Dynamics of heating of a drop WFE before implosion**

**SUMMARY**

The results of experimental research of water-fuel (oil) inverse type emulsion drops are presented. The model of WFE drop heating is proposed. Results of numerical modelling on the basis of this model are analysed. The dynamics of WFE drop heating and pre-explosion processes as a function of system parameters, such as temperature of gas, initial size of drops, size of globules, concentration of water is considered.

**В. Г. Скогарев**

*Институт горения и нетрадиционных технологий  
Одесского национального университета им. И. И. Мечникова*

## **Визуализация пространственной структуры факела с конденсированной дисперсной фазой**

Сочетанием методов обычного и теневого фотографирования осуществлена визуализация существенно неоднородной пространственной структуры факела жидкого углеводородного топлива. Определены размеры зон сажеобразования и горения, а также плотность излучения отдельных участков поверхности факела в диапазоне длин волн (2-20) мкм. Показано, что экспериментальная методика может быть легко адаптирована к широкому диапазону горящих дисперсных систем, обладающих большой яркостью.

### **Введение**

В пространственной структуре ламинарного диффузионного факела выделяют наружный светящийся слой — высокотемпературную зону химической реакции, а также зону сажеобразования, расположенную внутри пламени. В зависимости от состава топлива, идентификация этих зон и оценка их пространственной протяженности осуществляются различными экспериментальными методами, а также их сочетанием. Для определения структуры волны горения ламинарного пламени достаточно методов обычной, ширен-, и теневой фотографии, в то же время для изучения динамики сажеобразования требуются дополнительные методы. Так, при исследовании морфологических характеристик сажи в ламинарном диффузионном пламени “этилен/воздух” применялся термофоретический метод изъятия проб сажи, дополненный данными, полученными с помощью оптической диагностики подобных пламен [1]. В результате были определены траектории отдельных частиц сажи, а также местонахождение их максимальной объемной концентрации  $f_{v, \max}$ , соответствующее радиусу внутренней зоны  $r = r_c$ . Подобное пространственное распределение частиц сажи наблюдается в газовых пламенах однокомпонентных углеводородов, горящих при атмосферном давлении.

Пламена жидких многокомпонентных углеводородов, горящих в неподвижном воздухе при атмосферном давлении, содержат много сажи, ее распределение внутри факела нелокализовано, в результате чего граница между зонами сажеобразования и горения становится размытой. В этих условиях применение термофоретического метода сильно затруднено, причем до-

полнительную трудность, помимо высокой плотности сажи, представляет отсутствие информации о размере зоны сажеобразования, из которой извлекаются образцы сажи.

В качестве первоначального шага, с целью прояснения картины сажеобразования в пламени жидкого углеводорода, необходимо идентифицировать зоны горения и сажеобразования, оценить их пространственный масштаб, а также проследить их изменение по высоте факела. С этой целью применена экспериментальная методика, позволяющая визуализировать существенно неоднородную пространственную структуру горящего объекта и установить соответствие между его пространственными и излучательными характеристиками. При этом определены характерные размеры зон сажеобразования  $l_c$  и горения  $l_r$ , а также плотность излучения  $R$  участков поверхности для конкретных значений высоты факела.

Суть предложенной методики заключается в сочетании обычного и теневого способа фотографирования, ее возможности иллюстрируют результаты исследования диффузионного факела жидкого углеводородного топлива.

#### **Методика и результаты**

Водное эмульгирование жидкого углеводородного топлива с последующим полным испарением полученной эмульсии использовалось на этапе его подготовки к сжиганию в газообразном виде [2]. Такое исходное разбавление топлива водой и преобразование его в газовую фазу перед подачей в зону горения дополнительно способствовало снижению плотности агрегатов сажи в исследуемом факеле.

В настоящей работе исследовался диффузионный факел горячей водотопливной эмульсии, образованный газовой струей, истекающей из сопла диаметром 3 мм в неподвижный воздух. В качестве основы использовалось не содержащее посторонних примесей моторное масло SAE-15W40 "SHELL". Описание лабораторной установки и способа сжигания топлива приведены в работе [2].

Ранее было установлено [2], что средняя высота стационарного факела  $H$  слабо меняется с изменением объемной концентрации воды  $C_v$  и объемного расхода топлива  $V_s$ . В связи с этим в данных условиях эксперимента, при фиксированных  $C_v=(20\div 30)\%$  и  $V_s = 3,7\text{мм}^3/\text{с}$ , высота  $H$  считалась постоянной и составляла  $\sim 55$  мм.

Суть примененной методики заключается в сочетании обычного и теневого способа фотографирования в параллельном пучке света (рис.1), диаметр которого с помощью линзы 2 устанавливался равным высоте факела.

Между сторонним источником непрерывного спектра излучения с регулируемой яркостью 1 (банд-лампа) и факелом 4 устанавливалась непрозрачная пластина 3 с рядом параллельных щелей определенной ширины. Ширина щелей, их количество, а также шаг следования могут выбираться произ-

вольно, в зависимости от целей эксперимента. В данной работе ширина щелей и расстояние между ними были постоянными и равнялись  $\sim 5,5$  мм. С помощью регулировки тока банд-лампы ее яркость устанавливалась равной яркости светящейся зоны горения.

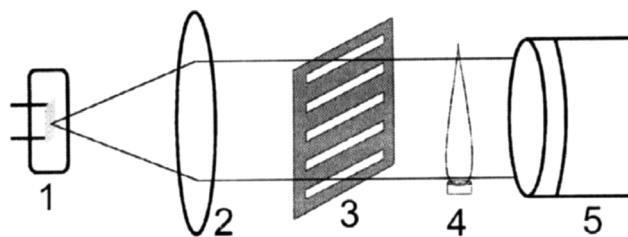


Рис. 1. Схема оптической установки:  
1 — банд-лампа, 2 — коллимирующая линза,  
3 — экран с параллельными щелями, 4 — пламя, 5 — фотокамера

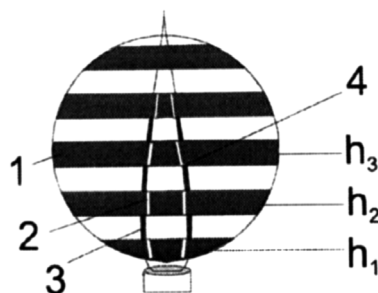


Рис. 2. Схематическое изображение факела на фоне пластины (негатив):  
1 — тенья фотография щели (на просвет), 2 — зона сажеобразования,  
3 — зона горения, 4 — точка отсчета,  $h_1 = 7$ мм,  $h_2 = 15$ мм,  $h_3 = 23$ мм.

Таким образом, при фотографировании получалось изображение факела на фоне пластины (рис.2), представляющее собой чередование светлых 3 и темных 2 областей вдоль внешней границы факела. При этом разграничительная линия между этими областями однозначно идентифицировалась с границей между зонами горения и сажеобразования. Участки изображения на фоне щелей 1 представляют собой тенья фотографии на просвет, на которых видна зона сажеобразования 2, заметно ослабляющая излучение. Зона горения на теневой фотографии не видна, поскольку, как было отмечено выше, ее яркость совпадает с яркостью источника света. Остальные участки изображения являются обычной фотографией светящегося факела, по-

скольких сторонний источник экранирован пластиной. На них явно наблюдается светящаяся зона горения 3, что характерно для обычной фотографии горящего объекта. [3]. Изображения параллельных щелей 1 играют роль визуальных отметок — пространственных срезов по высоте факела, пересечение которых с разграничительной линией между темными и светлыми областями (границей между зонами) позволяет однозначно устанавливать точку отсчета при измерении протяженности зон.

Плотность излучения поверхности факела в диапазоне длин волн 2-20 мкм определялась лабораторным прибором на основе приемника излучения МГ-30. Регистрируемое излучение выделялось отверстием в экране, установленном перед факелом 4 (на рис.1 не обозначен). При этом диаметр отверстия экрана (5,5 мм) соответствовал ширине щели пластины 3, что позволяло установить соответствие измеряемых пространственных и излучательных характеристик факела данной высоте  $h$ .

Измерения проводились на расстояниях 7, 15 и 23 мм от сопла для двух значений  $C_v=(20\pm 30)\%$  при скорости подачи топлива  $V_s=3,7$  мм<sup>3</sup>/с. Результаты представлены в таблице

Высота факела, Н, мм	C <sub>v</sub> , объемн.%					
	20%			30%		
	l <sub>г</sub> , мм	l <sub>с</sub> , мм	R, Вт/см <sup>2</sup>	l <sub>г</sub> , мм	l <sub>с</sub> , мм	Вт/см <sup>2</sup>
7	0,15±0,01	0,16±0,02	2,29±0,07	0,16±0,01	0,15±0,01	0,71±0,06
15	0,15±0,02	0,16±0,01	1,25±0,14	0,13±0,02	0,14±0,02	1,02±0,13
23	0,15±0,02	0,15±0,02	1,36±0,09	0,12±0,01	0,11±0,03	1,17±0,09

Как видно из приведенных данных, предложенный метод позволяет исследовать пространственную структуру фронта факела с конденсированной дисперсной фазой. Он может быть легко адаптирован и к более ярким горящим дисперсным системам, например, к газовзвешам частиц металлов. Однако в этом случае необходимо использовать вместо источников сплошного спектра газоразрядные лампы либо лазеры в сочетании с интерференционными и стеклянными фильтрами.

#### Литература

1. Megaridis C.M. and Dobbins R.A. Soot aerosol dynamics in a laminar ethylene diffusion flame. Twenty-Second Symposium (International) on Combustion/ The Combustion Institute, 1988. — P. 353-362.
2. Скогарев В.Г., Флорко А.В. Факельное стационарное горение жидкого многокомпонентного углеводородного топлива // Физика аэродисперсных систем. — 2001. — Вып. 38. — С. 82-89.
3. Сергиенко И.А., Флорко А.В., Шевчук В.Г. Особенности излучательных и поглощательных характеристик частиц сажи при температурах горения // Физика горения и взрыва. — 2000. — Т. 36, №2. — С. 33-39.

*В. Г. Скогарєв*

**Візуалізація просторової структури факелу  
з конденсованою дисперсною фазою**

**АНОТАЦІЯ**

За допомогою поєднання методів звичайного та тіньового фотографування виконана візуалізація суттєво неоднорідної просторової структури факелу рідкого вуглеводневого палива. Визначені розміри зон сажоутворення та горіння, а також сила випромінювання окремих ділянок поверхні факелу у діапазоні довжин хвиль (2-20)  $\mu\text{m}$ . Показано, що експериментальну методику можна легко пристосувати до широкого діапазону дисперсних систем що горять зі значним випромінюванням.

*Skogarev V. G.*

**Spatial visualization of soot aerosol laden flame**

**SUMMARY**

The visualization of spatial structure within examined flames was obtained by photography technique capable of direct and shadow imaging of the flame. Characteristic dimensions of the reaction zone and soot region were determined. Flame surface radiation intensity in the wavelengths range (2–20)  $\mu\text{m}$  was measured. The experimental technique used may be adapted to wide range dispersed systems burning with significant radiation.

**В. В. Курятников<sup>1</sup>, Л. Г. Милова<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>*Одесский государственный экологический университет,*

<sup>2</sup>*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

### **Сыпучесть углеродного порошкообразного горючего в системах его подачи в камеру сгорания**

Рассмотрены способы повышения эффективности систем подачи углеродного порошкообразного горючего в камеру сгорания генератора плазмы. С одним из них связан способ приготовления углеродного горючего с легкоионизирующейся присадкой, обладающей малой гигроскопичностью и слабой растворимостью в воде. Сыпучесть такого порошкообразного горючего в системах его подачи мало изменяется со временем. Другой способ связан с использованием систем подачи порошка из дозатора под действием механических вибраций. Установлено, что зависимости расхода порошкообразного горючего от частоты вибраций при подаче в камеру сгорания имеют экстремальный характер.

Стабильная и устойчивая работа различных камер сгорания на порошкообразном твердом топливе во многом зависит от организации высококачественной подачи топлива и его распыления в реакционном объеме. Особенности этих процессов связаны с возможностью достижения оптимальных характеристик системы подачи горючего, среди которых — постоянство насыпной плотности подаваемого горючего и стабильность коэффициента скольжения фаз, хорошая текучесть порошкообразного горючего через расходные шайбы в дозаторах, трубопроводах, пуско-отсечной арматуре и форсунках.

При различных способах подачи порошка в камеру сгорания:

- с использованием шнековых и барабанных питателей;
  - давлением газа через гибкую непроницаемую мембрану;
  - сплошным подающим или газопроницаемым поршнем;
  - непосредственно сжатым газом из дозирующей емкости,
- возникают сложности, связанные со свойствами сыпучих материалов. Это свойства, которые приводят к следующим недостаткам в работе систем подачи:
- неравномерности распределения давления в слое порошка;
  - склонности к образованию в системах подачи сводов распора (эффект “арки”) и пробок за счет внутреннего трения и сцепления частиц между собой, а также стенками дозатора и тракта подачи;
  - сильной зависимости текучести порошков от степени их влажности.
- Большинство из перечисленных недостатков устраняются при использо-

вании сжатого газа при подаче порошка в виде квазижидкости, которая может двигаться по трубопроводам и другим элементам системы подачи, а также распыляться форсунками подобно любой обычной жидкости. Так например, при исследованиях процессов высокотемпературного горения угля в камере сгорания импульсных МГД-генераторов [1] хорошо зарекомендовала себя система подачи порошка путем вытеснения его газом под давлением. В этих работах использовались порошки угля с дисперсностью частиц до 100 мкм, в том числе и уголь с добавками алюминиевого порошка АСД-1.

В случае недостаточно сухих порошков при организации подачи и сжигания их в камере сгорания наблюдаются явления брикетирования угля, образования пустот и пробок в элементах системы подачи, что приводит к нарушению равномерности подачи или даже к заклиниванию подающего тракта.

При использовании углеродного горючего в смеси с легкоионизирующейся присадкой поташа (1 — 10 %) влажность усугубляет агломерацию частиц. Образованные агломераты ухудшают текучесть порошков в элементах подачи и препятствуют равномерному распределению горючего по сечению камеры сгорания вследствие своей инерционности. Время их горения больше времени пребывания их в камере сгорания и расчетной приведенной длины последней становится недостаточно для полного сгорания. При этом уменьшается полнота сгорания и ухудшаются электрофизические характеристики плазмы продуктов сгорания.

Показано, что устранение этих недостатков возможно путем изменения технологии приготовления горючего и подбора присадок, обладающих рядом с требуемыми свойствами новыми качествами — малыми скоростью влагопоглощения и гигроскопичностью.

Установлено, что скорость влагопоглощения  $K$  и агломерация такого горючего резко замедляется (исследовался уголь марки ОУ-А дисперсностью до 50 мкм и легкоионизирующиеся присадки в виде соединений щелочного металла) по сравнению с соответствующими характеристиками используемого углеродного горючего с присадкой поташа [2].

Для определения скорости влагопоглощения присадок их предварительно высушивали в сушильном шкафу при температуре  $T = 393 — 420$  К в течение 1 — 2 часов. После их сушки определяли начальную массу образцов  $m_0$ . Затем образцы присадок выдерживали в открытых чашках Петри в течение времени  $t_1 = 3 \div 5$  часов при комнатной температуре и влажности до 60 — 70 %. После этого испытываемые образцы повторно взвешивали, определяли их массу  $m_1$  и по ее изменению массы  $\Delta m_1 = m_1 - m_0$  находили скорость влагопоглощения  $K_1$ :

$$K_1 = \frac{\Delta m_1 \cdot 100}{m_0 \cdot t}, \% / \text{час} .$$

В случае, если скорость влагопоглощения  $K_1$  не более 0,5 % в час, осуше-



ствлялась дополнительная выдержка образцов в течение времени  $t_2 = 15$  часов и аналогично определялись изменение массы  $\Delta m_2 = m_2 - m_1$  и скорость влагопоглощения  $K_2$ :

$$K_2 = \frac{\Delta m_2 \cdot 100}{m_1 \cdot t}, \% / \text{час}$$

Из исследуемых присадок выбирается та, растворимость которой менее 0,1 кг сухого вещества на 1 литр воды, а скорость влагопоглощения при первоначальной выдержке не более 0,5 % в час, а при дополнительной выдержке менее 0,01 % в час. Таким требованиям удовлетворяет, например, марганцевокислый калий. В таблице 1 приведены данные определения скорости влагопоглощения и растворимости порошка марганцевокислого калия в сравнении с аналогичными характеристиками для порошка  $K_2CO_3$ .

Таблица 1

Вещество	$m_0$ , кг	$\Delta m_1$ , кг	$t_1$ , час	$K_1$ , %/час	$\Delta m_2$ , кг	$t_2$ , час	$K_2$ , %/час	Растворимость, кг/л, [3]
$KMnO_4$	0,04	$5,6 \cdot 10^{-4}$	4	0,35	$5 \cdot 10^{-5}$	15	$8 \cdot 10^{-3}$	$6,38 \cdot 10^{-2}$
$K_2CO_3$	0,038	$65 \cdot 10^{-4}$	4	4,30	$23 \cdot 10^{-3}$	15	3,5	1,12

При смешении  $KMnO_4$  с углем указанные выше недостатки устраняются. Становится возможным длительное хранение подготовленного горючего без существенного изменения за время хранения его свойств. Установлено, что влагопоглощение угля  $W$ , % с присадкой  $KMnO_4$  меньше в 1,5 — 2 раза по сравнению с тем же углем, но с присадкой  $K_2CO_3$ . В таблице 2 представлены данные по влагопоглощению  $W$ , % угля ОУ-А с дисперсностью, соответствующей диаметру частиц до 50 мкм. Влагопоглощение  $W$ , % угля с присадкой определялось процентным отношением привеса влаги в угле к начальной массе угольного порошка.

Таблица 2

**Влагопоглощение  $W$ , % угля ОУ-А с присадкой соединений щелочных металлов**

Содержание компонент, %	$KMnO_4$			$K_2CO_3$		
	1	8	16	2	6	10
$W_1$ , % (за время 168 час.)	11	7	5	13	11	9
$W_2$ , % (за время 2160 час.)	19	9	6	20	15	12

Горение исследуемых составов осуществлялось в камере сгорания генератора плазмы под давлением в кислородной среде. Сравнение электрофизических (электропроводность продуктов сгорания, энергетический комплекс) и термодинамических характеристик горения в камере сгорания генератора плазмы, соответствующих рассматриваемым составам угольного горючего, показывает, что использование горючего, содержащего в каче-

стве легкоионизирующейся присадки вместо поташа в тех же пропорциях марганцевокислый калий, позволяет сохранить без существенного изменения характеристики плазмы продуктов сгорания (таблица 3). Во всяком случае, всегда несложно подобрать такое количество присадки, чтобы эти характеристики остались неизменными. При этом качество приготовленного горючего не ухудшается с течением времени.

Требованиям малых значений растворимости и влагопоглощения удовлетворяют также такие калийные присадки, как  $\text{KBrO}_3$ ,  $\text{K}_2\text{CrO}_7$ ,  $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_5$ .

Таблица 3

№ п.п.	Компоненты горючего	Содержание компонентов в горючем (% по весу)					
		Присадка - $\text{K}_2\text{CO}_3$		Присадка - $\text{KMnO}_4$			
				Составы с сохранением доли присадки		Составы с сохранением электрофизических характеристик	
1	Углерод (С)	89,0	5,0	89,0	5,0	84,0	3,0
2	Алюминий(Al)	1,0	93,0	1,0	93,0	1,0	93,0
3	Поташ ( $\text{K}_2\text{CO}_3$ )	10,0	2,0	-	-	-	-
4	Марганцевокислый калий ( $\text{KMnO}_4$ )	-	-	10,0	2,0	15,0	4,0
№ п.п.	Наименование электрофизических и термодинамических параметров	Величина параметров, соответствующих рассматриваемым составам					
1	Давление в КС, МПа.	3,18	2,80	3,18	2,80	3,18	2,80
2	Число Маха на срезе сопла.	3	3	3	3	3	3
3	Электропроводность продуктов сгорания $\sigma$ , См/м	65,6	372,4	63,8	353,3	65,8	372,1
4	Энергетический комплекс $\sigma v^2$ , (См/м)(км/с) <sup>2</sup> .	420	1600	407	1554	420	1599
5	Подвижность электронов, 1/Тл	1,60	0,71	1,73	0,83	1,56	0,72

Устранение указанных выше недостатков работы систем подачи порошкообразного горючего возможно и другим способом, связанным с использованием вибраторов.

Надежной и стабильной в наших исследованиях показала себя система подачи порошка из цилиндрического дозатора через конусообразное отверстие под действием механических вибраций. В качестве дозаторов использовались прозрачные стеклянные трубки различного диаметра (2 — 15 мм) с конусообразным сужением, заканчивающимся отверстием диаметром 1 — 3 мм. Частота вибраций задавалась с помощью генератора звуковых колебаний. Перед проведением опыта порошок засыпается в дозатор и определяет-

ся необходимый режим подачи, соответствующий требуемому расходу. Установлено, что расход горючего зависит не только от свойств порошкообразного горючего и параметров системы подачи, прежде всего диаметра отверстия в дне дозатора, но и от частоты вибраций. Поэтому регулирование расхода горючего в этом способе удобно производить изменением частоты генератора.

Установлено, что зависимости расхода от частоты имеют экстремальный характер. Насыпная плотность порошка и, соответственно, объем, занимаемый в дозаторе частицами порошка, могут изменяться под действием вибраций. При встряхивании порошка с помощью вибраций звуковых частот объем порошка уменьшается до определенных пределов. Начиная с некоторых значений частоты дальнейшее ее повышение приводит не к уменьшению объема, а к его увеличению. При этом в некоторых случаях происходит разделение порошка по высоте стеклянной трубки дозатора воздушными промежутками на отдельные части (столбики). В соответствии с этим от частоты вибраций зависят и плотность порошка в стеклянной трубке, а также скорость его подачи через тарированное отверстие (расход).

Теоретическое описание таких экспериментальных зависимостей и моделирование этих процессов связано прежде всего с успехами в развитии в настоящее время в рамках задач статистической механики теории гранулированных систем и их динамики.

С целью совершенствования вибрационной подачи порошка и исключения возможности разделения порошка в дозаторе на отдельные слои (столбики) в опытах по изучению воспламенения и горения пылеугольного факела использовался один из подобного типа вибрационных дозаторов, устройство которого состоит в следующем (рисунок 1). Порошок засыпается в сосуд 1 с отверстиями в дне сосуда. Сосуд крепится к корпусу 2 с воронкообразным отверстием, соединенным с трубкой 3, нижний конец которой вводится в отверстие реакционной камеры. Для того чтобы порошок подавался в реакционную камеру в нужном количестве, электромагнитный вибратор 5 воздействует с определенной частотой на сосуд с порошком. Расход порошка зависит как от частоты вибраций, так и от количества открытых отверстий в дне сосуда. Количество последних можно регулировать с помощью перекрывающей их пластины 6. При вращении микровинта 7 пластина 6 движется поступательно между конусообразным отверстием корпуса 2 и дном сосуда 1, перекрывая по очереди оставшиеся отверстия. Таким образом, микровинт 7 позволяет регулировать расход порошка. О количестве открытых отверстий и, таким образом, о расходе порошка при заданной частоте вибраций можно судить по показаниям шкалы 8 на корпусе датчика. Для каждой фракции порошка подбирается такая частота вибраций, которая соответствует максимальному расходу.

Таблица 4

№ фракции	Средний диаметр частиц, мкм	Масса частиц в единице объема взвеси $M \cdot 10^3$ , кг/м <sup>3</sup>
1	5	4,16
2	19	4,08
3	22	4,16
4	25	4,03
5	29	4,16
6	38	4,18
7	49	4,34

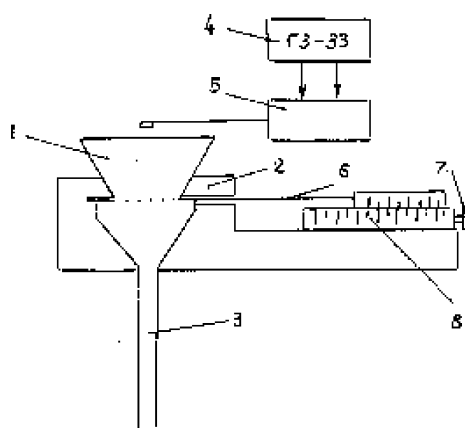


Рис. 1. Устройство вибрационного дозатора

С помощью представленных вибрационных дозаторов установлены условия образования сплошного пламени в дисперсном угле, измерены времена воспламенения и горения угольных частиц в факеле в зависимости от способа измельчения угля и состава вводимых поверхностно-активных, катализирующих или ингибирующих добавок. Например, зная расход порошка в дозаторе, несложно рассчитать массу частиц угля  $M$  в единице объема взвеси, которые образуют сплошное пламя. В таблице 4 приведены данные для угля АШ с выходом летучих  $V^t=4,9\%$ , подаваемого в поток кислорода при температуре 1183 К. Явление практической независимости массы  $M$  от размера частиц угля (погрешность расчета  $M$  соответствует погрешности определения расходов газа и порошка) указывает на общность механизмов воспламенения взвесей угля и таких металлов, как магний, алюминий и их сплавы, что свидетельствует о существенной роли выхода летучих и их гомогенного горения в процессе стабилизации пламени.

#### Литература

1. А.с. №1001642 Горючее для магнитогидродинамического генератора, СССР, 1982.
2. А.с. №1717598 Способ приготовления горючего для генератора плазмы, СССР, 1991.
3. Дж. Кэй, Т. Лэби. Таблицы физических и химических постоянных. -М.: Госиздат. физ.-мат. литературы, 1962. — С. 247.

*В. В. Курятников, Л. Г. Мілова*

#### **Сипкість вуглецевого порошкоподібного пального в системах його подачі в камеру згоряння**

#### АНОТАЦІЯ

Розглянуто способи підвищення ефективності систем подачі вуглецевого порошкоподібного пального в камеру згоряння генератора плазми. З одним з них зв'язаний спосіб готування вуглецевого пального з присадкою, що легко іонізується та має малу гігроскопічність і слабку розчинність у воді. Сипкість такого порошкоподібного пального в системах його подачі мало змінюється за часом. Інший спосіб зв'язаний з використанням систем подачі порошку з дозатора під дією механічних вібрацій. Установлено, що залежності витрати порошкоподібного пального від частоти вібрацій при подачі в камеру згоряння мають екстремальний характер.

*Kurjatnikov V. V., Milova L. G.*

#### **Friable carbon dispersibilis combustible in systems it of submission in the comdustion chamber**

#### SUMMARY

The methods of increase of efficiency of supply systems carbon dispersibilis combustibile in the combustion chamber of the generator of plasma are considered. The method of preparation carbon combustibile with a dope is connected to one from them by having ability it is easy to be ionized, small hygroscopicity and weak solubility in water. Friable such dispersibilis combustibile in systems it of submission is a little changed in due course. Other method is connected to use of supply systems of a powder from a capacity under an operation of mechanical vibrations. Is established, that of dependence of a cost dispersibilis combustibile from frequency of vibrations for want of to submission in the combustion chamber have an extreme character.

**Л. И. Рябчук<sup>1</sup>, М. Н. Чесноков<sup>1</sup>,  
М. Ю. Трофименко<sup>1</sup>, В. С. Федотова<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова

<sup>2</sup>Одесская государственная академия строительства и архитектуры

### **Зажигание титана импульсным лазерным излучением**

Представлено математическое моделирование исследования закономерностей протекания экзотермических процессов под действием оптического излучения. Проведен компьютерный эксперимент по моделированию процессов тепло-массообмена, сопровождающих горение титана в воздушном потоке при действии серии лазерных импульсов прямоугольной формы в интервале интенсивностей потока  $10^5$  —  $10^8$  Вт/см<sup>2</sup>. Получены интенсивности минимальной энергии зажигающего импульса при облучении парой эквивалентных прямоугольных импульсов от длительности паузы между ними; зависимость энергозатрат на плавление и зажигание титановой мишени от интенсивности излучения.

Исследование закономерностей протекания экзотермических процессов на поверхности металлической мишени под действием лазерного излучения благодаря специфике ввода энергии и изменению теплового баланса имеет целый ряд особенностей. При импульсном лазерном воспламенении металла существует граница устойчивости [1, 2]. То есть, если образец нагревается в окислительной среде излучением радиуса  $r_0$  и интенсивности  $I_0$ , то существует критическая зависимость  $I_{кр} > f(r_0)$ , такая, что при  $I_0 < f(r_0)$  образец не воспламеняется, а при  $I_0 > f(r_0)$  воспламенение происходит при любых начальных условиях. При воздействии на образец серии импульсов  $I_{кр}$  зависит также от паузы между импульсами.

Пусть импульс излучения с характерной длительностью  $\phi_n$ , сфокусированный в пятно с характерным размером  $r_r$ , воздействует на поверхность титановой пластинки толщиной  $H$ .

В цилиндрической системе координат  $(r, z)$  ось  $z$  направлена навстречу лазерному лучу, а поток воздуха направлен вдоль облучаемой поверхности  $z = H$  (Рис.1)..

Уравнение теплопроводности, описывающее задачу и определяющее распределение температуры в объеме металла имеет вид:

$$\frac{1}{a_T} \frac{\partial T}{\partial \tau} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2}, \quad (1)$$

где  $a_T$  — температуропроводность титана.

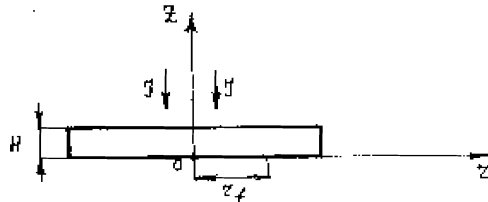


Рис. 1. Схема облучения образца.

Граничное условие к уравнению теплопроводности на облучаемой поверхности мишени

$$\chi \frac{dT}{dz} \Big|_{z=H} = A_\lambda I_\lambda + q_{ch} - q_c - q_r - q_{is} \Big|_{z=H} \quad (2)$$

где  $\chi(T)$  — коэффициент теплопроводности металла;  $T(t, \tau, z)$  — температура мишени;  $A_\lambda$  — поглощательная способность мишени на длине волны лазерного излучения;  $I_\lambda$  — интенсивность лазерного излучения;  $q_{ch}$ ,  $q_c$ ,  $q_r$ ,  $q_{is}$  — плотности тепловых потоков, обусловленные: экзотермической реакцией окисления, поверхностными плотностями мощностей конвективных, радиационных и испарительных потерь тепла соответственно.

Плотность теплового потока, обусловленного окислительной реакцией, пропорциональна скорости окисления

$$q_{ch} = W \rho \frac{dx}{d\tau}, \quad (3)$$

здесь  $W$  — удельная теплота реакции окисления;  $\rho$  — плотность титана;

$$\frac{dx}{d\tau} = \frac{b}{x} \exp(-T_a / T), \quad (4)$$

параболический закон окисления поверхности металла;  $x$  — толщина окисной пленки;  $T_a$  — энергия активации окислительной реакции [3]. Рост окисного слоя удовлетворяет параболическому закону окисления до тех пор пока температура поверхности не выше характерной температуры  $T_u$ , зависящей от скорости воздушной струи. При более высокой температуре экспоненциальная зависимость сменяется степенной, так как темп окисления  $dx/dt$  сдерживается темпом подачи кислорода в зону реакции.

Теория пограничного слоя рассматривает обтекание гладкой поверхности, а в лазерных экспериментах воздушная струя направлена вдоль движущейся поверхности расплава, имеющей волновую структуру и предельная плотность теплового потока кислорода из тангенциальной струи к поверхности должна определяться диффузией молекул через турбулентный погра-

ничный слой. В этом случае плотность теплового потока, обусловленная реакцией окисления может быть представлена в виде [4]

$$q_{ch} = q_x (u / u_0)^{0,8} \quad (6)$$

где  $q_x = 1,5 \text{ кВт/см}^2$  и  $u_0 = 100 \text{ м/с}$  — характерные константы.

Результаты экспериментов по охлаждению гладкой поверхности струей воздуха удовлетворяют эмпирическому соотношению [5]

$$Nu_T = 0,032 \text{ Re}^{0,8}, \quad (7)$$

где  $Nu_T$  — число Нуссельта для теплового потока;  $Re$  — число Рейнольдса.

$$Nu_T \equiv \frac{ql}{\chi_v(T - T_0)}$$

где  $q = q_c$  — тепловой поток на границе воздуха и пластины;  $(T - T_0)$  — разность температур между воздухом и поверхностью металла;  $\chi_v$  — коэффициент теплопроводности воздуха;  $l$  — параметр длины, характеризующий зада-

чу (то есть  $l = R$ ). Исключая число Рейнольдса  $Re = \frac{ul}{\nu}$ , можно представить соотношение (7) в виде вного выражения для плотности теплового потока [6]

$$q_c = 0,032 \chi_v (T - T_0) \left( \frac{u}{\nu} \right)^{0,8} l^{-0,2}. \quad (8)$$

$q_r = \sigma_c \varepsilon (T^4 - T_{cm}^4)$  — радиационные потери тепла; где  $\sigma = 5,67 \cdot 10^{-8} \text{ Вт/(м}^2 \text{ К}^4)$  — постоянная Стефана-Больцмана;  $\varepsilon$  — излучательная способность тела.

Для  $q_{is}$  используется следующее выражение:

$$q_{is} = \begin{cases} 0, & T < T_{is} \\ (\rho L_{is} / A) \exp(-L_{is} / T), & T \geq T_{is} \end{cases}, \quad (9)$$

— потери тепла поверхности на испарение; где  $A$  — атомный вес металла;  $L_{is}$  — удельная теплота испарения расплава.

На необлучаемой поверхности пластины  $z = 0$  граничное условие к уравнению теплопроводности имеет вид

$$\chi \frac{dT}{dz} \Big|_{z=0} = q_{ch} - q_c - q_r \quad (10)$$

Конвективные потери тепла с этой поверхности рассчитывались с учетом того, что коэффициент теплоотдачи вычислялся с помощью критериев



подобия для теплоотдачи при свободной конвекции газа в большом объеме около горизонтальной пластины, охлаждаемой снизу [7].

$$a = \frac{Nu\chi}{d}; Nu = 0,27 \cdot (Gr \cdot Pr)^{0,25};$$

$$Gr = g\tau\beta\tau \frac{\Delta T}{\nu^2} \left(\frac{l}{2}\right)^3; Pr = \frac{\nu}{a},$$

где  $\Delta T$  — разность температур поверхности мишени и окружающей среды;  $\chi$ ,  $a$  и  $\nu$  — коэффициенты теплопроводности; температуропроводности и кинематической вязкости воздуха соответственно;  $g\tau$  — ускорение свободного падения;  $\beta\tau$  — температурный коэффициент объемного расширения,  $\beta\tau \sim T^{-1}$ .

Для выяснения роли расплава в процессе распространения волны горения предположим, что расплав сразу же после образования на поверхности уносится струей воздушного потока.

В ходе математического моделирования поставленной задачи для выяснения изменения интервала следования импульсов на порог воспламенения были проведены расчеты по зажиганию титана  $H = 0,4$  и  $0,8$  мм серией эквивалентных прямоугольных импульсов ( $\tau_n = 1,5$  мс).

Исследовалась зависимость минимальной интенсивности зажигающего излучения  $I$  от длительности паузы между импульсами  $\tau_n$  (Рис.2).

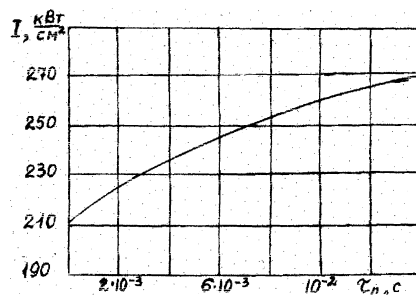


Рис. 2. Зависимость минимальной интенсивности зажигающего излучения  $I$  от длительности паузы между импульсами  $\tau_n$ .  $H = 0,4$  мм,  $\tau_n = 1,5$  мс

При  $\tau_n = 0$  происходит зажигание металла сдвоенным лазерным импульсом  $\tau = 3$  мс. Для этого необходима интенсивность излучения  $I = 210$  кВт/см<sup>2</sup>. По мере увеличения паузы увеличивается и пороговая интенсивность, необходимая для зажигания, так как между окончанием лазерного воздействия и самоподдерживающимся горением существует переходный период частичного охлаждения. Увеличение энергозатрат обусловлено выносом тепла из

зоны облучения благодаря отводу тепла из зоны воздействия за счет теплопроводности в глубь и вдоль радиуса мишени, испарительным потерям (при  $T \geq T_{is}$ ), а также теплообмену с окружающей средой за время паузы. При увеличении  $\tau_n$  до 0,01 с тонкий слой металла  $l = 0,1 = H$ , прогретый первым импульсом, успевает остыть за время паузы. Второй импульс излучения взаимодействует почти с таким же холодным металлом, как и первый, поэтому при большой паузе порогом зажигания становится порог, соответствующий одиночному импульсу  $\tau_n = 2,5$  мс.

Испарение пластины начинается после нагревания ее поверхности до температуры кипения окисла. Величина  $q_{is}$  вычисляется в виде (9). Окисление и горение титана в какой-то момент времени прекращается, так как упругость паров титана недостаточна из-за того, что пластина в области пятна покрывается жидким слоем оксида титана (рутила). Скорость испарения рутила согласно [8] примерно  $3 \cdot 10^{-14}$  см/с, поэтому даже при температуре порядка 3200 К (температура кипения рутила) оксид находится в жидком состоянии сравнительно долго. Таким образом, химический источник тепла исчезает, то есть

$$q_{ch} = \begin{cases} q_x (u/u_0)^{0,8} & T < T_{is} \\ 0, & T \geq T_{is} \end{cases} \quad (11)$$

При дальнейшем увеличении тепла за счет лазерного облучения температура пластины не повышается, так как все тепло идет на испарение рутила.

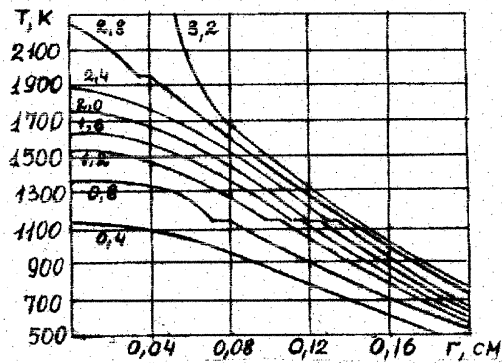


Рис. 3. Нагревание и воспламенение титана при  $I = 120$  кВт/см<sup>2</sup>,  $H = 1$  мм,  $R = 0,2$  см.

Время от начала действия импульса указано числами на кривых (мс).

На рис.3 показана зависимость температуры в центре светового пятна при облучении титана серией лазерных импульсов. Сильное нагревание по-

верхности за время  $\tau_{\text{н}}$  сменяется охлаждением за время  $\tau_{\text{п}}$ . Результирующее нагревание за полный период  $p = \tau_{\text{н}} + \tau_{\text{п}}$  составляет в этом случае всего 200 К и металл воспламеняется лишь в конце пятого импульса.

На рис.4 представлены зависимости энергозатрат на плавление (1) и зажигание (2) титановой мишени.

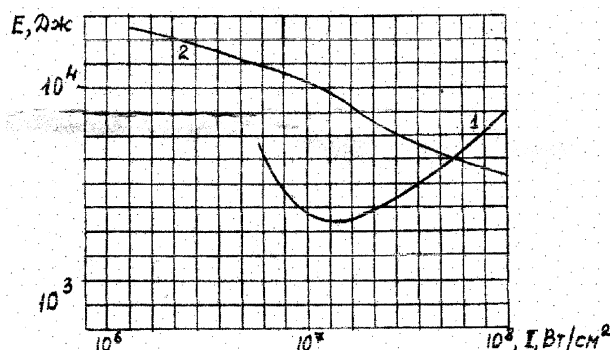


Рис. 4. Зависимость энергозатрат на плавление (1) и зажигание (2) титановой мишени,  $H = 1\text{ мм}$ ,  $R = 10\text{ мм}$  от интенсивности излучения

Зажигание мишени (кривая 2) показывает, что с увеличением интенсивности излучения расход энергии на зажигание уменьшается. Эта закономерность объясняется более высоким темпом нагрева поверхностного слоя металла и соответствующим сокращением времени на теплопровод в глубь пластины. Энергия лазерного излучения расходуется только на прогревание и поджигание тонкого поверхностного слоя металла. Остальной металл прогревается уже за счет горения поверхностных слоев. Плавление титана (кривая 1) имеет ярко выраженный оптимум энерговклада. Видно, что при высокой интенсивности лазерного излучения темп нагрева мишени замедляется, так как растут теплотери на испарение, а при низкой интенсивности темп нагрева мишени замедляется из-за отвода тепла в глубь материала. Кроме того из графиков видно, что существует такая интенсивность лазерного излучения, при которой возможно как плавление, так и воспламенение мишени с заданными толщиной и радиусом луча.

Рассмотрим закон сохранения энергии на облучаемой поверхности и определим влияние каждого из членов уравнения (2) на распространение горения по поверхности после окончания лазерного воздействия. Теплопритоки от экзотермической реакции окисления (11) при скорости воздушного потока  $u = 150\text{ м/с}$  составляют  $2,1\text{ кВт/см}^2$ , а при скорости  $u = 200\text{ м/с}$  —  $2,6\text{ кВт/см}^2$ . Молекулярно-конвективные потери тепла (8) в конце пятого импульса при коэффициенте теплопроводности воздуха  $\chi_v = 0,0257\text{ Вт/(м}\cdot\text{К)}$ , кинематической вязкости  $\nu = 1,526 \cdot 10^{-3}\text{ м}^2/\text{с}$  и температуре  $2400\text{ К}$   $q_c \sim 100\text{ Вт/см}^2$ . Радиа-

ционные потери тепла при температуре окружающей среды 300 К  $q_r \sim 55 \text{ Вт/см}^2$ . Расчеты показывают, что градиент температуры на границе облучаемой зоны ( $r = R$ )  $\partial T / \partial r \sim 1 \text{ кК/мм}$ , следовательно потери тепла за счет теплопроводности при  $\chi = 21,6 \text{ Вт/(м}\cdot\text{К)}$  на этой границе

$$q_{\text{кр}} = \chi \cdot \frac{\partial T}{\partial r} \sim 2 \text{ кВт/см}^2.$$

Из сравнения вкладов каждого из членов уравнения сохранения тепла на облучаемой поверхности видно, что, исключая контакт расплава с поверхностью, мы тем самым исключаем нагревание металла выше температуры плавления  $T_{\text{пл}}$ , а при  $T < T_{\text{пл}}$  мощности химического источника не хватает на компенсацию всех потерь тепла. Однако в эксперименте [4] зажигание пластины сопровождалось распространением горения после окончания лазерного воздействия. Следовательно именно горящий расплав является основным источником тепла, поддерживающим распространение фронта реакции, а роль лазерного импульса сводится к прогреванию тонкого слоя поверхности, расплавлению его и поджиганию.

#### Литература

1. Бункин Ф.В., Кириченко Н.А., Морозов Ю.Ю. // Квантовая электрон. — 1988. — Т. 13. — С. 993-998.
2. Бонч-Бруевич А.М., Дорофеев В.Г., Либенсон М.Н. и др. // ЖТФ. — 1982. — Т. 52. — С. 1133-1138.
3. Бункин Ф.В., Кириченко Н.А., Лукьянчук Б.С. // УФН. — 1982. — Т.138. — С.45-94.
4. Бонч-Бруевич А.М. и др. // Письма в ЖТФ. — 1986. — Т.12. — С.1098-1103.
5. Левич В.Г. Физико-химическая гидродинамика. — М.: Изд-во АН СССР, 1959. — 699 с.
6. Поюровская И.Е., Рябчук Л.И. Зажигание титана в потоке окислителя // Изв. АН СССР. Сер. физич. — 1989. — Т. 53, № 3. — С. 509-514 .
7. Теоретические основы теплотехники. Теплотехнический эксперимент. Спр. — М.: Энергоиздат, 1982. — 560 с.
8. Анисимов С.И., Имас Я.А., Романов Г.С., Ходыко Ю.В. Действие излучения большой мощности на металлы. — М.: Наука, 1970. — 380 с.

*Л. І. Рябчук, М. М. Чесноков, М. Ю. Трохименко, В. С. Федотова*

**Запалення титана імпульсами лазерного випромінювання**

**АНОТАЦІЯ**

Представлено математичне моделювання дослідження закономірностей екзотермічних процесів, які протікають на поверхні титану під дією лазерного випромінювання. Проведено комп'ютерний експеримент по моделюванню процесів тепломасопереносу, які супроводжують горіння мішені в повітряному потоці при серії лазерних імпульсів прямокутної форми в інтервалі інтенсивностей  $10^5$  —  $10^8$  Вт/см<sup>2</sup>. Одержано мінімальні інтенсивності імпульсу, який запалює поверхню при опромінюванні серією прямокутних імпульсів від тривалості паузи між ними; профіль швидкостей руху полум'я після закінчення впливу лазерного імпульсу; залежність енерговитрат на плавління та запалення титанової мішені від інтенсивності випромінювання.

*Ryabchuk L. I., Chesnokov M. N., Trofimenko M. Yu., Fedotova V. S.*

**Ignition of titanium plate by laser pulse**

**SUMMARY**

The mathematical modeling of exothermal processes under optical radiation is submitted. Computer experiment of titanium plate burning in an air flow at action of the rectangular form laser in an interval of  $10^5$  —  $10^8$  W/sm<sup>2</sup> intensity of energy flow was carried out. The heat and mass transfer, melting and ignition energy were taken into consideration. Intensity of laser pulse minimal energy of titanium plate ignition was received.

*Л. Д. Коноваленко, Ф. В. Макордей, В. И. Андреев, И. Н. Барба*

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

### **Механизмы воспламенения горючих веществ полупроводниковыми мостиками**

В работе описана модель расплавления полупроводникового мостика с открытой поверхностью, учитывающая омический нагрев, поперечную проводимость мостика, потери тепла из мостика в подложку, выброс энергии и материала из системы по мере испарения мостика. Показано, что для широкого диапазона условий минимальная энергия, требуемая для воспламенения горючего вещества, пропорциональна массе мостика.

Разработанные нами полупроводниковые источники микронагрева, используемые для локального энерговыделения [1-4], позволяют воспламенять горючее вещество, находящееся на его поверхности. Очевидно, существует некий механизм переноса энергии, с помощью которого осуществляется взаимодействие между мостиком и близлежащим горючим веществом (ГВ). Оно может быть обусловлено теплопроводностью, тепловым излучением, механическим ударом, фотовозбуждением ГВ и конвекцией испаряющихся материалов мостика, которые проникают в поры горючего вещества, находящегося в дисперсном состоянии [5]. Введённая в полупроводниковый мостик энергия рассеивается в результате действия ряда механизмов. Модель расплавления полупроводникового мостика основана на следующем уравнении:

$$a\gamma_{Si}h_{(x,t)} = q_{(x,t)} + k_{Si} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} - \frac{1}{\delta y} k_{Al_2O_3} \frac{\partial}{\partial y} T_{(x,y=0,t)} \quad (1)$$

где  $a$  — коэффициент пропорциональности,  $\gamma$  — плотность,  $h$  — энтальпия,  $q$  — объёмная скорость нагрева,  $k$  — удельная теплопроводность,  $T$  — температура,  $x, y, z$  — координаты (см. рис),  $t$  — время.

Объёмная скорость нагрева связана с градиентом напряжения  $dU/dz$  следующим образом:

$$q_{(x,t)} = (dU/dz)^2 / c_{(x,y)}, \quad (2)$$

где  $c$  — электрическое удельное сопротивление. Принципиально важной особенностью данной модели является то, что при расплавлении удельное сопротивление материала мостика снижается на порядок. Относительный объёмный нагрев расплавленных и твёрдых областей мостика определяется соотношением их удельных сопротивлений:

$$q_1 = \left(\frac{\rho_s}{\rho_l}\right) \text{Ч} q_{s,} \text{ или } q_1 \approx 10 \text{Ч} q_{s,} \quad (3)$$

индексы l и s относятся к жидкой и твёрдой фазам соответственно. Именно падение удельного сопротивления создаёт фронты расплавления, которые движутся перпендикулярно току в мостике, когда расплавленная область мостика нагревается более интенсивно, чем его остальная часть.

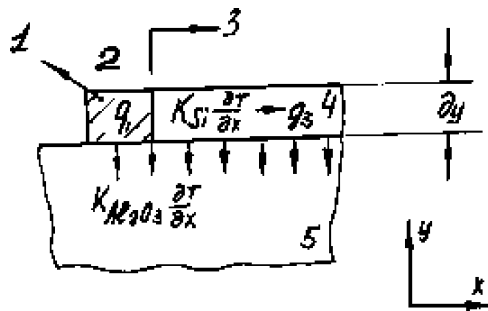


Рис. Схематическое изображение плавления полупроводникового мостика: 1 — пар, 2 — жидкость, 3 — фронт расплава, 4 — твердая фаза, 5 — подложка

Уравнение (1) представляет собой интегро-дифференциальное уравнение, поскольку при данном токе градиент напряжения  $dU/dz$  связан с током следующим образом:

$$I = \int_A j dA = \frac{dU}{dz} \int_A \frac{dA}{P_{(x,t)}}, \quad (4)$$

где  $I$  — ток,  $A$  — площадь поперечного сечения, через которую протекает ток,  $j$  — плотность потока.

Представленные здесь результаты даны для суммарного тока постоянной величины, протекающего через мостик. Из-за снижения удельного сопротивления расплавляемой области, краевое расплавление представляет собой самоподдерживающийся процесс.

Потери энергии в подложку невелики по сравнению с энергией испарения мостика, но они имеют значение для определения электрических характеристик мостика. Квазистойчивое движение фронтов расплава к центру мостика зависит от того, какая часть центральной области мостика остаётся в твёрдом состоянии (и потому имеет большее сопротивление, чем расплавленные области). Падение удельного сопротивления при расплавлении вызывает увеличение энтальпии мостика, связанной с удельной теплотой плавления кремния ( $h_{sl}$ ), которая значительно ниже теплоты сублимации ( $h_{sv}$ ) т. е.

$$h_{sv} > h_{sl} \sim \frac{1}{\gamma \delta y} k_{Al_2O_3} \frac{\partial T}{\partial y} \delta t, \quad (5)$$

где величина  $\delta t$  примерно равна времени до начала конечной фазы разряда, а  $\frac{\partial T}{\partial y}$  — средний температурный градиент на поверхности подложки за данный промежуток времени. Если бы тепловая связь с подложкой отсутствовала, существовала бы тенденция мостика к расплавлению, в результате чего имело бы место снижение сопротивления устройства и уменьшение рассеивания энергии. Для проверки применимости предложенной модели были измерены зависимости сопротивления от времени при трех постоянных уровнях тока (17, 15 и 7,5 А) для мостика размерами (100 x 380 x 4) мкм. При высоких уровнях тока экспериментальные и расчетные значения сопротивления мостика и времени его разрушения практически совпадают. При малом токе перехода к испарению мостика не наблюдается. Достаточно хорошее согласие между экспериментальными и расчетными результатами свидетельствует о применимости предложенной модели при высоких уровнях тока. Примерное распределение подаваемой на мостик энергии приведено в таблице.

Таблица

**Примерное распределение подаваемой на мостик энергии**

№	Параметры	Значения
1	Изменение энтальпии кремниевого мостика, мДж	3,2
2	Потери тепла в подложку, мДж	0,2
3	Энергия, выделяемая в виде видимого света, мДж	0,003
4	Рассеяние вне мостика, мДж	1,6
5	Суммарная энергия, подаваемая на мостик, мДж	5,0

Для широкого диапазона условий минимальная энергия, требуемая для воспламенения горючего вещества, примерно пропорциональна массе области энергосвечения полупроводникового мостика. Рассеивание большей части энергии в районе мостика связано с изменением энтальпии материала мостика. Внутрь подложки поступает менее 10% энергии, а потери энергии в виде видимого света пренебрежимо малы.

#### Литература

1. Коноваленко Л. Д., Мазуренко В. С., Макордей Ф. В., Мусарова В. Ф. Энергетические характеристики “горячих точек”. // Физика аэродисперсных систем. — К.-Одесса: Вища школа, 1997. — Вып. 36, ч. 1. — С. 101-103.
2. Коноваленко Л. Д., Макордей Ф. В., Андреев В.И. Полупроводниковые



- энерговывделяющие элементы // Фотоэлектроника: Межведомственный научный сборник. — Одеса: Астропринт, 2003. — Вып. 12. — С. 92 -95.
3. Коноваленко Л. Д., Мазуренко В. С., Макордей Ф. В. Полупроводниковый мостик — источник микронагрева // Тезисы докладов на XVII конференции стран СНГ “Дисперсные системы”. — Одесса, 1996. — С. 84.
  4. Коноваленко Л. Д. Механизмы воспламенения взрывчатых веществ полупроводниковыми мостиками // Тезисы докладов XVIII конференции стран СНГ “Дисперсные системы”. — Одесса, 1998. — С. 80.
  5. Андреев К.К., Беляев А.Ф. Теория взрывчатых веществ. — М.: Оборонгиз-издат., 1960. — 595 с.

*Л. Д. Коноваленко, Ф. В. Макордей, В. І. Андреев, І. Н. Барба*

**Механізми запалення горючих речовин  
напівпровідниковими містками**

**АНОТАЦІЯ**

В роботі наведена модель розплавлення напівпровідникового містка з відкритою поверхнею, яка враховує омичний розігрів, поперечну провідність містка, втрати тепла із містка до підкладки, конвекцію енергії та матеріалу із системи під час випарування містка. Показано, що для широкого діапазону умов мінімальна енергія, яка потрібна для запалення горючої речовини, пропорційна масі містка

*Konovalenko L. D., Makordey F. V., Andreev V. I., Barba I. N.*

**Mechanisms of Ignition of Combustible Substances  
by Semiconductive Bridges**

**SUMMARY**

In this work the model of fusion of the semiconductive bridge is presented. The model takes into account the Ohmic heating, lateral conduction of the bridge and the heat losses from bridge into base carrier.

It was found, that the minimal energy, required for ignition of combustible substances is proportional to the bridge's mass.

УДК 536.46:662.612

*В. В. Калинин, О. Н. Гулеватая, А. И. Калинин, С. Г. Орловская*  
*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

**Высокотемпературный теплообмен и кинетика  
химических реакций пористого углерода с воздухом  
с учетом стефановского течения**

Анализируется роль стефановского течения и внутреннего реагирования в процессах высокотемпературного теплообмена и кинетики химических реакций ( $C+O_2=CO_2$  (I),  $2C+O_2=2CO$  (II),  $C+CO_2=2CO$  (III)) пористой углеродной частицы с воздухом. Установлено, что внутреннее реагирование оказывает влияние при относительно низких температурах частицы. При высоких температурах суммарная скорость превращения углерода и, соответственно, скорость стефановского течения на поверхности частицы определяется кинетикой химической реакции (II), протекающей в диффузионной области.

**Введение**

Теплообмен (ТМО) твердого или жидкого тела с газами протекает взаимосвязанно с химическими реакциями и фазовыми превращениями (испарение, конденсация), которые являются источниками (стоками) энергии и новых масс газов (продуктов реакции). Появление или исчезновение газовых масс на поверхности твердого тела является причиной появления стефановского течения, направленного в первом случае от поверхности тела, а во втором к поверхности, дополнительно участвующего в переносе тепла и газообразных компонент [1 — 4]. В целом ряде случаев необходимо учитывать пористую структуру твердого тела и, следовательно, внутреннюю диффузию и кинетику химических реакций на поверхностях пор. Так же необходимо учитывать, что при определенных условиях возможно протекание гомогенных химических реакций в пространстве около частицы. Наилучшим примером является реагирование углерода (графит, электродный уголь, коксы различных топлив) с газами. Известно [1, 5], что на поверхности углерода протекают параллельно экзотермические химические реакции



а так же последовательная эндотермическая химическая реакция



где  $Q_{1\mu}$ ,  $Q_{2\mu}$ ,  $Q_{3\mu}$  — тепловые эффекты химических реакций (I), (II), (III), Дж/моль.

В газовой фазе возможно протекание экзотермической гомогенной химической реакции



где  $Q_{4\mu}$  — тепловой эффект химической реакции (IV), Дж/моль.

Если скорость гомогенной реакции (IV) меньше скорости массопереноса (критерий Дамкелера (Damkohler) или критерий Семенова)  $Se_g < 0.4$ , то ее влиянием на тепломассообмен твердого тела можно пренебречь [1]

$$Se_g = \sqrt{\frac{d^2 k_{04}}{D_{CO} (Nu)^2} \exp\left(-\frac{E_4}{RT_g}\right)},$$

где  $d$  — диаметр углеродной частицы, м;  $k_{04}$  — предэкспоненциальный множитель, 1/с;  $E_4$  — энергия активации реакции (IV), Дж/моль;  $T_g$  — температура газовой смеси, К;  $D_{CO}$  — коэффициент диффузии окиси углерода, м<sup>2</sup>/с;  $Nu$  — критерий Нуссельта. Малое значение критерия Семенова определяется экспериментальными условиями, когда частица дополнительно разогревается током высокой частоты или в результате поглощения лазерного излучения и обдувается холодным газом [5-7]. Так в [5] частица электродного угля  $d=1.2 - 1.5$  см, нагреваемая током высокой частоты, обдувалась воздухом комнатной температуры ( $T_g=293$  К) со скоростью  $V=0.6$  м/с. В [6-7] приведены экспериментальные и теоретические результаты временных зависимостей температуры и диаметра углеродной частицы, горение которой в воздухе комнатной температуры поддерживается лазерным излучением.

Проведенный анализ тепломассообмена и кинетики химических реакций (I), (II), (III) углеродной частицы с газами показал на необходимость учета стефановского течения и позволил получить аналитические выражения качественно верно описывающие влияние условий и свойств на газовый состав продуктов реакции, скорость химического превращения углерода, плотности тепловых и массовых потоков на поверхности частицы [3]. Однако, пренебрежение внутренним реагированием привело к несовпадению экспериментальных и расчетных результатов по скорости химического превращения углеродной частицы при различных ее температурах и диаметрах.

Поэтому задачей настоящей работы является выявление роли внутреннего реагирования и стефановского течения в процессах ТМО и химической реакции пористой углеродной частицы с газами с учетом вынужденной и естественной конвекции в зависимости от температуры частицы.

### Постановка задачи

Скорость химического превращения углерода в газообразные компоненты определяется скоростью химических реакций на внешней поверхности частицы и внутри частицы на поверхностях пор

$$W_C = W_{C,s} + W_{C,v},$$

где  $W_C$ ,  $W_{C,s}$ ,  $W_{C,v}$  — соответственно, суммарная скорость химического превращения, скорость химического превращения на поверхности углеродной частицы и внутри, на поверхностях пор, кг/(м<sup>2</sup> с).

Скорость химического превращения углерода на поверхности частицы определяется кинетикой реакций (I), (II) и (III)

$$W_{C,s} = \frac{M_C}{M_{O_2}}(k_1 + 2k_2)\rho_{g,s}C_{O_2,s} + \frac{M_C}{M_{CO_2}}k_3\rho_{g,s}C_{CO_2,s}, \quad (1)$$

$$k_1 = k_{01} \exp\left(-\frac{E_1}{RT}\right), \quad k_2 = k_{02} \exp\left(-\frac{E_2}{RT}\right),$$

$$k_3 = k_{03} \exp\left(-\frac{E_3}{RT}\right), \quad \rho_{g,s} = \rho_{g,0} \left(\frac{T_0}{T}\right),$$

где  $M_C$ ,  $M_{O_2}$ ,  $M_{CO_2}$ ,  $M_{CO}$  — молярные массы углерода, кислорода, углекислого и угарного газов, кг/моль;  $C_{O_2,s}$ ,  $C_{CO_2,s}$  — относительные массовые концентрации  $O_2$  и  $CO_2$  на поверхности частицы;  $\rho_{g,s}$ ,  $\rho_{g,0}$  — плотность газа при температуре частицы и при  $T_0=273.15$  К;  $k_1$ ,  $k_2$ ,  $k_3$  — константы скоростей химических реакций (I), (II), (III), м/с;  $k_{01}$ ,  $k_{02}$ ,  $k_{03}$  — предэкспоненциальные множители, м/с;  $E_1$ ,  $E_2$ ,  $E_3$  — энергии активации (I), (II) и (III) реакций, Дж/моль;  $R$  — универсальная газовая постоянная Дж/(моль·К);  $T$  — температура частицы, К.

Энергии активации и предэкспоненциальные множители реакций (I), (II) и (III) связаны между собой [1]:

$$E_2 = 1.1E_1; \quad E_3 = 2.2E_1; \quad \lg k_{0i} = 0.2 \cdot 10^{-4} E_i + 2,$$

где  $i=1$  для реакции (I),  $2$  — для реакции (II) и  $3$  — для реакции (III).

При определении скорости химического превращения углерода в результате химических реакций на поверхностях пор внутри объёма частицы можно пренебречь влиянием реакции (III) вследствие высокой энергии активации. В этом случае  $W_{C,v}$  можно выразить через эффективную константу

$$W_{C,v} = \frac{M_C}{M_{O_2}} (k_1 + 2k_2) P_v \rho_{g,s} C_{O_2,s}, \quad P_v = \frac{k_v}{k_1 + k_2}, \quad (2)$$

$$k_v = \frac{2D_v}{d} (Se_v \text{cth} Se_v - 1), \quad (3)$$

$$Se_v = \sqrt{\frac{(k_1 + k_2) F_v d^2}{4D_v}} = \frac{d}{2h}, \quad h = \sqrt{\frac{D_v}{(k_1 + k_2) F_v}}, \quad (4)$$

где  $k_v$  — эффективная константа внутреннего реагирования, м/с;  $Se_v$  — критерий Семенова, определяющий соотношение констант скоростей химических превращений на поверхностях пор и диффузии [8, 9] или отношение радиуса частицы к глубине реакционной зоны,  $D_v$  — коэффициент внутренней диффузии, м<sup>2</sup>/с;  $h$  — глубина реакционной зоны внутреннего реагирования, м.

Коэффициент внутренней диффузии выражается через порозность частицы [1, 5], а коэффициент диффузии в газовой фазе взят при температуре частицы

$$D_v = m^2 \cdot D_{g,0} \left( \frac{T}{T_0} \right)^{1.75}, \quad (5)$$

где  $D_{g,0}$  — коэффициент диффузии при температуре  $T_0$ , м<sup>2</sup>/с;  $m$  — порозность частицы.

Суммарная скорость химического превращения углеродной частицы и плотность химического тепловыделения

$$W_C = \frac{M_C}{M_{O_2}} (k_1 + 2k_2) (1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s} + \frac{M_C}{M_{CO_2}} k_3 \rho_{g,s} C_{CO_2,s}, \quad (6)$$

$$q_{ch} = q_{ch,s} + q_{ch,v},$$

$$q_{ch} = (k_1 Q_1 + k_2 Q_2) (1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s} - k_3 Q_3 \rho_{g,s} C_{CO_2,s}, \quad (7)$$

где  $Q_1, Q_2$  — тепловые эффекты химических реакций (I) и (II), рассчитанные на единицу массы кислорода, Дж/кг;  $Q_3$  — тепловой эффект реакции (III), рассчитанный на единицу массы углекислого газа, Дж/кг;  $q_{ch}, q_{ch,s}, q_{ch,v}$  — суммарная плотность химического тепловыделения, на поверхности и внутри частицы, соответственно, Вт/м<sup>2</sup>.

Влияние относительной скорости движения частицы на кинетику химических реакций и теплообмен учитывается радиусом приведенной пленки  $r_f$ , на поверхности которой задаются параметры невозмущенного потока [1, 2]. Для случая отсутствия вынужденной и естественной конвекций (частица неподвижна относительно газа,  $Nu=2$ ) радиус приведенной пленки  $r_f$  равен бесконечности. Радиус приведенной пленки уменьшается с увеличением интенсивности естественной и вынужденной конвекций, приближаясь к радиусу частицы  $r_s$ . Зависимость  $r_f/r_s$  от критерия Нуссельта имеет вид:

$$\frac{r_f}{r_s} = \left(1 - \frac{2}{Nu}\right)^{-1}, \quad (8)$$

$$Nu = \frac{\alpha \cdot d}{\lambda_g} = \frac{\beta \cdot d}{D_g}, \quad (9)$$

$$Nu = 2 + A Re^{1/2} Pr^{1/3}, \quad A = 0.6, [5, 10]$$

$$Re = Re_v + Re_G, \quad Re_v = \frac{Vd}{\nu_g}, \quad Re_G = B\sqrt{Gr}, \quad B = 2.5,$$

$$Gr = \frac{gd^3(T - T_{g,\infty})}{T_0 \cdot \nu_g^2}, \quad \nu_g = Pr \cdot a_g, \quad a_g = \frac{\lambda_g}{c_g \rho_g}, \quad D_g = D_{g,0} \left(\frac{T_*}{T_0}\right)^{1.75},$$

$$\lambda_g = \lambda_{g,0} \left(\frac{T_*}{T_0}\right)^n, \quad \rho_g = \rho_{g,0} \left(\frac{T_0}{T_*}\right), \quad T_* = \frac{T + T_{g,\infty}}{2}, \quad n = 0,75,$$

где  $Re, Re_v, Re_G$  — критерии Рейнольдса, определяющие суммарную, вынужденную и естественную конвекции;  $Gr, Pr$  — критерии Грасгофа и Прандтля;  $V$  — относительная скорость частицы, м/с;  $\nu_g$  — кинематичес-

кая вязкость газа, м<sup>2</sup>/с;  $g$  — ускорение свободного падения, м/с<sup>2</sup>;  $a_g$  — температуропроводность газовой смеси, м<sup>2</sup>/с;  $\lambda_g$  — коэффициент теплопроводности газовой смеси, Вт/(м К);  $\beta$  — коэффициент массообмена, м/с;  $c_g$  — удельная теплоемкость газовой смеси, Дж/(кг К);  $T_{g,s}$ ,  $T_{g,\infty}$  — температура газовой смеси на поверхности частицы и в газовой фазе, К.

Зависимости  $T_g(r)$ ,  $C_{O_2}(r)$ ,  $C_{CO_2}(r)$ ,  $C_{CO}(r)$ ,  $C_{N_2}(r)$  для  $r_s < r < r_f$  находятся из решения уравнений теплопроводности, диффузии и неразрывности

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial r}(r^2 \lambda_g \frac{\partial T_g}{\partial r}) &= \frac{\partial}{\partial r}(c_g T_g \rho_g U r^2), \\ \frac{\partial}{\partial r}(r^2 \rho_g D_g \frac{\partial C_j}{\partial r}) &= \frac{\partial}{\partial r}(C_j \rho_g U r^2), \\ \rho_g U r^2 &= \rho_{g,s} U_s r_s^2\end{aligned}\quad (10)$$

при граничных условиях

$$\begin{aligned}T_g(r=r_s) &= T_{g,s} = T, \quad C_j(r=r_s) = C_{j,s}, \\ T_g(r=r_f) &= T_{g,\infty}, \quad C_j(r=r_f) = C_{j,\infty},\end{aligned}$$

где  $U$ ,  $U_s$  — скорость стефановского течения текущая и на поверхности частицы, м/с;  $j$  — 1 для O<sub>2</sub>, 2 — CO<sub>2</sub>, 3 — CO, 4 — N<sub>2</sub>.

Введем безразмерные переменные

$$\theta = \frac{C_j - C_{j,s}}{C_{j,\infty} - C_{j,s}} = \frac{T_g - T_{g,s}}{T_{g,\infty} - T_{g,s}}, \quad \xi = \frac{U_s \rho_{g,s} r_s}{D_g \rho_g} \left(1 - \frac{r_s}{r}\right)$$

и безразмерную скорость стефановского течения

$$\xi_f = \frac{U_s \rho_{g,s} r_s}{D_g \rho_g} \left(1 - \frac{r_s}{r_f}\right), \quad \xi_f = \frac{U_s r_s \rho_{g,s}}{\beta \rho_g}.$$

Это дает возможность свести систему уравнений (10) к одному уравнению относительно  $\theta$

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial \xi^2} + \frac{\partial \theta}{\partial \xi} = 0, \quad \theta(\xi = \xi_s) = 0, \quad \theta(\xi = \xi_f) = 1.$$

Решение этого уравнения представим в виде

$$\theta = \frac{C_j - C_{j,s}}{C_{j,\infty} - C_{j,s}} = \frac{T_g - T_{g,s}}{T_{g,\infty} - T_{g,s}} = \frac{\exp(\xi) - 1}{\exp(\xi_f) - 1}. \quad (11)$$

Для  $\xi \ll 1$  и  $\xi_f \ll 1$ , полагая, что  $\exp(\xi) = 1 + \xi$ ,  $\exp(\xi_f) = 1 + \xi_f$ , имеем

$$\theta = \frac{\xi}{\xi_f} = \frac{\frac{1}{r} - \frac{1}{r_s}}{\frac{1}{r_f} - \frac{1}{r_s}} = \frac{T_g - T_{g,s}}{T_{g,\infty} - T_{g,s}}.$$

На поверхности частицы перенос тепла и масс газообразных компонент осуществляется теплопроводностью, концентрационной диффузией и стефановским течением, которые определяются химическим превращением твердого углерода в газообразные компоненты в результате реакций (I), (II), (III). Поскольку молярные массы газообразных компонент близки, то переносом тепла, диффузионной теплопроводностью, и масс, термодиффузией, можно пренебречь [1, 2]. Выражения для плотностей теплового и массовых потоков на поверхности сферической частицы с учетом стефановского течения имеют вид

$$q_g = -\lambda_g \left. \frac{\partial T_g}{\partial r} \right|_s + c_g (\rho_g U)_s (T_{g,s} - T_{g,\infty}), \quad (12)$$

$$j_{j,s} = -D_g \rho_g \left. \frac{\partial C_j}{\partial r} \right|_s + (\rho_g U)_s (C_{j,s} - C_{j,\infty}), \quad (13)$$

где  $r$  — радиальная координата, м;  $C_{j,s}$ ,  $C_{j,\infty}$  — относительные массовые концентрации компонент газовой смеси на поверхности частицы и приведенной пленки;  $D_g$ ,  $D_{O_2}$ ,  $D_{CO_2}$ ,  $D_{CO}$ ,  $D_{N_2}$  — коэффициенты диффузии компонент газовой смеси, м<sup>2</sup>/с.

Плотности тепловых и массовых потоков, коэффициенты теплообмена в явном виде не зависят от времени, так как характерное время установления стационарных полей концентраций и температур в газовой фазе меньше времени изменения температуры частицы.

Подставив (11) в (12), учитывая (9), найдем плотность теплового потока, характеризующий теплообмен поверхности частицы с газом

$$q_g = \alpha \left[ (T - T_{g,\infty}) \frac{\xi_f}{\exp(\xi_f) - 1} + \xi_f T \right]. \quad (14)$$



Подставляя  $\exp(\xi_f) = 1 + \xi_f + \frac{1}{2} \xi_f^2$  в (14), получим, что в первом приближении  $q_g$  определяется суммой плотностей тепловых потоков за счет простого теплообмена и стефановского течения

$$q_g = \alpha \left[ (T - T_{g,\infty}) + \frac{\xi_f}{2} (T + T_{g,\infty}) \right]. \quad (15)$$

Относительные массовые концентрации кислорода  $C_{O_2,s}$ , диоксида углерода  $C_{CO_2,s}$ , оксида углерода  $C_{CO,s}$  и азота  $C_{N_2,s}$ , а так же скорость стефановского течения  $U_s$  находятся из равенств плотностей массовых потоков  $O_2$ ,  $CO_2$ ,  $CO$  и  $N_2$ , записанных с учетом стефановского течения (13), скоростям химических реакций по соответствующим компонентам.

$$\begin{aligned} j_{O_2,s} &= D_g \rho_g \left. \frac{\partial C_{O_2}}{\partial r} \right|_s - (\rho_g U)_s C_{O_2,s} = (k_1 + k_2)(1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s}, \\ j_{CO_2,s} &= D_g \rho_g \left. \frac{\partial C_{CO_2}}{\partial r} \right|_s + (\rho_g U)_s C_{CO_2,s} = \\ &= \frac{M_{CO_2}}{M_{O_2}} k_1 (1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s} - k_3 \rho_{g,s} C_{CO_2,s}, \\ j_{CO,s} &= D_g \rho_g \left. \frac{\partial C_{CO}}{\partial r} \right|_s + (\rho_g U)_s C_{CO,s} = \\ &= \frac{2M_{CO}}{M_{O_2}} k_2 (1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s} + \frac{2M_{CO}}{M_{CO_2}} k_3 \rho_{g,s} C_{CO_2,s}, \\ j_{N_2,s} &= D_g \rho_g \left. \frac{\partial C_{N_2}}{\partial r} \right|_s - (\rho_g U)_s C_{N_2,s} = 0. \end{aligned} \quad (16)$$

Предполагается, что коэффициенты диффузии компонент газовой смеси равны  $D_g = D_{O_2} = D_{CO_2} = D_{CO} = D_{N_2}$ . Применяя условие,  $C_{O_2} + C_{CO_2} + C_{CO} + C_{N_2} = 1$ , из (16) получим, что безразмерная массовая скорость стефановского течения на поверхности частицы определяется алгебраической суммой плотностей массовых потоков компонент газовой смеси

$$\begin{aligned}\xi_f &= (\rho_g U)_s / \beta \rho_g = (j_{CO_2,s} + j_{CO,s} - j_{N_2,s} - j_{O_2,s}) / (\beta \rho_g) = \\ &= \frac{M_C}{M_{O_2}} \frac{(k_1 + 2k_2)(1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s}}{\beta \rho_g} + \frac{M_C}{M_{CO_2}} \frac{k_3 \rho_{g,s}}{\beta \rho_g} C_{CO_2,s}.\end{aligned}\quad (17)$$

Сравнивая (17) с выражением (6) для  $W_C$ , видим, что массовая скорость стефановского течения на поверхности углеродной частицы равна скорости ее химического превращения в газообразные компоненты

$$(\rho_g U)_s = W_C.$$

Подставив (11) в левые части уравнений (16), получим систему уравнений, которая совместно с (18) позволяет найти  $C_{O_2,s}$ ,  $C_{CO_2,s}$ ,  $C_{CO,s}$ ,  $C_{N_2,s}$  и  $\xi_f$

$$\begin{aligned}\beta \rho_g \frac{[C_{O_2,\infty} \exp(-\xi_f) - C_{O_2,s}] \xi_f}{1 - \exp(-\xi_f)} &= (k_1 + k_2)(1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s}, \\ \beta \rho_g \frac{[C_{CO_2,s} - C_{CO_2,\infty} \exp(-\xi_f)] \xi_f}{1 - \exp(-\xi_f)} &= \\ &= \frac{M_{CO_2}}{M_{O_2}} k_1 (1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s} - k_3 \rho_{g,s} C_{CO_2,s}, \\ \beta \rho_g \frac{[C_{CO,s} - C_{CO_2,\infty} \exp(-\xi_f)] \xi_f}{1 - \exp(-\xi_f)} &= \\ &= \frac{2M_{CO}}{M_{O_2}} k_2 (1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,s} + \frac{2M_{CO}}{M_{CO_2}} k_3 \rho_{g,s} C_{CO_2,s}, \\ \beta \rho_g \frac{[C_{N_2,\infty} \exp(-\xi_f) - C_{N_2,s}] \xi_f}{1 - \exp(-\xi_f)} &= 0.\end{aligned}\quad (19)$$

Обозначив  $F_\xi = (1 - \exp(-\xi_f)) / \xi_f$ , из (19) выразим поверхностные концентрации компонент через  $\xi_f$

$$C_{O_2,s} = C_{O_2,\infty} \frac{\beta \rho_g (1 - \xi_f F_\xi)}{\beta \rho_g + (k_1 + k_2)(1 + P_v) \rho_{g,s} F_\xi}, \quad (20)$$

$$C_{CO_2,s} = C_{CO_2,\infty} \frac{\beta \rho_g (1 - \xi_f F_\xi)}{\beta \rho_g + k_3 \rho_{g,s} F_\xi} + C_{O_2,s} \frac{M_{CO_2}}{M_{O_2}} \frac{k_1 \rho_{g,s} F_\xi (1 + P_v)}{(\beta \rho_g + k_3 \rho_{g,s} F_\xi)}, \quad (21)$$

$$C_{CO,s} = C_{CO,\infty} (1 - \xi_f F_\xi) + \frac{2M_{CO}}{M_{O_2}} C_{O_2,s} \frac{\rho_{g,s} F_\xi}{\beta \rho_g} \left( k_2 (1 + P_v) + k_3 \frac{M_{O_2}}{M_{CO_2}} \frac{C_{CO_2,s}}{C_{O_2,s}} \right), \quad (22)$$

$$C_{N_2,s} = C_{N_2,\infty} \exp(-\xi_f). \quad (23)$$

Подставляя (20) и (21) в первое выражение системы (16), получим трансцендентное уравнение для определения безразмерной скорости стефановского течения на поверхности частицы

$$\xi_f = C_{O_2,\infty} \frac{M_C}{M_{O_2}} \frac{(1 - \xi_f F_\xi)(1 + P_v) \rho_{g,s}}{\beta \rho_g + (k_1 + k_2) \rho_{g,s} (1 + P_v) F_\xi} \times \\ \times \left[ k_1 + 2k_2 + \frac{k_1 k_3 \rho_{g,s} F_\xi}{\beta \rho_g + k_3 \rho_{g,s} F_\xi} \right] + \frac{M_C}{M_{CO_2}} C_{CO_2,\infty} \frac{k_3 \rho_{g,s} (1 - \xi_f F_\xi)}{\beta \rho_g + k_3 \rho_{g,s} F_\xi}. \quad (24)$$

Численные расчеты показывают, что  $\xi_f \ll 1$ . С учетом приближения  $\exp(-\xi_f) = 1 - \xi_f$  и, полагая, что  $C_{CO_2,\infty} = 0$ , из (24) получим, что безразмерная скорость стефановского течения и, следовательно, скорость химического превращения углеродной частицы имеют следующий вид:

$$\xi_f = \frac{U_{s,k}}{\beta} \frac{\rho_{g,s}}{\rho_g} [Se_s + 1]^{-1}, \\ W_c = \xi_f \beta \rho_g, \\ Se_s = \frac{(k_1 + k_2)(1 + P_v) + U_{s,k}}{\beta} \frac{\rho_{g,s}}{\rho_g}, \quad (25)$$

$$U_{s,k} = C_{O_2,\infty} \frac{M_C}{M_{O_2}} \left[ k_1 + 2k_2 + \frac{k_1 k_3 \rho_{g,s}}{k_3 \rho_{g,s} + \beta \rho_g} \right] (1 + P_v), \quad (26)$$

где  $U_{s,k}$  — скорость стефановского течения при протекании химической реакции в кинетической области

Подставляя (25) в (20) при  $F_\xi = 1$ , получим связь  $C_{O_2,s}$  с  $C_{O_2,\infty}$  в явном виде

$$C_{O_2,s} = C_{O_2,\infty} [Se_s + 1]^{-1}. \quad (27)$$

В предположении, что  $C_{CO_2,\infty} = 0$ ,  $C_{CO,\infty} = 0$ ,  $C_{N_2,\infty} = 1 - C_{O_2,\infty}$ , аналогичным образом из (21), (22), (23) находим поверхностные концентрации  $CO$ ,  $CO_2$  и  $N_2$

$$C_{CO_2,s} = C_{O_2,s} \frac{M_{CO_2}}{M_{O_2}} \frac{k_1 \rho_{g,s} (1 + P_v)}{(\beta \rho_g + k_3 \rho_{g,s})},$$

$$C_{CO,s} = C_{O_2,s} \frac{2M_{CO}}{M_{O_2} \beta} \frac{\rho_{g,s}}{\rho_g} \left( k_2 + \frac{k_1 k_3 \rho_{g,s}}{\beta \rho_g + k_3 \rho_{g,s}} \right) (1 + P_v), \quad (28)$$

$$C_{N_2,s} = (1 - C_{O_2,\infty})(1 - \xi_f).$$

Используя формулы (27) и (28), проведем анализ влияния температуры на  $C_{O_2,s}$ ,  $C_{CO_2,s}$ ,  $C_{CO,s}$ ,  $C_{N_2,s}$  и, следовательно, на  $W_C$  и  $q_{ch}$ . Из рис.1 видно, что при невысоких температурах химические реакции протекают в кинетической области, для которой

$$\frac{k_1 + k_2 + k_v + U_{s,k}}{\beta} \ll 1, \quad \frac{k_3}{\beta} \ll 1.$$

Из (6) с учетом (27), (28) следует, что при этих условиях

$$W_C = \frac{M_C}{M_{O_2}} (k_1 + 2k_2)(1 + P_v) \rho_{g,s} C_{O_2,\infty},$$

$$C_{O_2,s} = C_{O_2,\infty}, \quad C_{CO_2,s} = C_{O_2,\infty} \frac{M_{CO_2}}{M_{O_2}} \frac{k_1 \rho_{g,s}}{\beta \rho_g} (1 + P_v),$$

$$C_{CO,s} = C_{O_2,\infty} \frac{2M_{CO}}{M_{O_2}} \frac{k_2 \rho_{g,s}}{\beta \rho_g} (1 + P_v),$$

$$C_{N_2,s} = (1 - C_{O_2,\infty}) \left( 1 - \frac{U_{s,k}}{\beta} \frac{\rho_{g,s}}{\rho_g} \right),$$

$$q_{ch} = (k_1 Q_1 + k_2 Q_2) \rho_{g,s} (1 + P_v) C_{O_2,\infty}.$$

Т.е.  $q_{ch}$  и  $W_C$  определяются внутренним реагированием и увеличиваются с ростом температуры по аррениусовской зависимости и не зависят от диаметра и относительной скорости движения частицы. При этом химической реакцией (III) можно пренебречь (рис. 1, 2).

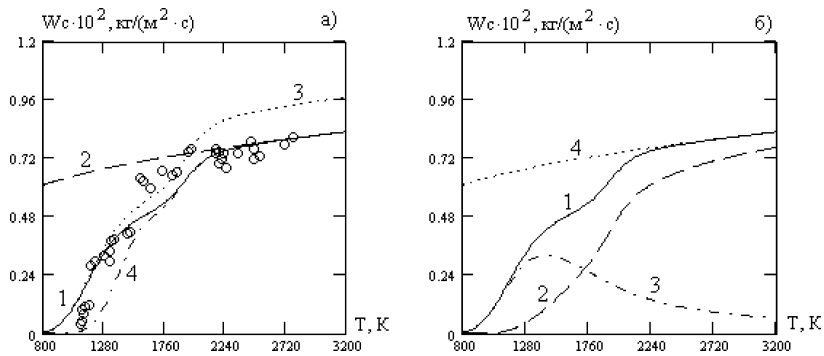


Рис. 1. Температурные зависимости скоростей химических реакций пористой углеродной частицы в воздухе с учетом стефановского течения и внутреннего реагирования а) 1 —  $W_C$ , 2 — протекание реакции  $2C + O_2 = 2CO$  в диффузионном режиме, 3 —  $W_C$  без учета стефановского течения, 4 —  $W_C$  без учета внутреннего реагирования,  $\circ\circ\circ\circ$  — эксперимент Головиной [5], ( $d = 1.5 \cdot 10^{-2}$  м,  $V = 0,6$  м/с,  $T_g = 293$  К).. б) 1 —  $W_C$ , 2 —  $W_{C,s}$ , 3 —  $W_{C,v}$ , 4 — расчет по формуле (36), ( $d = 1.5 \cdot 10^{-2}$  м,  $V = 0,6$  м/с,  $T_g = 293$  К).

В области промежуточных температур ( $1200\text{K} < T < 2400\text{K}$ ) повышение температуры приводит к подключению процессов массопереноса и эндотермической реакции (III), что сдвигает кинетику химических реакций в переходную область

$$\frac{(k_1 + k_2)(1 + P_v) + U_{s,k}}{\beta} \approx 1, \quad \frac{k_3}{\beta} \approx 1.$$

В этой области температур, в результате действия эндотермической реакции (III), в определенном диапазоне размеров частицы, с ростом температуры происходит понижение  $q_{ch}$  (рис. 2).

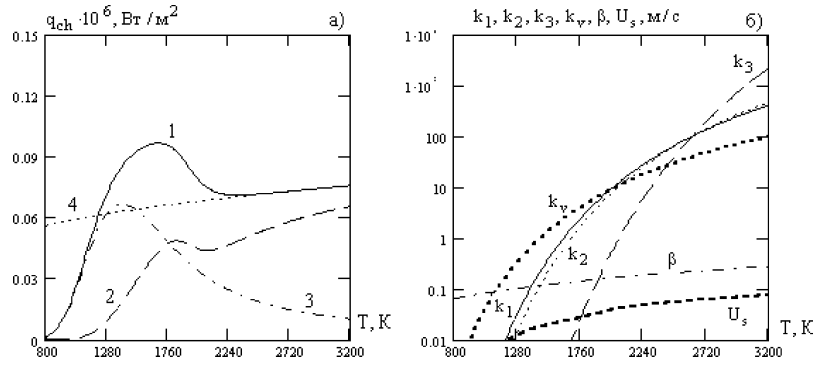


Рис. 2. а). Температурные зависимости плотностей химического тепловыделения пористой углеродной частицы от температуры с учетом стефановского течения и внутреннего реагирования ( $d = 1.5 \cdot 10^{-2}$  м). 1 —  $q_{ch}$ , 2 —  $q_{ch,s}$ , 3 —  $q_{ch,v}$ , 4 — протекание реакции  $2C + O_2 = 2CO$  в диффузионном режиме, пунктирная линия — расчет по формуле (35). б). Температурные зависимости констант скоростей химических реакций  $k_1$ ,  $k_2$  и  $k_3$ , коэффициента массообмена  $\beta$ , эффективной константы внутреннего реагирования  $k_v$  и скорости стефановского течения  $U_s$  пористой углеродной частицы от температуры ( $d = 1.5 \cdot 10^{-2}$  м)

Дальнейшее повышение температуры  $T > 2400$  К приводит к смещению кинетики химических реакций в диффузионную область, в которой выполняются условия

$$\frac{(k_1 + k_2)(1 + P_v) + U_{s,k}}{\beta} \gg 1, \quad \frac{k_3}{\beta} \gg 1.$$

Из (26) — (28) имеем

$$U_{s,k}^* = \frac{2M_c}{M_{O_2}} (1 + P_v)(k_1 + k_2) C_{O_2, \infty}, \quad (29)$$

$$P_{sf}^* = \frac{U_{s,k}^*}{(1+P_v)(k_1+k_2)} = \frac{2M_c}{M_{O_2}} C_{O_2,\infty}, \quad (30)$$

$$C_{O_2,s} = C_{O_2,\infty} \frac{\rho_g}{\rho_{g,s}} \frac{\beta}{(k_1+k_2)(1+P_v)+U_{s,k}^*}, \quad (31)$$

$$C_{CO_2,s} = C_{O_2,s} \frac{M_{CO_2}}{M_{O_2}} \frac{k_1}{k_3} (1+P_v), \quad (32)$$

$$C_{CO,s} = C_{O_2,s} \frac{2M_{CO}}{M_{O_2}} \frac{(k_1+k_2)}{\beta} \frac{\rho_{g,s}}{\rho_g}, \quad (33)$$

$$C_{N_2,s} = (1-C_{O_2,\infty}) \frac{1}{1+P_{sf}^*}. \quad (34)$$

Подставляя (31) и (32) в (7) получим, что плотность химического тепло-выделения равна

$$q_{ch} = \left[ \left( Q_1 - Q_3 \frac{M_{CO_2}}{M_{O_2}} \right) k_1 + Q_2 k_2 \right] \frac{\beta}{(k_1+k_2)(1+P_{sf}^*)} \rho_g C_{O_2,\infty}.$$

Тепловые эффекты реакций (I) — (III) связаны между собой по следствию из закона Гесса. Нетрудно показать, что

$$Q_2 = Q_1 - Q_3 \frac{M_{CO_2}}{M_{O_2}},$$

тогда плотность химического тепловыделения в диффузионной области можно представить в виде

$$q_{ch} = Q_2 \beta \rho_g \frac{1}{1+P_{sf}^*} C_{O_2,\infty}. \quad (35)$$

Скорости химического превращения углеродной частицы  $W_{C,s}$  и  $W_{C,v}$  при протекании химических реакций в диффузионном режиме, получаются в результате подстановки (31), (32) в (1) и (2)

$$W_{C,s} = \frac{M_C}{M_{O_2}} \beta \rho_g C_{O_2,\infty} \frac{2(k_1 + k_2) + k_1 P_v}{(k_1 + k_2)(1 + P_v) + U_{s,k}^*},$$

$$W_{C,v} = \frac{M_C}{M_{O_2}} \beta \rho_g C_{O_2,\infty} \frac{(k_1 + 2k_2) P_v}{(k_1 + k_2)(1 + P_v) + U_{s,k}^*}.$$

Тогда с учетом (29) и (30) получим, что суммарная скорость химического превращения углерода при высокой температуре определяется скоростью химической реакции  $2C + O_2 = 2CO$  (II), протекающей в диффузионной области

$$W_C = \frac{2M_C}{M_{O_2}} \beta \rho_g C_{O_2,\infty} \frac{1}{1 + P_{sf}^*}. \quad (36)$$

При высоких температурах  $W_C$  увеличивается с уменьшением диаметра почти по обратно пропорциональной зависимости, поскольку  $Nu$  слабо зависит от диаметра частицы. Рост относительной скорости движения газа приводит к слабому увеличению критерия Нуссельта и, следовательно,  $q_{ch}$  и  $W_C$ .

Расчеты проводились при следующих параметрах:  $Q_1 = 1,234 \cdot 10^7$ ,  $Q_2 = 6,859 \cdot 10^6$ ,  $Q_3 = 3,989 \cdot 10^6$  Дж/кг  $O_2$ ;  $k_{01} = 2,188 \cdot 10^5$ ,  $k_{02} = 4,721 \cdot 10^5$ ,  $k_{03} = 2,228 \cdot 10^5$  м/с;  $E_1 = 1,67 \cdot 10^5$ ,  $E_2 = 1,837 \cdot 10^5$ ,  $E_3 = 3,674 \cdot 10^5$  Дж/моль;  $R = 8,31$  Дж/(моль·К);  $F_v = 2 \cdot 10^5$  м<sup>-1</sup>; постоянные величины:  $D_{g,0} = 0,178 \cdot 10^{-4}$  м<sup>2</sup>/с;  $\rho_{g,0} = 1,293$  кг/м<sup>3</sup>;  $\lambda_{g,0} = 0,0244$  Вт·м/К определены для  $T_0 = 273,15$  К;  $\varepsilon = 0,78$ ;  $\sigma = 5,67 \cdot 10^{-8}$  Вт/(м<sup>2</sup>·К<sup>4</sup>),  $m = 0.2$  и соответствуют графиту марки ЭГ-14.

Из рис. 1-3 видно, что при невысоких температурах ( $T < 1200$  К) скорость химических реакций и плотность химического тепловыделения определяются внутренним реагированием. В области температур ( $1200 \text{ К} < T < 2400 \text{ К}$ ) увеличение температуры приводит к подключению последовательной эндотермической реакции (III). При высоких температурах ( $T > 2400$  К) стефановское течение и, следовательно, кинетика химических превращений и тепло-массообмен пористой углеродной частицы, определяются кинетикой химической реакции  $2C + O_2 = 2CO$ , протекающей в диффузионном режиме. Температурные зависимости относительных массовых концентраций компонент газовой смеси на поверхности пористой углеродной частицы от температуры (рис. 3) полностью подтверждают данное предположение. С учетом тормозящего действия стефановского течения расчеты по предложенной модели удовлетворительно согласуются с экспериментальными результатами Е.С. Головиной [5].



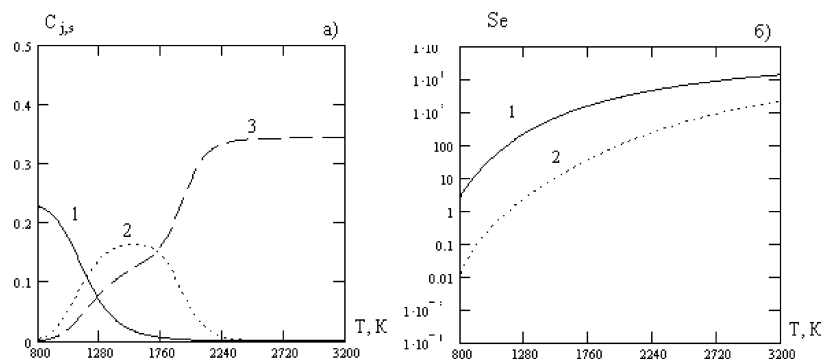


Рис. 3. Температурные зависимости относительных массовых концентраций компонент газовой смеси на поверхности пористой углеродной частицы от температуры ( $d=1.5 \cdot 10^{-2}$  м). 1 —  $C_{O_2,s}$ , 2 —  $C_{CO_2,s}$ , 3 —  $C_{CO,s}$ ; б) Температурные зависимости критерия Семенова 1 —  $Se_v$  внутри частицы, 2 —  $Se_s$  на поверхности частицы.

#### Литература

1. Основы практической теории горения / Под ред. В.В. Померанцева. — Л.: Энергоатомиздат, 1986. — 312 с.
2. Франк-Каменецкий Д.А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике. — М., 1987. — 502 с.
3. Калинин В. В. Влияние стефановского течения и конвекции на кинетику химических реакций теплообмена углеродных частиц с газами // Инженерно-физический журнал. — 2001. — Т. 74, № 2. — С. 51-56.
4. Калинин В.В., Орловская С.Г., Калинин А.И., Дубинский А.В. Высоко- и низкотемпературный теплообмен углеродной частицы с воздухом при учете стефановского течения и теплопотерь излучением // Теплофизика высоких температур. — 1996. — Т.34, № 1. — С. 83-91.
5. Головина Е.С. Высокотемпературное горение и газификация углерода. — М., 1986. — 176 с.
6. Букатый В.И., Суторихин И.А. Высокотемпературное горение углеродных частиц в поле лазерного излучения // Физика горения и взрыва. — 1988. — Т. 24, №3. — С. 9-11.
7. Калинин В.В., Орловская С.Г., Мандель А.В. Устойчивые и критические режимы тепло- и массообмена частицы, находящейся в поле лазерного излучения // Физика горения и взрыва. — 1999. — Т. 35, №6. — С. 1-6.
8. Калинин В. В., Орловская С. Г., Гулеватая О. Н. Высокотемпературный

- тепломассообмен нагреваемой лазерным излучением углеродной частицы с учетом стефановского течения на ее поверхности // Физика аэродисперсных систем. — 2001. — Т. 38. — С. 158-169.
9. Kalinchak V. V., Sadkovskii V. I., Kharlampieva N. A.. The effect of internal diffusion on the critical conditions and characteristics of the high- and low temperature states of carbon particles // High Temperature. — 1997. — V. 35, №1. — P. 70-76.
10. Нигматулин Р. И. Динамика многофазных сред. Часть первая. — М.: Наука, 1987. — 464 с.

*В. В. Калінчак, О. М. Гулєвата, А. І. Калінчак, С. Г. Орловська*

**Високотемпературний тепломасообмін і кінетики хімічних реакцій пористого вуглецю з повітрям з урахуванням стефанівської течії**

**АНОТАЦІЯ**

Аналізується роль стефанівської течії та внутрішнього реагування в процесах високотемпературного тепломасообміну і кінетики хімічних реакцій ( $C+O_2=CO_2$  (I),  $2C+O_2=2CO$  (II),  $C+CO_2=2CO$  (III)) пористої вуглицевої частинки з повітрям. Встановлено, що внутрішнє реагування оказує вплив при відносно низьких температурах частинки. При високих температурах сумарна швидкість перетворення вуглецю і відповідно швидкість стефанівської течії на поверхні частинки визначається кінетикою хімічної реакції (II), яка протікає в дифузійній області.

*Kalinchak V. V., Gulevataya O. N., Kalinchak A. I., Orlovskaya S. G.*

**High-temperature heat- and mass- exchange and kinetics of chemical reaction porous carbon particle in air with account Stefan flow**

**SUMMARY**

The role of Stefan flow and interior reaction in process of high-temperature heat- and mass- exchange and kinetics of chemical reactions ( $C+O_2=CO_2$  (I),  $2C+O_2=2CO$  (II),  $C+CO_2=2CO$  (III)) porous carbon particle in air has been analyzed. It has been established that interporous of reacting maces influence relatively low temperatures of particle. At high temperature the total velocity of transformation of carbonic particle and accordingly velocity of Stefan flow at the surfase of particle has been determine of kinetics of chemscal reaction (II) which flow in diffusion area.

**A. V. Turin<sup>1</sup>, G. P. Prepelitsa<sup>2</sup>, V. P. Kozlovskaya<sup>3</sup>**

<sup>1</sup>*I. I. Mechnikov Odessa National University,*

<sup>2</sup>*Odessa National Polytechnical University,*

<sup>3</sup>*Odessa State Environmental University*

### **Kinetics of energy and heat exchange in mixture CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>O of atmospheric gases interacting with ir laser radiation: Precise 3-mode kinetical model**

A kinetics of energy and heat exchange in the mixture CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O gases in atmosphere under passing the powerful CO<sub>2</sub> laser radiation pulses is studied. More precise three-mode model of kinetical processes is formulated. The estimate for realization of the kinetical cooling effect by CO<sub>2</sub> for different atmosphere conditions and laser pulses parameters (pulse form, duration etc.) is given.

Studying interaction of the powerful laser radiation with aerosol atmosphere and search of new non-linear optical effects is related to class of actual serious problems of modern aerosol laser physics (c.f.[1-6]). It is well known that in the resonant absorption of IR laser radiation by the atmospheric molecular gases a redistribution of molecules on the energy levels of internal degree of freedom occurs and the saturation of absorption results in the changes of the absorption coefficient of gas [1]. The change of level population for gas composition leads to the disturbance of thermodynamic equilibrium between the oscillations of molecules and its translation. Because of this circumstance an effect of the kinetic cooling of environment may take a place, as it was at first predicted in ref. [2,5]. It should be noted that a new effect of kinetical cooling CO<sub>2</sub> in a process of absorption of the laser energy by molecular gas was considered for the middle latitude atmosphere and for special form of a laser pulse. Besides, there were used approximate values for constants of collisional deactivation and resonant transfer in reaction CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>. At the same time using more precise values for all constants may lead to quantitative changing temporary dependence of the resonant absorption coefficient by CO<sub>2</sub>. This is accompanied by additional important effects. The formation and accumulation of the excited molecules of nitrogen owing to the resonant transfer of excitation from the molecules CO<sub>2</sub> results in the change of environment polarizability. Perturbing the complex conductivity of environment, all these effects are able to transform significantly the impulse energetics of IR lasers in an atmosphere and significantly change realization of different non-linear laser-aerosol effects. An effective example is the pulsed enlightenment of artificial water aerosol by the CO<sub>2</sub> laser radiation [2]. In this paper we study a kinetics of energy and heat exchange in the mixture CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O gases in atmosphere under passing the powerful CO<sub>2</sub> laser radiation pulses

and given the estimate for realization of the kinetical cooling effect by  $\text{CO}_2$  for different atmosphere conditions and laser pulses parameters (pulse form, duration etc.).

To describe the energy exchange and relaxation processes in the  $\text{CO}_2$ - $\text{N}_2$ - $\text{H}_2\text{O}$  mixture, which interacts with laser radiation, we start from the modified three-mode model of kinetic processes [5,6]. We consider a kinetics of three levels:  $10^0$ ,  $00^01$  ( $\text{CO}_2$ ) and  $v = 1$  ( $\text{N}_2$ ). Availability of atmospheric constituents  $\text{O}_2$  and  $\text{H}_2\text{O}$  is allowed for the definition of the rate of vibrating-transitional relaxation of  $\text{N}_2$ . The system of balance equations for relative populations is written in a standard form as follows:

$$\begin{aligned}\frac{dx_1}{dt} &= -\beta(\omega + 2gP_{10})x_1 + \beta\omega x_2 + 2\beta gP_{10}x_1^0, \\ \frac{dx_2}{dt} &= \omega x_1 - (\omega + Q + P_{20})x_2 + Qx_3 + P_{20}x_2^0, \\ \frac{dx_3}{dt} &= \delta Qx_2 - (\delta Q + P_{30})x_3 + P_{30}x_3^0.\end{aligned}\quad (1)$$

Here,  $x_1 = N_{100}/N_{\text{CO}_2}$ ,  $x_2 = N_{001}/N_{\text{CO}_2}$ ,  $x_3 = \delta N_{\text{N}_2}/N_{\text{CO}_2}$ ;  $N_{100}$ ,  $N_{001}$  are the level populations  $10^0$ ,  $00^01$  ( $\text{CO}_2$ );  $N_{\text{N}_2}$  is the level population  $v = 1$  ( $\text{N}_2$ );  $N_{\text{CO}_2}$  is the concentration of  $\text{CO}_2$  molecules;  $\delta$  is the ratio of the common concentrations of  $\text{CO}_2$  and  $\text{N}_2$  in the atmosphere ( $\delta = 3.85 \cdot 10^{-4}$ );  $x_1^0$ ,  $x_2^0$  and  $x_3^0$  are the equilibrium relative values of populations under gas temperature  $T$ :

$$x_1^0 = \exp(-E_1/T), \quad (2)$$

$$x_2^0 = x_3^0 = \exp(E_2/T);$$

Values  $E_1$  and  $E_2$  in (1) are the energies (K) of levels  $10^0$ ,  $00^01$  (consider the energy of quantum  $N_2$  equal to  $E_2$ );  $P_{10}$ ,  $P_{20}$  and  $P_{30}$  are the probabilities ( $\text{s}^{-1}$ ) of the collisional deactivation of levels  $10^0$ ,  $00^01$  ( $\text{CO}_2$ ) and  $v = 1$  ( $\text{N}_2$ ),  $Q$  is the probability ( $\text{s}^{-1}$ ) of resonant transfer in the reaction  $\text{CO}_2 \rightarrow \text{N}_2$ ,  $\omega$  is the probability ( $\text{s}^{-1}$ ) of  $\text{CO}_2$  light excitation,  $g = 3$  is the statistical weight of level  $02^00$ ,  $\nu = (1+g)^{-1} = 1/4$ .

The solution of system (1) allows defining a coefficient of absorption of the radiation by the  $\text{CO}_2$  molecules according to the formula:

$$\alpha_{\text{CO}_2} = \sigma(x_1 - x_2)N_{\text{CO}_2}. \quad (3)$$

The  $y$  in (3) is dependent upon the thermodynamical medium parameters as follows [2]:

$$\sigma = \sigma_0 \frac{P}{P_0} \left( \frac{T}{T_0} \right)^{1/2}, \quad (4)$$

Here  $T$  and  $p$  are the air temperature and pressure,  $y_0$  is the cross-section of resonant absorption under  $T = T_0, p = p_0$ .

It is well known that the absorption coefficient for carbon dioxide and water vapour is dependent upon the thermodynamical parameters of aerosol atmosphere. In particular, for radiation of CO<sub>2</sub>-laser the coefficient of absorption by atmosphere  $\alpha_g = \alpha_{\text{CO}_2} + \alpha_{\text{H}_2\text{O}}$  is equal in conditions, which are typical for summer mid-latitudes,  $\bar{\sigma}_g(\text{H}=0) = 2.4 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$ , from which  $0.8 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1}$  accounts for CO<sub>2</sub> and the rest — for water vapour (data are from ref. [2]). On the large heights the sharp decrease of air moisture occurs and absorption coefficient is mainly defined by the carbon dioxide. The physics of resonant absorption process is defined by changing the population of low level 10°0 (CO<sub>2</sub>), population of level 00°1 and the vibrating-transitional relaxation (VT-relaxation) and the inter modal vibrating-vibrating relaxation (VV'-relaxation), which redistribute the energy between the vibrating and transitional freedom of the molecules. According to ref.[1], the threshold value, which corresponds to the decrease of absorption coefficient in two times, for the strength of saturation of absorption in vibrating-rotary conversion give  $I_{\text{sat}} = (2 \div 5) 10^5 \text{ W cm}^{-2}$  for atmospheric CO<sub>2</sub>. In this case the pulse duration  $t_i$  must satisfy the condition  $t_R \ll t_i < t_{VT}$  where  $t_R$  and  $t_{VT}$  are the times of rotary and vibrating-transitional relaxation's. by The fast exchange of level 10°0 with basic state, and by the relatively slow relaxation of high level 00°1 defines a renewal process of thermodynamic equilibrium is characterized. This can results in an energy outflow from the transitional degree of freedom onto vibrating ones and in the cooling of environment.

In table 1 we present the data for the relative coefficient of absorption  $\bar{\alpha}_{\text{CO}_2}$ , which is normalized on the linear coefficient of absorption, calculated using (1) on corresponding height  $H$ . All data for  $\bar{\alpha}_{\text{CO}_2}$  are obtained for the height distribution of pressure and temperature according to the mid-latitude atmospheric model [2] (A-data from ref.[2]; B — data of present paper).

In table 2 there are presented analogous our data for the relative coefficient of absorption  $\bar{\alpha}_{\text{CO}_2}$  and the height distribution of pressure and temperature are chosen for the Odessa-like atmospheric conditions according to atmospheric model [7,8]. It is clear that the temporary dependence of resonant absorption relative coefficient  $\bar{\alpha}_{\text{CO}_2}$  of laser radiation by CO<sub>2</sub> molecules for rectangular and gauss laser pulses differs.

A significant aspect of modelling is connected with the correct choice of probabilities  $P_{10}, P_{20}$  and  $P_{30}$  of the collisional deactivation of levels 10°0, 00°1 (CO<sub>2</sub>) and  $v = 1$  (N<sub>2</sub>), probability  $Q$  of resonant transfer in the reaction CO<sub>2</sub> → N<sub>2</sub>, probability  $\omega$  of CO<sub>2</sub> light excitation and other constants. We have used the calculated and compiled data for all constants, which are, in our opinion, to be more correct ones

at present time (c.f. [9-11] and refs in it). A quality of choice of the molecular constants may be significant under modelling the effect of kinetic cooling of the CO<sub>2</sub> under propagation of the laser radiation in atmosphere. Let us note further that an effect of kinetic cooling of the CO<sub>2</sub> is defined by the following condition [1]:

$$\alpha_{\text{H}_2\text{O}}^0 < (E_1 / (E_2 - E_1)) \alpha_{\text{CO}_2}^0 = 1.44 \alpha_{\text{CO}_2}^0 \quad (5)$$

Table 1

**Temporary dependence of resonant absorption relative coefficient  $\bar{\alpha}_{\text{CO}_2}$  (sm<sup>-1</sup>) of laser radiation ( $\lambda=10,6\mu\text{m}$ ) by CO<sub>2</sub> for rectangular (R) laser pulses (intensity I, 10<sup>5</sup> W/sm<sup>2</sup>) on the height (H, km) for the mid-latitude atmospheric model [1]: A- data of modelling [2]; B- (present paper).**

T μs	A [2] I; R H=0	A [2] 10-I; R H=0	A [2] I; R H=10	A [2] 10-I; R H=10	B I; R H=0	B 10-I; R H=0	B I; R H=10	B 10-I; R H=10	B I; G H=0	B 10-I; G H=0	B I; G H=10	B 10-I; G H=10
0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
1	0,94	0,60	0,48	0,12	0,93	0,57	0,45	0,11	0,91	0,55	0,40	0,10
2	0,88	0,52	0,34	0,08	0,85	0,48	0,31	0,05	0,82	0,43	0,25	0,03
3	0,90	0,63	0,41	0,27	0,88	0,60	0,36	0,19	0,85	0,56	0,30	0,17
4	0,91	0,67	0,48	0,35	0,90	0,65	0,43	0,28	0,89	0,61	0,36	0,25

Table 2

**Temporary dependence of the resonant absorption relative coefficient  $\bar{\alpha}_{\text{CO}_2}$  (sm<sup>-1</sup>) of laser radiation ( $\lambda=10,6\mu\text{m}$ ) by CO<sub>2</sub> for gauss (G) laser pulse (intensity I, 10<sup>5</sup> W/sm<sup>2</sup>) on the height (H, km):**

T μs	B I; G H=0	B 10-I; G H=0	B I; G H=10	B 10-I; G H=10
0	1,0	1,0	1,0	1,0
1	0,91	0,55	0,40	0,10
2	0,82	0,43	0,25	0,03
3	0,85	0,56	0,30	0,17
4	0,89	0,61	0,36	0,25

Taking into account the data of the tables 1 and 2 one can conclude and wait for the changing CO<sub>2</sub> kinetic cooling effect realization in dependence upon the atmospheric model conditions and parameters of laser radiation. The effect of kinetic cooling vanishes under some critical intensity. According to [2], under large intensities of radiation the energy flux, which is responsible for an existence of effect of kinetic cooling, from translational degrees of freedom into vibrating ones reaches the maximal magnitude and not depends on the intensity of incident radiation. But, the energy flux, which results in the heating of gas, onto translational degrees of freedom due to the

absorption of radiation by the water vapor remains proportional to the intensity of radiation. Consequently, starting with some critical intensity, the gas heating prevails over its cooling for any time instant. The more less exact estimate of the correspondent values must be based on using correct data for the atmospheric conditions, laser radiation and molecular parameters.

#### References

1. Zuev V.E., Zemlyanov A.A., Kopytin Y.D. Nonlinear Optics of Atmosphere.- L.:Hidrometeoizd., 1991. — 256 p.
2. Zuev V.E., Zemlyanov A.A., Kopytin Y.D., Kuzikovskiy A.V. Powerful laser radiation in an atmospheric aerosol. — Novosibirsk, 1984. — 224 p.
3. Bagratashvili V.N., Letokhov V.S., Makarov A.A., Ryabov E.A. Multi-Photon Processes in Molecules in Infrared laser field. — M.: Nauka, 1991 — 180 p.
4. Glushkov A.V., Prepelitsa G.P. Polischuk et al QED Theory of non-linear interaction of the complex atomic systems with laser field. Multiphoton Resonances // J. Techn. Phys. — 1997. — Vol. 38. — P. 219-224.
5. Gordiets B.F., Osipov A.I., Khokhlov R.V. About cooling the gas under powerful CO<sub>2</sub> laser radiation passing in atmosphere// J.Techn.Phys. — 1974. — Vol. 14. — P. 1063-1069.
6. Ambrosov S.V., Prepelitsa G.P. Spectroscopy of Atmosphere gases atoms and molecules: Nonlinear Spectroscopic Effects// Proc.32<sup>nd</sup> EPS Conf. EGAS. — Vilnius. — 2000. — P. 30.
7. Glushkov A.V., Mahmud A.A. Calculation of turbulent ventilation of industrial city// Meteorology and hydrology. — 1999. — №38. — P. 77-61.
8. Mahmud A.A. Calculation of turbulent regime of industrial city in a zone of dry subtropics// Meteorology and hydrology. — 1999. — №38. — P. 182-186.
9. Glushkov A.V., Ambrosov S.V., Malinovskaya S.V. et al. Spectroscopy of carbon dioxide: Oscillator strengths and energies of transitions in spectra of CO<sub>2</sub> // Optics and Spectroscopy. — 1996. — T. 80, № 1. — C. 60-65.

*А. В. Тюрин, Г. П. Препелица, В. П. Козловская*

**Кинетика энерго и тепло-обмена в смеси  $\text{CO}_2\text{-N}_2\text{-H}_2\text{O}$  атмосферных газов, взаимодействующей с ИК лазерным излучением: Уточненная 3-модовая модель кинетических процессов**

**АННОТАЦИЯ**

Рассмотрена кинетика энерго- и тепло-обмена в смеси  $\text{CO}_2\text{-N}_2\text{-H}_2\text{O}$  атмосферных газов при прохождении через атмосферу мощного излучения  $\text{CO}_2$  лазера в рамках уточненной 3-модовой модели кинетических процессов. Дана оценка условий реализации эффекта кинетического охлаждения углекислого газа в процессе поглощения лазерной энергии молекулярным газом для различных атмосферных условий и параметров лазерного импульса.

*А. В. Тюрін, Г. П. Препелица, В. П. Козловська*

**Кінетика енерго-і тепло-обміну у суміші  $\text{CO}_2\text{-N}_2\text{-H}_2\text{O}$  атмосферних газів, що взаємодіють з ІЧ лазерним випромінюванням: Уточнена 3-модова модель кінетичних процесів**

**АНОТАЦІЯ**

Розглянуто кінетику енерго- й тепло-обміну у суміші  $\text{CO}_2\text{-N}_2\text{-H}_2\text{O}$  атмосферних газів при проходженні скрізь атмосферу міцного випромінювання  $\text{CO}_2$  лазера у межах уточненої 3-модової моделі кінетичних процесів. Наведено оцінку умов реалізації ефекта кінетичного охолодження вуглекислого газу в процесі поглинення лазерної енергії молекулярним газом для різних атмосферних умов й параметрів лазерного імпульсу



УДК 535.42.:539.184.

*А. В. Глушков<sup>1</sup>, Т. Н. Зеленцова<sup>2</sup>, И. М. Шпинарева<sup>2</sup>, А. А. Свиаренко<sup>1</sup>*

*<sup>1</sup>Одесский государственный экологический университет*

*<sup>2</sup>Одесский национальный политехнический университет*

### **Кинетика энергообмена в молекулах $CF_3Br$ в среде буферного газа под действием интенсивного лазерного излучения**

В рамках стохастической, квантово-кинетической модели изучена кинетика энергообмена в молекулах  $^{12}CF_3Br$  и  $^{13}CF_3Br$  в среде буферного газа  $N_2$  и количественно оценены выход диссоциации и поглощаемая энергия для искомым молекул в зависимости от давления газа и интенсивности лазерного излучения.

В последние годы по-прежнему значительное внимание уделяется теоретическому и экспериментальному изучению процессов и механизмов энергообмена в различных газах, в частности, с приложением к задачам физики горения и взрыва, физики аэродисперсных систем [1-5]. Важный с прикладной точки зрения класс искомым задач связан с распространением мощного лазерного излучения в атмосферном аэрозоле, изучением кинетики энергообмена, напр., в углекислом газе и его смесях с другими газами и т.д. К числу серьезных экспериментальных проблем относится проблема разделения в эксперименте вкладов различных каналов энергообмена, релаксационных процессов, несмотря на наличие известной иерархии времен релаксации ( $\tau_{R} \ll \tau_{V-V} \ll \tau_{V-T}$ ). При изучении только вращательной (R) и колебательно-поступательной (V-T) релаксации удобно использовать такой способ как разбавление исследуемых молекул простыми буферными газами [1-3]. При этом влияние буферного газа на процессы возбуждения и диссоциации сводится, с одной стороны, к более эффективному вовлечению молекул в квазиконтинуум за счет вращательной релаксации на нижних уровнях. С другой стороны, имеет место V-T релаксация при столкновениях высоковозбужденных молекул с буфером, что в результате ведет к их дезактивации [2]. К числу наиболее эффективных моделей энергообмена изучаемых молекул в среде буферного газа относятся так называемые феноменологические кинетические модели (см., [1-5]), на основе которых удалось количественно оценить зависимость выхода диссоциации, поглощенной энергии от давления газа, а также интенсивности лазерного излучения, однако точность искомым оценок остается в ряде важных случаев очень низкой. Кроме того, до сих пор остается открытым вопрос о влиянии молекулярных столкновений на динамику и энергетику диссоциации, механизм поглощения и переноса энергии и

др. В данной работе в рамках стохастической квантово-кинетической модели [7] изучена кинетика энергообмена в молекулах  $^{12}CF_3Br$  и  $^{13}CF_3Br$  в среде буферного газа  $N_2$  и количественно оценены выход диссоциации и поглощаемая энергия для искомым молекул в зависимости от давления газа и интенсивности лазерного излучения.

Как обычно, стартовой является система кинетических уравнений, описывающие временное поведение населенностей колебательных уровней молекул в среде буферного газа при наличии лазерного излучения. Обычно колебательный спектр молекул качественно разделяют на участки низколежащих дискретных состояний и высоковозбужденных уровней квази континуума [1,4]. Весьма интересным эффектом здесь является реализация механизма хаотической диффузии в квазиконтинууме, при котором нелинейные колебания системы становятся стохастическими. Как и любой стохастический процесс, искомую ионизацию можно описать в диффузионном уравнении при достаточно больших временах действия поля или же при усреднении по большому числу исходных положений классических орбит системы в пространстве. Естественно, при этом стохастическое блуждание должно захватывать достаточно много уровней. Исходная система обобщенных кинетических уравнений вида в присутствии буфера имеет вид [7]:

$$\frac{\partial Z_n}{\partial t} = (W_{n-1,n} + k^{VT}_{n-1,n} p) Z_{n-1} + (W_{n+1,n} + k^{VT}_{n+1,n} p) Z_{n+1} - (W_{n-1,n} + k^{VT}_{n,n} p) W_{n+1,n} + k^{VT}_{n,n+1} p Z_n - d_n Z_n + \partial / \partial n [\Theta(n - N_{min}) D(R) n^3 \partial Z / \partial n] \quad (1)$$

В уравнениях (1)  $z_n$  — населенности возбуждаемых лазером состояний, энергии которых  $E_n$  кратны частоте фотона  $\nu$ ,  $W_{n,n \pm 1}$  — скорость радиационных переходов, причем  $W_{n,n \pm 1} = \sigma_{n',n \pm 1} I(t)$ , где  $\sigma_{n',n \pm 1}$  — сечения радиационных переходов вверх и вниз,  $I(t)$  — интенсивность лазерного излучения в фотон  $cm^{-2}c^{-1}$ ,  $k^{VT}_{n,n \pm 1}$  — константы скорости V-T-релаксации,  $d_n$  — скорость мономолекулярного распада, отличная от нуля при  $E_n > D$ ;  $\Theta(n - N_{min})$  — функция Хевисайда в качестве дополнительного множителя в коэффициенте диффузии  $D(R) n^3$ , осуществляющего “замораживание” стохастических процессов в области низколежащих состояний согласно известному критерию Чирикова. Основное упрощение, сделанное при записи (1), состоит в использовании той же сетки уровней  $E_n - E_{n-1} = h\nu$ , которая заселяется в бесстолкновительном случае [5]. Отличие нашей модели от стандартных моделей связано с явным учетом эффекта стохастического блуждания в квазиконтинууме [7]. Константы скорости релаксации  $k^{VT}_{n,n \pm 1}$  определяются через физические параметры молекулы. Столкновительное перераспределение населенностей определяется функцией вероятности перехода при столкновении  $k(E \rightarrow E')$  [4]. При этом физически значимой величиной является энергия, передаваемая за столкновение:

$$\Delta E(E) = \int_0^{\infty} dE' (E - E') k(E \rightarrow E') \quad (2)$$

В уравнениях (1) аналогичный параметр определяется как

$$\Delta E_n = (k_{n,n-1}^{VT} k_{n,n+1}^{VT}) \hbar \nu / Z \quad (3)$$

где  $Z$  — частота газокинетических столкновений. Условие

$$\Delta E(E_n) = \Delta E_n \quad (4)$$

определяет связь между феноменологическими релаксационными константами уравнения (1) и микроскопической физически значимой величиной  $\Delta E(E)$ . Для описания возбуждения молекул на нижних дискретных уровнях используется модель, в рамках которой система нижних уровней характеризуется двумя скоростями:  $W_0$  — радиационной скоростью возбуждения некоторых выделенных состояний и пропорциональной давлению скоростью вращательной релаксации  $-k_{BR}p$ . Стандартные уравнения, определяющие вовлечение молекул в квазиконтинуум в течение лазерного импульса имеют вид:

$$dN_j/dt = -W_0 z_j$$

$$dz_j/dt = -W_0 z_j + k_{BR}p (f N_0 - z_j)$$

$$dq/dt = -dN_j/dt, N_0(0) = 1, z_0(0) = f, \quad (5)$$

где  $f$  — доля резонансно взаимодействующих с полем молекул. Форма лазерного импульса моделировалась согласно [8] в виде:

$$I(t) \approx \begin{cases} \Phi_1 / \tau_1, & 0 < t < \tau_1 \\ (2\Phi_2 / \tau_2) [1 - ((t - \tau_1) / \tau_2)], & \tau_1 < t < \tau_1 + \tau_2 \end{cases} \quad (6)$$

где  $\Phi_1 = \Phi_2 = 1,3$  Дж/см<sup>2</sup>,  $\tau_1 = 70$  нс,  $\tau_2 = 1,5$  мкс. Касательно зависимости  $W_0(t)$  от интенсивности поля, отметим, что в квазиконтинууме вполне приемлемо предположение:  $W(t) \sim I(t)$ , а для нижних уровней дополнительно полагалось:

$$W_0 = 0 \text{ при } t > \tau_1.$$

Далее, согласно [5], при оценке выхода диссоциации использовалось предположение о мгновенности распада молекулы с уровня, на котором скорость мономолекулярной фрагментации на порядок превосходит скорость радиационных переходов. Величину  $d_n$  в (1) можно определить в рамках RRK-теории (см. [1,5]):

$$D_n = k_{diss} \rho(E_n - D) \rho(E_n), \quad (7)$$

где  $\rho$  — плотность колебательных состояний. Для реакции разрыва *C-Br* использованы оценки:  $k_{diss} \approx 10^{14}$  с<sup>-1</sup>,  $D \approx 24,3 \cdot 10^3$  см<sup>-1</sup> [24]. При  $\sigma \sim 10^{-18}$  см<sup>2</sup> система (1) ограничивалась уровнем  $n$  с энергией  $\sim 4 \cdot 10^4$  см<sup>-1</sup>. Наконец, следует отме-

титель, что, как правило, интегральная сила дипольного перехода с учетом переходов вверх и вниз не зависит от уровня возбуждения. Такое же соотношение будет почти верно и для сечений переходов в полосе ИК-активной моды в квазиконтинууме, что возможно при условии достаточно большого по сравнению с ангармоническим сдвигом и слабо изменяющегося в диапазоне характерных энергии квазиконтинуума внутримолекулярного уширения [1,6]. Что же касается зависимости  $\Delta E(E)$  в квазиконтинууме, то, как для  $CF_3Br$ , так и для других молекул, точные данные отсутствуют. Согласно [7], на основе сравнения данных о дезактивации азотом других молекул, предполагаемое значение  $\Delta E = const \cong 50-150 \text{ см}^{-1}$ . Для константы скорости  $k_{bp}$  использовалось значение, рекомендованное в [9]. Основные численные значения параметров модели приведены в таблице 1.

Полученные на основе изложенной модели данные приведены на рис. 1,2. На рис. 1 приведены зависимости выхода диссоциации  $^{12}\beta$ ,  $^{13}\beta$  от суммарного давления  $p\Sigma = p(N_2) + p(CF_3Br)$  [ $p(CF_3Br) = 0,5 \text{ Торр}$ ] на лазерных линиях: P18 (1, 2), P24 (3, 4), P32 (5, 6)  $CO_2$  лазера.

Таблица 1

Параметры модели расчета

Линии	$10^2 f$	$W_0 \cdot 10^{-9}, \text{ с}^{-1}$	$W \cdot 10^{-9}, \text{ с}^{-1}$	$W_l \cdot 10^{-9}, \text{ с}^{-1}$	$P_0, \text{ Торр}$	$E_l \cdot 10^{-3}, \text{ см}^{-1}$
Молекула $^{13}CF_3Br$						
P18	2,5	0,1	1,3	0,025	8	6
P24	1,8	0,2	1,15	0,015	8	6
P32	0,45	0,6	1,15	0,025	8	6
Молекула $^{12}CF_3Br$						
P18	0,1	0,4	1,5	-	40	3,5
P24	0,03	0,3	1,5	-	23	1,5
P32	0,006	0,5	1,15	-	17	0,75

Искомые линии совпадают с контуром диссоциации молекул  $^{13}CF_3Br$ . На рисунке 2 приведена зависимость величины поглощенной энергии  $^{13}\epsilon$  от давления  $p\Sigma$  на линии 9P24; результаты расчета поглощения: 1 — молекулами, попавшими в квазиконтинуум, 2 — молекулами на нижних дискретных уровнях, 3 — за счет V-T-релаксации на нижних условиях, 4 — суммарная зависимость; точки — экспериментальные данные. Как показывает анализ результатов, согласие выходных данных теоретических моделей с экспериментом является достаточно приемлемым. При этом существенным является то, что в интервале давлений  $p < 50-100 \text{ Торр}$  выход диссоциации определяется в основном влиянием вращательной релаксации, в то время как V-T релаксация еще не существенна. Т.е., здесь имеет место эффект значительного вовлечения молекул в квазиконтинуум. Выше 200 Торр поведение выхода диссоциации определяется конкуренцией двух процессов: вовлечением молекул с нижних уровней и процессом V-T релаксации. Описание ансамбля нижних уровней системой уравнений (5), как указывалось в работах [6,7], включает

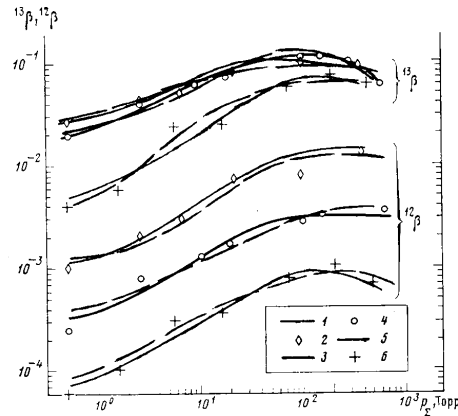


Рис. 1. Зависимости выхода диссоциации от давления  $p\Sigma=p(N_2)$   $p(CF_3B_2)$  ( $p(CF_3B_2)=0,5$  Торр) на линиях P18(1,2), P24(3,4), P32(5,6); сплошные линии—модель [4,5]; прерывистые линии — настоящая работа; Точки — эксперимент; (соответственно: 1048,66; 1043,16; 1035,47  $cm^{-1}$ )

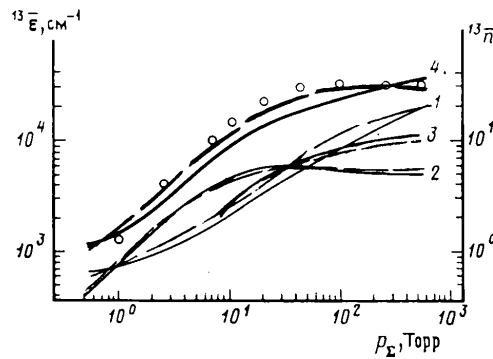


Рис. 2. Зависимость поглощенной энергии  $^{13}\bar{\epsilon}$  от давления  $p\Sigma$  на линии 9P24. Результаты расчета поглощения по модели [6,7] и стохастической модели настоящей работы: 1 — молекулами, попавшими в квазиконтинуум, 2 — молекулами на нижних дискретных уровнях, 3 — за счет V-T-релаксации на нижних условиях, 4 — суммарная зависимость; точки — эксперимент; сплошные линии — данные модели [4,5]; прерывистые линии- настоящая работа.

возможность застревания части молекул в нижних состояниях. Очевидно, что с ростом давления буфера может не происходить линейного увеличения выхода диссоциации с изменением  $p$  в широком диапазоне. Стохастичный блок модели, использованной в данной работе, проявляется в более корректном описании динамики возбуждения системы в квазиконтинууме. Именно учет в расчете этого элемента, по нашему мнению, позволил получить лучше согласие с экспериментом, чем расчет по модели [4,5]. Следует подчеркнуть, что настоящая модель, как и модель [4,5], дает наиболее корректные результаты в случае достаточно активного вовлечения молекул в квазиконтинуум. В то же время, если имеет место неполное вовлечение молекул в квазиконтинуум, то это может существенно сказаться на балансе энергии.

Молекулы в состоянии, принадлежащем дискретной сетке уровней будут испытывать возбуждение, не достигая континуума. Условия такого возбуждения:  $E_i < E_{qc}$ ,  $E_{qc} < D$ ,  $f < N_{min}$  такого возбуждения могут привести к тому, что доминирующим вкладом в  $\epsilon$  будет вклад молекул, находящихся в состояниях, соответствующих нижним колебательным уровням. Естественно, в этом случае энергия, поглощения в квазиконтинууме, будет составлять небольшую часть общего поглощения. Столкновительные процессы, определяющие выход диссоциации, существенно сказываются и на параметре селективности:  $\alpha = \beta^{1/3} \beta^{1/2}$ . Как и в предыдущем случае, при малых давлениях ( $P < 100$  Торр), определяющее влияние на ход селективности оказывает вращательная релаксация. При больших давлениях начинает сказываться влияние V-T процесса, причем его эффективность зависит от величины скорости переходов в континууме и механизма блуждания системы. В заключение представляется важным подчеркнуть, что учет стохастического характера эволюции молекулярной системы в квазиконтинууме в результате увеличивает величину селективности, что на наш взгляд, является позитивным фактором и должно учитываться при моделировании кинетики энергообмена в смесях различных газов, в задачах оптического разделения газов, изучении нелинейных оптических эффектов в атмосферном аэрозоле и т.д. (см., напр., [1,3, 9,10]).

#### Литература

1. Зуев В.Е., Землянов А.А., Копытин Ю.Д., Кузиковский А.В. Мощное лазерное излучение в атмосферном аэрозоле. — Новосибирск, 1984. — 224 с.
2. Лосев С.А. Кинетика колебательного энергообмена в углекислом газе и его смесях с другими газами // Физика горения и взрыва. — 1976. — №2. — С. 163-179.
3. Карлов Н.В., Орлов А.И., Петров Ю.Н., Прохоров А.М. Лазерное управление диффузионным истечением газов в вакуум сквозь преграды с развитой поверхностью // Изв. АН СССР. Сер. Физика. — 1991. — Т. 49, №4. — С. 500-505.

4. Лаптев В.Б., Рябов Е.А., Тяхт В.В., Фурзиков Н.П. Влияние вращательной и V-T релаксации на многофотонное ИК возбуждение и диссоциацию  $CF_3Br$  // Хим. физика. — 1985. — Т. 4, №12. — С. 1626-1634.
5. Летохов В.С., Баграташвили В.Н., Должиков В.С. и др. Многофотонное инфракрасное возбуждение и диссоциация молекулы  $CF_3Br$  : Эксперимент и модель // ЖЭТФ. — 1979. — Т. 77. — С. 2238-2254.
6. Панченко В.Я., Толстошеин А.Ю. Оптимизация условий вращательного возбуждения молекулярного газа // Хим. физика. — 1997. — Т. 16, №1. — С. 16-20.
7. Ambrosov S.V., Shpinareva I.M. Optimal Isotope-Separation Selective Molecular Vibration Levels Excitation Schemes// Proc. 32<sup>nd</sup> Europhysics Conference EGAS. — Vilnius (Lithuania). — 2000. — P. 197.
8. Shpinareva I.M., Selective photoionization and photodissociation of molecules in a laser field: Optimized model// Uzhgorod Univ. Scientific Herald. Ser. Phys.-Math. — 2001. — Vol. 10. — P. 331-335.
9. Веденеев В.И., Кибкало А.А. Константы скорости газофазных мономолекулярных реакций. — М: Наука, 1972. — С. 164.
10. Buchanov V.V., Kazaryan M.A., Kalugin M.M., Prokhorov A.M. Laser separation of Silicon Isotopes by the AVLIS Technology// Atomic and Molecular Pulsed Lasers. — Tomsk: SO RAN, 2001. — P. 71.
11. Glushkov A.V., Ambrosov S.V., Shpinareva I.M. Non-linear Selective Photoprocesses in Atoms and Molecules and their Optimal Governing. Optimized Isotope Separation Schemes// Ibid. — Tomsk: SO RAN, 2001. — P. 72.

*О. В. Глушков, Т. М. Зеленцова, І. М. Шпінарева, А. А. Свінарєнко*  
**Кінетика енергообміну в молекулах  $\text{CF}_3\text{Br}$  у середовищі буферного  
газа при наявності інтенсивного лазерного випромінювання**

**АНОТАЦІЯ**

В межах стохастичної, квантово-кінетичної моделі вивчається кінетика енергообміну в молекулах  $^{12}\text{CF}_3\text{Br}$  та  $^{13}\text{CF}_3\text{Br}$  у середовищі буферного газу  $\text{N}_2$  і кількісно оцінено вихід дисоціації та поглиненої енергії для шуканих молекул у залежності від тиску та інтенсивності лазерного випромінювання.

*Glushkov A. V., Zelentsova T. M., Shpinareva I. M., Svinarenko A. A.*  
**Kinetics of the energy exchange in molecules  $\text{CF}_3\text{Br}$  in a medium of buffer  
gas under action of intensive laser radiation**

**SUMMARY**

Within stochastic, quantum kinetics model it is studied a kinetics of energy exchange in molecules of  $^{12}\text{CF}_3\text{Br}$  and  $^{13}\text{CF}_3\text{Br}$  in a medium of the buffer gas  $\text{N}_2$  and quantitatively estimated the output of dissociation and absorbed energy for cited molecules in dependence upon the gas pressure and laser radiation intensity.



**А. А. Мочалов<sup>1</sup>, С. В. Коваль<sup>2</sup>, С. С. Коваль<sup>1</sup>**

*<sup>1</sup>Украинский государственный морской технический университет  
им. адмирала Макарова, г. Николаев*

*<sup>2</sup>Николаевский учебно-научный центр  
Одесского национального университета им. И.И. Мечникова*

### **Анализ условий тепломассопереноса в области перестройки конвективного потока**

Создана методика расчета процесса выделения твердой фазы в области перестройки конвективного потока двухфазной области и формирования восходящего потока в центральной области образца. Установлены зависимости температуры, концентрации и относительного количества твердой фазы от характеристик поступающей жидкой фазы. Проанализирован характер изменения исследуемых величин при изменении входных параметров в широком диапазоне.

#### **Введение**

Конвективное перемещение жидкого металла в изложнице относится к одному из важнейших факторов, влияющих на интенсивность теплопередачи от перегретых объемов жидкой фазы к границе затвердевания и скорость продвижения фронта затвердевания, распределение и сепарацию примесного компонента в объеме образца. Существующие модели [1,2] описывают процесс формирования твердой фазы с учетом естественной конвекции, однако не позволяют описать неоднородностей внутренней структуры, возникающей в нижней центральной области образца (области смешения). В процессе кристаллизации многокомпонентных сплавов в гидродинамическом пограничном слое формируется двухфазная область, в которой жидкая фаза обогащена ликвиационными примесями, причем распределение этих примесей происходит неравномерно. Жидкий металл, находящийся в пограничном слое, в результате естественной конвекции стекает в нижнюю часть образца, температура и концентрация которого соответствует первоначальной.

Процесс смешения металла, поступающего из пограничного слоя в центральную область образца, происходит не во всей центральной области, а только в области перестройки потока. Размеры области смешения существенно зависят от геометрических размеров образца, глубины жидкой лунки, скорости охлаждения образца, физических параметров сплава и технологии его разлива. Целью данной работы является: создание физико-математической модели выделения твердой фазы в нижней центральной части образ-

ца; исследование влияние параметров конвективного потока двухфазной области на кристаллизации сплава в рассматриваемой области.

### Теоретическая часть

Выделим в центральной части прямоугольного слитка с размерами  $A \times B \times C$  область смешения, в которой происходит перестройка потока жидкого металла, формирование восходящего потока. Высота области смешения, принимаем порядка толщины теплового пограничного слоя в этой области [3]. Ввиду симметричности задачи все уравнения будем записывать для 1/4 части области смешения.

Концентрация примесного компонента в области смешения, является функцией температуры и времени, тогда изменение относительного объема твердой фазы запишется так:

$$\frac{d\varepsilon_{cm}''}{d\tau} = (C_{(L)} - C_{(S)})^{-2} \times \left[ (C_{(S)} - C_{(L)}) \frac{dC_{cm}''}{d\tau} + (C_{(L)} - C_{cm}'') \frac{dC_{(S)}}{d\tau} + (C_{cm}'' - C_{(S)}) \frac{dC_{(L)}}{d\tau} \right], \quad (1)$$

где  $C_{(L)}$ ,  $C_{(S)}$  — Концентрация примесного компонента при данной температуре на линии ликвидус и солидус соответственно (определяемая по фазовой диаграмме равновесия сплава),  $C_{cm}''$ ,  $\varepsilon_{cm}''$  — концентрация примеси в жидкой фазе на выходе из области смешения и относительное количество твердой фазы в ней.

Изменения концентрации в единицу времени, согласно закону сохранения массы, равно разности массовых расходов вдоль координатных осей выделенного элемента, умноженных на соответствующие концентрации жидкого металла. Тогда уравнение изменения концентрации примеси в жидком металле, в области смешения, со временем, запишется так:

$$C_{cm}' \bar{v}_{nc} \delta_T z_T \bar{\rho}_{ijk}'' - C_{cm}' \bar{v}_6 f_6 \bar{\rho}_{ijk}'' = \frac{d(M_{cm}^{\text{ж}} C_{cm}'')}{d\tau}, \quad (2)$$

где  $C_{cm}'$  — концентрация примеси в жидком металле на входе в область смешения;  $M_{cm}^{\text{ж}}$  — масса жидкого металла в области смешения;

$\bar{v}_{nc} = \frac{1}{\delta_T} \int_0^{\delta_T} v_{(x)}'' dy = \frac{\sum_{j=1}^n v_{(x)ijk}'' \Delta y}{\delta_T}$  — среднерасходная скорость жидкого металла двухфазной области слитка;  $\delta_T$  — толщина теплового пограничного слоя;

$z_T$  — ширина теплового пограничного слоя;  $\bar{v}_6$  — среднерасходная скорость восходящего потока жидкого металла в центральной области;  $f_6$  — сечение потока на выходе из области смешения;  $\bar{\rho}_{ijk}^{\prime\prime\prime\text{Ж}}$  — плотность жидкого металла.

Используя уравнение неразрывности, введем характеристический коэффициент  $\chi_S$ , позволяющий объяснить и проанализировать процесс формирования седиментационного конуса.

$$\bar{v}_{nc} f_{nc} = \bar{v}_6 f_6, \quad \chi_S = \frac{0,5A - \delta_{3A} + 0,5B - \delta_{3B} - \delta_T \bar{v}_{nc}}{(0,5A - \delta_{3A})(0,5B - \delta_{3B}) \bar{v}_{nc}}, \quad (3)$$

где  $\delta_{3A}$  — толщина затвердевшего металла со стороны А;  $\delta_{3B}$  — толщина затвердевшего металла со стороны В;  $f_{nc}$  — площадь сечения потока на входе в область смешения.

Преобразуем уравнение (2) с учетом уравнений (1) и (3)

$$\chi_S (C'_{cm} - C''_{cm}) = \frac{dC'_{cm}}{d\tau} \frac{C'_{cm} - C_{(S)cm}}{C_{(L)cm} - C_{(S)cm}} - C'_{cm} \frac{d\varepsilon_{cm}}{d\tau}. \quad (4)$$

Для расчета нестационарного температурного поля в области смешения образца, применяя закон сохранения энергии, запишем уравнение изменения энтальпии для рассматриваемой области:

$$M_{cm} c^{\text{Ж}} \frac{dT'_{cm}}{d\tau} = c^{\text{Ж}} \bar{v}_{nc} f_{nc} \bar{\rho}_{ijk}^{\prime\prime\prime\text{Ж}} T'_{cm} - c^{\text{Ж}} \bar{v}_6 f_6 \bar{\rho}_{ijk}^{\prime\prime\prime\text{Ж}} T'_{cm} + r M_{cm} \frac{d\varepsilon_{cm}}{d\tau}, \quad (5)$$

где  $c^{\text{Ж}}$  — удельная теплоемкость жидкой фазы;  $T'_{cm}$ ,  $T''_{cm}$  — температура жидкого металла на входе и на выходе из области смешения;  $r$  — скрытая теплота фазового перехода.

Для того чтобы замкнуть систему уравнений (1), (2) и (5) дополним ее начальными и граничными условиями:

$$\text{начальные } T'_{cm} \Big|_{\tau=0} = T_0, \quad C'_{cm} \Big|_{\tau=0} = C_0, \quad \varepsilon_{cm} = 0;$$

$$\text{граничные } C'_{cm} = \bar{C}_{nc} = \frac{\sum_{j=1}^n C'_{ijk} m_{(x)ijk}}{\sum_{j=1}^n m_{(x)ijk}}, \quad T'_{cm} = \bar{T}_{nc} = \frac{\sum_{j=1}^n T'_{ijk} m_{(x)ijk}}{\sum_{j=1}^n m_{(x)ijk}}$$

где  $\bar{C}_{nc}$  — среднерасходная концентрация жидкого металла двухфазной области на входе в область смешения;  $m_{(x)ijk}$  — расход жидкого металла через

элемент двухфазной области;  $\bar{T}_{nc}$  — среднерасходная температура жидкого металла двухфазной области на входе в область смешения.

#### Обсуждение результатов

В работе [4] описана математическая модель кристаллизации сплава в двухфазной области. Компьютерный эксперимент на базе данной модели позволил определить распределение температуры и концентрации по сечению нисходящего потока жидкой фазы. Эксперимент проведен для железо-углеродистого сплава марки AISI\_1008 ( $Fe$  — 99,4%;  $C$  — 0,08%).

Эксперимент на основе представленной в данной работе модели позволил проанализировать влияние характеристик входящего конвективного потока на процесс выделения твердой фазы в области смешения. Начальные условия для рассматриваемой области:  $T'_{cm0} = 1809$  K;  $C'_{cm0} = 0,08$  %.

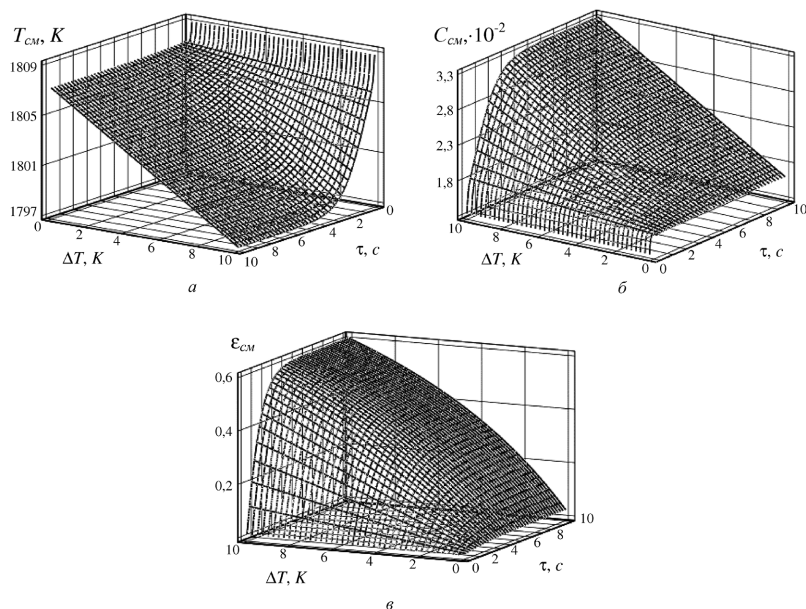


Рис. 1. Зависимость температуры (а), концентрации (б) и относительного количества твердой фазы (в) в нижней центральной области образца от величины переохлаждения конвективного потока двухфазной области ( $\Delta T$ ).  
 (Сплав AISI\_1008,  $T_0=1810$  K,  $C_0=0,08\%$ ,  $\chi_s=15$ )

На рисунке 1 представлены результаты исследования влияния величины переохлаждения конвективного потока двухфазной области ( $\Delta T$ ) на процесс выделения твердой фазы в области смешения образца. Видно, что с увеличе-

нием величины  $\Delta T$  уменьшается температура области смешения (рис. 1.а), а концентрация выделившейся твердой фазы возрастает (рис.1.б), не достигая однако значения первоначального жидкого расплава (явление отрицательной ликвации). Наблюдается линейная зависимость  $T_{см}$  и  $C_{см}$  от  $\Delta T$ . Зависимость относительного количества твердой фазы выделившейся в начальной стадии переходного процесса от переохлаждения линейна (рис. 1.в). Затем характер зависимости изменяется, что обусловлено аккумулятивными свойствами выделившейся твердой фазы. Изменение величины  $\Delta T$  приводит к изменению времени переходного процесса.

Введенный характеристический коэффициент  $\chi_s$  зависит от геометрических размеров образца, толщины теплового пограничного слоя, толщины затвердевшей фазы и характеристик нисходящего конвективного гидродинамического потока. На рис. 2 представлены результаты численного исследования влияния величины  $\chi_s$  на температуру и концентрацию твердой фазы в области смешения. Видно, что при увеличении  $\chi_s$  происходит интенсификация охлаждения области смешения, однако конечные значения температуры (рис 2.а) и концентрации (рис 2.б) не изменяются.

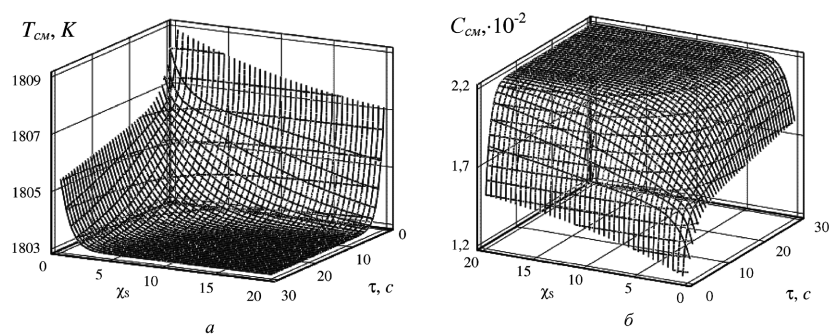


Рис. 2. Зависимость температуры (а) и концентрации (б) в нижней центральной области образца от величины характеристического коэффициента ( $\chi_s$ ). (Сплав AISI\_1008,  $T_0=1810\text{ K}$ ,  $C_0=0,08\%$ ,  $\Delta T=4\text{ K}$ )

Анализируя влияние параметров конвективного потока жидкой фазы двухфазной области на тепломассоперенос в нижней центральной области образца можно утверждать, что неравновесное выделение твердой фазы в области смешения оказывает существенное влияние на кинетику фазового перехода во всем образце. Использование полученных результатов при моделировании процессов формирования внутренней структуры литых изделий позволит прогнозировать появление неоднородностей твердой фазы, возникающих на этапе первичной кристаллизации.

### Литература

1. Kamal A. R. Ismail, Maria das Graças E. da Silva Numerical solution of the phase change problem around a horizontal cylinder in the presence of natural convection in the melt region // *International Journal of Heat and Mass Transfer*. — Vol. 46, May 2003. — P. 1791-1799.
2. Rafii-Tabar H., Chirazi A. Multi-scale computational modelling of solidification phenomena // *Physics Reports*. — 2002. — Vol. 365, №3. — P.145-249.
3. Мочалов А.А., Коваль С.С. Исследование влияния параметров двухфазной зоны на кристаллизацию металла в зоне смешения слитка // *Збірник наукових праць УДМУ*. — 2000. — №5 (371). — С.114-120.
4. Мочалов О.О., Коваль С.В., Коваль С.С. Математичне моделювання фазових переходів в металевих конденсованих системах // *Металофізика та новітні технології*. — 2002. — Т. 24, №12. — С. 1715–1720.

*О. О. Мочалов, С. В. Коваль, С. С. Коваль*

#### **Аналіз умов тепломасопереносу в області перебудови конвективного потоку**

#### **АНОТАЦІЯ**

Створена методика розрахунку процесу виділення твердої фази в області перебудови конвективного потоку двохфазної області і формування висхідного потоку в центральній області зразку. Встановлені залежності температури, концентрації та відносної кількості твердої фази від характеристик низхідного потоку рідкої фази. Проаналізований характер змін дослідних величин при зміні вхідних параметрів в широкому діапазоні.

*Mochalov A. A., Koval S. V., Koval S. S.*

#### **The analysis of conditions of heat and mass transfer in convection flow rebuild region**

#### **SUMMARY**

The calculation methodic of solidification process in convection flow rebuild region of double phase region and formation of the upward flow in central region of casting is developed. The dependencies of the temperature, concentration and relative quantity of solid phase on the characteristic of an acting liquid phase is determined. The character of researched value changing during variation of entrance parameters is analyzed.

**Т. В. Народицкая<sup>1</sup>, Ю. М. Поповский<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова

<sup>2</sup>Одесская национальная морская академия

### **Исследование зависимости диэлектрической проницаемости тонких прослоек жидкости от их толщины и температуры**

Проведено исследование зависимости диэлектрической проницаемости плоских пристенных слоев нитробензола и нематического жидкого кристалла 5 ЦБ в зависимости от их толщины и температуры. Полученные результаты свидетельствуют о наличии вблизи твердой подложки пристенного слоя с диэлектрической проницаемостью, отличной от объемной, что связано с образованием вблизи поверхности твердой подложки ассоциатов (димеров) молекул препарата с антипараллельной ориентацией дипольных моментов. Повышение температуры приводит к разрушению димеров и, следовательно, к уменьшению толщины пристенного слоя.

В тонких прослойках ряда органических жидкостей, образованных между лиофильными твердыми подложками, существует ориентационная упорядоченность. Это может приводить к изменению диэлектрических свойств прослойки жидкости, если ее молекулы обладают анизотропией поляризуемости. Для немезогенных алифатических жидкостей было показано [1] изменение диэлектрической проницаемости в достаточно толстых слоях —  $d \sim 2\text{--}3 \mu\text{м}$ . Авторы установили существование нескольких типов структур в пристенных слоях, возникновение которых определяется характером обработки поверхности подложки.

В [2] исследовались диэлектрические свойства дисперсной системы нитробензол (ароматическая немезогенная жидкость) — силикагель, и было показано уменьшение диэлектрической проницаемости с понижением концентрации нитробензола в дисперсной системе, т.е. при уменьшении толщины прослойки жидкости. Однако, использование для таких исследований дисперсных систем является не вполне корректным, т.к. хаотическая ориентация прослоек жидкости в них крайне затрудняет интерпретацию экспериментальных результатов.

Исследования диэлектрической проницаемости плоских прослоек нитробензола, ограниченных металлическими подложками, проводились в [3] и было показано уменьшение диэлектрической проницаемости с толщиной прослойки.

Для нематического жидкого кристалла (НЖК) 4-пентил-4'-цианобифе-

нила (5 ЦБ) было показано [4] также уменьшение диэлектрической проницаемости при утоньшении прослойки.

При исследовании электронно-колебательных спектров поглощения тонких пристенных слоев нитробензола и ЖК 5 ЦБ [5] было установлено существование двух типов абсорбционных центров, соответствующих мономерам и димерам, и было показано, что при уменьшении толщины прослойки концентрация димеров возрастает. Однако, никаких соображений о типе димеров — взаимной ориентации молекул в димере, расстоянии между молекулами, энергии связи, — экспериментальные зависимости не давали.

Целью настоящей работы было исследование зависимости диэлектрической проницаемости прослоек немезогенной жидкости — нитробензола и мезогена НЖК 5 ЦБ от их толщины и температуры.

Методика диэлектрических измерений при постоянной температуре описана в [4]. Для температурных измерений конденсаторная ячейка помещалась в воздушный термостат, температура в котором менялась в пределах  $20\text{?}50^\circ$  и поддерживалась постоянной с точностью  $\pm 0,1^\circ$ . Экспериментальная зависимость средней диэлектрической проницаемости прослойки нитробензола, ограниченной проводящими поверхностями,  $\bar{\epsilon}$  от ее толщины  $d$  [3] представлена на рис.1. Средняя диэлектрическая проницаемость уменьшается по мере утоньшения прослойки.

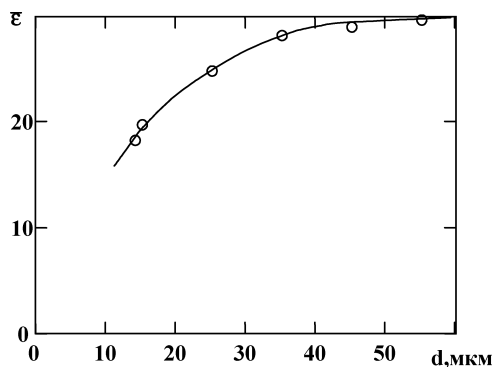


Рис. 1. Зависимость среднего значения диэлектрической проницаемости прослойки нитробензола, ограниченной проводящими поверхностями, от ее толщины.  
 $T=300\text{K}$

Если воспользоваться представлением о пристенном слое нитробензола как об эпиторпной жидкокристаллической фазе с некоторым средним значением диэлектрической проницаемости  $\bar{\epsilon}_s$  и равновесной толщиной  $d_s$ , то очевидно соотношение:



$$\frac{d}{\bar{\epsilon}} = 2d_s \left( \frac{1}{\epsilon_s} - \frac{1}{\epsilon_i} \right) + \frac{d}{\epsilon_i} = \alpha + \frac{d}{\epsilon_i}, \quad (1)$$

где  $\bar{\epsilon}$  — среднее значение диэлектрической проницаемости прослойки жидкости в ячейке, а  $\epsilon_s$  и  $\epsilon_i$  — соответственно, диэлектрические проницаемости ориентационно упорядоченного слоя и объемной жидкости. В переменных  $\left( \frac{d}{\bar{\epsilon}}, d \right)$  зависимость (1) линейна (Рис.2), однако она не позволяет найти отдельно диэлектрическую проницаемость  $\epsilon_s$  и равновесную толщину слоя  $d_s$  (если не проводить измерения при  $d < d_s$ ).

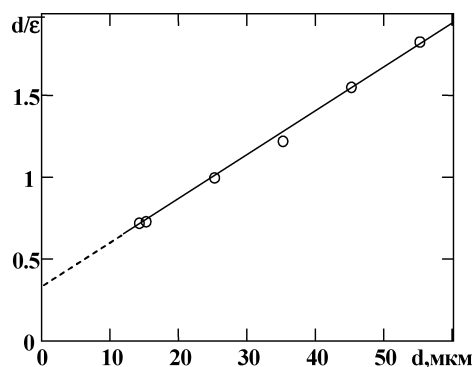


Рис.2. Зависимость величины  $\frac{d}{\bar{\epsilon}}$  от толщины прослойки нитробензола, ограниченной проводящими поверхностями,  $T=300\text{K}$ . [3]

Согласно [6] в пределах ориентационно упорядоченного пристенного слоя нитробензола при  $T \leq 393\text{K}$  концентрация димеров  $\sim 1$ , а их диэлектрическая проницаемость обусловлена только деформационной поляризуемостью (ориентационная поляризуемость в димерах нитробензола не происходит, т. к. при антипараллельной ориентации молекул в димере дипольные моменты взаимно компенсируются), то  $\epsilon_s = n^2$ , тогда  $2d_s \cong 0.8\text{мкм}$ .

Для ориентационно упорядоченных прослоек нитробензола, образованных между поверхностями кварца, было установлено значение  $2d_s \cong 0.1\text{мкм}$  [7]. Это связано с большими значениями потенциала поля поверхностных (Ван-дер-Ваальсовых) сил вблизи поверхности металла, чем у диэлектрической поверхности [8].

Расчеты по [8] показали, что при равных значениях потенциала поля по-

верхностных сил равновесная толщина ориентационно упорядоченных пристенных слоев на металле должна составлять  $2d_s \cong 0.9 \text{ мкм}$ , что хорошо совпадает с экспериментальным значением.

При повышении температуры в прослойках нитробензола убывает значение  $\alpha$  в связи с ростом диэлектрической проницаемости пристенного слоя, связанному с распадом димеров, и уменьшением его равновесной толщины  $d_s$ . С использованием зависимостей  $d_s(T)$ , полученных ранее экспериментально [7], оказалось возможным оценить изменение концентрации димеров в зависимости от температуры и найти значение энергии связи молекул нитробензола в димере.

Результаты исследования зависимости диэлектрической проницаемости прослоек 5ЦБ от толщины и температуры оказались существенно сложнее. Это связано со значительной анизотропией молекул 5ЦБ. Согласно [9], при ориентации длинных осей молекул по полю ее значение составляет  $\sim 15-18$ , а поперек —  $6-8$  в интервале температур от  $20$  до  $35^\circ$ .

В зависимости от начальной ориентации молекул ЖК в прослойке, которая определяется способом предварительной обработки поверхности, можно выделить две серии опытов с большими и меньшими значениями диэлектрической проницаемости.

При начальной гомеотропной ориентации молекул диэлектрическая проницаемость уменьшается при приближении к подложке (уменьшении толщины прослойки) (рис.3). Это объясняется увеличением концентрации антипараллельных димеров молекул 5ЦБ. Величина  $\alpha$  в этом случае больше нуля (рис.4), и расчет равновесной толщины слоя дает  $2d_s = 0.23 \text{ мкм}$ .

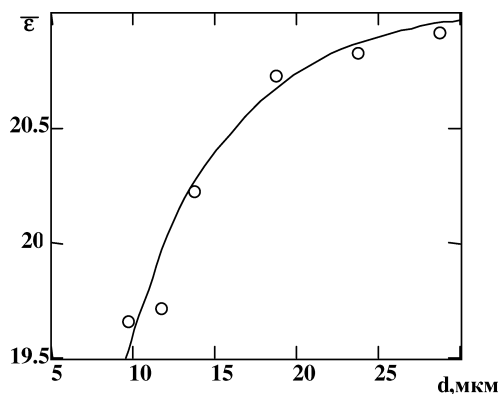


Рис.3. Экспериментальная зависимость среднего значения диэлектрической проницаемости прослойки 5ЦБ, ограниченной проводящими поверхностями, от толщины. Случай гомеотропной ориентации молекул.  $T=300\text{К}$

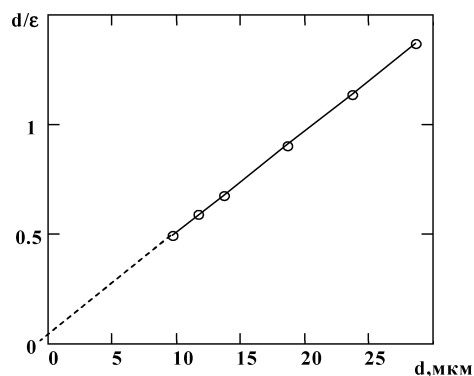


Рис. 4. Зависимость величины  $\frac{d}{\epsilon}$  от толщины прослойки 5ЦБ для случая начальной гомеотропной ориентации.

При начальной планарной ориентации диэлектрическая проницаемость при приближении к подложке растет (рис.5), т.к. в пристенном слое происходит постепенная переориентация молекул и переход из планарной в более устойчивую гомеотропную структуру.

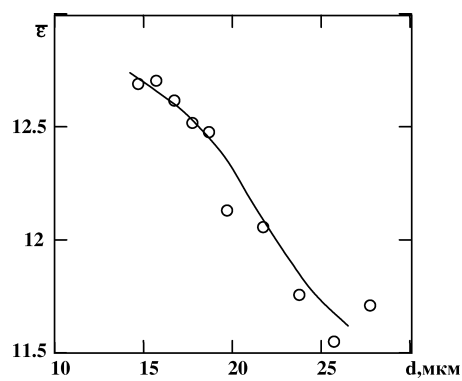


Рис.5. Экспериментальная зависимость среднего значения диэлектрической проницаемости прослойки 5ЦБ от толщины. Случай планарной ориентации молекул.

Повышение температуры, снижающее концентрацию димеров, приводит к росту величины  $\alpha$ , которая в этом случае  $<0$ . (рис. 6).

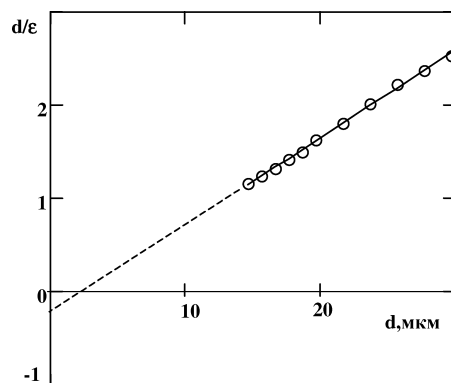


Рис.6. Зависимость величины  $\frac{d}{\epsilon}$  от толщины прослойки 5ЦБ для случая начальной планарной ориентации

#### Литература

1. Хоменко В.А., Ганцевич И.Б., Хандельсман Ю.М. О влиянии модифицирования поверхности металла и керамики на структуру граничного слоя: Всесоюзная конференция по коллоидной химии. — Ташкент, 1982. — С. 47.
2. Ушакова В.С., Жиленков И.В. Диэлектрические свойства нитробензола на поверхности активного кремнезема // Поверхностные силы в тонких пленках и устойчивость коллоидных систем. — М.: Наука, 1974. — С.10.
3. Popovskii Yu. M., Goryuk A. A. Dielectric susceptibility of wall adjacent nitrobenzene layers // *Advances in Colloid and Interface Science*. — 104 (2003). — P. 293-297.
4. Народицкая Т.В., Алтоиз Б.А., Поповский Ю.М. Диэлектрическая проницаемость прослоек жидких кристаллов // *ФАС*. — 2002. — Вып 39. — С. 281-284.
5. Popovskij A. Yu. Investigation of the surface substrate influence on the peculiarities of the absorption spectra of 5CB wall-adjacent layers // *SPIE*. — 1995. — 2731. — P. 119-126.
6. Popovskii A. Yu., Popovskii Yu. M., Mikhailenko V. I. Two component model of orientationally ordered wall adjacent layers // *Advances in Colloid and Interface Science*. — 104 (2003). — P. 285-292.
7. Алтоиз Б.А., Поповский Ю.М. Физика приповерхностных слоев жидкости. — Одесса: Астропринт, 1996. — 154 с.
8. Лифшиц Е.М. Теория молекулярных сил притяжения между твердыми телами // *ЖЭТФ*. — 1955. — Т. 29, вып. 1(7). — С. 94-110.
9. Чандрасекар С. Жидкие кристаллы. — М.: Мир, 1980. — С. 977.

*Т. В. Народицька, Ю. М. Поповський*

**Дослідження залежності діелектричної проникності тонких прошарків рідин від їхньої товщини та температури**

**АНОТАЦІЯ**

Проведено експериментальне дослідження діелектричної проникності плоских прошарків нітробензолу та нематичного рідкого кристала 5 ЦБ у залежності від їхньої товщини та температури. Отримані данні свідчать про наявність поблизу від твердої підкладки пристінного шару з діелектричною проникністю, відмінною за об'ємну, що, можливо, є наслідком утворення поблизу твердої підкладки асоціатів (дімерів) молекул препарату, що мають антипаралельні дипольні моменти. Підвищення температури викликає розпад дімерів, що призводить до зменшення товщини пристінного шару.

*Naroditskaya T. V., Popovskij Yu. M.*

**Investigation of permittivity in the flat interlayers of liquids as a function of their thickness and temperature**

**SUMMARY**

The experimental research of permittivity in the flat interlayers of nitrobenzene and nematic liquid crystals 5 CB as a function of their thickness and temperature was carried out. The obtained outcomes testify to existence of wall-adjacent layer near to a firm substrate surface with permittivity different from the bulk one. It probably caused by associate (dimer) formation in the liquid crystal near the surface of a firm substrate and mutual antiparallel molecules dipole orientation in dimmer. The temperature increase causes the dimers decay and, therefore, the decrease of wall-adjacent layer thickness.

*С. Г. Орловская, В. В. Калинчак, Т. В. Грызунова*

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

## **Высокотемпературное окисление вольфрамового проводника с учетом теплообмена излучением и испарения окисной пленки с его поверхности**

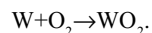
Изучено влияние теплообмена излучением и фазовых переходов на зажигание и потухание вольфрамового проводника, нагреваемого электрическим током. Показано, что испарение окисла приводит к появлению максимума на временной зависимости толщины окисной пленки, образуемой на поверхности проводника. Доказано, что начиная с некоторого диаметра проводника, неучет теплопотерь излучением к стенкам реакционной установки приводит к исчезновению критического значения силы тока, характеризующего его потухание.

### **Введение**

Применение вольфрама в медицине, производстве, ракетной и ядерной технике связано с изучением его высокотемпературного окисления [1, 2, 3]. На кинетику окисления существенное влияние могут оказывать фазовые переходы, протекающие с повышением температуры на поверхности тел [4]. В данной работе изучены процессы высокотемпературного окисления, зажигание и потухание вольфрамовой проволоки, нагреваемой электрическим током в окислительной среде, определены критические параметры, характеризующие переходы на высокотемпературный и низкотемпературный режимы окисления с учетом теплообмена излучением и испарения окисла с ее поверхности.

### **Постановка задачи**

Предположим, что на поверхности вольфрамового проводника, нагреваемого электрическим током в воздухе, протекает химическая реакция с образованием твердой окисной пленки согласно уравнению:



Скорость химической реакции описывается параболическим законом окисления [1]:

$$w_{\text{O}_2} = \frac{k_0}{h} \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) n_{\text{O}_2, \text{S}} \rho_g, \quad (1)$$

где  $h$  — толщина оксидной пленки, м;  $n_{O_2s}$  — относительная массовая концентрация кислорода на поверхности металла;  $\rho_g$  — плотность воздуха,  $\frac{\text{кг}}{\text{м}^3}$ ;  $W_{O_2}$  — скорость окисления по кислороду,  $\frac{\text{кг}}{\text{м}^2 \cdot \text{с}}$ ;  $k_0$  — предэкспоненциальный множитель,  $\frac{\text{м}^2}{\text{с}}$ ;  $E$  — энергия активации,  $\frac{\text{Дж}}{\text{моль}}$ ;  $R$  — универсальная газовая постоянная, Дж/моль·К;  $T$  — температура проволоки, К.

Концентрация кислорода на поверхности металла  $n_{O_2s}$  определяется выражением:

$$n_{O_2s} = n_{O_2\infty} \left( 1 + \frac{k}{h\beta} \right)^{-1}, \quad \beta = \frac{ShD}{d}, \quad (2)$$

где  $n_{O_2\infty}$  — относительная массовая концентрация в среде;  $d$  — диаметр проводника, м;  $\beta$  — коэффициент массообмена,  $\frac{\text{м}}{\text{с}}$ ;  $Sh$  — критерий Шервуда;  $D$  — коэффициент диффузии кислорода в воздухе,  $\frac{\text{м}^2}{\text{с}}$ .

Тогда плотность химического тепловыделения реакции окисления вольфрама определим в виде:

$$q_{ch} = Q \cdot W_{O_2} = Q \cdot \frac{k}{h} \rho_g n_{O_2\infty} \left( 1 + \frac{k}{h\beta} \right)^{-1}. \quad (3)$$

Здесь  $Q$  — тепловой эффект реакции,  $\frac{\text{Дж}}{\text{кгO}_2}$ .

Теплообмен нагретой проволоочки с воздухом и со стенками реакционной установки описываются соответственно законами Ньютона–Рихмана, Кирхгофа и Стефана-Больцмана:

$$q_c = \alpha(T - T_g), \quad \alpha = \frac{Nu \cdot \lambda_g}{d}, \quad q_r = \varepsilon \sigma (T^4 - T_w^4), \quad (4)$$

где  $q_c$ ,  $q_r$  — плотности теплового потока молекулярно-конвективным путем и излучением,  $\frac{\text{Вт}}{\text{м}^2}$ ;  $T_g$  — температура газа, К;  $\alpha$  — коэффициент теплооб-

мена,  $\frac{Bm}{M^2 \cdot K}$ ;  $\lambda_g$  — коэффициент теплопроводности газа,  $\frac{Bm}{M \cdot K}$ ; Nu — критерий Нуссельта,  $Nu = 1.18(Gr Pr)^{\frac{1}{8}}$  [5]; Gr — число Грасгофа; Pr — число Прандтля;  $\varepsilon$  — степень черноты оксидной пленки;  $\sigma$  — постоянная Стефана — Больцмана;  $T_w$  — температура стенок реакционной установки, К. Предполагается, что  $T_w = T_g$ .

Теплопотери проволочки через ее концы к токоподводящим проводам определяются выражением:

$$q_L = \frac{3\lambda_m(T - T_g)}{L} \left( \frac{d}{L} \right), \quad (5)$$

$q_L$  — плотность теплового потока теплопроводностью,  $\frac{Bm}{M^2}$ ;  $\lambda_g$  — коэффициент теплопроводности газа,  $\frac{Bm}{M \cdot K}$ ; L — длина проводника, м.

Выражение для плотности джоулевого тепловыделения в результате нагрева проводника электрическим током запишем в следующем виде

$$q_j = \frac{4I^2\eta_0(1 + \gamma(T - T_0))}{\pi^2 d^3}, \quad (6)$$

где I — сила тока, А;  $\eta_0$  — удельное сопротивление вольфрама при температуре  $T_0 = 273$  К, Ом·м;  $\gamma$  — температурный коэффициент сопротивления,  $K^{-1}$ .

Скорость испарения оксида с поверхности проводника найдем следующим образом:

$$W_v = \frac{Sh \cdot D_{WO_2} \rho_g}{d} (n_{WO_{2n}} - n_{WO_{2\infty}}), \quad (7)$$

где  $D_{WO_2}$  — коэффициент диффузии  $WO_2$  в воздухе,  $m^2/s$ ;  $n_{WO_{2n}}$ ,  $n_{WO_{2\infty}}$  — относительные массовые концентрации паров  $WO_2$  вблизи поверхности и на бесконечном удалении от неё ( $n_{WO_{2\infty}} = 0$ ).

Тогда для плотности теплового потока, затрачиваемого на испарение оксида, с учетом зависимости давления насыщенных паров  $WO_2$  от температуры имеем:



$$q_v = L_v \frac{Sh \cdot D_{WO_2} M_{WO_2} P_a}{\rho_g d RT} \exp \left[ \frac{L_v M_{WO_2}}{R} \left( \frac{1}{T_k} - \frac{1}{T} \right) \right], \quad (8)$$

где  $L_v$  — удельная теплота испарения, Дж/кг;  $T_k$  — температура кипения  $WO_2$ , К;  $P_a$  — атмосферное давление, Па;  $M_{WO_2}$  — молекулярная масса  $WO_2$ , кг/кмоль.

Запишем уравнение теплового баланса проводника с учетом описанных выше физических и химических процессов, протекающих на его поверхности

$$c_w \rho_w \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{4}{d} (q_{ch} - q_c - q_r - q_v - q_L + q_j), \quad T(t=0) = T_b, \quad (9)$$

где  $c_w, \rho_w$  — удельная теплоемкость и плотность вольфрама,  $\frac{Дж}{кг \cdot К}$ ,  $\frac{кг}{м^3}$ ;  $T_b$  — начальная температура проводника, К.

Оксидная пленка на поверхности вольфрамового проводника увеличивается за счет реакции окисления вольфрама и уменьшается в результате испарения окисла:

$$\rho_{WO_2} \frac{\partial h}{\partial t} = \Omega \frac{k}{h} \rho_g n_{O_2 S} - W_v, \quad h(t=0) = h_b, \quad (10)$$

где  $h_b$  — начальная толщина оксидной пленки,  $\Omega = \frac{M_{WO_2}}{M_{O_2}}$ ;  $M_{O_2}$  — молярная масса кислорода, кг/кмоль.

Уравнения (9), (10) с учетом формул (2) — (8) описывают высокотемпературный тепломассообмен и кинетику окисления вольфрамового проводника, нагреваемого электрическим током в газообразной среде, с учетом теплообмена излучением с холодными стенками реакционной установки и испарения окисла с его поверхности.

### Результаты

На рис. 1 представлены зависимости  $T(t)$  и  $h(t)$ , рассчитанные по указанным формулам для вольфрамового проводника, нагреваемого электрическим током в среде кислорода, с учетом ( $q_v \neq 0$ ) и без учета ( $q_v = 0$ ) испарения окисла. Полученные результаты представлены в сравнении с экспериментальными данными [3] при различных мощностях нагрева ( $P$ ) вольфрамового проводника. Расчеты проводились при следующих параметрах:  $E = 100480$  Дж/моль,  $k_0 = 1.3 \times 10^{-4}$  м<sup>2</sup>/с [1].

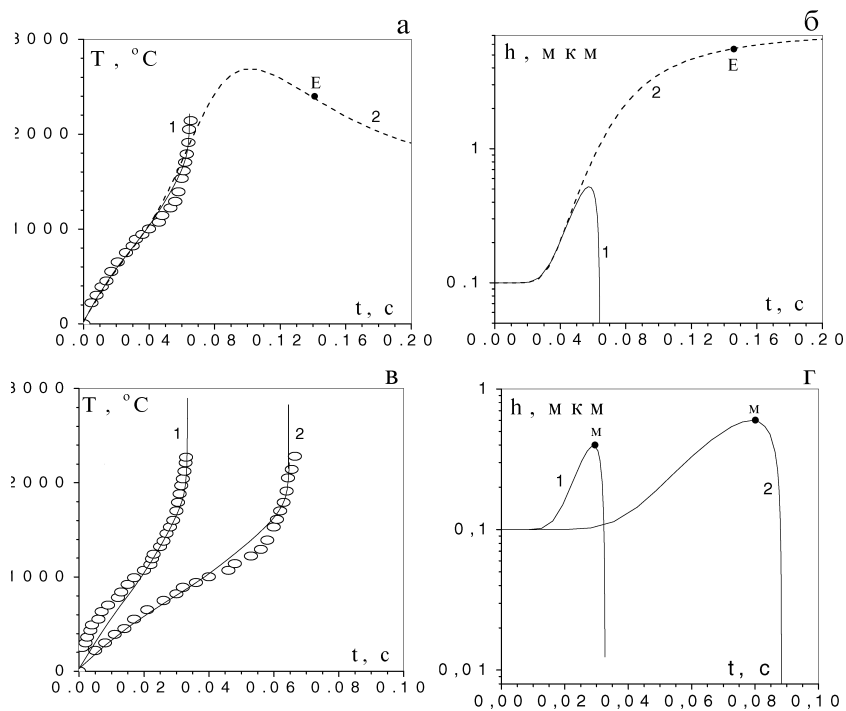


Рис. 1. Временные зависимости температуры вольфрамового проводника и толщины окисла на его поверхности.  $d=50$  мкм,  $L=7$  см,  $n_{O_2\infty}=1$ ,  $v=0.13$  м/с; а), б):  $1-q_v \neq 0$ ,  $2-q_v=0$ ,  $P=106,4$  Вт/см<sup>2</sup>; в), г):  $q_v \neq 0$ ,  $1-P=194.4$  Вт/см<sup>2</sup>,  $2-P=91.3$  Вт/см<sup>2</sup>;  $\circ$  — экспериментальные данные [3];  $v$  — скорость обдува проводника.

Кривая 2 описывает зависимости  $T(t)$  и  $h(t)$  без учета теплотерь на испарение. Высокотемпературное состояние характеризуется максимальным значением температуры, которая затем уменьшается по мере роста толщины оксидного слоя. При достижении толщиной окисла критического значения  $h_E$  происходит затухание реакции окисления на поверхности проводника, вследствие уменьшения плотности химического тепловыделения.

С учетом испарения окисла с поверхности проводника толщина оксидной пленки увеличивается (кривая 1), достигает максимального значения, а затем убывает, т.к. скорость испарения ее при высоких температурах больше скорости образования окисла. Результаты расчетов по физико-математической модели с учетом испарения хорошо согласуются с эксперименталь-

ными данными [3]. С уменьшением мощности электрического тока, нагревающего проводник, увеличивается время высокотемпературного окисления проводника и максимальное значение толщины оксидной пленки, т.к. при более низких температурах скорость испарения окисла меньше.

Рассмотрим стационарные режимы тепломассообмена и кинетики окисления нагреваемого в воздухе вольфрамового проводника, с учетом теплообмена излучением к стенкам установки и испарения окисла с его поверхности.

Используя условие стационарности

$$q_{ch} + q_j = q_c + q_r + q_L + q_v,$$

найдем зависимость силы тока от стационарной температуры проводника, которая определяет устойчивые и критические высоко- и низкотемпературные состояния:

$$\begin{aligned} I^2 = & \frac{\pi^2 d^3}{4\eta_0 (1 + \gamma(T - T_g))} \left[ \alpha(T - T_g) + \varepsilon\sigma(T^4 - T_w^4) - \right. \\ & - Q \frac{k}{h_b} \rho_g n_{O_2\infty} \left( 1 + \frac{k}{\beta h_b} \right)^{-1} + L_V \frac{Sh \cdot D_{WO_2} M_{WO_2} \cdot P_a}{dRT} \times \\ & \left. \times \exp \left( \frac{L_V M_{WO_2}}{RT} \left( \frac{1}{T_k} - \frac{1}{T} \right) \right) + \frac{3\lambda m(T - T_g)}{L} \cdot \left( \frac{d}{L} \right) \right]. \end{aligned} \quad (11)$$

**Полученные результаты.** Рассчитанные по формуле (11) зависимости  $I(T)$  для вольфрамового проводника с учетом и без учета испарения оксидной пленки с его поверхности представлены на рис. 2.

Экстремумы на кривой  $T(I)$  характеризуют критические режимы зажигания проволоочки (т.И-максимум) и потухания (т.Е — минимум) при соответственно критических значениях силы тока  $I_I$  и  $I_E$ . Кривая до т.И определяет низкотемпературные устойчивые стационарные режимы — окисление, кривая после т.Е — устойчивые высокотемпературные режимы — горение [6]. В интервале значений  $I_I > I > I_E$  наблюдается гистерезисное поведение температуры проводника в зависимости от силы тока. В этом интервале для реализации высокотемпературных устойчивых состояний необходимо увеличить начальную температуру проводника выше значения, лежащего на ветви  $I_I$   $I_E$  для соответствующего значения силы тока. Низкие температурные устойчивые состояния реализуются для начальных температур, лежащих ниже ветви  $I_I$   $I_E$ .

Из рис. видно, что учет испарения окисла приводит к увеличению критического значения силы тока  $I_E$ , характеризующего потухание проводника, и

уменьшению температуры в устойчивом высокотемпературном состоянии (рис.2, кривая 2). Рост  $I_E$  объясняется увеличением плотности химического тепловыделения при уменьшении толщины испаряющегося окисла. Следовательно, для сохранения условия стационарности силу тока нужно увеличить. Теплотери на испарение окисла приводят к понижению температуры в режиме высокотемпературного окисления. Испарение окисла не влияет на режимы низкотемпературного теплообмена и критические параметры зажигания проводника  $I_1$ , т.к. при этих температурах скорость испарения невелика.

Кружочками на рис.2 представлены экспериментальные данные, полученные нами для вольфрамовой проволоки тех же геометрических размеров [6, 7]. Наблюдается хорошее согласие экспериментальных и расчетных стационарных низкотемпературных режимов теплообмена. Определено критическое значение силы тока, при котором происходит скачкообразный переход в высокотемпературное состояние проводника. При достижении силой тока критического значения  $I_1 \approx 1.03$  А проволока быстро накаляется и перегорает. Так как в центре проволоки температура максимальна (края проволоки охлаждаются за счет теплового потока к токоподводящим проводам), то ее перегорание наблюдается именно в этом месте. Происходящие на поверхности проволоки процессы плавления и испарения оксида приводят к уменьшению толщины оксидной пленки и, следовательно, к увеличению скорости химической реакции, что ведет к резкому увеличению температуры и разрушению проволоки.

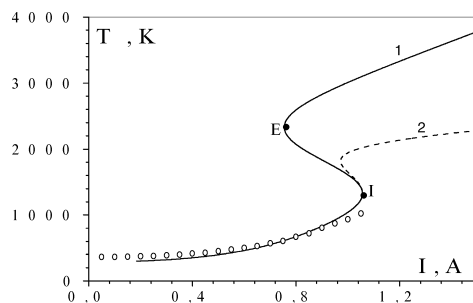


Рис. 2. Зависимость  $T(I)$  для вольфрамового проводника  $d=70$  мкм,  $L=10$  см,  $T_g=T_w=288$  К;  $h_b=0.4$  мкм; 1 — без учета испарения, 2 — с учетом испарения  $WO_2$ .

На рис. 3 представлены зависимости  $I(T)$  для вольфрамового проводника с учетом ( $q_r \neq 0$ ) и без учета теплотерь излучением ( $q_r = 0$ ) к стенкам реакционной установки. Из рис.3 а видно, что теплотери к стенкам реак-

ционной установки приводят к увеличению критических значений силы тока, характеризующих зажигание и потухание проводника. При некотором диаметре проводника (рис.3 б, кривая 1) критический режим, определяющий потухание (т.Е), исчезает. Погасить вольфрамовый проводник данного диаметра уменьшением силы тока становится невозможным.

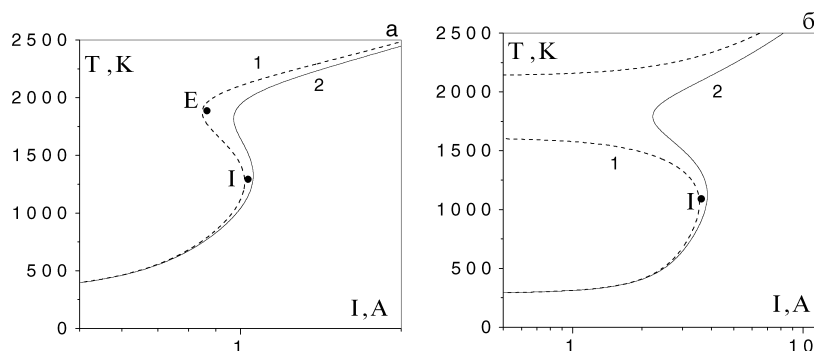


Рис. 3. Влияние теплообмена излучением на устойчивые и критические режимы окисления вольфрамового проводника;  $T_w = T_g = 288$  К,  $n_{02\infty} = 0.23$ ,  $L = 10$  см; а)  $d = 70$  мкм, б)  $d = 250$  мкм; 1 —  $q_r = 0$ , 2 —  $q_r \neq 0$

На рис. 4 показано влияние испарения оксидной пленки на критические значения силы тока и температур вольфрамового проводника, при которых происходит его зажигание ( $I_1, T_1$ ) и потухание ( $I_E, T_E$ ), в зависимости от диаметра (рис.4 а, б) и толщины оксида на его поверхности (рис.4 в, г). Учет теплопотерь на испарение оксидной пленки приводит к повышению критических значений силы тока, при которых реализуются высокотемпературные состояния. С увеличением  $d$  скорость испарения уменьшается, поэтому степень влияния этого процесса на  $I_E, T_E$  уменьшается (рис.4 а, б, кривые 1 и 2). При некоторых малом  $d_{\gamma_1}$  и большом  $d_{\gamma_2}$  диаметрах проводника наблюдается вырождение критических режимов зажигания и потухания (т.  $\gamma_1, \gamma_2$ ) (рис.4 а, б).

Кривые  $I_1(d)$  и  $I_E(d)$ ,  $I_1(h_b)$  и  $I_E(h_b)$  ограничивают три области параметров  $I$  и  $d$ ,  $I$  и  $h$ , при которых процессы теплообмена и окисления протекают с различной интенсивностью:

1. Область, которая находится выше кривых  $I_1(d)$ ,  $I_1(h_b)$  — область свободного перехода проводника в высокотемпературное состояние независимо от начальной температуры.

2. Область, ограниченная кривыми  $I_1$  и  $I_E$  — область гистерезиса процессов теплообмена и кинетики окисления. Переход в высокотемператур-

ный режим возможен при увеличении начальной температуры проводника в интервале  $T_1 < T_b < T_E$  для соответствующей толщины оксидной пленки из интервала  $h_1 < h_b < h_E$ .

3. Область, расположенная ниже кривых  $I_E(d)$  и  $I_E(h_b)$  — низкотемпературная область окисления. Переход проводника при  $I_b < I_E$  в высокотемпературное состояние невозможен ни при каких начальных температурах проводника.

Проанализируем влияние начальной толщины оксидной пленки на критические режимы высокотемпературного окисления. Рост начальной толщины оксидной пленки приводит к увеличению критических значений  $I_1$  и  $I_E$  (рис.4, в), так как при этом понижается плотность химического тепловыделения. Причем критическое значение силы тока  $I_1$ , характеризующее зажигание, растет слабее, чем  $I_E$ , что связано с большим влиянием на  $q_{ch}$  скорости подвода кислорода к поверхности проволоочки в случае потухания. С ростом  $h_b$  уменьшается различие между экстремальными значениями  $I_1$  и  $I_E$ , и при некотором значении  $h_{b\gamma}$  происходит вырождение критических условий зажигания и потухания проволоочки. При  $h_b > h_{b\gamma}$  наблюдаются бескризисные переходы в высокотемпературные состояния.

Уменьшение начальной толщины оксидной пленки может привести к исчезновению критического режима потухания. Существует такой интервал толщин оксида  $0 < h_b < h_b^*$ , для которого перевести проволоочку в низкотемпературное состояние становится невозможным при уменьшении силы тока (рис. 4 в, г).

Рис.5 иллюстрирует влияние теплообмена излучением на критические значения силы тока и температуры проводника, при которых происходит его зажигание и потухание. Точки  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$  характеризуют вырождение критических режимов зажигания и потухания вольфрамового проводника в области больших и малых его диаметров. Видно, что в случае отсутствия теплообмена излучением со стенками реакционной установки (кривые 2) существует интервал диаметров проводника  $[d_1^*, d_2^*]$ , для которого невозможен переход из высокотемпературного состояния в низкотемпературный уменьшением значения силы тока.

Из рис.5 видно, что для некоторых значений силы тока наблюдается несколько критических диаметров, соответствующих потуханию, например,  $I=0.8A$  (т.  $e_1, e_2, e_3$ ) (табл.).

Анализ отношения константы скорости химической реакции и коэффициента массообмена показывает, что переход проводника на высокотемпературный режим происходит в кинетическом режиме (т.  $i$ ), как и потухание при небольших диаметрах проводника (т.  $e_1$ ). В точке потухания  $e_2$  режим протекания реакции переходной, а в т.  $e_3$  — диффузионный, что объясняется уменьшением коэффициента массообмена за счет увеличения диаметра про-

водника. Из сравнения плотностей тепловых потоков в критических режимах зажигания и потухания следует, что при сравнительно небольшом диаметре проводника и температурах ( $t_i$ ) велики теплотери молекулярно-конвективным путем, теплотери на испарение и через токоподводящие провода малы. С увеличением температуры проводника возрастает роль теплотери на испарение оксида с поверхности ( $t, \epsilon_1, \epsilon_2$ ). Отношение  $\frac{q_v}{q_L}$  показывает, что потухание проводника при больших его диаметрах и силах тока определяется в основном теплотерями через токоподводящие провода.

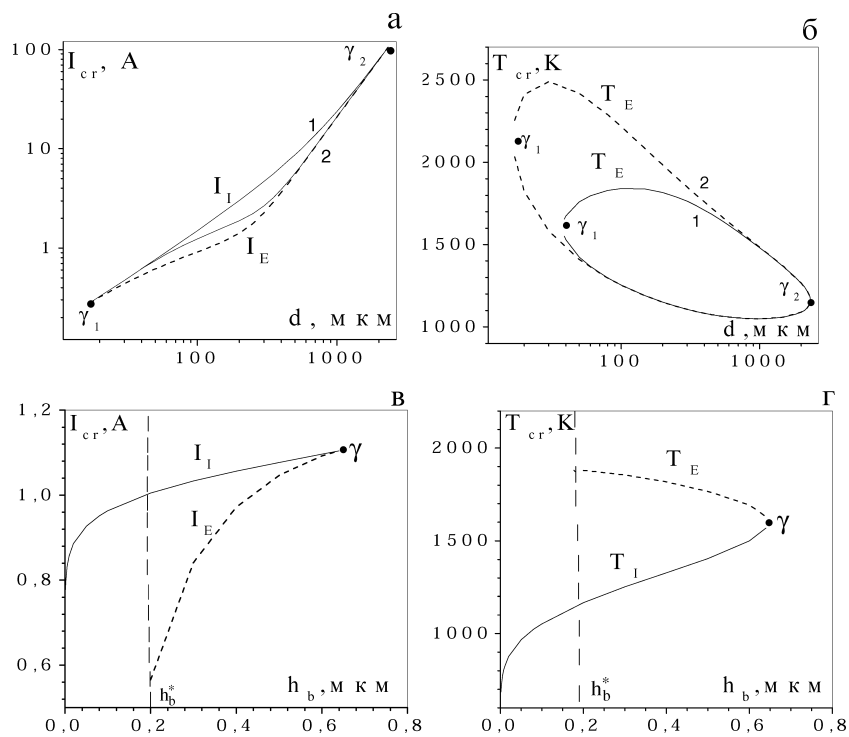


Рис. 4. Влияние диаметра проводника и толщины оксидной пленки на критические значения силы тока и температуры, характеризующие зажигание ( $I_i, T_i$ ) и потухание ( $I_E, T_E$ ) проводника; а), б) 1 — с учетом испарения  $WO_2$ , 2 — без учета испарения  $WO_2$ ,  $h=0.4$  мкм; в), г) с учетом испарения  $WO_2$ ,  $d=70$  мкм.

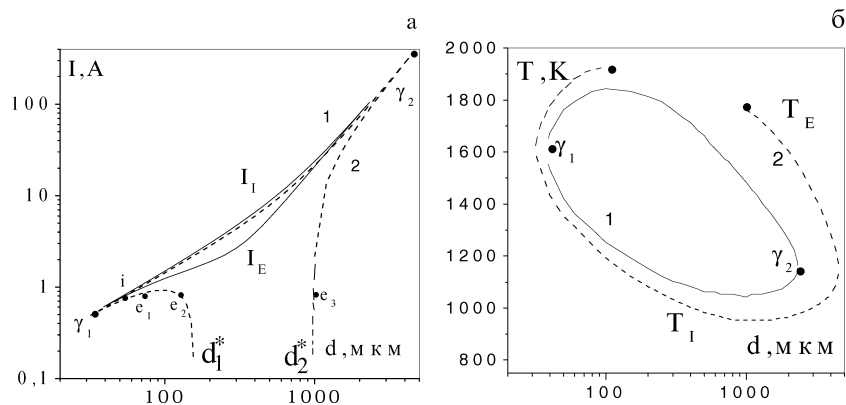


Рис. 5. Влияние теплообмена излучением на критические режимы зажигания и потухания вольфрамового проводника различных диаметров;  
 $L=10$  см.  $T_w=T_g=288$  К; а)  $T_{cr}(d)$ , б)  $I_{cr}(d)$ ; 1-  $q_r \neq 0$ ; 2 —  $q_r=0$ ;  
 $h_b=0.4$  мкм.

Таблица

**Анализ режимов протекания реакции окисления и относительной роли тепловых механизмов при зажигании и потухании вольфрамового проводника в отсутствие теплообмена излучением.  $L=10$  см,  $T_w=T_g=288$  К**

$q_r=0$						
экстремумы	T, К	d, мкм	$k/h\beta$	$q_e/q_v$	$q_l/q_L$	$q_l/q_L$
т. i	1335	54.1	0.03	1140	249	0.22
т. e <sub>1</sub>	1858	62.4	0.3	10	231	23
т. e <sub>2</sub>	1913	127	0.7	7	57	8
т. e <sub>3</sub>	1762	993	3.6	19	0.88	0.05
$q_r \neq 0$						
т. i	1425	53	0.05	390.5	271	0.69
т. e <sub>1</sub>	1825	55	0.24	12.4	294	23.7

### Литература

1. Кофстад П.А. Высокотемпературное окисление металлов. М.: Мир, 1969. — 392 с.
2. Деревяга М.Е., Стесин Л.Н., Федорин Э.А. Воспламенение и горение тугоплавких металлов (Вольфрам, Молибден, Бор) // ФГВ. — 1979. — Т.15, №4. — С.17-23.
3. Мержанов А.Г. Тепловая теория воспламенения частиц металлов // Ракетная техника и космонавтика. — 1975. — Т.13, №2. — С.106-112.



4. Полищук Д.И., Золотко А.Н., Шевчук В.Г. О воспламенении частиц бора. // *Archiwum Termodynamiki I Spalania*. –1976. –V.7, №1. — P.82-87.
5. Краснощеков Е.А., Сукомел А.С. Задачник по теплопередаче. — М.: Энергия, 1980. — 288 с.
6. Калинин В.В., Орловская С.Г., Грызунова Т.В. Устойчивые и критические режимы высокотемпературного окисления вольфрамового проводника в воздухе // *Теплофизика высоких температур*. — 2003. — Т.41, №3. — С. 465-469.
7. Орловская С.Г., Калинин В.В., Грызунова Т.В., Каримова Ф.Ф., Черных К.В. Влияние фазовых переходов на критические и устойчивые режимы окисления вольфрамового проводника в воздухе // *Дисперсные системы. XX научная конференция стран СНГ*. — Одесса: Астропринт, 2002. — С. 215-216.

*С. Г. Орловська, В. В. Калінчак, Т. В. Гризунова*

**Високотемпературне окислення вольфрамового провідника з врахуванням теплообміну випромінюванням та випаровування окисної плівки з його поверхні**

**АНОТАЦІЯ**

Вивчено вплив теплообміну випромінюванням та фазових переходів на запалення та потухання вольфрамового провідника, що нагрівається електричним струмом. Показано, що випар окисної плівки приводить до появи максимуму на часовій залежності товщини окисної плівки, що формується на поверхні дротику. Доказано, що починаючи з деякого діаметру провідника, знехтування тепловтратами випромінюванням приводять до зникнення критичного значення сили струму, що характеризує його потухання.

*Orlovskaya S. G., Kalinchak V. V., Gryzunova T. V.*

**High-temperature oxidation of tungsten filament with account of radiation heat transfer and phase transitions on its surface**

**SUMMARY**

Influence of radiation heat transfer and phase transitions on tungsten filament ignition and extinction is studied. It is shown that radiation heat loss leads to non-monotonous temporal dependence of oxide film thickness on filament surface. Critical values of electric current corresponding to tungsten filament ignition and extinction increase due to radiation heat loss account.

**В. А. Дроздов<sup>1</sup>, М. А. Дроздов<sup>1</sup>, В. В. Ковальчук<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Одесский институт Сухопутных войск

<sup>2</sup>Южно-украинский государственный педагогический университет  
им. К. Д. Ушинского, г. Одесса

## **Синергетика надмолекулярных кластеров в матричных средах**

*Самые интересные явления в статистической физике это те,  
в которые вовлечено большое число степеней свободы.*

*А. Б. Мигдал*

Статья посвящена анализу исследований механизмов формирования надмолекулярных кластеров различной природы с позиций концепции кластеризованных гетероструктур в целях выработки единого подхода к описанию свойств материалов. Подчеркивается, что в случае формирования кластеров оказывается задействованным значительно большее число степеней свободы в связи с наличием матричного материала, чем при образовании молекул. Именно это обстоятельство наделяет кластеры специфическими свойствами (дефиницией), которые привлекают к ним внимание специалистов разного профиля. Эти вопросы настолько близки по концептуальной идее (основе), как и задачи связанные с анализом колебательных процессов различной природы в рефрене единого подхода, основанного на общности соответствующих дифференциальных уравнений. Затронутые в статье вопросы имеют прямое отношение к формированию аэрозольных ассоциатов [1].

Лазерные технологии позволяют выделять и выводить в открытое пространство структурные фрагменты любой дисперсности [2], сформированные в газообразных, жидких и твердотельных матрицах [3-8]. В этом плане представляет особый интерес изучение физических механизмов синергетических процессов, ответственных за самоорганизацию [9,10] когерентных с матрицей надмолекулярных кластеров [11], и в дальнейшем мы будем придерживаться версии, основанной на процессах синергетической кластеризации<sup>1</sup> материалов.

Представления о кластерах успешно применяются моделировании физических процессов в твердых телах и приборах. Очень выпукло этот подход выражен в работах В.И. Архарова и сотрудников [12]. Предложенная авторами семантика весьма адекватна в отношении нового класса объек-

<sup>1</sup> В смысле способности кластера к самоорганизации.

тов как виртуальных (модельных), так и реальных. В физике конденсированного состояния, дополнительно к микроскопическому и макроскопическому объемам вещества, предлагается автономизировать промежуточный — мезоскопический формат. Именно к этой категории объектов, по всем признакам, следует отнести надмолекулярные кластеры, которые в отличие от молекул органически сопряжены с матричной средой. В случае формирования кластеров, в связи с наличием матричного материала, оказывается задействованным значительно большее число степеней свободы, чем при образовании молекул. Именно это обстоятельство наделяет кластеры специфическими свойствами (дефиницией), которые привлекают к ним внимание специалистов разного профиля. Такой подход имеет методологическое значение, он позволяет, помимо того, количественный расчет явлений (как и качественный анализ механизмов) разделить на два этапа. На первом этапе может происходить расчет изменений, происходящих в отдельных мезоскопических группах атомов с учетом имеющихся в каждой из них конкретных локальных условий: вариации сил взаимодействия участвующих атомов и их взаимного расположения, определяющего возможные парные сочетания. Заметим, что число атомов в такой мезоскопической группе всегда конечно. Поэтому расчетные процедуры (в рамках некоторых эффективных приближений), как правило, не вызывают затруднений. На второй ступени, используя данные по каждой из кластерных мезоскопических групп (образующих макротело) вместо сложного интегрирования (обезличенного статистического усреднения) используется суммирование конечного числа объектов.

Что же касается пространственного дислоцирования и функционирования кластеров, то здесь наиболее уместно отнести ситуацию к гетеросистемам с  $\delta$ -слоями [13]. Последний термин определяет полупроводники с предельно неоднородным характером легирования, когда легирующая примесь вместо однородного распределения по объему полупроводника сконцентрирована в очень узких слоях, в идеале составляющих лишь один монослой. Такое название эти структуры получили в связи с тем, что профиль примесного распределения напоминает  $\delta$ -функцию Дирака. Неоднородно распределенный заряд примесей создает в образце потенциальный рельеф, наличие которого приводит к качественному различию между свойствами  $\delta$ -слоев и однородно легированных полупроводников. Структура с двумерным или квазидвумерным электронным газом (с концентрацией электронов до  $10^{14}$  см<sup>-2</sup>) образуется в монополярных  $\delta$ -слоях (где содержатся примеси лишь одного знака). Управление концентрацией электронов путем введения дополнительного затворного электрода открывает новые возможности в приборостроении нанометрового формата.

Эвристически ценными также являются исследования по электронным сольватам и гидратам, начало которым было положено в работах [14]. Полученные результаты указывают на то, что электроны могут служить инициа-

рующим фактором и структурными элементами в механизме кластеризации матричной среды [5,6]. Обобщенно их можно рассматривать как квазичастицы, способные взаимодействовать с коллективными возмущениями среды.

Получила творческое развитие идея Л.Д. Ландау, согласно которой электрон, движущийся в диэлектрике, может поляризовать его, т.е. ориентировать частицы диэлектрика таким образом, что сам электрон будет захвачен и приведен к некоторому равновесному положению электрическим полем образовавшегося возмущения среды.

Идея оказалась, в частности, весьма плодотворной в применении к полярным кристаллам, которым посвящен известный цикл работ киевской школы С.И. Пекара [15]. Было показано, что в результате локальной поляризации электроном диэлектрической среды может возникнуть эффективная потенциальная яма с дискретным спектром, и электрон оказывается в одном из квантовых состояний, реализующих этот спектр, — это полярон.

Следующий шаг был сделан И.М. Лифшицем и С.А. Гредескулом [16], которые рассмотрели взаимодействие электрона со средой с помощью слабых короткодействующих сил, вызывающих, однако, весьма большую поляризацию с образованием кластера - плотного скопления элементов среды в достаточно большом объеме. Размеры кластера определяются расстоянием, на котором волновая функция основного состояния электрона в потенциальной яме, созданной кластером, существенно отлична от нуля; относительные смещения элементов среды при этом весьма велики. Возникающая ситуация представляет, очевидно, обратный предельный случай по отношению к образованию полярона и обязана своим появлением квантовой специфике задачи.

На этом этапе отмеченные идеи и работы смыкаются с исследованиями в области научной фотографии, посвященными выяснению природы центров скрытого фотографического изображения - СИ-центров, субколлоидных кластеров размерами менее  $100 \text{ \AA}$ . Термин “СИ-центры” представляется здесь вполне уместным в данном случае еще и потому, что помимо скрытого изображения подразумевает, очевидно, синергетический механизм образования организованного объекта в хаотизированном микрообъеме матричного материала.

Наименее изученным этапом в формировании субколлоидных кластеров является их нуклеация — образование зародышей. Во многих работах используются представления о возникновении агрегированных дефектов в результате многошагового процесса последовательного присоединения диффундирующих к коагуляту F-центров, как это предполагается, например, в схемах Пика, Стасива или Риза [17]. В символике Риза двухстадийный многошаговый процесс укрупнения дефектного центра вплоть до коллоидных размеров выглядит, так как это представлено на схеме (**рис.1**):

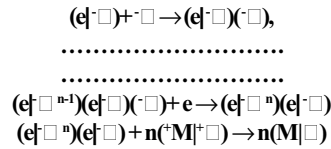


Рис. 1. Схема возникновения агрегированных дефектов [17]

Такое представление о механизме кластеризации, создающем СИ-центры, является недостаточно обоснованным. Дело в том, что известные ассоциаты типа М-, R-центров гораздо менее устойчивы, чем F-центры. И поэтому они не могут служить промежуточным этапом термостимулируемой коагуляции F-центров в коллоиды, а в определенных условиях равновесия в лучшем случае сосуществуют с F-центрами и коллоидами как независимые димерная и тримерная составляющие системы F-центров. Кроме того, диффузионные времена ионных процессов таковы, что спектры оптического поглощения должны были бы указывать на существование промежуточных усложненных квазимолекулярных кластеров, однако таких указаний не имеется. Таким образом, возникает необходимость в разработке новых представлений о процессе аккреции частиц среды в кластеры субколлоидной дисперсности, к которым относятся и СИ-центры.

Весьма универсальный тип агрегированного центра, определенного изначально как квазиметаллический (КМЦ), был разработан по инициативе А.Е. Глаубермана [18-21]. Эта модель КМЦ наиболее адекватна реальной микроситуации, сопутствующей формированию агрегированных дефектов в матричном материале. Термин “квазиметаллический центр” подчеркивает то обстоятельство, что расположение ионов металла в нем определяется (коррелируется) структурой матричного кристалла, и распределение электронной плотности в центре также отличается от распределения в соответствующем макрометалле. Развиваемая модель основана на определенном расширении понятия о гетерофазных флуктуациях, введенного Яковом Ильичем Френкелем в связи с теорией предпереходных состояний [22]. В отличие от этой теории, речь идет о флуктуационном возникновении зародышей “чужеродной” фазы, по отношению к которой исходная система — матрица остается термодинамически устойчивой. Как зародышевые элементы, так и продукты их эволюции вплоть до стабильных микрообластей этой “чужеродной” фазы можно трактовать как сложные квазимакроскопические дефекты основной системы. Так например, в кристаллах с F-центрами гетерофазная флуктуация, описанного типа, заключается в вакансионном замещении ионов галоида в ближайшем окружении ионов металла. Если число замещенных вакансиями ионов галоидной координационной сферы (относительно металлического иона) достаточно велико, образуется КМЦ, в котором положительные ионы металла погружены в электронную “жидкость”,

образованную коллективизированными электронами проводимости. При стабилизации зародыша путем захвата электронов, он, в конечном счете приобретает избыточную, по сравнению с необходимой для электронейтральности, электронную плотность. Соответствующая доля давления электронного газа заменяет короткодействующие силы отталкивания, ранее созданные ионами галоида. Таким образом, на первом этапе нуклеации возникает КМЦ, испытывающий недостаток электронов и представляющий собой эффективную ловушку для них. Далее в процессе стабилизации КМЦ превращается в отрицательно заряженный центр, способный к дальнейшему росту. При рассмотрении взаимодействия КМЦ с электромагнитным излучением оптического диапазона можно использовать плазменное приближение.

Применительно к сферической модели КМЦ решение системы линеаризованных гидродинамических уравнений Блоха дает хорошие результаты. Исходные уравнения имеют следующий вид:

$$m^* \cdot \left( \frac{\partial \psi}{\partial t} + g\psi \right) = -e\varphi^{in} + 1,2 \frac{E_F}{\rho_0} \cdot \rho$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \rho_0 \Delta \psi$$

$$\Delta \varphi^{in} = 4\pi e \rho$$

где  $e$  — заряд электрона,  $m^*$  — эффективная масса электрона,  $t$  — время,  $\rho_0$  — плотность электронов в равновесном состоянии,  $\psi$  — функция, характеризующая скорость электрона,  $\varphi^{in}$  — электрический потенциал

Важным результатом проведенного исследования является установление зависимости спектрального положения полосы оптического поглощения КМЦ от их размеров. Расчеты, выполненные на ЭВМ, показали, что, например, для КМЦ из атомов меди в структуре куприта увеличение размеров КМЦ от  $5 \text{ \AA}$  до  $250 \text{ \AA}$  вызывает монотонное смещение максимума их оптического поглощения от 330 нм до 1320 нм, рис.2.

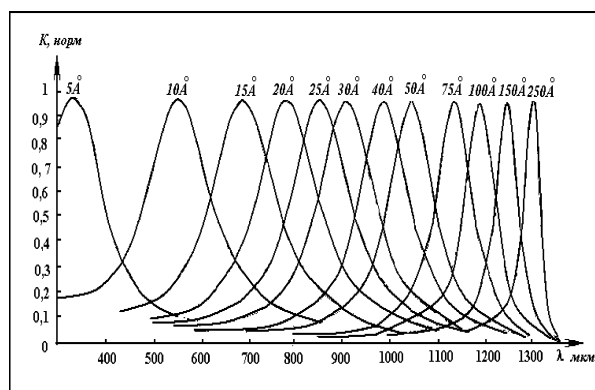


Рис. 2. Спектральное распределение коэффициента экстинкции, нормированного на 1, в зависимости от размеров КМЦ в закиси меди (расчеты на Pentium — IV)

В закиси меди легко реализуется ситуация, отличающаяся большой вероятностью синергетического (гетерофлуктуационного) образования металлокластеров типа КМЦ. Пленки закиси меди толщиной до 10 мкм получались с учетом рекомендаций [23]. Отжиг в вакууме стимулировал обескислороживание закиси меди, другими словами, насыщал кристаллиты анионными вакансиями. Последнее дает начало КМЦ — нуклеации. Действительно, кластеризация в слое закиси меди, отжигаемом в вакууме, идет весьма интенсивно вплоть до восстановления металлической меди.

С использованием различных восстановителей это явление может быть использовано практически для получения полупрозрачных электродов на закиси меди, как это делалось, например, в опытах В.Е. Лашкарева и К.М. Косоноговой [24].

В процессе кластеризации пленки закиси меди существенно изменяются, прежде всего, их электрические свойства. Используя набор образцов с различными временами отжига в вакууме (от 0 до 10 мин с интервалами в 1 мин), мы наблюдали переход от *p*-типа проводимости к *n*-типу проводимости. При этом изменяется знак термо-э.д.с. и постоянной Холла. Такое *p-n*-превращение проводимости легко понять, если учесть конкретную ситуацию в пленке. Обескислороживание закиси меди при отжиге в вакууме уничтожает систему акцепторов (избыточных атомов кислорода), но, с другой стороны, получает начало процесс КМЦ-нуклеации. Сама по себе атомарная медь продуцирует в закисной структуре довольно глубокие центры (~0,6 эВ), не способные активно функционировать в качестве доноров. Однако, при достижении определенной плотности КМЦ - растра становится реальным механизм легкоактивируемого межкластерного обмена с энергией активации ~ 0,12 эВ. Иначе говоря, можно полагать, что прово-

димось кластеризованной закиси меди носит псевдо-полупроводниковый характер рис. 3.

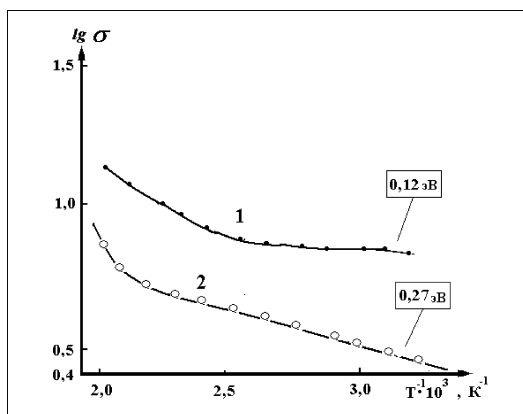


Рис. 3. Температурные зависимости проводимости пленок закиси меди:  
1 — р-типа, 2 — n-типа

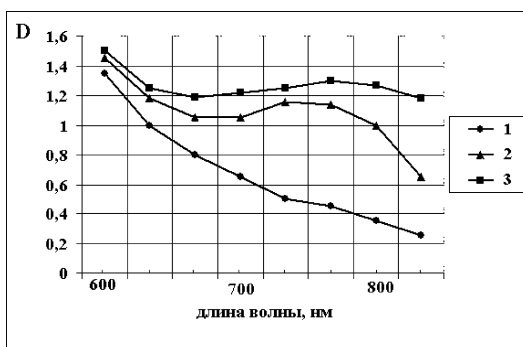


Рис. 4. Оптическое поглощение пленок закиси меди с различной проводимостью:  
1 — р-тип; 2 и 3 — n-типа при временах отжига в вакууме 5 и 10 минут,  
соответственно

Динамика изменений в спектре оптической абсорбции пленки закиси меди при переходе от дырочной проводимости к электронной, осуществляемом по приведенной технологии, иллюстрируется рис. 4.

Здесь имеет место типичный для растущих коллоидов размерный “красный” сдвиг максимума поглощения в примесной области. Относительно большая размытость полос поглощения объясняется тем, что в нашем слу-



чае не принималось специальных мер (типа закалки), гомогенизирующих кластерный растр пленки по размерам.

Наличие кластерной подсистемы определяет свойства еще одного класса материалов, именуемых керметами [25]. Керметные пленки получались фотоактивируемым (УФ-подсветкой) пиролизическим разложением металлоорганических соединений типа бисбензолхром, бисбензолмолибден или бисбензолниобий в сочетании с тетраоксисиланом. По этой технологии на металле осаждались аморфные пленки, в которых одиночные атомы или кластеры d-металла фиксировались в  $\text{SiO}_2$ -матрице. Технологические условия формирования подобных структур (высокие температуры от 300 до 550°C, и УФ-фотоактивация) способствовали развитию гетерофлуктуационного (синергетического) механизма кластеризации и можно, следовательно, классифицировать эти кластеры как КМЦ. Удельное поверхностное сопротивление керметных пленок составило значения от 10 до  $10^4$  Ом·м при толщине 0,5 — 10 мкм. Характерной особенностью проводимости керметных пленок является резкая нелинейность их вольтамперных характеристик на постоянном и переменном сигнале, рис. 5

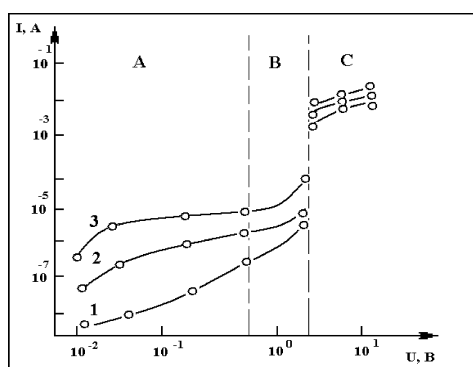


Рис. 5. ВАХ  $\text{SiO}_2(\text{Cr})$  — пленок при частоте сигнала, Гц:  
1 — 0; 2 —  $10^3$ ; 3-  $10^7$

Область скачкообразного изменения  $\sigma$  может быть связана с лавинным выходом электронов из КМЦ. При более низких напряжениях характер частной зависимости  $\sigma(f)$  может быть описан степенной функцией с показателем 0,7, что примерно соответствует известной двухцентрковой модели прыжковой проводимости [26] рис. 6.

Типичная частотная характеристика для  $\text{SiO}_2$  (М)-пленок позволяет выделить три типа КМЦ с различными характеристическими временами переключений, табл. 1 что, по-видимому, можно отнести в пользу скачкообразного гетерофлуктуационного (синергетического) механизма образования КМЦ.

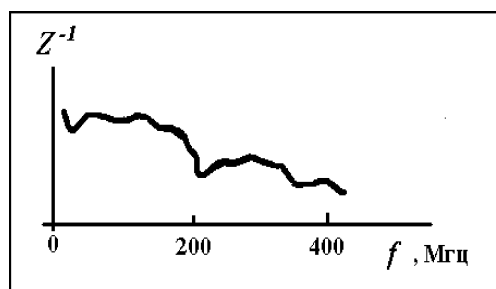


Рис. 6. Частотный спектр пленок SiO (Cr). По оси ординат отложена величина обратно пропорциональная полному импедансу потерь в пленке. Волновое сопротивление пленки 75 Ом

Таблица 1

Значения времени перескока  $t$ , определенные по ВЧ характеристикам пленок керметов

Материал	Значение, $t$ , с		
Cr-SiO <sub>2</sub>	$5,2 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-8}$	$2,7 \cdot 10^{-8}$
Mo-SiO <sub>2</sub>	$7,2 \cdot 10^{-7}$	$8,5 \cdot 10^{-8}$	$4,8 \cdot 10^{-8}$
Nb-SiO <sub>2</sub>	$8,6 \cdot 10^{-6}$	$4,3 \cdot 10^{-7}$	$2,5 \cdot 10^{-8}$

Кластеризация материалов существенно модифицирует их свойства. Нами наблюдалось значительное улучшение качества т.н. альтернативных (платине) катализаторов на основе кластеризованных молибдатов и вольфраматов лития.

Были обнаружены явления оптической формовки CdS-Cu<sub>2</sub>O (КМЦ)- фотоэлементов, при котором процесс фотоактивированной кластеризации в этой системе проявлял особенности, сходные с теми, которые имели место в случае фотохимических реакций, исследованных М.К.Шейнкманом и сотрудниками в сульфиде кадмия [27], легированном медью и родственные свойствам фотохромных стекол, активированных медью.

Новые возможности открывает рассмотренная нами кластеризация и в кремниевой нанотехнологии [28,29]. На этом рубеже возможна реализация множества интересных объектов из арсенала нанoeлектроники, классифицируемых ныне как квантовые ямы, квантовые нити или квантовые точки. Все они попадают под определение квантово-размерных структур (КРС) [30]. Принципы формирования подобных объектов могут быть различными [31,32].

Оставаясь в контексте статьи, нами исследовались исключительно субфазные кластеры [33,34], в формировании которых играют существенную роль играют синергетические факторы [11]. В результате, как и в случае КМЦ, следует ожидать, что структурообразование кластерной подсистемы осуществ-

ляется когерентно матричной основе. Последнее обеспечивает стабильность физических свойств соответствующих кластеризованных гетероструктур.

Иллюстрацией сказанного выступают наглядные конструкции объектов нанометрового формата [34], самые простые, из которых, могут служить структурными элементами для образования субфазных кластеров (до 100 Å) наподобие того, как из F-центров образовывался КМЦ.

Следует особенно подчеркнуть, что кластерное состояние вещества классифицируется ныне как фаза. Например, сегодня являются хорошо известными несколько твердых фаз углерода — графит, алмаз и фуллерен (был открыт в 1985 году)<sup>1</sup>, реализованный именно в мезоскопическом кластерном виде, имеющий многообещающие перспективы в нанoeлектронике и физике аэродисперсных систем.

Приведем результаты электронно-микроскопического анализа Si-кластера, размером ~2-25 нм, на графите (рис. 7) [35]. Si-НС состоит из квазикристаллического ядра, зафиксированного (как в керметах) аморфной (окисной) оболочкой. Толщина этой оболочки линейно уменьшается (от 2.9 до 0.8 нм) при сокращении размеров Si-НС.

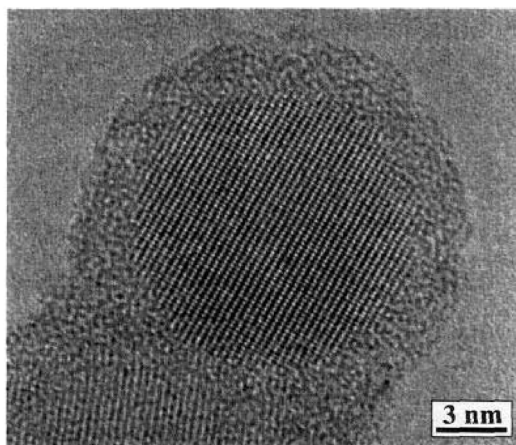


Рис. 7. Результаты электронно-микроскопического анализа Si-НС [35]

Этот результат дает наглядный пример того, каким образом можно фиксировать рассмотренные кластеры на кремнии и стабилизировать их по различным параметрам. Аналогичная кластеризованная гетероструктура с кластерами *InAs* и *InGaAs* на поверхности *GaAs* представлена на рис. 8.

<sup>1</sup> В честь американского архитектора Р.Б.Фуллера, известного своими конструкциями куполов из прямых стержней.

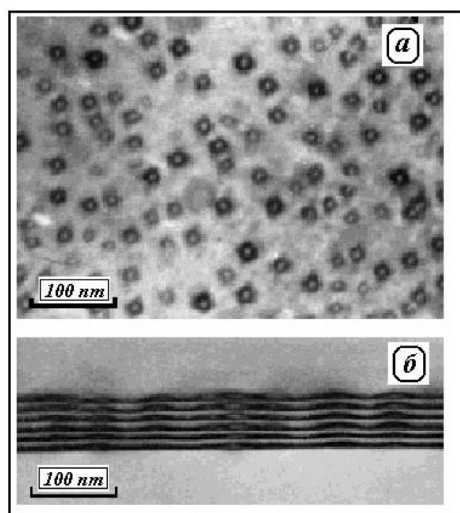


Рис. 8. Электронно-микроскопическая картина образования эпитаксиальных пленок (на поверхности роста (а) и поперечное сечение (б)) массива вертикальных<sup>1</sup> КТ типа InGaAs, сформированных в эпитаксиальном слое GaAs [36]

В развитие работ по хелатам<sup>2</sup> можно привести примеры новых возможностей интеркалляции отдельных атомов или даже кластеров в Si-полиэдры, что еще более разнообразит свойства последних [32,33].

Нами рассматривались возможные оптические, фотоэлектрические и люминесцентные свойства кластеризованных кремниевых гетероструктур [34]. При этом, главной целью нашей работы было создание широкого ассортимента кластерных модификаций с разнообразными физическими свойствами, на базе которых можно разрабатывать конкретные когерентно согласованные гетероструктуры. Полученные данные подтверждают перспективность подобных исследований свойств надмолекулярных кластеров для целей наноформатной микроэлектроники и технологии аэродисперсных сред.

<sup>1</sup> В отличие от планарных (плоских)

<sup>2</sup> **Хела** — греч. “**клевшия**” (Дж.Морган, Х.Смит). Металл, находящийся в центре соединения служит как бы узлом, связывающим матричные молекулы. Сам же он удерживается этими молекулами — лигандами, за счет атомов-доноров лиганда (например, кислорода, азота, серы). Такие доноры отдают свои электроны для образования связи. Свойства этих соединений определяются характером хелатного узла, т.е. природой металла и непосредственно связанных с ним донорных атомов, а также размерами кластера.

### Литература

1. Смирнов Б.М. Физика фрактальных кластеров. — М.: Наука, 1991. — 133 с.
2. Мирзоев Ф.Х., Панченко В.Я., Шелепин Л.А. Лазерное управление процессами в твердом теле // УФН. — 1996. — Т. 166, №1. — С. 3-32.
3. Крейдок С., Хинчклиф А. Матричная изоляция. — М.: Мир, 1978. — 175 с.
4. Харгиттаи М., Харгиттаи И. Геометрия молекул координационных соединений в парообразной фазе. — М.: Мир, 1976. — 249 с.
5. Томпсон Дж. Электроны в жидком аммиаке. — М.: Мир, 1979. — 324 с.
6. Харт Э., Анбар М. Гидратированный электрон. — М.: Атомиздат, 1973. — 280 с.
7. Смирнов Б.М. Кластеры с плотной упаковкой и заполненными оболочками // УФН. — 1993. — Т.163, №10. — С. 29-56.
8. Дроздов В.А., Дроздов М.А., Ковальчук В.В. Кластеризованные гетероструктуры // Ювілейна сесія НАН України, присвячена 100-річчю з дня народження В.Є. Лашкарьова. — Київ, 7-10 жовтня, 2003.
9. Добронравова И.С. Становление нелинейного мышления. — К.: Либидь, 1990. — 150 с.
10. Пригожин И. От существующего к возникающему. — М.: Наука, 1985. — 328 с.
11. Шелль Э. Самоорганизация в полупроводниках. Неравновесные фазовые переходы в полупроводниках, обусловленные генерационно-рекомбинационными процессами. — М.: Мир, 1991. — 460 с.
12. Архаров В.И. О кластерной природе конденсированного состояния вещества // Физика твердого тела. Республиканский межведомственный научно-технический сборник / Под ред. В.И. Архарова. — Харьков: Вища школа, 1989. — С. 3-8.
13. Шик А.Я. Полупроводниковые структуры с слоями // ФТП. — 1992. — Т.26, № 7. — С. 1161-1181.
14. Voag J.W., Hart E.J. Absorption spectra of the hydrated electron // Nature. — 1963. — V.197. — P. 45-56; Давыдов А.С. К теории спектров поглощения света металл-аммиачными растворами // ЖЭТФ. — 1948. — Т.18. — С. 913-918; Дейген М.Ф. Теория магнитных свойств металл-аммиачных растворов // ЖЭТФ. — 1954. — Т.26. — С. 293-298.
15. Пекар С.И. Исследования по электронной теории кристаллов. — М.-Л.: ГИТТЛ, 1951. — 156 с.
16. Лифшиц И.М., Гредескул С.А. Флуктуационные уровни и макроскопическая поляризация среды частицей с короткодействующими силами // ЖЭТФ. — 1969. — Т.57, вып. 6(12). — С. 2209-2221.
17. Риз А. Химия кристаллов с дефектами. — М.: ИЛ, 1956. — 136 с.
18. Глауберман А.Е., Цаль Н.А. Об одной модели образования X-центров в ЩГК // ФТТ. — 1968. — Т. 10. — С. 935-939.

19. Адамян В.М., Глауберман А.Е., Хлопков Б.В. Теория фотоэмиссии из малых квазиметаллических центров // ФТТ. — 1971. — Т. 15. — С. 1663-1666.
20. Глауберман А.Е., Дроздов В.А., Потапенко Я.Л. Центры окраски в гетеропереходе // ФТТ. — 1972. — Т. 14. — С. 1781-1785.
21. Глауберман А.Е. О физике фотографического процесса. — Одесса, 1973. — 42 с. (Препринт / ИФ ОГУ им. Мечникова).
22. Френкель Я.И. Кинетическая теория жидкостей. Избр. труды. — М.-Л.: ГИТТЛ; 1959, т. 3. — С. 78.
23. Болтакс Б.И., Савин Э.П. // ФТП. — 1970. — Т.4. — С. 507; 1971. — Т.5. — С. 1331.
24. Лашкарев В.Е., Косоногова К.М. // ЖЭТФ. — 1948. — Т.18. — С. 927-931.
25. Корзе В.Ф. // ФТТ. — 1971. — Т.13. — С. 1564-1568.
26. Pollak M., Geballe T. Phys. Rev. A. — 1963. — V.130. — P. 297-301.
27. Шейнкман М.К., Маркевич И.В. // ФТТ. — 1970. — Т.12. — С. 3130-3135; 1971. — Т.13. — С.1904.
28. Tanaka K. Nanotechnology towards the 21st Century // Thin Sol. Films. — 1999. — V.341. — P. 120-125.
29. Hersam M.C., Guisinger N.P., Lydrng J.W. Silicon-based molecular nanotechnology // Nanotechnology. — 2000. — V.11. — P. 70-76.
30. Alivatos A.P. Semiconductor Clusters, nanocrystals, and quantum dots // Science. — 1996. — V.271. — P. 933-941.
31. Дроздов В.А., Ковальчук В.В., Моисеев С.Л. Фрактальная размерность наночастиц // Физика аэродисперсных систем. — 2002. — № 39. — С. 55-67.
32. Ковальчук В.В. Теоретичне обґрунтування штучного синтезування кластерних сполук на основі кремнію // Фізика конденсованих високомолекулярних систем. Фізика полімерів. — 2002. — № 9. — С. 27-31.
33. Ковальчук В.В. Ультра дисперсные субфазы в молекулярной электронике (обзор) // Технология и конструирование в электронной аппаратуре. — 2002. — № 3. — С. 6-14.
34. Дроздов В.А., Ковальчук В.В. Електронні процеси в наноструктурах с субфазим кремнієм // Журнал фізичних досліджень. — 2004. — № 3. — С. 25-32.
35. Hofmeister H., Kodderitzsch P., Dutta J. Structure of nanometerized silicon particles prepared by various gas phase processes // J. Non-Cryst. Solids. — 1998. — V. 232-234. — P. 182-187.
36. Мильвидский М.Г., Чалдышев В.В. Наноразмерные атомные кластеры в полупроводниках — новый подход к формированию свойств материалов // ФТП. — 1998. — Т.32, № 5. — С. 513-522.

*В. О. Дроздов<sup>1</sup>, М. О. Дроздов<sup>1</sup>, В. В. Ковальчук<sup>2</sup>*

**Сінергетика надмолекулярних кластерів  
у матричних середовищах**

**АНОТАЦІЯ**

Стаття присвячена аналізу досліджень механізмів формування надмолекулярних кластерів різної природи з позицій концепції кластеризованих гетероструктур з метою вироблення єдиного підходу щодо опису властивостей матеріалів. Підкреслюється, що у випадку формування кластерів виявляється задіяним значно більша кількість ступенів свободи в зв'язку з наявністю матричного матеріалу, ніж при утворенні молекул. Саме ця обставина наділяє кластери специфічними властивостями (дефініцією), і залучають до них увагу фахівців різного профілю. Ці питання настільки близькі за концептуальною ідеєю (основою), як і задачі зв'язані з аналізом коливальних процесів різної природи в рефрені єдиного підходу, заснованого на спільності відповідних диференціальних рівнянь. Порушені в статті питання мають пряме відношення до формування аерозольних асоціатів [1].

*Drozdov V. A. \*, Drozdov M. A. \*, Kovalchuk V. V. \*\**

**Sinergetics undermolecular clusters inside matrix**

**SUMMARY**

The article is dedicated to the analysis of the undermolecular clusters of different nature formation's mechanisms. Our approach is based on the concept of the clustered heterostructures with the purposes of development of the unified approach to the description of properties of stuffs. Is underlined, that in case of formation of clusters there is involved a much greater number of degrees of freedom in connection with availability of a template stuff, than at formation of molecules. This circumstance allots clusters with specific properties (definition), which one attract in them attention of the specialists of a different profile. These problems are so close on conceptual basis, as well as problem bound with the analysis of vibratory processes of the different nature in the refrain of the unified approach, founded on a commonality of the conforming differential equations. The problems, affected in the article, have direct relation to formation of aerosol associates [1].

**Б. А. Алтоиз, Д. Д. Недялков, Е. Ю. Дадонова**

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

### **Мезоморфность, теплоемкость и плавление эпитропного жидкокристаллического слоя в полуограниченной “цепочечной” модели**

В рамках “цепочечной” модели Изинга описано эпитропно-жидкокристаллическое состояние вещества. Рассмотрены две модели: упрощенная и модель со взаимодействующими “цепочками”. Исследовано пространственное распределение упорядоченности в эпитропном нематическом слое, который моделировался полуограниченным “подложкой” ансамблем “цепочек”. Получена функциональная зависимость этого распределения от температуры и величины параметров взаимодействий. Установлена независимость порогового уровня параметра межцепочечного взаимодействия  $\gamma^*$  от интенсивности поля подложки. Изучена зависимость параметра  $\gamma^*$  от температуры и величины межмолекулярного взаимодействия. Проанализировано изменение с температурой и интенсивностью поля подложки структурно чувствительных свойств модели: толщины ориентационно упорядоченного слоя и его теплоемкости.

#### **Упрощенная “цепочечная” модель Изинга**

В прослойках жидкости, суспензиях, во взвесьях и коллоидных растворах, возникающие в ряде случаев полимолекулярные ориентационно упорядоченные как термотропные мезофазы эпитропные жидкокристаллические (ЭЖК) слои [1], способны изменять свойства дисперсных систем и влиять на процессы тепло- и массообмена в них. Экспериментально такие слои изучены достаточно подробно. В меньшей степени эти объекты исследованы теоретически.

Одним из способов микроскопического описания ЭЖК фазы является использование “цепочечной” модели Изинга, применяемой для изучения упорядоченных и упорядочивающихся (во внешнем поле) систем [2,3]. На ее базе была построена [4,5] простая микроскопическая модель стабилизированного подложкой ЭЖК состояния. С этой целью использовалась одномерное представление, в котором элементы — “молекулы” жидкости с мало интенсивным анизотропным взаимодействием находятся в поле одной [4] или двух [5,6] плоских подложек.

Даже в самых упрощенных представлениях — невзаимодействующих “цепочек” элементов в полуограниченной задаче (ансамбль элементов у “стенки”) модель позволила качественно описать появление ориентационной упорядоченности в пристенном слое, фазовое превращение — ориента-



ционное плавление ЭЖК слоя и теплоту этого перехода, а также установленные экспериментально температурные зависимости теплоемкости [7,8].

В такой одномерной простейшей “цепочечной” модели система представляла собой решетку, в каждом узле которой элемент мог находиться только в двух состояниях — его дискретная спиновая переменная  $\sigma_k$  могла принимать лишь два значения ( $\sigma_k = \pm 1$ ). Гамильтониан отдельной  $i$ -той цепочки имеет вид:

$$H_i = - \sum_{k=1}^N [J\sigma_k\sigma_{k+1} + h_i\sigma_k], \quad (1)$$

где первое слагаемое описывает энергию  $J$  взаимодействия двух соседних элементов, а второе — энергию взаимодействия  $k$ -того элемента с внешним полем напряженностью  $h_i$ .

В предположении, что взаимодействие элемента с полем одинаково для всех элементов  $i$ -той “цепочки”, усредненное значение  $\sigma$  — параметр порядка  $Q_i$  определяется выражением:

$$Q_i = \langle \sigma \rangle_i = \frac{\sum_{\{\sigma_k\}} \sigma_k \exp[-H_i / kT]}{\sum_{\{\sigma_k\}} \exp[-H_i / kT]}, \quad (2)$$

где  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — абсолютная температура.

Как известно [3], в одномерной модели Изинга в отсутствии внешнего ориентирующего поля ( $h=0$ ) спонтанная ориентация элементов не возникает ( $Q=0$ ), а при наличии поля ( $h \neq 0$ ), определяющего преимущественное состояние элементов системы, средний параметр порядка отличен от нуля.

Во внешнем поле плоской подложки, нормальном к ней, потенциальная энергия ее элементов имела два минимума, условно соответствующие, например, двум возможным геометриям (рис.1): расположением элемента — анизометричной “молекулы” параллельно или перпендикулярно по отношению к полю. Изотропной жидкости соответствовало равенство общего числа каждого из состояний. Ориентационно упорядоченный (с параметром порядка  $Q$ ) пристенный слой рассматривался как система  $i_Q$  равноудаленных от подложки совокупностей замкнутых (периодическое граничное условие) “цепочек” элементов, параллельных друг другу и подложке и эквидистантно расположенных над ней (рис.1).

Потенциал поля поверхностных сил, убывающий с расстоянием от поверхности подложки по закону  $h_i \sim 1/i^3$ , в пределах каждой  $i$ -той “цепочки” толщиной в молекулярную длину считается постоянной. Нами были использованы безразмерные параметры, — относительные (по отношению к  $kT$ ) величины: потенциал поля  $\eta_i$ , в котором находится  $i$ -тая “цепочка”, и интен-

сивность “межмолекулярного” взаимодействия  $\xi$ , определяемыми, соответственно, как  $\eta_i = \eta_l / i^3$  и  $\xi = J/kT$ , где  $\eta_l = h_l / 3kT$ . Тогда в приближении ближайших по “цепочке” соседей статистическая сумма, найденная методом трансфер-матрицы [3,9], для полуограниченного ансамбля имеет вид:

$$Z_i = \exp(0,5\xi) \cdot ch(\eta_i) + \sqrt{\exp(\xi) \cdot [sh(\eta_i)]^2 + \exp(-\xi)}, \quad (3)$$

а среднее значение локального (как усредненного значения  $\sigma$  в пределах  $i$ -той “цепочки”) параметра дальнего ориентационного порядка равно:

$$Q_i = \frac{\sinh(\eta_i)}{\sqrt{[\sinh(\eta_i)]^2 + \exp(-4\xi)}}. \quad (4)$$

Из вида рассчитанной по (4) зависимости упорядоченности от номера “цепочки”  $Q(i)$ , схематически изображенной на рис.1, следует, что вблизи от подложки в поле ее поверхностных сил появляется ряд значительно ( $Q \geq 0,2$ ) упорядоченных “цепочек”. На больших расстояниях для полубесконечного случая, в силу уменьшения с расстоянием поля поверхностных сил ( $\eta_i = \eta_l / i^3$ , где  $\eta_l$  — относительная величина поля, в котором находится первый монослой — “цепочка” элементов непосредственно на подложке), параметр порядка с возрастанием номера “цепочки” монотонно спадает до нуля.

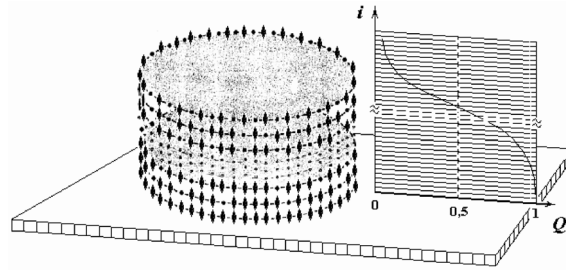


Рис. 1. “Цепочечная” модель полуограниченного пристенного ориентационно упорядоченного слоя немезогена и характер изменения параметра порядка  $Q(i)$  с ростом номера  $i$  “цепочки”

Характерные особенности влияния на основное свойство модели (возникающей в ней упорядоченности  $Q$ ) интенсивностей “межмолекулярного” взаимодействия (величины параметра  $\xi$ ) и поля поверхностных сил подложки ( $\eta_l$ ) видны из рис.2а. На нем представлена рассчитанная по соотношению (4) поверхность  $Q_i(\eta_l, \xi)$  в “ближней” ( $i=10$ ) области упорядоченно-

го слоя. Из рис.2а видно, что для организации упорядоченности даже в сравнительно мало удаленной от подложки “цепочке” обязательно совокупное действие двух факторов: и взаимодействия элементов и действия поля подложки на них. В отсутствии поля подложки и в небольших ее полях (параметр  $\eta_1 \leq 5$ ) любое увеличение интенсивности “межмолекулярного” взаимодействия (величины параметра  $\xi$ ) не приводит к появлению упорядоченности. Почти также дело обстоит как при отсутствии “межмолекулярного” взаимодействия, так и при малой его интенсивности (не высокой величине  $\xi$ ). При малых  $\xi$  в рассматриваемой “цепочке” упорядоченность также практически отсутствует и появляется лишь при повышенных значениях параметра  $\eta_1$ .

Такая микроскопическая модель ЭЖК фазы позволила качественно описать ее основные экспериментально установленные свойства. В частности, такие, как существование упорядоченных полимолекулярных слоев жидкости вблизи поверхности твердой подложки и уменьшение равновесной толщины таких слоев с температурой. В относительном согласии с экспериментом оказались зависимость теплоемкости системы ЭЖК фаза — изотропная жидкость от расстояния до поверхности подложки и изменение с температурой теплоты фазового перехода ориентационно упорядоченного пристенного слоя — его ориентационное плавление в изотропное состояние (объемную жидкость), (см. далее).

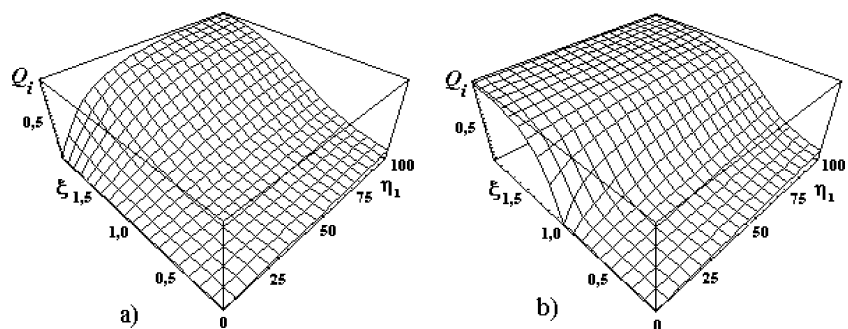


Рис. 2. Зависимость упорядоченности  $Q_i$  в  $i$ -той ( $i=10$ ) “цепочке” от параметров: “межмолекулярного” взаимодействия ( $\xi$ ) и потенциала поля поверхностных сил подложки ( $\eta_1$ ). Относительная температура системы  $\theta=T/T_0=1$ . а) — в приближении невзаимодействующих ( $\gamma=0$ ) и б) — взаимодействующих “цепочек” ( $\gamma=0,14$ )

#### Модель ЭЖК слоя с взаимодействующими “цепочками” и мезоморфность

Усложнение модели введением межцепочечного взаимодействия, при котором каждая “цепочка” находится не только в поле подложки, но и во

“внутреннем” поле соседних “цепочек” (пропорциональном их среднему параметру порядка) позволило [6,10] более корректно учесть особенности ЭЖК состояния и улучшить соответствие модели эксперименту. Ясно, что в такой модели с удалением “цепочки” от подложки ее состояние изменяется не только за счет убывания потенциала поверхностных сил, но и в силу изменения состояния (упорядоченности) “цепочек”, соседних с ней.

Новое приближение, учитывает ориентирующее действие предшествующего мономолекулярного слоя на последующий, и реализует “эстафетный” (по терминологии Б.В.Дерягина, одного из авторов [11]) механизм трансляции ориентационной упорядоченности от высоко упорядоченных “цепочек (расположенных вблизи у подложки) к последующим, более от нее удаленным.

Положим потенциал внутреннего поля, действующего на элементы  $i$ -той “цепочки”, пропорциональным  $\langle Q_i \rangle$  “цепочки”, рассчитанному в первом приближении, в котором “цепочки” не взаимодействуют. Тогда потенциал эффективного поля будет определяться выражением:

$$\langle h_{eff} \rangle_i = h_i + q \cdot Q_i, \quad (5)$$

где  $q$  — величина поля, создаваемого полностью упорядоченной “цепочкой” (со скалярным параметром порядка  $Q=1$ );  $Q_i$  — параметр порядка  $i$ -той “цепочки” в 1-ом приближении.

Соотношение для расчета статистической суммы в такой модели имеет вид (4), но при этом:

$$\eta(i) = \eta_i / i^3 + zQ_i. \quad (6)$$

Здесь  $\gamma = q/kT$  — безразмерный (как  $\eta_i$  и  $\xi$ ) параметр, характеризующий интенсивность “межцепочечного” взаимодействия.

В новом приближении средний параметр порядка  $i$ -той “цепочки” находится численно из решения самосогласованного трансцендентного уравнения

$$Q_i = \frac{\sinh(\eta_i / i^3 + zQ_i)}{\sqrt{[\sinh(\eta_i / i^3 + zQ_i)]^2 + \exp(-4\xi)}}. \quad (7)$$

Введение в модель “межцепочечного” взаимодействия приводит (при тех же величинах параметров  $\xi$  и  $\eta_i$ ), естественно, к повышению степени упорядоченности  $Q$  во всех “цепочках” их пристенного ансамбля и во всей области параметров  $\eta_i$  и  $\xi$ , отличных от нуля. Кроме того, появление этого взаимодействия ведет и к качественному изменению вида поверхности  $Q_i(\eta_i, \xi)$ , ее отличиям от аналогичной поверхности  $Q_i(\eta_i, \xi)$ , полученной для упрощенной модели (рис.2а). Эти отличия особенно проявляются в характере изме-

нений поверхности  $Q_i(\eta_i, \xi)$  с изменением интенсивности “межмолекулярного” взаимодействия (величины параметра  $\xi$ ). Характерные особенности изменений (обусловленных в новом приближении появлением в (7) дополнительного параметра  $\gamma$ ) формы поверхности  $Q_i(\eta_i, \xi)$  и степени влияния на упорядоченность “цепочки”  $Q_i$  каждого из параметров  $\xi$  и  $\eta_i$  отражены на рис.2б. На нем представлена рассчитанная по (7) поверхность  $Q_i(\eta_i, \xi)$  при температуре  $\theta = T/T_0 = 1$  и интенсивности “внутреннего” поля (определяемой  $\gamma = 0,14$ ) достаточно высокой, как будет выяснено ниже, для этой температуры. Эта зависимость аналогична представленной на рис.2а зависимости  $Q_i(\eta_i, \xi)$  для упрощенной модели, но для той же близкой ( $i=10$ ) к подложке “цепочки” и при той же температуре  $\theta$ .

Видно, что кроме смещения (в области средних и высоких значений параметров  $\xi$  и  $\eta_i$ ) поверхности  $Q_i(\eta_i, \xi)$  вверх по  $Q$ , начиная с некоторого значения  $\xi$  (на рис. — с  $\xi \sim 1$ ), элементы в “цепочке” уже упорядочены даже при весьма малых  $\eta_i$ . В дальнейшем, с ростом  $\xi$  упорядоченность в ней быстро нарастает до максимальной величины ( $Q=1$ ). Более того, при достаточно большом  $\xi$  ( $\xi \geq 1,5$  для рассматриваемой 10-ой “цепочки” и при указанном значении  $\gamma = 0,14$ ) величина параметра  $\eta_i$  уже практически не сказывается на ее упорядоченности.

Это свидетельствует о том, что упорядоченность в рассматриваемой “цепочке” (отсутствующая при  $\gamma=0$ ) при малых полях подложки ( $\eta_i \approx 0$ ) обеспечивается лишь “межмолекулярным” взаимодействием и трансляцией упорядоченности от первого высоко упорядоченного монослоя. Заметим, что при определенной малой интенсивности “межмолекулярного” взаимодействия (его параметре  $\xi \leq 1$  и при указанных условиях: для 10-той “цепочки” и температуре  $\theta=1$ ) этот “эстафетный механизм” выключается.

Далее рассмотрим пространственное распределение упорядоченности в модели. Качественно изменение — убывание среднего параметра порядка  $i$ -той “цепочки”  $Q_i$  с ее удалением от подложки (возрастанием номера “цепочки”  $i$ ), изображенное схематически на рис.1, количественно представлено на рис.3 изотермическими ( $\theta=1$ ) зависимостями  $Q(i)$ , рассчитанными по (4) при отсутствии “межцепочечного” взаимодействия (кривая 1) и при трех разных его интенсивностях (кривые 2,3,4 для ряда значений параметра  $\gamma$ , но одной и той же величине отношения  $\eta_i/\xi=100$ )<sup>1</sup>. Из рис.3 видно, что на расстоянии нескольких первых (~десяти и более) “молекулярных” слоев параметр порядка весьма высок (~0,9), а затем спадает до нуля.

Из сравнения кривых 1-3 видно, что общий характер зависимости  $Q(i)$  — изменения параметра порядка  $Q$  с удалением от подложки (номера “цепоч-

<sup>1</sup>Как ранее [4], для количественных расчетов, с учетом энергии мезоморфных превращений и различных энергий связи молекул с подложкой параметры принимались равными:  $\xi=1$ ,  $\eta_i=100$  и 10 (“химическая” и “водородная” связи, соответственно).

ки”) при малых величинах параметра  $\gamma$  остался таким же<sup>1</sup>, как и при отсутствии ( $\gamma=0$ ) этого взаимодействия.

Принципиальное отличие состоит в том, что при достаточно высокой интенсивности “межцепочечного” взаимодействия упорядоченность на большом удалении уже не спадает до нуля, а остается постоянной. Так, из рис.3 видно, что, например, при величине параметра  $\gamma=0,14$  (кривая 4) упорядоченность, начиная с  $i = 100$  и далее, остается неизменной и равной  $Q = 0,3$ .

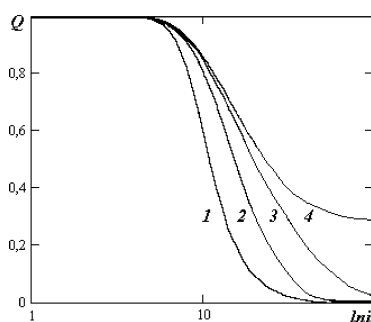


Рис. 3. Зависимость среднего параметра порядка  $Q(i)$  элементов в “цепочке” от ее расстояния до подложки (номера  $i$ ) при различных интенсивностях “межцепочечного” взаимодействия — значений параметра  $\gamma = 0$  (1); 0,10 (2); 0,13 (3) и 0,14 (4).  $\eta_i = 100$ ;  $\xi = 1$ ;  $\theta = 1$ .

На рис.4 представлены рассчитанные (при двух температурах  $\theta$ ) упорядоченности  $Q_i$  для двух различным образом удаленных ( $i = 30$ , кривые 1;2 и  $i = 300$ , кривые 3;4) “цепочек” в функции параметра  $\gamma$ . Из характера изменения  $Q_i(\gamma)$ , видно, для далеко отстоящей от подложки ( $i=300$ ) “цепочки” при значениях параметра  $\gamma$ , меньших его определенной величины  $\gamma^*$  ( $\gamma_1^* \leq 0,13$ , при  $\theta_1 = 1$  и  $\gamma_2^* \leq 0,125$  при меньшей температуре,  $\theta_2 = 0,95$ ) степень упорядоченности равна нулю. Напротив, начиная с таких “пороговых” значений величины этого параметра, как  $\gamma(\theta_1) \geq \gamma_1^*$  и  $\gamma(\theta_2) \geq \gamma_2^*$ , упорядоченность  $Q \neq 0$  уже на любом ( $i > 300$ ) удалении “цепочки” от подложки, на котором поле подложки пренебрежимо мало.

Следовательно, при любой температуре для системы существует пороговая величина интенсивности “внутреннего” поля, определяемая значением  $\gamma^*$ , начиная с которой, при  $\gamma \geq \gamma^*$ , упорядоченность в “цепочках” сохраняется на любом расстоянии от подложки.

<sup>1</sup> если не считать, что возрастает область ориентированной фазы элементов — моделируемого ЭЖК-слоя. Так, для значения параметра  $\gamma=0,13$  число ориентированных ( $Q_i \geq 0,3$ ) “цепочек” почти втрое (см. рис.3) больше.

Так как на значительных расстояниях поле подложки уже не играет роли, существование упорядоченности на этих расстояниях определяется лишь “межмолекулярным” и “межцепочечным” взаимодействиями. Организация ориентационного жидкокристаллического порядка в объеме характерна для мезогенных жидкостей в температурной области их нематической мезофазы. Поэтому обнаруженное свойство модели со взаимодействующими “цепочками” было интерпретировано [6,10] как то, что, начиная с определенной, достаточно высокой пороговой интенсивности “внутреннего поля” (характеризуемой значением  $\gamma^*$ ), такая “цепочечная” модель приобретает способность к сохранению ориентационной упорядоченности в объеме, т.е. становится мезоморфной.

Проведем более детальное исследование влияния на основные свойства модели (пространственное распределение степени упорядоченности, толщины и теплоемкости “ЭЖК слоя”) ее параметров и температуры.

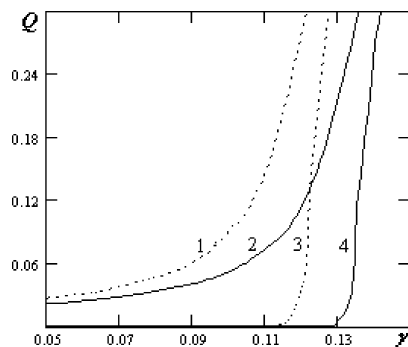


Рис. 4. Зависимость степени упорядоченности  $i$ -той “цепочки”  $Q_i$  от величины параметра  $\gamma$  для двух температур. Номер “цепочки”  $i$ : 30 (1, 2) и 300 (3, 4). Температура  $\theta=0,95$  (пунктирные линии 1,3); и  $\theta=1,0$  (сплошные линии 2, 4). Параметры модели:  $\eta_i=100$ ;  $\xi=1$

Зависимость ориентационной упорядоченности в системе взаимодействующих “цепочек” от их расстояния до подложки (номера “цепочки”  $i$ ) и одновременное изменение этой зависимости с ростом интенсивности “внутреннего” поля (параметра  $\gamma$ ) иллюстрирует рис.5.

На нем представлен вид двух поверхностей  $Q(i, \gamma)$ , рассчитанных по (7) для полуограниченного ансамбля “цепочек” при двух температурах ( $\theta_1=1,15$  и  $\theta_2=0,85$ ) и фиксированных значений  $\eta_i$  и  $\xi$ . Ясно, что рисунки 3 и 4 представляют четыре сечения поверхности  $Q(i, \gamma)$  — по  $\gamma$  и по  $i$ , соответственно. Конечно, из рис.5, также следует существование пороговой величины интенсивности “внутреннего поля” (характеризуемая параметром  $\gamma^*$ ), выше которой упорядоченность даже в удаленных “цепочках” не уменьшается с

расстоянием от подложки. Видно также, что изменение температуры практически не сказывается на отсутствии упорядоченности в удаленных ( $i \geq 45$ ) “цепочках” в области  $\gamma \leq \gamma^*$ . В этой области значений параметра  $\gamma$  упорядочены лишь “цепочки” расположенные вблизи ( $i \leq 45$ ) подложки.

При  $\gamma \geq \gamma^*$  упорядоченность (и тем большая, чем больше величина  $\gamma$ ) существует во всех “цепочках” с номером  $i \geq 45$ . Такое упорядоченное в “объеме”, вдали от подложки состояние характерно для термотропной мезофазы, в частности, нематика. Из рис.5 видно, что в пристенном слое ( $1 < i \leq 40$ ) такого “нематика” существует область с повышенной (по сравнению с объемом) упорядоченностью, что согласуется с известными экспериментальными результатами [7]. Роль подложки в этом случае сводится к экспериментально установленному [12] повышению упорядоченности нематика в пристенном слое и эпитаксиальному заданию поверхностной микроструктурой определенной ориентации директора, которая далее транслируется (анизотропным “межмолекулярным” и, в рассматриваемой модели — “межцепочечным” взаимодействиями) в объем препарата.

Кроме того, из сопоставления рис.5а и рис.5б также следует уменьшение  $\gamma^*$  с понижением температуры. Так из этих рисунков видно, что при изменении температуры от  $\theta_1 = 1,15$  до  $\theta_2 = 0,85$  величина  $\gamma^*$  уменьшается от 0,200 до 0,08. Это, очевидно, объясняется тем, что с уменьшением  $kT$  уменьшается и интенсивность “внутреннего” поля, необходимая для поддержания упорядоченности в удаленной от подложки области (и определяемая величиной  $\gamma^*$ ).

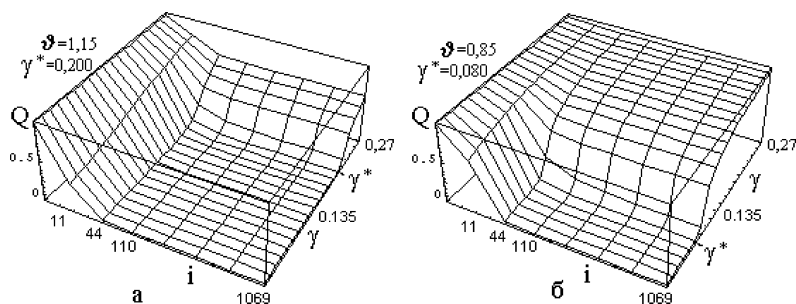


Рис. 5. Зависимость параметра ориентационной упорядоченности  $Q(i, \gamma)$  в полуограниченном ансамбле взаимодействующих “цепочек” ( $i$  — номер “цепочки”, отсчитываемый от подложки,  $\gamma$  — параметр, характеризующий интенсивность “межцепочечного” взаимодействия). Относительная температура системы а)  $\theta = 1,15$ ; б)  $\theta = 0,85$ . Параметры модели:  $\eta_l = 100$ ,  $\xi = 1$



Для получения функциональной зависимости  $\gamma^*(T)$  решались (6,7) для полуограниченной задачи при высоких значениях ( $i > 10^2$ ), малых  $Q_i = \text{Const}$  и  $\eta_i = \eta_1 / i^3 + \gamma^* Q_i$ .

Рассчитанная по (7) зависимость  $\gamma^*(T)$  для двух значений параметра  $\eta_1$  представлена на рис.6.

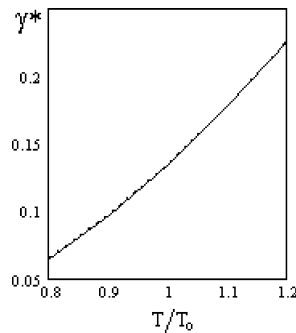


Рис. 6. Температурная зависимость пороговой величины “межцепочечного” взаимодействия  $\gamma^*(T)$ , рассчитанная по (7) при  $i=500$  для двух значений интенсивности поля поверхностных сил на подложке. Сплошная линия:  $\eta_1=100$ . Пунктир:  $\eta_1=10$ . Параметр  $\xi=1$ .

Как и следует ожидать, с ростом температуры  $\gamma^*$ -интенсивность “внутреннего” поля, необходимая для поддержания упорядоченности в “цепочках”, удаленных от подложки, возрастает. Из рис.6 видна слабая нелинейность функции  $\gamma^*(T)$  и, что для достаточно удаленных ( $i=500$ ) “цепочек” зависимости  $\gamma^*(T)$  с различающимися  $\eta_1$  (10 и 100) идентичны. Такое совпадение свидетельствует о независимости величины  $\gamma^*$  от  $\eta_1$  в указанном интервале температур.

Наличие такого свойства у модели в широкой области изменения как температуры (0,5 ÷ 1,5), так и параметра  $\eta_1$  (от 0 и до 100) иллюстрирует рис.7, из которого видно, что с ростом температуры величина  $\gamma^*$  увеличивается, но все изопотенциальные (по  $\eta_1$ ) кривые одинаковы.

Как было замечено выше, мезофазное состояние системы обеспечивается наличием в ней одновременно и “межмолекулярного” и “межцепочечного” взаимодействия. Одно дополняет другое, и поэтому обсуждаемая пороговая интенсивность “внутреннего” поля (параметр  $\gamma^*$ ) зависит (рис.8) от “межмолекулярного” взаимодействия, уменьшаясь с понижением интенсивности последнего (величины параметра  $\xi$ ). Из рис.8, представляющего зависимость пороговой величины  $\gamma^*(\xi, \eta_1)$ , кроме такой взаимосвязи  $\gamma^*$  и  $\xi$ , следует также и независимость  $\gamma^*$  от  $\eta_1$  не только при изменении температуры системы, но и при изменении  $\xi$  — интенсивности “межмолекулярного” взаимодействия в ней.

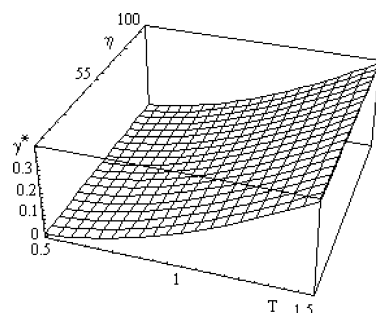


Рис. 7. Вид поверхности  $\gamma^*(T, \eta_i)$  – расчетной зависимости “порогового” значения параметра “межцепочечного” взаимодействия от температуры и параметра поверхностного потенциала поля подложки  $\eta_i$  в полуограниченной “цепочечной” модели ЭЖК слоя. Величина  $\gamma^*$  рассчитана по (7) при  $i=500$ . Параметр  $\xi=1$ .

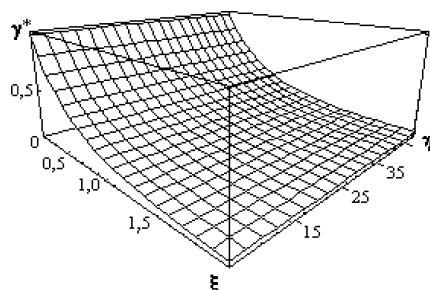


Рис. 8. Вид изотермической ( $\theta=1$ ) поверхности  $\gamma^*(\xi, \eta_i)$  – расчетной зависимости “порогового” значения параметра “межцепочечного” взаимодействия от параметров “межмолекулярного” взаимодействия  $\xi$  и поверхностного потенциала поля подложки  $\eta_i$  в полуограниченной “цепочечной” модели ЭЖК слоя. Величина  $\gamma^*$  рассчитана по (7) при  $i=500$

Установленное свойство модели — независимость порогового  $\gamma^*$  от интенсивности поля поверхностных сил подложки (величины параметра  $\eta_i$ ) — дополнительное свидетельство того, что спонтанную ориентационную упорядоченность элементов (“мезогенность” системы) определяет не подложка, а интенсивность “межцепочечного” взаимодействия (разумеется, совместно с анизотропным “межмолекулярным”).

Влияние поля подложки (величины параметра  $\eta_i$ ) проявляется лишь вбли-

зи подложки (при малых  $i$ ) и в области значений  $\gamma < \gamma^*$ . В этой области с уменьшением  $\eta_l$  упорядоченность в “цепочках” убывает с удалением от подложки быстрее (см. рис.9).

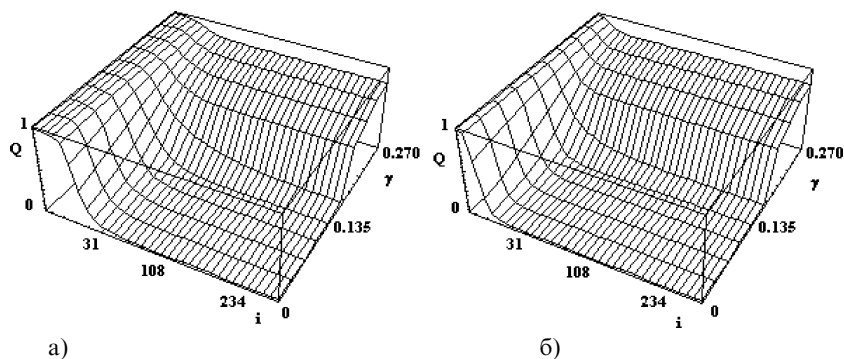


Рис. 9. Вид изотермических ( $Q=1$ ) поверхностей  $Q(i, \gamma)$  – расчетной зависимости упорядоченности “цепочек” от расстояния до подложки (номера  $i$ ) и интенсивности межцепочечного взаимодействия (величины параметра  $\gamma$ ). Параметры поверхностного потенциала поля подложки а)  $\eta_l=100$ , б)  $\eta_l=10$ . Параметр  $\xi=1$ .

Уменьшение с температурой и интенсивностью поля подложки “толщины ЭЖК слоя” — протяженности высоко ориентированного пристенного слоя (определяемого, для количественной оценки, как число “цепочек”  $i_0$  с упорядоченностью  $Q_i \geq 0,3$ ) показано на рис.10. Слой сформирован из взаимодействующих ( $\gamma=0,135$ ) “цепочек” при интенсивности “межмолекулярного” взаимодействия, характеризуемой его параметром  $\xi=1$ . При указанных параметрах модели ( $\gamma$  и  $\xi$ ) “межцепочечное” взаимодействие в ней является пороговым ( $\gamma=\gamma^*$ ) при температуре  $\theta=\theta^*=1$ . Поэтому при температуре  $\theta$  ниже этой “пороговой” ( $\theta < \theta^*$ ) система находится в состоянии мезофазы. Этим объясняется то, что при понижении температуры ниже  $\theta^*=1$  толщина упорядоченного слоя  $i_0$  резко возрастает (рис.10). Напротив, в области температур  $\theta > \theta^*$  в системе существует слой ЭЖК, который с ростом температуры плавится и скорость его “плавления” ( $di_0/dT$ ) тем выше, чем больше  $\eta_l$ . Объясняется это тем, что при больших  $\eta_l$  слой толще (см. изотермы  $i_0(\eta_l, T)$  на рис.10), плавящиеся на его границе “цепочки” более удалены от подложки и их структура в большей степени чувствительна к температуре.

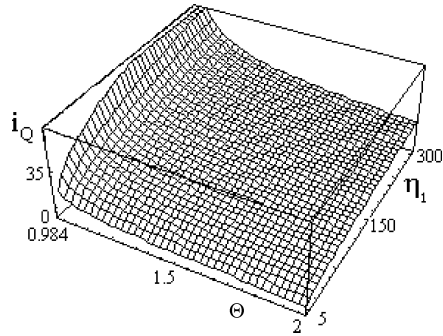


Рис. 10. Зависимость “толщины ЭЖК слоя” — числа “цепочек”  $i_Q$  с упорядоченностью  $Q \geq 0,3$  от относительной температуры системы  $\theta$  и параметра  $\eta_i$ . Параметры модели:  $\gamma=0,135$ ;  $\xi=1$

Рассмотрим влияние введенного “межцепочечного” взаимодействия на характер изменения локальной теплоемкости — теплоемкости “цепочки” с ее удалением от подложки.

С этой целью свободная энергия  $F = -RT \ln Z$  как функция температуры рассчитывалась (с учетом “межцепочечного” взаимодействия) по формуле:

$$F_i = -RT \ln \left[ \exp \left( \frac{\xi}{2} \frac{T}{T_0} \right) \operatorname{ch} \left( \frac{\eta_1}{i^3} \frac{T}{T_0} + Q_i \cdot \gamma \cdot \frac{T}{T_0} \right) + \sqrt{\exp \left( \frac{\xi}{2} \frac{T}{T_0} \right) \left[ \operatorname{sh} \left( \frac{\eta_1}{i^3} \frac{T}{T_0} + Q_i \cdot \gamma \cdot \frac{T}{T_0} \right) \right]^2 + \exp \left( -\xi \frac{T}{T_0} \right)} \right]. \quad (8)$$

Затем для каждой  $i$ -той “цепочки” по известному термодинамическому соотношению:

$$C_v = -T \left( \frac{\partial^2 F}{\partial T^2} \right)_v \quad (9)$$

были определены численные значения ее “локальной” изохорной теплоемкости  $C_v(T)$ . Для удобства рассчитывалась величина ее относительной безразмерной теплоемкости  $C_v/C_{iso}$  (по отношению к  $C_{iso}$  — теплоемкости “цепочки” в изотропной, “объемной” жидкости, т.е. “цепочки” отстоящей далеко от подложки,  $i=500$ ). На рисунках 11а и 11б представлен вид поверх-

ностей  $C_v/C_{iso}(i, T)$  в области  $i = (1+40)$  и в интервале изменения  $T=(0,5 \div 1,5) \cdot T_0$ . Поверхность на рис.11а рассчитана без учета “внутреннего” поля ( $\gamma=0$ ), а на рис.11б — с его учетом ( $\gamma=0,14$ ).

Для вида пространственной зависимости теплоемкости  $C_v/C_{iso}(i)$  в упрощенной “цепочечной” модели (рис.11а) характерным является “всплеск”: нарастание  $C_v/C_{iso}$  с ростом  $i$  до величины большей, чем теплоемкость объемной фазы  $C_{iso}$ , а затем спад до ее значения теплоемкости  $C_{iso}$ . С ростом температуры это “всплеск” (его амплитуда) проявляется заметнее. На рис.11б в приближении взаимодействующих “цепочек” такой же “всплеск” теплоемкости  $C_v/C_{iso}(i)$ , но меньшей амплитуды, наблюдается лишь при повышенных температурах. При температурах ниже  $\Theta^*$ , при которой величина “межцепочечного” взаимодействия ( $\gamma=0,14$ ) является для выбранного “межмолекулярного” ( $\xi=1$ ) пороговой ( $\gamma=\gamma^*$ ), наблюдается только монотонный рост теплоемкости “цепочки” с удалением ее от подложки до значения теплоемкости в объемной фазе  $C_{iso}$  ( $C_v/C_{iso}=1$ ). В области таких пониженных температур система находится в “мезофазном” состоянии, и граница ЭЖК слоя с объемной “изотропной” жидкостью отсутствуют.

ЭЖК слой, отделенный от изотропной жидкости, существует при любых температурах (рис.11а) в ансамбле невзаимодействующих “цепочек” и при температурах  $\Theta > \Theta^*$  — взаимодействующих (рис.11б). Наблюдаемый в этих случаях “всплеск” теплоемкости по  $i$  соответствует области начала спада пристенной высокой ( $Q \sim 1$ ) упорядоченности ЭЖК слоя (см. рис.2) и предшествует его “фазовой” границе с изотропной жидкостью. С возрастанием температуры, как и следует ожидать, “всплеск” и граница ЭЖК слоя с изотропной жидкостью (где  $C_v/C_{iso} \approx 1$ ) приближаются — за счет ориентационно-го плавления, к подложке.

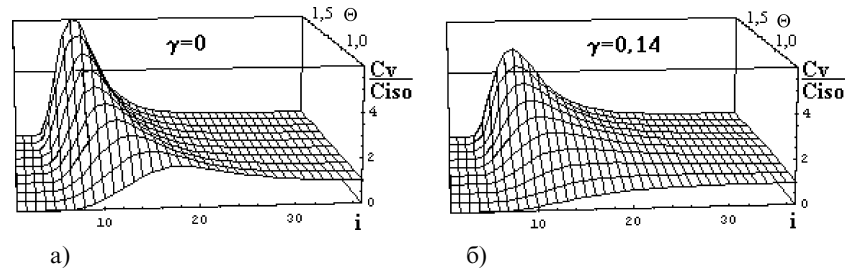


Рис. 11. Вид поверхности  $C_v/C_{iso}(i, T)$  — зависимости относительной изо- хорной теплоемкости “цепочки”  $C_v/C_{iso}$  от ее номера  $i$  и темпе- ратуры системы  $T$ . а)  $\gamma=0$  и б)  $\gamma=0,14$ .  $C_{iso}$  — теплоемкость 500-той “цепочки”;  $\eta_j=100$ ;  $\xi=1$ .

Видно также, что этот “всплеск” для ансамбля взаимодействующих “це- почек” становится менее резко выраженным. Кроме того, как видно из

рис.11б, появление “межцепочечного” взаимодействия приводит к существенному (~25%) уменьшению локальной относительной теплоемкости  $C_v/C_{iso}$  в области “ориентированной” фазы.

Следует заметить, что установленный характер поведения теплоемкости модели качественно вполне соответствует (и в большей степени — для модели взаимодействующих “цепочек”) экспериментально наблюдаемому “скачку” изохорной теплоемкости в калориметрических опытах [8] с ЭЖК слоями немезогенной жидкости в ее тонких прослойках между твердыми лиофильными подложками (в дисперсной системе нитробензол — кварцевый порошок).

На рис.12 показано, как изменяется обсуждаемая пространственная зависимость  $C_v/C_{iso}(i)$  с возрастанием потенциала поверхностных сил подложки — величины параметра  $\eta_j$ . Представленная поверхность  $C_v/C_{iso}(i, \eta_j)$  рассчитана при таких значениях параметров модели ( $\gamma=0,13$ ,  $\xi=1$ ) и ее температуры ( $\Theta=1$ ), при которых система не находится в мезофазе ( $\gamma < \gamma^*$ ). Из рис.12 видно, что изменение поля поверхностных сил (величины параметра  $\eta_j$ ) скажется не на “амплитуде”, а лишь на координате “всплеска”  $i$ .

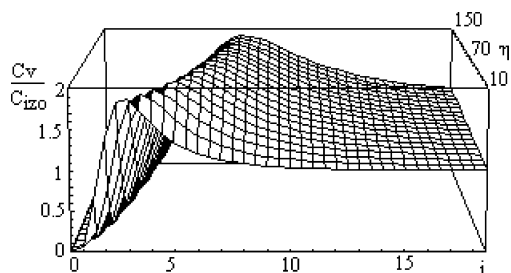


Рис. 12. Вид поверхности  $C_v/C_{iso}(i, \eta_j)$  — зависимость относительной изохорной теплоемкости “цепочки”  $C_v/C_{iso}$  от ее номера  $i$  и потенциала поверхностных сил подложки — параметра  $\eta_j$ . Температура системы  $\Theta=1$ ;  $\gamma=0,13$ ;  $\xi=1$ .  $C_{iso}$  — теплоемкость 500-той “цепочки”.

Объясняется такой вид поверхности  $C_v/C_{iso}(i, \eta_j)$  тем, что возрастание потенциала поверхностных сил подложки (параметра  $\eta_j$ ), не изменяя систему качественно (не приближая ее состояние к мезогенному, поскольку пороговая величина  $\gamma^*$  от величины  $\eta_j$  не зависит), приводит лишь к увеличению толщины ЭЖК слоя.

#### Литература

1. Derjaguin B.V., Altoiz B.A., Nikitenko I.I. Epitropic Liquid Crystal layers of Nonmesogens on Quartz Substrate// Journal of Colloid and Interface Science. — 1991. — Vol. 145, №2. — P. 441-446; Дерягин Б.В., Алтоиз Б.А., Попов

- ский Ю.М., Шибалева Е.Ю. Влияние поверхности на образование и свойства граничных мезофаз // ДАН СССР. — 1989. — Т. 305, №6. — С. 1392.
2. Хуанг К. Статистическая механика. — М.: Мир, 1966. — 520 с.
  3. Дайсон Ф., Монрол Э., Кац М., Фишер М. Устойчивость и фазовые переходы. — М.: Мир, 1973. — 373 с.
  4. Алтоиз Б.А., Поповский Ю.М., Ляхова Е.С. Модель Изинга эпипропной жидкокристаллической фазы // Коллоид. журн. — 2000. — Т.62, №3. — С. 299-302.
  5. Lyakhova E. Ising model of Epitropic liquid crystalline phase // Journal of Molecular Liquids. — 2001. — № 93. — P. 203-206.
  6. Алтоиз Б.А., Даданова Е.Ю., Недалков Д.Д., Макуха Е.В. Свойства Изинговой модели эпипропной мезофазы в симметрично ограниченной прослойке // Межд. период. сб. “Обработка дисперсных материалов и сред”, Вып. 13. — Одесса: НПО “Вотум”, 2003. — С. 42-48.
  7. Алтоиз Б.А., Поповский Ю.М. Физика приповерхностных слоев. — Одесса: Астропринт, 1995. — 153 с.
  8. Дерягин Б.В., Поповский Ю.М. Термодинамические характеристики фазового перехода граничная фаза — объемный нитробензол // Докл. АН СССР. — 1967. — Т.175, №2. — С.385-389.
  9. Бекстер Р. Точно решаемые модели в статистической механике. М.: Мир, 1985. 486 с.
  10. Алтоиз Б.А., Народицкая Т.В. Модель Изинга жидкокристаллической немезогена в пристенном слое и объеме // Коллоид. журн. — 2004. — Т. 66, №3. — С. 1-6.
  11. Дерягин Б.В., Поповский Ю.М., Алтоиз Б.А. Явление образования гомогенной граничной жидкокристаллической фазы немезогенной жидкости // Открытия и изобретения. — 1991. — № 12. — С.1.
  12. Алтоиз Б.А., Поповский А.Ю. Исследование пристенной упорядоченности в ЖК у лиофильной твердой подложки // Коллоид. журн. — 1987. — Т. 49, №3. — С.419-423.

*Б. А. Алтоїз, Д. Д. Недялков, Є. Ю. Дадонова*

**Мезоморфність, теплоємність та плавлення епітропно-рідкокристалічного шару у напівобмеженій “ланцюжкової” моделі**

**АНОТАЦІЯ**

У рамках “ланцюжкової” моделі Ізінга проведено опис епітропно рідкокристалічного стану речовини. Розглянуто дві моделі: спрощена і модель зі взаємодіючими “ланцюжками”. Досліджено просторовий розподіл впорядкованості у епітропному нематичному шарі, який моделювався напівобмеженим “обкладкою” ансамблем “ланцюжків”. Одержана функціональна залежність цього розподілу від температури і величини параметрів взаємодії. Встановлена незалежність граничного рівня параметру “між ланцюжкової” взаємодії  $\gamma^*$  від інтенсивності поля підкладки. Вивчена залежність параметру  $\gamma^*$  від температури та величини міжмолекулярної взаємодії. Проаналізована зміна з температурою і інтенсивністю поля підкладки структурно чутливих параметрів моделі: рівноважної товщини орієнтаційно впорядкованого шару і його теплоємності.

*Altoiz B. A., Nedyalkov D. D., Dadonova E. J.*

**Mesomorphic, heat capacity and melting of an epitropic liquid crystalline layer in the semi-confined chain model**

**ABSTRACT**

The description of an epitropic liquid crystalline state of matter was carried out in the framework of the chain Ising model. Two models — the simplified model and the model that take into account the interaction of chains — were suggested. The spatial distribution of ordering in the epitropic nematic layer modeled by semi-infinite chain ensemble was studied. The functional dependence of this distribution on the value of interaction parameters and on the temperature was obtained. The independence of the threshold level of interchain interaction parameter  $\gamma^*$  on the surface field intensity was established. The dependence of  $\gamma^*$  parameter on temperature and on the value of intermolecular interaction was studied. The alteration of structurally sensitive parameters of model (such as equilibrium thickness of orientationally ordered layer and its heat capacity) with the temperature and the surface field intensity was analyzed.



**К. Н. Панкратов**

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

## **Квазиупругое некогерентное рассеяние медленных нейтронов в электролитах**

В работе изложены закономерности квазиупругого некогерентного рассеяния медленных нейтронов в водных растворах электролитов. Показано, что при больших импульсах передачи превалирует вращательное движение частицы, а при малых — трансляционное. В первом случае наблюдается асимптотическое приближение теоретических зависимостей к экспериментальным.

### **1. Введение**

Рассеяние тепловых нейтронов является одним из мощных средств исследования структуры веществ и характера теплового движения молекул в них. Весьма характерными объектами приложения этого метода являются электролиты. Существует обширная литература, посвященная анализу процессов рассеяния медленных нейтронов [1,2], но, тем не менее, ряд результатов, полученных в последние годы, не находят сколько-нибудь убедительного объяснения. Типичным примером здесь может служить зависимость полуширины пика  $\gamma(\mathfrak{a})$  квазиупругого некогерентного рассеяния от квадрата волнового вектора. В работах Ж. Тейксейра [2] и Л.А.Булавина [3,4] было показано, что в достаточно широком интервале изменения волнового вектора кривая  $\gamma = \gamma(\kappa^2)$  является существенно нелинейной. Это указывает на то, что интерпретация тангенса угла наклона кривой  $\gamma(\kappa^2)$  к оси абсцисс как коэффициента самодиффузии молекул воды некорректна.

Качественное объяснение характера зависимости полуширины от волнового вектора впервые было дано Л.А.Булавиным [5]. Он показал, что наблюдаемый эффект объясняется влиянием коллективных составляющих теплового движения молекул. Количественная же теория оставалась неразвитой. Ее пытались построить ряд ученых, они рассматривали модельные методы. Случай простой модели жидкости был впервые рассмотрен Виньярдом [6]. Такая модель содержит только один упрощенный параметр — коэффициент самодиффузии. В этой модели зависимость полуширины  $\gamma$  от квадрата волнового вектора  $\mathfrak{a}$  линейна:  $\gamma = D\kappa^2$ . Ясно, что она не может описать вышеописанные экспериментальные зависимости. Так как модель Виньярда содержала один параметр, она не отражала специфику конкретной жидкости. Для воды была предложена модель Сингви-Сьеландера [7], где

была предпринята попытка учесть ее квазикристалличность. В ней предполагается, что молекула в течение некоторого времени  $\tau_0$  колеблется в окружении своих соседей, после чего диффундирует в соответствии с классическим законом диффузии. Затем этот процесс повторяется: колебания и диффузия взаимно чередуются. Предполагается, что оба типа движения взаимно независимы, для чего необходимо, чтобы период колебаний молекулы был значительно меньше времени ее оседлой жизни. В этой модели получено дважды дифференциальное сечение некогерентного неупругого рассеяния нейтронов. Пусть в результате диффузии смещение молекулы равно  $s$ . Тогда коэффициент самодиффузии, учитывающий как смещение молекулы,

так время оседлой жизни, определяется выражением  $D = \frac{s^2}{6(\tau_1 + \tau_0)}$ . Можно выделить два характерных случая при некогерентном квазиупругом рассеянии: квазикристаллический предел ( $\tau_1 \ll \tau_0$ ) и обычную диффузию ( $\tau_1 \gg \tau_0$ ). В первом случае дифференциальное сечение рассеяния имеет структуру:

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} \right)_{\text{нк}} = \frac{b_{\text{нк}}^2 k}{2\pi\hbar k_0} \exp(-2W) \frac{[1 - \exp(-2W)(1 + \kappa^2 D \tau_0)^{-1}] / \tau_0}{\left(\frac{\varepsilon}{\hbar}\right)^2 + [1 - \exp(-2W)(1 + \kappa^2 D \tau_0)^{-1}]^2 / \tau_0^2} \quad (1)$$

В (1)  $b_{\text{нк}}$  — амплитуда некогерентного рассеяния,  $\sigma$  — сечение рассеяния;  $d\Omega$  — элемент телесного угла, в котором осуществляется рассеяние;  $d\varepsilon$  — передача энергии;  $\vec{k}$  — разность волновых векторов  $\vec{k}$  и  $\vec{k}_0$  нейтрона после и до столкновения, второй множитель (1) формулой

$$\exp(-2W) = \exp\left(-\frac{4\langle u^2 \rangle \sin^2 \frac{\vartheta}{2}}{\lambda^2}\right) \quad (2)$$

определяет фактор Дебая-Валлера. Здесь  $\langle u^2 \rangle$  — средний квадрат смещения ядра решетки в результате тепловых колебаний;  $\vartheta$  — угол рассеяния;  $\lambda = \frac{\lambda}{2\pi}$ , где  $\lambda$  — длина волны нейтрона. Во втором случае

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} \right)_{\text{нк}} = \frac{b_{\text{нк}}^2 k}{\pi\hbar k_0} \cdot \frac{\kappa^2 D}{\left(\frac{\varepsilon}{\hbar}\right)^2 + (\kappa^2 D)^2} \quad (3)$$

Сечение рассеяния в обоих случаях описывается лоренцевской кривой, но с различным уширением (полушириной):

– в квазикристаллическом случае (а)

$$\Delta\varepsilon = \frac{2\hbar}{\tau_0} \left[ 1 - \exp(-2W) (1 + \kappa^2 D \tau_0)^{-1} \right], \quad (4)$$

– в случае обычной диффузии (б)

$$\Delta\varepsilon = 2\hbar D \kappa^2 \quad (5)$$

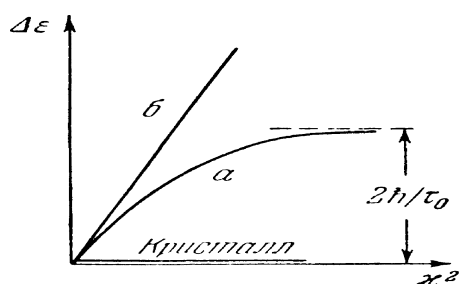


Рис. 1. Зависимость уширения квазиупругого максимума от  $\kappa^2$  для двух предельных случаев модели Сингви-Сьеландера.

Характер зависимости  $\Delta\varepsilon$  от волнового вектора изображен на рис.1. Для случая обычной диффузии из (5) видно, что график  $\Delta\varepsilon(\kappa^2)$  будет линейной функцией с угловым коэффициентом  $2\hbar D$ . В квазикристаллическом пределе

при  $\kappa^2 \gg 1$  он выходит на постоянное значение  $\Delta\varepsilon = \frac{2\hbar}{\tau_0}$ , но экспериментальные данные указывают на то, что полуширина неограниченно возрастает. Значит, модель Сингви-Сьеландера не согласуется с экспериментальными данными. Иванов и Оскотский [8,9] предприняли учет непрерывной диффузии центров колебаний молекул:

$$\Delta\varepsilon = 2\hbar D_c \kappa^2 + \frac{2\hbar}{\tau_0} \left[ 1 - \frac{\exp(-2W)}{1 + (D - D_c) \tau_0 \kappa^2} \right] \quad (6)$$

где  $D_c$  — коллективная часть коэффициента самодиффузии. Окончательный вид формулы для полуширины в этой модели придал Булавин [3].

Целью данной работы является построение количественной теории уширения пика квазиупругого некогерентного рассеяния медленных нейтронов в электролитах CsCl, NaNO<sub>3</sub> и NaCl.

## 2. Общий вид дифференциального сечения рассеяния в электролитах

Изучение водного раствора хлорида натрия представляет интерес по двум причинам[3]. Во-первых, молекулы диссоциируют в воде на положительные и отрицательные ионы с подобными электронными конфигурациями. В связи с этим появляется возможность исследовать и сравнивать влияние на подвижность молекул воды положительных и отрицательных ионов. Во-вторых, ионы  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  имеют существенно различные размеры (их радиусы равны 0.97 и 1.65 Å соответственно). Поэтому можно ожидать, что они будут по-разному влиять на структуру и динамику воды. Результаты рентгеноструктурного анализа показали, что ион натрия окружен в растворе четырьмя молекулами воды, в то время как ион хлора — шестью. В связи с этим можно предположить, что положительные ионы натрия расположены в каркасе, а отрицательные ионы хлора — в пустотах тетраэдрической структуры воды. При диссоциации в воде молекул  $\text{CsCl}$  распадается на ионы  $\text{Cs}^+$  и  $\text{Cl}^-$  с одинаковыми электронными конфигурациями и примерно одинаковыми размерами. Увеличение коэффициента самодиффузии воды в растворе  $\text{NaNO}_3 - \text{H}_2\text{O}$  по сравнению с таковым в растворе  $\text{NaCl} - \text{H}_2\text{O}$  можно объяснить “геометрией” отрицательного иона.

При рассеянии медленных нейтронов в жидкостях может быть выделена, в частности, квазиупругая некогерентная составляющая. В процессе рассеяния нейтрон испытывает изменение импульса  $\Delta p = \hbar |\vec{k}|$ , где  $|\vec{k}| = |\vec{k} - \vec{k}_0|$  (разность волновых векторов рассеянного и падающего нейтронов). Из соотношения неопределенности следует, что область, зондируемая нейтроном,

характеризуется размером  $\Delta x \approx \frac{\hbar}{\Delta p} = \frac{1}{|\vec{k}|}$ . Подбирая определенным образом условия нейтронного эксперимента в соответствии с последним выражением, можно увидеть диффузионные движения выделенной молекулы как на большие, так и на малые расстояния. Полагая, что смещение молекулы  $\delta x$  за временной интервал наблюдения  $t_n$  задается выражением  $\langle \delta x^2 \rangle = 6Dt_n$  и, отождествляя  $\delta x$  с  $\Delta x$ , получим, что  $t_n = (6Dk^2)^{-1}$ . Переменная  $(Dk^2)^{-1}$  соответствует времени, которое необходимо нейтрону, чтобы “почувствовать” диффузию частицы на расстоянии  $\delta x$ . Следовательно, для больших значений  $k$  (более  $1 \text{ \AA}^{-1}$ ) время наблюдения за диффундирующей молекулой в методе квазиупругого рассеяния медленных нейтронов мало ( $t_n \approx 10^{-12} \text{ с}$ ), и наблюдаются в основном колебательные движения молекул жидкости, подобные колебанию молекул в твердом теле. При уменьшении значения волнового вектора время наблюдения за молекулой увеличивается, и нейтрон “чувствует” как движения молекул, подобные движению в кристаллах, так и асимптотическое диффузионное поведение.

Дважды дифференциальное сечение рассеяния равно

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} \right)_{\text{нк}} \equiv F_S(\vec{k}, \omega), \quad (7)$$

здесь

$$F_S(\vec{k}, \omega) = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty dt \cos(\omega t) F_S(\vec{k}, t), \quad (8)$$

$$F_S(\vec{k}, t) = \langle \exp(i\vec{k}\Delta\vec{r}(t)) \rangle \quad (9)$$

— промежуточная функция рассеяния. Здесь  $\omega = \frac{\Delta\varepsilon}{\hbar}$ ,  $\vec{k} = \frac{\Delta\vec{p}}{\hbar}$ , где  $\Delta\varepsilon$  и  $\Delta p$  — изменение энергии и импульса нейтрона вследствие рассеяния,  $\Delta\vec{r}(t)$  — смещение одной из частиц за время  $t$ . Приближенно выражение для функции  $F_S$  принимает такой вид:

$$F_S(\vec{k}, t) \equiv \exp(-\kappa^2 \Gamma(t)) \quad (10)$$

где среднеквадратичное смещение протона (частицы)

$$\Gamma(t) = \langle \Delta\vec{r}^2(t) \rangle \quad (11)$$

Протон совершает несколько типов движения: трансляционное — перемещается вместе с молекулой; вращательное — при повороте молекулы как целой терпит смещение; колебательное. Поэтому смещение каждой частицы за время  $t$  можно представить в виде:

$$\Delta\vec{r}(t) = \Delta\vec{r}_0(t) + \Delta\vec{r}_i(t) + \Delta\vec{r}_r(t), \quad (12)$$

где  $\Delta\vec{r}_i(t)$  — составляющие, которые обязаны колебательному движению протона ( $i=0$ ) и его переносу вследствие трансляционного смещения ( $i=t$ ) и вращения молекул воды соответственно. С достаточной точностью функция  $F_S(\vec{k}, t)$  может быть аппроксимирована формулой [10]:

$$F_S(\vec{k}, t) = F_T(\vec{k}, t) \cdot F_R(\vec{k}, t) \cdot F_V(\vec{k}, t) \quad (13)$$

Колебательный тип движения является быстрым процессом, приводящим к фактору Дебая-Валлера:

$$F_V(\vec{k}, t) = \exp(-2W(\vec{k})). \quad (14)$$

Поступательное движение описывается множителем

$$F_T(\vec{\kappa}, t) = \exp\left(-\frac{1}{6}\vec{\kappa}^2\Gamma(t)\right), \quad (15)$$

в котором  $\Gamma(t) = \langle \Delta\vec{r}_i^2(t) \rangle$  — среднеквадратичное смещение молекулы, описываемое согласно [11] выражением:

$$\Gamma(t) \cong 6D_T t - \tilde{b}\sqrt{t}, \quad (16)$$

где  $\tilde{b}$  — известный коэффициент. Для  $|\vec{\kappa}| < 1\text{Å}^{-1}$  вращательная часть спектральной функции согласно [10] имеет вид:

$$F_R(\vec{\kappa}, t) = j_0^2(\vec{\kappa}b) + \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1)j_l^2(\vec{\kappa}b)F_l(t), \quad (17)$$

где  $j_l$  — сферические функции Бесселя,  $F_l(t) = \langle P_l(\hat{b} \cdot \hat{b}(t)) \rangle$ ,  $P_l$  — полином Лежандра,  $b$  — равновесная позиция атома водорода, отсчитанная от центра масс. В предельном случае  $\vec{\kappa}b \ll 1$

$$F_R(\vec{\kappa}, t) = 1 + \frac{(\vec{\kappa}b)^2}{3} e^{-2D_R t} + e^{-6D_R t} \cdot \frac{(\vec{\kappa}b)^6}{45}. \quad (18)$$

Отсюда следует, что при  $|\vec{\kappa}b| < 1\text{Å}^{-1}$  вращательной диффузией можно пренебречь.

При  $|\vec{\kappa}| > (\gg) 1\text{Å}^{-1}$  движение элементарных рассеивателей (отдельных молекул или групп молекул) может рассматриваться как свободное. В этом случае зависимость полуширины  $\Gamma$  от волнового вектора должна описываться формулой

$$\Gamma(|\vec{\kappa}|) = \Gamma_0 + \Gamma_1 |\vec{\kappa}| \left[ 1 + \frac{a_2}{\vec{\kappa}^2} + \frac{a_4}{\vec{\kappa}^4} + \dots \right], \quad (19)$$

$$\Gamma_1 \approx \sqrt{\langle \vec{v}^2 \rangle}, \quad (20)$$

где  $\langle \vec{v}^2 \rangle$  — среднеквадратичная скорость элементарного рассеивателя.

### 3. Сравнение с экспериментом

В соответствии со сказанным выше, поведение полуширины пика квазиупругого некогерентного рассеяния тепловых нейтронов в интервале значений волновых векторов  $0 \leq |\vec{\alpha}| \leq 1\text{Å}^{-1}$  и  $1\text{Å}^{-1} \leq |\vec{\alpha}| \leq 10\text{Å}^{-1}$  определяется различными механизмами. Поэтому обработка и интерпретация экспериментальных данных в этих интервалах должна производиться независимо.

а) Случай  $1\text{Å}^{-1} \leq |\vec{\alpha}| < 10\text{Å}^{-1}$

В этом интервале волнового вектора подгонка экспериментальных данных проводится согласно формуле (19). Значения коэффициентов  $\Gamma_1$ ,  $a_2$  и  $a_4$ , а также  $\Gamma_0$ , определяемых по методу наименьших квадратов, помещены в таблицу. Обратим внимание, что для всех электролитов зависимость полуширины от волнового вектора асимптотически является линейной (Рис.2). Эффективная масса  $m_{\text{eff}}$  элементарного рассеивателя может быть оценена по формуле:

$$\Gamma_1 = \sqrt{\frac{3k_B T}{m_{\text{eff}}}} \quad (21)$$

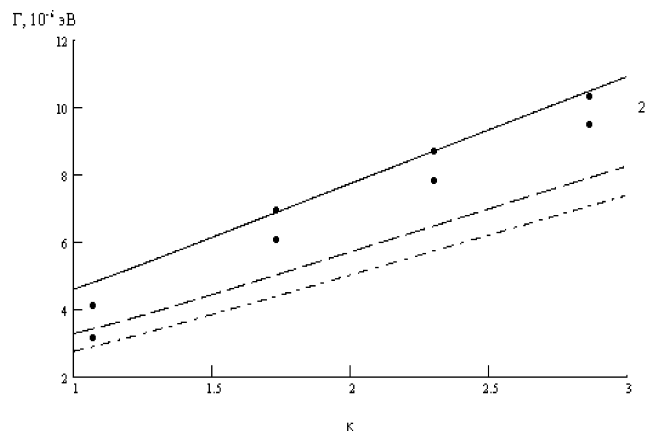


Рис. 2. Экспериментальные данные зависимости полуширины квазиупругого пика некогерентного рассеяния медленных нейтронов от волнового вектора и их обработка методом наименьших квадратов для воды (2), CsCl (1), NaNO<sub>3</sub> (3) и NaCl (4)

Для электролита CsCl согласно [3]  $\Gamma_1 = 4.88 \cdot 10^{11} \text{ c}^{-1}$ , чему соответствует

$$m_{eff} \approx 10^2 m_w, \quad (22)$$

где  $m_w$  — масса воды. Отметим, что значения  $\Gamma_1$  для воды, определенные в работах [2] и [3], отличаются примерно в 2 раза. Поэтому более правдоподобной представляется следующая оценка:

$$m_{eff} \approx (0.25 \div 1) \cdot 10^2 m_w \quad (23)$$

По порядку величин это значение  $m_{eff}$  соответствует массе иона  $Cs^+$  и молекул воды в одно-двуслойной гидратной оболочке, что представляется вполне правдоподобным.

Таблица

№	$\Gamma_1$	$a_2$	$a_4$	$\Gamma_0$	S
1(CsCl)	3.1	-0.2	0.1	1.8	0.54
2(вода)	2.95	-0.25	0.1	1.05	0.6
3(NaNO <sub>3</sub> )	2.5	-0.2	0.15	0.9	0.18
4(NaCl)	2.35	-0.1	0.1	0.4	0.22

б) Случай  $0 \leq |\bar{\alpha}| \leq 1 \dot{A}^{-1}$ .

В этом интервале значений волнового вектора значения полуширины могут быть описаны с помощью обобщенной диффузионной модели, предложенной в работах [8,9]. Анализ экспериментальных данных показывает, что они успешно описываются формулой (6), соответствующей соотношению ( $\tau_1 \ll \tau_0$ ) между параметрами модели. В интервале  $0 \leq |\bar{\alpha}| \leq 1 \dot{A}^{-1}$  полуширина принимает более простой вид:

$$\Gamma(\bar{\alpha}) = \frac{2}{\tau_0} \exp(-2W) + 2 \bar{\alpha}^2 [D_C + (D - D_C) \exp(-2W) + \dots] \quad (24)$$

Существенно, что область применимости формулы (6) в настоящей работе ограничивается указанным выше интервалом. В [3] формула (6) была применена во всем исследованном интервале значений волнового вектора:

$0 \leq |\bar{\alpha}| < 3 \dot{A}^{-1}$ , выходящем за пределы применимости диффузного приближения. Как следствие, это могло сказаться на величине коэффициента самодиффузии.

Применяя формулу (24) для обработки экспериментальных данных в интервале  $0 \leq |\bar{\alpha}| \leq 0.8 \dot{A}^{-1}$ , находим следующее значение комбинации:

$$NaCl: D_C + (D - D_C) \exp(-2W) \approx 2.07 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}; \tau_0 \approx 2.25 \cdot 10^{-12} \text{ с.}$$

$$CsCl: D_C + (D - D_C) \exp(-2W) \approx 1.59 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}; \tau_0 \approx 1.8 \cdot 10^{-12} \text{ с.}$$



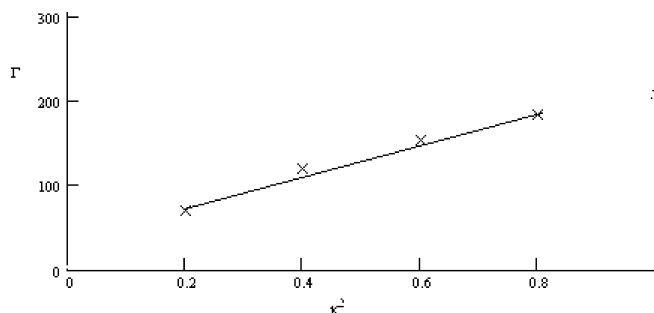


Рис. 3. Поведение полуширины в зависимости от квадрата импульса передачи в области малых значений волнового вектора для хлорида натрия

Предполагая, что  $\exp(-2W) \approx 1$ , для полного коэффициента самодиффузии воды в присутствии ионов электролита находим (Рис.3):

$$\text{NaCl: } D \approx 1.91 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с};$$

$$\text{CsCl: } D \approx 2.9 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}.$$

Полученные значения коэффициента самодиффузии примерно на 20% превышают полученные в работе [3].

В заключение авторы хотят выразить глубокую признательность члену-корреспонденту НАНУ Украины Л.А.Булавину за постановку задачи, проф. Н. П. Маломужу за руководство данной работой, проф. В. В. Калинчаку за участие в обсуждении результатов.

#### Литература

1. Гуревич И.И., Тарасов Л.В. Физика нейтронов низких энергий. — М.: Наука, 1965. — 607 с.
2. Teixeira J., Bellissent-Funel M.-C., Chen S.-H. Experimental determination of the nature of diffusive motions of water molecules at low temperature // Phys.Rev. — 1985. — A31. — P. 1913-1917.
3. Булавин Л.А. Нейтронные исследования равновесных и кинетических свойств в жидкостях. Дис. на соиск. уч. ст. д-ра физ.-мат. н. — Киев, 1989.
4. Булавин Л.А., Василькевич А.А., Дорош А.К. и др. Самодиффузия воды в водных растворах однозарядных электролитов // Укр.Физ.Журн. — 1986. — 31. — С. 1703-1707.
5. Булавин Л.А. Нейтронные исследования динамики жидкостей. — Киев: КГУ, 1977.
6. Vineyard G. Phys. Rev. — 110. — 1958. — P. 999.
7. Singvi A.S., Sjolander A. Phys. Rev. — 119. — 1960. — P.863.
8. Иванов Г.К. О роли диффузионных процессов при рассеянии медленных нейтронов в жидкостях. — ЖЭТФ. — 1966. — Т.51, №10. — С. 1120-1126.

9. Оскотский В.С. К теории квазиупругого рассеяния холодных нейтронов в жидкости // Физика твердого тела. — 1963. — Т.5, №4. — С. 1082-1085.
10. Chen S.-H. Quasi-elastic and inelastic neutron scattering and molecular dynamics of water at supercooled temperature // In book Hydrogen-Bonded Liquids. — Netherlands. — Kluwer Academic. — 1991. — P.289-332.
11. T.V.Lokotsh, N.P.Malomuzh. Lagrange theory of thermal hydrodynamic fluctuations and collective diffusion in liquids // Physica A 286. 2000. — P. 474-488.

*К. М. Панкратов*

**Квазіпружне некогерентне розсіювання повільних нейтронів  
в електролітах**

**АНОТАЦІЯ**

В даній роботі викладені закономірності квазіпружного некогерентного розсіювання повільних нейтронів у водневих розчинах електролітів. Показано, що при великих імпульсах передачі переважає обертальний рух частинки, при невеликих — трансляційний. У першому випадку спостерігається асимптотичне наближення теоретичних залежностей до експериментальних.

*Pankratov K. N.*

**Quasielastic incoherent scattering of slow neutrons in electrolytes**

**SUMMARY**

In the given operation regularities of a quasielastic incoherent scattering of slow neutrons in aqueous solutions of electrolytes are explained. It is shown, that at major impulses of transmission the rotary motion of a particle prevails, at small — transmitting. In the first case the asymptotic approximation of theoretical associations to the experimental is observed.

УДК 532

*А. В. Затовский, Е. И. Сахненко*

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

### **Лагранжева корреляционная функция флуктуаций тензора инерции жидкой частицы**

Детально изучено поведение спектральной интенсивности тепловых гидродинамических флуктуаций тензора момента инерции жидкой лагранжевой частицы. Анализ основан на известных значениях спектров билинейных пространственно-временных коррелятивных функций гидродинамических полей с учетом релаксации сдвиговой вязкости и коэффициента диффузии тензора инерции. Представленные результаты получены с использованием схемы пересчета флуктуаций эйлерового поля гидродинамических переменных на флуктуации лагранжевых переменных, впервые сформулированной в работе И.З.Фишера.

#### **Введение**

Автокорреляционная функция сферических гармоник углов Эйлера, определяющих ориентацию собственной системы отсчёта молекулы относительно лабораторной

$$\Psi_{lm}(t) = \left\langle Y_{lm}(t) Y_{lm}^*(0) \right\rangle, \quad (1)$$

где усреднения проводятся по распределению молекулярных переменных, наряду с корреляционными функциями (далее КФ) поступательной и вращательной скоростей молекул жидкости играет важную роль в описании процессов некогерентного рассеяния нейтронов, диэлектрической релаксации, флюоресценции, ядерного магнитного резонанса, рассеяния света и др. Информация, которую она несет, существенна для понимания механизма теплового движения молекул жидкости.

Поведение этих функций для различных моделей межмолекулярных взаимодействий тщательно изучено с помощью ЭВМ методом молекулярной динамики [1]. Временные КФ поступательной и вращательной скорости молекул простых жидкостей и жидких металлов вблизи тройной точки обладают ярко выраженной осцилляционной структурой, а на больших временах

для КФ поступательной скорости доказано существование степенной асимптотики  $t^{-3/2}$ , подтвердившее представление о наличии коллективных движений атомов жидкости. Что же касается функции  $\Psi_{lm}(t)$ , то она, как правило, убывает плавно, и на больших временах ведет себя как  $t^{-5/2}$  [2,3].

Точный расчет молекулярных КФ невозможен в связи с трудностями описания систем многих частиц. Поэтому обычно ограничиваются нахождением дальне временной асимптотики для них, используя различные модельные представления [4-9]. Область приближенной применимости таких асимптотических оценок простирается далеко в сторону малых гидродинамических времен [4], и это свойство может быть усилено за счет использования более совершенных, хотя и более сложных в математическом отношении, гидродинамических моделей.

Теоретическому исследованию различными методами долгоживущих корреляций в неупорядоченных системах и их проявлений в кинетических процессах посвящено огромное количество работ. К настоящему моменту времени КФ скорости подробно изучены. Представляет большой интерес исследование поведения КФ (1) и их спектров в широком временном и частотном интервале для различных моделей жидкости с анизотропными молекулами [7,8].

Тензор анизотропии, характеризующий отклонение осей анизотропных молекул элемента объема жидкости от изотропного распределения, был впервые предложен Леонтовичем в качестве дополнительной переменной к системе обычных гидродинамических уравнений с целью более полного описания теплового движения жидкости, состоящей из несферических молекул, и изучения спектрального состава рассеянного на ней света [10]. Тензор анизотропии естественно интерпретировать как локальный тензор инерции элемента объема. При равновесии тензор имеет некоторое значение, зависящее, например, от температуры и давления. Если последние изменяются, то новое равновесное значение тензора инерции достигается не мгновенно, и его можно рассматривать как независимую переменную. С его помощью должна эффективно описываться механическая или электрическая анизотропия жидкости, а КФ, составленная из сферических компонент тензора, является правильной асимптотической оценкой для молекулярной КФ (1).

В [3] с участием одного из нас построена полная система гидродинамических уравнений жидкости, в которой наряду с локальной скоростью движения учитывается внутренний момент импульса и тензор момента инерции. Уравнения были использованы для изучения спектральной плотности и пространственно-временной коррелятивной функции флуктуаций эйлерова поля тензора моментов инерции в равновесных и неравновесных условиях. В настоящей работе вид пространственно-временной коррелятивной функции уточнен на основании более совершенной гидродинамической модели с релаксирующими кинетическими коэффициентами. Жидкость при

этом выбрана несжимаемой и не учитываются быстрые процессы приближения к равновесию внутреннего момента импульса. Для такой модели детально изучено поведение спектральной интенсивности тепловых гидродинамических флуктуаций тензора момента инерции жидкой лагранжевой частицы. Представленные результаты основаны на подходе, впервые сформулированном в работе Фишера [4] и ряде других работ [6, 9], основанных на таком же методе построения лагранжевой теории тепловых гидродинамических флуктуаций. В последние годы Маломуж [11-14] вместе со своими сотрудниками предложил другую схему пересчета флуктуаций эйлерового поля скорости жидкости на лагранжеву. В [4] оператор, переводящий эйлеровы КФ поля флуктуаций на лагранжеву является дифференциальным, а в новом подходе [11] – интегральным. Это обстоятельство не существенно при анализе дальневременного поведения лагранжевых КФ, и обе версии лагранжевой теории тепловых флуктуаций эквивалентны. Различие временного поведения различается только в области малых значений времени (меньших или порядка времени релаксации сдвиговой вязкости жидкости).

#### Лагранжева и эйлерова КФ флуктуаций тензора инерции жидкой частицы

Молекулы анизотропной жидкости совершают вращательное движение и обладают тензором моментов инерции. Нас интересует предельно низкочастотная часть флуктуаций этого тензора, соответствующая наиболее медленным движениям молекулы. Физически очевидно, что это то движение, которое она совершает совместно со своим окружением как одно целое – её дрейф в поле тепловых гидродинамических флуктуаций. Совместно со своим окружением молекула образует “жидкую частицу” в смысле лагранжевой формулировки уравнений гидродинамики, а сами эти уравнения как раз и описывают медленные движения среды. Построим лагранжеву КФ компонент девиатора тензора инерции жидкой частицы

$$\Psi_{\bar{\sigma}\bar{\nu}\bar{\epsilon}\bar{\zeta}}^L(t) = \left\langle I_{\bar{\sigma}\bar{\nu}}^d(\bar{\mathbf{a}}(t), t) I_{\bar{\epsilon}\bar{\zeta}}^d(\bar{\mathbf{a}}(0), 0) \right\rangle. \quad (2)$$

Здесь  $\bar{\mathbf{a}}(0)$  и  $\bar{\mathbf{a}}(t)$  — лагранжевы координаты жидкой частицы в два момента времени. Вместо декартовых компонент симметричного тензора второго ранга можно ввести обычным способом сферические, и изучать лагранжевы КФ, составленные из сферических компонент тензора инерции жидкой частицы

$$\Psi_m^L(t) = \left\langle I_m(\bar{\mathbf{a}}(t), t) I_m(\bar{\mathbf{a}}(0), 0) \right\rangle, \quad -2 \leq m \leq 2. \quad (3)$$

Эта КФ со значениями  $t$  из обычного гидродинамического интервала

является правильной асимптотической оценкой для молекулярной КФ из (1) для больших значений  $t$ , так что

$$\Psi_{2m}(t) \approx \Psi_m^L(t). \quad (4)$$

Для расчета правой части необходимо выразить её через эйлеровы КФ, для которых существует теория тепловых гидродинамических флуктуаций. Исключим слабую зависимость от времени векторного аргумента в (2), используя метод и приближение работы Фишера [4]. Тогда лагранжева КФ тензора моментов инерции получается в виде разложения по эйлеровым КФ и среднеквадратичным смещениям  $\Gamma(t)$  жидкой частицы

$$\Psi_{\vec{\sigma} \ \varepsilon \ \delta}^L(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \left( \frac{\Gamma(t)}{6} \right)^n \left\langle I_{\vec{\sigma} \ \varepsilon}^d(\vec{r}, t) \Delta^n I_{\varepsilon \ \delta}^d(\vec{r}, 0) \right\rangle. \quad (5)$$

Выражение (5) получено в приближении гауссовского закона распределения случайных смещений жидкой частицы, который справедлив при больших временах. В то же время такое разложение является точным и при очень малых гидродинамических временах, поэтому его можно принять как точное разложение, реализующее пересчет эйлеровых КФ в лагранжевы.

Эйлеровы КФ тепловых флуктуаций тензора моментов инерции выражаются через спектральные интенсивности флуктуаций

$$\left\langle I_{\vec{\sigma} \ \varepsilon}^d(0,0) I_{\varepsilon \ \delta}^d(\vec{r}, t) \right\rangle = \int d\omega \ \alpha \vec{k} \left\langle I_{\vec{\sigma} \ \varepsilon}^* I_{\varepsilon \ \delta}^* \right\rangle_{\omega \vec{k}} \exp(i(\vec{k} \vec{r} - \omega t)).$$

Подставив это выражение в (5) и просуммировав ряд, получим

$$\Psi_{\vec{\sigma} \ \varepsilon \ \delta}^L(t) = \int d\vec{k} d\omega \left\langle I_{\vec{\sigma} \ \varepsilon}^* I_{\varepsilon \ \delta}^* \right\rangle_{\omega \vec{k}} \exp(-i\omega t - k^2 \Gamma(t)/6). \quad (6)$$

Таким образом, при известных спектральных плотностях флуктуаций эйлерова поля можно восстановить лагранжевы временные КФ тепловых флуктуаций тензора моментов инерции. Явный вид этих функций будет зависеть от используемой гидродинамической модели.

#### **Спектральная интенсивность гидродинамических флуктуаций тензора инерции**

Полная система гидродинамических уравнений анизотропной жидкости приведена в работе [3]. В ней наряду с локальной скоростью движения  $\vec{v}(\vec{r}, t)$

учитывается внутренний момент импульса  $\vec{M}(\vec{r}, t)$  и тензор моментов инерции  $I_{\alpha\beta}(\vec{r}, t)$ . Если жидкость считать несжимаемой и не учитывать быстрые процессы приближения к равновесию внутреннего момента импульса, она приведет к виду:

$$\left( \frac{\partial}{\partial t} + \nabla_{\sigma} v_{\sigma} \right) v_{\beta} = -\frac{1}{\rho} \nabla_{\beta} p + n \Delta v_{\beta} + n_{12} \nabla_{\epsilon} \delta I_{\beta \epsilon}^S, \quad (7)$$

$$\left( \frac{\partial}{\partial t} + \nabla_{\sigma} v_{\sigma} \right) I_{\beta \epsilon}^S = D \Delta I_{\beta \epsilon}^S - \frac{1}{\tau} \delta I_{\beta \epsilon}^S + n_{21} (\nabla \vec{v})_{\beta \epsilon}^S, \quad \nabla_{\sigma} v_{\sigma} = 0.$$

По сравнению с обычными уравнениями гидродинамики эти уравнения содержат дополнительно уравнение для новой полевой переменной- тензора моментов инерции и четыре новых кинетических коэффициента:  $\tau$ ,  $D$ ,  $n_{12}$  и  $n_{21}$ , имеющих смысл времени релаксации, коэффициента диффузии тензора моментов инерции и перекрестных кинетических коэффициентов соответственно. Линеаризуя полную систему уравнений, можно вычислить флуктуации любых гидродинамических полей. Спектры интенсивности этих полей можно найти, воспользовавшись флуктуационно-диссипативной теоремой. Нас интересует лишь спектральная интенсивность девиатора тензора моментов инерции. Воспользовавшись результатами работы [3], имеем

$$\left\langle I_{\beta \epsilon}^d I_{\zeta \delta}^{*d} \right\rangle_{\omega k} = \text{Re} \frac{\theta}{M} \left\{ \Delta_{\beta \epsilon \zeta \delta} - \frac{\alpha k^2}{M N} R_{\beta \epsilon \zeta \delta} \right\}, \quad (8)$$

где использованы обозначения

$$\begin{aligned} \theta &= k_B T / 4 V \rho \delta^4, \quad \alpha = n_{21} n_{12} / 2, \\ \Delta_{\beta \epsilon \zeta \delta} &= \frac{1}{2} \left( \delta_{\beta \delta} \delta_{\epsilon \zeta} + \delta_{\beta \zeta} \delta_{\epsilon \delta} \right) - \frac{1}{3} \delta_{\beta \epsilon} \delta_{\zeta \delta}, \\ R_{\beta \epsilon \zeta \delta} &= \frac{1}{4} \left( n_{\beta \delta} n_{\epsilon \zeta} + n_{\beta \zeta} n_{\epsilon \delta} + n_{\beta \epsilon} n_{\delta \zeta} + n_{\beta \epsilon} n_{\zeta \delta} \right) - \\ & - \frac{1}{3} \left( n_{\beta \epsilon} n_{\delta \zeta} + n_{\beta \zeta} n_{\delta \epsilon} \right) + \frac{1}{9} \delta_{\beta \epsilon} \delta_{\zeta \delta}, \quad n_{\beta \epsilon} = \frac{k_{\beta \epsilon}}{k}, \end{aligned} \quad (9)$$

$$M = -i\omega + Dk^2 + \frac{1}{\tau}, \quad N = -i\omega + \eta k^2 + \frac{\alpha k^2}{M}, \quad (10)$$

$B$  — коэффициент разложения плотности внутренней энергии единицы массы в ряд по квадрату тензора инерции.

#### Дальновременная асимптотика КФ тензора инерции

Изучим теперь временную КФ тензора моментов инерции лагранжевой частицы. Приведенная выше гидродинамическая модель оказывается недостаточной для вполне корректного описания поведения лагранжевой автокорреляционной функции тензора моментов инерции. Она применима только на тех временах, для которых характер затухания поперечных мод жидкости определяется главным образом диффузионным механизмом. В области же максвелловских времен, на которых вязкий отклик системы на внешнее воздействие изменяется на упругий и диффузные поперечные моды становятся колебательными, характер временной зависимости  $\Psi_{\delta\epsilon\zeta\delta}(t)$  и ее спектр должен быть уточнен. Действительно, рассмотрим временную КФ тензора моментов инерции лагранжевой частицы, полученную в [3] на основании найденной выше спектральной интенсивности. Она является суммой двух слагаемых. Если ввести обозначение

$$\Psi_{\delta\epsilon\zeta\delta}(t) = \Delta_{\delta\epsilon\zeta\delta} \left[ \Psi^{(1)}(t) + \Psi^{(2)}(t) \right], \quad (11)$$

то первое из них имеет вид:

$$\Psi^{(1)}(t) = \frac{k_B T e^{-t/\tau}}{\rho B (4\delta (Dt + \Gamma(t)/6))^{3/2}}, \quad (12)$$

а вклад от второго слагаемого в лагранжеву КФ приводит к следующему выражению

$$\Psi^{(2)}(t) = \frac{3\delta^{3/2}\Theta\alpha}{2(n-D)^{5/2}\sqrt{t}} \int_0^1 \frac{x e^{-xt/\tau}}{(\lambda-x)^{5/2}} \Phi\left(\frac{5}{2}, 2, -\frac{\alpha t}{n-\mu} \frac{x(1-x)}{\lambda-x}\right) dx, \quad (13)$$

где  $\Phi(n, m, x)$  — вырожденная гипергеометрическая функция [15] и  $\lambda = (n + \Gamma(t)/6)/(n - D)$ .



Оба вклада приводят к некорректному выражению для КФ на малых временах, а значение  $\Psi(0)$  не существует из-за плохо определенных эйлеровых КФ при совпадающих пространственных и временных аргументах. В связи с этим возникает необходимость исследования более совершенной гидродинамической модели.

Результаты (11) — (13) приемлемы, если интересоваться лишь предельной при  $t \rightarrow \infty$  асимптотикой лагранжевой КФ тензора момента инерции. Она является асимптотической оценкой и для молекулярных КФ, составленных из тензоров второго ранга, медленно меняющихся вследствие поворотного движения молекул жидкости. Вклад  $\Psi^{(1)}$  в лагранжеву КФ  $\Psi_{\alpha\beta\gamma\delta}^L(t)$  при  $t \rightarrow \infty$  экспоненциально мал. Выражение же  $\Psi^{(2)}$  кроме экспоненциально затухающих членов, соответствующих релаксации тензора моментов инерции, содержит медленно убывающие степенные вклады, главный из них определяет асимптотику и имеет вид

$$\Psi^L(t) = \frac{3k_B T \alpha \tau^2}{16\rho V\pi \left[ t(\eta + D_L + \alpha\tau) \right]^{5/2} \left[ 1 + o(\tau/t) \right]}, \quad (14)$$

где  $D_L$  — коэффициент лагранжевой диффузии частицы. Он появляется, если приближенно считать, что смещение жидкой частицы имеет чисто диффузионный характер для всех  $t$  из гидродинамического интервала, т. е.

$\Gamma(t) \approx 6D_L t$  [4]. Степенная асимптотика КФ флуктуаций плотности тензора моментов инерции связана с процессом взаимного влияния флуктуаций поперечных эйлеровых движений и флуктуаций самого тензора. Этот процесс характеризуется кинетическими коэффициентами  $v_{12}$  и  $v_{21}$ , которые содержатся в множителе  $\alpha$  (13). Если пренебречь таким влиянием, то уравнение движения тензора инерции отделяется от других гидродинамических уравнений системы, а лагранжева КФ его флуктуаций полностью определяется выражением для  $\Psi^{(1)}$ .

Исследуем более точную гидродинамическую модель жидкости с анизотропными молекулами. Рассмотрим несжимаемую жидкость с динамическими коэффициентами вязкости и диффузии тензора моментов инерции

$$\eta_\omega = \frac{\eta}{1 - i\omega\tau_0}, \quad D_\omega = \frac{D}{1 - i\omega\tau_1}, \quad (15)$$

где  $\tau_0$  и  $\tau_1$  — времена релаксации вязких напряжений жидкости и диффузии тензора моментов инерции. Подставляя  $D_\omega$  в первое слагаемое уравнения (8) и производя интегрирование (5), вместо выражения (11) получим  $\Psi^{(1)}$  в виде

$$\Psi^{(1)}(t) = \frac{k_B T}{\rho B} \left( \frac{\tau_1}{4\pi D} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{s_-^2}{t} \times \left[ I_1 \left( \frac{t}{2} s_- \right) + I_2 \left( \frac{t}{2} s_- \right) \right] \exp \left( -\frac{t}{2} s_+ \right), \quad s_{\pm} = \frac{1}{\tau_1} \pm \frac{1}{\tau} \quad (16)$$

где  $I_n(z)$  — модифицированные функции Бесселя. В этом выражении опущены дельта-образные вклады, описывающие упругую реакцию жидкости (детальное обсуждение имеется в [9]). Результат (16) переходит в (12) при  $\tau_1 = 0$ , если  $D_L \ll D$ .

#### Спектр лагранжевой КФ флуктуаций тензора момента инерции

Для спектральных экспериментов важны фурье-образы временных КФ. Чтобы они существовали, необходима их интегрируемость в окрестности  $t = 0$ . Поэтому для нахождения фурье-образа лагранжевой корреляционной функции флуктуаций тензора момента инерции следует воспользоваться временной КФ, полученной в рамках гидродинамической модели жидкости с динамическими коэффициентами вязкости и диффузии тензора момента инерции. На основании выражения (16), после несложных вычислений [15] получим фурье-образ функции  $\Psi^{(1)}$

$$\Psi^{(1)}(\omega) = \frac{k_B T}{2\rho B} \left( \frac{\tau_1}{4\pi D} \right)^{\frac{3}{2}} s_-^2 \operatorname{Re} \left( p + \frac{p^2}{4} \right), \quad (17)$$

где использованы обозначения

$$p = s_- \left( -i\omega + s_+ / 2 + \sqrt{(-i\omega + s_+ / 2)^2 - s_-^2 / 4} \right)^{-1}.$$

Найдем теперь фурье-образ КФ  $\Psi^{(2)}$ . Для упрощения расчетов будем

пренебрегать смещением жидкой частицы, положив в  $\vec{a}(t) \approx \vec{a}(0)$ . С учетом релаксации кинетических коэффициентов для КФ  $\Psi^{(2)}(t)$  получим

$$\begin{aligned} \Psi^{(2)}(t) &= 4\pi \Theta \int_0^\infty dk k^4 \int_0^\infty d\omega \cos \omega t \cdot \\ \operatorname{Re} \sum_{n=0}^\infty &\frac{(-\alpha)^{n+1}}{n! (n+1)!} \frac{\partial^n}{\partial H_\omega^n} \frac{\partial^{n+1}}{\partial (1/\tau)^{n+1}} \times \\ &\times \frac{1}{-i\omega + H_\omega k^2} \frac{1}{-i\omega + \frac{1}{\tau} + D_\omega k^2}. \end{aligned} \quad (18)$$

Прежде чем произвести интегрирование, рассмотрим вспомогательную функцию ( $m=0$  или 1)

$$\begin{aligned} \div_m(t) &= \lim_{r \rightarrow 0} \frac{1}{r} \int_0^\infty dk k^{2m+1} \int_0^\infty d\omega \cos \omega t \times \\ &\times \frac{1}{-i\omega + H_\omega k^2} \frac{\sin kr}{-i\omega + \frac{1}{\tau} + D_\omega k^2}. \end{aligned} \quad (19)$$

Внутренний интеграл в этом выражении прост, поскольку его можно записать в виде свертки по времени от двух других функций. Интегрирование по  $k$  с последующим граничным переходом проводится легко. Вычисляя фурье-образ от полученной функции, находим

$$\begin{aligned} \div_m(\omega) &= \frac{2\delta^2}{H(H\tau_0)^{m+\frac{1}{2}}} \times \\ &\times \int_0^1 \frac{[x(1-x)]^{m+\frac{1}{2}}}{-i\omega + \frac{1}{\tau} + \frac{x(1-x)}{\tau_0 H} D_\omega} \frac{(1-x) dx}{x - i\omega\tau_0}. \end{aligned}$$

Пользуясь этим результатом и считая параметр  $\alpha = v_{12}v_{21}/2$  малым, находим главный член разложения КФ из (17) по этому параметру

$$\Psi^{(2)}(\omega) \sim \frac{\alpha \tau_0^{1/2}}{H^{5/2}} \int_0^1 \frac{dx [x(1-x)]^{3/2}}{1-x/(1-i\omega\tau_0)} \times \frac{1}{[-i\omega\tau_0 + \tau_0/\tau + x(1-x)D_{\omega}/H]^2} . \quad (20)$$

Этот интеграл определяется через элементарные функции [15], но выглядит очень громоздким, поэтому здесь не приведен. Поведение КФ  $\Psi^{(2)}$  для любых значений времени можно получить путем фурье-преобразования этого выражения. Но такой результат трудно изобразить в виде, удобном для исследования. Если же учесть, что отношение  $D/v \ll 1$ , то при  $D/v \ll \tau_0/\tau$  можно совсем отбросить этот вклад, а оставшийся интеграл с точностью до размерных коэффициентов является фурье-образом КФ вращательной скорости лагранжевой частицы жидкости в приближении Навье-Стокса, детально исследованной в [9]. В этом приближении находим

$$\Psi^{(2)}(\omega) \sim \frac{\alpha}{v(\tau_0 H)^{3/2}} \operatorname{Re} \frac{1}{[-i\omega + 1/\tau]^2} P(\omega) , \quad (21)$$

$$P(\omega) = (6p_0 + 2p_0^2 - 2p_0^3 - p_0^4)/5 ,$$

$$p_0 = 1 - 2i\omega\tau_0 - \sqrt{(1 - 2i\omega\tau_0)^2 - 1} .$$

Главный вклад в КФ  $\Psi(t)$  при  $t \rightarrow \infty$  снова убывает по закону  $t^{-5/2}$ .

#### Литература

1. Лагарьков А.Н., Сергеев В.М. Метод молекулярной динамики в статистической физике // Успехи физических наук. — 1978. — Т.125. — С.409-449.
2. Keyes T., Oppenheim I. Long-time behavior of orientation correlation function // Physica. — 1974. — V.75. — P.583-592.
3. Zatovsky A.V., Zvelindovsky A.V. Hydrodynamic fluctuations of a liquid with anisotropic molecules // Physica A. — 2001. — V. 298. — P. 237-254.
4. Фишер И. З. Гидродинамическая асимптотика автокорреляционной фун-

- кции скорости молекулы в классической жидкости // ЖЭТФ. — 1971. — Т. 61, №4. — С. 1647-1659.
5. Ганцевич С. В., Каган В. Д., Катилюс Р. Столкновительная корреляция как причина степенных асимптотик отклика и особенностей спектра низкочастотных флуктуаций// ЖЭТФ. — 1981. — Т.90. — С. 1827-1844.
  6. Затовский А.В. К гидродинамической теории корреляционных функций поступательной скорости и момента импульса в жидкости // УФЖ. — 1974. — Т.19. — С. 728-736.
  7. Nomura H., Matsuoka T., Koda S. Translation-orientation coupling motion of molecules in liquids and solution// J. Mol. Liq. — 2002. — V. 96-97. — P. 135-151.
  8. Coffey W.T., Kalmykov Yu. P., Titov S.V. Langeven equation method for the rotation motion and oriental relaxation in liquids// J. Phys. A: Math. Gen. — 2002. — V.35. — P. 6789-6803.
  9. Фишер И.З., Затовский А.В., Маломуж Н.П. Гидродинамическая асимптотика корреляционных функций вращательного движения молекул в жидкости // ЖЭТФ. — 1973. — Т.65. — С. 297-306.
  10. Leontovich M.A. Relaxation in liquids and scattering of light // J. Phys. USSR. — 1941. — V.4. — P. 499-518.
  11. Lokotosh T.V., Malomuzh N.P. Lagrange theory of thermal hydrodynamic fluctuations and collective diffusion in liquids // Physica A. — 2000. — V.286. — P. 474-488.
  12. Lokotosh T.V., Malomuzh N.P. Manifestation of collective effects in the rotational motion of molecules in liquids // J. Mol. Liq. — 2001. — V.93. — P. 95-108.
  13. Lokotosh T.V, Malomuzh N.P., Shakun K.S. Nature of oscillations for the autocorrelation functions for transversal and angular velocities of a molecule // J. Mol. Liq. — 2002. — V. 96-97. — P. 245-263.
  14. Булавін Л.А., Локотош Т.В., Маломуж М.П. Природа напівширини квазіпружного піку некогерентного розсіювання повільних нейтронів у воді при значних передачах імпульсу// ДАН України. — 2002. — № 9. — С.71-76.
  15. Градштейн И.С., Рыжик И.М. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. — М.: ГИФМЛ, 1963. — 1100 с.

*О. В. Затовський, О. І. Сахненко*

**Лагранжева кореляційна функція флуктуацій тензора інерції рідкої частинки**

**АНОТАЦІЯ**

Детально вивчена поведінка спектральної густини теплових гідродинамічних флуктуацій тензора інерції рідкої лагранжевої частинки. Аналіз базується на відомих значеннях спектрів білінійних просторово-часових корелятивних функцій гідродинамічних полів з врахуванням релаксації зсувної в'язкості та коефіцієнта дифузії тензора інерції. Представлені результати одержані з використанням схеми розрахунку флуктуацій лагранжевих змінних через флуктуації ейлерового поля гідродинамічних змінних, вперше сформульованої у роботі Й.З.Фішера.

*Zatorsky A. V., Sakhnenko E. I.*

**Lagrangian correlation function of fluctuations of the inertia moment tensor of a liquid particle**

**SUMMARY**

The correlation function of the thermal fluctuations of inertia moment tensor is studied for a Lagrangian liquid particle. This correlation function is the asymptotic estimate for molecular correlation function composed second rank tensors, it is important for investigation of thermal motion of anisotropic molecules in a liquid. It is obtained phenomenologically system of the hydrodynamic equations with the new field variable — inertia moment tensor of an element of volume of the liquid which is composed the nonspherical molecules. The thermal hydrodynamic fluctuation spectral intensity of this tensor is determined. With its help the time asymptotic of the correlation function is investigated in detail.

*А. В. Глушков, В. М. Хохлов, И. А.Цененко*

*Одесский государственный экологический университет*

## **Застосування вейвлет-розкладення для аналізу запасів вихрової кінетичної енергії, процесів тепло-, масо-, енерго-переносу в атмосфері**

Стационарне вейвлет-розкладення застосовується для аналізу часових змін індексів Північноатлантичної осциляції (NAO), її зв'язку із запасами вихрової кінетичної енергії ( $K_E$ ), процесами тепло-масо-енерго-переносу у атмосферному середовищі (помірних та тропічних широтах). Перевагою такої методики є можливість ізолювання коротко- та довготермінових компонентів. При аналізі були виявлені первинні періодичності для індексів Північноатлантичної осциляції, такі як 4-8-річна, а також природна зміна домінуючих фаз NAO. Показано, що коли фази Північноатлантичної та Південної осциляції змінюються синхронно з періодом 4-8 років, зв'язок між змінами індексів NAO та запасів  $K_E$  є найбільш істотним. Коли фаза NAO має тенденцію до різкіших змін, її вплив на запаси вихрової кінетичної енергії як у помірних широтах, так й у тропіках, процеси масо-, тепло-, енерго-переносу є набагато істотним, ніж для випадку тривалого домінування однієї фази.

### **1. Вступ**

В останні десятиріччя минулого сторіччя у світі виникнув та сформувався новий науковий напрямок, який пов'язаний з так званим вейвлет-перетворенням. Можна без перебільшення сказати, що вейвлети зробили революцію у теорії та практиці обробки нестационарних сигналів. На сьогодні вейвлети широко застосовуються для розпізнавання образів; при обробці та синтезі різноманітних сигналів. Дуже перспективним та ефективним є їх використання для вивчення властивостей турбулентних полів, у розв'язанні різноманітних задач фізики аерозольних систем, фізики атмосфери та океану, геофізики, атомної та молекулярної фізики.

Деякі ідеї теорії вейвлетів частково були розроблені вже дуже давно. Наприклад, А. Хаар ще у 1910 році опублікував повну ортонормальну систему базисних функцій з локальною областю визначення, які зараз мають назву вейвлетів Хаара. Але втішно відзначити, що мабуть перша згадка про вейвлети з'явилась у літературі з цифрової обробки та аналізу геофізичних сигналів (зокрема, сейсмічних) у працях, які були зроблені під керівництвом А. Гроссмана та Ж. Морле [1, 2]. На сьогодні бібліографія про застосування вейвлет-перетворення для аналізу різноманітних геофізичних сигналів, і метеорологічних зокрема, налічує велику кількість публікацій, тому наведення

хоч невеликої їх частки у статті, що присвячена конкретній проблемі, є, мабуть, зайвим. Стосовно праць у геофізиці, фізиці атмосфери, слід відзначити огляд Н.М. Астаф'євої [3] та статтю К. Торренса та П.Дж. Вебстера [4], які застосували вейвлети для аналізу динаміки Ель Ніньо.

Зрозуміло, що хоча праць за відзначеною вище методикою багато, але охопити весь спектр фізичних, геофізичних проблем вони не можуть. В данні роботі ми спробуємо за допомогою вейвлет-перетворення пояснити механізм часових флуктуацій запасів вихрової кінетичної енергії ( $K_E$ ), яку можна вважати одним з показників інтенсивності еволюції атмосферних вихорів. Отримані результати мають певне значення в теорії вихорів у рідинах, взагалі, та океані, зокрема. Запаси  $K_E$  визначаються відхиленням складових вектора вітру від його середньозональної величини. Рівняння ж бюджету цієї енергії можна використовувати для дослідження еволюції вихрової активності. Нижче ми застосуємо вейвлет-розкладення для ідентифікації зв'язку між змінами індексів Північноатлантичної осциляції (NAO) та запасів  $K_E$  у атмосфері (помірних широтах та тропіках). Попередній якісний аналіз [5] показав, що вплив NAO на запаси  $K_E$  у позатропічних широтах не можна вважати цілком визначеним. Перевагою підходу з вейвлет-перетворенням є те, що останній може показати не тільки взаємодію, а й її зміни на різних часових масштабах, які як правило приховані сильним фоновим шумом у кліматичній системі. Отже, метою цього дослідження є визначення зазначеної взаємодії на різних часових масштабах реалізацією вейвлет-розкладення.

Розглянемо стисло деякі характеристики NAO, яка є однією з найпомітніших схем телеконнекції у всі пори року і яка була описана Е. Дж. Барнстоном та Р.Е. Лайвзі [6]. Північноатлантична осциляція складається з диполя аномалій тиску, перший центр якого розташований над Ісландією, а інший, зі зворотнім знаком, — біля Канарських островів. При додатній фазі NAO у високих широтах Північної Атлантики спостерігається декілька нижчий за нормальний тиск, а над центральною частиною Північної Атлантики, сходом США та Західною Європою реєструється декілька вищий за звичайний тиск. При від'ємній фазі NAO над цими районами спостерігаються аномалії зворотних знаків. Існує значна міжрічна мінливість NAO, при цьому як додатна, так й від'ємна, фази можуть спостерігатися протягом декількох місяців поспіль. В той же час, для зазначеної мінливості існує певна періодичність. З іншого боку, якщо NAO мало тенденцію залишатися у одній екстремальній фазі то воно відповідало за більшість зимових потеплінь та похолодань, що спостерігалися над Європою та Північно-Західною Атлантикою.

Можна розглядати великі (за модулем) індекси NAO як прояв зональної атмосферної циркуляції, а близькі до нуля — як збільшення меридіональності атмосферних процесів. З цієї точки зору вихрова кінетична енергія у позатропічних широтах повинна бути максимальною у періоди, коли спостерігаються невеликі індекси NAO, тому що вона виражає відхилення від середньозонального стану.



## 2. Метод дослідження та вихідні дані

Отже, вейвлети є функціями стандартних блоків і аналогічні тригонометричним функціям синус та косинус. Перетворення Фур'є добуває деталі з частоти сигналу, але вся інформація про розташування окремої частоти усереднені сигналу втрачається. Тому при аналізі нестационарних сигналів за рахунок своєї локальності вейвлети мають суттєву перевагу перед перетворенням Фур'є. Для більш детального ознайомлення з теорією вейвлетів, можна рекомендувати монографії І. Добеші, яка нещодавно була опублікована російською мовою [7], та сучаснішу Дж. Госвами та Е. Чена [8]. Для опису різноманітних метеорологічних сигналів часто застосовується (див., наприклад, [3, 4, 9]) неперервне вейвлет-перетворення. В цій статті, ми використовуємо так зване стаціонарне вейвлет-перетворення, тому що воно має деякі переваги перед зазначеним вище. Зокрема, воно має набагато краще розв'язання на великих часових масштабах, а також дозволяє більш безпосередньо ізолювати часові ряди головних компонентів (див., наприклад, [10]).

Розширення та зміщення материнського вейвлета  $\psi(t)$  генерує вейвлет  $\psi_{j,k}(t) = 2^{j/2}\psi(2^j t - k)$ . Параметр розширення  $j$  контролює величину вейвлета, а параметр зміщення  $k$  — наскільки вейвлет зрушений вздовж осі  $t$ . Для вибраного належним чином материнського вейвлета ряд  $\{\psi_{j,k}\}_{j,k}$  забезпечує ортогональний базис, а функція  $f$ , яка визначена в межах реальних чисел, може бути розкладена, як

$$f(t) = \sum_{k=-\infty}^{\infty} c_{0,k} \varphi_{0,k}(t) + \sum_{j=1}^J \sum_{k=-\infty}^{\infty} d_{j,k} \psi_{j,k}(t), \quad (1)$$

де максимальний масштаб  $J$  визначається кількістю даних,  $c_{0,k}$  є коефіцієнтами найнижчої частоти і  $d_{j,k}$  надають інформацію про динаміку функції  $f$ , що концентрується на ефектах масштабу навколо  $2^j$  близько до часу  $k \times 2^j$ . Це вейвлет-розкладення функції майже точно відображує дискретне вейвлет-перетворення (ДВП) сигналу, що спостерігається у дискретні моменти часу.

На практиці довжина сигналу  $n$  має обмеження, наприклад в нашому дослідженні використовуються середньомісячні дані за конкретний період, тобто функція  $f(t)$  у рівнянні (1) є вектором  $f = (f(t_1), \dots, f(t_n))$  з  $t_i = i/n$  та  $i = 1, \dots, n$ . Тоді ДВП вектора  $f$  є звичайним матричним добутком  $d = Wf$ , де  $d$  є вектором  $n \times 1$  коефіцієнтів дискретного вейвлета з цілими індексами, що кратні 2;  $d_{j,k}$  та  $W$  є ортогональними матрицями  $n \times n$ , що пов'язані з базисом вейвлета. З обчислювальних причин простіше виконувати вейвлет-перетворення часового ряду з діадичною (показник степені 2) довжиною. В нашому випадку довжина ряду становить 512 місяців (з липня 1960 по лютий 2003 року).

Однією з особливих проблем ДВП є відсутність інваріанта зміщення, що може стати причиною феномена Гіббса при реконструкції функції [10]. Стаціонарне вейвлет-перетворення (СВП) даних  $(f(t_1), \dots, f(t_n))$  на рівномірно розташованих точках  $t_i = i/n$  визначається як серія усіх ДВП, сформованих з

$n$  можливих зсувів на величину  $i/n$ , де  $i = 1, \dots, n$ . Тобто, на відміну від ДВП, існує  $2^j$  коефіцієнтів на  $j$ -тому рівні розв'язання та  $n$  рівномірно розташованих коефіцієнтів вейвлета у СВП на кожному рівні розв'язання  $j$ :

$$d_{j,k} = n^{-1} \sum_{i=1}^n 2^{j/2} \psi \left[ 2^j (i/n - k/n) \right] y_i,$$

де  $k = 0, \dots, n-1$ . Це веде до  $\log_2(n)$  коефіцієнтів у кожній точці розташування. Безпосереднім наслідком цього є те, що СВП стає інваріантом зміщення. Внаслідок своєї структури СВП припускає кращу частоту вибірки на всіх рівнях  $i$ , таким чином, забезпечує кращий дослідницький засіб для аналізу змін частоти базисного сигналу у часі. Переваги СВП перед ДВП для аналізу часових рядів демонструються у праці Г. Насона та інш. [10].

Як і для області Фур'є, важливо визначити потужність сигналу при заданому розв'язанні. Для цього використаємо еволюційний вейвлет-спектр, який визначає внесок у зміну процесу на масштабі  $j$  та часі  $k$  [10]. Використовуючи наведене у попередньому підрозділі, можна легко побудувати будь-який часовий ряд у області вейвлета. Інший спосіб побачити результат СВП полягає у поданні часової еволюції даних на заданому масштабі. Щоб зробити це, треба визначити гладкий  $S_0$  та деталізований  $D_j$  ( $j = 1, \dots, J$ ) сигнали за формулами:

$$S_0(t) = \sum_{k=-\infty}^{\infty} c_{0k} \varphi_{0,k}(t) \quad \text{та} \quad S_j(t) = \sum_{k=-\infty}^{\infty} d_{jk} \psi_{j,k}(t). \quad (2)$$

Також, часове розкладення  $D_j$  можна послідовно визначити з  $D_j(t) = S_j(t) - S_{j-1}(t)$ . Отже, високочастотні осциляції описуються, головним чином, компонентами  $D_j$  та  $D_{j-1}$ , а компоненти грубого масштабу  $S_0$ ,  $D_1$  та  $D_2$  відповідають низькочастотним коливанням сигналу. У подальшому викладенні як материнський застосовується вейвлет Добеші 15-го порядку (db15). Відзначимо, що цей вейвлет є біортогональним та підтримує дискретне вейвлет-перетворення [7]. Високий порядок вибраний для гладкішого відтворення деталізованого сигналу.

Тепер зупинимось на метеорологічних даних про сигнали. Вище вже відзначалося, що як міру інтенсивності еволюції атмосферних вихорів будемо брати вихрову кінетичну енергію ( $K_E$ ), формула розрахунку якої має вигляд

$$K_E = \frac{\overline{u'^2 + v'^2}}{2}, \quad (4)$$

де  $u$  і  $v$  — зональна та меридіональна складові вектора швидкості вітру. Штрихи у формулі (4) позначають відхилення від середньозональної величини, яка позначається рискою зверху. Після інтегрування  $K_E$  за всією товщею атмосфери у широтному поясі її характерна величина буде  $10^5$ , а

розмірність — Дж м<sup>2</sup>. Розрахунок  $K_E$  будемо здійснювати у широтних поясах 0-30° ( $K_{E,тр}$ ) та 30-60° ( $K_{E,пш}$ ) півн.ш.

Для розрахунків величин запасів вихрової кінетичної енергії використовувались дані реаналізу NCEP-NCAR [11], які на сьогодні можна вважати одними з найнадійніших. Дані про поля метеорологічних величин надані на всій земній кулі з кроком 2,5° за широтою та довготою на 17 ізобаричних поверхнях від 1000 до 10 гПа, тобто інтегрування по вертикальній координаті охоплює приблизно 99% маси атмосфери.

### 3. Результати та дискусія

Використовуючи вейвлет-розкладення охарактеризуємо головні складові мінливості індексів Північноатлантичної осциляції та вихрової кінетичної енергії за методикою, що описана у попередньому розділі. Спочатку наведемо деякі відомості про довгострокові часові коливання в атмосфері. Стосовно вихрової кінетичної енергії насамперед можна відзначити сезонні коливання з періодом 12 місяців. Взимку величина запасів  $K_E$  (особливо північніше 30° півн.ш. [12]), збільшується, а влітку — зменшується. Не треба забувати й про феномен Ель Ніньо, періодичність якого становить від 3 до 7 років, а вплив на атмосферні процеси по всій Земній кулі є добре відомим. Останнє коливання, яке ми згадаємо, — це 11-річний сонячний цикл. Треба відзначити, що хоч на сьогодні нам не достас знання про те, як саме сонячні варіації перетворюються через взаємодію з атмосферою у зміни клімату, такий зв'язок вже відображений як для часової еволюції, так й для величини впливу (див., наприклад, [13]). Отже, довгоперіодні часові зміни інтенсивності атмосферних процесів визначаються комплексом внесків від кожного із зазначених вище (та не згаданих тут) впливів. Тому навряд чи можна, аналізуючи розкладання тільки деяких з них, або, як у нашому випадку, навіть, похідних цих впливів, виявити по всіх деталізованих компонентах стовідсоткову узгодженість сигналів. Навіть для одного вибраного деталізованого компонента цілковитий збіг для декількох сигналів є малоімовірним. Таким чином, треба застосувати якийсь кількісний критерій для вибору найінформативніших зазначених компонентів. В цьому дослідженні розглянемо коефіцієнт кореляції для компонентів деталізованого сигналу індексів Північноатлантичної осциляції та запасів вихрової кінетичної енергії (табл. 1).

Таблиця 1

Коефіцієнти кореляції для компонентів деталізованого сигналу

	Коефіцієнт кореляції								
	$D_9$	$D_8$	$D_7$	$D_6$	$D_5$	$D_4$	$D_3$	$D_2$	$D_1$
NAO – $K_{E,пш}$	0,156	0,177	0,216	0,122	0,308	0,533	0,640	0,802	0,860
NAO – $K_{E,тр}$	0,199	0,008	0,335	0,192	0,415	0,660	0,580	-0,812	-0,762
$K_{E,пш}$ – $K_{E,тр}$	0,296	0,652	0,926	0,433	0,332	0,687	0,614	-0,339	-0,324

Як можна бачити з цієї таблиці, найбільші коефіцієнти кореляції  $K_{E, \text{пнш}}$  —  $K_{E, \text{тр}}$  відзначаються для  $D_7$ , період якого становить 1 рік. Ці коливання пов'язані з сезонними змінами, що відбуваються в атмосфері при переході від зимового до літнього режиму. Цілком очевидно, що така висока кореляція спостерігається для більшості метеорологічних рядів з періодом 1 рік. Найбільші ж коефіцієнти кореляції між індексами NAO та запасами  $K_E$  відзначаються у низькочастотній ділянці спектра ( $D_1 \div D_4$ ). Причому, якщо для  $D_3$  та  $D_4$  спостерігаються істотний зв'язок між  $K_{E, \text{пнш}}$  та  $K_{E, \text{тр}}$ , то для інших двох він має протилежний знак і не такий суттєвий, що зумовлює ситуацію, коли для компонентів  $D_2$  та  $D_1$  коефіцієнти кореляції NAO —  $K_{E, \text{пнш}}$  та NAO —  $K_{E, \text{тр}}$  мають протилежні знаки. Отже, для подальшого розглядання візьмемо деталізовані компоненти  $D_4$  та  $D_3$ . Розглядання сигналів з довжиною періоду більше 20 років (як, наприклад, у  $D_2$  та  $D_1$ ) у нашому випадку немає сенсу через те, що довжина усього періоду, що розглядається, становить трохи більше 42 років.

На рис. 1 показаний деталізований компонент  $D_4$ , який інтересний тим, що період коливань цього сигналу становить від 4 до 8 років, а саме на такі тривалості припадає максимум аномалій атмосферного тиску, як показано Е.Д. да Костой та Е.К. де Верд'є [14], хоч треба відзначити що у своїх розрахунках вони використовували інший математичний апарат. Також, рисунок 1 підтверджує особливу перевагу вейвлет-розкладання, а саме його гнучкість у припасуванні до локальних змін періоду NAO, який може змінюватися у досить широких межах. Через те, що вейвлети містять чіткі мінімуми та максимуми, вони враховують реальні оцінки довжини циклу.

Перше, що показує рис. 1, є більша узгодженість між індексами NAO та запасами  $K_E$  з липня 1960 до січня 1990 рр. Коефіцієнт кореляції для цього періоду становить 0,76 для NAO —  $K_{E, \text{пнш}}$  та 0,70 для NAO —  $K_{E, \text{тр}}$  (для періоду 01/90 — 02/03 ці коефіцієнти є, відповідно, -0,05 та 0,58). Також можна казати про те, що при різкіших змінах індексів NAO відбуваються такі ж істотні зміни у запасах вихрової кінетичної енергії. Взагалі, те що зміни фаз Північноатлантичної осциляції та запасів  $K_E$  у тропіках відбуваються синхронно з періодом більше за 4 роки, є невеликим сюрпризом. Але тут можна згадати, що періодичність Ель Ніньо, як вже відзначалося вище, становить від 3 до 7 років, а коефіцієнт кореляції між індексами Північноатлантичної та Південної (що визначає інтенсивність Ель Ніньо) осциляцій для періоду з середини 60-х до середини 80-х років минулого сторіччя становить 0,60, а після 1985 року до сьогодні — -0,51. Таким чином, зв'язок між змінами індексів NAO та запасів  $K_E$  у помірних та тропічних широтах залежить від того, у фазі чи протифазі з Північноатлантичною є Південна осциляція. У першому випадку цей зв'язок є більш істотним.

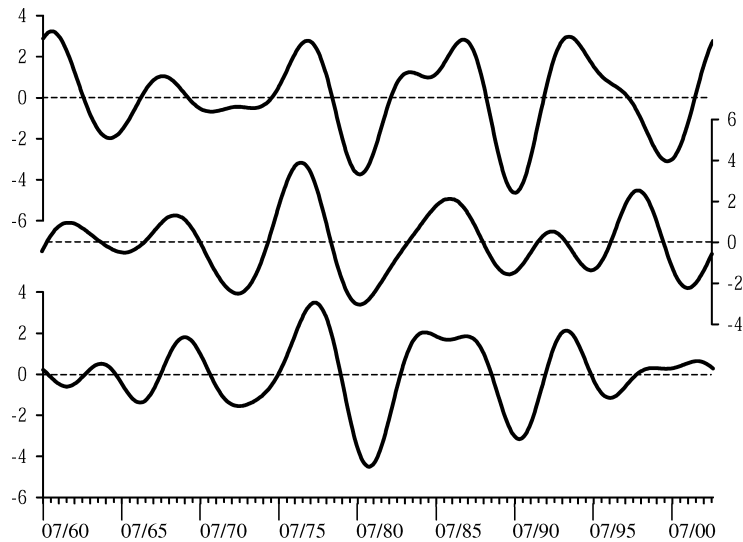


Рис. 1. Деталізований компонент  $D_4$  для індексів NAO (верхня панель) і запасів KE у помірних широтах (середня панель) та у тропіках (нижня панель)

Тепер розглянемо деталізований компонент  $D_3$  (рис. 2). По-перше, він характеризує доміантність протягом довгого періоду часу позитивної, чи негативної, фази NAO. Добре відомо [15], що з середини 1950-х років по 1979 рік превалювала негативна фаза NAO. Взимку 1979-80 року відбувся перехід до позитивної фази, яка тривала до зими 1994-95 року. На протязі цього 15-тирічного інтервалу істотна негативна фаза спостерігалася лише у 1984-86 роках. Але з листопада 1995 року знову відбувся перехід до негативної фази. Всі ці коливання добре відображуються на рис. 2 (верхня панель). По-друге, у період тривалої негативної фази NAO до січня 1980 року коефіцієнти кореляції NAO —  $K_{E, \text{шир}}$  та NAO —  $K_{E, \text{тр}}$  становлять 0,09 та 0,37, відповідно, тоді як для другої половини періоду, що розглядається, ці коефіцієнти є 0,76 та 0,68. Тобто, коли фаза NAO має тенденцію до різкіших змін, її вплив на запаси вихрової кінетичної енергії як у помірних широтах, так й у тропіках, є набагато істотним. Це можна пояснити тим, що у періоди, коли NAO змінює свою фазу, перебудова баричного поля охоплює більшу частину позатропічних широт, а також і тропіків, як це видно з рис. 2, Північної півкулі, причому виникає значна меридіанальність повітряних потоків і, таким чином, збільшуються запаси  $K_E$ . Відзначимо, що період  $D_3$  для індексів NAO становить від 9 до 13 років, що в середньому дає приблизно 11-річний цикл сонячних плям. Але залежності між цими двома сигналами не було виявлено.

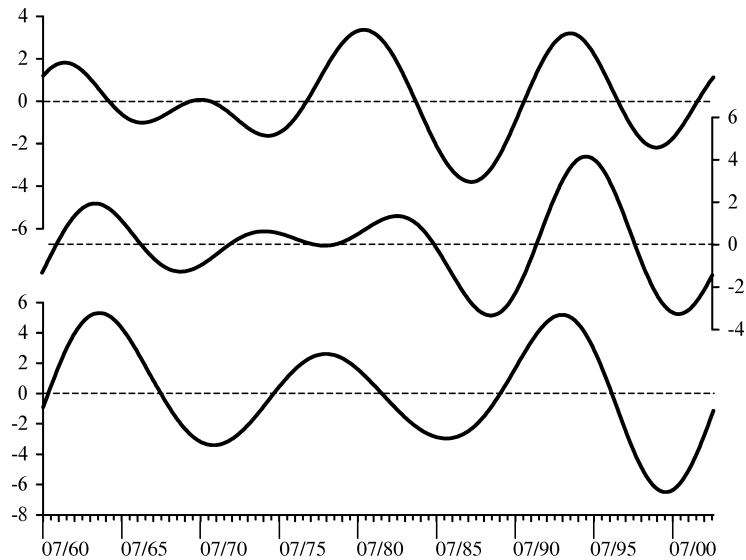


Рис. 2. Деталізований компонент D3 для індексів NAO (верхня панель) і запасів KE у помірних широтах (середня панель) та у тропіках (нижня панель)

#### 4. Висновки

Перевагою застосування запропонованого в цьому дослідженні розкладення є те, що з його допомогою стає можливим ізолювання коротко- та довготермінових компонентів, причому підтримується достатня гнучкість для змін довжини циклу. Використовуючи вейвлет-розкладення, що ґрунтується на стаціонарному вейвлет-перетворенні, були виявлені деякі первинні періодичності для індексів Північноатлантичної осциляції, такі як 4-8-річна, на яку припадає максимум аномалій атмосферного тиску, а також природна зміна домінуючих фаз NAO. Ці виявлені коливання були проаналізовані разом із запасами вихрової кінетичної енергії у помірних та тропічних широтах. Основні результати такого спільного аналізу можна стисло викласти таким чином.

1) Коли фази Північноатлантичної та Південної осциляції змінюються синхронно з періодом 4-8 років, зв'язок між змінами індексів NAO та запасами  $K_E$  є істотним; коли ж зазначені осциляції перебувають у протифазі — коефіцієнт кореляції NAO —  $K_{E,пт}$  стає несуттєвим, а коефіцієнт кореляції NAO —  $K_{E,тр}$  неістотно зменшується. Тобто, можна казати про вплив на запаси вихрової кінетичної енергії не тільки Північноатлантичної, але й Південної осциляції.

2) Коли фаза NAO має тенденцію до різкіших змін, її вплив на запаси вихрової кінетичної енергії як у помірних широтах, так й у тропіках, є набагато істотним, ніж для випадку тривалого домінування однієї фази.

Отже, можна відзначити, що використаний метод досить добре відображає фізичні закономірності динаміки великомасштабних атмосферних процесів, тепло-, масо-, енергообміну і дозволяє детально з'ясувати їх характеристики. Тому його застосування у фізиці атмосфери, описі процесів тепло-масо-обміну є цілком виправданим, й на наш погляд, досить ефективним.

#### Література

1. Morlet J., Arens G., Fourgeau E., Giard D. Wave propagation and sampling theory // *Geophysics*.—1982—Vol.47.—P.203–236.
2. Goupillaud P., Grossman A., Morlet J. Cycle-octave and related transforms in seismic signal analysis // *Geoexploration*. — 1984. — Vol. 23. — P. 85-102.
3. Астафьева Н.М. Вейвлет-анализ: основы теории и примеры применения // *Успехи физических наук*. — 1996. — Т. 166. — С. 1145-1170.
4. Torrence C., Webster P.J. Interdecadal changes in the ENSO-monsoon system // *J. Climate* — 1999.—Vol. 12.—P. 2679-2690.
5. Glushkov A., Khokhlov V. Teleconnection, Hadley cells, energy and momentum balance, in: Zuev V D (ed.) // *Physics of atmosphere and ocean*.—2001.—P.133-138.
6. Barnston A.G., Livezey R.E. Classification, seasonality and persistence of low-frequency atmospheric circulation patterns // *Mon. Wea. Rev.* — 1987. — Vol. 115. — P. 1083-1126.
7. Добеши И. Десять лекций по вейвлетам: Пер. с англ. — Ижевск: НИЦ “Регулярная и хаотическая динамика”, 2001. — 464 с.
8. Goswami J.C., Chan A.K. Fundamentals of wavelets: theory, algorithms, and applications. — Wiley-Interscience, 1999. — 306 p.
9. Fligge M., Solanki S., Beer J. Determination of solar cycle length variations using the continuous wavelet transform // *Astronomy and Astrophysics*. — 1999. — Vol. 346. — P. 313-321.
10. Nason G., von Sachs R., Kroisand G. Wavelet processes and adaptive estimation of the evolutionary wavelet spectrum // *J. Royal Stat. Soc.* — 2000. — Vol. B-62. — P. 271-292.
11. Kistler R., Kalnay E., Collins W., Saha S., White G., Woollen J., Chelliah M., Ebisuzaki W., Kanamitsu M., Kousky V., van den Dool H., Jenne R., Fiorino M. The NCEP-NCAR 50-year reanalysis: monthly means CD-ROM and documentation // *Bull. Amer. Meteor. Soc.* — 2001. — Vol. 82. — P. 247-267.
12. Глушков А.В., Хохлов В.М. Атмосферный влаго-тепло-перенос, телеконнекция и баланс энергии, углового момента // *Физика аэродисперсных систем*. — 2003. — Вып. 39. — С. 34-41.

13. Haigh J.D. Modelling the impact of solar variability on climate // J. Atmos. Solar Terr. Phys.—1999.—Vol.61.—P.63-72.
14. da Costa E., de Verdiere A. The 7.7-year North Atlantic Oscillation // Q.J.R. Meteo. Soc.—2002.—Vol.128.—P.797-817.
15. Hurrell J.W. Decadal trends in the North Atlantic Oscillation: Regional temperatures and precipitation // Science. — 1995. — Vol. 269. — P. 676-679.

*А. В. Глушков, В. Н. Хохлов, И. А. Цепенко*

**Применение вейвлет-разложения для анализа запасов вихревой кинетической энергии, процессов тепло-массо-энерго-переноса в атмосфере**

**АННОТАЦИЯ**

Стационарное вейвлет-разложение применяется для анализа временных флуктуаций индексов Североатлантической осцилляции (NAO), ее связи с запасами вихревой кинетической энергии, процессами тепло-массо-энерго-переноса в атмосферной среде (в умеренных и тропических широтах). Преимуществом такого метода является возможность изолирования коротко- и долгосрочных компонентов. При анализе были выявлены первичные периодичности для индексов Североатлантической осцилляции, такие как 4-8-летняя и природная смена доминирующих фаз NAO. Показано, что когда фазы Североатлантической и Южной осцилляций изменяются синхронно с периодом 4-8 лет, связь между изменениями индексов NAO и запасов  $K_E$  наиболее существенна. Также, когда фаза NAO имеет тенденция к резким изменениям, ее влияние на запасы вихревой кинетической энергии как в умеренных широтах, так и в тропиках, процессы массо-, тепло-, энерго-переноса намного существеннее, чем в случае продолжительного доминирования одной фазы.



*Glushkov A. V., Khokhlov V. N., Tsenenko I. A.*

**Using wavelet-decomposition for analysis of content of the eddy kinetic energy, heat-, mass,-energy transfer processes in the atmosphere**

**ANNOTATION**

The stationary wavelet-decomposition is employed for analysis of the temporal variations of the North Atlantic Oscillation (NAO) indices and its connection with the content of eddy kinetic energy ( $K_E$ ) in moderate and tropical latitudes. The advantage of this method is to isolate short- and long-term components. Analysis reveals basic periodicities for the North Atlantic Oscillation indices such as the 4-8-year and natural change of the NAO dominant phase. It is shown when the phases of the North Atlantic and Southern Oscillations vary synchronously with the 4-8-year period the connection between the fluctuations of the NAO indices and  $K_E$  content is most considerable. When the NAO phase have a tendency of sharp variations, its influence on the eddy kinetic energy content for both mid-latitudes and tropics is much more essential than for the long-term domination of single phase.

*А. Г. Гирин**Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

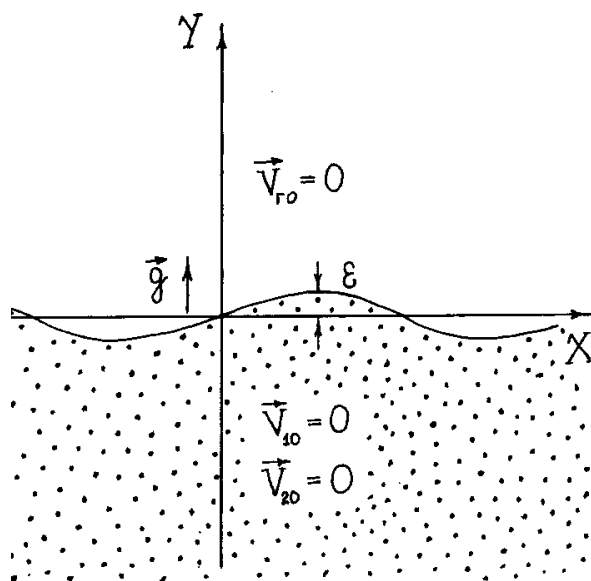
### **О гидродинамической неустойчивости ускоряющейся поверхности раздела гомогенной и двухфазной сред**

Рассмотрена задача о гидродинамической неустойчивости плоской поверхности раздела двух сред, движущихся с ускорением  $\vec{g}$ , в случае, когда одной из них является однородная идеальная несжимаемая жидкость, а другой — двухфазная монодисперсная аэрозоль. Определено, что используемая система уравнений, описывающих движение двухфазной смеси, имеет три типа возмущений. Методом малых возмущений найдено существование неустойчивого корня, связанного с действием массовой силы (при  $g \rightarrow 0$  он исчезает) в двухфазной среде (при исчезновении дисперсной фазы он также исчезает), а естественным стабилизирующим механизмом для него является действие межфазного трения, так что при увеличении вязкости несущей фазы,  $\mu_1 \rightarrow \infty$ , он также исчезает. При увеличении вязкости, либо уменьшении размера частичек, либо уменьшении волнового числа возмущения, либо увеличении ускорения доминирующим становится действие “классического” механизма неустойчивости Рэлея — Тейлора.

При движении двухфазной дисперсной смеси иногда возникает проблема, связанная с характером её взаимодействия с внешней гомогенной средой. Вблизи поверхности раздела возникают условия для развития гидродинамической неустойчивости обоих типов (Кельвина — Гельмгольца и Рэлея — Тейлора). Механизм неустойчивости, например, может оказывать влияние на дальнейшее поведение сорванных вторичных капелек, образующих аэрозоль в аэродинамическом следе первичной капли аэрозоля [1], осуществляя механическое перемешивание компонент и ускоряя тем самым формирование гомогенной горючей смеси за фронтом детонационной волны в аэрозоле. Влияние массы частичек на устойчивость поверхности раздела может быть учтено простым увеличением плотности дисперсной среды, а вот для определения влияния других внутренних её свойств (относительного движения, межфазного взаимодействия) моделей механики гомогенной среды недостаточно и требуется привлечение двухскоростной модели. Устойчивость решений уравнений таких моделей широко исследуется в последнее время при изучении движения жидкости по трубопроводам [2], в том числе применительно к возникновению снарядных течений при транспортировке углеводородного сырья [3], при изучении двухфазных течений в слоях смешения [4]. Неустойчивость внутреннего течения в двухфазной системе

может приводить к динамической коагуляции аэрозоля [5]. Проявление неустойчивости типа Релея — Тейлора при фильтрационном вытеснении одной жидкостью другой ведёт к образованию “пальцев” и нежелательному смешению вытесняющей и вытесняемой фаз [6]. Такого рода практические задачи вызывают необходимость исследовать прежде всего общие свойства исходных уравнений динамики двухфазных сред. В настоящей работе исследование устойчивости ускоряющейся границы раздела двухфазной и однородной сред по отношению к малым возмущениям выполнено в обычной гидродинамической постановке.

Рассмотрим механическую систему, состоящую из однородной несжимаемой жидкости плотности  $\rho_1$ , занимающей полупространство  $y > 0$ , и из двухфазной монодисперсной аэрозвеси частичек радиуса  $a$  в несжимаемой жидкости, занимающей полупространство  $y < 0$  (рис.). Пусть вся система имеет ускорение  $\vec{g}$  в направлении, перпендикулярном поверхности раздела  $y = 0$ . В системе координат, связанной с поверхностью раздела, обе среды покоятся, и на них действует сила инерции  $-\rho \vec{g}$ .



Пусть в некоторый начальный момент времени  $t = 0$  в системе возникли малые возмущения, так что состояния обеих сред при  $t > 0$  становятся неоднородными и нестационарными. Движение жидкости при  $t > 0$  описывается решениями системы уравнений гидродинамики однородной среды [7],

а движение двухфазной смеси — решениями уравнений континуальной модели движения дисперсной двухскоростной среды с общим давлением фаз при пренебрежении процессами тепло- и массообмена между фазами. С учётом эффекта присоединённых масс, а также в предположении, что объёмная концентрация дисперсной фазы  $\alpha_2$  и отношение истинных плотностей фаз  $\rho_1^0, \rho_2^0$  малы:  $\alpha_2^2 \ll 1, \rho_1^0 / \rho_2^0 \ll 1$ , эта система имеет вид [8, с.77–90]:

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial \rho_1}{\partial t} + V_{1x} \frac{\partial \rho_1}{\partial x} + V_{1y} \frac{\partial \rho_1}{\partial y} + \rho_1 \frac{\partial V_{1x}}{\partial x} + \rho_1 \frac{\partial V_{1y}}{\partial y} = 0 ; \\
& \frac{\partial \rho_2}{\partial t} + V_{2x} \frac{\partial \rho_2}{\partial x} + V_{2y} \frac{\partial \rho_2}{\partial y} + \rho_2 \frac{\partial V_{2x}}{\partial x} + \rho_2 \frac{\partial V_{2y}}{\partial y} = 0 ; \\
& \rho_1 \left( \frac{\partial V_{1x}}{\partial t} + V_{1x} \frac{\partial V_{1x}}{\partial x} + V_{1y} \frac{\partial V_{1x}}{\partial y} \right) = - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) \frac{\partial p}{\partial x} - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) n f_{\mu x} + \\
& \quad + \left( 1 - \frac{1}{2} \alpha_2 \right) \rho_1 g_x + \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) \frac{\rho_1^0}{2 \rho_2^0} \rho_2 g_x ; \\
& \rho_1 \left( \frac{\partial V_{1y}}{\partial t} + V_{1x} \frac{\partial V_{1y}}{\partial x} + V_{1y} \frac{\partial V_{1y}}{\partial y} \right) = - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) \frac{\partial p}{\partial y} - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) n f_{\mu y} + \\
& \quad + \left( 1 - \frac{1}{2} \alpha_2 \right) \rho_1 g_y + \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) \frac{\rho_1^0}{2 \rho_2^0} \rho_2 g_y ; \\
& \rho_2 \left( \frac{\partial V_{2x}}{\partial t} + V_{2x} \frac{\partial V_{2x}}{\partial x} + V_{2y} \frac{\partial V_{2x}}{\partial y} \right) = - \frac{3}{2} \alpha_2 \left( 1 - \frac{\alpha_2}{2} \right) \frac{\partial p}{\partial x} + \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) n f_{\mu x} + \\
& \quad + \rho_2 g_x + \frac{\alpha_2}{2} \left( 1 - \frac{\alpha_2}{2} \right) \rho_1 g_x ; \\
& \rho_2 \left( \frac{\partial V_{2y}}{\partial t} + V_{2x} \frac{\partial V_{2y}}{\partial x} + V_{2y} \frac{\partial V_{2y}}{\partial y} \right) = - \frac{3}{2} \alpha_2 \left( 1 - \frac{\alpha_2}{2} \right) \frac{\partial p}{\partial y} + \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) n f_{\mu y} + \\
& \quad + \rho_2 g_y + \frac{\alpha_2}{2} \left( 1 - \frac{\alpha_2}{2} \right) \rho_1 g_y ;
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \rho_1 \left( \frac{\partial e_1}{\partial t} + V_{1x} \frac{\partial e_1}{\partial x} + V_{1y} \frac{\partial e_1}{\partial y} \right) - \frac{\alpha_1 p}{\rho_1^0} \frac{d \rho_1^0}{d t} = \\ & = \left( \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_2 \right) n \bar{f}_\mu + \frac{\alpha_2}{2} (\rho_1 \bar{g} - \nabla p) \right) \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2) ; \\ & \rho_2 \left( \frac{\partial e_2}{\partial t} + V_{2x} \frac{\partial e_2}{\partial x} + V_{2y} \frac{\partial e_2}{\partial y} \right) = 0 ; \\ & \frac{\partial n}{\partial t} + V_{2x} \frac{\partial n}{\partial x} + V_{2y} \frac{\partial n}{\partial y} = 0 . \end{aligned}$$

Здесь  $\rho$ ,  $V_x$ ,  $V_y$ ,  $p$ ,  $e$ ,  $\alpha$ ,  $n$ ,  $\bar{f}_\mu$ ,  $\bar{g}$  — соответственно, сред-необъёмная плотность, компоненты вектора скорости, общее давление, внут-ренняя энергия, объёмная концентрация, количество частичек в единице объёма, сила вязкого трения для частички, однородная массовая сила. Ниж-ний индекс " 1 " относится к несущей фазе, " 2 " — к дисперсной фазе частичек, верхний индекс. Первые два уравнения выражают закон сохране-ния массы для первой и второй фаз, соответственно, третье — шестое — закон сохранения импульса, седьмое — закон сохранения энергии несущей фазы, восьмое — условие отсутствия притока тепла к частицам, девятое — условие сохранения плотности количества неразрушающихся частичек дис-персной фазы. Девятое уравнение эквивалентно второму в силу соотноше-ния  $\rho_2 = 4/3 \pi a^3 \rho_2^0 n$  и предположения о несжимаемости материа-ла частичек системы. При  $\alpha_2 \rightarrow 0$  ( $\rho_2 \rightarrow 0$ ) эти уравнения переходят в уравнения гидродинамики для гомогенной среды.

Нетрудно убедиться в том, что уравнения движения допускают простей-шее решение в виде состояния покоя обеих сред  $\vec{V}_{10} = \vec{V}_{20} = 0$  с постоянным значением градиента давления, уравновешиваемого силой инерции:  $p_0 = -(\rho_{10} + \rho_{20})g y + const$ , нижний индекс " 0 " относится к началь-ным невозмущённым значениям параметров.

Предполагая амплитуды возмущений параметров, описывающих состо-яния сред, малыми, произведём линеаризацию уравнений движения около начального состояния покоя. Положим, что сила взаимодействия дисперс-ных частиц с несущей фазой определена формулой Стокса:  $\bar{f}_\mu = 6\pi\mu_1 a (\vec{V}_1 - \vec{V}_2)$ . В результате получим:

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial \rho'_1}{\partial t} + \rho_{10} \frac{\partial V'_{1x}}{\partial x} + \rho_{10} \frac{\partial V'_{1y}}{\partial y} = 0 ; \\
& \frac{\partial \rho'_2}{\partial t} + \rho_{20} \frac{\partial V'_{2x}}{\partial x} + \rho_{20} \frac{\partial V'_{2y}}{\partial y} = 0 ; \\
& \rho_{10} \frac{\partial V'_{1x}}{\partial t} = - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) \frac{\partial p'}{\partial x} - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) \tilde{f}_0 (V'_{1x} - V'_{2x}) ; \\
& \rho_{10} \frac{\partial V'_{1y}}{\partial t} = - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) \frac{\partial p'}{\partial y} - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) \tilde{f}_0 (V'_{1y} - V'_{2y}) + \\
& \quad + \left( \frac{1}{2} - \frac{3}{4} \alpha_{20} + \frac{3}{4} \alpha_{10} \frac{\rho_{20}}{\rho_{10}} \right) \rho'_1 g ; \\
& \rho_{20} \frac{\partial V'_{2x}}{\partial t} = - \frac{3}{2} \alpha_{20} \left( 1 - \frac{\alpha_{20}}{2} \right) \frac{\partial p'}{\partial x} + \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) \tilde{f}_0 (V'_{1x} - V'_{2x}) ; \\
& \rho_{20} \frac{\partial V'_{2y}}{\partial t} = - \frac{3}{2} \alpha_{20} \left( 1 - \frac{\alpha_{20}}{2} \right) \frac{\partial p'}{\partial y} + \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) \tilde{f}_0 (V'_{1y} - V'_{2y}) + \\
& \quad + \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) \frac{\rho_{20}}{\rho_{10}} \rho'_1 g ; \\
& \rho_{10} T_{10} \frac{\partial S'}{\partial t} = \frac{\alpha_{20}}{2} \rho_{20} g (V'_{1y} - V'_{2y}) .
\end{aligned}$$

Здесь  $\tilde{f}_0 \equiv 9\mu_1\alpha_{20}/2a^2$ ,  $S$  — энтропия,  $T$  — температура, штрих вверх обозначает возмущение соответствующего параметра. Уравнение производства энтропии получается из уравнения притока тепла газовой фазы с использованием соотношения Гиббса  $T_1 \frac{d_1 S}{d t} = \frac{d_1 e}{d t} + p \frac{d_1}{d t} \left( \frac{1}{\rho_1^0} \right)$  и соотношения совместного деформирования фаз  $\frac{\alpha_1}{\rho_1^0} \frac{d \rho_1^0}{d t} = -\nabla \cdot (\alpha_1 \vec{V}_1 + \alpha_2 \vec{V}_2)$ .

Учитывая, что  $\alpha_1 + \alpha_2 = 1$ , (т.е.  $\rho_1 / \rho_1^0 + \rho_2 / \rho_2^0 = 1$ ), а вещества фаз несжимаемы:  $\rho_1^0 = const$ ,  $\rho_2^0 = const$ , исключим из этой системы  $\rho'_2$ . Разыскивая решение линеаризованной системы уравнений для возмущений в виде

$$\rho'_1 = \rho_{10} \sum_k R_k \Psi_k ; \quad V'_{1x} = V_* \sum_k A_k \Psi_k ; \quad V'_{1y} = V_* \sum_k B_k \Psi_k ;$$

$$V'_{2x} = V_* \sum_k D_k \Psi_k; V'_{2y} = V_* \sum_k G_k \Psi_k; p' = \rho_{10} V_*^2 \sum_k P_k \Psi_k; \quad (1)$$

$$S' = c_p \sum_k C_k \Psi_k; \Psi_k = \exp(\gamma_k h y) \Psi_0; \Psi_0 = \exp(ihx - i\omega t),$$

где  $k$  — индекс типа возмущения,  $h$  — волновое число,  $\omega$  — комплексная частота возмущения,  $V_*$  — некоторое характерное значение скорости, получим систему *линейных однородных уравнений* относительно амплитудных констант  $R, A, B, D, G, P, C$ . Условие существования нетривиального решения этой системы распадается на два.

При

$$\gamma \alpha_{20} \Gamma (1 - 3\alpha_{20}) \neq Z (\alpha_{10} \Omega_2 + \alpha_{20} \Omega_1) \frac{\rho_1^0}{\rho_2^0}, \quad (2)$$

$$\text{где } \Omega_1 = \frac{3}{2} \alpha_{20} \left( 1 - \frac{\alpha_{20}}{2} \right) Z - \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) F,$$

$\Omega_2 = \left( 1 - \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) \left( \frac{\rho_{20}}{\rho_{10}} Z - F \right)$ ,  $Z \equiv \frac{i\omega}{V_* h}$ ,  $\Gamma \equiv \frac{g}{V_*^2 h}$ ,  $F \equiv \frac{\tilde{f}_0}{\rho_{10} V_* h}$ , приравнявая определитель системы нулю, получим характеристическое уравнение в виде:

$$\gamma_{1,2}^2 = 1.$$

Для этих значений  $\gamma$  имеем:

$$iA_{1,2} + \gamma_{1,2} B_{1,2} = 0, P_{1,2} = \gamma_{1,2} \left( \left( 1 + \frac{3}{2} \alpha_{20} \right) Z - \frac{\Omega_2 - \Omega_1}{\Omega_2} F \right) B_{1,2},$$

$$iD_{1,2} + \gamma_{1,2} G_{1,2} = 0, \Omega_2 G_{1,2} = \Omega_1 B_{1,2}, R_{1,2} = 0.$$

Вычисляя вихрь векторов скоростей фаз, получим

$$\text{rot } \vec{V}'_1 = 0, \text{rot } \vec{V}'_2 = 0$$

Таким образом, *возмущения, соответствующие  $k = 1, 2$  являются акустическими, для которых среднеобъёмная плотность фаз не изменяется, а возмущённое течение остаётся безвихревым.* Можно утверждать, что характер этих возмущений в двухфазной среде сохраняется таким же, как и в гомогенной среде, в частности, при  $\alpha_2 \rightarrow 0$  они переходят в акустические возмущения для несжимаемой жидкости.

При

$$\gamma_3 = Z \frac{(\alpha_{10}\Omega_2 + \alpha_{20}\Omega_1)}{\alpha_{20}\Gamma(1-3\alpha_{20})} \frac{\rho_1^0}{\rho_2^0}$$

( $k = 3$ ) возмущаются все параметры, а  $\text{rot } \vec{V}'_{1,2} \neq 0$ .

Таким образом, *возмущённое течение в двухфазной среде состоит из трёх типов возмущений, а в гомогенной — из двух.*

Сформулируем краевую задачу для возмущений. В области **I** ( $y < 0$ ), занятой двухфазной смесью, реализация условия ограниченности возмущений на бесконечности приводит к требованию  $\text{Re}(\gamma) > 0$ , что оставляет две ветви возмущений:  $\gamma_1 = 1$  и  $\gamma_3$ . Возмущения гидродинамических параметров имеют вид:

$$\begin{aligned} V'_{1x} &= V_* (A_{11} \exp(hy) + A_{31} \exp(\gamma_3 hy)) \Psi_0; \\ V'_{1y} &= V_* (B_{11} \exp(hy) + B_{31} \exp(\gamma_3 hy)) \Psi_0; \\ V'_{2x} &= V_* (D_{11} \exp(hy) + D_{31} \exp(\gamma_3 hy)) \Psi_0; \\ V'_{2y} &= V_* (G_{11} \exp(hy) + G_{31} \exp(\gamma_3 hy)) \Psi_0; \\ P' &= \rho_{10} V_*^2 \Psi_0 (P_{11} \exp(hy) + P_{31} \exp(\gamma_3 hy)); \\ \rho'_1 &= \rho_{10} \Psi_0 (R_{11} \exp(hy) + R_{31} \exp(\gamma_3 hy)); \end{aligned} \quad (3)$$

причём все коэффициенты  $A_{11}$ ,  $D_{11}$ ,  $G_{11}$ ,  $P_{11}$  выражаются через  $B_{11}$ , а  $A_{31}$ ,  $B_{31}$ ,  $D_{31}$ ,  $P_{31}$ ,  $R_{31}$  удобно выразить через  $G_{31}$ .

В области **II** ( $y > 0$ ), занятой гомогенной средой, возмущения гидродинамических параметров запишутся так:

$$\begin{aligned} V'_{1x} &= V_* A_2 \Psi_0 \exp(-hy); \quad V'_{1y} = V_* B_2 \Psi_0 \exp(-hy); \\ p'_r &= \rho_{r0} V_*^2 P_2 \Psi_0 \exp(-hy), \end{aligned} \quad (4)$$

здесь также оставлено только то возмущение, которое ограничено на бесконечности. Возмущённые состояния сред сопрягаются на возмущённой поверхности раздела  $y = \varepsilon(x, t)$  посредством граничных условий, которые заключаются в непроницаемости этой поверхности для сред, а также в равенстве нормальных составляющих напряжений:



$$V'_{1y} = \frac{\partial \varepsilon}{\partial t}; V'_{2y} = \frac{\partial \varepsilon}{\partial t}; V'_r = \frac{\partial \varepsilon}{\partial t};$$

$$p' - p'_r + \sigma \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial x^2} + (\rho_{r0} - \rho_0) g \varepsilon = 0, \quad (5)$$

где  $\rho_0 = \rho_{10} + \rho_{20}$ ,  $\sigma$  — коэффициент поверхностного натяжения. Рассматривая элементарное возмущение поверхности раздела в виде  $\varepsilon = E_0 \exp(ihx - i\omega t)$  и подставляя в граничные условия (5) выражения для возмущений параметров в обеих областях (3–4), получим систему четырёх линейных однородных уравнений относительно четырёх амплитудных констант  $B_{11}$ ,  $G_{31}$ ,  $B_2$ ,  $E_0$ , для существования нетривиального решения которой необходимо обращение в нуль определителя. Это приводит к характеристическому уравнению относительно безразмерной “частоты”  $Z$  вида:

$$\left[ \begin{array}{c} Z - \frac{\rho_1^0 F}{\rho_2^0 \alpha_{20}} \\ 1 - Z \frac{\rho_2^0 \alpha_{20}}{\left(1 - \frac{3}{2} \alpha_{20}\right) \Gamma} \end{array} \right] \left\{ Z^2 \left[ \begin{array}{c} Z - \left(1 - \frac{3}{2} \alpha_{20}\right) \left(1 + \frac{\rho_{10}}{\rho_{20}}\right) F \\ \alpha_{10} \left(1 - \frac{3}{2} \alpha_{20}\right) \Gamma \end{array} \right] - \right.$$

$$\left. - \left(1 - \frac{3}{2} \alpha_{20}\right) \left( \Sigma - \frac{\rho_{r0}}{\rho_{10}} Z^2 \right) \left[ \begin{array}{c} \alpha_{10} Z - \frac{\rho_{10}}{\rho_{20}} F \\ \alpha_{10} \left(1 - \frac{3}{2} \alpha_{20}\right) \Gamma \end{array} \right] \right\} = 0,$$

где  $\Sigma \equiv \frac{\rho_{r0} - \rho_0}{\rho_{10}}$ ,  $\Gamma = \frac{\sigma h}{\rho_{10} V_*^2}$ . Выражения в квадратных скобках, стоящих внутри фигурных, при малых  $\alpha_{20}$  близки между собой, а при  $\alpha_{20} = 0$  равны. Поэтому равенство нулю фигурной скобки определяет “обычный” корень классической неустойчивости Релея — Тейлора:

$$\frac{\rho_{r0} + \rho_{10}}{\rho_{10}} Z_{\text{Тол}}^2 = \Sigma. \quad (6)$$

В соответствии с видом возмущений (1) неустойчивые возмущения определены такими значениями  $Z$ , для которых  $\text{Re}(Z) > 0$ .

Приравняв нулю первую квадратную скобку, имеем неустойчивый

корень, присущий только поведению ускоряющейся поверхности раздела двухфазной и гомогенной сред:

$$Z_{\text{гер}} = \frac{\rho_1^0}{\rho_2^0} \frac{F}{2 \alpha_{20}} - \sqrt{\left(\frac{\rho_1^0}{\rho_2^0}\right)^2 \frac{F^2}{4 \alpha_{20}^2} + \left(1 - \frac{3}{2} \alpha_{20}\right) \Gamma} \quad (7)$$

который исчезает при исчезновении дисперсной фазы

( $Z \rightarrow 0$  при  $\alpha_{20} \rightarrow 0$ ). Отсутствие мнимой части корня определяет *аперриодический характер неустойчивости*, как и для классического корня (6). Поверхностное натяжение не влияет на развитие неустойчивых возмущений по этому механизму. Этот корень вызван действием массовой силы, т.к. при  $g \rightarrow 0$  он исчезает, а естественным стабилизирующим механизмом для него является действие межфазного трения, так что при увеличении вязкости несущей фазы,  $\mu_1 \rightarrow \infty$ , он также исчезает. Если рассмотреть случай, когда двухфазная смесь находится в верхней полуплоскости, то, согласно (2) и (7) гетерогенный механизм неустойчивости (7) существует, если ускорение  $\vec{g}$  направлено в сторону гомогенной среды.

Отношение инкрементов нарастания амплитуды для двух упомянутых корней  $\Pi \equiv Z_{\text{гер}} / Z_{\text{гоц}}$  (при отсутствии поверхностного натяжения) определено безразмерным критерием  $K$ , который включает в себя ускорение, кинематический коэффициент вязкости несущей фазы, размер частичек, а также безразмерным волновым числом и отношением истинных плотностей фаз:

$$\Pi = \sqrt{\frac{\rho_{\Gamma 0}}{\rho_{\Gamma 0} - \rho_0}} \left[ \sqrt{K^2 + \left(1 - \frac{3}{2} \alpha_{20}\right)} - K \right], \quad K \equiv \frac{9\mu_1}{4\rho_{10} a^2 \sqrt{gh}} \frac{\rho_1^0}{\rho_2^0}.$$

При увеличении вязкости, либо уменьшении размера частичек, либо увеличении длины волны возмущения, либо уменьшении ускорения доминирующим становится действие "классического" механизма неустойчивости. При изменении параметров в обратном направлении отношение инкрементов двух корней стремится к конечному пределу

$$\sqrt{\left(1 - \frac{3}{2} \alpha_{20}\right) \frac{\rho_{\Gamma 0}}{\rho_{\Gamma 0} - \rho_0}}.$$

Как следует из (7), для механизма неустойчивости, связанного с гетерогенностью среды, инкремент нарастания амплитуды для коротких волн неограниченно возрастает при  $h \rightarrow \infty$ . Естественно, что длины волн возмущений должны быть ограничены снизу такими значениями, при которых они

сравнимы с размером (радиусом  $a$ ) дисперсных частичек, когда становятся непригодными сами исходные уравнения движения континуальной модели двухфазной среды. Тогда для “самых быстрорастущих” возмущений, соответствующих этому механизму, можно принять такие значения волнового числа  $h$ , для которых  $ha \approx 0,1$ . Принимая для частичек аэрозоля значения  $a = 10^{-5} \mu$ , а для ускорения системы  $g = 9,8 \mu / \text{ре}^2$ , получим для самых быстрорастущих возмущений значение характерного времени роста их амплитуды в  $e$  раз:  $\tau \approx 10^{-2} \text{ре}$ . Если положить  $g = 10^5 \mu / \text{ре}^2$ , что приблизительно соответствует значению ускорения мельчайшей пелены вторичных капелек при детонации в аэрозолях, то получим  $\tau \approx 3 \cdot 10^{-5} \text{ре}$ , причём в этом случае значения инкрементов нарастания для обоих корней сопоставимы. Это значение сравнимо с величиной времени испарения таких капелек и перемешивания паров горючего с окислителем. Последнее может означать влияние механизма гидродинамической неустойчивости на процесс формирования гомогенной горючей смеси в двухфазной детонации.

#### Литература

1. Асланов С. К., Гирин А. Г. К построению теории детонации аэрозолей // Физика горения и взрыва. — 1988. — № 4. — С. 101–109.
2. Рудяк В.Я., Исаков Е.Б. Устойчивость течения Пуазейля двухфазной жидкости с неоднородным распределением частиц // ПМТФ. — 1996. — 37, № 1. — С.95–105.
3. Bernicot M., Deheuvels P. A unified model for slug flow generation // Rev. Inst. Fr. Petrole. — 1995. — 50, № 2. — P. 219–236.
4. Yang Y.-q, Chung J.N., Troutt T.R., Crowe C.T. The influence of particles on the spatial stability of two-phase mixing layers // Phys. Fluids. — 1990. — 2, № 10. — P. 1839–1845.
5. Котюсов А.Н., Немцов Б.Е. Неустойчивость равномерного распределения твёрдых частиц в потоке газа // Изв. ВУЗов. Радиофиз. — 1990. — 33, № 12. — С. 1320–1326.
6. Ентов В.М. О неустойчивом вытеснении в пористой среде // Сб. науч. тр. Моск. ин-та нефти и газа. — 1991. — № 228. — С. 74–84.
7. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Гидродинамика. — М.: Наука, 1986. — 736 с.
8. Нигматулин Р. И. Динамика многофазных сред. — М.: Наука, 1987. — Ч. 1. — 464 с.

*О. Г. Гурін*

**Про гідродинамічну нестійкість поверхні поділу гомогенного та двофазового середовищ, що прискорюється**

**АНОТАЦІЯ**

Розглянуто задачу про гідродинамічну нестійкість плоскої поверхні поділу двох середовищ, що рухаються з прискоренням  $\vec{g}$ , у випадку, коли одна з них є однородною ідеальною нестисливою рідиною, а інша — двофазовою монодисперсною аеросумішшю. Визначено, що використовувана система рівнянь, що описують рух двофазової суміші, має три типи збурень. Методом малих збурень знайдено існування нестійкого кореня характеристичного рівняння, який пов'язаний з дією масової сили (при  $g \rightarrow 0$  він зникає) у двофазовому середовищі (при зникненні дисперсної фази він також зникає), а природним стабілізуючим механізмом для нього є дія міжфазного тертя, тому при збільшенні в'язкості несучої фази,  $\mu_1 \rightarrow \infty$ , він також зникає. При збільшенні в'язкості, або зменшенні розміру частинок, або зменшенні хвильового числа збурення, або збільшенні прискорення домінуючою стає дія "класичного" механізму нестійкості Релея — Тейлора.

*Gurin A. G.*

**About hydrodynamic instability of accelerating surface of separation between homogenous and two-phase media**

**SUMMARY**

The problem of hydrodynamic instability of plane surface, which separates two media moving with acceleration  $\vec{g}$ , is considered in the case when one of those media is homogeneous ideal incompressible fluid while another is two-phase monodisperse aerosol. It is determined, that system of equations of motion for two-phase medium possesses three types of disturbances. It is found by the small perturbations method the existence of unstable root of characteristic equation, which is connected with the action of mass force (at  $g \rightarrow 0$  it vanishes) in two-phase medium (when disperse phase is disappeared it disappears too), and the action of interphase friction is the natural stabilizing mechanism for it, so, as viscosity of dispersive phase increases,  $\mu_1 \rightarrow \infty$ , it disappears too. As viscosity increases, or size of particles decreases, or wavenumber of disturbance decreases, or acceleration increases the action of "classic" mechanism of Rayleigh — Taylor instability becomes dominant.

**Р. О. Бобров<sup>1</sup>, А. В. Затовский<sup>1</sup>, А. В. Звелиндовский<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Одесский национальный университет им. И.И. Мечникова

<sup>2</sup>Лейденский университет, г. Лейден (Нидерланды)

## **Образование и устойчивость вихревого движения воздуха между непроницаемой и пористой поверхностями**

В работе рассмотрены вихревые движения воздушной среды между двумя дисками (поверхностями), один из которых вращается и через поры которого нагнетается флюид. Обнаружено существенно неоднородное распределение поля скорости при разных значениях вязкости. Проведен анализ устойчивости течения при очень малых значениях вязкости.

### **Введение**

На данный момент существует много предположений и трудов по описанию возникновения и поведению различных ураганов и вихрей в воздушной среде [1]. Но, к сожалению, полного и точного описания возникновения ураганов на сегодняшний день нет. В нашей работе рассматривается весьма простая модель. Пусть Земля — это не подвижная бесконечно большая плоская поверхность, а облака или облачные образования — это пористый диск, через который нагнетается воздух. Поставим вопрос. Будет ли воздушная среда между этими двумя поверхностями закручиваться в результате нагнетания? Если да, то мы получим простую модель для исследования. Сводя задачу к изучению уравнений гидродинамики сплошной среды, будем анализировать стационарное движение воздушной среды между неподвижной непроницаемой плоскостью и вращающимся (в конце вычислений устремим к нулю) пористым диском, через который производится вдув газа [2-5]. Задача содержит два безразмерных параметра: число Рейнольдса  $Re = Vd/\nu$  ( $d$  — расстояние между плоскостью и диском,  $V$  — скорость нагнетаемого воздуха через пористый диск) и степень закрутки  $k = \omega d / V$  ( $\omega$  — угловая скорость вращения диска).

### **Течение между пористым вращающимся диском и плоскостью**

Целесообразно вести цилиндрическую систему координат с осью  $OZ$  вдоль оси вращения диска, так чтобы начало координат было на пористом диске. Согласно Карману [6, 7] предположим, что компонента скорости  $V_z$  является функцией только от  $z$ . Из-за очевидной симметрии задачи ясно, что все три компоненты скорости не будут зависеть от угловой координаты.

Т.о. уравнения гидродинамики для вязкой среды (уравнения Навье-Стокса) примут вид:

$$V_r \frac{\partial V_r}{\partial r} + V_z \frac{\partial V_r}{\partial z} - \frac{V_\varphi^2}{r} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \left( \nabla^2 V_r - \frac{V_r}{r^2} \right), \quad (1)$$

$$V_r \frac{\partial V_\theta}{\partial r} + V_z \frac{\partial V_\theta}{\partial z} + \frac{V_r V_\theta}{r} = \nu \left( \nabla^2 V_\theta - \frac{V_\theta}{r^2} \right), \quad (2)$$

$$V_r \frac{\partial V_z}{\partial r} + V_z \frac{\partial V_z}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \nabla^2 V_z, \quad (3)$$

где  $\nabla^2 \equiv \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$ ,  $\nu$  — кинематическая вязкость.

Уравнение непрерывности для стационарного течения:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial r V_r}{\partial r} + \frac{\partial V_z}{\partial z} = 0. \quad (4)$$

Через пористую поверхность будем вдувать воздух со скоростью  $V$  и при этом вращать её с угловой скоростью  $\omega$ , считая, что касательные напряжения на границах отсутствуют. Таким образом, граничные условия имеют вид:

$$V_r = 0, V_\varphi = \omega r, V_z = V \text{ при } z = 0, \quad (5)$$

$$V_r = 0, V_\varphi = 0, V_z = 0 \text{ при } z = d. \quad (6)$$

Будем искать автомодельное решение, для которого

$$V_z = W(z). \quad (7)$$

Из уравнений гидродинамики и уравнения непрерывности (1)-(4) можно получить

$$V_\varphi = r g(z). \quad (8)$$

Перепишем уравнения (1) и (2) с учетом (7) и (8):

$$\nu W''' = W W'' - \frac{1}{2} W'^2 + 2g^2 - 2(\omega^2 + c^2), \quad (9)$$

$$\nu g'' = Wg' - W'g, \quad (10)$$

где  $c$  — произвольная константа интегрирования.

Обезразмерим уравнения (9), (10) и поднимем порядок уравнения (9), а к граничным условиям (5), (6) добавим еще два, характеризующие отсутствие касательных напряжений на границе. После небольших преобразований получим:

$$\tilde{W}''' = \text{Re}(\tilde{W}\tilde{W}'' + 4\tilde{g}\tilde{g}'), \quad (11)$$

$$\tilde{g}'' = \text{Re}(\tilde{W}\tilde{g}' - \tilde{W}'\tilde{g}), \quad (12)$$

$$\tilde{W}(0) = 1, \tilde{W}'(0) = 0, \tilde{g}(0) = \frac{\omega d}{V}, \tilde{W}(1) = 0, \tilde{W}'(1) = 0, \tilde{g}(1) = 0, \quad (13)$$

где  $(\tilde{z} = \frac{z}{d}, \tilde{r} = \frac{r}{d}, \tilde{W} = \frac{W}{V}, \tilde{g} = g \frac{d}{V}, \text{Re} = \frac{Vd}{\nu})$ .

Решение задачи (11)-(13) в аналитическом виде представляет собой большую трудность, поэтому рассмотрим предельный случай, когда  $\nu \rightarrow 0$ , что приводит к  $\text{Re} \rightarrow \infty$  (при фиксированных остальных параметрах задачи). Поделив систему уравнений (11), (12) на число Рейнольдса и, считая его большим, приравняем правое выражение нулю (при фиксированных других параметров). Полученная система уравнений имеет аналитическое решение

$$\tilde{W} = \frac{\text{Cos}(2kz) - \text{Cos}(2k)}{2\text{Sin}^2(k)}, \quad (14)$$

$$\tilde{g} = k\tilde{W}, \quad (15)$$

где  $k = \frac{\omega d}{V}$  — коэффициент закрутки, определяющий степень закручивания пористого диска.

Особый интерес представляет  $\varphi$  — составляющая скорости течения. Построим графическую зависимость  $V_\varphi / r$  при разных значениях коэффициента закрутки, в случае, когда нет вязкости, и когда вязкость конечна (численное решение задачи (11)-(13) при разных значениях числа Рейнольдса).

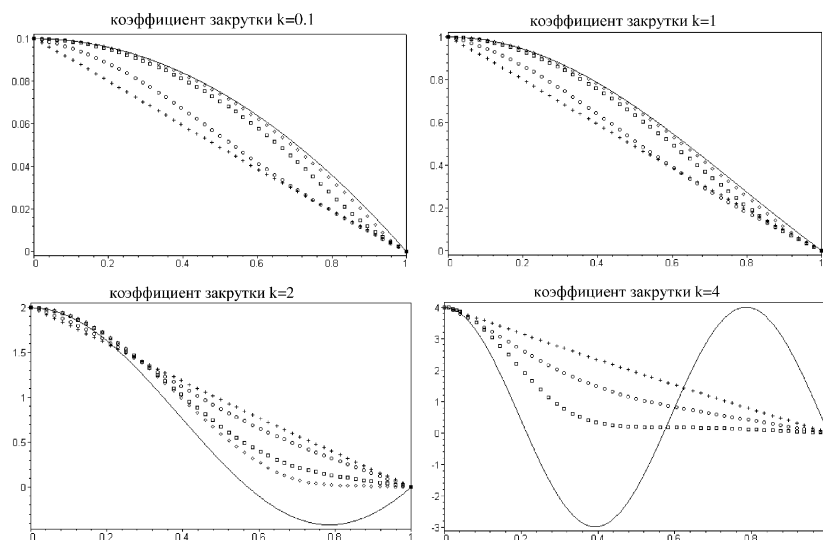


Рис.1. Зависимость  $\tilde{g}(\tilde{z})$  при разных значениях коэффициента закрутки и числа Рейнольдса от безразмерного расстояния между диском и поверхностью (сплошная линия соответствует идеальной жидкости, точки —  $Re=1000$ , квадраты —  $Re=100$ , кружки —  $Re=10$ , крестики —  $Re=1$ ).

Из Рис.1. видно, что чем меньше значения коэффициента закрутки, тем меньше значение  $\tilde{g}(\tilde{z})$ . Это означает, что при нагнетании воздуха через пористую поверхность воздушный поток не будет закручиваться между двумя неподвижными поверхностями, одна из которых пористая. Но понижение угловой скорости пористого диска не всегда означает понижения значения коэффициента закрутки. Если одновременно с угловой скоростью  $\omega$  устремить к нулю отношение  $V/d$ , то выражение  $k = \omega d / V$  может стремиться к константе. Кроме того, при  $k > \pi/2$  ( $\nu \rightarrow 0$ ) возникает переориентация вектора скорости на противоположное направление, так что появляется слоистая структура потока между двумя дисками. Для конечной вязкости такая картина не наблюдается даже при  $k \approx 4$ . Проанализируем устойчивость течения.

#### Устойчивость течения

Для анализа устойчивости поступим традиционным способом [7, 8]. Представим вектор скорости в виде суммы вектора скорости при стационарном течении и вектора скорости возмущения, аналогично для давления воздуха ( $\delta V \ll V_0$ ,  $\delta P \ll P_0$ .)

$$\vec{V} = \vec{V}_0 + \delta\vec{V}, \quad P = P_0 + \delta P. \quad (16)$$



Компоненты возмущения представим в виде трех функций

$$\delta \vec{V} = (\psi, \xi, \chi). \quad (17)$$

Подставим (17) с учетом (18) в уравнения Навье-Стокса и в уравнение непрерывности. В безразмерной форме после линейризации относительно возмущений имеем систему уравнений (значок тильда опущен)

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \psi}{\partial t} + V_{r0} \frac{\partial \psi}{\partial r} + \psi \frac{\partial V_{r0}}{\partial r} + V_{z0} \frac{\partial \psi}{\partial z} + \\ & + \chi \frac{\partial V_{r0}}{\partial z} - \frac{2\xi V_{\varphi 0}}{r} = -\frac{\partial \delta p}{\partial r} + \frac{1}{\text{Re}} \left( \Delta \psi - \frac{\psi}{r^2} \right), \end{aligned} \quad (18)$$

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} + V_{r0} \frac{\partial \xi}{\partial r} + \psi \frac{\partial V_{\varphi 0}}{\partial r} + V_{z0} \frac{\partial \xi}{\partial z} + \chi \frac{\partial V_{\varphi 0}}{\partial z} + \frac{\xi V_{r0} + \psi V_{\varphi 0}}{r} = \frac{1}{\text{Re}} \left( \Delta \xi - \frac{\xi}{r^2} \right), \quad (19)$$

$$\frac{\partial \chi}{\partial t} + V_{r0} \frac{\partial \chi}{\partial r} + V_{z0} \frac{\partial \chi}{\partial z} + \chi \frac{\partial V_{z0}}{\partial z} = -\frac{\partial \delta p}{\partial z} + \frac{1}{\text{Re}} \Delta \chi, \quad (20)$$

$$\frac{\partial \psi}{\partial r} + \frac{\psi}{r} + \frac{\partial \chi}{\partial z} = 0, \quad (21)$$

Рассмотрим невязкую жидкость, тогда в уравнениях (18)-(19) уйдут все члены, содержащие отношение  $1/\text{Re}$ , а выражения  $V_{\varphi 0}$ ,  $V_{z0}$  будут определяться, как и в (7-8) с учетом (14), (15). Решение полученной системы уравнений будем искать в таком же виде, как и стационарное решение невязкой жидкости

$$\psi = r\Phi(z) \exp(ilt), \quad \xi = rF(z) \exp(ilt),$$

$$\chi = Y(z) \exp(ilt), \quad \delta p = D(r, z) \exp(ilt). \quad (22)$$

Чтобы уравнения (18)-(21) были самосогласованны, необходимо и достаточно, чтобы функция  $D(r, z)$  зависела только от одной переменной  $z$ . Выберем функции  $\Phi(z)$ ,  $F(z)$ ,  $Y(z)$ ,  $D(z)$  так, чтоб они удовлетворяли нулевым условиям на границе ( $z=0$  и  $z=1$ ) Представим эти функции в виде линейной комбинации бесконечного ряда синусов и косинусов.

$$\Phi(z) = \sum_{n=1}^{\infty} (a_{1n} \sin(2\pi nz) + a_{2n} (\cos(2\pi nz) - 1)),$$

$$F(z) = \sum_{n=1}^{\infty} (b_{1n} \sin(2\pi nz) + b_{2n} (\cos(2\pi nz) - 1)),$$

$$Y(z) = \sum_{n=1}^{\infty} (c_{1n} \sin(2\pi nz) + c_{2n} (\cos(2\pi nz) - 1)),$$

$$D(z) = \sum_{n=1}^{\infty} (d_{1n} \sin(2\pi nz) + d_{2n} (\cos(2\pi nz) - 1)). \quad (23)$$

Подставим (22) в (21) с учетом (23), знак суммы опустим, получим

$$a_{1n} \sin(2\pi nz) + a_{2n} (\cos(2\pi nz) - 1) + \pi n (c_{1n} \cos(2\pi nz) - c_{2n} \sin(2\pi nz)) = 0. \quad (24)$$

Если (24) умножить на  $\sum_{m=1}^{\infty} \sin(2\pi mz)$  и проинтегрировать по всем возможным значениям  $z$ , а потом сделать аналогичную процедуру после умножения на  $\sum_{m=1}^{\infty} \cos(2\pi mz)$ , то получим:

$$c_{2n} = a_{1n} / \pi n, \quad c_{1n} = -a_{2n} / \pi n. \quad (25)$$

Прделавав аналогичную операцию с выражениями (18)-(20) с учетом (25), получим бесконечный набор алгебраических уравнений для четырех амплитуд  $a_{1n}$ ,  $a_{2n}$ ,  $b_{1n}$ ,  $b_{2n}$  и двух для  $d_{1n}$ ,  $d_{2n}$  которые определяются только через  $a_{1n}$ ,  $a_{2n}$ . Т.о., для определения возмущений (22), необходимо записать выражения, в которых содержатся неизвестные амплитуды  $a_{1n}$ ,  $a_{2n}$ ,  $b_{1n}$ ,  $b_{2n}$ . После небольших преобразований уравнения (18), (19) с учетом (22), (23), (25) получим бесконечную систему уравнений

$$\left\{ \begin{array}{l} \sum_{n=1}^{\infty} \left( a_{1n} \frac{il}{2} + \sum_{m=1}^{\infty} (a_{1m} A_{11nm}^{(s)} + a_{2m} A_{12nm}^{(s)} + b_{1m} B_{11nm}^{(s)} + b_{2m} B_{12nm}^{(s)}) \right) = 0, \\ \sum_{n=1}^{\infty} \left( \sum_{m=1}^{\infty} a_{1m} A_{11nm}^{(c)} + a_{2n} \frac{il}{2} + \sum_{m=1}^{\infty} (a_{2m} A_{12nm}^{(c)} + b_{1m} B_{11nm}^{(c)} + b_{2m} B_{12nm}^{(c)}) \right) = 0, \\ \sum_{n=1}^{\infty} \left( \sum_{m=1}^{\infty} (a_{1m} A_{21nm}^{(s)} + a_{2m} A_{22nm}^{(s)}) + b_{1n} \frac{il}{2} + \sum_{m=1}^{\infty} (b_{1m} B_{21nm}^{(s)} + b_{2m} B_{22nm}^{(s)}) \right) = 0, \\ \sum_{n=1}^{\infty} \left( \sum_{m=1}^{\infty} (a_{1m} A_{21nm}^{(c)} + a_{2m} A_{22nm}^{(c)} + b_{1m} B_{21nm}^{(c)}) + b_{2n} \frac{il}{2} + \sum_{m=1}^{\infty} b_{2m} B_{22nm}^{(c)} \right) = 0. \end{array} \right.$$

Выражения, стоящие перед неизвестными амплитудами  $a_{1n}$ ,  $a_{2n}$ ,  $b_{1n}$ ,  $b_{2n}$  представляют собой матричные элементы, образованные последовательным домножением уравнений (18) — (19) с учетом (22), (23), (25) на  $\sin(2\pi nz)$  и  $\cos(2\pi nz)$ .

Вследствие того, что мы интересуемся устойчивостью течения между двумя дисками, то нас интересует не явный вид возмущений, а значения величины  $il$  при времени в (22). Если действительная часть этой величины растет при соответствующих значениях коэффициента закрутки, то течение не устойчиво. Составим детерминант бесконечной системы уравнений (26), который при обращении в нуль является характеристическим уравнением для  $il$ . Такая задача весьма затруднительна. Оборвем бесконечную цепочку уравнений так, чтобы значения  $n$  и  $m$  менялись в пределах  $(1, n_{\max})$ . Будем увеличивать значение  $n_{\max}$  до тех пор, пока характер поведения действительной части  $il$  мало изменяется от значения  $n_{\max}$ , при соответствующем значении коэффициента закрутки.

Нами проведен анализ до значения  $n_{\max} = 3$ . Из этого анализа мы установили, что течение вполне устойчиво только до значений  $k \leq \pi/2$ . Это значит, что слоистой структуры не наблюдается (переориентация направления жидкости возникает при  $k > \pi/2$  (Рис.1.)). Течение со слоями будет не устойчивым. Это понятно и из физических соображений. Если в системе нет вязкости, а это равносильно условию  $1/\text{Re} \ll 1$ , то нет ничего, что способствует к возникновению слоистой структуры течения между двумя дисками.

#### Заключение

Нами рассмотрена простая нелинейная задача — вихревое движение воздушного потока между двумя бесконечными дисками, один из которых пористый и вращается, что равносильно подачи закрученного воздушного потока через неподвижный пористый диск. Но даже в такой простой задаче возникло ряд сложностей и интересных результатов: расслоение течения между дисками при очень больших значениях коэффициента закрутки (закрутка пористой поверхности), взаимно противоположное движение воздушной среды в этих слоях, наличие нелинейной “воронки”. Анализ на устойчивость показал, что для невязкого воздуха течение будет устойчивым только в том случае, когда нет расслоения.

#### Литература

1. Экарт К. Гидродинамика океана и атмосферы. — М.: ИЛ, 1963. — 250 с.
2. Гольдштик М.А., Штерн В.Н., Яворский Н.И. Вязкие течения с парадоксальными свойствами. — Новосибирск, 1984. — 333 с.
3. Terrill R.M., Cornish J.P. Radial flow of a viscous, incompressible fluid between two stationary uniformly porous discs // JAMP. — 1973. — V.24. — P.676-688.
4. Гольдштик М.А. Вихревые процессы и явления. — 1989. — №210. — 69 с. (Препринт АН СССР СО, институт теплофизики).
5. Batchelor G.K. Note on a class of solutions of the Navier-Stokes equations

- representing steady rotationally — symmetric flow// QJМAM. 1951. —V.IV, Pt.1. — P. 29-41.
6. Karman T.V. Über laminare und turbulente Reibung// ZAMM. — 1921. — Bd 1. — S. 232-240.
  7. Шлихтинг Г. Теория пограничного слоя. — М.: ИЛ, 1974. — 742 с.
  8. Гетлинг А.В. Формирование пространственных структур конвекции Рэ-ля-Бенара// УФН. — 1991. — Т.161, №9. — С. 1-80.

*Р. О. Бобров, О. В. Затовський, А. В. Звеліндовський*

**Утворення та стійкість віхривого руху повітря між непроникнутою та поруватою поверхнями**

**АНОТАЦІЯ**

У роботі розглянуті віхриві рухи повітря між двома дисками (поверхнями), один з яких обертається з постійною кутовою швидкістю та через пори якого нагнітається флюїд. Найдений суттєво неоднорідний розподіл поля швидкості для різних значень в'язкості. Проведено аналіз стійкості течії для малих значень в'язкості.

*Bobrov R. O., Zatovsky A. V., Zvelindovsky A. V.*

**Creation and stability of the vortex motion of the air between impermeable and porous surfaces**

**SUMMARY**

In this article the vortex motions of the air medium between two disks (surfaces) are considered. One of disks rotate, and fluid is injected through its pores. Essentially heterogeneous distribution of the velocity field is discovered by different values of the viscosity. The analysis of the stability of the stream at extremely low values of the viscosity is carried out.

*Lisy V.<sup>1</sup>, Tothova J.<sup>1</sup>, Zatoovsky A. V.<sup>2</sup>*

*<sup>1</sup>P. J. Safarik University, Kosice (Slovakia),*

*<sup>2</sup>I. I. Mechnikov Odessa National University*

### **Long-time tails in the dynamics of polymers in dilute solutions with hydrodynamic memory**

The dynamics of polymers in dilute solutions is studied taking into account the hydrodynamic memory, as a consequence of fluid inertia. As distinct from the Rouse-Zimm (RZ) theory, the Boussinesq friction force acts on the monomers (beads) instead of the Stokes force, and the motion of the solvent is governed by the nonstationary Navier-Stokes equations. The obtained generalized RZ equation is solved in the continuum approximation. It is shown that the time correlation functions describing the polymer motion essentially differ from those in the RZ model. In particular, as  $t \rightarrow \infty$ , they contain long-time tails.

Most of the theoretical investigations on the dynamics of flexible polymers are based on the Rouse-Zimm (RZ) model [1 — 4]. In this theory the polymer molecule is modeled as a chain of beads under Brownian motion. The beads interact with the neighbors along the chain and with the solvent. The solvent contributes a frictional force against the motion of a monomer and a random force due to the random collisions exerted on monomers. In the Rouse model, the solvent is considered as nonmoving. Within the Zimm theory, the motion of each monomer also affects other monomers, by way of the flow it induces in the ambient medium. The Zimm model predicts the correct dynamical behavior for dilute polymer solutions in  $\theta$ -conditions. The Rouse model is applicable for good solvents, where the corrections due to the hydrodynamic interactions and excluded volume effects cancel each other to a large extent, or in situations when the surrounding polymers screen out the hydrodynamic interactions [3, 4]. Both models assume Gaussian equilibrium distribution of the beads. The models hold for polymer properties, which involve length scales large compared to monomer sizes. Although the RZ model has been proven as a universal theory well describing the long-time behavior of the polymer macromolecules, there is still a number of unresolved problems in the understanding of the polymer dynamics in solution [5 — 7]. For example, the diffusion coefficient calculated from the continuous RZ model systematically deviates from the experimental values for both the natural and synthetic macromolecules.

In the present work we propose a generalization of the RZ theory that could give a better understanding of the dynamical behavior of polymers in dilute solutions. We take into account the fluid inertia during the motion of the polymer in the solvent. The hydrodynamic interaction is considered solving the nonstationary Navier-Stokes

equations. The resistance force on the moving bead is assumed not the Stokes one, proportional to the velocity of the bead. We model this force by the Boussinesq friction force [8], which, at a given time  $t$ , is determined by the state of the bead motion in all the preceding moments of time. We thus have a possibility to obtain solutions valid for almost arbitrary  $t$  (for incompressible fluids, however,  $t \gg b/c$ , where  $b$  is the monomer size and  $c$  the sound velocity). In other words, the effects of hydrodynamic memory are taken into account. Such effects have been extensively studied in the physics of simple liquids and in the theory of Brownian motion (see e.g. Ref. [9]) with very important consequences. In particular, the memory effects reveal in the famous long-time “tails” of the velocity autocorrelation function (VAF), first discovered by means of computer experiments [10, 11]. The concept of the Brownian motion lies in the basis of the RZ theory of polymer dynamics. It is thus natural to expect that the memory effects will be important for polymers as well.

Within the RZ model the motion of the  $n$ th polymer segment (the bead) is described by the equation

$$M \frac{d^2 \vec{x}_n(t)}{dt^2} = \vec{f}_n^{fr} + \vec{f}_n^{ch} + \vec{f}_n. \quad (1)$$

Here,  $\vec{x}$  is the position vector of the bead,  $M$  is its mass,  $\vec{f}_n^{ch}$  is the force from the neighboring beads along the chain,  $\vec{f}_n$  is the random force due to the motion of the molecules of solvent, and  $\vec{f}_n^{fr}$  is the friction force on the bead during its motion in the solvent. In the RZ model the latter force was

$$\vec{f}_n^{fr} = -\xi \left[ \frac{d\vec{x}_n}{dt} - \vec{v}(\vec{x}_n) \right], \quad (2)$$

with  $\vec{v}(\vec{x}_n)$  being the velocity of the solvent in the place of the  $n$ th bead, due to the motion of other beads. The friction coefficient for a spherical particle of radius  $b$  is  $\xi = 6\pi\eta b$ , where  $\eta$  is the solvent viscosity. However, this expression holds only in the case of steady-state flow. In the general case the resistance against a body depends on the whole history of its motion, i.e. on velocities and accelerations in the preceding moments of time. We use, for incompressible fluids, instead of Eq. (2) the Boussinesq force [8, 12, 13]. This means to replace, in the Fourier representation with respect to the time, the friction coefficient  $\xi$  with a frequency dependent quantity

$$\xi^\omega = \xi \left[ 1 + \chi b + \frac{1}{9} (\chi b)^2 \right], \quad (3)$$

where  $\rho$  is the solvent density and  $\chi = \sqrt{-i\omega\rho/\eta}$ ,  $\text{Re}\chi > 0$ . Equations (1 — 3) have to be solved together with the hydrodynamic equations for the velocity of the solvent,

$$\rho \frac{\partial \bar{v}}{\partial t} = -\nabla p + \eta \Delta \bar{v} + \bar{\varphi}, \quad \text{div} \bar{v} = 0. \quad (4)$$

Here  $p$  is the pressure. The quantity  $\bar{\varphi}$  is an external force per unit volume [4],

$$\bar{\varphi}(\bar{x}) = -\sum_n \tilde{f}_n^{fr}(\bar{x}_n) \delta(\bar{x} - \bar{x}_n). \quad (5)$$

The solution of Eqs. (4) can be, for any of the Cartesian component  $\alpha$  ( $x$ ,  $y$ , or  $z$ ), written in the form

$$v_\alpha^\omega(\bar{r}) = \int d\bar{r}' \sum_\beta H_{\alpha\beta}^\omega(\bar{r} - \bar{r}') \varphi_\beta^\omega(\bar{r}'), \quad (6)$$

with the Fourier transformation (FT) of the Oseen tensor [15]

$$H_{\alpha\beta}^\omega(\bar{r}) = A \delta_{\alpha\beta} + B \frac{r_\alpha r_\beta}{r^2}, \quad (7)$$

$$A = (8\pi\eta r)^{-1} \left\{ e^{-y} - y \left[ (1 - e^{-y}) y^{-1} \right]'' \right\},$$

$$B = (8\pi\eta r)^{-1} \left\{ e^{-y} + 3y \left[ (1 - e^{-y}) y^{-1} \right]'' \right\}. \quad (8)$$

Here  $y = r\chi$  (3) and the prime ' denotes the differentiation with respect to  $y$ . Substituting  $\varphi_\beta^\omega$  from the FT of Eq. (5) to  $v_\alpha^\omega$  from (6), and the result into the FT of equation of motion (1), we obtain a generalization of the RZ equation, which in the continuum approximation reads

$$-i\omega x_{n\alpha}^\omega = \frac{1}{\xi^\omega} \left[ f_\alpha^{ch,\omega}(n) + f_\alpha^\omega(n) + M\omega^2 x_\alpha^\omega(n) \right] + \int_0^N dm H_{\alpha\beta nm}^\omega \left[ \frac{3k_B T}{a^2} \frac{\partial^2 x_\beta^\omega}{\partial m^2} + f_\beta^\omega(m) + M\omega^2 x_\beta^\omega(m) \right]. \quad (9)$$

Here  $a$  is the mean square distance between neighboring beads along the chain. We have used that the force between the beads can be obtained from the effective potential  $u = (3k_B T / 2a^2) \sum_{n=2}^N (\bar{x}_n - \bar{x}_{n-1})^2$ , which follows from the equilibrium distribution of the beads [4],  $P(r_{nm}) = (2\pi a^2 |n-m|/3)^{-3/2} \exp[-3r_{nm}^2 / (2a^2 |n-m|)]$ . Due to the dependence of the Oseen tensor on the difference  $\vec{r}_{nm} \equiv \bar{x}_n - \bar{x}_m$ , Eq. (9) is nonlinear

and thus hardly solvable analytically. We use the common approach, preaveraging the Oseen tensor over  $P(r_{nm})$  that gives:

$$\langle H_{\alpha\beta nm}^\omega \rangle_0 = \delta_{\alpha\beta} h^\omega(n-m), \quad (10)$$

$$h^\omega(n-m) = (6\pi^3 |n-m|)^{-1/2} (\eta a)^{-1} [1 - \sqrt{\pi} z \exp(z^2) \operatorname{erfc}(z)],$$

with  $z \equiv \chi a (|n-m|/6)^{1/2}$ . In the case without memory [4] the function  $h$  at large  $|n-m|$  behaves as  $\sim |n-m|^{-1/2}$ ; now the effective interaction between the beads disappears more rapidly,  $\sim |n-m|^{-3/2}$ . Since Eq. (9) contains only the diagonal terms, it can be solved using the FT in the variable  $n$ ,  $\bar{x}^\omega(n) = \bar{y}_0^\omega + 2 \sum_{p \geq 1} \bar{y}_p^\omega \cos(\pi np/N)$ , where the boundary conditions at the ends of the chain have been taken into account [4],  $\partial \bar{x}(t, n)/\partial n = 0$  at  $n = 0, N$ . The inverse FT then yields the following equation for the Fourier components  $\bar{y}_p^\omega$ :

$$\bar{y}_p^\omega = \bar{f}_p^\omega [-i\omega \Xi_p^\omega - M\omega^2 + K_p]^{-1}, \quad (11)$$

where  $\Xi_p^\omega = \xi^\omega [1 + (2 - \delta_{p0}) N h_{pp}^\omega]^{-1}$ , and  $K_p = 3\pi^2 p^2 k_B T / (Na)^2$ ,  $p = 0, 1, 2, \dots$ . The matrix  $h_{pp}^\omega$  is defined by the expression

$$h_{pq}^\omega = \frac{1}{N^2} \int_0^N dn \int_0^N dm h^\omega(n-m) \cos \frac{\pi pn}{N} \cos \frac{\pi pm}{N}. \quad (12)$$

In obtaining Eq. (11) it has been taken into account that the nondiagonal elements of the matrix are small in comparison with the diagonal ones and can be in the first approximation neglected; the substantiation of this is the same as in Ref. [3, 4]. Equation (11) can be investigated as it is usually done in the theory of Brownian motion using the fluctuation-dissipation theorem (FDT) [14] or the properties of the forces  $\bar{f}_p^\omega$  [9]. The forces acting on different beads  $n$  and  $m$  are uncorrelated, so that their correlator is  $\sim \delta_{nm}$ . In going to the continuum approximation the Kronecker symbol  $\delta_{nm}$  has to be replaced by the  $\delta$ -function,  $\delta(n-m)$ . Thus, in the Fourier representation we have

$$\langle f_{p\alpha}^\omega f_{q\alpha}^\omega \rangle = \frac{k_B T}{(2 - \delta_{p0}) \pi N} \operatorname{Re} \Xi_p^\omega \delta_{\alpha\beta} \delta_{pq} \delta(\omega + \omega'). \quad (13)$$

Equation (11) then yields the following expression for the time correlation function  $\Psi_p(t) = \langle y_{\alpha p}(0) y_{\alpha p}(t) \rangle$ :



$$\psi_p(t) = \frac{k_B T}{(2 - \delta_{p0}) \pi N} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{-i\omega t} \frac{\text{Re} \Xi_p^\omega}{|-i\omega \Xi_p^\omega - M\omega^2 + K_p|^2}, \quad (14)$$

in agreement with the FDT [13, 14]. The generalized susceptibility is  $\alpha_p(\omega) = [(2 - \delta_{p0})N]^{-1} \times [-i\omega \Xi_p^\omega - M\omega^2 + K_p]^{-1}$ , and the forces corresponding to the coordinates  $y_{p\alpha}^\omega$  are  $Nf_{p\alpha}^\omega$ . Using the Kramers-Kronig dispersion relation [13], the same initial value of the function  $\psi_p$  at  $t = 0$  as in the RZ theory is immediately obtained:  $\psi_p(0) = k_B T \alpha_p(0) = k_B T (2NK_p)^{-1}$ ,  $p > 0$ . Equation (14) gives the solution of the model, for the Fourier amplitudes of the correlation functions of the positions of beads. Knowing  $\psi_p(t)$ , other correlation functions of interest can be found, e.g. the VAF  $\phi_p(t) = \langle v_\alpha(0)v_{\alpha p}(t) \rangle = -d^2\psi_p(t)/dt^2$ , or the mean square displacement (MSD),  $\langle \Delta y_p^2(t) \rangle = 2[\psi_p(0) - \psi_p(t)]$ . The previous RZ results are obtained putting  $\omega = 0$  in  $\Xi_p^\omega$ , Eq. (11), and neglecting the inertial term in the equation of motion of the bead, so that  $M = 0$ . The mode  $y_0$  describes the motion of the center of inertia of the coil [4]. In the RZ case one obtains  $\psi_0(0) - \psi_0(t) = D_C t$ . The diffusion coefficient  $D_C = k_B T (h_{00}^0 + 1/N\xi)$  contains the Zimm ( $D_C = k_B T h_{00}^0 = 8k_B T (3\sqrt{6\pi^3 N\eta a})^{-1}$ ) and Rouse ( $D_C = k_B T/N\xi$ ) limits. The internal modes ( $p \neq 0$ ) relaxed exponentially,  $\psi_p(t) = (k_B T/2NK_p) \exp(-t/\tau_p)$ , with the relaxation times  $\tau_p$ ,  $\tau_p = \xi / [K_p (1 + 2Nh_{pp}^0 \xi)]$ , where  $h_{pp}^0 = (12\pi^3 Np)^{-1/2} (\eta a)^{-1}$ .

For the solution of the Rouse case with memory (when the hydrodynamic interaction contribution in Eq. (11) is negligible for all  $\omega$ ) we refer to our recent work [16]. In the Zimm model, when the hydrodynamic interaction is strong for all frequencies that significantly contribute to the studied correlation functions, we have in Eq. (11)  $\Xi_p^\omega \approx [(2 - \delta_{p0})Nh_{pp}^\omega]^{-1}$ . The Oseen matrix (12) can be calculated with arbitrary degree of precision, e.g. for  $p = 0$  we have the exact result

$$h_{00}^\omega = \frac{3\sqrt{\pi}}{4\tilde{z}} h_{00}^0 \left[ 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}\tilde{z}} - \frac{1}{\tilde{z}} (e^{-\tilde{z}^2} \text{erfc}\tilde{z} - 1) \right], \quad (15)$$

where  $\tilde{z} \equiv (N\chi a/6)^{1/2}$ . Then the correlation functions can be in the  $t$ -representation calculated using the standard methods of the theory of Brownian motion [9]. Here we show the main terms of the asymptotic expansion of the time correlation functions that

can be obtained also using the expansion of the susceptibility  $\alpha_p(\omega)$  in small  $(-i\omega)^{1/2}$ . In the case of the diffusion of the coil as a whole we obtain the expression

$$\psi_0(0) - \psi_0(t) = D_C \left[ t - \frac{2}{\sqrt{\pi}} (\tau_R t)^{1/2} + \dots \right], \quad (16)$$

where  $D_C$  is the Zimm diffusion coefficient. The characteristic time  $\tau_R = R^2\rho/\eta$  is expressed through the hydrodynamic radius of the coil [3, 4]. Consider now the internal modes of the polymer,  $p \geq 1$ . The components of the matrix (12) are calculated as in Ref. [4], and can be expressed through special functions, so that their expansion is known to any desired power of  $(-i\omega)^{1/2}$ . The first correction to the results of the model without memory is determined by the coefficient at the term  $\sim (-i\omega)$ . The first nonvanishing correction to the susceptibility  $\alpha_p(\omega)$  is given by the term  $\sim (-i\omega)^{5/2}$ . The coefficient at this term is determined by the expansion coefficients of the terms proportional to  $(-i\omega)$  and  $(-i\omega)^{3/2}$  in the expansion of  $h_{pp}^\omega$ . Using Eq. (15), we thus find for the correlation function  $\Psi_p(t)$

$$\frac{\Psi_p(t)}{\Psi_p(0)} \approx -\frac{2^9}{45\pi^3} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \left( 1 + \frac{16}{3\pi^2} \frac{\tau_R}{p \tau_p} \right) \frac{1}{p^3} \frac{\tau_p}{\tau_R} \left( \frac{\tau_R}{t} \right)^{5/2}, \quad (17)$$

where  $p \geq 1$ ,  $t \gg \tau_R$ , and  $\tau_p = (N^{1/2}a)^3(\eta/k_B T)/(3\pi p^3)^{1/2}$  is the Zimm relaxation time.

Finally, we give the result for the intermediate scattering function  $G(\vec{k}, t)$  that is used in the description of the dynamic light or neutron scattering from a polymer coil [3] ( $\vec{k}$  is the change of the wave vector at the scattering). Acting in a similar way as in Ref. [3] but taking into account that our solutions are obtained for large  $t$ , it can be approximated by the expression

$$G(k, t) \approx N \exp\{-k^2 [\psi_0(0) - \psi_0(t)]\} \times \exp\left[-\frac{Na^2k^2}{36} \left( 1 - \frac{8N^2a^4k^4}{3\pi^6} \sum_{p=2,4,\dots}^{\infty} \frac{\Psi_p(t)}{\Psi_p(0)} \frac{1}{p^6} \right)\right] \quad (18)$$

valid for  $kR \ll 1$  (in the opposite case the function  $G(k, t)$  becomes very small at large times). One can see from this equation that the contribution of the internal modes is small and thus hardly detectable against the diffusion term given by the first exponent. However, our predictions concerning the diffusion of the coil as a whole could be directly measured in the scattering experiments. The diffusion contribution dominates at the times  $t \gg \tau_D$ , where the characteristic time for the diffusion is  $\tau_D = R^2/D_C$ .

We conclude that in the generalized RZ model, when the memory of the viscous solvent is taken into account, the relaxation of the correlation functions describing the polymer motion essentially differs from the original theory. The MSD at small times

is  $\sim t^2$  (instead of  $\sim t$ ). At long times it contains additional (to the Einstein term) contributions, the leading of which is  $\sim t^{1/2}$ . The internal modes of the polymer motion now do not relax exponentially. The longest-lived contribution to the correlation function of the bead displacement is  $\sim t^{-3/2}$  in the Rouse case [16], and  $\sim t^{-5/2}$ , when the hydrodynamic interaction is strong. The found peculiarities can be investigated experimentally, e.g. by the dynamic light or neutron scattering. Due to the long-range character of the hydrodynamic field, the characteristic time of the Zimm model,  $\tau_R = R^2\rho/\eta$  is connected with the size of the whole polymer coil and sufficiently large from the point of view of the experiments. The differences from the original model thus seem to be experimentally accessible. As seen from Eq. (17) and (18), the tails in the MSD lead to a slower decay of the scattering function. This corresponds to diffusion with an effectively smaller diffusion coefficient than predicted by the previous theory. This was one of the unresolved “puzzles” between the theory and experiments. We believe that the presented theory could help to solve this and other existing problems in the interpretation of the dynamic scattering experiments on polymers [5 — 7] and thus to contribute to a deeper understanding of the dynamical properties of polymers.

#### References

1. Rouse P.E. // J. Chem. Phys. — 1953. — V. 21. — P. 1272.
2. Zimm B.H. // J. Chem. Phys. — 1956. — V. 24. — P. 269.
3. Doi M., Edwards S.F. The Theory of Polymer Dynamics. — Oxford: Clarendon Press, 1986. — 391 p.
4. Grosberg A.Yu., Khokhlov A.R. Statistical Physics of Macromolecules. Moscow: Nauka, 1989. — 342 p.
5. Harnau L., Winkler R., Reineker P. // J. Chem. Phys. — 1996. — V. 104. — P. 6355.
6. Dünweg B., *et al.* // J. Chem. Phys. — 2002. — V. 117. — P. 914.
7. Balabonov S.M., Ivanova M.A., Klepin S.I., *et al.* // Biophysics (Moscow). — 1987. — V. 32. — P. 933.
8. Boussinesq J. Théorie analytique de la chaleur. — Paris: Gauthier-Villars, 1903.
9. Schram P.P.J.M., Yakimenko I.P. // Physica A. — 1998. — V. 260. — P. 73.
10. Rahman A. // Phys. Rev. A. — 1964. — V. 136. — P. 405.
11. Alder B.J., Wainwright T.E. // Phys. Rev. Lett. — 1967. — V. 18. — P. 988.
12. Vladimirskii V., Terletskii Ya. // Zhurn. Eksp Teor. Fiz. — 1945. — V. 15. — P. 259.
13. Landau L.D. Lifshitz E.M. Statistical Physics. — Moscow: Nauka, 1976.
14. Leontovich M.A. // Zhurn. Eksp Teor. Fiz. — 1965. — V. 49. — P. 1624.
15. Zatovsky A.V., Lisy V. // J. Mol. Liq. — 2003. — V.105. — P.289.
16. Tothova J., Lisy V., Zatovsky A.V. // J. Chem. Phys. — 2003. — V. 119. — P. 13135.

*В. Лисы, Й. Тотова, А. В. Затовский*

**Долговременные хвосты в динамике полимеров в разбавленных растворах с гидродинамической памятью**

**АННОТАЦИЯ**

Изучается динамика полимеров в разбавленных растворах с учетом гидродинамической памяти как следствия инерционных свойств жидкости. В отличие от теории Рауза-Зимма, вместо Стоксовой силы на мономеры (бусинки) действует сила трения Буссинэ, а движение растворителя описывается нестационарным уравнением Навье-Стокса. Получено обобщенное уравнение Рауза-Зимма для векторов положений полимерных звеньев. В континуальном приближении найдены временные корреляционные функции, описывающие движение полимера. Показано, что инерционные свойства вязкого растворителя существенно влияют на поведение этих функций. Релаксация внутренних мод полимера отличается от традиционной экспоненциальной, а диффузия клубка как целого не эйнштейновская. Это демонстрируется асимптотикой среднеквадратичного смещения клубка, которое при  $t \rightarrow \infty$  содержит дополнительный “хвост”  $\sim t^{1/2}$ . В корреляционных функциях внутренних мод также появляются хвосты, из которых наиболее долго живущий пропорционален  $t^{-5/2}$ . В пределе больших времен найден динамический структурный фактор рассеяния Ван Хофа.

*В. Лиси, Й. Тотова, О. В. Затовський*

**Довгочасові хвости у динаміці полімерів розбавлених розчинів з гідродинамічною пам’яттю**

**АНОТАЦІЯ**

Вивчається динаміка полімерів у розбавлених розчинах з врахуванням гідродинамічної пам’яті як наслідка інерційних властивостей рідини. На відміну від теорії Рауза-Зімма, замість сили Стокса на бусинки діє сила тертя Бусинє, а рух розчинника підкоряється нестационарним рівнянням Нав’є-Стокса. Одержано узагальнене рівняння Рауза-Зімма для векторів положення ланки полімера. У континуальному наближенні знайдені часові кореляційні функції, які описують рух полімера. Показано, що інерційні властивості в’язкого розчинника суттєво впливають на поведінку цих функцій. Релаксація внутрішніх мод полімера відрізняється від традиційної експоненти, а дифузія клубка як цілого не ейнштейнова. Це демонструється асимптотикою середньоквадратичного зміщення клубка, яке при  $t \rightarrow \infty$  має додатковий “хвіст”  $\sim t^{1/2}$ . Вивчена також часова асимптотика динамічного структурного фактора розсіювання Ван Хофа.

УДК 533.723+535.337

*А. В. Затовский, А. В. Кирилюк*

*Одесский национальный университет им. И.И. Мечникова*

### **Релеевское рассеяние света суспензией анизотропных частиц во внешнем электрическом поле**

Рассматривается влияние внешнего электрического поля на изменение формы крыла линии релеевского рассеяния света разбавленными растворами жестких эллипсоидов вращения, взвешенных в простой жидкости. Предполагается, что частицы имеют анизотропные электрические характеристики и не обладают постоянным дипольным моментом. Показывается, что ориентация частиц во внешнем поле приводит к изменению формы и спектрального состава линии рассеяния. Форма крыла релеевской линии является существенно не лорентцевой и имеет дополнительные локальные максимумы, положение и пиковая интенсивность которых сильно зависит от величины поля.

#### **1. Введение**

Ориентация анизотропных частиц внешним электрическим полем часто изучается с помощью электрооптических методов (двулучепреломление, дихроизм, флуоресценция, поглощение и рассеяние света) [1-3]. Такие электрооптические опыты позволяют определить форму, размеры и изменение электрических характеристик частиц. Взвешенные в жидкости частицы совершают поступательное и вращательное броуновское движение, определяющие характер всех перечисленных выше явлений. Наложение внешних электрических полей меняет характер броуновского движения и позволяет контролировать изменение опытных спектров. В последние годы интерес к таким объектам все возрастает, появились новые публикации [4-9], материалы которых частично перекрываются, например, с результатами [10, 11].

В настоящей работе мы займемся теоретическим изучением релеевского рассеяния света суспензией анизотропных эллипсоидальных частиц, помещенных во внешнее электрическое поле. Такие системы могут быть использованы для моделирования реальных растворов макромолекул, растворов анизотропных бактерий или коллоидных частиц. Будем интересоваться некоторыми свойствами суспензии таких частиц, обусловленными их броуновским вращением. При этом явно учитываются эффекты памяти и поворот-

ное движение анизотропных частиц рассматривается как немарковский случайный процесс [13].

Изменения в спектрах крыла линии релеевского рассеяния света слабыми растворами анизотропных частиц могут быть приписаны ориентации частиц во внешнем электрическом поле. Нами показывается, что действие электрического поля вызывает изменения контуров линий рассеяния и приводит к немонотонной частотной зависимости спектральных линий деполаризованного рассеяния с дополнительными локальными максимумами в спектрах. Положение и интенсивность этих дополнительных линий в релеевских спектрах рассеяния зависят как от величины поля, так и от геометрических параметров частиц, что позволяет управлять формой спектра путем изменения внешнего поля.

## 2. Ориентационное движение частиц и спектры рассеяния

Будем рассматривать поведение примесных частиц или макромолекул, роль которых могут выполнять бактерии, во внешнем постоянном электрическом поле. Макромолекулы, помещенные в простую жидкость, моделируем жесткими эллипсоидами вращения. В итоге, будем интересоваться рассеянием света суспензией жестких эллипсоидов вращения в постоянном электрическом поле. Все расчеты будем выполнять в предположении, что частицы обладают анизотропными электрическими характеристиками и не обладают постоянным дипольным моментом. Поэтому во внешнем электрическом поле они будут приобретать только наведенный дипольный момент. Рассмотрим слабый, разбавленный раствор, т.е. будем предполагать, что между частицами в суспензии нет прямого взаимодействия. Вследствие этого вращательное броуновское движение частиц будем рассматривать независимо от их поступательного броуновского движения.

Считаем внешнее электрическое поле  $\vec{E}$  направленным вдоль оси  $z$  лабораторной системы координат  $(x, y, z)$ . Положение молекулярной системы координат  $(x', y', z')$ , жестко связанной с частицей, относительно лабораторной определим углами Эйлера  $\vec{\beta}(\vartheta, \psi, \varphi)$ . В нашей задаче помимо внешнего постоянного электрического поля падает еще в направлении оси  $Y$  световая волна, которая является зондирующим электрическим полем, и это поле мало по сравнению с постоянным внешним полем. Зондирующее поле не сказывается на динамике движения взвешенных в жидкости эллипсоидальных частиц. Пусть падает неполяризованный свет, а наблюдается рассеянный в направлении оси  $x$  вертикально поляризованный (вдоль оси  $z$ ) свет. В этом случае спектральная плотность рассеянного света  $I(\omega)$  есть линейная комбинация неполяризованной  $I^{HV}(\omega)$  и поляризованной  $I^{VV}(\omega)$  компонент (индексы  $V$  и  $H$  соответствуют состояниям вертикальной и го-

ризонгальной поляризации по отношению к рассеивающей плоскости  $xу$ , соответственно)

$$I(\omega) = I^{HV}(\omega) + I^{VV}(\omega), \quad (1)$$

которые в свою очередь пропорциональны фурье-образам корреляционных функций

$$I^{HV}(t) \sim \langle \alpha_{xz}(t) \alpha_{xz}^*(0) \rangle, \quad I^{VV}(t) \sim \langle \alpha_{zz}(t) \alpha_{zz}^*(0) \rangle,$$

где угловыми скобками обозначено усреднение по тепловому движению,  $\alpha_{xz}$  и  $\alpha_{zz}$  — компоненты симметричного со следом нуль тензора поляризуемости молекулы.

Поступательное движение эллипсоидальной броуновской частицы будем описывать простым диффузионным уравнением с одним коэффициентом поступательной диффузии

$$D = \frac{1}{3}(2D_1 + D_3), \quad (3)$$

который берется как среднее от главных значений тензора поступательной диффузии  $D_1 = D_2 \neq D_3$ . В этом случае составляющая в рассеяние света, которая связана с поступательным движением центра масс эллипсоида, имеет вид [14]

$$I(t) \sim \exp[-k^2 D t], \quad (4)$$

где  $\vec{k}$  — волновой вектор рассеяния. Здесь и в дальнейшем для упрощения записи формул зависимость интенсивности  $I$  от волнового вектора рассеяния  $\vec{k}$  опускается.

Вместо декартовых компонент тензора поляризуемости введем обычным образом соответствующие ему независимые компоненты сферического тензора второго ранга  $\alpha_\lambda$  ( $\lambda = 0, \pm 1, \pm 2$ ) [15, 16]. При вращении частицы сферический тензор преобразуется по закону

$$\alpha_\mu(t) = \sum_{\nu=-2}^2 D_{\mu\nu}^{(2)}(\vec{\beta}(t)) \alpha_\nu^i(0). \quad (5)$$

Здесь  $D_{\mu\nu}^{(l)}$  — обобщенная сферическая функция (функция Вигнера), а  $\alpha_\nu^i$  — тензор поляризуемости в молекулярной системе координат. Тогда при выбранной геометрии опыта спектральная плотность рассеянного света выражается как

$$I(\omega) \sim \left| \alpha'_0(0) \right|^2 \operatorname{Re} \left[ \Psi_{10}^{(2)}(p) + \frac{4}{3} \Psi_{00}^{(2)}(p) \right], \quad p = -i\omega + \frac{1}{\tau} + k^2 D, \quad (6)$$

где  $\tau$  — время ориентационной релаксации частицы, которое будет определено позже, а  $\Psi_{MK}^{(l)}(\omega)$  — фурье-образ нормированной на единицу временной корреляционной функции билинейных функций Вигнера

$$\Psi_{MK}^{(l)}(t) = \frac{\langle D_{MK}^{(l)}(t) D_{MK}^{(l)*}(0) \rangle}{\langle |D_{MK}^{(l)}(0)|^2 \rangle}. \quad (7)$$

Изменение ориентации эллипсоида тесно связано с его вращением. Вектор угловой скорости вращения эллипсоидальной частицы состоит из двух вкладов: случайной составляющей угловой скорости  $\vec{\Omega}^r(t)$ , возникающей за счет соударения эллипсоида с молекулами жидкости, т.е. за счет случайного дезориентирующего броуновского движения, и регулярной составляющей  $\vec{\Omega}^0(t)$ , которая появляется вследствие того, что вся система находится во внешнем электрическом поле и на частицы, обладающие наведенным дипольным моментом  $\vec{P}$ , действует сторонний момент сил [17]

$$\vec{G} = \left[ \vec{P} \times \vec{E} \right]. \quad (8)$$

Так как мы рассматриваем эллипсоидальные частицы, то для описания ориентации частицы, имеющей ось вращения, необходим один единичный вектор  $\vec{n}$ , направленный вдоль оси симметрии. Запишем уравнение Эйлера

$$\frac{d\vec{n}}{dt} = \left[ \vec{n} \times \vec{\Omega}^0 \right], \quad (9)$$

описывающее динамику движения вектора ориентации эллипсоида в молекулярной системе координат, жестко связанной с телом. Регулярная составляющая угловой скорости вращения эллипсоида давно найдена путем решения граничной задачи электродинамики [17,18] и имеет вид

$$\vec{\Omega}^0(t) = -\sigma (\vec{n} \cdot \vec{E}) \left[ \vec{n} \times \vec{E} \right], \quad (10)$$

где коэффициент  $\sigma$  определяет геометрические свойства частицы, а также диэлектрические свойства частицы и жидкости. Вводя при этом вместо декартовых компонент регулярной составляющей вектора угловой скорости соответствующие им независимые компоненты сферического тензора пер-



вого ранга  $\Omega_\lambda^0 (\lambda = 0, \pm 1)$ , получим выражение для угловой скорости через обобщенные сферические функции

$$\Omega_\lambda^0(t) = \sum_{\alpha=-2}^2 a_{\lambda\alpha} D_{\alpha 0}^{(2)}(t), \quad (11)$$

где

$$\begin{pmatrix} a_{-1\alpha} \\ a_{0\alpha} \\ a_{1\alpha} \end{pmatrix} = \frac{i\sigma E^2}{\sqrt{3}} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (12)$$

Изменение ориентации частицы происходит только из-за ее вращения и подчиняется динамическому уравнению движения [15, 16], обобщающему уравнение (9)

$$\frac{d}{dt} D_{MK}^{(l)}(t) = -i \sum_{\lambda, \rho} [\Omega_\lambda^0(t) + \Omega_\lambda^r(t)] D_{M\rho}^{(l)}(t) \langle l\rho | I_\lambda | lK \rangle, \quad (13)$$

где  $\langle \dots | I | \dots \rangle$  — матричные элементы проекций оператора вращений в единицах  $\hbar$  на координатные оси, закрепленные с телом. Полученный формальным интегрированием этого уравнения результат подставим в правую часть (13), умножим его на комплексно сопряженную функцию  $D_{MK}^{(l)*}(0)$  и проведем усреднение по тепловому движению. С учетом этого получим следующее уравнение для корреляционной функции (7)

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \Psi_{MK}^{(l)}(t) &= -i \sum_{\lambda, \rho} \frac{\langle \Omega_\lambda^0(t) D_{MK}^{(l)*}(0) D_{M\rho}^{(l)}(0) \rangle}{\langle |D_{MK}^{(l)}(0)|^2 \rangle} \langle l\rho | I_\lambda | lK \rangle - \\ &- \int_0^t dt' \sum_{\lambda, \rho, \lambda', \rho'} \frac{\langle \Omega_\lambda^0(t) \Omega_{\lambda'}^0(t') D_{MK}^{(l)*}(0) D_{M\rho'}^{(l)}(t') \rangle}{\langle |D_{MK}^{(l)}(0)|^2 \rangle} \langle l\rho | I_\lambda | lK \rangle \langle l\rho' | I_{\lambda'} | l\rho \rangle - \\ &- \int_0^t dt' \sum_{\lambda, \rho, \lambda', \rho'} \frac{\langle \Omega_\lambda^r(t) \Omega_{\lambda'}^r(t') \rangle}{\langle |D_{MK}^{(l)}(0)|^2 \rangle} \langle D_{MK}^{(l)*}(0) D_{M\rho'}^{(l)}(t') \rangle \langle l\rho | I_\lambda | lK \rangle \langle l\rho' | I_{\lambda'} | l\rho \rangle, \end{aligned} \quad (14)$$

при выводе которого усреднение по угловым скоростям и ориентациям эллипсоида проводилось независимо. Интегро-дифференциальное уравнение (14) для временной корреляционной функции, составленной из билинейных комбинаций функций Вигнера, оказалось незамкнутым. Нужная корреля-

ционная функция зацепилась с корреляционной функцией, составленной из произведения четырех сферических функций. Выразим приближено среднее от произведения четырех функций Вигнера через произведения средних от пары

$$3\langle D_{\alpha 0}^{(2)}(t)D_{\beta 0}^{(2)}(t')D_{MK}^{(l)*}(0)D_{M\rho}^{(l)}(t') \rangle \approx \langle D_{\alpha 0}^{(2)}(t)D_{\beta 0}^{(2)}(t') \rangle \langle D_{MK}^{(l)*}(0)D_{M\rho}^{(l)}(t') \rangle + \langle D_{\alpha 0}^{(2)}(t)D_{MK}^{(l)*}(0) \rangle \langle D_{\beta 0}^{(2)}(t')D_{M\rho}^{(l)}(t') \rangle + \langle D_{\alpha 0}^{(2)}(t)D_{M\rho}^{(l)}(t') \rangle \langle D_{\beta 0}^{(2)}(t')D_{MK}^{(l)*}(0) \rangle. \quad (15)$$

На языке единичных ортов произведено расщепление КФ от произведения восьми ортов на произведения КФ от четырех ортов. Аналогичное расщепление использовалось в [18], но для произведения четырех единичных ортов. Используемое нами расщепление является более точным, так как сохраняет более высокие корреляции для произведения четырех ортов.

Учитывая значения матричных элементов оператора углового момента, свойства функций Вигнера, а также однородность процессов во времени и приближенно считая статистические свойства случайной составляющей угловой скорости дельта-коррелированными, в итоге удалось получить интегро-дифференциальное уравнение для временной КФ (7) в виде

$$\frac{d}{dt}\Psi_{MK}^{(l)}(t) = -\frac{l(l+1)-K^2}{3\tau_E^2} \int_0^t dt' \Psi_{10}^{(2)}(t-t')\Psi_{MK}^{(l)}(t') - (\delta_{1,M} + \delta_{-1,M})\delta_{2,l}\delta_{0,K} \times \\ \times \frac{l(l+1)-K^2}{6\tau_E^2} \left[ \int_0^t dt' \Psi_{10}^{(l)}(t-t')\Psi_{1K}^{(l)}(t') - t\Psi_{1K}^{(l)}(t) \right] - \frac{1}{\tau_{IK}} \Psi_{MK}^{(l)}(t), \quad (16)$$

где выражения для характерного времени  $\tau_E$  изменения наведенного дипольного момента во внешнем электрическом поле и для времени релаксации  $\tau_{IK}$  ориентации частицы имеют следующий вид

$$\frac{1}{\tau_E} = \frac{\sigma E^2}{\sqrt{3}} \sqrt{\langle |D_{10}^{(2)}(0)|^2 \rangle}, \quad (17)$$

$$\frac{1}{\tau_{IK}} = l(l+1)\Theta_1 + K^2(\Theta_3 - \Theta_1). \quad (18)$$

Здесь  $\Theta_l$  — главные значения тензора вращательной диффузии частицы ( $\Theta_1 = \Theta_2 \neq \Theta_3$ ).

Применим к соотношению (16) одностороннее преобразование Фурье. Тогда для искомых функций  $\Psi_{00}^{(2)}(\omega)$  и  $\Psi_{10}^{(2)}(\omega)$ , необходимых для опреде-

ления спектральной плотности рассеяния света (6), находим следующую замкнутую систему уравнений

$$\Psi_{00}^{(2)}(\omega) = \frac{1}{-i\omega + \frac{1}{\tau_{20}} + \frac{2}{\tau_E^2} \Psi_{10}^{(2)}(\omega)},$$

$$\frac{1}{\tau_E^2} \frac{\partial \Psi_{10}^{(2)}(\omega)}{\partial(i\omega)} + \left( -i\omega + \frac{1}{\tau_{20}} \right) \Psi_{10}^{(2)}(\omega) + \frac{3}{\tau_E^2} [\Psi_{10}^{(2)}(\omega)]^2 = 1. \quad (19)$$

Последнее из этих уравнений — нелинейное дифференциальное уравнение первого порядка. Количественный расчет спектров (6) будем проводить численным интегрированием дифференциального уравнения в безразмерных переменных  $\tilde{\omega} \equiv \omega\tau_{20}$ ,  $\tilde{\Psi}_{00}^{(2)} \equiv \Psi_{00}^{(2)} / \tau_{20}$  и  $\tilde{\Psi}_{10}^{(2)} \equiv \Psi_{10}^{(2)} / \tau_{20}$ . При этом дифференциальное уравнение снабжалось начальными условиями  $\text{Im} \tilde{\Psi}_{10}^{(2)}(0) = 0$

и  $\text{Re} \tilde{\Psi}_{10}^{(2)}(0) = 1$ . Результаты расчета приведены на рис.1, где показана зависимость нормированной на единицу спектральной плотности рассеянного света  $\tilde{I}(\tilde{\omega}) \equiv I(\omega) / I(0)$  от безразмерной частоты  $\tilde{\omega}$ , определяющей сдвиг между частотой падающего и рассеянного света, при различных значениях безразмерного параметра  $G \equiv (\tau_{20} / \tau_E)^2$ , зависящего от величины внешнего электрического поля. КФ функций Вигнера в (7) слабо зависит от поля и основная зависимость параметра  $G$  — это пропорциональность четвертой степени напряженности внешнего поля. На рис.1 показаны спектры рассеяния суспензией жестких эллипсоидов вращения для четырех разных значений электрического поля. Для сравнения также приведена линия рассеяния в отсутствие внешнего поля, характерная для броуновского вращения свободного ротатора и имеющая, с учетом поступательного броуновского движения, лоренцевский вид с полушириной  $\Delta\omega = \frac{1}{\tau_{20}} + k^2 D$ . Спектр рассеяния в отсутствие поля хорошо известен [14] и может быть легко получен из уравнений (19) предельным переходом  $1/\tau_E = 0$ .

Из рис.1 видно, что в присутствии внешнего поля контур крыла линии релеевского рассеяния света является существенно не лоренцевым, и может иметь один или несколько локальных максимумов. С изменением поля меняется как форма спектра, так и пиковая интенсивность дополнительных максимумов. Положение максимумов по оси абсцисс (частот) сдвигается в коротковолновую часть спектра при увеличении напряженности электрического поля (параметра  $G$ ). Изменение ориентации эллипсоидальных частиц

во внешнем электрическом поле является сильно нелинейным процессом, что затрудняет более детальный анализ спектров.

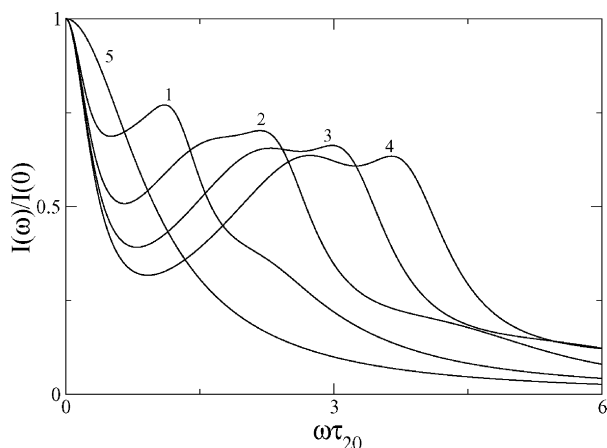


Рис. 1. Зависимость нормированной на единицу интенсивности (в условных единицах) света в крыле линии Релея от безразмерной частоты  $\tilde{\omega} \equiv \omega\tau_{20}$  при четырех различных значениях внешнего электрического поля (1 —  $G=0.5$ , 2 — 1.5, 3 — 2.5, 4 — 3.5). Для сравнения показана лоренцева кривая, характерная для рассеяния в отсутствии поля (5 —  $G=0$ )

### 3. Заключение

С помощью развитого метода удалось получить спектры крыла линии релеевского рассеяния света разбавленными растворами эллипсоидальных частиц, помещенных во внешнее электрическое поле. Наличие поля меняет характер броуновского вращения эллипсоидов, что сказалось на форме и спектральном составе линий рассеяния. В частности, контур крыла релеевской линии уже не является лоренцевым, а имеет тонкую структуру в виде локальных максимумов. Положение по оси частот и пиковая интенсивность этих дополнительных максимумов в спектрах крыла линии рассеяния Релея зависят от внешнего электрического поля, что дает возможность контролировать изменения спектров рассеяния внешним полем.

Результаты расчетов имеют также самостоятельное значение для теории вращательного броуновского движения эллипсоидальных частиц во внешнем электрическом поле, и могут быть использованы для нахождения спектров различных физических процессов (поглощение света, двулучепреломление и др.), связанных с броуновским вращением частиц.

### Литература

1. Волькенштейн М.В. Молекулярная оптика. — М., 1951.
2. Stoylov S.P. Colloid Electro-Optics: Theory, Techniques, Applications. — New York, 1991.
3. van der Zande B.M.I., Koper G.J.M., Lekkerkerker H.N.W. Aligment of rod-shaped gold particles by electric field // *J. Phys. Chem. B.* — 1999. — V. 103. — P. 5754-5760.
4. Coffey W.T., Kalmykov Yu.P., Titov S.V. Inertial effects in anomalous dielectric relaxation // *Phys. Rev. E.* — 2002. — V. 65. — 032102-1 — 032102-4.
5. Coffey W.T., Kalmykov Yu.P., Titov S.V. Inertial effects in the anomalous dielectric relaxation of rotators in space // *Phys. Rev. E.* — 2002. — V. 65. — 051105-1 — 051105-9.
6. Kalmykov Yu.P., Déjardin J.L., Coffey W.T. Relaxation time for nonlinear response of a Brownian particle subject to a step external force: analytical solutions for one-dimensional models // *Phys. Rev. E.* — 1997. — V. 55. — P. 2509-2515.
7. Coffey W.T., Kalmykov Yu.P., Titov S.V. Inertial effects in the nonlinear transient relaxation of Brownian particles in strong external electric fields // *J.Chem.Phys.* 2001. V. 115. P. 9895-9904.
8. Kalmykov Yu.P. Rotational Brownian motion and nonlinear dielectric relaxation of asymmetric top molecules in strong electric fields // *Phys. Rev. E.* 2002. V. 65. P. 021101-1 — 021101-8.
9. Titov S.V., Kalmykov Yu.P., Coffey W.T. Extended rotational diffusion and dielectric relaxation of symmetrical top molecules in a dc electric field // *J.Chem.Phys.* 2003. V. 118. P. 209-220.
10. Сторонкин Б.А. Ориентационная релаксация при сильном индуцированном дипольном взаимодействии с внешним полем // *ТМФ.* 1979. Т.41. В.3. С. 395-3405.
11. Сторонкин Б.А., Мелихов А.А., Куни Ф.М. Электрическая релаксация дисперсных частиц во внешних полях // *Коллоид журнал.* — 1979. — Т.41. — С. 289-296.
12. Stoylov S.P., Sokerov S. Light scattering by large slightly anisodiametric particles // *European Polymer J.* — 1970. — V. 6. — P. 1125-1131.
13. Затовский А.В., Салистра Г.И. К теории деполяризованного рассеяния света в растворах // *УФЖ.* — 1973. — Т. 18, №3. — С. 435-439.
14. Berne B.J., Pecora R. Dynamic light scattering. — Florida, 1990.
15. Давыдов А.С. Возбужденные состояния атомных ядер. — М., 1967.
16. Эдмондс А. // Сборник “Деформация атомных ядер”. — М., 1958.
17. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. — М., 1982.
18. Покровский В.Н. Статистическая механика разбавленных суспензий. — М.: Наука, 1978.

*А. В. Кирилюк, О. В. Затовський*

**Релеївське розсіювання світла суспензією анізотропних частинок у зовнішньому електричному полі**

**АНОТАЦІЯ**

Розглянуто вплив зовнішнього електричного поля на спектр релеївського розсіювання світла суспензією анізотропних еліпсоїдальних частинок у простій рідині. Крило лінії Релея має не лорентцеву форму в електричному полі та має тонку структуру у вигляді додаткових локальних максимумів у спектрі, положення яких може бути контрольоване шляхом зміни величини постійного зовнішнього поля.

*Kyrylyuk A. V., Zatovsky A. V.*

**Rayleigh scattering of light by a suspension of anisotropic particles in an external electric field**

**SUMMARY**

The influence of an external electric field on the shape of the wing of the Rayleigh scattering line by dilute solutions of rigid ellipsoids of revolution suspended in a simple liquid is considered. Particles are supposed to have anisotropic electrical characteristics and not to possess a permanent dipole moment. It is shown that the orientation of particles in an external electric field leads to the changes in the shape and in the spectral composition of the scattering line. We found that the wing of the Rayleigh line has essentially a non-Lorentzian shape with additional local maxima in a spectrum. The position and the peak intensity of these maxima strongly depend on the electric field value.

**В. И. Вишняков**

*Одесский национальный университет им. И.И. Мечникова*

## **Агломерация частиц дыма в термической плазме**

Рассмотрены условия взаимодействия частиц конденсированной фазы в плазме продуктов сгорания атмосферного давления. Показано, что стремление частиц конденсированной фазы к агломерации соответствует уменьшению свободной энергии плазмы. Предложен механизм дальнего взаимодействия конденсированных частиц в условиях сильной экранировки, основанный на неоднородной ионизации плазмы.

### **1. Введение**

Плазма продуктов сгорания или низкотемпературная плазма с конденсированной дисперсной фазой относится к числу объектов, получивших название пылевая термическая плазма или дымовая плазма. Такая плазма состоит из частично ионизированного газа, содержащего в себе полидисперсные частицы, и является одним из наиболее сложных вариантов пылевой плазмы. Это обусловлено многообразием неравновесных процессов, протекающих в такой плазме, например, химические реакции в газовой фазе и на поверхности частиц, испарение и конденсация. Интенсивное межфазное взаимодействие приводит к возникновению заряда частиц и, соответственно заряда газовой фазы. Эксперименты [1] показывают, что частицы в плазме не располагаются равномерно, а имеют тенденцию к группированию и агломерации. В качестве примера на рис.1 приведены микрофотографии отобранных в плазме проб. Данная плазма является продуктами сгорания смешанного топлива с внутренним окислителем. Составы содержат 3% перхлората калия, что обеспечивает концентрацию присадки  $6 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ . Кроме того, составы содержат примесь мелкодисперсных частиц кремния в таком количестве, что в продуктах сгорания их концентрация составляет  $n_p = 5 \cdot 10^{10} \text{ м}^{-3}$  — рис.1а и  $n_p = 1,5 \cdot 10^{11} \text{ м}^{-3}$  — рис.1б.

Существующие модели взаимодействия частиц в плазме [2, 3] не могут полностью объяснить агломерацию частиц одного сорта, которые несут одинаковый заряд.

Поэтому, в настоящей работе мы покажем, что агломерация является результатом стремления плазмы к минимизации свободной энергии и попытаемся определить силы, позволяющие взаимодействовать конденсированным частицам на расстояниях, во много раз превышающих длину дебаевского экранирования.

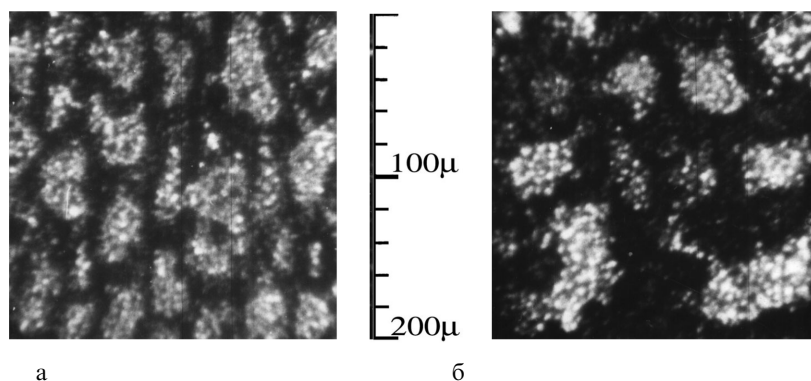


Рис. 1. Микрофотографии проб

## 2. Длина электростатического взаимодействия частиц дыма в плазме

Рассмотрим плазму, состоящую из не ионизируемого буферного газа и ионизируемых атомов одного сорта, ионов и электронов, и содержащую монодисперсные сферические частицы радиуса  $r_p$ . Частицы в плазме сильно экранированы. Плазма продуктов сгорания атмосферного давления существенно столкновительна, поэтому распределение потенциала  $\Phi(r)$  в окрестности частицы описывается нелинейным уравнением Пуассона — Больцмана:

$$\frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left( r^2 \frac{d\phi}{dr} \right) = -\frac{1}{\varepsilon_0} \rho(r) = \frac{e}{\varepsilon_0} \left( n_e^* \exp \frac{e\phi}{kT} - n_i^* \exp \frac{-e\phi}{kT} \right), \quad (1)$$

где  $n_e^*$  и  $n_i^*$  концентрации электронов и ионов в области некоторого нулевого значения потенциала, что не обязательно реализуется в данном объеме плазмы.

Уравнение (1) имеет тривиальное решение ( $\nabla^2 \phi = 0$ ) при некотором значении потенциала:

$$\phi_0 = \frac{kT}{2e} \ln \frac{n_i^*}{n_e^*} \quad (2)$$

и любая из двух замен  $\phi(r) = \phi_0 \pm \varphi(r)$  приводит уравнение (1) к виду:

$$\frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left[ r^2 \frac{d\varphi(r)}{dr} \right] = \frac{2en_q}{\varepsilon_0} \sinh \frac{e\varphi(r)}{kT} \quad (3)$$



где  $n_q = \sqrt{n_e n_i}$  — квазиравновесная концентрация носителей заряда [4],  $\varphi(r)$  — потенциал, отсчитываемый от потенциала плазмы  $\varphi_0 \equiv \varphi_{pl}$ . При этом измеряемый потенциал представляет собой сумму  $\phi = \varphi_{pl} + \varphi(r)$ .

Уравнение (3) легко приводится к безразмерному виду с помощью множителя автономности, который принято называть длиной экранирования Дебая

$$D^2 = \epsilon_0 kT / 2e^2 n_q, \quad (4)$$

при замене переменных  $U(r) = e\phi(r) / kT$ ,  $x = r / D$ :

$$U'' + \frac{2}{x}U' = \sinh(U) \quad (5)$$

Детальное исследование [5] этого уравнения позволило найти асимптотики всех решений, представленные на рис.2. Отсюда видно, что при неизменном значении потенциала на поверхности зерна, напряженность поля у поверхности уменьшается с увеличением радиуса зерна. То есть мелкие зерна экранируются на более коротких дистанциях.

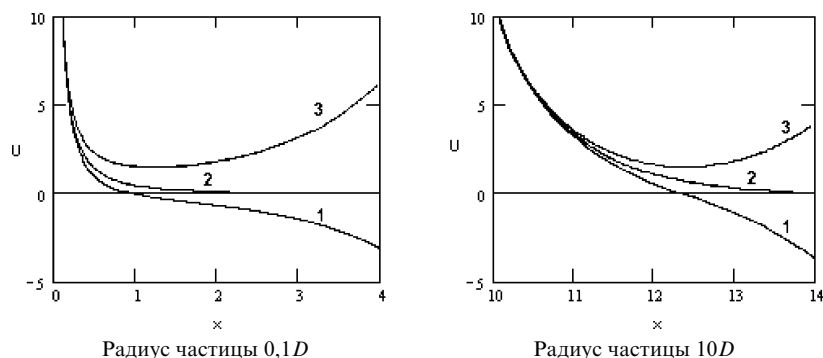


Рис. 2. Решения уравнения (5)

Отсюда видно, что при неизменном значении потенциала на поверхности зерна, напряженность поля у поверхности уменьшается с увеличением радиуса зерна. То есть мелкие зерна экранируются на более коротких дистанциях.

Нас интересует, насколько далеко от поверхности частицы может распространяться поле, то есть, на каком расстоянии существует электрическое взаимодействие между частицами. Поэтому ограничимся только случаем наиболее слабой экранировки, когда радиус частицы настолько велик, что

поверхность можно считать плоской. Тогда в уравнении (5) можно пренебречь членом  $2U'/x$ , а само уравнение можно привести к интегралу

$$\int \frac{dU}{2\sqrt{\sinh^2(U/2) + \delta}} = \mp x \quad (6)$$

Решения такого уравнения представимы в эллиптических функциях Якоби. Это периодические функции с периодом  $4\mathbf{K}$ , где  $\mathbf{K}$  — полный эллиптический интеграл I рода

$$\mathbf{K}(m) = \int_0^1 \frac{dt}{\sqrt{(1-t^2)(1-mt^2)}}, \quad (7)$$

где  $m = 1 - \delta$  для  $\delta > 0$  и  $m = 1/(1 - \delta)$  для  $\delta < 0$ .

Это означает, что на расстоянии  $2\mathbf{K}$  функция, описывающая распределение потенциала изменяется от одного бесконечно большого значения потенциала до другого бесконечно большого значения потенциала, то есть толщина слоя плазмы  $L$  ограничена соотношением

$$L/D < 2\mathbf{K} \quad (8)$$

Условия существования плазмы предполагают, что размеры слоя плазмы много больше длины экранирования, чему соответствует  $\mathbf{K} \gg 1$ . Из свойств интеграла (7) следует, что большим значениям  $\mathbf{K}$  соответствует значение параметра  $m = 1$ . Например, значению  $\mathbf{K} = 4$  соответствует значение  $m = 0,995$  откуда следует  $\delta = \pm 0,005$ .

Следовательно, если расстояние между частицами больше  $8D$ , величиной  $\delta$  в уравнении (6) можно пренебречь, и распределение потенциала соответствует случаю полубесконечной плазмы. Это означает, что электрическое поле ни при каких обстоятельствах не распространяется за пределы четырех дебаевских радиусов от поверхности частицы. В реальной плазме среднее расстояние между частицами много больше длины экранирования, поэтому взаимодействие частиц друг с другом на дальних расстояниях не может иметь электрическую природу.

### 3. Свободная энергия дымовой плазмы

Из вышеизложенного следует, что одна дымовая частица вносит в плазму возмущение с максимальным характерным радиусом  $r_p + 4D$ . Тогда все свободные дымовые частицы вносят в плазму суммарное возмущение объемом

$$V_p = \frac{4}{3}\pi (r_p + 4D)^3 N_p. \quad (9)$$

где  $N_p$  — общее количество частиц, коэффициентом плотности упаковки  $\pi / \sqrt{18}$  мы пренебрегаем.

Когда частицы объединяются в агломерат, электрические возмущения, генерируемые каждой частицей, сосредоточены внутри агломерата. Плазму возмущает только потенциал внешнего слоя агломерата (рис.3). Поэтому характерный объем возмущения агломерата равен:

$$V_{ag}(x) = \frac{4}{3}\pi \left[ (r_p + x) N_p^{1/3} + 4D \right]^3 \quad (10)$$

где  $x$  — половина расстояния между поверхностями частиц.

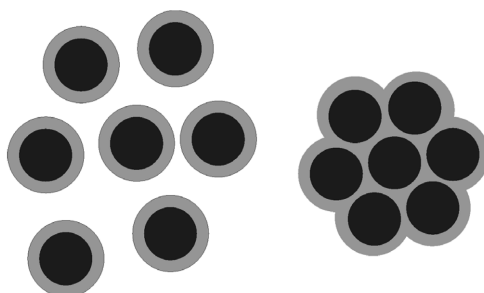


Рис. 3. Возмущения, вносимые частицами в плазму

Из выражений (9) и (10) видно, что когда  $x < 4D$ , возмущение, вносимое агломератом меньше, чем возмущение, вносимое свободными частицами.

Свободная энергия Гельмгольца плазмы зависит от общего объема возмущений, вносимых частицами. Количество возможных состояний электронов и ионов плазмы тем больше, чем меньше вносимые частицами возмущения. Если частицы сближаются на расстояние, меньшее  $4D$ , суммарный объем возмущений уменьшается, соответственно уменьшается свободная энергия плазмы.

В приближении идеального газа свободная энергия компонент газовой фазы плазмы равна [6]:

$$F_j = -N_j kT \left( 1 + \ln \frac{V}{N_j V_{Qj}} \right), \quad (11)$$

где  $N_j$  — количество частиц вида  $j$  ( $j$  равно  $e$  — для электронов,  $i$  — для ионов, и  $a$  — для атомов присадки),  $V$  — объем системы,  $V_{Qj} = (2\pi\hbar^2 / m_j k_B T)^{3/2}$  — квантовый объем компоненты  $j$ .

Мы можем пренебречь вкладом электронов в общую свободную энергию. Когда дымовые частицы собраны в агломерате, невозмущенная плазма занимает объем  $V - V_{ag}(x)$ . Тогда зависимость свободной энергии газовой фазы плазмы от объема возмущений можно представить в виде

$$F_{pl}(x) = -N_{ia} kT \left[ 1 + \ln \frac{V - V_{ag}(x)}{N_{ia} V_{Qa}} \right] \cong F_{pl}^0 + N_{ia} kT \frac{V_{ag}(x)}{V} \quad (12)$$

где  $F_{pl}^0$  — свободная энергия плазмы, занимающей объем  $V$  и не содержащей частиц дыма (11),  $N_{ia}$  — количество ионов и атомов присадки. Также мы приняли во внимание, что  $V \gg V_{ag}$ . Электронным вкладом в общую свободную энергию мы пренебрегаем.

Нас интересует только переменная составляющая свободной энергии, поэтому перепишем (12) в виде:

$$\Delta F_{pl}(x) = -N_{ia} kT \ln \frac{V - V_{ag}(x)}{V} \cong N_{ia} kT \left( \frac{V_{ag}(x)}{V} \right), \quad (13)$$

Свободная энергия подсистемы частиц зависит не только от занимаемого ими объема, но и от взаимодействия частиц между собой  $U(x)$ . На расстояниях больших  $8D$  частицы не взаимодействуют между собой. Это равносильно тому, что они распределены равномерно по всему объему  $V$ . Таким образом:

$$\Delta F_p(x) = -N_p kT \ln \frac{\frac{4}{3} \pi (r_p + x)^3}{V} + N_p U(x). \quad (14)$$

где  $N_p$  — количество частиц.

Энергия взаимодействия частиц в агломерате определяется работой электрических сил, которая необходима для перемещения частиц из некоторой существующей конфигурации на расстояние  $4D$ . Компьютерное моделирование показывает, что достаточно учесть влияние 12 ближайших соседей:

$$U(x) \cong 12 Q_p \varphi_p \frac{r_p}{r_p + x} \exp \frac{-x}{D}$$

где  $Q_p$  — заряд частиц.

Результирующая зависимость свободной энергии от расстояния между частицами есть сумма (13) и (14).

$$\Delta F \cong N_{ia} kT \left( \frac{V_{ag}(x)}{V} \right) - N_p kT \ln \frac{\frac{4}{3} \pi (r_p + x)^3}{V} + N_p 12 Q_p \phi_p \frac{r_p}{r_p + x} \exp \frac{-x}{D} \quad (15)$$

На рис.4 представлена зависимость свободной энергии от расстояния между частицами для плазмы со следующими параметрами: общая концентрация ионов и атомов  $N_{ia} = 10^{21} \text{ м}^{-3}$ ; концентрация частиц  $n_p = 10^{12} \text{ м}^{-3}$ ; радиус частиц  $r_p = 1 \mu\text{м}$ ; температура  $T = 2300 \text{ К}$  ( $0.2 \text{ eV}$ ); потенциал ионизации атомов  $I = 4.3 \text{ eV}$ ; работа выхода электрона из частицы  $W = 3.4 \text{ eV}$ .

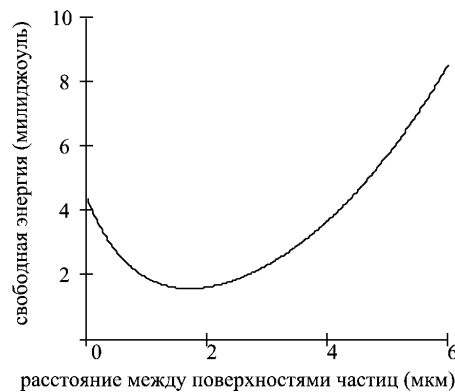


Рис. 4. Зависимость свободной энергии, рассчитанной по формуле (15) от расстояния между поверхностями частиц.

Из графика следует, что расстояние между поверхностями частиц около 2 мкм соответствует равновесию системы.

Таким образом, стремление частиц к агломерации соответствует стремлению пылевой плазмы к состоянию равновесия. Отметим, что незаряженные частицы в плазме вероятно, будут распределены равномерно, так как они не вносят в плазму возмущений, превышающих их размер.

#### 4. Дальнее взаимодействие между частицами дыма

Межфазное взаимодействие в плазме продуктов сгорания приводит к смещению ионизационного равновесия, которое описывается параметром неравновесности  $\Psi$ , определяющим отклонение степени ионизации от формулы Саха [1].

$$\frac{n_e n_i}{n_a} = K_s \exp \frac{\Psi}{kT}, \quad (16)$$

где  $K_S = 2 \frac{g_i}{g_a} \left( \frac{m_e kT}{2\pi\hbar^2} \right)^{3/2} \exp \frac{-I}{kT}$  — константа Саха,  $g_i$ ,  $g_a$  — статистический вес ионов и атомов,  $I$  — потенциал ионизации.

Параметр неравновесности линейно связан с потенциалом плазмы [7]:  $\Psi = -e\varphi_{pl}$ . Величина параметра неравновесности определяется свойствами поверхности частиц дыма и характером межфазного обмена. Плазма продуктов сгорания обычно содержит полидисперсную конденсированную фазу, которая состоит из частиц разного химического состава с разной работой выхода. Тогда равновесию на границе раздела фаз частиц разного сорта соответствуют различные значения потенциала плазмы и параметра неравновесности  $\Psi$ . Отсюда следует, что потенциал плазмы не может быть одинаковым для всего объема плазмы, кроме случая монодисперсного распределения частиц одного сорта.

Обратимся к уравнению Пуассона (1). Заметим, что всеми свойствами тривиального решения обладает любое решение уравнения Лапласа  $\nabla^2\phi = 0$  и все решения уравнения (1) будут симметричны относительно функции вида

$$\varphi_{pl}(r) = a/r + b. \quad (17)$$

Аналогично может изменяться и параметр неравновесности, а следовательно и квазиравновесная концентрация. Это означает, что ионизационное возмущение, вносимое в плазму частицей, не распространяется на всю плазму, а затухает по гиперболическому закону. Частицы каждого сорта вносят в плазму свои возмущения, которые затухают по мере удаления от частиц и образуют некоторые усредненные значения потенциала плазмы, параметра неравновесности и квазиравновесной концентрации.

Термодинамические силы, возникающие в результате существования градиента параметра неравновесности не подвержены экранировке, поэтому обладают достаточным дальним действием для обеспечения взаимодействия частиц друг с другом.

Рассмотрим перенос импульса на единицу площади  $\Delta S$  частицы. Суммарный импульс определяется импульсами электронов, ионов и атомов. Импульсом, переносимым электронами можно пренебречь. Тогда остается

$$p_i = -\frac{1}{3} \lambda_i \bar{C}_i m_i \nabla(n_i v_i) \Delta S \Delta t, \quad p_a = -\frac{1}{3} \lambda_a \bar{C}_a m_a \nabla(n_a v_a) \Delta S \Delta t, \quad (18)$$

где  $\lambda$  — длина свободного пробега,  $\bar{C}_j = \sqrt{8kT/\pi m_j}$  — тепловая скорость,  $v$  — скорость компоненты в направлении, нормальном к поверхности частицы.

Учтем, что скорость атомов определяется только тепловой скоростью

$v_a = \bar{C}_a$ , тогда, как ионы обладают кроме тепловой скорости, еще и дрейфовой скоростью в поле частицы  $v_i = \bar{C}_i + v_E$ , при этом для ионов и атомов можно положить равными массу  $m_i \cong m_a$ , тепловую скорость  $\bar{C}_i \cong \bar{C}_a$  и длину свободного пробега  $\lambda_i \cong \lambda_a$ . Концентрации атомов и ионов присадки удовлетворяют соотношению  $n_i + n_a = N_A = Const$ .

Тогда из (18) получим:

$$p = p_i + p_a = -\frac{1}{3} \lambda \bar{C} m \nabla (n_i v_E) \Delta S \Delta t \quad (19)$$

Неравновесная концентрация ионов в слое пространственного заряда частицы определяется выражением [4]:

$$n_i = n_0 \exp \frac{-e\varphi}{kT} = n_0 \exp \frac{\psi / 2 - e\varphi}{kT}, \quad (20)$$

где  $n_0$  — невозмущенная концентрация, определяемая по уравнению Саха.

Выразим дрейфовую и тепловую скорости через время жизни иона (атома):  $v_E = e \frac{\tau}{m} E$ ,  $\bar{C} = \frac{\lambda}{\tau}$ .

Тогда из (19) и (20) получим для поверхностной плотности силы, действующей на дымовую частицу в результате столкновений с ионами и атомами:

$$f = -\frac{1}{3} \lambda^2 n_i e \left[ \nabla E_s + \frac{e}{kT} E_s^2 + \frac{1}{2kT} E_s \nabla \psi \right] \quad (21)$$

Сила, действующая на частицу, определяется суммированием по поверхности плотности силы (21). При этом, если расстояние между частицами превышает  $8D$ , то электрическое поле возбуждается только данной частицей и является, поэтому, радиально симметричным. Следовательно, в выражении для силы остается

$$F = -\frac{\lambda^2 e n_0 E_s \exp(-e\varphi_s / kT)}{6kT} \exp \frac{\psi_s}{2kT} \int_s \nabla \psi \cdot dS \quad (22)$$

Заметим, что мы вынесли из под знака интегрирования поверхностное значение параметра неравновесности  $\psi_s$ , так как это значение определяется только равновесием на границе раздела фаз и не зависит от влияния других частиц, в то время, как градиент параметра неравновесности определяется и данной частицей и соседними.

## 5. Заключение

Из вышеизложенного следует, что взаимодействие сильно экранированных частиц в плазме можно объяснить их возмущением ионизационного равновесия. При этом, возмущение, вносимое частицей затухает по гиперболическому закону и действует на соседние частицы в виде анизотропии плотности потока импульса, передаваемого частице в результате столкновений с атомами и ионами плазмы.

Таким образом, для положительных частиц передача импульса осуществляется преимущественно столкновениями с атомами. При этом, чем меньше расстояние между соседними частицами, тем выше степень ионизации. Соответственно концентрация атомов понижается. Концентрация атомов выше со стороны большего расстояния между частицами и существует несбалансированный импульс, сближающий частицы.

Для отрицательных частиц существенным оказываются столкновения с ионами, так как ионы ускоряются в поле частицы. При сближении частиц в данном случае степень ионизации уменьшается. В результате концентрация ионов выше со стороны большего расстояния между частицами и опять существует несбалансированный импульс, сближающий частицы.

Как мы видим, неоднородность степени ионизации плазмы приводит к сближению одноименно заряженных частиц. Когда частицы сближаются на расстояние меньшее  $8D$ , то существенным оказывается электрическое отталкивание, которое вместе со столкновительными процессами приведет к некоторому стационарному расположению частиц.

## Литература

1. Вишняков В.И., Драган Г.С., Маргашук С.В. Межфазные взаимодействия в низкотемпературной плазме. Химия плазмы. Вып. 16 — М.: Энергоатомиздат, 1990. — С. 98-120.
2. Фролов Ю. В., Гладун В. Д. Агломерация при горении высокометаллизированных составов // Физика аэродисперсных систем. — Киев — Одесса: Вища школа, 1978. — Вып. 18. — С. 54-58.
3. Локотош Т. В., Маломуж Н. П., Морозов А. Н. Флуктуационно — мультипольный механизм дальнедействующих межчастичных взаимодействий в дисперсных системах // Физика аэродисперсных систем. — Одесса: Астропринт, 1998. — Вып. 37. — С. 25-31.
4. Драган Г.С. Влияние концентрации легкоионизирующейся присадки на поверхностные процессы в пылевой плазме // Физика аэродисперсных систем. — Одесса: Астропринт, 2002. — №39. — С. 249-256.
5. Вишняков В.И., Драган Г.С., Евтухов В.М., Маргашук С.В. Распределение электростатического потенциала в сферически симметричной плазме. Деп. ВИНТИ № 8791, 1986, реф. ТВТ. — 1987. — Т. 25. — С. 620.
6. Киттель Ч. Статистическая термодинамика. — М.: Наука, 1977. — С. 255.



7. Драган Г. С. Межфазные термодинамические взаимодействия в плазме продуктов сгорания // Вестник Одес. гос. ун-та. — 2003. — Т. 8, вып.2. Физ.-мат. науки. — С. 163-185.

*В. І. Вишняков*

**Агломерація часток диму у термічній плазмі**

**АНОТАЦІЯ**

Розглянуті умови взаємодії часток конденсованої фази у плазмі продуктів згорання атмосферного тиску. Показано, що спрямованість часток конденсованої фази до агломерації згідно зменшенню вільної енергії плазми. Запропоновано механізм дальньої взаємодії конденсованих часток в умовах сильної екраніровки, ґрунтований на неоднорідній іонізації плазми.

*Vishnyakov V. I.*

**Agglomeration of the smoke particles in thermal plasmas**

**SUMMARY**

Conditions of the condensed phase particles interaction in plasma of combustion products of atmospheric pressure are investigated. It is shown, that the aspiration of condensed phase particles to agglomeration corresponds to diminution of a free energy of plasma. The mechanism of long-range interaction of the condensed particles in requirements of the strong shielding, based on the non-homogeneous ionization of plasma is offered.

**В. И. Вишняков, Г. С. Драган, Н. А. Тамарина**

*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

## **Изолированный зонд в термической плазме**

Исследовано взаимодействие термической плазмы атмосферного давления, содержащей легкоионизирующуюся присадку с изолированным металлическим зондом. Проведен учет процессов ионизации атомов и рекомбинации ионов на поверхности зонда. Определены выражения параметра неравновесности с учетом объемных и поверхностных процессов. Получены уравнения, позволяющие определить плавающий потенциал зонда с учетом смещения ионизационного равновесия плазмы, вызванного как самим зондом, так и частицами конденсированной дисперсной фазы.

Зондовая диагностика плазмы является одним из самых информативных методов диагностики, однако редко применяется в термической плазме из-за сложности учета воздействия зонда на плазму. Теория электрического зонда в плазме была впервые построена Ленгмюром [1-3] и основывалась на совместном решении уравнения Пуассона, уравнения непрерывности тока и уравнения движения носителей заряда. При этом столкновения между заряженными частицами не учитывались. Такой подход применим для бесстолкновительной плазмы и совершенно не пригоден для термической плазмы атмосферного давления, в которой ионизационное равновесие обеспечивается за счет неупругих столкновений газовых частиц — электронов, ионов и атомов.

В работах [3-7] были предприняты попытки разработать методику зондовой диагностики в столкновительной плазме на основе корректного задания граничных условий для уравнения Пуассона и уравнений непрерывности потоков носителей заряда, а также вида коэффициентов переноса. Такая задача решается численно, причем задаются граничные условия на поверхности зонда и в невозмущенной области плазмы.

Граничные условия подобного рода невозможно задать в термической плазме, содержащей частицы конденсированной дисперсной фазы, так как весь объем плазмы оказывается возмущенным в результате межфазного взаимодействия. Кроме того, в столкновительной плазме необходимо учесть процессы ионизации атомов и рекомбинации ионов на поверхности зонда.

Поэтому целью данной работы является построение модели взаимодействия изолированного металлического зонда с плазмой продуктов сгорания, содержащей присадку атомов щелочного металла, с учетом поверхностных процессов.

В пламя трех — щелевой газовой горелки помещались два электрода, как это изображено на рис. 1. Горелка атомного адсорбционного спектрофотометра С-115 снабжена устройством всасывания жидкой пробы и распылителем, что позволяет вводить в пропан — воздушное пламя присадку калия в виде 5% водного раствора поташа. Electroды представляют собой стальные пластины размером 4x10 см и толщиной 0,5 см. Электрический зонд представляет собой стальную проволоку диаметром 0,2 мм и длиной 3 мм. Зонд стальной с той целью, чтобы материал электродов и материал зонда был одним и тем же. В измерениях зонд предварительно разогревался до стационарного значения температуры и только после этого начиналась регистрация плавающего потенциала с помощью высокоомного компенсационного самописца К-101 ( $R_{вх} = 10^{10}$  ом). Температура электродов контролировалась термомпарами и составляла 1000 — 1050 К, что приблизительно в 1,2 раза меньше температуры пламени, которая измерялась трех цветовым пирометром и составляла 1200 К.

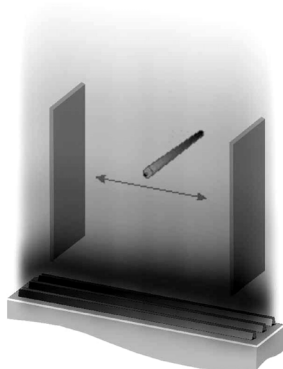


Рис. 1. Схема измерения плавающего потенциала зонда

На рис. 2 представлены результаты измерения плавающего потенциала зонда для случая, когда оба электрода заземлены.

Отсюда видно, что вне слоя пространственного заряда, образованного в плазме электродами, потенциал зонда относительно заземленных электродов имеет постоянное значение и составляет около 2 В. Ввиду того, что работа выхода электрона из зонда и электродов в плазму одинакова, это значение потенциала можно в большой мере связать с наличием объемного заряда в плазме, обуславливающего некоторое среднее значение потенциала, отличное от нуля.

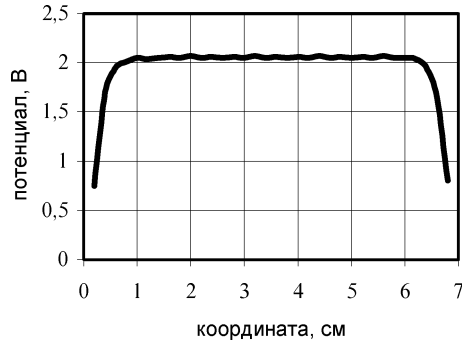


Рис. 2. Плавающий потенциал зонда в промежутке между плоскими электродами

Поэтому мы не можем выбрать нулевое значение потенциала в качестве граничного условия. Вместо этого отсчет потенциала будем производить от потенциала плазмы  $\varphi_{pl}$ . Потенциал плазмы характеризует работу, которую необходимо совершить для того, чтобы объем плазмы приобрел некоторый заряд  $Q_{pl}$  и определяется через энергию электрического поля:

$$\varphi_{pl} = \frac{\varepsilon_0}{Q_{pl}} \int E^2 dV. \quad (1)$$

При этом ионизационное равновесие в такой плазме, содержащей легко-ионизируемую присадку в концентрации  $N_a$  и частицы конденсированной фазы описывается модернизированным уравнением Саха [8-10]:

$$\frac{n_e n_i}{n_a} = \frac{g_i}{g_a} v_e \exp \frac{-I + \psi}{kT} = K_s \exp \frac{\psi}{kT}, \quad (2)$$

где  $v_e = 2 \left( \frac{m_e kT}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2}$  — эффективная плотность состояний электронов,  $n_e$  — концентрация электронов,  $n_i$  — концентрация ионов,  $n_a$  — концентрация атомов ( $n_i + n_a = N_a$ ),  $g_i$  — статистический вес иона,  $g_a$  — статистический вес атома,  $m_e$  — масса электрона,  $T$  — температура,  $k$  — постоянная Больцмана,  $\hbar$  — постоянная Планка,  $I$  — потенциал ионизации атомов легко-ионизируемой присадки,  $K_s$  — константа Саха,  $\psi$  — параметр неравновесности плазмы.

Параметр неравновесности плазмы характеризует отсутствие равенства концентраций электронов и ионов ввиду межфазного взаимодействия и линейно связан с потенциалом плазмы  $\Psi \cong -e\phi_{pl}$ . При отсутствии частиц в плазме параметр  $\Psi$ , равно как и потенциал плазмы равны нулю, а концентрации электронов и ионов равны невозмущенной концентрации  $n_{e0} = n_{i0} = n_0$ . При этом уравнение (2) переходит в обычное уравнение Саха.

Помимо этого ранее не учитывались процессы ионизации и рекомбинации на поверхности зонда, что допустимо только при низкой концентрации легкоионизируемой присадки ( $N_a < 10^{20} \text{ м}^{-3}$ ). Увеличение концентрации присадки приводит к увеличению взаимодействия зонда с ионами и атомами газовой фазы плазмы.

Взаимодействие частиц конденсированной фазы с газовой фазой плазмы приводит к смещению ионизационного равновесия. Аналогичные процессы должны происходить при взаимодействии зонда с плазмой. В этом случае также возможно смещение ионизационного равновесия в приэлектродном слое, которое мы будем описывать некоторым параметром  $\Psi_s$  в отличие от параметра  $\Psi_0$ , которым будем описывать смещение ионизационного равновесия в результате межфазного взаимодействия плазмы с частицами.

Рассмотрим изолированный зонд, находящийся в термодинамическом равновесии с плазмой, состоящей из атомов, электронов и однозарядных ионов. Будем считать, что размеры зонда значительно превышают длину свободного пробега в плазме, поэтому можно рассматривать взаимодействие плазмы с плоской металлической поверхностью.

На рис.3 представлена энергетическая диаграмма контакта металл — плазма.

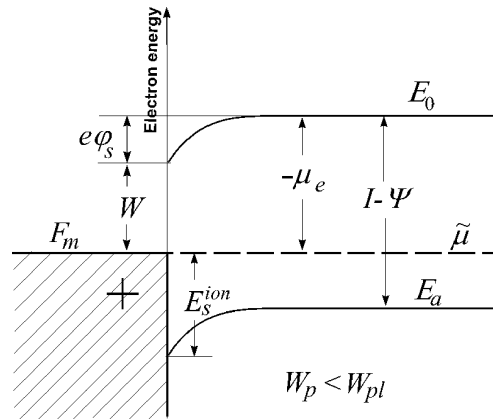


Рис. 3. Энергетическая диаграмма контакта металл — плазма

Энергетические уровни  $E_0$  и  $E_a$  означают нижнюю границу энергетического спектра свободных электронов и ионов (уровень валентного электрона атома) соответственно. Равновесие в контакте означает совпадение уровня электрохимического потенциала плазмы  $\tilde{\mu}$  с уровнем Ферми металла  $F_m$ . Разница между уровнями  $E_0$  и  $\tilde{\mu}$  определяется химическим потенциалом электронов плазмы  $\mu_e$ . Параметр межфазного взаимодействия  $\Psi$  в данном случае должен включать в себя объемное значение  $\Psi_0$ , отвечающее за взаимодействие плазмы с частицами конденсированной фазой (если частицы отсутствуют, то  $\Psi_0 = 0$ ) и некоторую дополнительную часть, возникающую в результате изменения зарядового состояния плазмы под действием электрода. То есть  $\Psi = \Psi_0 - e\phi_{pls}$ , где  $\phi_{pls}$  — потенциал плазмы в слое объемного заряда у поверхности электрода. Это значение параметра неравновесности описывает степень ионизации плазмы в приэлектродном слое объемного заряда и его следует отличать от поверхностного значения  $\Psi_s$ , которое определяет собственно взаимодействие плазмы с электродом и применимо только непосредственно к поверхностному слою, толщиной порядка атомного радиуса.

Обмен электронами между зондом и плазмой представим в виде следующих потоков.

– Поток термоэлектронной эмиссии с поверхности Ричардсона — Дэшмана:

$$j_e^T = -\frac{4\pi e m_e k^2 T^2}{(2\pi\hbar)^3} \exp\left(-\frac{W}{kT}\right), \quad (3)$$

где  $j$  — плотность электрического тока в направлении от частицы в плазму,  $W$  — работа выхода электрона из металла в плазму.

– Обратный поток поглощения электронов поверхностью электрода:

$$j_e^{abs} = \frac{1}{4} n_{es} \bar{C}_e, \quad (4)$$

где  $\bar{C}_e = \sqrt{8kT/\pi m_e}$  — тепловая скорость электронов,  $n_{es}$  — концентрация электронов у поверхности электрода.

– Плотность тока поверхностной рекомбинации ионов:

$$j_i^{rec} = -\frac{1}{4} \gamma_s n_{is} \bar{C}_i, \quad (5)$$

где  $\bar{C}_i$  — тепловая скорость ионов,  $n_{is}$  — поверхностная концентрация ионов,  $\gamma_s$  — коэффициент поверхностной рекомбинации ионов.

– Плотность тока поверхностной ионизации атомов:

$$j_a^{ion} = \frac{1}{4} \beta_s e n_{as} \bar{C}_a, \quad (6)$$

где  $\bar{C}_a$  — тепловая скорость атомов ( $\bar{C}_i \cong \bar{C}_a$ ),  $n_{as} = N_A - n_{is}$  — поверхностная концентрация атомов,  $\beta_s$  — коэффициент поверхностной ионизации атомов.

Работа выхода электрона из металла в плазму отличается от работы выхода из металла в вакуум (именно это значение приводится в справочной литературе) на величину потенциального барьера в плазме на границе плазма — вакуум. Величину потенциального барьера находим из условия амбиполярной диффузии носителей заряда [9]:

$$e\varphi_v = -\frac{1}{4} kT \ln \frac{m_i}{m_e}. \quad (7)$$

Следовательно, если работа выхода из металла в вакуум есть  $W_g$ , то работа выхода из металла в плазму есть  $W = W_g - \frac{1}{4} kT \ln(m_i / m_e)$

Мы будем считать актом взаимодействия иона или атома плазмы с поверхностью электрода адсорбцию соответствующей газовой частицы на поверхности, перенос электрона в том или ином направлении и десорбцию частицы, так как необходимым условием ионизационного равновесия является возврат газовой частицы в плазму.

Как видно из диаграмм, процесс ионизации атомов присадки плазмы означает переход валентного электрона с уровня  $E_a$  на уровень Ферми металла, для чего электрону необходима энергия

$E_s^{ion} = I - \psi + \mu_e + e\varphi_s = I - \psi - W$ . Соответственно коэффициент поверхностной ионизации, определяющий вероятность ионизации атомов на поверхности металла равен:

$$\beta_s = \frac{g_i / g_a \cdot \exp(-E_s^{ion} / kT)}{1 + g_i / g_a \cdot \exp(-E_s^{ion} / kT)} \exp \frac{-\varepsilon_i}{kT}, \quad (8)$$

где  $g_i, g_a$  — статистический вес ионов и атомов соответственно,  $\varepsilon_i$  — энергия активации десорбции иона.

Процесс рекомбинации иона на поверхности электрода означает переход электрона с уровня Ферми металла на свободный уровень валентного электрона иона, то есть энергия рекомбинации равна  $-E_s^{ion}$ . Соответственно коэффициент поверхностной рекомбинации равен:

$$\gamma_s = \frac{g_a / g_i \cdot \exp(E_s^{ion} / kT)}{1 + g_a / g_i \cdot \exp(E_s^{ion} / kT)} \exp \frac{-\varepsilon_a}{kT} = \frac{1}{1 + g_i / g_a \cdot \exp(-E_s^{ion} / kT)} \exp \frac{-\varepsilon_a}{kT}, \quad (9)$$

где  $\varepsilon_a$  — энергия активации десорбции атома.

Из принципа детального равновесия следует, что в состоянии равновесия потоки тяжелой и легкой компонент должны быть попарно уравновешены, то есть в отсутствии тока внешней цепи должны выполняться равенства:

$$j_e^T + j_{e0}^{abs} = 0, \quad j_{i0}^{rec} + j_{a0}^{ion} = 0, \quad (10)$$

где индекс “0” означает отсутствие тока внешней цепи.

Тогда из баланса токов электронной компоненты следует выражение для поверхностной концентрации электронов

$$n_{es} = 2 \left( \frac{m_e kT}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2} \cdot \exp \left( \frac{-W}{kT} \right) \equiv v_e \exp \left( \frac{-W}{kT} \right). \quad (11)$$

Как видно из выражения (11), поверхностная концентрация электронов в равновесном случае зависит только от температуры зонда.

Сумма токов (5) и (6) определяет степень ионизации атомов присадки у поверхности зонда (известное как уравнение Саха — Ленгмюра)

$$\frac{n_{is}}{n_{as}} = \frac{g_i}{g_a} \exp \left( \frac{W - I + \psi}{kT} \right) \exp \left( \frac{\varepsilon_a - \varepsilon_i}{kT} \right) \quad (12)$$

Для определения коэффициентов поверхностной ионизации и рекомбинации необходимо знать величины энергии активации десорбции иона  $\varepsilon_i$  и атома  $\varepsilon_a$  с поверхности частицы, которые в настоящее время определить не представляется возможным. Поэтому определим разность в энергиях активации десорбции. Так как ион отличается от атома присадки только наличием заряда, то разность в энергиях активации десорбции определится величиной потенциального барьера на границе частица — плазма  $\varepsilon_a - \varepsilon_i = e\varphi_s$ .

Тогда, из уравнений (2), (11) и (12), получаем выражение для равновесной поверхностной ионизации:

$$\frac{n_{es} n_{is}}{n_{as}} = K_S \exp \left( \frac{\psi + e\varphi_s}{kT} \right). \quad (13)$$

Параметр неравновесности  $\psi = \psi_0 - e\varphi_{pls}$  определяется объемным зарядом плазмы в приэлектродном слое. Как следует из выражения (13) в поверхностном слое значение параметра неравновесности отличается от его объемного значения:



$$\psi_s = \psi_0 - e\varphi_{pls} + e\varphi_s. \quad (14)$$

Следовательно, степень ионизации плазмы изменяется в поверхностном слое как за счет объемного заряда плазмы ( $\varphi_{pls}$ ), так и за счет обменных процессов в контакте, определяющих значение плавающего потенциала зонда  $\varphi_s$ .

Значение потенциала плазмы у поверхности электрода можно определить через энергию поля в слое пространственного заряда:

$$\varphi_{pls} e \int_0^{4R_D} [n_i(x) - n_e(x)] dx = \varepsilon_0 \int_0^{4R_D} \left( \frac{d\varphi}{dx} \right)^2 dx. \quad (15)$$

Концентрации электронов и ионов задаются распределением Больцмана:

$$n_e = n_q \exp(e\varphi/kT), \quad n_i = n_q \exp(-e\varphi/kT). \quad (16)$$

где  $n_q = \sqrt{n_e n_i}$  — квазиравновесная концентрация, которая находится из уравнения (13),  $R_D = \sqrt{e^2 n_q / \varepsilon_0 kT}$  — длина экранирования Дебая.

Распределение электрического потенциала в приэлектродном слое находится из решения уравнения Пуассона:

$$\frac{d^2\varphi}{dx^2} = -\frac{e}{\varepsilon_0} (n_i - n_e) = \frac{2en_q}{\varepsilon_0} \sinh\left(\frac{e\varphi}{kT}\right), \quad (17)$$

при этом потенциал  $\varphi$  отсчитывается от потенциала плазмы.

Подробное исследование этого уравнения [12] показало, что на расстоянии  $4R_D$  от поверхности потенциал изменяется от бесконечно большого значения до величины  $0.1kT$ , то есть максимальная толщина слоя объемного заряда составляет  $4R_D$ . Этим обусловлен выбор верхнего предела интегрирования в выражении (15).

Решением этого уравнения является функция [13]:

$$\varphi(x) = 2 \frac{kT}{e} \ln \left[ \frac{1 + \tanh(e\varphi_s / 4kT) e^{-x}}{1 - \tanh(e\varphi_s / 4kT) e^{-x}} \right], \quad \frac{d\varphi}{dx} = -2 \frac{kT}{eR_D} \sinh\left(\frac{e\varphi}{2kT}\right). \quad (18)$$

Учитывая уравнение (17), выражение (15) можно привести к виду:

$$\varphi_{pls} \left( \frac{d\varphi}{dx} \right)_0^{4R_D} = - \int_0^{4R_D} \left( \frac{d\varphi}{dx} \right)^2 dx. \quad (19)$$

Учитывая, далее, выражение для производной (18), из уравнения (19) получим:

$$\varphi_{pls} = -2 \frac{kT}{e} \cdot \tanh \frac{e\varphi_s}{4kT}. \quad (20)$$

Следовательно зависимость параметра неравновесности (14) от величины потенциального барьера можно представить следующим выражением:

$$\psi_s = \psi_0 + e\varphi_s + 2kT \cdot \tanh \frac{e\varphi_s}{4kT}. \quad (21)$$

Поверхностные значения потенциала плазмы (20) и параметра неравновесности (21) характеризуют состояние равновесия между электродом и плазмой, и отличаются от значений этих параметров в объеме плазмы, вдали от зонда, так как объемные значения  $\psi_0$  и  $\varphi_{pl}$  определяются взаимодействием между конденсированными частицами и газовой фазой. Однако знание поверхностных значений необходимо для определения параметров обменных процессов и величины потенциального барьера на границе зонд — плазма. Величина потенциального барьера определяется следующими уравнениями:

1.  $\frac{n_{es} n_{is}}{n_{as}} = K_S \exp \frac{\psi_s}{kT};$
2.  $n_{is} = n_{es} \exp \frac{-2e\varphi_s}{kT};$
3.  $n_{es} = v_e \exp \frac{-W}{kT};$
4.  $n_{as} = N_a - n_{is};$
5.  $\psi_s = \psi_0 + e\varphi_s + 2kT \cdot \tanh \frac{e\varphi_s}{4kT}.$

Для случая плотной плазмы, когда  $N_a \gg n_{is}$ , и малых значений потенциала электрода  $e\varphi_s \ll 4kT$ , эти уравнения можно упростить и привести к виду:

$$\varphi_s = \frac{2kT}{7e} \left( \ln \frac{n_{es}^2}{N_a K_S} - \frac{\psi_0}{kT} \right).$$

Измеряемое значение потенциала зонда (“плавающий потенциал”) определяется суммой высоты потенциального барьера  $\varphi_s$  и потенциала плазмы, в окрестности зонда:

$$\varphi_f = \varphi_s - 2 \frac{kT}{e} \cdot \tanh \frac{e\varphi_s}{4kT}. \quad (22)$$

Неизвестной величиной остается  $\psi_0$  — параметр межфазного взаимодействия в плазме, но именно эту величину и необходимо получить при обработке вольт — амперных характеристик зонда.

#### Литература

1. Ф. Чэн. Электрические зонды // *Диагностика плазмы* / Под ред. Р. Хадлстоуна и С. Леонарда. — М.: Мир, 1967.
2. Л. Шотт. Электрические зонды // *Методы исследования плазмы* / Под ред. В. Лохте-Хольтгревена. — М.: Мир, 1971.
3. П. Чан, А. Тэлбот, К. Турян. Электрические зонды в неподвижной и движущейся плазме (теория и применение). — М.: Мир, 1978.
4. К.Н. Ульянов // ТВТ. — 1978. — **16** 492.
5. Е.Ф. Прозоров, К.Н. Ульянов // ТВТ. — 1983. — **21** 538.
6. М.С. Бенилов, Б.В. Рогов, Г.А. Тирский // ТВТ. — 1981. — **19** 1031.
7. М.С. Бенилов, В.И. Ковбасюк, Г.А. Любимов // ДАН СССР. — 1982. — **266** 812.
8. В.И. Вишняков, Г.С. Драган, С.В. Маргашук // *Химия плазмы* / Под ред. Б. М. Смирнова. — М.: Энергоатомиздат, 1990. — Вып. 16. — С. 98.
9. В.И. Вишняков. Физика аэродисперсных систем. — Киев-Одесса: Вища школа, 1989. — **32**, 147.
10. Г.С. Драган. Физика аэродисперсных систем. — Одесса: Астропринт, 2002. — **39**, 249.
11. Г.С. Драган // *Вестник ОНУ*. — Одесса: Астропринт, 2003. — Т. 8, вып. 2, — 168.
12. В.И. Вишняков, Г.С. Драган, В.М. Евтухов, С.В. Маргашук // Деп. ВИНТИ № 8791 (1986), реф. // ТВТ. — 1987. — **25**, 620.
13. I.T. Yakubov. and A.G. Khrapak // *Sov. Tech. Rev. B. Therm. Phys.* — 1989. — Vol. 2, 269.

*В. І. Вишняков, Г. С. Драган, Н. О. Тамаріна*

#### Ізольований зонд у термічній плазмі

#### АНОТАЦІЯ

Досліджено взаємодія термічної плазми атмосферного тиску з ізольованим металевим зондом. Розглянуті процеси іонізації атомів та рекомбінації іонів легко-іонізуючого домішку на поверхні зонда. Знайдені вираження параметра неравноважності для об'ємних процесів та процесів на поверхні зонда. Виведені рівняння для знаходження плаваючого потенціалу зонда при зміщенні іонізаційної рівноваги плазми, яка відбувається під впливом зонду та часток конденсованої дисперсної фази.

*Vishnyakov V. I., Dragan G. S., Tamarina N. A.*

**Isolated probe in thermal plasmas**

**SUMMARY**

Interaction of the thermal plasma of atmospheric pressure containing easy-ionizable addition agent with isolated metal probe is explored. The account of atoms ionization and ions recombination on the probe surface is carried out. Expressions of non-equilibrium parameter are spotted with taking into account the volumetric and surface processes. The equations, permitting to calculate the floating potential of probe with taking into account the displacement of plasma ionization equilibrium, caused both by probe, and grains of the condensed disperse phase are obtained.

*A. V. Loboda*

*Odessa National Polytechnic University*

**Elementary processes in a collisionally pumped plasma:  
I. Consistent qed approach to calculation  
of electron-collision strengths**

The generalized energy approach in consistent gauge invariant formulation has been at first used for consistent QED description of elementary electron processes in a collisionally pumped plasma. It is developed an optimal scheme for gauge invariant calculation of the electron-collision strength and rate coefficients for the de-excitation (excitation) processes in the Ne-like multicharged ions plasma with further estimate of the optimal plasma parameters for X-ray lasing.

The X-ray laser problem has stimulated a great number of papers devoting to development of theoretical methods for the modelling the elementary processes in a collisionally pumped plasma. The current trend is to study high Z elements. There is a hope to find lasing effects on the transitions in plasma of the Li-, Ne-, Ni-like ions. Very shocking example is a scheme for accomplishing tabletop x-ray lasing in Li-like ion of Ne at 98 Å in an optically ionized plasma during recombination in the transient regime which was carried out in the Lawrence Livermore National Laboratory (University of California) [4]. Saturation effects and parametric heating processes by stimulated Raman scattering are analyzed and found to allow energy efficiencies in excess of  $10^{-5}$  for a 100-fsec duration, 0.25- $\mu\text{m}$  laser driver of intensity  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Significant improvement in efficiency is indicated for shorter laser pulse lengths. At the same time, low temperature plasma sources are more efficient and less expensive devices. They show promise for producing lasing in the vacuum ultraviolet and soft X-ray region. Preliminary investigations of capillary spark discharge were made (c.f. [1-4]), which show the possibility of their use as effective plasma sources for the generation of a soft-X-ray or extreme ultraviolet amplified spontaneous emission. Two key theoretical problems must be solved in order to develop a special code and to predict necessary plasma parameters needed for generation of a soft-X-ray or extreme ultraviolet amplified spontaneous emission. First one is a highly accurate definition of the rate coefficients for elementary processes in the plasma that are responsible for the forming emission lines spectra. The second problem is connected with necessity of development new adequate kinetics calculation schemes for defining the level populations, inversions, line intensities and gain coefficients at definite plasma parameters. Despite of great number papers, devoting to solving cited problems (c.f. [1-12] and references in them), they are at present time quite far from final adequate solution. The most consistent

approach to considered problems solving must base on the quantum electrodynamics (QED). In the theory of radiative and non-radiative decay of the quasi-stationary states of multi-particle system an energy approach based on the Gell-Mann & Low adiabatic formalism for the energy shift  $\delta E$  with electrodynamics scattering matrix is known (c.f.[11-18]). Method represents the decay probability as an imaginary part of  $\delta E$  energy shift, allowing for the application of the theory of degenerate, nearly degenerate stationary states. The method is a consistently electrodynamics one, allowing for the uniform consideration of a variety of induced and spontaneous processes different by their physical nature and with any number of photons. In relativistic case the Gell-Mann and Low formula expressed  $\delta E$  through the electro dynamic scattering matrix including the interaction with as the laser field as the photon vacuum field. Their contributions and their interference effects are represented by successive corrections of the electrodynamics perturbation theory (EDPT). The energy approach had been applied previously in the study of the purely electronic, electron -nuclear processes in atoms and meso-atomic systems, in the problem of the collisional electron- positron pair production [11-18]. In this paper the energy approach in consistent gauge invariant formulation [19] has been used for consistent QED description of electron-collision processes in plasma.

As example we consider the collisional de-excitation (excitation) of the Ne-like ion:  $((2j_{iv})^{-1}3j_{ie}[J_i M_i], \epsilon_{in}) \rightarrow (\Phi_o, \epsilon_{sc})$ . Here  $\Phi_o$  is the state of the ion with closed shells (ground state of the Ne-like ion);  $J_i$  is the total angular moment of the initial target state; indices  $iv, ie$  are related to the initial states of vacancy and electron of the multicharged ion; and indices  $\epsilon_{in}$  and  $\epsilon_{sc}$  are the incident and scattered energies respectively to the incident and scattered electrons. As usual, it is convenient to use further the second quantization representation. In particular, the initial state of the system "atom plus free electron" can be written as

$$|I\rangle = a_{in}^+ \sum_{m_{iv}, m_{ie}} a_{ie}^+ a_{iv} \Phi_o C_{m_{ie}, m_{iv}}^{J_i, M_i} \quad (1)$$

with the known Clebsh-Gordan coefficient  $C_{m_{ie}, m_{iv}}^{J_i, M_i}$ . The final state of system is :

$$|F\rangle = a_{sc}^+ \Phi_o \quad (2)$$

It is easily to understand that the initial state is three quasiparticle state and the final state is one quasiparticle state. For state (1) the scattered part for imaginary energy shift  $Im \Delta E$  appears at first in the second order of the atomic perturbation theory in the form of integral over the scattered electron energy  $\epsilon_{sc}$  [11]:

$$\int d\epsilon_{sc} G(\epsilon_{iv}, \epsilon_{ie}, \epsilon_{in}, \epsilon_{sc}) / (\epsilon_{sc} - \epsilon_{iv} - \epsilon_{ie} - \epsilon_{in} - i0) \quad (3)$$

with

$$Im \Delta E = \pi G(\epsilon_{iv}, \epsilon_{ie}, \epsilon_{in}, \epsilon_{sc}) \quad (4)$$

Here G is a definite squared combination of the two-electron matrix elements of the following form:

$$V(1,2;4,3) = \sqrt{(2j_1+1)(2j_2+1)(2j_3+1)(2j_4+1)}(-1)^{j_1+j_2+j_3+j_4+m_1+m_2} \times \\ \times \sum_{\lambda,\mu} (-1)^\mu \begin{bmatrix} j_1 \dots j_3 \dots \lambda \\ m_1 \dots -m_3 \dots \mu \end{bmatrix} \begin{bmatrix} j_2 \dots j_4 \dots \lambda \\ m_2 \dots -m_4 \dots \mu \end{bmatrix} (Q_\lambda^{Qul} + Q_\lambda^{Br}) \quad (5)$$

In expression (5)  $Q_\lambda^{Qul}$  is corresponding to the Coulomb inter electron interaction integrals combination:

$$Q_\lambda^{Qul} = \{R_l(1243)S_\lambda(1243) + R_\lambda(\tilde{1}24\tilde{3})S_\lambda(\tilde{1}24\tilde{3}) + \\ + R_\lambda(1\tilde{2}4\tilde{3})S_\lambda(1\tilde{2}4\tilde{3}) + R_\lambda(\tilde{1}\tilde{2}4\tilde{3})S_\lambda(\tilde{1}\tilde{2}4\tilde{3})\}. \quad (6)$$

The angular multiplier in (6) is as follows:

$$S_\lambda(1243) = \{\lambda l_1 l_3\} \{\lambda l_2 l_4\} \begin{pmatrix} j_1 & j_3 & \lambda \\ 1/2 & -1/2 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_2 & j_4 & \lambda \\ 1/2 & -1/2 & 0 \end{pmatrix}, \quad (7)$$

where  $\{\lambda l_1 l_3\}$  denotes that the  $(\lambda + l_1 + l_3)$  is a even number. The Breit inter electron interaction integrals combination is defined by expression:

$$Q_\lambda^{Br} = \{R_\lambda(12\tilde{4}\tilde{3})S_\lambda^l(12\tilde{4}\tilde{3}) + R_\lambda(\tilde{1}\tilde{2}43)S_\lambda^l(1243) + \\ + R_l(\tilde{1}2\tilde{4}3)S_\lambda^l(\tilde{1}\tilde{2}\tilde{4}3) + R_l(1\tilde{2}\tilde{4}\tilde{3})S_\lambda^l(1\tilde{2}4\tilde{3})\}. \quad (8)$$

with factorized angular part  $S(1243)$  :

$$\left. \begin{aligned} S_\lambda^{(l)}(1243) &= (\lambda)(-1)^{\lambda+l+1} S_\lambda^l(13)S_\lambda^l(24), \\ S_\lambda^{(l)}(13) &= (-1)^{l_3+j_3} (ll_3) \begin{pmatrix} j_3 & j_1 & \lambda \\ -1/2 & 1/2 & 0 \end{pmatrix} \left\{ \frac{1}{\sqrt{2\lambda(\lambda+1)}} \times \right. \\ &\times \left[ (-1)^{j_1+j_3+\lambda} (j_3) + (j_1) \right] \begin{pmatrix} \lambda & 1 & l \\ -1 & 1 & 0 \end{pmatrix} + (-1)^{l_3+j_1+\lambda} \begin{pmatrix} \lambda & 1 & l \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \left. \right\}. \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

In matrix elements (6),(8) the following notations are used: 1,2,3,4 — big components of the Dirac wave function, and the sign “~” denotes that the radial part  $f_i$  of the Dirac wave function big component is exchanged on a little component  $g_i$ , and

in formula (7),(9) the value  $l_i$  is exchanged on  $\tilde{l}_i = l_i - 1$  for quantum number  $\alpha_i > 0$  and  $l_i + 1$  for  $\alpha_i < 0$ . The inter electron interaction in the lowest QED perturbation theory order is imitated by the photon propagator. To calculate all necessary matrix elements one may use the basis's of the relativistic Dirac orbitals. Multi-numbered atomic calculations of the plasma elementary processes coefficients have shown that the adequate description of these processes can be only reached under using the optimized basis's of wave functions. Hitherto this is one of the most fundamental problems. In ref. [14] and later [18] it has been proposed a new fundamental approach too solving the cited problem. The optimized basis's of Dirac orbitals can be got from minimization principle for contribution of the fourth QED perturbation theory diagrams into the imaginary part of energy shift, i.e., radiative width of atomic level. In fourth order there appear diagrams, whose contribution into the  $\text{Im}\delta E$  account for the core polarization effects. This contribution describes collective effects and it is dependent upon the electromagnetic potentials gauge (the gauge non-invariant contribution). As usually, for the multi-electron atom with, say, one quasiparticle in the first excited state, connected with the ground state by the radiation transition, one must define the electron-nuclear bare potential  $V_N(r) + V_C(r)$  with  $V_N(r)$  describing the electric potential of the nucleus,  $V_C(r)$ , imitating the interaction of the quasiparticle (initial or any other appearing in the real and virtual processes) with the core of closed shells. The core potential  $V_C(r)$  is related to the core electron density  $\rho_C(r)$  in a standard way [4]. The latter fully defines the optimized one electron representation. Moreover, all the results of the approximate calculations are the functionals of the density  $\rho_C(r)$ . All the non-invariant terms are multielectron by their nature (the particular case — non-coincidence of the oscillator strengths values, obtained in approximate calculations with the “length” and “velocity” transition operator forms). Quite complicated calculation of the fourth QED perturbation theory polarization diagrams into  $\text{Im} \Delta E$  gives the following result [14]:

$$\begin{aligned}
\text{Im} \Delta E_{nmv}(\alpha-s; b) = & - C \int \int \int \int dr_1 dr_2 dr_3 dr_4 \sum_{\substack{n \geq f \\ m \leq f}} \left( \frac{1}{\omega_{mn} + \omega_{\alpha s}} + \frac{1}{\omega_{mn} - \omega_{\alpha s}} \right) \Psi_{\alpha}^+(r_1) \times \\
& \times \Psi_m^+(r_2) \Psi_s^+(r_4) \Psi_n^+(r_3) \times \\
& \times \frac{1 - \alpha_1 \alpha_2}{r_{12}} \{ [(\alpha_3 \alpha_4 - \alpha_3 n_{34} \alpha_4 n_{34}) / r_{14}] \sin [\omega \alpha_n (r_{12} + r_{34})] + \\
& + \omega \alpha_n \cos [\omega \alpha_n (r_{12} + r_{34})] (1 + \alpha_3 n_{34} \alpha_4 n_{34}) \} \Psi_m(r_3) \Psi_{\alpha}(r_4) \Psi_n(r_2) \Psi_s(r_1). \quad (10)
\end{aligned}$$

Here,  $f$  is the boundary of the closed shells;  $n \geq f$  indicating the unoccupied bound and the upper continuum electron states;  $m \leq f$  indicates the finite number of states in the core and the states of the negative continuum (accounting for the electron vacuum polarization). All the vacuum polarization and the self-energy corrections to the sought for values are omitted (due to the obvious numerical smallness compared with the



other relativistic corrections) The minimization of the density functional  $Im \Delta E_{niny}$  leads to the integro-differential equation for the  $\rho_e$ , that can be solved using one of the standard numerical codes (c.f.[11-18]). In result we get the optimized basis of the Dirac relativistic orbitals. In our scheme it is at first proposed to use optimal basis's in further calculations of the plasma electron-collision processes coefficients [19].

The collisional strength  $\Omega(I \rightarrow F)$  is connected with the collisional cross section by expression (c.f. [11]):

$$\sigma(I \rightarrow F) = \Omega(I \rightarrow F) \cdot \pi / \{(2J_i + 1)\epsilon_{in} [(\alpha Z)^2 \epsilon_{in} + 2]\} \quad (11)$$

In considered by us case of the collisional de-excitation the corresponding cross section is defined by the following expression:

$$\sigma(IK \rightarrow 0) = 2\pi \sum_{j_{in}, j_{sc}} (2j_{sc} + 1) \left\{ \sum_{j_{ie}, j_{iv}} \langle 0 | j_{in}, j_{sc} | j_{ie}, j_{iv}, J_i \rangle B_{ie, iv}^{IK} \right\}^2 \quad (12)$$

where  $B_{ie, iv}^{IK}$  is a real matrix of eigen-vectors coefficients, which is obtained after diagonalization of the secular energy matrix (c.f.[11-14]). The amplitude like combination in expression (12) has the following form:

$$\begin{aligned} \langle 0 | j_{in}, j_{sc} | j_{ie}, j_{iv}, J_i \rangle = & \sqrt{(2j_{ie} + 1)(2j_{iv} + 1)} (-1)^{j_{ie} + 1/2} \times \sum_{\lambda} (-1)^{\lambda + J_i} \times \quad (13) \\ & \times \{ \delta_{\lambda, J_i} / (2J_i + 1) Q_{\lambda}(sc, ie; iv, in) + \left[ \begin{matrix} j_{in} \dots j_{sc} \dots J_i \\ j_{ie} \dots j_{iv} \dots \lambda \end{matrix} \right] Q_{\lambda}(ie; in; iv, sc) \} \end{aligned}$$

In expression (13)  $Q_{\lambda}^{Qu}$ ,  $Q_{\lambda}^{Br}$  are defined by the formulas (6) and (8) and calculated with using of the optimized relativistic orbitals basis's [19]. The numerical procedure for their calculation is realized with using the standard code [5,11-18].

Therefore, we have at first proposed the generalized energy approach in consistent gauge invariant formulation for consistent QED description of elementary electron processes in a collisionally pumped plasma. We developed an optimal scheme for gauge invariant calculation of the electron-collision strength and rate coefficients for the de-excitation (excitation) processes in the Ne-like multicharged ions plasma with further possible estimate of the optimal plasma parameters for X-ray lasing. This question will be considered at next paper. Besides, we should want to note that described scheme can be used in definition of the cross section for other types of the collisional processes and, in general speaking, other systems (c.f.[20-22]).

In conclusion, the author would like to thank Prof. A.Glushkov for careful reading of the manuscript and for his many helpful comments.

## References

1. Photonic, Electronic, Atomic Collisions. — Singapore: World Sc. — 1997. — P.621-630.
2. Smirnov B.M. Ionization processes under slow atomic collisions// *Usp. fys. Nauk.* — 1981. — Vol.133. — p.569-613.
3. Kiselus R.S., Kuplyayskene A.V., Rudzikas Z.B. Theoretical Spectra of radiation of the multi-charged ions in plasma // *Spectroscopy of multicharged ions.* — M.: Nauka, 1991. — P.52-75.
4. Amendt P., Eder D.C., Wilks S.C. X-ray lasing by optical-field-induced ionization // *Phys. Rev. Lett.* — 1991. — Vol.66. — P. 2589–2592.
5. Ivanova E.P., Ivanov L.N., Glushkov A.V., Kramida A.E. High order corrections in the Relativistic Perturbation Theory with the model Zeroth Approximation // *Phys.Scripta.* — 1985. — Vol.32, №4. — P.512-524.
6. Koshelev K.N., Sidelnikov Yu.V., Vikhrov V.V., Ivanov V.I. Micropinches in low inductive vacuum spark and radiative pressing // *Spectroscopy of multicharged ions.* — M.: Nauka, 1991. — P.163-198.
7. Mandelstam S.L., Aglitsky E.V., Antsiferov P.S., Panin A.M. X-ray spectra of Ne-like Ba, La, Ce and Pr ions // *Canad. Journ. of Phys.* — 1984. — Vol.62, №10. — P.1923-1930.
8. Ivanova E.P., Ivanov L.N., Aglitsky E.V. Modern Trends in Spectroscopy of Multicharged Ions// *Physics Rep.* — 1991. — Vol.166, №6. — P.315-390.
9. Letokhov V.S. Nonlinear Selective Photoprocesses in atoms and molecules. — M., 1983. — 408 c.
10. Glushkov A.V. Deuterium lines spectra analysis in Tokamak // *Proc.24<sup>th</sup> Europ. Conf. on Thermonucl. Fusion& Plasma Phys.* — Garching (Germany). — 1996. — P.95.
11. Ivanov L.N., Ivanova E.P., Knight L. Energy Approach to consistent QED theory for calculation of electron-collision strengths // *Phys. Rev. A.* — 1993. — Vol.48, №6. — P.4365-4374.
12. Ivanov L.N., Letokhov V.S. Spectroscopy of autoionization resonances in heavy elements atoms // *Com. Mod. Phys. D.: At. Mol. Phys.* — 1985. — Vol.4. — P.169-184.
13. Glushkov A.V., Ivanov L.N., Ivanova E.P. Radiation decay of Atomic States: generalized Energy Approach// *Autoionization Phenomena in Atoms.* — M.: Moscow State University. — 1986. — P.58-60.
14. Glushkov A.V., Ivanov L.N. Radiation Decay of Atomic States: atomic residue and gauge noninvariant contributions // *Phys. Lett. A.* — 1992. — Vol.170, №1. — P.33-37.
15. Glushkov A.V., Ivanov L.N. QED Theory of the radiation atomic lines shift and deformation in a laser emission field // *Proc. 3 Colloquium on Atomic Spectroscopy.* — Chernogolovka, ISP AS USSR, 1992. — P. 113-124.
16. Glushkov A.V., Ivanov L.N. DC Strong-Field Stark-Effect: consistent

- quantum-mechanical approach // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* — 1993. — Vol.26, №16. — P.L379-L389.
17. Glushkov A.V., Malinovskaya S.V. Relativistic Models in Dynamics of interaction between electron shells of atoms and nucleons: New effects // *Uzhgorod Univ. Sci. Herald. Ser. Phys.* — 2000. — Vol.8, №2. — P. 383-387.
  18. Malinovskaya S.V. S-matrix formalism in the calculation of oscillator strengths, radiation and autoionization widths for complex atoms and multicharged ions // *Uzhgorod Univ. Sci. Herald. Ser. Phys.* — 2000. — Vol.8, №2. — P. 387-393.
  19. Loboda A.V. A new gauge invariant energy approach to consistent QED theory of electron-collision processes in plasma// Preprint NII of physics of the I.I. Mechnikov Odessa National University; Ph-L-3-02. — Odessa, 2002. — 15 p.
  20. Letokhov V.S. *Laser Spectroscopy.* — N-Y.:Acad.Press, 1987.
  21. Agranovich V.M., Lalov I.P. Inelastic Scattering of neutrons in crystals by laser photons and exciton // *JETP.* — 1975. — Vol.69. — P.648-653.
  22. Zaretsky D.F., Lomonosov V.V. Interaction between neutrons and matter in the field of a strong electromagnetic wave // *JETP.* — 1977. — Vol.72. — P.853-857.

*Loboda A. V.*

**Elementary processes in a collisionally pumped plasma: Consistent qed approach to calculation of electron-collision strengths**

**SUMMARY**

The generalized energy approach in consistent gauge invariant formulation has been at first used for consistent QED description of elementary electron processes in a collisionally pumped laser plasma. It is developed an optimal scheme for gauge invariant calculation of the electron-collision strength and rate coefficients for the de-excitation (excitation) processes in the Ne-like multicharged ions plasma with further estimate of the optimal plasma parameters for X-ray lasing.

*А. В. Лобода*

**Элементарные процессы в лазерной плазме со столкновительной накачкой: Последовательный кэд подход к расчету сил столкновений**

#### **АННОТАЦИЯ**

Предложен обобщенный, калибровочно-инвариантный энергетический подход в последовательной КЭД теории элементарных электронных процессов в лазерной плазме со столкновительной накачкой. Разработана оптимальная калибровочно-инвариантная схема вычисления сечений, сил столкновений, скоростных коэффициентов процессов столкновительного возбуждения и де-возбуждения в лазерной плазме Ne-подобных многозарядных ионов с последующим определением оптимальных параметров плазмы для лазерной генерации рентгеновского излучения.

*А. В. Лобода*

**Елементарні процеси у лазерній плазмі із накачкою за рахунок зіткнень: Послідовний кед підхід до розрахунку сил зіткнень**

#### **АНОТАЦІЯ**

Запропоновано узагальнений, калібровочно-інваріантний енергетичний підхід у послідовній КЕД теорії елементарних електронних процесів у лазерній плазмі із накачкою за рахунок зіткнень. Розроблено оптимальну калібровочно-інваріантну схему обчислення перерізів, сил зіткнень, швидкісних коефіцієнтів процесів збудження та де-збудження за рахунок зіткнень у лазерній плазмі Ne-подібних багатозарядних іонів з подальшим визначенням оптимальних параметрів плазми для лазерної генерації рентгенівського випромінювання.

*Л. Л. Терлецкая, Н. Х. Копыт, В. В. Голубцов*  
*Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

### **Влияние температурных полей на поведение некогерентных неоднородностей в монокристаллах и эпитаксиальных структурах арсенида галлия**

Представлены результаты экспериментального исследования влияния различных способов термообработки монокристаллов и эпитаксиальных структур арсенида галлия на поведение, концентрацию и объемную долю содержащихся в них некогерентных неоднородностей в виде мелкодисперсных легкоплавких микровключений галлия. Показана возможность практического применения движения мелкодисперсных микровключений и пути улучшения качества полупроводниковых структур.

Арсенид галлия по степени изученности в значительной степени превосходит другие полупроводниковые соединения и занимает ведущее место в современной электронике [1,2]. Однако многие проблемы физики и, особенно, технологии этого материала пока далеки от своего окончательного решения, а его потенциальные практические возможности еще далеко не полностью реализованы. Наличие большого количества трудноустраняемых источников загрязнения, способствующих формированию объемных когерентных и мелкодисперсных некогерентных (жидкометаллических микровключений, примесей) неоднородностей в кристаллах, не позволяет на данном этапе решить задачу получения чистого (близкого к “собственному”) арсенида галлия. Поэтому интерес физиков, материаловедов и технологов к GaAs не ослабевает и в настоящее время.

Когерентные неоднородности, отличающиеся от некогерентных допустимой величиной рассогласования параметра решетки и кристаллической структурой сопрягающихся материалов, проявляются в виде внутренних механических напряжений в кристалле и хорошо изучены. Некогерентные неоднородности, содержащиеся в монокристаллах соединений  $A^3B^5$  в виде мелкодисперсных проводящих микровключений собственного компонента  $A^3$ , наименее изучены.

В данной работе представлены результаты исследования влияния термообработки подложечного GaAs и эпитаксиальных структур на его основе на поведение и концентрацию мелкодисперсных легкоплавких микровключений галлия. Объемные и эпитаксиальные монокристаллы арсенида галлия из-за присутствия в них некогерентных неоднородностей рассматривались

как гетерогенная система, содержащая две и более гомогенных фаз. Такую систему можно классифицировать как матричную дисперсную среду. В ней матрица образует непрерывную среду, в которой дискретно распределены неконтактирующие между собой некогерентные неоднородности в виде мелкодисперсных микровключений галлия. Неоднородности такого типа, несмотря на жесткую связь с матрицей кристалла, при наличии градиента внутренних механических напряжений, электрического или другого поля мигрируют и коалесцируют, способствуя ускоренной деградации приборных структур [3].

Исследование микровключений галлия в подложечном и эпитаксиальном GaAs проводилось с помощью электронной микроскопии и метода диэлектротомии [4], основанного на чувствительности свойств материала к фазовому переходу первого рода при плавлении некогерентных неоднородностей.

Режим индуцированного тока в растровом электронном микроскопе позволял наблюдать в арсенидгаллиевых структурах с p-n- переходом электрически и рекомбинационно активные неоднородности. На растровых изображениях структур в указанном режиме дефекты выявлялись в виде темных пятен и темных линий (рис.1).

Дефекты такого типа наблюдались в исходных структурах, а также могут появляться, согласно данным авторов [5], в процессе деградации приборов. Размеры дефектов составляли 0,1 — 0,2 мкм и определялись по минимальной толщине поверхностного слоя, при удалении которого изображение темных пятен исчезало. Дополнительные исследования однозначно показали, что причиной наблюдаемых дефектов темных пятен является наличие в слое неоднородностей в виде мелкодисперсных микровключений галлия указанных размеров. Концентрация мелкодисперсных микровключений галлия в исходных пластинах GaAs составляла  $10^{11}$  —  $10^{12}$  см<sup>-3</sup>.

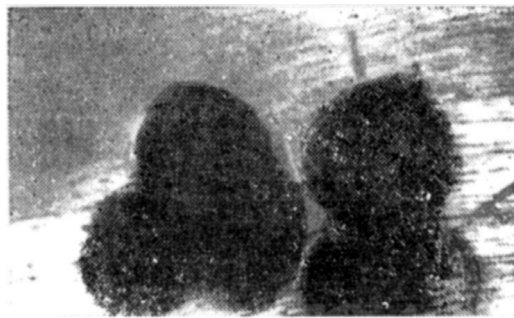


Рис. 1. Изображение темных пятен в слое p-GaAs, полученное с помощью РЭМ в режиме индуцированного тока с помощью индуцированного тока при ускоряющем напряжении  $U=15$ кВ.

Установлено, что в пластинах арсенида галлия, подвергавшихся предэпитаксиальной термообработке, объемная доля микровключений галлия значительно больше, чем в неотожженных образцах той же партии. Этот факт подтверждается значительным увеличением по площади петли гистерезиса на температурных зависимостях диэлектрической проницаемости ( $\epsilon$ ), представленных на рис.2,а (кривые 2-2').

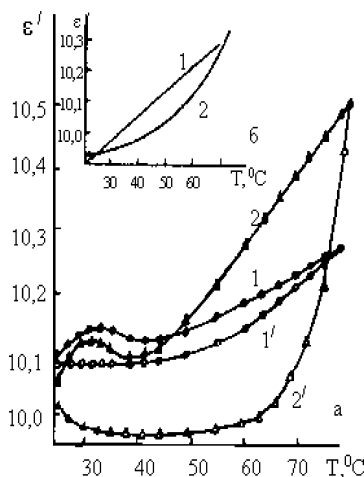


Рис. 2. Температурная зависимость диэлектрической проницаемости ( $\omega=1$  МГц) полуизолирующего GaAs а: 1,1'-до отжига; 2,2'- после предэпитаксиальной обработки; б: — типичная зависимость  $\epsilon=f(T)$  для разных типов образцов после их отжига в градиенте температур; 1,2 — нагревание; 1',2'-охлаждение.

Такая закономерность свидетельствует о том, что в процессе термообработки подложек дополнительно возрастает концентрация галлия вследствие потерь летучего компонента — мышьяка.

Одним из наиболее эффективных способов улучшения электрофизических и прочностных свойств подложечного GaAs является термообработка исходных пластин в градиенте температур. Однако при таком воздействии температурного поля на образец происходит термическое разложение вещества со стороны менее нагретой поверхности с непрерывной генерацией в объем пластины точечных вакансионных дефектов, концентрация которых при любой продолжительности отжига в объеме материала составляет  $10^{15}$  —  $10^{16}$  см<sup>-3</sup>. Это приводит не только к ухудшению электрофизических свойств поверхностной области пластин, но и к увеличению их хрупкости.

Улучшение структурных и электрофизических свойств подложек и эпитаксиальных структур на их основе наблюдалось лишь при условии нали-

чия защитного слоя инактивного вещества, который перед процессом термообработки наносился на сторону образцов, противоположную направлению градиента температур. В данном случае в качестве инактивного защитного вещества использовался борный ангидрид. При таких условиях в процессе термообработки мелкодисперсные жидкометаллические неоднородности перемещались по направлению градиента температур и скапливались на более нагретой поверхности образцов.

После проведения такой термообработки и отмывки пластин и структур GaAs от борного ангидрида удалялся (шлифовкой, травлением) обогащенный металлическими неоднородностями поверхностный слой со стороны поверхности подложки или эпитаксиального слоя, контактировавших с пьедесталом нагревателя.

У всех исследованных образцов после предварительной термообработки на температурных зависимостях диэлектрической проницаемости наблюдавшиеся до отжига характерные изменения, связанные с фазовыми переходами плавление — кристаллизация галлия в некогерентных неоднородностях (т.е. появление петли гистерезиса, рис.2,а), исчезали (рис.2,б). В диапазоне температур 20 — 60°C зависимости  $T=f(\epsilon)$  имели линейный или квазилинейный характер, что свидетельствует о существенном уменьшении концентрации и даже полном отсутствии мелкодисперсных микровключений галлия в GaAs. Прочность таких подложек и выращенных на их основе эпитаксиальных слоев GaAs при сохранении других качественных параметров увеличивалась в 5 раз.

Полученные результаты исследований могут быть использованы в целях послеростового улучшения качества подложек и эпитаксиальных структур арсенида галлия, а также других структур на основе соединений  $A^3B^5$  (GaP, InP, InAs).

#### Литература

1. Уиссмен У., Френсли У., Дункан У. Арсенид галлия в микроэлектронике. — М.: Мир, 1988. — 555 с.
2. Василенко Н.Д., Терлецкая Л.Л. Анализ качества эпитаксиальных слоев соединений  $A^3B^5$  для приборов СВЧ — техники (обзор) // Оптоэлектроника и полупроводниковая техника. — 1994. — Вып. 21. — С.28-40.
3. Василенко Н.Д., Горбатюк А.Я. Влияние микровключений легкоплавких металлов на диэлектрические свойства кристаллов  $A^3B^5$  // УФЖ. — 1994. — Т.39, № 11-12. — С. 1116-1118.
4. Терлецкая Л.Л., Василенко Н.Д. Диэлектрометрические исследования дефектов в ПИ — GaAs // Оптоэлектроника и полупроводниковая техника. — 1993. — Вып. 26. — С.106-109.
5. Свердлов М.И., Филипченко В.Я. Исследование с помощью режима индуцированного тока в РЭМ гетероструктур в системе Al-Ga-As // ФТП. — 1994. — №6. — С.787-792.



*Л. Л. Терлецька, М. Х. Копит, В. В. Голубцов*

**Вплив температурних полів на поведінку некогерентних  
неоднорідностей в монокристалах та епітаксій них структурах  
арсеніду галію**

**АНОТАЦІЯ**

Представлено результати експериментального дослідження впливу різних способів термообробки монокристалів та епітаксійних структур арсеніду галію на поведінку, концентрацію та об'ємну частку некогерентних неоднорідностей у вигляді дрібнодисперсних легкоплавких мікрровключень галію. Показано можливість практичного застосування руху дрібнодисперсних мікрровключень та шляхи поліпшення якості напівпровідникових структур.

*Terletska L. L., Kopyt N. Kh., Golubtsov V. V.*

**Influence of the temperature fields on the behavior of incoherent  
inhomogeneities in gallium arsenide single crystals and epitaxial structures**

**SUMMARY**

Results of experimental study of the influence of different heat treating approaches to gallium arsenide single crystals and epitaxial structures on the behavior, concentration and the volume part of incoherent inhomogeneities in the form of fine-dispersated fusible gallium inclusions, are presented. It is shown the possibility of practical application of the motion of fine –dispersated micro-inclusions and ways of the quality improvement for semiconductor structures are demonstrated.

**В. І. Маренков**

*Одеський національний університет ім. І. І. Мечникова*

## **Наведена поляризація в запиленій плазмі з електричним струмом**

В рамках статистичної чарункової моделі досліджено квазінейтральність стаціонарної запиленої плазми з електричним струмом. Опис багаточастинкової взаємодії кулонівських мікрополів і зарядів поляризованої ЗП шляхом осереднення за ансамблем чарунок зведено до ефективної електростатичної проблеми зарядової рівноваги індивідуальної КЧ та її електрон-іонної атмосфери. В термінах безрозмірних максвелівського та деполаризуючого електричних полів досліджено вплив поляризації ЗП на структуру кулонівських мікронеоднорідностей поблизу макрочастинок. Показано, що індукована зовнішнім електричним полем поляризація ЗП може продукувати умови для утворення регулярних структур макрочастинок у плазмі.

### **Вступ**

Електричний струм в запиленій плазмі (ЗП) завжди виникає і підтримується в її об'ємі за рахунок дії зовнішніх електричних полів, створених джерелами термостату [1]. В установках сучасних високотемпературних технологій і виробництва (плазмохімічні реактори [2], пристрої для усталення та обробки поверхонь [3], електрофільтри, МГД- та ЕГД-генератори [4], тощо) зазвичай використовують стаціонарні режими функціонування, у яких підтримується певний стаціонарний розподіл електричного поля у робочому об'ємі (РО), заповненому плазмовим середовищем. При цьому, складний баланс електрон-іонних процесів у ЗП супроводжується встановленням локальної термодинамічної рівноваги (ЛТР) у плазмі і деякого рівня іонізації в кожній з її ЛТР-областей. Напруженість зовнішнього електричного поля та густина електричного струму регулюються зовнішніми (по відношенню до ЗП) чинниками, які спричиняють зміну локальних електрофізичних параметрів плазми в РО. Змінюються не тільки умови іонізації макрочастинок пилової компоненти ЗП, але (за рахунок їх адитивних внесків) і характер колективної електростатичної взаємодії кожної з них із самоузгодженим електростатичним полем. Зовнішніми джерелами підтримується як стаціонарний розподіл електричного струму в ЗП, так і локальне максвелівське поле, яке спричинює появу поля вектора поляризації плазмового середовища, і в кінцевому підсумку, зміну структури розподілу самоузгодженого потенціалу в областях ЛТР, та спряжені з нею загальні зміни осередненого рівня іонізації ЗП [5]. Поляризаційний відгук плазмової системи на зовнішнє електричне поле —

є слабо дослідженою і, в той же час, дуже актуальною, орієнтованою на запити впроваджень, проблемою сучасної теорії властивостей гетерогенних плазмових систем. Невирішені аспекти даної проблеми: наведена поляризація макрочастинок та її вплив на рівень іонізації ЗП, складають мету і окреслюють напрямки досліджень проведених у даній роботі.

У розділі 1 дано постановку основної проблеми — у рамках фізичної моделі безпосередньо пов'язати термодинамічні та електрофізичні параметри запиленої плазми в умовах дії зовнішнього електричного поля. Вплив деполіризуючого поля на структуру кулонівських неоднорідностей ЗП досліджено у розділі 2. Комп'ютерну симуляцію електрофізичних характеристик ЗП в області термодинамічних параметрів діючих плазмових установок, що має на меті визначення внеску вектора поляризації в іонізаційні характеристики ЗП, проведено в 3-му розділі. У висновках увага акцентується на фізичному механізмі впливу наведеного дипольного моменту плазми на її електрофізичні параметри і мікроструктуру кулонівських неоднорідностей в околі індивідуальних частинок конденсованої дисперсної фази .

### 1. Статистична модель іонізації ЗП зі струмом в об'ємі

Частинки конденсованої дисперсної фази (КДФ) залучаються до процесу переносу заряду в ЗП двояким чином: 1) переносять заряд безпосередньо, набуваючи, в залежності від власної полярності, осередненої швидкості у напрямку “впродовж”- , або “проти” зовнішнього поля; 2) за рахунок зміни парціальних внесків окремих конденсованих частинок (КЧ) у рівень іонізації ЗП, спричинених зміною умов термоіонізаційної рівноваги КДФ у зовнішньому полі. Концентрація носіїв струму в електрон-іонній атмосфері КЧ і інші електрофізичні параметри ЗП — є функціями її власних термодинамічних параметрів і зовнішнього параметру — напруженості створюваного джерелами термостату електростатичного поля  $\vec{E}_0$ . В стаціонарних умовах зв'язок між локальними термодинамічними параметрами плазми та її осередненими за об'ємом електрофізичними характеристиками здійснюється на базі механізму кореляцій руху заряджених частинок у самоузгодженому електромагнітному полі системи. При відносно малих швидкостях “дрейфу” вільних зарядів ЗП у напрямку зовнішнього поля  $\vec{E}_0$  кулонівське екранування в плазмі потерпає малі зміни, які у рамках статистичної моделі чарунк ЗП [6] можуть бути враховані шляхом використання нових межових умов для осередненої області електронейтральності плазми — чарунки  $C_\xi^z$  (рис.1). Оскільки теплова швидкість найбільш легких носіїв заряду ЗП — електронів, досягає при температурах  $T \sim 1500 \div 5000$  К значень  $\langle v \rangle \sim (3kT/m_e)^{1/2} \in 2.6 \div 4.8 \cdot 10^5$  м/с і на порядки перевищує осереднену швидкість їх направленої руху в полі  $\vec{E}_0$ , то фактично, як і в плазмі “без поля”, форма чарунки  $C_\xi^z$  зали-

шається сферичною для всіх можливих значень густини електричного струму в об'ємі ЗП. Однак, на відміну від рівноважної ЗП у відсутності зовнішнього поля, межева умова Неймана для самоузгодженого електростатичного потенціалу на поверхні електронейтральної чарунки  $C_{\xi}^z$  вже не буде тривіальною [7]. В результаті дії електричного поля  $\vec{E}_0$  структурні елементи плазми набувають індукованого дипольного моменту і виникає її об'ємна поляризація, яку зазвичай характеризують осередненим за об'ємом вектором  $\vec{d}$  — середнім значенням дипольного моменту одиниці об'єму гетерогенного плазмового середовища. Сумарна дія наведених диполів створює в об'ємі ЗП деполаризуюче поле, за рахунок якого напруженість результуючого макроскопічного поля плазми зменшується в  $\epsilon$  разів,  $\epsilon$  — діелектрична проникність плазми.

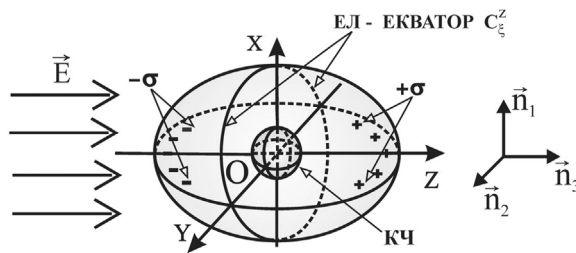


Рис. 1. Електронейтральна чарунка  $C_{\xi}^z$  ЗП при наявності зовнішнього електричного поля  $\vec{E}_0$ . Макроскопічне електричне поле плазми  $\vec{E} \parallel \vec{n}_3$ ;  $\vec{n}_1, \vec{n}_2, \vec{n}_3$  — орти співпутної лагранжевої системи координат, пов'язаної з індивідуальною КЧ,  $\sigma$  — густина поляризаційних зарядів.

Похідна самоузгодженого потенціалу плазми за напрямком радіуса  $\vec{r}$  визначатиметься проекцією осередненого максвелівського електричного поля в об'ємі ЗП на напрямок  $(\vec{r}/r)$ , який на межі сферичної чарунки співпадає з ортом зовнішньої нормалі  $C_{\xi}^z$  (див. рис. 1), тобто

$$\frac{\partial \varphi(\vec{r})}{\partial \vec{n}} \Big|_{r_c} = (\vec{\nabla} \varphi \cdot \vec{r}_c) / r_c = -|\vec{E}| \cdot \cos(\vec{n}_3, \vec{E}), \quad (1)$$

де  $\vec{E}$  — макроскопічне електростатичне поле в об'ємі плазми,  $r_c$  — радіус чарунки. Аналогічна умова для похідної потенціалу за напрямком нормалі на поверхні макрочастинки набуває вигляду

$$\frac{\partial \varphi(\vec{r})}{\partial n} \Big|_{r_p} = -\frac{ze}{r_p^2} - \frac{(\vec{E}_p \cdot \vec{r}_p)}{r_p} \quad (2)$$

$z, r_p$  — зарядове число і радіус КЧ;  $e$  — елементарний заряд;  $\vec{E}_p$  — осереднене за об'ємом макрочастинки максвелівське поле.

З використанням межових умов (1) — (2) проблема опису іонізації ЗП зі стаціонарним струмом в об'ємі формулюється в термінах електростатичної задачі про розподіл самоузгодженого потенціалу  $\varphi(\vec{r})$  та осередненого об'ємного заряду в чарунці електронейтральності  $C_\xi^z$  плазми, поляризованої полем  $\vec{E}_0$ . Результируюче поле  $\vec{E}$  пов'язується з осередненим вектором поляризації плазми (дипольним моментом одиниці об'єму ЗП)  $\vec{d}$  за допомогою відомої з електростатики формули [8]

$$\vec{E} = \vec{E}_0 - \frac{4}{3}\pi \cdot \vec{d} \quad (3)$$

Дипольний момент електронейтральної чарунки  $C_\xi^z$  визначається сумою осереднених за часом дипольних моментів частинок плазми, що локалізуються у миттєвих чарунках електронейтральності  $C_\xi$

$$\vec{P}_C = \sum_j \vec{d}_j \quad (4)$$

$\vec{d}_j$  — дипольні моменти окремих частинок ЗП, які попадають у миттєву електронейтральну область  $C_\xi$  в момент часу  $t$ . Отже поляризація плазмової системи буде

$$\vec{d} = \langle \vec{P}_C \rangle_t / C_\xi^z = \left\{ \sum_j \langle \vec{d}_j \rangle_t \right\} / C_\xi^z. \quad (5)$$

Встановивши зв'язок між макроскопічним електричним полем  $\vec{E}$  в об'ємі ЗП, поляризацією плазми  $\vec{d}$  та густиною електричного струму  $\vec{j}$ , матимемо замкнене формулювання завдання, щодо визначення впливу поляризації плазми індукованої зовнішнім електричним полем  $\vec{E}_0$  на її електрофізичні характеристики. Електростатичне поле  $\vec{E}_0$ , створюване зовнішніми джерелами (джерелами термостату) змінюється в широких межах і завжди має певне значення, що дефінується тим, чи іншим режимом функціонування плазмової установки. При цьому, в залежності від умов протікання електричного

струму в РО, зайнятому ЗП, теж встановлюється деяке усталене значення макроскопічного поля  $\vec{E}$ . Осереднені заряди макрочастинок КДФ, локальні значення концентрацій частинок газових компонентів і розподіли локального максвелівського електричного поля в околах індивідуальних КЧ теж в даному випадку будуть характеризуватися певними усталеними осередненими значеннями. Тому в завданнях комп'ютерної симуляції станів термоіонізаційної рівноваги в ЗП буде доцільним нормувати значення макроскопічного поля  $|\vec{E}|$  на модуль напруженості кулонівського електростатичного поля

зарядженої КЧ  $|\vec{E}_0| = \frac{|z| \cdot e}{r_p^2}$ . Таке ж нормування можна провести і для модуля

деполяризуючого поля  $\vec{E}_p$  на поверхні макрочастинок КДФ, з якою пов'язані локальні лагранжеві координати у чарунці електронейтральності (див. рис.1). Це, з одного боку, позбавляє нас від необхідності громіздких обчислень вектора поляризації ЗП і, з іншого — дає можливість в шкалі безрозмірних параметрів визначитись з відносним впливом поляризаційних ефектів на електрофізичні процеси в ЗП.

В фізичній моделі ЗП покладаємо, що в межах чарунки зліченні концентрації електронів і іонів газової фази підпорядковані статистиці Больцмана. Вважаємо також, що ансамбль макрочастинок КДФ є представленим монодисперсними сферичними КЧ заданої концентрації  $n_p$  і радіусу  $r_p$  рівномірно розподіленими у газовій фазі плазмової системи. Температура частинок КДФ і газу  $T$  покладається відомою і разом з потенціалами іонізації газових компонентів —  $I_a$ , та роботою виходу електронів з поверхні речовини КЧ —  $W$  входить до набору визначальних параметрів ЗП, які задаються попередньо. Рівень Фермі електронної підсистеми вважається однорідним в екваторіальній площині чарунки, причому за початок відліку самоузгодженого електростатичного потенціалу плазми обирається його рівень на екваторіальній лінії “ЕЛ” чарунки  $C_\xi^z$  (рис. 1). Самоузгоджений потенціал для області значень  $|\vec{r}_p| \leq |\vec{r}| \leq |\vec{r}_c|$ , тобто в об'ємі зайнятому в чарунці газовою фазою, задовольняє рівнянню Пуасона-Больцмана

$$\nabla^2 \varphi(\vec{r}) = 4\pi e \cdot \left\{ n_{e0} \cdot \exp[e\varphi/(kT)] - \sum_i m_i \cdot n_{i0} \cdot \exp[-m_i \cdot e\varphi/(kT)] \right\}, \quad (6)$$

Застосовність (6) лімітується критерієм малості кінетичної енергії носіїв струму (електронів і іонів газової фази), що вони її набувають за рахунок взаємодії з макроскопічним полем між сусідніми зіткненнями, порівняно з середнім значенням їх теплової енергії в межах чарунки.  $n_{e0}$ ,  $n_{i0}$  — відпо-

відно: концентрації електронів та іонів сорту “і” на межі чарунки;  $m_i$  — кратність іонізації іонів. Доповнене граничними умовами (1) і (2) та законами збереження маси для компонентів ЗП заданого сорту, рівняння (6) визначає розподіл потенціалу  $\varphi(\vec{r})$  в околі виділеної макрочастинки КДФ в поляризованій плазмі. Перший інтеграл (6) дає розподіл локального електричного поля в  $C_{\xi}^z$ . Разом з умовами (3-5), дані щодо поляризуємоостей частинок плазми дають можливість отримати замкнену систему рівнянь для визначення функції  $\varphi(\vec{r})$ , зарядового числа з КЧ та злічених концентрацій електронів і іонів в газовій фазі. Якщо підсистема частинок КДФ представлена монодисперсною фракцією сферичних емітерів, то розв’язок іонізаційних рівнянь ЗП значно спрощується, оскільки об’єм чарунки електронейтральності згідно з принципом симетрії співпадає з парціальним об’ємом на одну макрочастинку в плазмовій системі.

У наступному розділі наведено (з наголосом на суттєвих фізичних моментах модельного підходу) результати аналізу даних комп’ютерної симуляції впливу поляризаційних ефектів в ЗП на розподіл вільних зарядів поблизу макрочастинок КДФ.

## 2. Структура кулонівських неоднорідностей поляризованої ЗП

Для області визначальних параметрів, у якій потенціальна енергія електронів і іонів в екваторіальній площині чарунки мала порівняно з  $kT$ , рівняння Пуасона (6) допускає лінеаризацію. В цьому випадку, нормуючи радіальну координату за допомогою дебаєвської довжини електрон-іонного компонента плазми на екваторіальній лінії чарунки “ЕЛ” (рис.1)

$$r_D = \alpha^{-1} = \left\{ \frac{4\pi e^2}{kT} \left( n_{e0} + \sum m_i^2 \cdot n_{i0} \right) \right\}^{-1}, \quad (7)$$

а потенціальну енергію зарядів (і всі інші “енергетичні” величини) на теплову енергію  $kT$ , рівняння Пуасона-Больцмана в термінах безрозмірних величин

$$\begin{aligned} \Psi &= \left[ e\varphi \cdot (kT)^{-1} + \alpha \right]; \quad \alpha = \\ &= \left( n_{e0} - \sum m_i^2 \cdot n_{i0} \right) \cdot \left( n_{e0} + \sum m_i^2 \cdot n_{i0} \right)^{-1}; \quad \chi = \alpha r; \end{aligned} \quad (8)$$

запишемо

$$\frac{1}{\chi^2} \frac{d}{d\chi} \left( \chi^2 \frac{d\Psi}{d\chi} \right) + \frac{1}{\chi^2 \cdot \sin\theta} \frac{d}{d\theta} \left( \sin\theta \frac{d\Psi}{d\theta} \right) = \Psi \quad (9)$$

З врахуванням циліндричної симетрії завдання, межових умов (1-2) та співвідношень (3-5), аналітичний розв'язок (9) було одержано в [7] у вигляді розкладу за базисом модифікованих сферичних функцій Бесселя напівцілого порядку

$$\Psi(\chi, \theta) = \sqrt{\pi/(2\chi)} \cdot \sum_{m=0}^1 P_m(\cos\theta) \cdot [Q_m I_{m-1/2}(\chi) + S_m I_{-m-1/2}(\chi)], \quad (10)$$

де:  $u$  — полярний кут співпутної сферичної системи координат пов'язаної з КЧ, полярна вісь якої співпадає з віссю OZ;  $P_m(\cos\theta)$ ,  $I_{\pm(m+1/2)}$  — поліноми Лежандра та модифіковані сферичні функції Бесселя напівцілого порядку [9-10];  $Q_m$ ,  $S_m$ ,  $m=1, 2$  — коефіцієнти розкладу (10), обчислюються на основі межових умов (1-2) за формулами:

$$\begin{aligned} Q_0 &= \text{ж} \left[ 2\alpha \cdot \chi_a \cdot \text{ch}(\chi_p) - \chi_a \chi_p \text{sh}(\chi_p) - \frac{z \cdot e^2}{kT/\text{ж}} \cdot \text{ch}(\chi_p) \right] \times \\ &\quad \times \left[ \chi_a \cdot \text{ch}(\chi_a - \chi_p) + \text{sh}(\chi_a - \chi_p) \right]^{-1}; \\ S_0 &= \alpha \cdot \left[ \chi_p \cdot \text{ch}(\chi_p) - \chi_a \cdot \text{sh}(\chi_p) + \frac{z \cdot e^2}{kT/\text{ж}} \cdot \text{sh}(\chi_a) \right] \times \\ &\quad \times \left[ \chi_a \cdot \text{ch}(\chi_a - \chi_p) + \text{sh}(\chi_a - \chi_p) \right]^{-1}; \\ Q_1 &= \frac{eE\chi_a^3}{ckT} \cdot \left\{ \left[ 2\chi_p \cdot \text{sh}(\chi_p) - 2\text{ch}(\chi_p) - \chi_p^2 \cdot \text{ch}(\chi_p) \right] - \right. \\ &\quad \left. - \left[ \text{ch}(\chi_a) - \chi_a \cdot \text{sh}(\chi_a) \right] \right\} D^{-1}; \\ S_1 &= \frac{eE\chi_a^3}{ckT} \cdot \left\{ \left[ 2\chi_p \cdot \text{ch}(\chi_p) - 2\text{sh}(\chi_p) - \chi_p^2 \cdot \text{sh}(\chi_p) \right] - \right. \\ &\quad \left. - \frac{\chi_p^3 \cdot E_p}{\chi_a^3 \cdot E} \cdot \left[ \text{sh}(\chi_a) - \chi_a \cdot \text{ch}(\chi_a) \right] \right\} \cdot D^{-1}; \\ D &\equiv \left\{ \text{ch}(\chi_a - \chi_p) \cdot \left[ \chi_a \chi_p^2 + 2 \cdot (\chi_a - \chi_p) \right] + \right. \\ &\quad \left. + \text{sh}(\chi_a - \chi_p) \cdot \left[ \chi_a \chi_p + \chi_p \cdot (\chi_a - \chi_p) - 2 \right] \right\}. \end{aligned} \quad (11)$$

Напруженість локального електричного поля в стаціонарній плазмовій системі зі струмом, як і у випадку плазми “без поля”, визначається градієнтом потенціалу (10)



$$\vec{E}(\chi, \theta) = - \sum_{j=1}^3 \left[ \frac{\partial \Psi}{\partial \chi} \cdot \frac{\partial \chi}{\partial x_j} + \frac{\partial \Psi}{\partial \cos \theta} \cdot \frac{\partial \cos \theta}{\partial x_j} \right] \cdot \vec{n}_j \quad (12)$$

Співвідношення (10-12) визначають розподіли потенціалу і напруженості локального максвелівського поля в  $C_{\xi}^z$ , тобто фактично задають мікроструктуру локальних кулонівських неоднорідностей поблизу КЧ в слабоіонізованій ЗП поляризованій зовнішнім електричним полем. Для завдань комп'ютерного моделювання електрофізичних параметрів ЗП з суттєвою іонізацією компонентів та в умовах дії сильних зовнішніх електричних полів (які поблизу КЧ досягають значень, що порівнюються з локальними) на алгоритмічній мові MS-Fortran було розроблено комплекс програм плазмової симуляції RIGPM. В основу алгоритмів розв'язку рівняння (6) покладено модифіковані методи "матричної прогонки" для обмежених 2D-областей означення потенціалу  $\Psi$  [11-12]. Проекції локального електричного поля на координатних вісі і саме поле (модуль його напруженості) визначаються з врахуванням формул (8,10-12) за допомогою співвідношень

$$E_j = - \frac{\partial \Psi}{\partial x_j} = - (\vec{\nabla} \Psi \cdot \vec{n}_j), \quad j = 1, 2, 3 ;$$

$$E(\vec{r}) \equiv |\vec{E}(\vec{r})| = \sqrt{\sum_{j=1}^3 (\partial \Psi / \partial x_j)^2} . \quad (13)$$

Індекс "j" нумерує вісі координат,  $\vec{n}_1, \vec{n}_2, \vec{n}_3$  – орти координатних вісей  $OX, OY, OZ$  (див. рис. 1). На рис. 2 а), б), в) представлені дані розрахунку "повздожнього" (у напрямку  $\vec{E}_0$ ) компоненту напруженості локального поля  $E_z(r, \theta)$  слабоіонізованої ЗП в умовах стаціонарного електричного поля зовнішніх зарядів, модуль якого становить відповідно 0.1, 0.5 та 0.9 величини кулонівського поля  $E_Q = ze/r_p^2$  центральної макрочастинки КДФ у чарунці. Розподіли z-компоненту  $E_z$  визначено в перетині чарунки  $C_{\xi}^z$  координатною площиною  $YZ$ . Внаслідок циліндричної симетрії завдання, ці розподіли залишаються незмінними для довільних перетинів  $C_{\xi}^z$  площиною, що проходить через вісь  $OZ$  (див. рис. 1). У слабкому зовнішньому полі, осереднене макроскопічне поле ЗП  $\vec{E} = \vec{E}_0 - \vec{E}_1$  ( $\vec{E}_1$  – деполяризуюче поле, величина якого пропорційна поляризації) приймає малі за модулем значення порівняно зі значеннями кулонівського поля уєднаної КЧ із зарядом  $ze$ . В даному випадку зміни z-компоненту локального електричного поля  $\vec{E}(\chi, \theta)$  спричинені взаємодією поляризації ЗП та поля  $\vec{E}$  теж будуть

незначними, і помітно проявляються тільки в області  $\chi \leq 3r_p$ ,  $\theta > 120^\circ$  (рис.2, а) та 2, б)). Нелінійне екранування КЧ ( в умовах суттєвого значення зовнішнього поля  $E = 0.9 \cdot E_0$ , рис. 3, в)) породжує значні неоднорідності у розподілі локального поля  $E_z(\chi, \theta)$  в чарунці  $C_\xi^z$ . Потенціальна енергія взаємодії макроскопічного поля  $\vec{E}$  і вектора об'ємної поляризації ЗП (5) у цій області перевищує  $kT$ , що призводить до суттєвої перебудови “картини” силових ліній локального електричного поля в межах електронейтральної чарунки (див. рис. 3, б); 3, в)) та безпосередньо відбивається на розподілах густини електрон-іонного компоненту в об'ємі чарунки. Парціальний внесок поляризаційної складової потенціальної енергії зростає та спричинює все більш суттєві неоднорідності градієнтів поля на периферії електронейтральних чарунок плазми.

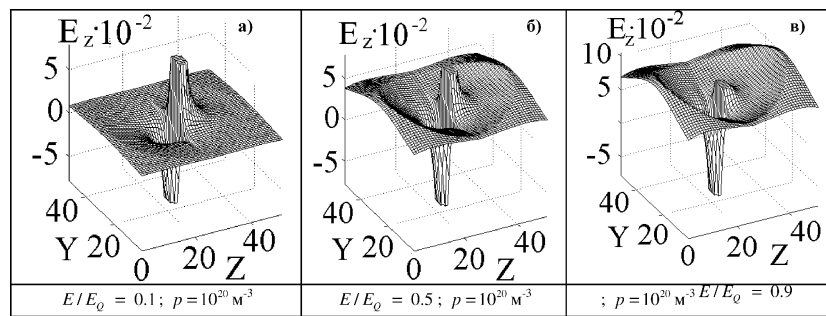


Рис. 2. “Повздожній” компонент напруженості локального електричного поля у чарунці електронейтральності ЗП. а), б), в) — відповідають нарощуванню зовнішнього поля та відносному зростанню модуля макроскопічного поля ЗП  $\vec{E}$

### Комп'ютерний експеримент

В загальному випадку рівняння Пуасона (6) з граничними умовами (1) і (2) розв'язків у квадратурах не має. При суттєвій неоднорідності розподілу потенціалу інтеграл (6) можна отримати методом “розділу об'єму чарунки на області нелінійного та лінійного екранування” [10], або за допомогою метода сіток на обмеженому 2D-інтервалі радіальної та кутової змінних [11]. Обидва вказані методи було долучено до алгоритмів пакету RIGPM, що дозволило провести комп'ютерне моделювання станів ЗП в широкому діапазоні визначальних термодинамічних параметрів, який охоплює практично всю характерну для впровадженень область температур і тисків, і у якій ще є можливим співіснування газової фази та частинок КДФ. Інтеграл радіальної складової локального максвелівського поля за поверхнею чарунки виз-

начає потік вектора напруженості електростатичного поля через  $S_C$ , який згідно з теоремою Остроградського-Гауса, в свою чергу, визначається зарядом частинок, що локалізуються в  $C_\xi^z$ , і повинен для кожної електронейтральної частинки обертатись до нуля. Цей верифікаційний критерій завжди застосовувався для оцінок точності та стабільності функціонування програм RIGPM, причому відносна точність розрахунків потенціалу і мікрополів складала  $10^{-12}$ .

В умовах лабораторного експерименту або в технологічних плазмових установках необхідних інтегральних рівнів іонізації ЗП досягають шляхом зміни концентрації атомів, що легко іонізуються (лужних домішок), в газовій фазі ЗП, або підвищуючи парціальний дисипативний внесок у внутрішню енергію ЗП (звичай омічний внесок Джоулевого тепла при протіканні струму через плазму [2,10]). Причому інтервал можливих значень концентрацій носіїв струму в газовій фазі (електронів і іонів) є попередньо відомим. У завданнях комп'ютерного моделювання, які мають на меті вивчення механізму впливу поляризації компонентів ЗП на її іонізацію, весь спектр допустимих рівнів іонізації ЗП може бути "просканиваний" за допомогою програм комплексу RIGPM. Таким чином, з'являється можливість в рамках комп'ютерного експерименту, що ґрунтується на рівняннях запропонованого модельного підходу, змінюючи сумарну концентрацію іонів та електронів  $p$ , з одного боку — "відстежити" вплив поляризаційних ефектів на електрофізичні параметри ЗП, з іншого — визначити потенціальну взаємодію її зарядів і електричного поля.

Повномасштабні розрахунки розподілу самоузгодженого потенціалу та локальної напруженості електричного поля в околі індивідуальних макрочастинок КДФ було проведено для стандартних умов реально діючих плазмових установок, які використовують плазму продуктів згоряння або електричного вибуху провідників [1-2,5]:

$$T \in [1000, 5000] \text{ K}; \quad p \in [10^8, 10^{22}] \text{ м}^{-3}; \quad n_p = [10^{11}, 10^{20}] \text{ м}^{-3};$$

$$r_p = [10^{-9}, 10^{-5}] \text{ м}; \quad I_a, W \in [2, 8] \text{ eВ};$$

$$\alpha \in [-1, +1]; \quad \tilde{E} \equiv |E/E_0| \in [0, 1]; \quad \tilde{E}_p \equiv |E_p/E_0| \in [0, 0.08]$$

( $T$  – температура,  $p$  – зліченна концентрація електронів і іонів в газовій фазі;  $n_p$  – концентрація частинок КДФ;  $I_a$  – потенціал іонізації молекул або атомів газу;  $W$  – робота виходу електронів для речовини КЧ;  $\alpha$  згідно з (5) задає співвідношення густини компонентів електрон-іонної атмосфери позитивної та негативної поляризованості;  $\tilde{E}$  та  $\tilde{E}_p$  – модулі напруженостей макроскопічних полів ЗП і КЧ нормовані на кулонівське поле макрочастинки. Типовий варіант результатів комп'ютерної симуляції електрофізичних параметрів (потенціалу і локального поля) для ЗП зі струмом та наведеною зовнішнім полем  $\vec{E}_0$  поляризацією представлено на рис. 3. Триади рисунків

3 а), б), в); 3 г), д), е) та 3 є), ж), з) отримано за допомогою програм пакету RIGPM для фіксованого набору визначальних параметрів ЗП ( $T = 2600 \text{ K}$ ;  $n_p = 10^{16} \text{ м}^{-3}$ ;  $p = (n_{e0} + n_{i0}) = 10^{19} \text{ м}^{-3}$ ;  $r_p = 1 \cdot 10^{-7} \text{ м}$ ;  $\alpha = 0.8$ ;  $W = 4.7 \text{ eV}$ ). Дані для кожної з них обчислено для певного співвідношення осередненої напруженості максвелівського електричного поля в об'ємі плазми та напруженості кулонівського поля КЧ і заданих значень густини електрон-іонної атмосфери макрочастинки (відповідні значення модуля макроскопічного поля  $\tilde{E} = E/E_0$  та концентрації  $p$  наведені знизу, під кожною з груп рисунків). Залежності самоузгодженого потенціалу потенціалу та локального електричного поля на рис 3,а) + 3, з) охоплюють весь інтервал зміни полярного кута  $\theta \in [0, \pi]$  та радіальної координати  $\tilde{r} = r/r_p$ , яка для означеного вище набору визначальних термодинамічних параметрів ЗП змінювалась у межах відрізка  $[\tilde{r} \in 1, 8]$ . Як видно з рисунків, падіння самоузгодженого потенціалу в напрямку зовнішнього поля  $\vec{E}_0$  (відображується на рисунках 3,в); 3,е); 3, з) кривими "1") є найбільш різким, та, у випадку слабкої іонізації ЗП, при великих значеннях  $\tilde{r} > 3$  — практично лінійне. Отже на периферії чарунок в слабо-іонізованій ЗП складові градієнту концентрацій газових іонів у напрямку  $\vec{E}_0$  теж будуть лінійними. Для  $\theta = \pi/6, \pi/3, \pi/2$  падіння потенціалу  $\Psi(\tilde{r}, \theta)$  має аналогічний характер, але ділянки його лінійного ходу вкорочуються. У напрямках "проти поля"  $\vec{E}_0: \theta = 2\pi/3, 5\pi/6, \pi$  на радіальних залежностях  $\Psi$  добре видно наявність локальних мінімумів потенціалу. Їх існування спричинене деполаризуючим полем в об'ємі ЗП, яке разом з власним полем позитивної КЧ "протидіє" зовнішньому полю  $\vec{E}_0$ . В стаціонарних точках така протидія обертає до нуля радіальну компоненту локального електричного поля в чарунці, і вільні заряди електрон-іонної атмосфери КЧ поблизу екстремальних точок не набувають радіальних прискорень. Фізично це призводить до накопичення протиіонів макрочастинок поблизу точок екстремуму  $\Psi$ . Зростання зовнішнього поля підсилює даний ефект, причому пропорційне зростання зовнішнього поля та іонізації ЗП у випадку нелінійного екранування КЧ (рис. 3, з)) призводить до значних неоднорідностей розподілу зарядів в периферійних областях чарунки  $\chi \leq \chi_a$  при відносному зменшенні градієнтів  $\Psi$  її внутрішній області. Підвищення іонізації ЗП є спряженим із зростанням заряду індивідуальних КЧ, що у свою чергу спричинює зростання деполаризуючого поля ЗП та призводить до значної трансформації структури розподілу об'ємного заряду в електрон-іонній атмосфері КЧ. Порівняння 1-ї, 2-ї та 3-ї триад рисунків 3 дає наочне уявлення щодо якісних і кількісних

змін у розподілах потенціалу і напруженості локального електричного поля в чарунці електронейтральності ЗП. Вказані зміни, як показує комп'ютерний експеримент, носять загальний характер, відтворюються в широкому діапазоні параметрів плазми і є стимульованими взаємодією зовнішнього поля  $\vec{E}_0$  та наведеної поляризації макрочастинок КДФ і їх електрон-іонних атмосфер.

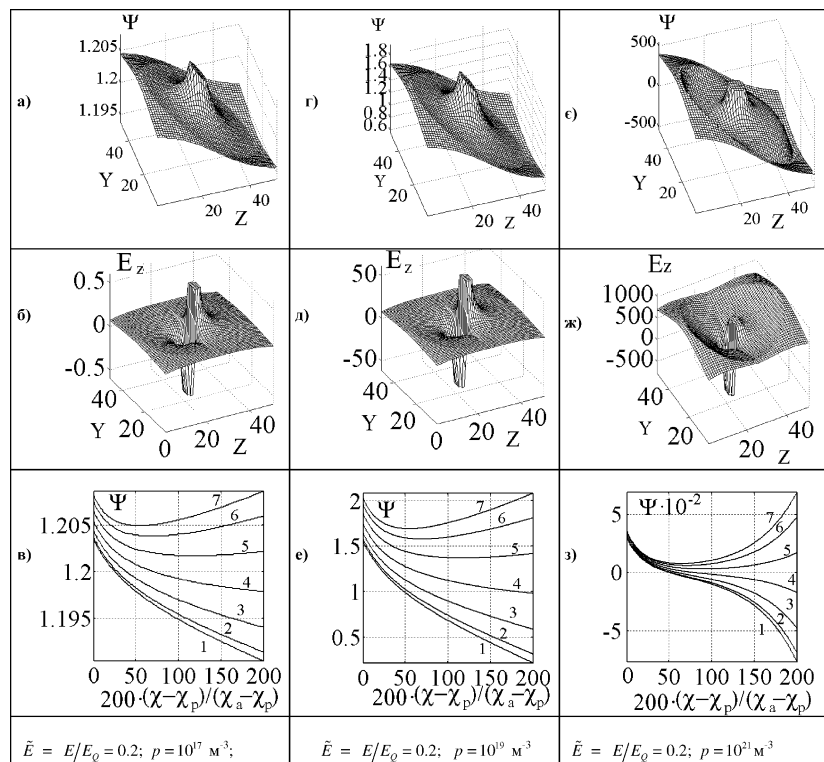


Рис. 3. 2D-графіки самоузгодженого потенціалу та модуля z-компоненту напруженості локального електричного поля в околі макрочастинки КДФ у запиленій плазмі зі струмом, поляризованій електростатичним полем джерел термостату

У напрямках "назад" ( $\theta = \pi, 5\pi/6, 2\pi/3$ ) у всіх випадках спостерігається наявність локальних мінімумів потенціалу  $\Psi(r, \theta)$  за радіальною координатою. Причому, зростання рівня іонізації ЗП разом з відповідним (у

стільки ж разів) зростанням напруженості максвелівського електричного поля, призводить до відносного “поглиблення” мінімуму (зниження значення потенціалу в стаціонарній точці за радіальною координатою  $\chi$  порівняно з максимальним). В сильному зовнішньому полі суттєво іонізована ЗП стає “більш однорідною” поблизу індивідуальних КЧ, і, в той же час, має більш різкі зміни градієнтів злічених концентрацій зарядів газових компонентів в електрон-іонній атмосфері макрочастинки на периферії чарунки (див. рис.3, є), 3,ж), 3,з) )

### Висновки

Фізично нелінійність розподілу густини екрануючого заряду поблизу межової поверхні чарунок  $C_{\xi}^z$  зумовлена конкуруючою взаємодією внесків в локальне електростатичне поле макрочастинок, зарядів термостату та наведеної поляризації ЗП. Зростання зовнішнього поля ЗП посилює призводить до зростання поляризації, отже зростає напруженість деполяризуючого поля за рахунок якого і підсилюється вказаний ефект. Дані комп’ютерної симуляції (див. рис. 2 та рис.3) підтверджують цей висновок.

Слід зазначити, що “паралельне” зростання ефективного значення наведеного дипольного моменту зарядженої макрочастинки  $\vec{d}_p$  та макроскопічного максвелівського поля  $\vec{E}$  ЗП зі збільшенням модуля зовнішнього поля  $\vec{E}_0$  підвищує парціальний внесок потенціальної енергії ЗП в термодинамічні потенціали. При деяких рівнях поляризації “частикового” компоненту енергії взаємодії дипольного моменту індивідуальної КЧ з полем  $\vec{E}$  стає порівнюваною і перевищує  $kT$ . В цьому випадку колективізована взаємодія зарядів поляризованої плазми і електричного поля відіграє вирішальну роль у механізмі виникнення регулярних структур макрочастинок в об’ємі ЗП в умовах дії зовнішнього поля, що їх виявлено в натурних експериментах [15-17].

### Література

1. Цытович В.Н., Морфилл Г.Е., Томас В.Х. Комплексная плазма: I. Комплексная плазма как необычное состояние вещества // Физика плазмы. — 2002. — Т. 28, № 8. — Р. 675-708.
2. Dusty Plasmas: Physics, Chemistry, and Technological Impact in Plasma Processing Andre Bouchoule (Editor), John Wiley & Sons, Inc. — 1999. — 418 p.
3. Yu.Yu.Protasov, Telekh V.D., Chuvashhev S.N. The Gasdischarge electronics/ Ed. Yu. S. Protasov — М.: Р.Н. ВМSTU, 2002. — 723 p.
4. Маренков В.І. Вплив електронних та діелектричних властивостей металу на іонізацію гетерогенної плазми, утвореної буферним газом та ансамблем емітуючих металевих макрочастинок // Вісник Одеського державного університету. — 2000. — Т.5, Вип.3. — С. 202-208.

5. Marenkov V.I. Polarization Influence on the Aerosol Plasma Ionization // *Journal of Aerosol Science*. — 2001. — Vol.32, Sup. 1. — P. S995 — S996.
6. Marenkov V.I. Statistical Description of Ionization State in Combustion Aerosols // *Journal of Aerosol Sci.* — 1995. — Vol. 26, Sup.1. — P. S621 — S692.
7. Маренков В.І. Структура кулонівських неоднорідностей запиленої плазми, поляризованої зовнішнім електростатичним полем // *Вісник Одеського державного університету*. — 2003. — Т.5, Вип.6. — С. 256-265.
8. Abramowitz, M. and Stegun, I. A. (Eds.). “Modified Spherical Bessel Functions.” §10.2 in *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*, 9th printing. — New York: Dover, 1972. — P. 443-445.
9. Press W. H., Flannery B. P., Teukolsky S. A. and Vetterling W. T. “Bessel Functions of Fractional Order, Airy Functions, Spherical Bessel Functions.” §6.7 in *Numerical Recipes in FORTRAN: The Art of Scientific Computing*, 2nd ed.- Cambridge, England: Cambridge University Press, 1992.-P. 234-245.
10. Marenkov V.I. Connection of the Particles Charges with their Size Distribution in Dusty Plasma Systems. — *Physics of Low Temperature Plasma 03, Seminar on Technological Applications of Plasma, Workshop on Application of the Low Temperature Plasma in the Power Engineering, PLTP-03, Kyiv, Ukraine, May 11-15, 2003.* — Kyiv, 2003. — P.9-1-89-i.
11. Marenkov V.I. Chapskyy E. Influence of the Polarization on the ionization of a Dusty Plasma.- 2nd International Conference Physics of Liquid Matter: Modern Problems (PLM MP Kyiv 2003), September 12-15, 2003. — Kyiv, Ukraine. — P.1-27.P.
12. Pieper J. B., Goree J., and Quinn R. A. Experimental studies of two-dimensional and three-dimensional structure in a crystallized dusty plasma // *J. Vac. Sci. Technol. A*. — 1996a. — Vol. 14. — P. 519-524.
16. Vasut J. A. and Hyde T. Computer simulations of Coulomb crystallization in a dusty plasma // *IEEE Transactions on Plasma Science*. — 2001. — Vol. 29, №2. — P. 231-237.
15. Tsytoovich V. N., Vladimirov S. V., Morfill G. E. and Goree J. Theory of Collision-Dominated Dust Voids in Plasmas // *Physical Review E*. — 2001. — Vol. 63. — P. 056609-1 056609-11
16. Vasut J. A., Lennek M. D. and Hyde T. W. Plasma condensation and the one component plasma model // *Adv. Space Res.* — 2002a. — Vol. 29(9). — P. 1295-1300.
17. Quinn R. A. and Goree J. Particle Interaction Measurements in a Coulomb Crystal Using Caged-Particle Motion // *Physical Review Letters*, 2002. — Vol. 88. — P. 195001-1 — 195001-4.

*В. И. Маренков*

**Наведенная поляризация запыленной плазмы  
с электрическим током**

**АННОТАЦИЯ**

В рамках статистической ячейочной модели исследована квазинейтральность стационарной запыленной плазмы (ЗП) с электрическим током. Описание многочастичного взаимодействия кулоновских микрополей и зарядов поляризованной ЗП путем усреднения по ансамблю ячеек сведено к эффективной электростатической задаче о зарядовом равновесии индивидуальной КЧ и ее электрон-ионной атмосферы. В терминах безразмерных максвелловского и деполаризирующего электрических полей исследовано влияние поляризации ЗП на структуру кулоновских микронеоднородностей вблизи макрочастиц. Показано, что индуцированная внешним электрическим полем поляризация ЗП может создавать условия для образования регулярных структур макрочастиц в плазме.

*Marenkov V. I.*

**The Induced Polarization of the Dusty Plasma with Electric Current**

**SUMMARY**

The quasineutrality of the stationary dusty plasma (DP) with the electric current was investigated in the frame of the statistic cell model. The description of manyparticles interaction of the Coulomb micro fields and with charges of the polarized DP by means of averaging-out the cell by ensemble is reduced to the effective electrostatic problem on charge equilibrium of the individual condensed particle and its electric-ionic atmosphere. The influence of the polarization DP on the structures of the Coulomb microinhomogeneities near the macro particles is investigated in the terms of dimensionless of Maxwell and depolarization electric fields. It is shown that induced by external electric field DP-polarization may create conditions for the formation of regular structures macroparticles in plasma.



**Д. В. Билей<sup>1</sup>, Г. С. Драган<sup>2</sup>, В. Г. Соловьев<sup>3</sup>, В. Ю. Кочнева<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> *НАЭК “Энергоатом”*

<sup>2</sup> *Одесский национальный университет им. И. И. Мечникова*

<sup>3</sup> *Одесский государственный экологический университет*

### **Анализ применения риск-ориентированных подходов для оптимизации эксплуатационного контроля атомных электростанций**

В работе проведен анализ организации эксплуатационного контроля на АЭС и, в частности, организации контроля концентрации борного раствора теплоносителя. Рассмотрено использование риск-ориентированных подходов для анализа эффективности системы контроля концентрации борного раствора на АЭС.

Эксплуатационный контроль оборудования и трубопроводов АЭС является важнейшим аспектом системы организационных и технических мер по сохранению эффективности физических барьеров на пути распространения ионизирующего излучения и радиоактивных веществ. Согласно [1] первый уровень такой системы включает “поддержание в исправном состоянии систем (элементов), важных для безопасности, путем своевременного определения дефектов ... и организации эффективно действующей системы документирования результатов работ и контроля”.

Практическая реализация эксплуатационного контроля на АЭС Украины претерпевает изменения, обусловленные развитием научных подходов к обоснованию целостности оборудования и трубопроводов, внедрением более совершенных средств и систем контроля, повышением требований к поддержанию необходимых запасов безопасности и уровня надежности, стремлением к снижению дозовых нагрузок на персонал при проведении регламентных работ и др.

Современные подходы к организации и проведению эксплуатационного контроля находят внедрение на АЭС Украины. Так, при поддержке Департамента энергетики США внедряется риск-ориентированный эксплуатационный контроль (RIISI) [2]. Опыт реализации RIISI на АЭС США (Vermont Yankee, Arkansas Nuclear One и Surry) показал, что такая методика проведения эксплуатационного контроля является экономически выгодной, технически обоснованной, эффективно объединяет опыт эксплуатации и программы контроля, учитывает процессы деградации металла, снижает дозовые нагрузки на персонал.

Под риск-ориентированными подходами понимаются методы количе-

ственной и качественной оценки риска в зависимости от различных факторов, влияющих на безопасность эксплуатации оборудования и энергоблоков. На основе этой зависимости можно проанализировать влияние изменений, вызванных различными причинами (модернизация, изменение количественного / качественного состава оборудования и т.п.), на показатели риска. В качестве показателей риска (функции риска / критерии риска) могут быть использованы различные параметры, выбор которых определяется в первую очередь решаемыми задачами. Так, в Вероятностном анализе безопасности (ВАБ), как одном из основных видов риск-ориентированных подходов, в качестве показателей риска используется, в основном, частота повреждения активной зоны (ЧПАЗ) или частота сверхплановых выбросов радиоактивных продуктов в окружающую среду (ЧСВ). В риск-ориентированном подходе эксплуатационного контроля состояния металла оборудования/трубопроводов RИISI в качестве целевой функции риска используются вероятностные показатели, отражающие вероятность разрушения элемента/системы и влияние этих элементов/систем на общую безопасность эксплуатации. Использование этих показателей позволяет определить различные области риска и соответствующим образом оптимизировать количество средств эксплуатационного контроля.

Планирование эксплуатационного контроля на АЭС Украины регламентировано требованиями НД [3], которые устанавливают разработку типовых (инструкций, регламентов) и рабочих программ контроля. Этим же документом определены требования к содержанию этих программ. Типовые программы контроля разрабатываются для каждого типа ЯЭУ (ВВЭР-440, ВВЭР-1000 и РБМК) и подлежат согласованию с регулирующим органом.

Сравнение содержания типовых программ эксплуатационного контроля АЭС Украины и США представлены в табл. 1. Приведенный сравнительный анализ позволяет сделать вывод, что структура типовых программ эксплуатационного контроля для АЭС Украины и США в основном совпадают. Различия и особенности программ состоят в следующем:

- типовые программы контроля для АЭС Украины разрабатываются для каждого типа ЯЭУ;
- для АЭС США с легководными реакторами типовая программа содержится в разделе XI Кодекса ASME [4];
- в типовых программах контроля для АЭС Украины ключевое положение занимает конкретный тип оборудования или трубопровода; в аналогичных документах США – категория контроля.

Одной из важных систем эксплуатационного контроля является система непрерывного и периодического контроля концентрации борного раствора теплоносителя.

В соответствии с п.4.4.6 ОПБ-88 [7] “должны быть предусмотрены указатели положения органов воздействия на реактивность, автоматический контроль концентрации растворимого поглотителя и указатели состояния других

средств воздействия на реактивность”. Необходимость контроля концентрации борного раствора также регламентируется ПБЯ РУ АС-89 [8] п.2.4.13, 2.4.15, где указывается, что “на РЩУ должны быть выведены сигналы о состоянии систем отдельных элементов систем РУ, как минимум, включая следующие: ... параметры состояния поглотителя (температура, давление, концентрация и т.п.)...”. “Должны быть предусмотрены технические средства контроля содержания протонов поглотителей нейтронов в жидком и газообразном поглотителе (в случаях их использования) в реакторной установке и в емкостях аварийного запаса поглотителя в процессе эксплуатации РУ”.

Таблица 1

**Содержания типовых программ эксплуатационного контроля АЭС Украины и США**

	Украина	США
Нормативный документ	ПН АЭ Г-7-008-89 [3]	Раздел XI Кодекса ASME [4]
	Требования к содержанию типовой программы контроля для каждого типа АЭУ	Требования к эксплуатационному контролю компонентов АЭС с легководными реакторами
Типовая программа контроля	Унифицированная инструкция по периодическому контролю состояния основного металла, сварных соединений и наплавки оборудования и трубопроводов атомных электростанций с ВВЭР-1000 (АИЭУ-9-94) [5]	Требования к эксплуатационному контролю, включая сведения об оборудовании, методах, объемах и периодичности контроля для компонентов легководных АЭС, содержащиеся в подразделах IWB, IWC, IWD [4]
Содержание	Классификация оборудования и трубопроводов по группам А, В и С	Классификация компонент по 1, 2 и 3 классу
	Указаны конкретные виды контролируемого оборудования и трубопроводов	Указаны компоненты АЭС, которые подлежат эксплуатационному контролю
	Определены зоны контроля	Определены зоны контроля
	Определены методы контроля	Определены методы контроля
	Определена периодичность	Определена периодичность
	Даны ссылки на НД по неразрушающим методам контроля и оценке результатов	В разделе XI Кодекса ASME [4] представлены методики контроля и нормы оценки качества. Для некоторых методик даны соответствующие ссылки
	Согласовывается с органом государственного регулирования ядерной и радиационной безопасности	Входит в состав Кодекса ASME, обязательного к использованию на АЭС США [6]

Приведенные нормативные требования указывают на важность и необходимость измерения концентрации борной кислоты в растворах. Действующий в настоящее время отраслевой нормативный документ ГНД 95.1.06.02.001–97 [9]<sup>1</sup> устанавливает требования к качеству теплоносителя первого контура, качеству воды и растворов вспомогательных систем первого контура, к объему химического контроля. Данный документ не распространяется на систему борного регулирования. Требования к этой системе представлены в ГОСТ 24693–81 [10]. Нормы концентрации борной кислоты в теплоносителе первого контура и растворах вспомогательных систем сведены в табл.2 [9]. В качестве примера в табл.2 приведены позиции НАР-Б, которые обеспечивают автоматический контроль концентрации  $H_3BO_3$  на энергоблоках 1, 2 и 3 ЮУАЭС и периодичность проведения лабораторного химического контроля (ЛХК). Как видно из табл.2, на ЮУАЭС не для всех нормированных точек контроля предусмотрен автоматический контроль. Точки контроля, в которых НАР-Б не используется, контролируются с помощью периодического проботбора.

Несмотря на имеющиеся различия в системах, при контроле концентрации используются два способа: непрерывный, с помощью датчиков НАР-Б (анализатор раствора нейтронный базовый) и периодический, путем отбора проб с последующим анализом в химлаборатории. Причем, оба способа контроля концентрации применяются для одной и той же точки замера. Следует отметить, что наличие двух способов контроля обусловлено, прежде всего, условиями использования НАР-Б. В техническом описании и инструкции по эксплуатации НАР-Б [11] указывается, что анализатор предназначен для измерения концентрации борной кислоты в реакторной установке **с использованием систем проботбора** в трубопроводах и емкостях вспомогательных систем АЭС с ВВЭР.

Для РУ В-320 контроль концентрации с помощью НАР-Б производится в следующих системах:

1. Система аварийного охлаждения активной зоны реактора высокого давления с насосами аварийной подпитки 1-го контура и аварийного впрыска борного раствора.
2. Система аварийного охлаждения активной зоны реактора низкого давления.
3. Система гидроаккумуляторов.
4. Ядерный реактор (система внутрореакторного контроля).
5. Компенсатор давления.
6. Система подпитки и продувки первого контура.
7. Система спецводоочистки. Установка СВО-1.
8. Система подачи химреагентов.

---

<sup>1</sup> В настоящее время введен новый документ ГНД95.1.06.02.001-02.

Таблица 2

## Нормы концентрации борных растворов

Теплоноситель первого контура и растворы вспомогательных систем	Норма, г/дм <sup>3</sup>	Позиции измерительного канала			Используемый диапазон, г/дм <sup>3</sup>	Периодичность проведения ЛХК
		Блок №1	Блок №2	Блок №3		
Теплоноситель 1-го контура: При работе реактора на мощности	От 0 до 10,0	49	49	TV30Q01	0±20	1 раз/сутки
		50	50	TV40Q01		
		78	78	TV50Q01		
При останове реактора для перегрузки и ремонта оборудования	Не менее 16,0	49	49	TV30Q01	0±20	1 раз/смену
		50	50	TV40Q01		
		78	78	TV50Q01		
В период физического пуска и перед выходом реактора на мощность	Не менее 16,0	49	49	TV30Q01	0±20	1 раз/смену
		50	50	TV40Q01		
		78	78	TV50Q01		
Подпиточная вода	От 0 до 40,0	АП-102	АП-102	ТК30Q01 <sup>1</sup>	0±20	1 раз/смену
Раствор в баках аварийного запаса бора	Не менее 16,0	АА 201	АА 201	ТQ12Q01 <sup>1</sup>	0±20	1 раз/неделю и по распоряжению
		АА 202	АА 202	ТQ22Q01 <sup>1</sup>		
		АА 203	АА 203	ТQ32Q01 <sup>1</sup>		
Раствор в баках концентрированного раствора борной кислоты	40,0±44,0	АА 207	АА 207 Т295В01 Т294В01	ТQ13Q01	0±50	1 раз/неделю
				ТQ23Q01		
				ТQ33Q01		
				ТQ14Q01		
				ТQ24Q01		
ТQ34Q01						

<sup>1</sup> Датчики НАР-Б установлены на напоре насосов аварийного и планового расхолаживания ТQ12(22,32)D01. Установка датчика НАР-Б на бак приемка технологически невозможна. Концентрация Н<sub>2</sub>ВO<sub>3</sub> непосредственно в баке аварийного запаса бора измеряется с помощью проботбора.

Окончание табл. 2

Теплоноситель первого контура и растворы вспомогательных систем	Норма, г/дм <sup>3</sup>	Позиции измерительного канала	Используемый диапазон, г/дм <sup>3</sup>			Периодичность проведения ЛХК
			Блок №1	Блок №2	Блок №3	
Раствор в гидроемкостях САОЗ	Не менее 16,0	I-158 III-158 IV-158	I-158 II-158 III-158 IV-158	УТ11Q01 УТ12Q01 УТ13Q01 УТ14Q01	0÷20	1 раз/неделю
Щелочной раствор борной кислоты (вводится в боросодержащую воду при работе спринклерной установки)	Не менее 150,0	Отсутствует <sup>1</sup>	Отсутствует <sup>1</sup>	Отсутствует <sup>1</sup>	-	1 раз/неделю
Борный раствор спринклерной установки	От 12,0 до 16,0	Отсутствует	Отсутствует	Отсутствует	-	-
Раствор борной кислоты в бассейне выдержки	Не менее 16,0	Отсутствует <sup>1</sup>	Отсутствует <sup>1</sup>	Отсутствует <sup>1</sup>	-	1 раз/неделю

<sup>1</sup> По данным точкам контроля существует химический контроль с помощью периодического проботбора.

Предварительная оценка позволяет предположить, что по некоторым позициям замеров можно отказаться от непрерывного контроля, сохранив периодический, возможно изменив его частоту. Такие изменения системы контроля борных растворов могут являться допустимыми при условии, что надежность контроля не будет снижена. Обоснование таких изменений в системе контроля требует разработки критериев надежности контроля и проведения анализа по каждой из позиций замера концентрации борного раствора. Это позволит определить оптимальное количество НАР-Б для конкретного энергоблока с учетом особенностей системы контроля концентрации борных растворов.

Решением Коллегии Госатомрегулирования Украины №9 от 13.11.01г. применение риск-ориентированных подходов при регулировании безопасности ЯЭУ (также и в части эксплуатационного контроля) является приоритетным направлением. Однако до последнего времени методологическое обеспечение риск-ориентированных подходов оптимизации эксплуатационного контроля развивалось, в основном, за рубежом. Наибольшее развитие получили методики риск-ориентированного эксплуатационного контроля Westinghouse и EPRI (RIISI – Risk-Informed Inservice Inspection).

Оценка риска в ходе RIISI [12] позволяет определить влияние разрушения трубопроводов на частоту повреждения активной зоны реактора (ЧПАЗР) и частоту сверхнормативного выброса активности из контейнента (ЧСВАК). При этом, величины этих параметров риска вычисляют путем объединения результатов оценок последствий отказа и структурной надежности и риска отказа трубопровода. Расчеты выполняют для каждого сегмента с использованием соответствующих математических выражений, определенных в тематическом отчете WCAP-14572 [13]. Результаты расчетов оформляют в виде электронных таблиц, в которых приводят данные как с учетом вмешательства оператора, так и без него, при прохождении события, связанного с отказом трубопровода.

На основании полученных количественных оценок сегменты трубопроводов классифицируют по влиянию отказа на безопасность АЭС. При этом в качестве критерия используют величину “стоимость снижения риска” (ССР). Чем выше значение ССР для данного сегмента, тем выше влияние его отказа на безопасность [13].

Рассмотренные риск-ориентированные подходы могут быть использованы в основе и для анализа эффективности системы контроля концентрации борного раствора на энергоблоках АЭС. Однако все этапы процесса RIISI, методически проработанные для анализа системы эксплуатационного контроля трубопроводов АЭС должны быть пересмотрены с учетом специфики системы контроля концентрации борного раствора. При этом основные этапы процесса сохраняются и требуют решения следующих задач:

– определение объема и позиций контроля концентрации борного раствора в системах безопасности АЭС;

- оценка вероятности отказа системы безопасности, приводящей к изменению концентрации борного раствора в точке замера;
- оценка надежности системы контроля с учетом используемых способов контроля;
- оценка риска невыполнения системой контроля назначенных функций;
- категоризация позиций контроля и выбор оптимальных способов контроля.

В результате такой оптимизации системы контроля с учетом возможных рисков следует ожидать повышения надежности системы, что достигается за счет пересмотра объемов и способов контроля при повышенном внимании к позициям контроля с высокой оценкой риска. При этом возможно снижение дозовых нагрузок на обслуживающий персонал.

#### Литература

1. НП 306.1.02/1.034-2000. Общие положения обеспечения безопасности атомных станций.
2. Стив Госслин, Брайан Гор. Оптимизация порядка проведения контроля трубопроводов и оборудования на основании оценки риска: Материалы совещания в ИПЭ АЭС. — Киев, 1999.
3. ПНАЭ Г-7-008-89. Правила устройства и безопасной эксплуатации оборудования и трубопроводов атомных энергетических установок.
4. Rules for inservice inspection of nuclear power plant components. Code ASME, section XI. — New York, 1998.
5. АИЭУ-9-94. Унифицированная инструкция по периодическому контролю за состоянием основного металла, сварных соединений и наплавов оборудования и трубопроводов атомных электростанций с ВВЭР-1000.
6. 10 CFR 50. Code of Federal Regulation, U.S. Office of the Federal Register, 1989.
7. Общие положения обеспечения безопасности атомных станций (ОПБ-88). ПНАЭ Г-1-011-89 / Госатомэнергонадзор СССР. — М.: Энергоатомиздат, 1990. — 48 с.
8. Правила ядерной безопасности реакторных установок атомных станций (ПБЯ РУ АС-89). ПНАЭ Г-1-024-90/ Госпроматомнадзор СССР. — 1990.
9. ГНД 95.1.06.02.001-97. Отраслевой нормативный документ. Теплоноситель первого контура концентрации ядерных энергетических реакторов типа ВВЭР-1000. Технические требования к качеству. Способы обеспечения/ Госкоматом Украины. — К., 1997. — 25 с.
10. ГОСТ 24693-81. Реакторы ядерные энергетические корпусные с водой под давлением. Общие требования к системе борного регулирования. — Введ. 01.07.82. Ограничение срока действия снято. — М.: Изд-во стандартов, 1981.
11. Анализатор раствора нейтронный — базовый НАР-Б. Техническое описание и инструкция по эксплуатации. еИ1.560.040. — 1990. — 125 с.



12. N.V.Closky. Risk-Informed Inservice Inspection (Westinghouse RI-ISI) // Доклад в SCIENTECH на семінаре для спеціалістів ГНТЦ ЯРБ и ДЯР України. — США, Gaithersburg, 2 марта 2001.
13. Westinghouse Owners Group Application of Risk-Informed Methods to Piping Inservice Inspection Topical Report WCAP-14572. Revision 1-NP-A. — Dec. 1998.

*Д. В. Білей, Г. С. Драган, В. Г. Соловійов, В. Ю. Кочнєва*

**Аналіз застосування ризик-орієнтованих підходів для оптимізації експлуатаційного контролю атомних електростанцій**

**АНОТАЦІЯ**

У роботі проведений аналіз організації експлуатаційного контролю на АЕС і, зокрема, організації контролю концентрації борного розчину теплоносія. Розглянуте використання ризик-орієнтованих підходів для аналізу ефективності системи контролю концентрації борного розчину на АЕС.

*Biley D. V., Dragan G. S., Solovyov V. G., Kochnyeva V. Yu.*

**Analysis of application of risk-informed approaches for optimisation of inservice inspection at npp**

**SUMMARY**

There is an analysis of an organisation of inservice inspection at NPPs and an organisation of boric solution concentration inspection in coolant. This paper considers an application of risk-informed approaches for an analysis of efficiency of boric solution concentration inspection system at NPPs.

**В. П. Козловская**

*Одесский политехнический университет*

**Теоретическое определение интенсивности свечения атомов щелочных металлов в водородно-кислородном пламени в присутствии магнитного поля**

На основе ранее развитых моделей расчета характеристик атомов и молекул в электромагнитном поле [2,11,13] выполнен расчет влияния магнитного поля на интенсивности свечения атомов щелочных металлов: калия и рубидия в водородно-кислородном пламени при напряженности магнитного поля 10 кЭ. Рассчитаны интенсивности свечения линий *K* (D1:  $4^2P_{1/2}-4^2S_{1/2}$  и D2:  $4^2P_{3/2}-4^2S_{1/2}$ ) и линий *Rb* (1:  $5^2P_{3/2}-5^2S_{1/2}$  и 2:  $6^2P_{3/2}-5^2S_{1/2}$ ). Максимальная величина магнитного эффекта для линии D2 атома калия в случае  $\sigma$ -поляризации равна 1,7, а в случае  $\pi$ -поляризации — 1,3, а для линии D1 максимальное значение составляет 1,4 и одинаково для обеих поляризаций.

В настоящее время значительный интерес вызывает изучение эффектов сильного взаимодействия атомных и молекулярных систем с сильными внешними полями, в частности, электрическим, магнитным, лазерным (см. напр.[1-15]). К числу эффектов, требующих дальнейшего теоретического и экспериментального исследования относится явление увеличения интенсивности свечения атомов в сильном магнитном поле в условиях полного поглощения в центре линии. Известный пример- превышение светимости солнечных пятен в лучах *Na*, *Ca+* над светимостью диска Солнца, что, по-видимому, связано с эффектом просветления среды в магнитном поле ~4,5 кЭ. В работах Хаяши и сотр. (см. [1]) исследовалась флюоресценция добавок неорганических солей в пламена при атмосферном давлении и было обнаружен эффект влияния внешнего магнитного поля *H* на интенсивность свечения промежуточных частиц. Для радикала *OH* в магнитном поле 18 кЭ интенсивность свечения увеличивалась на 14%, а для атома натрия- в 2,5 раза. Соли натрия вводились в пламя диспергированием водных растворов в токе азота. Экспериментально измерялся магнитный эффект, т.е. отношение  $I(H)/I(0)$  интенсивности свечения в магнитном поле напряженностью *H* к интенсивности свечения без магнитного поля. Хаяши и сотр. было показано, что для солей типа *NaCl* магнитный эффект растет с ростом концентрации (*c*) соли в растворе, а солей типа *NaNO2*, наоборот, магнитный эффект падает. Сорокиным и др. [1] экспериментально изучалось влияние магнитного поля на интенсивность свечения атомов щелочных металлов: натрия и цезия в пламени. Соответствующий аэрозоль получали насыщением потока азота

парами солей  $NaCl$ ,  $CsCl$ . Исследовалось влияние магнитного поля напряженности 10 кЭ на интенсивность свечения резонансной линии натрия (D1:  $3^2P_{1/2}-3^2S_{1/2}$  и D2:  $3^2P_{3/2}-3^2S_{1/2}$ ). Измерялась интенсивность излучения D2 линии атома натрия в  $\sigma$ - и  $\pi$ - поляризациях. Область изменения давления натрия:  $10^{-5}-5 \cdot 10^{-4}$  Торр. Для линии D2 в случае  $\sigma$ - поляризации максимальная величина магнитного эффекта равна 2, а в случае  $\pi$ - поляризации — 1,5. В случае линии D1 максимальное значение составляет 1,6 и одинаково для обеих поляризаций. Для атома цезия измерения проводились на двух длинах волн переходов (1:  $6^2P_{3/2}-6^2S_{1/2}$  и 2:  $7^2P_{3/2}-6^2S_{1/2}$ ). В работе [2] на основе ранее развитых моделей расчета характеристик излучения атомов во внешнем электромагнитном поле [11,13] был выполнен расчет влияния магнитного поля на интенсивности свечения атомов щелочных металлов: натрия и цезия (солей  $NaCl$ ,  $CsCl$ ) в водородо-кислородном пламени при напряженности магнитного поля 10 кЭ. Рассчитаны интенсивности свечения линий натрия (D1:  $3^2P_{1/2}-3^2S_{1/2}$  и D2:  $3^2P_{3/2}-3^2S_{1/2}$ ) и линий цезия (1:  $6^2P_{3/2}-6^2S_{1/2}$  и 2:  $7^2P_{3/2}-6^2S_{1/2}$ ). Максимальная величина магнитного эффекта для линии D2 атома натрия в случае  $\sigma$ - поляризации равна 1.9, а в случае  $\pi$ - поляризации — 1.45, а для линии D1 максимальное значение составляет 1.5 и одинаково для обеих поляризаций, что находится в достаточно хорошем согласии с экспериментальными данными.

В данной работе впервые выполнен расчет влияния магнитного поля на интенсивности свечения атомов щелочных металлов: калия в водородо-кислородном пламени при напряженности магнитного поля 10 кЭ для линий (D1:  $4^2P_{1/2}-4^2S_{1/2}$  и D2:  $4^2P_{3/2}-4^2S_{1/2}$ ) и рубидия для линий (1:  $5^2P_{3/2}-5^2S_{1/2}$  и 2:  $6^2P_{3/2}-5^2S_{1/2}$ ).

Интенсивность  $I$  рассматриваемого перехода  $i-j$  связана с концентрацией атомов (определяется соответствующей константой диссоциации; см. [2,4]) и силой линии  $S$ :

$$S = 3\hbar e^2 g_i f_{i-j} / 2m\omega_0$$

Здесь  $\omega_0 = E_i - E_j$  — частота перехода, а  $f_{i-j}$  — сила осциллятора перехода  $i-j$  дается стандартным выражением::

$$f_{i-j} = 2m / \hbar^2 (E_i - E_j) |\langle \Psi_j | D | \Psi_i \rangle|^2$$

Разумеется, интенсивности  $\sigma$ - компонент, пропорциональны квадратам 3j-символов:

$$\begin{pmatrix} \dots J \dots 1 \dots J' \\ -M \dots 1 \dots M-1 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} \dots J \dots 1 \dots J' \\ -M \dots -1 \dots M+1 \end{pmatrix}$$

а  $\pi$ -компонент:

$$\begin{pmatrix} \dots J \dots 1 \dots J' \\ -M \dots 0 \dots M \end{pmatrix}$$

Волновые функции состояний рассчитывались на основе метода [11-13] с путем численного решения уравнения Шредингера для атомов в магнитном поле использованием методики [13].

В таблице 1 представлены результаты проведенного впервые нами расчета влияния магнитного поля  $H$  на интенсивность свечения D2 линии атома калия в  $\sigma$ - и  $\pi$ - поляризациях в зависимости от парциального давления атомов калия. В первом случае максимальная величина магнитного эффекта  $I(H)/I(0)$  равна 1,7, а во втором- 1,3. В случае линии D1 атома калия расчетное значение максимального магнитного эффекта- 1,4. Для атомов рубидия магнитное поле увеличивает интенсивность свечения линии (1) в 1,45 раза. Что же касается линии 2, то по нашим данным изменение искомой интенсивности составляет 1,1. Как и в случае атомов цезия в пламени, в случае равновесия процессов последнее может указывать на неизменность концентрации атомов рубидия в пламени при наложении магнитного поля. Это справедливо по аналогии и для атомов натрия и калия. В заключение следует упомянуть, что, по существу, рост интенсивности свечения атомов щелочных элементов в пламени связан с просветлением среды в магнитном поле вследствие эффекта Зеемана, и естественно указанный эффект может найти широкие практические применения.

Таблица 1

**Влияние магнитного поля на интенсивность свечения D2 линии атома натрия в  $s$ - и  $p$ -поляризациях в зависимости от парциального давления атомов натрия в пламени:  $I(H)/I(0)$  — отношение интенсивности свечения в магнитном поле с напряженностью  $H$  к интенсивности свечения без магнитного поля;  $p$ - парциальное давление ( $10^{-5}$  Торр).**

$I(H)/I(0) \setminus p$	6	12	18	24	30
$\sigma$ - поляризация	1,08	1,34	1,71	1,64	1,32
$\pi$ - поляризация	1,04	1,16	1,33	1,31	0,75

#### Литература

1. Сорокин Н.И., Дульцев Е.Н., Бажин Н.М. Влияние магнитного поля на интенсивность свечения атомов щелочных металлов в водородно-кислородном пламени// Химическая физика. — 1988. — Т.7, №1. — С.100-103.
2. Куклина И.В., Козловская В.П. Расчет интенсивности свечения атомов щелочных металлов в водородно-кислородном пламени в присутствии магнитного поля // Физика аэродисперсных систем. — 2001. — №38. — С.273-276.
3. Касабов Г.А., Елисеев В.В. Спектроскопические таблицы низкотемпературной плазмы. — М.: Атомиздат, 1973. — С.160.

4. Собельман И.И. Введение в теорию атомных спектров. — М.:Наука,1977. — С.213
5. Kleppner D.,Chun-Ho I.,Welch G.R. In:Irregular Atomic Systems and Quantum Chaos/ Ed. J.C.Gay (Kluwer,N-Y.,1990).
6. Benvenuto F., Casati G., Shepelyansky D.L. Rydberg Stabilization of atoms in strong fields: “magic”mountain in chaotic sea // *Z. Phys. B.* — 1994. — Vol.94. — P.481-486.
7. Dupret K., Zakrzewski J., Delande D. Resonances in the Diamagnetic Rydberg Spectrum: Order and Chaos // *Europhys. Lett.* — 1995. — Vol.31, №5-6. — P.251-256.
8. Glushkov A.V., Ivanov L.N. Radiation Decay of Atomic States: atomic residue and gauge noninvariant contributions // *Phys. Lett. A.* — 1992. — Vol.170, №1. — P.33-37.
9. Glushkov A.V.,Ivanov L.N. DC Strong-Field Stark-Effect: consistent quantum-mechanical approach // *J.Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* — 1993. — Vol. 26, №16. — P.L379-L386.
10. Glushkov A.V.,Ivanova E.P. Theoretical Study of Multicharged Ions Spectra of Na,Ne Isoelectronic Sequence // *J.Quant. Spectr. Rad. Transfer.* — 1986. — Vol.36, №2. — P.127-145.
11. Kuklina I.V., Shevchuk V.G. H-like and He-like Systems in Superstrong magnetic field: Numerical Calculation // *Uzhgorod Univ. Scientific Herald. Ser. Phys.* — 2000. — Vol.8, №2. — P.361-364.
12. V.P.Kozlovskaya, N.Yu.Koltsova, Multiparticle theory of molecular photoeffect: Cross-section, spectroscopic factors for diatomic molecules and the shell “melting” effect // *Photoelectronics.* — 2002. — Vol.11. — P.86-90.
13. V.P.Kozlovskaya, Rydberg states of diatomic molecules: ab initio perturbation theory calculation of alkali dimers // *Uzhgorod Univ. Scientific Herald. Ser. Phys.* — 2000. — Vol.8, №2. — P.353-357.

*В. П. Козловська*

**Теоретичне визначення інтенсивності свічення атомів лужних металів у водне-кисневому пламені у присутності магнітного поля**

**АННОТАЦІЯ**

На підставі розвинутих раніше моделей розрахунку характеристик атомів та молекул у зовнішньому електромагнітному полі виконано вперше розрахунок впливу магнітного поля на інтенсивності свічення атомів лужних металів: *K, Rb* у водне-кисневому полум'яні при напруженості магнітного поля 10 кЕ. Розраховані інтенсивності свічення ліній *K* (D1: ( $4^2P_{1/2} - 4^2S_{1/2}$ ) та D2: ( $4^2P_{3/2} - 4^2S_{1/2}$ )) і *Rb* (1: ( $5^2P_{3/2} - 5^2S_{1/2}$ ) и 2: ( $6^2P_{3/2} - 5^2S_{1/2}$ )). Максимальна величина магнітного ефекту для лінії D2 атому *K* у випадку  $\sigma$ -поляризації складає 1,7, а у випадку  $\pi$ -поляризації — 1,3, а для лінії D1 максимальне значення складає 1,4.

*Kozlovskaya V. P.*

**Theoretical definition of intensity of the emission for alkali metals atoms in the hydrogen-oxygen flame in a magnetic field**

**SUMMARY**

Influence of magnetic field on the intensity of emission for alkali atoms: *K, Rb* in the hydrogen-oxygen flame under magnetic field strength (10kE) is at first studied on the basis of earlier developed method for calculation of the atomic characteristics in external electromagnetic field. The intensities of emission of the lines for *K* (D1: ( $4^2P_{1/2} - 4^2S_{1/2}$ ) та D2: ( $4^2P_{3/2} - 4^2S_{1/2}$ )) і *Rb* (1: ( $5^2P_{3/2} - 5^2S_{1/2}$ ) и 2: ( $6^2P_{3/2} - 5^2S_{1/2}$ )) are calculated. The maximum value of the magnetic effect for D2 line of *K* atom for  $\sigma$ -polarization is equal 1.7, for  $\pi$ -polarization — 1.3. For D1 line the maximum value is equal 1.4 for both polarizations.

**Г. П. Препелица<sup>2</sup>, А. В. Тюрин<sup>1</sup>, Ю. Г. Чернякова<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>Одесский национальный университет им. И.И. Мечникова,

<sup>2</sup>Государственный экологический университет, г. Одесса

### **Особенности спектра излучения плазмы в малоиндуктивной вакуумной искре: релятивистский расчет с учетом КЭД эффектов**

Проведен анализ экспериментов [1] по изучению сателлитной структуры спектров, характеристик излучения плазмы  $K$  в мало индуктивной вакуумной искре. Приведены результаты теоретического изучения характеристик  $Li$ -подобных сателлитных линий плазмы  $K$  на основе расчета методом релятивистской теории возмущений с модельным нулевым приближением [9] и оптимизированного метода Дирака-Фока [12] с учетом корреляционных и радиационных КЭД поправок. С использованием рассчитанных значений отношения интенсивностей линий диэлектронных сателлитов и резонансных линий  $He$ -подобных ионов выполнена оценка величины электронной температуры плазмы, составившая 2560 эВ, при заданной плотности:  $N_e = 10^{23} \text{см}^{-3}$ .

В последние годы пристальное внимание уделяется экспериментальному и теоретическому изучению характеристик плазмы многозарядных ионов в мало индуктивной вакуумной искре (см. напр., [1-17]). Подобное внимание стимулируется во многом важностью усовершенствования существующих и развития новых оптимальных методик спектроскопической диагностики плазмы многозарядных ионов как примесей в термоядерных реакторах, активных сред для лазеров коротковолнового диапазона и т.д. Хотя возможности подобных экспериментов все время растут, проблема адекватного анализа и теоретической интерпретации особенностей излучения плазмы в мало индуктивной вакуумной по-прежнему еще далеки от своего полного разрешения. В [10,11] выполнен анализ экспериментальных исследований [1,4] плазмы различных элементов в мало индуктивной вакуумной искре и проведено теоретическое изучение характеристик излучения  $Li$ -подобных сателлитных линий плазмы железа и меди.

В данной работе проведен аналогичный анализ экспериментов [1,4] по изучению сателлитной структуры спектров, характеристик излучения плазмы  $K$  и приведены результаты теоретического изучения характеристик  $Li$ -подобных сателлитных линий плазмы  $K$  на основе расчета методом релятивистской теории возмущений с модельным нулевым приближением возмущений [9] и оптимизированного метода Дирака-Фока [12].

В [1-4] экспериментально исследовались спектры излучения плазмы меди

в мало индуктивной вакуумной искре. Последняя использовалась как источник многозарядных ионов. По сути, источник, так называемая горячая точка, представляет собой плотную ( $N_e \sim 10^{23} \text{cm}^{-3}$ ), высокотемпературную плазму ( $T_e \sim 2-3 \text{keV}$ ) очень малого размера ( $1 \mu\text{m}$ ) и временем жизни ( $10^{-11} \text{s}$ ). Движение горячей точки вызывает доплеровский сдвиг, который в эксперименте исключается при использовании двух Johann спектрометров [4]. В плазме *K*, аналогично плазме *Fe*, *Cu*, наблюдаются  $1snp-1s^2$  резонансные линии *He*-подобных ионов с главным квантовым числом  $n$  от 3 до 6. Вблизи этих линий расположены сателлитные линии  $1s^2l-1s2lnl$  с  $n=3,4$ .

В таблице 1 приведены измеренные значения длин волн (в Å) *Li*-подобных линий диэлектронных сателлитов к  $1s^2S_0-1s3p^1P_1$  линии излучения в плазме *K* в мало индуктивной вакуумной искре [1]. В этой же таблице также представлены теоретические данные по длинам волн, полученные на основе расчетов методами: (В)- теории возмущений (по  $1/Z$ ) [3], С- релятивистской теории возмущений с модельным нулевым приближением возмущений [9] для трехквартичных атомных систем с эффективным учетом корреляционных и радиационных, КЭД [16,17] поправок (настоящая работа), D- методом AUTOJOLS [4], E- оптимизированного методом Дирака-Фока с учетом КЭД [16,17] поправок [12] (настоящая работа). Таблица 2 содержит теоретические данные по вероятностям переходов ( $10^{13} \text{s}^{-1}$ ), соответствующих *Li*-подобных линиям диэлектронных сателлитов к  $1s^2S_0-1s3p^1P_1$  линии излучения в плазме *K* в мало индуктивной вакуумной искре [1]. Как и в случае расчета диэлектронных сателлитов к линии  $1s^2S_0-1s3p^1P_1$  излучения плазмы *Cu*, *Fe* в мало индуктивной вакуумной искре [10], для плазмы *K* теоретические и экспериментальные значения длины волны сателлитной линии достаточно хорошо согласуются друг с другом. В отличие от длин волн, значения вероятностей переходов, рассчитанные тремя методами существенно отличаются друг от друга. Проведенный нами расчет показал, что предложенные в [9,12] новые неэмпирические версии: метода релятивистской теории возмущений с модельным нулевым приближением для расчета трехквартичных атомных систем и оптимизированного метода Дирака-Фока соответственно (как и в случае *Na*-подобных сателлитных линий к 2-3 линиям *Ne*-подобных ионов) оказываются достаточно эффективными подходами в задачах расчета спектров и спектральных характеристик изучения плазмы в мало индуктивной вакуумной искре. В то же время следует подчеркнуть, что подход [9] в большей степени ориентирован на классические задачи спектроскопии многозарядных ионов и, в частности, расчета спектров свободных ионов, в то время как схема [12] адаптирована к задачам спектроскопии плазмы искомым ионов. Последнее обстоятельство особенно важно с точки зрения реализации метода спектроскопической диагностики, относящегося к числу наиболее эффективных методов диагностики высокотемпературной плазмы. Для определения электронной плотности, температуры плазмы требуется надежная информация о интенсивностях диэлектронных сателлитов



к резонансным линиям, а также соответствующем наборе атомных констант, включающем, коэффициенты диэлектронной рекомбинации, скорости ударного возбуждения, вероятности радиационного распада и автоионизации и т.д. (см. [1-3]). В частности, в нашем случае электронную температуру плазмы и ее электронную плотность можно определить по отношению интенсивностей диэлектронных сателлитов, скажем,  $j, k$ , и резонансной линии. Интенсивность резонансной линии  $He$ - подобного иона определяется стандартным образом (см. [1,13]):

$$I_R = N_e \langle v\sigma \rangle_{1s-2p} \int_0^{\tau} N_{He} dt$$

где  $N_{He}$  — концентрация  $He$ - подобного иона,  $\langle v\sigma \rangle$  — усредненное сечение ударного возбуждения  $1s-2p$ ;  $\tau$  — время существования горячей плазмы. Отношение интенсивностей резонансных линий  $He$ - подобных ионов, скажем,  $K, Cl$  определяется как:

$$W = I_{R_{Cl}} / I_{R_{Cu}} = \langle v\sigma \rangle_{1s-2p} \int_0^{\tau} N_{He_{Cl}} dt \{ \langle v\sigma \rangle_{1s-2p} \int_0^{\tau} N_{He_{Cu}} dt \}^{-1}$$

Таблица 1

Экспериментальные значения длин волн (в Å)  $Li$ -подобных линий диэлектронных сателлитов к  $1s^2S_0-1s3p^1P_1$  линии излучения в плазме  $K$  в мало индуктивной вакуумной искре (А) [1] и теоретические значения длин волн (в Å), полученные на основе расчетов различными теоретическими методами : (В)- теории возмущений (по  $1/Z$ ) [3], С- релятивистской теории возмущений с модельным нулевым приближением возмущений для трехквартичных атомных систем [9] (настоящая работа), D- методом AUTOJOLS [4], E- оптимизированным методом Дирака-Фока с учетом корреляционных КЭД поправок (настоящая работа) [12]

Переходы	Длина волны перехода				Длина волны А
	В	С	Д	Е	
$1s^2 2p^2 P_{1/2} - 1s2p3p^2 D_{5/2}$	3,0613	3,0608	3,0607	3,0610	3,0608±0,0019
$1s^2 2p^2 P_{3/2} - 1s2p3p^2 D_{5/2}$	3,0613	3,0614	3,0615	3,0616	
$1s^2 2p^2 P_{1/2} - 1s2s3d^4 D_{3/2}$	3,0608	3,0610	3,0612	3,0614	
$1s^2 2p^2 P_{3/2} - 1s2p3p^4 P_{3/2}$	-----	3,0622	-----	3,0625	
$1s^2 2p^2 P_{3/2} - 1s2p3p^4 P_{5/2}$	-----	3,0625	-----	3,0629	

С использованием методики, изложенной в работах [12,13], данных [4] и настоящей работы, можно оценить величину  $W$  в зависимости от электронной температуры при заданной плотности:  $N_e=10^{23} \text{см}^{-3}$ . Оцененная таким об-

разом электронная температура оказалась равной 2560 эВ, что хорошо соответствует экспериментальным значениям [4].

Таблица 2

Теоретические данные по вероятностям переходов ( $10^{13}\text{с}^{-1}$ ), соответствующих *Li*-подобных линиям диэлектронных сателлитов к линии  $1s^2S_0-1s3p^1P_1$  излучения в плазме *K* в мало индуктивной вакуумной искре [1], полученные на основе расчета различными методами: В- теории возмущений (по  $1/Z$ ) [3], С- релятивистской теории возмущений с модельным нулевым приближением возмущений для трехквартичных атомных систем [9] (настоящая работа), D- методом AUTOJOOLS [4] и E- оптимизированным методом Дирака-Фока [12] (настоящая работа)

Переходы	Вероятность перехода			
	В	С	Д	Е
$1s^2 2p^2 P_{1/2} - 1s2p3p^2 D_{3/2}$	5,00	6,25	6,80	6,40
$1s^2 2p^2 P_{3/2} - 1s2p3p^2 D_{5/2}$	18,72	18,30	18,06	18,54
$1s^2 2p^2 P_{1/2} - 1s2s3d^4 D_{3/2}$	4,20	3,34	2,24	3,80
$1s^2 2p^2 P_{3/2} - 1s2p3p^4 P_{3/2}$	-----	0,82	-----	1,14
$1s^2 2p^2 P_{3/2} - 1s2p3p^4 P_{5/2}$	-----	1,27	-----	1,42

#### Литература

1. Кошелев К.Н., Сидельников Ю.В., Вихров В.В., Иванов В.В. Микропинчи в мало индуктивных вакуумных искрах и радиационное сжатие // В кн.: Спектроскопия многозарядных ионов. — М.: Наука, 1991. — С.163-198.
2. Киселюс Р.С., Купляускене А.В., Рудзикас З.Б. Теоретические спектры излучения многозарядных ионов в плазме // Спектроскопия многозарядных ионов. — М.: Наука, 1991. — С.52-75.
3. Сафронова У.И., Аглицкий Е.В. Спектроскопия автоионизационных состояний. — М.:Атомиздат. — 1992.
4. Aglitskii E.V., Panin A.S., Safronova U.I. et al Theoretical and Experimental investigation of satellite structure of  $1s1s^2 1S_0 - 1s3p^1P_1$  line in He-like ions// Journ. de Phys. -1988. — Vol.49, №3. — C1-267-C1-269.
5. Seely J.F., Ekberg J.O. Brown C.M. et al, Laser -Produced Spectra and QED Effects for Fe-, Co-, Cu-, Zn-like ions of Au, Pb, Bi, Th, and U // Phys. Rev. Lett. — 1996. — Vol.57, №23. — P.2924-2926.
6. Glushkov A.V., Ivanova E.P. Theoretical Study of Multicharged Ions Spectra of Na, Ne Isoelectronic Sequence // J. Quant. Spectr. Rad. Transfer. — 1986. — Vol.36, №2. — P.127-145.
7. Ivanova E.P., Ivanov L.N., Glushkov A.V., Kramida A.E. High order

- corrections in the Relativistic Perturbation Theory with the model Zeroth Approximation // *Phys. Scripta*. — 1985. — Vol. 32, №4. — P.512-524.
8. Malinovskaya S.V. S-matrix formalism in the calculation of oscillator strengths, radiation and autoionization widths for complex atoms and multicharged ions // *Науковий Вісник Ужгородського університету. Серія Фізика*. — 2000. — Т.8, Ч.2. — С.387-391.
  9. Chernyakova Yu.G., Shumlyansky I.I. Relativistic perturbation theory calculation of the Na-like spectra satellites of 2-3 Ne-like ions transitions// *Науковий Вісник Ужгородського університету. Серія Фізика*. — 2000. — Т.8, Ч.2. — С.251-256.
  10. Чернякова Ю.Г., Шумлянський І.І., Препелица Г.П. Особенности сателлитной структуры линий излучения плазмы железа в малоиндуктивной вакуумной искре // *Физика аэродисперсн. Систем*. — 2001. — №38. — С.282-285.
  11. Чернякова Ю.Г., Шумлянський І.І., Препелица Г.П. Сателлитная структура линий излучения плазмы Си в малоиндуктивной вакуумной искре // *Фотоэлектроника*. — 2001. — Т.11. — С.135-139.
  12. Prepelitsa G.P. Optimized Dirac-Fock approach to calculation of the radiation plasma characteristics // *Prerprint OGMI N7, Odessa, 2000*. — 25 p.
  13. Аглицкий Е.В., Жерихин А.Н., Крюков И.Г., Чекалин С.В. Особенности рентгеновских спектров плазмы, создаваемой субнаносекундным лазерным импульсом// *ЖЭТФ*. — 1977. — Т.73, №4(10). — С.1344-1351.
  14. Mandelstam S.L., Aglitsky E.V., Antsiferov P.S., Panin A.M. X-ray spectra of Ne-like Ba, La, Ce and Pr ions // *Canad. Journ. of Phys.* — 1984. — Vol.62, №10. — P.1923-1930.
  15. Ivanova E.P., Ivanov L.N., Aglitsky E.V. Modern Trends in Spectroscopy of Multicharged Ions // *Physics Rep.* — 1991. — Vol.166, №6. — P.315-390.
  16. Glushkov A.V., Vitavetskaya L.A. New method for account of the QED corrections in relativistic calculation of spectra of the heavy and superheavy elements // *Int. J.Quant. Chem.* — 2002. — Vol.104. — P.1345-1356.
  17. Blundell S.A. Ab initio Calculations of QED Effects in Li-like, Na-like and Cu-like Ions // *Phys.Scripta*. — 1993. — Vol.46, №1. — P.144-150.

*Г. П. Препелица, О. В. Тюрін, Ю. Г. Чернякова*

**Особливості спектра випромінювання плазми  $K$  у малоіндуктивній вакуумній іскрі: релятивістський розрахунок з урахуванням кед ефектів**

**АНОТАЦІЯ**

Проведено аналіз експериментів по вивченню сателітної структури спектрів, характеристик випромінювання плазми  $K$  у мало індуктивній вакуумній іскрі. Приведені результати теоретичного вивчення характеристик  $Li$ -подібних сателітних ліній плазми  $K$  на основі розрахунку методом релятивістської теорії збурень з модельним нульовим наближенням та оптимізованим методом Дірака-Фока. З використанням розрахованих значень відношення інтенсивностей ліній діелектронних сателітів й резонансних ліній  $He$ -подібних іонів виконано оцінку величини електронної температури плазми, яка складала 2560 eV, при заданій електронній густині :  $N_e = 10^{23} \text{см}^{-3}$ .

*Prepelitsa G. P., Tyurin A.V., Chernyakova Yu. G.*

**Especialities of the  $K$  plasma emission spectra in a low inductive vacuum spark relativistic calculation with account of qed effects**

**SUMMARY**

It is carried out analysis of experiments on study of the spectra satellite structure in the  $K$  plasma emission characteristics on low inductive vacuum spark. There are presented the results of theoretical calculation of the  $K$  plasma  $Li$ -like satellite lines on the basis of the relativistic perturbation theory with model zeroth approximation for three-quasiparticle systems and the optimized Dirac-Fock method. With using the calculated values for relation of intensities of the dielectronic satellites lines and resonant lines of  $He$ -like ions, it is carried out an estimate of the plasma electron temperature which is equal 2560 eV, under electron density of  $10^{23} \text{sm}^{-3}$ .

**S. V. Malinovskaya**

*I. I. Mechnikov Odessa National University*

## **Thermalized plasma of o- and f-like multicharged ions as an object for observation of new laser-electron nuclear effects**

A possibility of the experimental observation of set of the electron satellites in spectra of the electron-nuclear g-transition of the nucleus in a multicharged atomic ion is analysed. It is proposed to use for observation of these effects the thermalized plasma of O-, F-like multicharged ions. As example, the nuclear transition in the isotope  $^{57}_{26}\text{Fe}$  with energy 14,41 keV is considered for O- and F-like ions of Fe. It is shown that the electron-nuclear lines in spectra of emission or absorption can be experimentally observed in plasma of the O- and F-like multicharged ions and it is very important that they are not overlapping by the Doppler broadening.

In last years a great attention is turned to problems of experimental and theoretical study of high temperature multi-charged ions plasma and developing the new diagnostics methods (c.f. [1-28]). Similar interest is also stimulated by importance of carrying out the approaches to determination of the characteristics for multi-charged ions plasma in thermonuclear reactors, searching new mediums for X-ray range lasers [5-17]. A great progress in development of laser technique and accelerators experiments resulted to a new class of problems in the plasma physics and correspondingly diagnostics of their parameters [26-28]. Here it should be noted a possibility of the cooperative dynamical phenomena (c.f. [1-14]) due the interaction between atoms, ions, molecule electron shells and nuclei nucleons. In ref. [15-17] it has been estimated an influence of the electron shell on velocity of re-charging of the metastable nucleus and shown that this effect is very little one. Attractive situation arises under transition to heavy multicharged ions because of changing the energy and geometric parameters of electron shell. In result a character of interaction with a nucleus may strongly change and new channels of electron-nuclear processes are opened [23-28]. To traditional channels of the nucleus excited state decay there are added such effects as the electron-positron pair production (during the nucleus recharging) with output of new electron on free bound state. It is easily imagine a situation when this process becomes to be energetically possible only after removing the strongly bound electron in the initial state. A new class of problems here is to be considered as follows [27,28]: i). relativistic calculation of the the mixed  $\gamma$ - optical quantum transitions; ii). use of this effect in nuclear-atomic-molecular studies with use of lasers; iii). spectroscopy of  $\gamma$  resonances, creation of additional satellites and narrow resonances inside the Doppler contour of  $\gamma$ -line; iv). governing by the intensity of the complicated  $\gamma$ -transitions due to the changing

of the molecular excited states population under action of laser radiation; v). relativistic quantum calculations of the complex “laser-electron-nuclei” systems.

A principally new approach to problem of the multi charged ions plasma diagnostics is provided by using the new laser-electron-nuclear spectral effects. In ref. [27-28] a consistent QED perturbation theory approach is developed and applied to calculation of the electron-nuclear  $\gamma$  transition spectra of nucleus in the multicharged ion. The intensities of satellites are defined in the relativistic version of the energy approach (S-matrix formalism). Decay and excitation probabilities are linked with imaginary part of the energy of the ‘nuclei nucleons-electron shells-field’ system. As example, the nuclear transition in the isotope  ${}^{57}_{26}\text{Fe}$  with energy 14,41 keV is considered. The results of the relativistic calculation for the electron-nuclear  $\gamma$ -transition spectra (set of electron satellites) of the nucleus in a multicharged atomic ion  $\text{FeXIX}$  were presented. It is of a great importance to discuss the possible experimental observation of indicated effects. As indicated in ref. [15-17,7,9] in neutral atoms under standard experimental conditions the intensive satellites are overlapping by the Doppler contour of the  $\gamma$ - radiation line. For their observation one should use the methods of inside-Doppler spectroscopy (c.f.[15]). In principle it is possible an observation of the satellites in the spectrum of emission or absorption without overlapping by the Doppler contour of the  $\gamma$  line. Such a situation could be realized in plasma of multicharged ions. In this paper we will evaluate the possibilities of such experiment realization.

Let us remember that the nuclear emission or absorption spectrum of the atom possesses a set of electron satellites, which are due to an alteration of the state of the electron shell [26-28]. The mechanism of formation of the satellites in neutral atoms and highly charged ion is different. In the first case (loose electron shell) a “shaking of the shell resulting from the interaction between the nucleus and  $\gamma$  quantum is predominant. In the second case (rigid electron shell) the mechanism involves a direct interaction between  $\gamma$  quantum and electrons. The second mechanism is important in the case of dipole nuclear transitions and dominates at  $\gamma$  quantum energies  $\leq 4z$  keV ( $z$  is effective nuclear charge). The traditional selection rules and familiar intensity hierarchy with respect to electron transition multiplicity do not pertain to the second mechanism. Consequently, the satellite spectrum is much enriched and transitions between the fine and hyper fine structure components, 0-0 transitions and transitions which do not involve a change in the electron configuration can be considered. The main effect of arising the electron satellites for nuclear transitions has an kinematics nature, which is in the shifting the system mass centre under emission of the  $\gamma$ -quanta relatively of the proton or electron orbital. The intensities of satellites lines are theoretically defined by the imaginary part of excited state energy for three-quasi-particle system (rigid nuclear core=“c”, above core proton =“p” and electron =“e”) as a sum of the core, proton and electron contributions:

$$\begin{aligned}
\text{Im } E &= \text{Im } Ec + \text{Im } Ep + \text{Im } Ee, \\
\text{Im } Ea &= -Z_a^2 / 4\pi \sum_F \iint dr_{c1} dr_{c2} \iint dr_{p1} dr_{p2} \iint dr_{+1e1} dr_{e2} \Phi_l^*(1) \Phi_F^*(2) \cdot \\
&\quad \cdot T_a(1,2) \Phi_F(1) \Phi_l(2), \\
T_a(1,2) &= \sin(w_{IF} r_{a12}) / r_{a12} \{1 / M \mu_a (\nabla_{ra1}, \nabla_{ra2}) + 1\},
\end{aligned} \tag{1}$$

where  $r_{a12} = |r_{a1} - r_{aa2}|$ ;  $\Phi_c, \Phi_p, \Phi_e$  are the secondly quantified operators of field of the core particles, the fields of protons and the field of electrons. The sum on F designs the summation on the final states of system. In the second QED perturbation theory order, the full width of level is divided on the sum of the partial contributions, connected with the radiation decay into concrete final states of system. These contributions are proportional to the probabilities of the corresponding transitions. The system of the red (blue) satellites corresponds to the transitions with excitement (de-excitement) of the electron shell. The matrix elements in above written expressions are calculated on the relativistic solutions of the Dirac equation whose radial part is represented by

$$\begin{aligned}
F' &= -F(\partial c + |\partial \phi|/r - G(E + 2M\tilde{\alpha}^{-2} - V)\tilde{\alpha}), \\
G' &= G(\partial c - |\partial \phi|/r + F(E - V)\tilde{\alpha})
\end{aligned} \tag{2}$$

where  $\alpha$  is the Dirac quantum number, E-the state energy, F, G being the large and small radial components correspondingly. The procedure details for definition of contributions in (1) and corresponding matrix elements are described in refs. [23-28].

As it is above indicated, in principle it is possible an observation of the satellites in the spectrum of emission or absorption without overlapping by the Doppler contour of the  $\gamma$ - radiation line. Such a situation may be realized in the thermalized plasma of multicharged ions. It is supposed that the K shell is significantly destroyed. According to [26,27], an average kinetic energy for ions in a such plasma:  $\sim E_i/10 \sim 1/20$  c.u. (coulomb units), where  $E_i$  is the "Is" electron bond energy. The Doppler shift is as follows:  $\delta h\omega_D = \alpha\omega / (10M)^{1/2}$ . The value  $\alpha\omega$  of is connected with the of  $\gamma$  quantum by the following relation:  $E\gamma[\text{keV}] = 4Z(\alpha\omega)$ ; If, say,  $\alpha\omega=1$ , then  $\delta h\omega_D = 1/200 (Z)^{1/2}$  c.u.  $0,15 (Z)^{1/2}$  eV. For comparison let us give the values of the 1s,2s,2p-2p electron transitions for one-electron ions with  $Z=10-50$ :  $E(1s-2p_{3/2})=1,3 \cdot 10^3-2,3 \cdot 10^4$  eV,  $E(2s-2p_{3/2}) = E(2s-2p_{3/2})=0,1-3,3 \cdot 10^2$  eV. As it has been seen the transition energies have an order of the Doppler shift value. The little value of splitting in the one-electron ions is entirely provided by relativistic corrections. In a multi-electron system a situation is more favourable. Here we consider a case of the O-like and F-like multicharged ions. An additional splitting is defined by inter electron interaction. In table we present the energies of levels for L shell of the oxygen-like ion FeXIX ( $Z=26$ ) [24], counted from the ground level  $2s^2 2p^2 \text{P}_2$ .

Configuration	$2s^2 2p^4$				$2s^2 2p^3$				$2p^6$
	$^3P_0$	$^3P_1$	$^1D_2$	$^1S_0$	$^3P_2$	$^3P_1$	$^3P_0$	$^1P_1$	$^1S_0$
<i>E</i> , eV	9,7	11,5	21,3	40,7	114,6	122,3	127,9	157,6	265,1

The lines of big number of the electron satellites, connected with 2-2 transitions are sufficiently far from the Doppler contour. As in ref. [26,27] we consider the nuclear transition in the isotope  $^{57}_{26}\text{Fe}$  with the quantum energy 14,41 keV. The period of the half decay of state  $T(1/2)=9,77 \cdot 10^{-8}$  s, the recoil energy  $1,96 \cdot 10^{-6}$  keV, the parameter  $\alpha\omega=0,27$ . We consider the following transitions:  $1s-2s$  (monopole),  $1s-2p_{1/2}$ ,  $2s-2p_{3/2}$  (dipole),  $2p_{1/2}-2p_{3/2}$  (quadrupole). Let us consider a scheme of disposition for some electron satellites in relation to the nuclear transition line for the O- and F-like ions. Satellites connected with the 1-2 transitions are separated from  $\omega_0\gamma$  on value 6 keV, but their intensity is less. In fig.1 there are presented the lines which are accompanied by electron transitions: 1 -  $2s^2 2p^4 1S_0 - 2s 2p^3 P_1$ ; 2 -  $2s^2 2p^4 3P_1 - 2s 2p^3 P_2$ ; 3 -  $2s^2 2p^4 3P_2 - 2s 2p^3 P_1$ ; 4 -  $2s 2p^3 P_1 - 2p^6 1S_0$ . The relative intensities for these satellites are  $7 \cdot 10^{-5}$ , the Doppler broadening is  $\delta h\omega_D = 5 \text{ eB}$  (shown on figure qualitatively). So, it is clear that the electron-nuclear lines in spectra of emission or absorption can be experimentally observed in plasma of O- and F-like multicharged ions and they are not overlapping by the Doppler broadening.

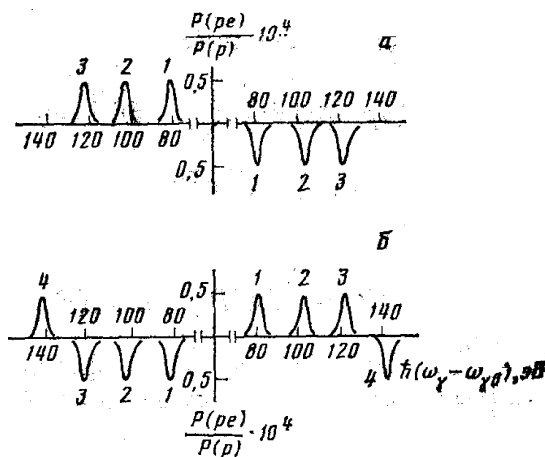


Figure. The positions of emission and absorption lines electron satellites (in a positive and negative direction of abscissa axe correspondingly) for ions  $\text{FeXIX}$ ,  $\text{Fe XVIII}$  in lowest states of the ground configurations  $2s^2 2p^4$ ,  $2s^2 2p^3$  (a) and states of the excited configuration  $2s 2p^3$ ,  $2s 2p^3 nl$  (b) relatively the nuclear  $\gamma$ -transition in isotope of  $^{57}_{26}\text{Fe}$  with energy  $h\omega_0\gamma=14,41$  keV [26-28];  $P(pe)/P(p)$  is relation of the satellite intensity to the nuclear transition line intensity.



### Literature

1. Kiselus R.S., Kuplyayskene A.V., Rudzikas Z.B. Theoretical Spectra of radiation of the multi-charged ions in plasma // Spectroscopy of multicharged ions. — M.: Nauka, 1991. — P.52-75.
2. Golt'z E.Ya., Koshelev K.N., Kramida A.E., Dorokhin L.A., Palkin A.A., Sidelnikov Yu.V. A high temperature micropinch plasma as a spectral source of multicharged ions in region // Phys. Lett. A. — 1987. — Vol.119, №2. — P.359-362.
3. Ivanova E.P., Ivanov L.N., Glushkov A.V., Kramida A.E. High order corrections in the Relativistic Perturbation Theory with the model Zeroth Approximation // Phys. Scripta —1985. — Vol.32, №4. — P.512-524.
4. Glushkov A.V., Ivanova E.P. Theoretical Study of Multicharged Ions Spectra of Na, Ne Isoelectronic Sequence // J. Quant. Spectr. Rad. Transfer. — 1986. — Vol.36, №2. — P.127-145.
5. Koshelev K.N., Sidelnikov Yu.V., Vikhrov V.V., Ivanov V.I. Micropinches in low inductive vacuum spark and radiative pressing // Spectroscopy of multicharged ions. — M.: Nauka, 1991. — P.163-198.
6. Mandelstam S.L., Aglitsky E.V., Antsiferov P.S., Panin A.M. X-ray spectra of Ne-like Ba, La, Ce and Pr ions // Canad. Journ. of Phys. — 1984. — Vol.62, №10. — P.1923-1930.
7. Ivanova E.P., Ivanov L.N., Aglitsky E.V. Modern Trends in Spectroscopy of Multicharged Ions // Physics Rep. — 1991. — Vol.166, №6. — P.315-390.
8. Glushkov A.V. Deuterium lines spectra analysis in Tokamak // Proc. 24<sup>th</sup> Europ. Conf. on Thermonucl. Fusion & Plasma Phys. — Garching (Germany). — 1996. — P.95.
9. Glushkov A.V., Ivanov L.N., Ivanova E.P. Deuterium lines spectra analysis in Tokamak and new spectral diagnostics approach // Preprint I.V. Kurchatov IAE N13-L-97. — Moscow, 1992.
10. Volz U., Schmoranzner H. Precision lifetime measurements on alkali atoms on helium by beam-gas-laser spectroscopy // Phys. Scr. — 1996. — Vol.65, №1. — P.48-56.
11. Aglitskii E.V., Panin A.S., Safronova U.I. et al Theoretical and Experimental investigation of satellite structure of  $1s\ 1s^2\ ^1S_0 - 1s\ 3p\ ^1P_1$  line in He-like ions // Journ. de Phys. — 1988. — Vol.49, №3. — C1-267-C1-269.
12. Seely J.F., Ekberg J.O., Brown C.M. et al, Laser-Produced Spectra and QED Effects for Fe-, Co-, Cu-, Zn-like ions of Au, Pb, Bi, Th, and U // Phys. Rev. Lett. — 1996. — Vol.57, №23. — P.2924-2926.
13. Ullrich C.A., Erhard S., Gross E.K.U. Density Functional Approach to Atoms in Strong Laser Pulses // Superintense Laser Atoms Physics. — N-Y.: Kluwer, 1986. — P.1-18.
14. Luc-Koenig E., Lyras A., Lecomte J. — M., Aymar M. Eigenchannel R-matrix study of two-photon processes including above-threshold ionization in

- magnesium // *J.Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* — 1997. — Vol.30. — P.5213-5232.
15. Letokhov V.S. Nonlinear Selective Photoprocesses in atoms and molecules. — M.: Nauka, 1998. — 408c.
  16. Ivanov L.N., Letokhov V.S. Selective ionization in electric and laser field // *Quant. Electr.* — 1975. — Vol.2,N3. — P.585-590.
  17. Goldansky V.I., Letokhov V.S. On problem of g laser on nuclear transitions // *JETP.* — 1974. — Vol.67. — P.513-524.
  18. Glushkov A.V., Ivanov L.N. Radiation Decay of Atomic States: atomic residue and gauge noninvariant contributions // *Phys. Lett.A.* — 1992. — Vol.170, №1. — P.33-37.
  19. Ivanov L.N., Ivanova E.P., Knight L. Energy Approach to consistent QED theory for calculation of electron-collision strengths // *Phys. Rev. A.* — 1993. — Vol.48, №6. — P.4365-4374.
  20. Glushkov A.V., Ivanov L.N. QED Theory of the radiation atomic lines shift and deformation in a laser emission field // *Proc. 3 Colloquium on Atomic Spectroscopy.* — Chernogolovka, ISP AS USSR, 1992. — P. 113-124.
  21. Glushkov A.V., Ivanov L.N., Ivanova E.P. Radiation decay of Atomic States. Generalized Energy Approach // *Autoionization Phenomena in Atoms.* — M.: Moscow State University. — 1986. — P.58-60.
  22. Glushkov A.V., Ivanov L.N. DC Strong-Field Stark-Effect: consistent quantum-mechanical approach // *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* — 1993. — Vol.26, №16. — P.L379-L389.
  23. Glushkov A.V. Negative Ions of inert Gases// *Pis'ma to JETP.* — 1992. — T.55, №2. — C.104-107; *JETP Lett.* — 1992. — Vol.55, №2. — P. 97-100.
  24. Glushkov A.V., Ambrosov S.V., Malinovskaya S.V. Calculations of spectroscopic characteristics of complex atoms, ions in electric field // *Proc. 5<sup>th</sup> Simp. on Atom. Spectra, Oscillator Strengths for Astrophys.&Laboratory Plasmas.* — 1995. — P.131; *Bound Volume of Paris-Meudon Observatory.* — Paris (France). — 1996. — P.140-145.
  25. Glushkov A., Ambrosov S., Malinovskaya S. Spectroscopy of atom in laser field: Deformation of Radiation Atomic Lines. Multi-Photon Processes // *Ibid.* — P.148-152.
  26. Ivanov L.N., Letokhov V.S. Spectra of electron-nuclear transitions of nucleus in multicharged ion // *JETP.* — 1987. — Vol.93, №8. — P.803-815.
  27. Glushkov A.V., Malinovskaya S.V. Relativistic Models in Dynamics of interaction between electron shells of atoms and nucleons: New effects // *Uzhgorod University Scientific Herald. Ser. Phys.* — 2000. — Vol. 8, №2. — P.383-386.
  28. Glushkov A.V., Malinovskaya S.V. QED approach to calculation of new cooperative laser-electron-nuclear effects in multicharged ions // *Int. J. Quant. Chem.* — 2002. — Vol.104. — P.1337-1344.

*С. В. Малиновская*

**Термализованная плазма о-и f-подобных многозарядных ионов как объект для наблюдения новых лазерно-электрон-ядерных эффектов**

**АННОТАЦИЯ**

Проанализированы возможности наблюдения системы электронных сателлитов в спектре электрон — ядерных  $\gamma$  переходов в ядре многозарядного иона. Предлагается использовать для наблюдения искомым эффектов термализованную плазму О- и F- подобных многозарядных ионов. В качестве примера рассматривается переход в изотопе  ${}_{26}^{57}\text{Fe}$  с энергией 14,41 кэВ. Показано, что электрон — ядерные линии в спектре излучения или поглощения могут быть экспериментально обнаружены в плазме О- и F- подобных многозарядных ионов, причем искомые линии не перекрываются уширением Доплера.

*С. В. Малиновська*

**Термалізована плазма о- та f-подібних багатозарядних іонів як об'єкт для спостереження нових лазерно-електрон-ядерних ефектів**

**АНОТАЦІЯ**

Проаналізовані можливості спостереження системи електронних сателітів у спектрі електрон — ядерних  $\gamma$  переходів в ядрі багатозарядного іону. Запропоновано використати для спостереження шуканих ефектів термалізовану плазму О- і F- подібних багатозарядних іонів. Як приклад, розглянуто перехід в ізотопі  ${}_{26}^{57}\text{Fe}$  з енергією 14,41 кэВ. Показано, що електрон — ядерні лінії у спектрі випромінювання або поглинання можуть бути експериментально спостережені у плазмі О-, F- подібних багатозарядних іонів, при чому шукані лінії не перекриваються уширюванням Доплера.

*S. V. Ambrosov*

*Odessa National Polytechnic University*

## **New optimal scheme for gases and isotopes optically discharged separation with penning and stochastic collisional ionization**

It is proposed and studied a new optimal scheme for the gases and isotopes optically discharged separation, which is based on the selective laser excitation of atoms into excited Rydberg states and further stochastic collisional ionization. The operator perturbation theory and Focker-Plank stochastic equation method are used for description of stochastic collisional ionization process. The optimal laser action model and density matrices formalism is used for numeric calculation of the optimal scheme of the *Na* isotope separation.

### **1. Introduction**

One of the most perspective methods for the gases and isotopes optically discharged separation is a method of multi-step excitement and ionization of atoms by laser radiation (c.f.[1-18]). The method of selective photoionization of atoms, based on the selective resonance excitation of atoms by laser radiation into states near ionization boundary and further photo-ionization of the excited states by additional laser radiation, has been at first proposed and realized by Letokhov (c.f. [1]). This method represents a great interest for laser separation of the isotopes, nuclear isomers and optically discharged gases separation. Due to the known significant disadvantage of the two-step selective ionization of atoms by laser radiation method, quite perspective photoionization scheme bases on the use of the autoionization levels. Hitherto, detailed data about autoionization resonances for many atoms are often absent. Letokhov-Ivanov (c.f. [1]) have considered the possibility of the selective ionization of atoms, based on the selective resonance excitation of atoms by laser radiation into states near ionization boundary and further ionization decay of excited atoms by external electric field. Electric field changes the electron spectra so that the part of discrete spectra levels (near the ionization boundary) part moves into continuum and other levels become by the autoionization ones. The probability of their autoionization decay quickly increases with growth of the main quantum number. The most optimal situation is when atom is excited to state, which has the autoionization probability more than the radiation decay one. To receive an adequate data regarding the laser photoionization optimal schemes, it is necessary to carry out accurate calculating the process of sequent excitement of atoms by laser field and the probability of ionization of the highly excited atoms by electric field. Authors of ref. [7] have undertaken significant step in this direction. The

accurate calculations of elementary atomic processes in different photoionization schemes were carried out, including the photoionization schemes with the use of the autoionization resonances. As a rule, non-relativistic approximation has been used [7]. More consistent approach to solution of such a problem must be based on the relativistic models [8,12], as the most interesting elements for laser isotope separation are heavy and a role of relativistic corrections is often very dramatic. From another side, as alternative mechanism for ionization of excited atoms one could use an action of the collisional ionization (an action of electron impact, atom-atom or ion-atom collisions etc.) [6,12,22,23]. It should be noted that such variant is naturally realized by means of the plasmotronic technique [2]. Though many of cited processes are sufficiently adequately described by simplified models, at least on qualitative level, (c.f. [18-25]), a complete, consistent theory of these processes is absent hitherto [18]. In ref. [13] it is developed an effective approach to modeling of the optimal schemes for the gases optically discharged separation, which is based on the complex use of the elementary atomic processes models, optimal laser actions models, density matrices formalism. Results of numeral calculation for optimal scheme of the isotope separation for alkali elements were presented. On second step of the photoionization scheme, it was used the collisional mechanism, provided by ionization through the electron impact. This paper goes on the research of ref. [13,24,25] and devoted to searching and constructing the optimized schemes. We propose a new optimal scheme for the gases and isotopes optically discharged separation, which is based on the selective laser excitation of atoms into excited Rydberg states and further stochastic collisional ionization. It should be emphasized that we at first propose to use a stochastic collisional process and the last step of the photoionization scheme. The matter is in a fact that the cross-section of ionization in stochastic regime is significantly higher than one in the usual regime (c.f. [6,10,23]). A result, the effectiveness of the optically discharged separation scheme is significantly increased [6]. The process of the excitement into Rydberg states and atomic dynamics in these states is calculated within a new relativistic quantum approach to atomic autoionization [8,12]. The operator perturbation theory and Focke-Plank stochastic equation method are used for description of stochastic collisional ionization process. The optimal laser action model, based on the optimal governing theory, and density matrices formalism are used for numeric calculation of the optimal scheme of the  $Na$  isotopes separation.

## **2. Main steps of the gases optically discharged separation scheme**

In practical realization of the laser photoionization schemes, as a rule, the mixture of buffer and separated gases (isotopes) moves along the electric discharge zone. The discharge zone is radiated by external electromagnetic field, which is resonant to one from chosen isotopes [2]. The buffer gas defines the discharge characteristics (temperature  $T$ , concentration of particles  $n$ ). In the discharged zone the isotopes are ionized and then are removed from the discharged zone and collected by one of the physically chemical methods. Because of the difference for diffusion coefficients, under perpendicular gas stream velocity, the ions will reach the surrounding walls more

rapidly then atom with further localization due to the ionization process. The ionization time is corresponding to the time of passing for atom through the electromagnetic field action zone and equal:  $\tau=t_f=L/v$  ( $L$ - size of radiated zone;  $v$ - velocity of particles stream). If a resonant transition is saturated by a laser radiation and it is realized a collisional mechanism of ionization for excited atoms then a condition for ionization of the resonant component is as follows:  $1/nS'(T)>1/v=t_f$  (here  $S'$ - coefficient of ionization of excited atoms in collision). The typical values for indicated parameters are following:  $L=1\text{sm}$ ,  $v=10^4\text{sm/s}$ ,  $n=(10^{11}-10^{13})\text{cm}^{-3}$ . As the collisional ionization mechanism is further considered, it is useful to make substitutions:  $W_2 \rightarrow S'n/\gamma$ ,  $\tau \rightarrow \gamma z/v$ ,  $E_f = \sigma_{12} w_0 / v d \hbar w_{21}$  (here  $z$ - space co-ordinate along stream;  $d$ - transverse sizes of radiated zone). The typical values are as follows:  $S'n=10^4\text{s}^{-1}$ ,  $\gamma=10^4\text{s}^{-1}$ ,  $t_f=4 \cdot 10^{-4}\text{s}$ ,  $E_f=2,5$ .

Consider in details the selective ionization scheme for  $Na$  ( $Na$  vapours at temperature 600K). The first ionization step: excitation of  $Na$  atoms to state  $3p^2P_{1/2}$  and then photoionization by laser pulse: the excitation cross-section  $\sigma_f=10^{-12}-10^{-11}\text{cm}^2$ , ionization cross-section from excited state:  $\sigma_2=10^{-17}\text{cm}^2$ , from ground state  $\sigma_2=10^{-19}\text{cm}^2$  [1]. The experimental studying the of the  $Na$  vapours in laser field was fulfilled by Letokhov V.S. et al [1]. For selective photoionization scheme with excitation to Rydberg  $S,P,D$  states with  $n=10-18$  and further ionization by electric field ( $E=10 \text{ kV/cm}$ ) calculation [9,13] (cross-section is defined in standard way) has given the values: for the  $3p^2P_{1/2} - 15^2D_{3/2}$  transition  $\sigma_2=7,1 \cdot 10^{-15}\text{cm}^2$ , theoretical estimate of ref. [8]  $\sigma_2=7,6 \cdot 10^{-15}\text{cm}^2$ , experimental value:  $\sigma_2=7 \cdot 10^{-15}\text{cm}^2$ . So, a selective photoionization scheme with using the Rydberg states and ionization by external electric field is quite effective for alkali elements from the energetic point of view, but the ionization output here is less than 100%! This is one of the most disadvantages of the scheme with ionization by an external electric field for non-alkali elements (lanthanides, actinides etc.). As it was indicated earlier, an alternative mechanism is the collisional ionization. It is stressed that hitherto this ionization mechanism is not practically sufficiently studied for solution of the isotopes separation laser photoionization problem. The typical ionization processes are as follows [21]:



Here  $A^*$  denotes an atom in an excited state,  $B^+$  — an ionized atom, other notations are obvious. The process (1c) is called as an associative ionization. As a rule, it realizes effectively when dissociation energy of molecular ion  $AB^+$  is higher than ionization potential of excited atom. In application to carrying out the isotopes separation laser photoionization scheme this process has been considered in a number of papers (c.f. ref. [1]). Its optimal variant is at first proposed in ref. [12]. The first process (1a) realizes effectively when the excitation energy of atom A is more than the ionization potential of atom B. If an atom A is in the metastable state then the process is called as

the Penning ionization one. It is very curious that hitherto a consistent, highly exact, quantum mechanical approach to calculating main characteristics of this process is absent though many different simplified models has been proposed (c.f. [19-23]). The most widespread approach (c.f.[19-25]) is based on the calculation of the capture cross-section of collisional particles by field of the wan-der-Waalse interaction. Such an approach does not factually define any difference between the Penning process and resonant collisional one and gives often non-correct results for cross-sections. More consistent method requires data about the process probability  $G(R)$  as function of inter nuclear distance. It should be noted that these data are practically absent at present time. Further we consider a new, consistent, stochastic model for calculation of process (1a). We believe that such mechanism may be very effective for using in carrying out the optimized laser photoionization scheme of the gases and isotopes separation.

### 3. New stochastic collisional ionization model

Let us remember that a complete cross section of the collisional process (1a) is defined by a general expression:

$$\sigma = \int_0^{\infty} 2\pi\rho d\rho \{1 - \exp[-\int_{-\infty}^{+\infty} G(R)dt]\} \quad (2)$$

Here  $G(R)$  is a probability of the Auger effect and defined by usual way as:  $G(R) = 2\pi|V_{12}|^2 g_2$  (indexes 1 and 2 are relating to states:  $A^*+B$  and  $A+B^++e$ ;  $g$  is a density of the final states;  $V$  is operator of interaction between atoms). In a case if the ionization process is realized in the repulsive potential of interaction between atoms in the initial channel one would write the next expression consist of formulae (2):

$$\sigma = (4\pi f_w / v) \int_{R_m}^{\infty} R^2 G(R) \sqrt{1 - U(R)/E} dR \quad (3)$$

Here  $f_w$  is a probability that the process is permitted on entire electron spin of system of the collisional atoms,  $v$  is the relative velocity of collision,  $R_m$  is the minimally possible distance of rapprochement (the turning point). In order to obtain a correct expression for autoionization quasi-molecular width it should be used the operator perturbation theory (c.f.[9,22,25]). Within it we have taken into account a possibility of decay in the second and higher orders of perturbation theory on  $V(R)$ . Such approach may be used as for the Penning ionization description (asymptotic version is used in ref. [22]) as for ionization through the wan-der-Waalse capture [24,25]. In the second and higher orders of perturbation theory it is necessary to make substitution of the following matrix element:

$$\langle 1|V(R)G_{E_\infty}V(R)...V(R)|2\rangle$$

insist of the simple matrix element  $\langle 1|V(R)|2\rangle$  in expression for probability of collisional decay. Here  $[1] \equiv [A^*+B]$  is the initial state,  $[2] \equiv [A+B^+e]$  is the final state;  $G_k$  is the Green function (see below);  $E?$  is an energy of quasi-molecule  $A^*B$  under  $R \rightarrow \infty$  (the non-interacting atoms approximation). For operator  $V(R)$  it is useful to utilize an expansion on non-reducible tensor operators:

$$V(R) = \sum_{l_1, l_2=1}^{\infty} V_{l_1 l_2}(n) / R^{l_1+l_2+1}$$

$$V_{l_1 l_2}(n) = (-1)^{l_2} \sqrt{\frac{(2l_1+2l_2)!}{(2l_1)!(2l_2)!}} (C_{l_1+l_2}(n) \{Q_{l_1}^A \otimes Q_{l_2}^B\}), \quad n = \frac{R}{R} \quad (4)$$

Here  $C_{lm}(n)$  is the modified spherical function,  $\hat{Q}_{lm}$  is an operator of the  $2^l$ -pole moment of atom. Let us suppose that atom  $A^*$  is in a state with entire moment  $J_i$  and projection on the quantization axe  $M_i$ ; in the final state the corresponding quantum numbers are  $J_f M_f$ ; The differential (on direction  $\hat{k}$  ejection of the Penning electron) probability of the  $2^{l_1}$ -pole— $2^{l_2}$ -pole decay in the second perturbation theory order is as follows:

$$\frac{dG(R)}{d\Omega_k} = \frac{(2l_1+1)(l_1+1)(2l_1+3)(2l_2+1)(l_2+1)(2l_2+3)}{2R^{2l_1+2l_2+8} [1+\delta_{l_1 l_2}]^2 (2J_f+1)} \left| \sum_{\substack{p_1 p_2 p_3 \\ \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3}} C_{p_3 \lambda_3 p_2 \lambda_2}^{p_1 \lambda_1} \times \right.$$

$$\times C_{l_2+1 0 l_1+1 0}^{J_f M_f} C_{J_i M_i p_3 \lambda_3}^{J_f M_f} C_{p_1 \lambda_1}^* (n) \sum_{J_l M_l} (2p_2+1)(2p_3+1) \exp(i(\delta_{J_f} - \frac{\pi l_f}{2})) \times$$

$$\times C_{l_f m_f}(\hat{k}) C_{l_1 m_1 p_2 \lambda_2}^{l_f m_f} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & p_2 \\ l_f & l_i & l \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & l_1 & l_1+1 \\ 1 & l_2 & l_2+1 \\ p_2 & p_3 & p_1 \end{Bmatrix} \left[ \begin{Bmatrix} l_2 & l_1 & p_3 \\ J_f & J_i & J \end{Bmatrix} \mathfrak{R}_{J_l}^{l_f}(l_1, l_2) + \right.$$

$$\left. + (-1)^{l_1+l_2+p_2+p_3} \begin{Bmatrix} l_1 & l_2 & p_3 \\ J_f & J_i & J \end{Bmatrix} \mathfrak{R}_{J_l}^{l_f}(l_2, l_1) \right]^2 \quad (5)$$

Here the reducible matrix elements are represented as:

$$\mathfrak{R}_{J_l}^{l_f}(l_2, l_1) = \langle n_A J_i; O_B l_i | \hat{Q}_{l_2}^A \hat{d}^B g_{J_l}^{A^* B_0} \hat{Q}_{l_1}^A \hat{d}^B | O_A J_f; E l_f \rangle \quad (6)$$

Here  $d^B = Q_{l_1}^B$  is an operator of the dipole moment of atom  $B$ ,  $g_{J_l}^{A^* B_0}$ —is a radial



Green function. Because of that the final state of atom  $B |El_f\rangle$  is a state of continuum with scattering phase  $\delta_{lf}$  then the fine structure of levels in atom B may not be accounted. To calculate (6) we used the model perturbation theory with pseudopotential zeroth approximation and effective account of the exchange-correlation effects [24-26] and complex of molecular programs “Superstructure” [8-15]. In this aspect our approach differs from the analogous approach of Manakov et al [22]. The final expression for entire probability of the electron ejection is

$$G(R) = \frac{2\pi(2l_1+1)(l_1+1)(2l_1+3)(2l_2+1)(l_2+1)(2l_2+3)}{R^{2l_1+2l_2+8}(2l_i+1)[1+\delta_{l_1l_2}]^2(2J_i+1)} \left| \sum_{p_1 p_2 p_3 l_f} (C_{l_2+1 0 l_1+1 0}^{p_1 0})^2 \times \right. \\ \times (2p_2+1)(2p_3+1) \left. \left\{ \begin{matrix} 1 & l_1 & l_1+1 \\ 1 & l_2 & l_2+1 \\ p_2 & p_3 & p_1 \end{matrix} \right\} \sum_{J'} \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & p_2 \\ l_f & l_i & l \end{matrix} \right\} \left[ \begin{matrix} l_2 & l_1 & p_3 \\ J_f & J_i & J \end{matrix} \right] \mathfrak{R}_{J'}^{lf}(l_1, l_2) + \right. \\ \left. + (-1)^{l_1+l_2+p_2+p_3} \left\{ \begin{matrix} l_1 & l_2 & p_3 \\ J_f & J_i & J \end{matrix} \right\} \mathfrak{R}_{J'}^{lf}(l_2, l_1) \right|^2. \quad (7)$$

The key moment of calculation is connected with calculation of the diatomic radial matrix elements of the second order. Technical difficulties of such calculation are known. The effective procedure for two-times summation on the entire set of the collisional atoms states is earlier developed (c.f. ref. [13,16,25]).

In a case of participating highly excited atom A in processes (1a) one could suppose a possibility of realization of the stochastic mechanism for ionization. From physical point of view it is provided by a chaotic drift of the Rydberg electron which interacts with the electromagnetic field of dipole. So, it is possible to use the theory of chaotic drift of the Coulomb electron in the microwave fields (c.f.[23,11,6]). One can introduce the function of distribution  $f(n,t)$  of the Rydberg electron on space of effective quantum numbers  $n$ . The equation of motion of the Rydberg electron in our case can be written as:

$$\partial f(n,t) / \partial t = \partial / \partial n [\Theta(n-N_{min})D\mathbb{E}n^3 \partial f(n,t) / \partial n] - \Theta(n-N_{max})G(n,R)f(n,t) \quad (8)$$

Here  $\Theta(n-N_{min})$  is the Heviside function as an additive multiplier in the coefficient of diffusion  $D\mathbb{E}n^3$ , which provides “freezing” of the stochastic processes in region of the low lying states in accordance with the known Cirikov criterion. This criterion defines the region of stochasticity under condition:  $N_{min} < n < N_{max}$ . In the region of highly excited states ( $n > N_{max}$ ) it is opened a direct channel of ionization and the electron is ejected. The average effective time  $\tau_{dif}$  for diffusion of electron from level  $n=n_0^*$  till the ionization threshold  $N_{max}(R_{in})$  and further output into continuum is determined by equation [23]:

$$\langle \tau_{dif} \rangle (n_0^*) = 1/n_0^* - 1/N_{max}(R_{in}) + N_{min}(R_{in})/2 N_{max}^2(R_{in}) - N_{min}(R_{in})/2(n_0^*)^2 \quad (9)$$

The details of deriving and definition of coefficients are considered in ref.[22] and cited references. The effective collisional time is defined from equality:  $\langle \tau_{dif} \rangle (n_0^*) = t_{col}(R_{in})$ . The value of the turning point  $R_{in}$  is found from the last equality and equations (4,8,9) (c.f.[23]). The constant of ionization  $K_i$  is calculated in accordance to definition as follows:

$$K_i = \int_0^\infty dE_c F(E_c) \sqrt{2/\mu} \sqrt{E_c} \sigma_i(E_c), \quad (10)$$

$$F(E_c) = (4 \cdot E_c^2 / T^3) \exp(-2E_c/T)$$

Definition of the collision function and other parameters is given in ref. [19,23]). In conclusion of this part let us indicate that naturally a model proposed can be used in calculations of probabilities for different collisional processes and effects in atomic gases (not only the Penning ionization process and analogous ones).

Let us consider some numerical results, obtained on the basis of calculation within above presented model of the stochastic collisional ionization. The reaction (1a) for pair: "Atom of  $Na$  in the ground "S" state — excited atom of  $Na$  in the "P" state is studied. In fig.1 we present the results of calculation for ionization cross section  $\sigma_i^{(dif)}$  as a function of the collision energy  $E_c$  (in atomic units) under different values of effective quantum number  $n_0^*$ .

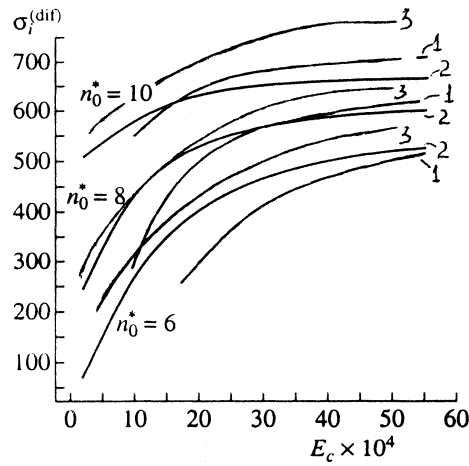


Fig. 1. Collisional ionization cross section  $\sigma_i^{(dif)}$  as a function of the collision energy  $E_c$  (in atomic units) under  $n_0^* = 6, 8, 10$ : (1) Analytical Weisskopf model; (2) Numerical diffuse Weisskopf model; (3) Present paper;

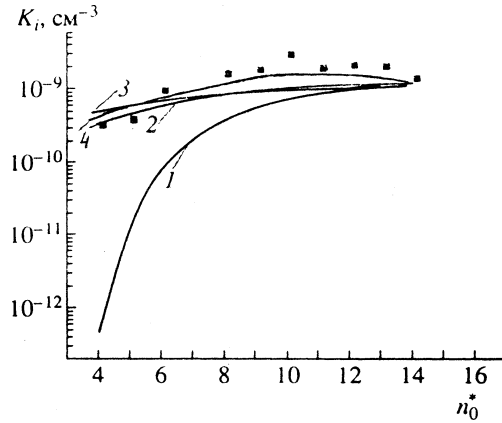


Fig. 2. Dependence of constant  $K_i$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) of the entire ionization velocity upon quantum number  $n_o^*$  for reaction of collision in the crossing beams for pair "Na( $nP$ )+N( $3S$ )" under temperature of effusion sources  $T=600$  K: (1)- the Mihajlov-Janev model ; (2) Analytical Weisskopf model; (3) Numerical diffuse Weisskopf model; (4) Present approach;

For comparison there are also presented the results of calculation within the analytical Weisskopf model and numeral diffuse Weisskopf model [23]. In fig. 2 it is presented a dependence of constant  $K_i$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) of the velocity for entire ionization upon effective quantum number  $n_o^*$  for reaction of collision in the crossing beams for pair "Na( $nP$ )+N( $3S$ )" under temperature of effusion sources  $T=600$  K. For comparison there are also presented the results of calculation on the basis of the Mihajlov-Janev model (1), analytical Weisskopf model (2), numeral diffuse Weisskopf model (3) ([23] and present approach (4); the squares denote the experimental data of Wang-Weiner [19]. Results of present calculation are in sufficiently good agreement with experimental data of Wang-Weiner. But the most important conclusion of carried out calculation is in the increasing of the ionization cross section due to the realization of the stochastic drift of the Rydberg electron. Naturally, it is of a great importance a sufficiently long time of the elementary collision act for developing the stochastic instability. Now we consider the procedure of the optimization of the laser photoionization gases optically discharged separation scheme in accordance to refs. [9,12-14].

#### 4. Optimization of the laser photoionization gases optically discharged separation scheme

The optimization procedure of the gases optically discharged model is in a searching the optimal form of electromagnetic pulse of resonant radiation in order to provide a maximum of excited particles in the gases separation scheme (naturally this is one of

the possible versions). This problem was in details considered in ref. [9,12-14]. It is important that in difference from the simplified model of speed equations (c.f.[1,10]) the separation process in our papers is described by more adequate density matrix equations system (c.f. [12,13]).

As an example we consider a scheme for optically discharged separation of the *Na* isotopes. In experiment of Letokhov et al (c.f. [1]) two dye-lasers, pumped by one pulsed  $N_2$  laser are used. The first laser parameters provided a saturation of the resonant transition:  $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{1/2} Na$ . The wavelength of second laser is tuned in region of 4210-41490Å. Under the optically discharged separation the scheme will be optimal if an atom is excited by laser radiation till state which has the decay probability due to the collisional ionization bigger than the radiation decay probability. In fig.3 there are presented the numeric modelling results of the optimal form of laser pulse in the photoionization scheme with stochastic collisional ionization. The data are obtained for the *Na* isotopes separation. It is also shown the typical behavior of the ground (curve 1) and excited (curve 2) states population.

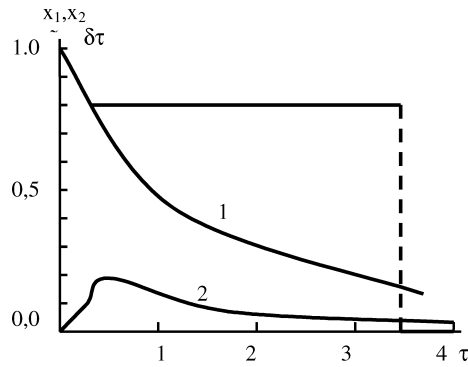


Fig. 3. Results of numeric modelling for the optimal form of laser pulse for laser photoionization scheme of the *Na* isotopes: d+dotted line –optimal form for laser pulse; curves 1 and 2 — the populations of the ground and excited states

The results presented are in qualitative aspect similar to analogous data with ionization by pulsed electric field and ionization by electron impact scenarios [13,14]. Let us remember data regarding the excitation and the ionization cross sections for considered system: the excitation cross section at the first step of the photoionization scheme is  $10^{-12} \text{cm}^2$ ; the ionization cross-section from excited  $3^2P_{1/2}$  state:  $\sigma_2=10^{-17} \text{cm}^2$ , from ground state  $\sigma_2=10^{-19} \text{cm}^2$  [1]. One can see that the relation of these cross sections is  $10^5$  and  $10^7$  correspondingly. This fact provides the obvious non-efficiency of photoionization scheme. A use of the electric filed pulse at the second step for ionization of the excited atoms provides more optimal scheme from energetic point of view. For example, for the  $3p^2P_{1/2} - 15^2D_{3/2}$  transition the corresponding cross section  $7 \cdot 10^{-15} \text{cm}^2$  under strength of electric field 12 kV/cm [1]. Our calculation shows that the stochastic

ionization cross section is  $4,8 \cdot 10^{-14} \text{cm}^2$ . So, from energetic point of view, the stochastic collisional ionization mechanism can be very perspective alternative to even electric field ionization mechanism.

In conclusion let us formulate the main results of present paper. We studied new optimal scheme for the gases and isotopes optically discharged separation, which is based on the selective laser excitation of atoms into excited Rydberg states and further stochastic collisional ionization. The operator perturbation theory and Focker-Plank stochastic equation method are used for description of stochastic collisional ionization process. The optimal laser action model and density matrices formalism is used for numerical calculation of the optimal scheme of the *Na*-isotopes separation. At the first step of photoionization isotopes scheme the  $\delta$ -pulse provides a maximally possible level of excitation for the up state. Then the stochastic collisional ionization must be realized earlier than the parasitic spontaneous relaxation processes (resonant re-charging etc. [1]) begin to destroy and change an achieved excitement level in a gas. In any case the considered laser photoionization scheme can be used for the alkali elements isotopes separation. It is important to note that the stochastic scenario is realized better when an elementary collisional act is sufficiently long for developing the stochastic instability. As a result, an additional condition for the potential photoionization scheme realization is connected with non-high temperature regime. In any case a stochastic scenario provides one of the possibilities for significant changing the output of charged particles due to the change of effective value for the reaction energy threshold.

#### Literature

1. Letokhov V.S. Nonlinear Selective Photoprocesses in atoms and molecules. — M.,1983. — 408c.
2. Krasnov S.V., Shaparev N.Ya, Shkedov S.B. Optimal Laser actions. — Novosibirsk, 1993. — 92P.
3. Karlov N.V., Orlov A.I., Petrov Yu.N., Prokhorov A.M. Laser Governing by the diffusion stream of gases into vacuum through obstacle with developed surface// Izv. AS USSR. Ser. Phys. — 1985. — Vol.49, №4. — P.500-505.
4. Stoll W. Present Status of industrial Isotope separation by laser technology// Atomic and Molecular Pulsed Lasers. — Tomsk: SO RAN, 2001. — P.71.
5. Buchanov V.V., Kazaryan M.A., Kalugin M.M., Prokhorov A.M. Laser separation of Silicon Isotopes by the AVLIS Technology // Atomic and Molecular Pulsed Lasers. — Tomsk: SO RAN, 2001. — P.72.
6. Glushkov A.V., Ambrosov S.V., Shpinareva I.M. Non-linear Selective Photoprocesses in Atoms and Molecules and their Optimal Governing. Optimized Isotope Separation Schemes // Atomic and Molecular Pulsed Lasers. — Tomsk: SO RAN, 2001. — P.70.
7. Glushkov A.V., Malinovskaya S.V., Ambrosov S.V., Shpinareva I.M. and Troitskaya O.V. Resonances in Quantum Systems in Strong External Fields:

- Consistent Quantum Approach// J. Techn. Phys. — 1997. — Vol.38, №2. — P.215-219.
8. Shpinareva I.M. Selective photoionization of molecules in an electric field: new models // Photoelectronics. — 2001. — Vol.10. — P.107-112.
  9. Ambrosov S.V., Glushkov A.V. Atom in a DC electric field: Relativistic Operator Perturbation Theory Method // Proc. European Science Foundation REHE School and Workshop on “Spin-Orbit Coupling in Chemical Reactions”. — Torun (Poland). — 1998. — P.23.
  10. Ambrosov S.V., Shpinareva I.M. Selective Ionization of Atoms by Electric and Light Field. Autoionization Rydberg Resonances in Heavy Atoms. Optimal Isotope-Separation Selective Molecular Vibration Levels Excitation Schemes // Proc. 32<sup>nd</sup> Europhysics Conference EGAS. — Vilnius (Lithuania). — 2000. — P.197.
  11. Glushkov A.V., Ambrosov S.V., Ignatenko V.M., Non-hydrogenic atoms and Wannier-Mott exciton in a dc electric field: photoionization, stark effect, resonances in the ionization continuum and stochasticity // Photoelectronics. — 2001. — Vol.10. — P.101-106.
  12. Ambrosov S.V. Selective Photoionization of atoms: resonant re-charging in vapours of alkali elements and uranium // Photoelectronics. — 2002. — Vol. 11. — P.40-45.
  13. Ambrosov S.V. Selective ionization of atoms and molecules by electric and laser field. Autoionizing Rydberg resonances in heavy atoms // Uzhgorod Univ. Scient. Herald. Ser. Phys. — 2000. — Vol.8, №2. — P.308-316.
  14. Ambrosov S.V. Optimal schemes of the optically discharged separation of gases // Physics of aerodispersed systems. — 2001. — Vol.38. — P.207-211.
  15. Ivanov L.N., Letokhov V.S. Spectroscopy of autoionization resonances in heavy elements atoms // Com. Mod. Phys. D.:At. Mol. Phys. — 1985. — Vol.4. — P.169-184.
  16. Glushkov A.V., Ivanov L.N. Radiation Decay of Atomic States: atomic residue and gauge noninvariant contributions // Phys. Lett.A. — 1992. — Vol.170, №1. — P.33-37.
  17. Glushkov A.V., Ivanov L.N. DC Strong-Field Stark-Effect: consistent quantum-mechanical approach // J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. — 1993. — Vol.26, №16. — P.L379-L386.
  18. Ivanov L.N., Ivanova E.P., Knight L. Energy Approach to consistent QED theory for calculation of electron-collision strengths // Phys. Rev. A. — 1993. — Vol.48, №6. — P.4365-4374.
  19. Photonic, Electronic, Atomic Collisions. — Singapore: World Sc. — 1997. — P.621-630.
  20. Taylor G. Theory of scattering. Quantum theory of non relativistic collisions. — Moscow, Mir, 1991. — 565 p.
  21. Smirnov B.M. Ionization processes under slow atomic collisions// Usp. fys. Nauk. — 1981. — Vol.133. — P.569-613.

22. Manakov N.L., Ovsyannikov V.D., Ostrovsky V.N., Yastrebov V.N. Influence of long-acting forces on the Penning-ionization // Opt. Spectr. — 1984. — Vol.56. — P.222-226.
23. Bezuglov N.N., Borodin B.M., Kazansky A.K. et al, Analysis of stochastic equations of the Focker-Plank with valuable boundary conditions in elementary process of collisional ionization // Opt. Spectr.-2001. — Vol.89. — P.25-33.
24. Glushkov A.V., Ambrosov S.V., Gopchenko E.D. et al, Calculation of spectroscopic characteristics for wan-der-vaalse olecules. Atom of inert gas-atom of galogen in ground state // Opt. Spectr. —1998. — Vol.84. — P.567-570.
25. Glushkov A.V., Ambrosov S.V., Serbov N.G. et al, Calculation of potential for interaction of excited alkali elements atoms with mercury atom: interaction Na,K,Fr-Hg // Izv. Vuzov. Ser.Phys. — 1996. — Vol.34, №1. — P. 84-88.
26. Glushkov A.V., Ambrosov S.V., Serbov N.G. et al, Calculation of oscillator strengths in Na-,Fr-like multi-charged ions // Journ. Appl. Spectr. — 1996. — Vol.63, №1. — P. 39-45.

*С. В. Амбросов*

**Нова оптимальна схема опторазрядного поділення газів та ізотопів із стохастичною іонізацією за рахунок зіткнень**

**АНОТАЦІЯ**

Запропоновано та вивчено нову оптимальну схему опторазрядного поділення газів та ізотопів, яка базується на селективному лазерному збудженні атомів у рідбергівські стани та подальшій стохастичній іонізації за рахунок зіткнень. Операторна теорія збурень та метод стохастичного Фоккер-Планківського рівняння використано для опису процесу стохастичної іонізації за рахунок зіткнень. Модель оптимальних лазерних діянь та апарат матриці густини застосовано для чисельного моделювання оптимальної схеми поділення ізотопів  $Na$ .

*С. В. Амбросов*

**Новая оптимальная схема опторазрядного разделения газов и изотопов со стохастической столкновительной ионизацией**

**АННОТАЦИЯ**

Предложена впервые новая оптимальная схема опторазрядного разделения газов и изотопов, базирующийся на селективном лазерном возбуждении атомов в ридберговские состояния и дальнейшей стохастической столкновительной ионизацией. Операторная теория возмущений и метод стохастических уравнений применены для описания процесса стохастической столкновительной ионизации. Модель оптимальных лазерных воздействий и аппарат матрицы плотности использованы для численного расчета оптимальной схемы разделения изотопов  $Na$ .

*Ambrosov S. V.*

**A new optimal scheme for the gases and isotopes optically discharged separation with stochastic collisional ionization**

**SUMMARY**

It is proposed and studied a new optimal scheme for the gases and isotopes optically discharged separation, which is based on the selective laser excitation of atoms into excited Rydberg states and further stochastic collisional ionization. The operator perturbation theory and Focker-Plank stochastic equation method are used for description of stochastic collisional ionization process. The optimal laser action model and density matrices formalism is used for numeric calculation of the optimal scheme of the  $Na$  isotopes separation.



---

---

## ПЕРСОНАЛІИ

---

---



### **Професор Михайло Миколайович Чесноков**

Професору Одеського університету ім. І.І. Мечникова Михайлу Миколайовичу Чеснокову, що відомий достатньо широкому колу вчених як фахівець в галузі теплофізики низькотемпературної плазми і фізики аеродисперсних систем, 22 вересня 2003 року виповнилось 70 років.

М.М.Чесноков закінчив фізичний факультет Одеського університету в 1962 році і його було рекомендовано до аспірантури при кафедрі теплофізики ОДУ. Одразу після закінчення аспірантури його було направлено в США на 10-місячне стажування.

Перші наукові роботи М.М. Чеснокова пов'язанні з вивченням спалахування і горіння частинок сплавів алюмомагнія, а також сплавів і твердих розчинів алюмінію з магнієм та цинком. Важливі експериментальні результати отримано при дослідженні горіння окремих частинок "потрійного сплаву", тобто сплаву алюмінію з магнієм та цинком. Результати дослідження механізму горіння окремих частинок в подальшому використано при дослідженні горіння аеросупензій порошків алюмінію, магнія, їх сумішей та сплавів. Метою цих досліджень було покращення енергетики металізованих ракетних палив, так як вже в кінці 50-х років було визначено, що порошок алюмінію на практиці не дає розрахункову енергетику через неповне згорання алюмінію в складі твердих та рідких ракетних палив. До того ж виявилось, що тяга двигунів не досягає розрахункової величини не тільки через неповне згорання металу, але й через втрату імпульсу за рахунок швидкісного запізнення відносно газового потоку конденсованих частинок в струмені продуктів згорання металізованих палив.

В 1967 році за матеріалами досліджень захищає кандидатську дисертацію на тему "Фізико-хімічні властивості продуктів згорання алюмінію". В ро-

боті звернено увагу на бімодальний характер розподілу твердих частинок продуктів згоряння металів, що пов'язано з двома механізмами утворення частинок оксиду при горінні металізованих палив.

Після захисту кандидатської дисертації, Чесноков М.М. за дорученням проф. В.О. Федосєєва керував науково-дослідною групою, яка виконувала роботу з одного із розділів кафедральної теми “Випаровування і горіння в дисперсному вигляді”, що виконувалась в рамках комплексної проблеми “Термофізика і теплоенергетика”.

На початку 60-х років М.М. Чесноков та його група виконують великий об'єм експериментальних досліджень повноти згоряння металізованих палив з домішками порошків алюмінію і його сплавів з магнієм, цинком, титаном і цирконієм.

В подальшому акцент досліджень зміщується в галузь електрофізичних властивостей продуктів згоряння, так як помічено, що факел палива має властивості низькотемпературної плазми.

З 1976 року на кафедрі термофізики група наукових співробітників (Драган Г.С., Мальгота О.А., Соколов Ю.В., Маренков В.І., Вішняков В.І. під керівництвом і безпосередньою участю М.М. Чеснокова, в теоретичному і експериментальному напрямках інтенсивно проводить дослідження з вивчення фізичних процесів в плазмі продуктів згоряння і високотемпературних аерозолях. Виникає новий науковий напрямок — низькотемпературна плазма з конденсованою дисперсною фазою (НТП з КДФ). На базі кафедри проводяться загальносоюзні наради з фізики НТП з КДФ, з 1980 р. студенти, що спеціалізувались на кафедрі, освоюють спеціалізацію “Фізика плазми”. Дослідження з питань плазми з КДФ стають відомими фахівцям України і країн СНД. Створений напрямок — нова швидко розвиваюча галузь науки. З'явилась велика кількість журнальних статей.

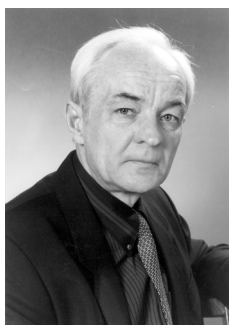
Викладачами кафедри розроблено і читається спеціальний курс “Фізика низькотемпературної плазми”. Але на той час посібників та розробок з курсу “Фізика плазми з КДФ” не існувало, в лекціях використовували матеріали з журнальних статей і монографій із суміжних розділів фізики.

Узагальненням наукових результати, отриманих М. М. Чесноков у співробітництві зі своїм учнем В.І. Маренковим, являється надрукований в 1989 році учбовий посібник “Фізичні моделі плазми з конденсованою дисперсною фазою”. Учбовий матеріал орієнтовано на аудиторну і самостійну роботу студентів IV — V курсів по спеціальним курсам: “Фізика плазми з КДФ”, “Фізичні явища в МГД-генераторах”. Цінністю посібника є те, що поряд з послідовним викладенням теорії моделювання фізичних процесів в НТП з КДФ, в ньому є наявність конкретних задач розрахунків на ЕОМ електрофізичних параметрів гетерогеної плазми. Результатом роботи стала докторська дисертація, яку в лютому 1988 року М.М. Чесноков захистив в Інституті високих температур в Москві і яка була затверджена ВАКом в жовтні цього року. За час роботи ним було опубліковано більше 100 наукових статей, от-

римано 5 авторських свідотцв. Під його керівництвом успішно захистили дисертації 7 чоловік, зокрема один з КНДР.

Поряд з науковою діяльністю М.М.Чесноков з 1967 року виконує учбово-педагогічну, адміністративну і громадську роботу. З 1975 по 1981 рік — декан фізичного факультета. З 1983 рік по 1988 був проректором по роботі з іноземними студентами, з 1988 по 1992 рік — проректор з наукові роботи. З 1979 по 1996 рік успішно керував кафедрою теплофізики. Ним розроблено и читались спецкурси з хімічної кінетики, теплофізичним властивостям речовин, методики наукових досліджень. Зараз М.М.Чесноков читає лекції, працює головним науковим співробітником науково-дослідної лабораторії НДЛ-5, є керівником держбюджетної теми. За його участю видано 5 методичних посібників.

За сумлінне відношення до праці, за професіоналізм в роботі М.М. Чеснокова було нагороджено грамотами Мінвузу СРСР, Мінвузу України і Міністерства освіти республіки Куба. У професора М.М.Чеснокова хороша родина: дружина — доцент інституту, дочка — лікар — інфекціоніст і дві онуки.



### **Профессор Золотко Андрей Никонович**

В июле 2003 г. исполнилось 60 лет со дня рождения члена редакционной коллегии нашего Сборника, директора Института горения и нетрадиционных технологий Одесского национального университета им. И.И.Мечникова, заведующего кафедрой общей и химической физики физического факультета ОНУ, действительного члена Академии инженерных наук Украины, доктора физико-математических наук, профессора Золотко Андрея Никоновича.

Научная и педагогическая деятельность А.Н.Золотко прошла в Одесском государственном университете, который он закончил в 1967 году по специальности “теплофизика”. В 1967-1970 годах — аспирант кафедры общей физики; в 1971г. защитил кандидатскую диссертацию по специальности “теплофизика”. С 1971г. старший преподаватель кафедры общей физики, с 1975г. доцент этой же кафедры. Одновременно в эти же годы вел активную научную работу, будучи научным руководителем Лаборатории горения и молекулярных процессов НИЧ ОГУ. В 1982 году в Институте химической физики АН СССР ( г. Москва ) защитил докторскую диссертацию по специальности “ химическая физика, физика горения и взрыва “. В 1985-1988 гг.- профессор кафедры, с 1988 г. и до настоящего времени -заведующий кафедрой общей и химической физики ОНУ.

С 1994г. — директор Института горения и нетрадиционных технологий Одесского государственного университета им. И. И. Мечникова.

Первые исследовательские работы А.Н.Золотко относятся к концу 60-годов и посвящены изучению процессов горения металлизированных топливных композиций. В начале 70-х годов возглавил группу молодых исследователей, которой удалось разрешить целый ряд фундаментальных и прикладных проблем горения различных дисперсных систем разнообразных типов горючих применительно к проблемам оборонной техники, энергетики, химической технологии, материаловедения, пожаро — взрывобезопас-

ности, метеорологии, экологии. В последующие годы разработал ряд теорий кризисных явлений и горения дисперсных стадийно-реагирующих систем, распространения пламени в дискретных горючих средах. Кроме того, совместно с коллегами и учениками провел обширные экспериментальные и теоретические исследования по различным направлениям физики горения: факельное сжигание порошкообразных металлов, ( как результат — разработан общепризнанный технологичный метод газодисперсного синтеза нанодисперсных тугоплавких оксидов металлов — новых материалов для целого спектра современных перспективных технологий в разных отраслях промышленности); самораспространяющийся синтез новых функциональных материалов методами “безгазового” горения; оптическая диагностика пылевых пламен; воспламенение и горение различных горючих таких как магниевый бор, высокозольные угли, механические смеси и сплавы металлов, водотопливные эмульсии и др.; динамика химически реагирующих систем вблизи критических точек — эти вопросы тесно связаны с проблемами теории катастроф, синергетики, экологии, медицины, биологии, гео- и астрофизики.

С начала 80-х годов профессор А.Н.Золотко возглавил научную школу физики горения дисперсных систем, образованную в конце 50-х годов в Одесском государственном университете профессорами В.А.Федосеевым и Д.И.Полищуком. Воспитанники Научной школы ( в том числе 4 доктора и более 20 кандидатов физ.-мат.наук ) широко известны своими высокорейтинговыми публикациями в научных журналах стран СНГ и дальнего зарубежья, ведут активную научную и преподавательскую работу в ВУЗах Украины, многие из них сейчас успешно работают в университетах США, Канады, Голландии, Германии.

С 1988 года А.Н.Золотко — член Научного совета по вопросам горения АН СССР ( с 1992 года- Российской академии наук ); член Института горения США; член редколлегии двух научных журналов по проблемам горения, издаваемых Российской академией наук и Национальной академией наук Казахстана; член оргкомитетов многих Международных симпозиумов по горению, проводимых Институтом горения США и Советом по горению СССР и Российской академии наук; организатор целого ряда Всесоюзных и Украинских школ-конференций по воспламенению и горению дисперсных систем.

После образования независимой Украины организовал при Академии инженерных наук Украины Научный совет по вопросам горения, предназначенный для координации исследовательских работ в области физики горения. В 1998 году этот Научный совет, который объединил в себе более 50 ведущих специалистов Украины в области горения, решением директората Института горения США зарегистрирован как Украинская секция Института горения США. Председателем секции назначен профессор А.Н.Золотко.

В 1994 году по инициативе А.Н.Золотко совместным решением Министерства образования Украины и Минмашпрома Украины при Одесском

государственном университете был образован первый в Украине Институт горения. Директором Института стал профессор А.Н.Золотко.

Имеет больше 150 публикаций по фундаментальным и прикладным проблемам горения, в том числе более 80 работ в ведущих научных журналах и Материалах международных симпозиумов СССР, России, США, Германии, Великобритании, Франции, Польши, Японии.

Является руководителем 3-х международных научных проектов, которые выполняются учеными Института горения и кафедры общей и химической физики совместно с исследователями из России, Франции, Германии, Норвегии, Израиля, США по программам INTAS и CRDF.

Как преподаватель и заведующий кафедрой профессор А.Н.Золотко большое внимание уделяет учебно — воспитательной и научной работе со студентами и аспирантами. Сотрудники кафедры на высоком профессиональном уровне готовят специалистов в области химической физики, ведут активную работу по привлечению абитуриентов на физический факультет Университета, успешно осуществляют просветительскую деятельность в средних учебных заведениях Южного региона Украины.

## ИМЕННОЙ УКАЗАТЕЛЬ

### А

Алтоиз Б. А. 176  
Амбросов С. В. 340  
Андреев В. И. 102  
Асланов С. К. 7

### Б

Барба И. Н. 102  
Биллей Д. В. 313  
Бобров В. О. 237  
Бойко Ю. И. 23

### В

Вишняков В. И. 263, 274  
Вовчук Я. И. 48

### Г

Гирич А. Г. 226  
Глушков А. В. 129, 215  
Головко В. В. 57, 64  
Голубцов В. В. 293  
Грызунова Т. В. 150  
Гулевая О. Н. 106

### Д

Дадонина Е. Ю. 176  
Драган Г. С. 274, 313  
Дроздов В. А. 162  
Дроздов М. А. 162

### З

Затовский А. В. 203, 237, 245, 253  
Звелиндский А. В. 237  
Золотко А. Н. 48

### К

Калинчук А. И. 106  
Калинчук В. В. 106, 150, 193  
Кирилюк А. В. 253  
Коваль С. В. 137  
Коваль С. С. 137  
Ковальчук В. В. 162  
Козловская В. П. 322  
Кондратьев Е. Н. 71  
Коноваленко Л. Д. 102  
Копейка А. К. 57, 64  
Копыт Н. Х. 14, 23, 30, 42, 293  
Кочнева В. Ю. 313  
Курятников В. В. 87

### Л

Липатов Г. Н. 42  
Лисы В. 245  
Лобода А. В. 285  
Лялин Л. А. 30

### М

Маломуж Н. П. 193  
Макордей Ф. В. 102  
Малиновская С. В. 333  
Маренков В. И. 298  
Милова Л. Г. 87  
Миргород П. И. 42  
Мочалов А. А. 137

### Н

Народицкая Т. В. 143  
Недялков Д. Д. 176  
Никитина Е. А. 64

## О

Орловская С. Г. 106, 150  
Опятык В. В. 71

## П

Панкратов К. Н. 193  
Полетаев Н. И. 48  
Поповский Ю. М. 143  
Препелица Г. П. 123, 327

## Р

Рябчук Л. И. 94

## С

Савенко Г. И. 14  
Сахненко Е. И. 203  
Семенов К. И. 30, 71  
Свинаренко А. А. 129  
Скогарев В. Г. 82  
Соловьев В. Г. 313  
Стручаев А. И. 14  
Стручаев Н. И. 14

## Т

Тамарина Н. А. 274

Терлецкая Л. Л. 293  
Тотов Й. 245  
Трофименко М. Ю. 94  
Тюрин А. В. 123, 327

## Ф

Федотова В. С. 94  
Флорко А. В. 57

## Х

Хохлов В. М. 215

## Ц

Цененко И. А. 215

## Ч

Чернякова Ю. Г. 327  
Чесноков М. Н. 94

## Ш

Шпинарева И. М. 129

## Я

Яровой Т. А. 48



*Наукове видання*

**ФІЗИКА  
АЕРОДИСПЕРСНИХ  
СИСТЕМ**

**Випуск 40**

Міжвідомчий науковий збірник

*Російською, українською  
та англійською мовами*

Головний редактор ***В. В. Калінчак***

Зав. редакцією *Т. М. Забанова*  
Технічний редактор *М. М. Бушин*

---

Здано у виробництво 16.12.2003. Підписано до друку 19.12.2003. Формат 60x84/16.  
Папір офсетний. Гарнітура "Таймс". Друк офсетний. Ум. друк. арк. 21,39.  
Тираж 300 прим. Зам. № 779.

Видавництво і друкарня "Астропринт"  
(Свідоцтво ДК № 1373 від 28.05.2003 р.)  
65026, м. Одеса, вул. Преображенська, 24.  
Тел.: (0482) 26-98-82, 26-96-82, 37-14-25.  
**[www.astroprint.odessa.ua](http://www.astroprint.odessa.ua)**

**Фізика аеродисперсних систем**

Міжвідомчий науковий збірник / Головн. ред. В. В. Калінчак. —  
Одеса: Астропринт, 2003. — Вип. 40. — 368 с.

Рос., укр. та англ. мовами.

Розглянуто питання випаровування, конденсації та коагуляції у водяному аерозолі, а також кінетика горіння твердих і порошкоподібних палив. Наведено результати досліджень з тепло- і масообміну в дисперсних системах. Висвітлено проблеми активної дії на метеорологічні явища. Розглянуто деякі електричні явища при взаємодії заряджених частинок.

Для фізиків, хіміків, метеорологів і інженерів.

УДК 541.182.2/3:541.126:536.24+66.015.23:533.6

## Рекомендации редколлегии для авторов статей

Редколлегия журнала просит руководствоваться приведенными ниже правилами. Статьи, оформленные без соблюдения этих правил не принимаются.

Сборник “Физика аэродисперсных систем” печатает статьи, в которых рассматриваются: 1. Вопросы испарения, конденсации, коагуляции, электрической зарядки аэрозолей, а также механизмы их образования и переноса; 2. Процессы горения аэродисперсных систем; 3. Тепломассообмен капель и частиц с газовой фазой при фазовых и химических превращениях; 4. Газодинамические явления в дисперсных системах; 5. Физика низкотемпературной плазмы с конденсированной дисперсной фазой.

### Общие требования

Материалы, поданные в журнал, должны содержать новые результаты исследований. Рукопись редактируется и подписывается авторами (автором). На отдельном листе необходимо указать фамилию, имя, отчество, место работы, должность, контактные телефоны каждого автора.

Текст статей подается в двух экземплярах. Публикации возможны на русском, украинском, английском языках; к статье на русском языке прилагают аннотации на украинском и английском языках, к статье на украинском языке прилагают аннотации на русском и английском языках, к статье на английском языке прилагают аннотации на украинском и русском языках. Все указанные материалы необходимо также подать в виде единого файла на дискете (3 дюйма), которая возвращается. Статьи принимаются только при наличии акта экспертизы.

Редколлегия назначает рецензентов — компетентных специалистов в данной области, которые будут рецензировать каждую поданную статью. В случае отрицательной рецензии статья или присылается на доработку или отклоняется.

### Оформление статьи

Материал статьи должен быть изложен в следующей последовательности:

- 1) номер *УДК*, б) фамилии инициалы авторов,
- 2) название организации (й), представляющей (их) статью (если организаций больше, чем одна, после фамилии каждого автора ставится знак сноски (\*), а ниже указываются все организации.
- 3) название статьи,
- 4) название города,
- 5) аннотация ,
- 6) текст статьи,
- 7) литература,

8) аннотации на 2-х упомянутых выше языках с фамилиями и инициалами авторов и названием статьи.

Объем статьи, включая рисунки, литературу, аннотации, не должен превышать 10 страниц текста, напечатанного на компьютере через 1 интервал (с размером букв 10 pt). Поля: левое — 20 мм, правое 10 мм, сверху 30 мм, внизу 20 мм. Название статьи, фамилии авторов и название организаций печатаются буквами, размером 12 pt с межстрочным расстоянием между УДК, названием статьи и фамилиями авторов 1,5 интервала. Используются только шрифты Times New Roman для текста и Symbol для греческого алфавита.

*Аннотация*, предшествующая тексту статьи, пишется одним абзацем с **10 позици** строки размером букв 10 pt, объемом 6-10 строк.

*Таблицы*. Таблицы нумеруют только в том случае, если их больше одной. Отступ до таблицы и после нее — 2 интервала. При необходимости таблицы могут иметь заголовок и примечание.

*Иллюстрации*. Иллюстрации выполняются по ходу изложения текста статьи по мере их упоминания в тексте. Под рисунком печатается соответствующая подпись. Надписи, загромождающие рисунок, заменять цифровыми или буквенными обозначениями и переносить в текст статьи или в подписи под рисунком. Все обозначения на рисунке должны соответствовать обозначениям в тексте. Нумерацию кривых на рисунке вести сверху вниз, слева направо. Размер рисунка должен быть не менее 50×50 мм и не более 100×100 мм.

*Литература*. После текста статьи через 2 интервала печатается список литературных источников, используемых в статье.

*Аннотации* к тексту статьи печатаются после списка литературы. Аннотациям предшествуют фамилии и инициалы авторов и название статьи. После слова “Анотация” или “Summary” с абзаца печатается текст аннотации.

*Файл*. Для подготовки статьи к печати необходимо кроме напечатанных 2-х экземпляров статьи предоставить электронную копию статьи на дискете формата “1.44М — 3.5”. Файл статьи должен быть подготовлен при помощи редакторов Word-6, Word-97. Статья, аннотации и рисунки должны быть в едином файле и иметь название, образованное от фамилии первого автора — author.doc.

Если в статье имеются рисунки, необходимо представить иллюстрационный материал в виде графических файлов, выполненных в РСХ — формате. Файлы рисунков называть следующим образом ris1.pcx и т.д.

Готовится к публикации 41 выпуск сборника “Физика аэродисперсных систем” . Прием статей до 01.10. 2004 г.

**Все справки по телефонам:**

(0482) 23-12-03 — *Калинчак Валерий Владимирович* —  
ответственный редактор

(0482) 23-62-27 — *Чесноков Михаил Николаевич* —  
зам. ответственного редактора

(0482) 23-12-03 — *Орловская Светлана Георгиевна* —  
ответственный секретарь

(0482) 23-62-27 — *Смагленко Татьяна Федоровна* —  
технический секретарь

**ДЛЯ ЗАМЕТОК**

**ДЛЯ ЗАМЕТОК**