

На правах рукописи

Синцов Сергей Владиславович

**РАЗРЯД АТМОСФЕРНОГО ДАВЛЕНИЯ,
ПОДДЕРЖИВАЕМЫЙ В СФОКУСИРОВАННЫХ
КВАЗИОПТИЧЕСКИХ ПУЧКАХ
НЕПРЕРЫВНОГО МИЛЛИМЕТРОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

01.04.08 – физика плазмы

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Нижний Новгород, 2020

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном научном учреждении «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук» (ИПФ РАН), г. Нижний Новгород.

Научный руководитель: Водопьянов Александр Валентинович, доктор физико-математических наук, доцент, ФГБНУ «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики РАН» (г. Нижний Новгород).

Официальные оппоненты: Лебедев Юрий Анатольевич, доктор физико-математических наук, профессор, ФГБНУ «Институт нефтехимического синтеза им. А.В. Топчиева РАН» (г. Москва).

Борзосеков Валентин Дмитриевич, кандидат физико-математических наук, доцент, ФГБНУ «Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН» (г. Москва).

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное учреждение науки «Институт сильноточной электроники Сибирского отделения Российской академии наук» (ИСЭ СО РАН, г. Томск).

Защита состоится «7» декабря 2020 года в 15-00 часов на заседании диссертационного совета Д002.069.02 при ФГБНУ «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики РАН» по адресу: 603950, г. Нижний Новгород, БОКС-120, ул. Ульянова, 46.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГБНУ «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики РАН».

Автореферат разослан «2» ноября 2020 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
доктор физико-математических наук



Э.Б. Абубакиров

Общая характеристика работы

Актуальность темы исследования

В настоящее время разряды атмосферного давления используются в широком спектре промышленных плазмохимических приложений. Разложение в плазме молекулярных газов позволяет получить целевой продукт реакции в различных агрегатных состояниях [1-5]. Популярными плазмохимическими задачами являются разработка источников озона [6] и окислов азота [7], утилизация углекислого газа до монооксида углерода [8], очистка воздуха от ядовитых и органических примесей [9], разложение соединений фтора и хлора для получения высокочистых или изотопно-обогащенных веществ [10] и пр. Для повышения производительности и рентабельности большинство промышленных плазмохимических процессов целесообразно проводить в разрядах, поддерживаемых при атмосферном давлении [11]. Особый интерес представляют процессы плазменного разрушения молекул с высокой энергией связи, несущих целевой компонент реакции [6-8, 10]. Проведение эффективного разложения таких соединений возможно в неравновесной плазме, где температура электронов близка к энергетическому порогу диссоциации и существенно превышает колебательную температуру молекул и температуру газа [1]. Наличие неравновесного распределения температурных характеристик плазмы позволяет существенно увеличить скорости возбуждения и диссоциации молекул, уменьшить роль обратных реакций с целевым продуктом и, в итоге, увеличить конверсию и энергоэффективность проводимых плазмохимических процессов [2, 3]. Поэтому в настоящее время перспективной задачей современной промышленной плазмохимии является разработка неравновесного источника плазмы атмосферного давления [12].

Основной проблемой создания источника неравновесной плазмы атмосферного давления является выравнивание температурных характеристик разряда из-за высокой частоты столкновений частиц. Конверсия целевого продукта реакции при этом фиксирована и определяется равновесным балансом протекающих процессов при заданной равновесной температуре [1-3]. Энергетический порог активации реакции разрушения молекулы в таком случае в несколько раз превышает доступную температуру плазмы, что обуславливает низкие производительность и рентабельность в промышленных масштабах [3]. Несмотря на это, в широком спектре плазмохимических задач используются традиционные плазмотроны атмосферного давления (индукционные, дуговые разряды и пр.), которые являются источниками равновесной плазмы [3].

Примером использования неравновесной плазмы при атмосферном давлении является барьерный разряд. Он нашел широкое применение в построении источников озона и монооксида азота [6, 7]. В барьерном разряде газ не успевает нагреться за счет малой длительности токопроводящих микропотоков, возникающих в узком промежутке между электродами с диэлектриче-

ским барьером [11]. Поскольку реакция получения, например, озона является эндотермической и легко обратимой, снижение температуры проводимого неравновесного процесса позволяет сместить баланс в сторону получения целевого продукта. Однако в барьерных разрядах принципиально невозможно удалить зону реакторную зону от электродов, что накладывает ограничения на проведение плазмохимических процессов с высоким содержанием химически активных соединений. В промышленных приложениях мощность барьерных плазмотронов ограничивается электро- и термо- прочностями используемых диэлектриков. Поэтому эти источники неравновесной плазмы не применимы для решения многих промышленных плазмохимических задач [11, 12].

Перспективным научным направлением, получившим бурное развитие в последние десятилетия, является изучение возможности организации неравновесных плазмохимических процессов в микроволновых разрядах высокого давления [8, 9, 13]. Это обусловлено появлением мощных и надежных источников СВЧ излучения сантиметрового и миллиметрового диапазонов длин волн [14, 15]. Разряды атмосферного давления, поддерживаемые мощным микроволновым излучением технологических источников - гиротронов, имеют большой потенциал для решения современных промышленных плазмохимических задач [8, 9, 16].

Особенности механизмов передачи энергии от СВЧ поля газовому разряду атмосферного давления обуславливают ряд важных физических эффектов, которые позволяют выйти за рамки равновесного баланса плазменных параметров и реализовать существенно неравновесное распределение температурных характеристик в плазме [15-19]. В первую очередь речь идет о развитии ионизационно-перегревных неустойчивостей на флуктуациях электронной и газовой плотностей [16]. При этом электронная плотность в областях возникновения неустойчивостей ограничивается величиной, соответствующей максимальному поглощению вводимой энергии. Концентрация электронов и температура газа увеличиваются до тех пор, пока внешнее поле не перестанет эффективно проникать в перегретую область. На практике в микроволновых разрядах высокого давления ($v_{em} > \omega$) данный механизм обуславливает появление в плазме ярких нитевидных каналов - филамент, ориентированных вдоль направления колебания вектора напряженности электрического поля волны [8, 9]. Электронная плотность в филаментах на несколько порядков превышает критическое значение для частоты греющего поля, а температурные характеристики имеют неравновесное распределение, несмотря на высокую температуру газа [8, 18]. Благодаря ультрафиолетовому излучению из филамента с развитой ионизационно-перегревной неустойчивостью, вокруг них образуется плазменный ореол, который поглощает значительную долю вводимой СВЧ мощности [17]. Такой механизм возбуждения газа в плазменном ореоле может позволить достигнуть существенно неравновесного распределения температурных характеристик [17-19].

Также с конструктивной точки зрения использование систем квазиоптической фокусировки для нагрева плазмы атмосферного давления позволяет не только увеличить плотность мощности, но и ограничить зону поддержания разряда геометрией пучка. Локализация разряда обуславливает наличие резкой границы между плазмой и окружающим объемом невозбужденного фонового газа. Это позволяет быстро вывести целевой продукт реакции из активной зоны и уменьшить роль обратных процессов. Также благодаря локализации плазмы геометрией пучка, микроволновый разряд может быть удален от стенок реактора, что позволяет проводить процессы с химически активными соединениями фтора, хлора и кислорода [11].

В данной работе было проведено исследование возможности использования мощных и надежных источников миллиметрового излучения – гиротронов [14, 15], для создания плазмы в потоке газа при атмосферном давлении в непрерывном режиме с существенно неравновесными температурными характеристиками. Для этого были использованы источники непрерывного миллиметрового излучения с частотами 24 и 263 ГГц. Было показано, что электронная температура в реализованных разрядах в потоке аргона в окружающей атмосфере воздуха превышает температуру газа более чем на порядок. Плазменный факел, поддерживаемый в квазиоптическом пучке миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц, имеет пространственно неоднородную структуру, пронизанную нитевидными плазменными каналами, ориентированными вдоль направления потока газа. Вокруг них образуется область несамостоятельного разряда – плазменный ореол. Было проведено исследование плазменных параметров в филаментах и ореоле, сделаны выводы о механизмах их поддержания. В частности, было показано, что филаменты образуются за счет развития ионизационно-перегревной неустойчивости, а плазменный ореол – за счет диффузионного турбулентного выноса плазмы из перегретых нитевидных каналов. На основании этого сделаны выводы о физических механизмах, позволяющих поддерживать в плазменном факеле существенно неравновесное распределение температурных характеристик.

С точки зрения плазмохимических приложений, локализация пространственно неоднородного разряда в потоке газа сфокусированным квазиоптическим пучком миллиметрового излучения позволяет организовать динамический режим подмешивания в плазменный факел газов окружающей атмосферы. Эффективность представленного способа организации неравновесных плазмохимических процессов была подтверждена в рамках данной работы на примере задачи разложения углекислого газа. На основании полученных результатов были сделаны выводы об эффективности использования мощных источников миллиметрового излучения для поддержания неравновесной плазмы атмосферного давления.

Целью настоящей работы является исследование возможности использования мощных источников миллиметрового излучения для поддержания

плазмы в потоке газа при атмосферном давлении в непрерывном режиме с существенно неравновесными температурными характеристиками.

Для этого были решены следующие **задачи**:

1. Измерение температурных характеристик (температура электронов, температура возбуждения электронных уровней нейтралов, колебательная и вращательная температуры молекулярных газов, температура газа) разрядов атмосферного давления, поддерживаемых в сфокусированных квазиоптических пучках непрерывного миллиметрового излучения (24 ГГц и 263 ГГц).

2. Измерение электронной плотности в разрядах атмосферного давления, поддерживаемых в сфокусированных квазиоптических пучках непрерывного миллиметрового излучения (24 ГГц и 263 ГГц).

3. Исследование возможности использования неравновесного разряда атмосферного давления, поддерживаемого в сфокусированных квазиоптических пучках непрерывного миллиметрового излучения, для решения современных плазмохимических промышленных задач на примере разложения углекислого газа.

Научная новизна работы

1. Впервые исследованы свойства и параметры разряда атмосферного давления, поддерживаемого в потоке газа в сфокусированном квазиоптическом пучке непрерывного мощного субтерагерцового излучения. В качестве источника был использован гиротрон с частотой излучения 0.263 ТГц. Продемонстрированы существенная неравновесность температурных характеристик разряда данного типа и близость электронной плотности к критическому значению для частоты греющего поля.

2. Впервые для решения задачи плазменного разложения углекислого газа при атмосферном давлении был использован разряд в потоке аргона с углекислым газом, локализованный в сфокусированном квазиоптическом пучке непрерывного миллиметрового излучения К-диапазона. В качестве источника был использован гиротрон с частотой излучения 24 ГГц. Достигнутые результаты конверсии углекислого газа (до 31%) и энергоэффективности процессов (до 16%), превышают современные рекордные значения для бескатализаторных разрядов атмосферного давления.

3. Показано, что формирование плазменного ореола в разряде атмосферного давления, поддерживаемого в потоке аргона в окружающей атмосфере воздуха в квазиоптическом пучке непрерывного миллиметрового излучения, обусловлено диффузионным турбулентным выносом плазмы из областей с развитой ионизационно-перегревной неустойчивостью.

Практическая значимость работы

Результаты, представленные в данной диссертационной работе, могут иметь практическое применение в задачах промышленного плазмохимического разложения газовых молекулярных соединений при атмосферном дав-

лении. Использование мощных и надежных источников мощного непрерывного миллиметрового излучения для поддержания разряда в потоке газа при атмосферном давлении позволяет пространственно локализовать область поддержания разряда и реализовать режим турбулентного смешения плазмообразующих газов. В рамках данной работы была продемонстрирована высокая эффективность разложения углекислого газа в плазме, поддерживаемой непрерывным миллиметровым излучением К-диапазона. В качестве источника был использован гиротрон с частотой излучения 24 ГГц. Полученные результаты конверсии углекислого газа и энергоэффективности процессов являются многообещающими на мировом уровне.

Основные положения, выносимые на защиту

1. В сфокусированных квазиоптических пучках мощного непрерывного излучения гигагерцового и субтерагерцового частотных диапазонов реализовано поддержание неравновесного разряда в потоке аргона в окружающей атмосфере воздуха при атмосферном давлении, в котором средняя электронная плотность превышает критическое значение для частоты греющего поля, и электронная температура более чем в 10 раз превышает температуру газа.

2. В разряде атмосферного давления в потоках аргона и углекислого газа, поддерживаемого в сфокусированном квазиоптическом пучке мощного непрерывного миллиметрового излучения К-диапазона, продемонстрировано разложение углекислого газа до монооксида углерода со степенью конверсии свыше 30% при энергоэффективности более 10%.

3. Плазменный факел, поддерживаемый в сфокусированном квазиоптическом пучке мощного непрерывного миллиметрового излучения К-диапазона в потоке аргона в окружающей атмосфере воздуха при атмосферном давлении, имеет неоднородную структуру, состоящую из нитевидных плазменных каналов, ориентированных вдоль направления потока газа и образующихся за счет развития ионизационно-перегревной неустойчивости, и окружающего их плазменного ореола, который формируется за счет диффузионного турбулентного выноса плазмы из нитей.

Апробация работы и публикации

По теме диссертации было опубликовано 6 статей в рецензируемых журналах из списка ВАК, 3 публикации в трудах конференций, 11 тезисов конференций. Основные результаты, изложенные в данной работе, были представлены на следующих конференциях:

1. 23-я нижегородская сессия молодых ученых, ННГУ, г. Нижний Новгород, 23-24 мая 2018, устный доклад.

2. 30th Joint Russian-German Meeting on ECRH and Gyrotrons (ECRH-2020), IAP RAS, Nizhny Novgorod, 17-24 June, 2018, устный доклад.

3. 15th High Technology Plasma Processes conference (HTTP15), Toulouse, France, 2-6 July 2018, устный доклад.

4. VIII Международный симпозиум по теоретической и прикладной плаз-мохимии».- ИГХТУ, г. Иваново, 10-15 Сентября 2018г., устный доклад.

5. 24-я нижегородская сессия молодых ученых, г. Нижний Новгород, 21-24 мая 2019, устный доклад.

6. 24th International Symposium on Plasma Chemistry (ISPC24), Naples, Italy (9-14 June 2019), стендовый доклад.

7. International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), Nagoya, Japan, (1 -2 September 2018), стендовый доклад.

8. 11th International Symposium on Non-Thermal/Thermal Plasma Pollution Control Technology and Sustainable Energy, Montegrotto Terme, Italy, (July 1-5, 2018), стендовый доклад.

9. X Международная конференция «Фундаментальные проблемы оптики-2018», Санкт-Петербург, (15-19 октября 2018), стендовый доклад.

Личный вклад автора

Автор принимал непосредственное участие на всех этапах постановки представленных в работе экспериментов. Автором лично было применены все диагностические методы, описанные в работе. Обработка и интерпретация всех экспериментальных результатов, представленных в работе, выполнены автором.

Объем и структура диссертации

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения и списка цитируемой литературы. Общий объем диссертации составляет 156 страниц, включая 54 рисунка и 4 таблицы. Список литературы включает в себя 102 наименования.

Содержание диссертации

Во введении обсуждается актуальность темы исследования, сформулированы основные цели диссертации, кратко описаны основные полученные результаты, новизна работы.

В первой главе представлены результаты исследования плазменных параметров разряда атмосферного давления, поддерживаемого в сфокусированном квазиоптическом пучке непрерывного миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц. Описаны постановка эксперимента и методы диагностики плазменных параметров, обсуждаются полученные результаты. Проведено исследование структуры разряда и механизмов его поддержания.

В разделе 1.1 настоящей работы представлено описание экспериментального стенда, который структурно можно разделить на источник миллиметрового излучения и газоразрядную камеру. В качестве источника миллиметрового излучения был использован технологический гиротрон с частотой излучения 24 ГГц и максимальной выходной мощностью 5 кВт в непрерывном

режиме. Линейно поляризованное излучение вводилось в газоразрядную камеру (рисунок 1), где фокусировалось с помощью параболического зеркала.

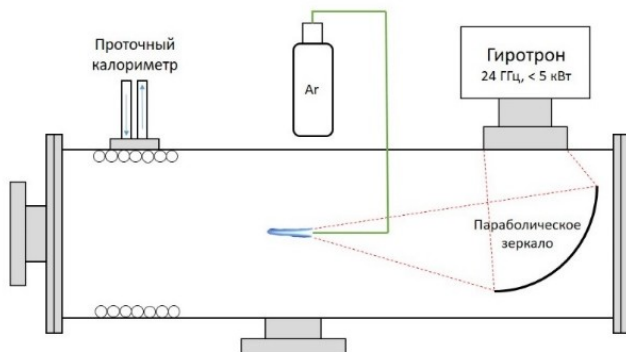


Рис. 1. Схема газоразрядной камеры.

В области перетяжки пучка миллиметрового излучения располагалась металлическая трубка напуска газа, по которой осуществлялась подача аргона в окружающую атмосферу воздуха при нормальном давлении. Разряд инициировался на срезе трубки напуска газа в потоке вытекающего из нее аргона. Он представляет собой плазменный факел, диаметр которого равен диаметру трубки напуска газа (4 мм), а длина достигает 4 см. Факел вытянут вдоль направления волнового вектора электромагнитной волны, перпендикулярно линейно поляризованному полю (рисунок 2). Длина плазменного факела увеличивается пропорционально вводимой мощности. Разряд удавалось поддерживать в широком диапазоне параметров поддержания: мощности нагрева и скорости потока аргона.



Рис. 2. Фотография плазменного факела, поддерживаемого в сфокусированном квазиоптическом пучке миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц. Мощность нагрева 1500 Вт, скорость потока аргона 15 л/мин. Время экспозиции 1 мс.

В разделе 1.1 также представлены результаты исследования пространственно–временной динамики плазменного факела. По фотографиям разряда, полученным с помощью фотокамеры с высокочувствительной CCD матрицей

и временем экспозиции 4-100 мкс, была описана структура и динамика плазменного факела, поддерживаемого в сфокусированном квазиоптическом пучке миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц. В спектральном диапазоне 450-650 нм в структуре факела наблюдаются ярко выраженные нитевидные филаментарные структуры, берущие свое начало на срезе трубки газового напуска и ориентированные вдоль направления потока газа. Было показано, что стационарная нитевидная структура плазменного факела, поддерживаемого в квазиоптическом пучке мощного непрерывного миллиметрового излучения, обусловлена ионизационно-перегревным механизмом с газодинамическим выносом плазмы вдоль направления потока газа. При этом характерный размер филаментарных структур определяется амбиполярной диффузионной длиной, которая не зависит от мощности внешнего нагрева. Вокруг таких нитевидных плазменных каналов образуется область несамостоятельного разряда – плазменный ореол, формирование которого обусловлено диффузионным турбулентным выносом плазмы из областей с развитой ионизационно-перегревной неустойчивостью.

Методами лазерной интерферометрии было исследовано распределение поступательной температуры в плазменном факеле и в области вне него. Показано, что поступательная температура в нитевидных филаментах превышает 1400 К и увеличивается с ростом поглощенной мощности. При этом температура газа в плазменном ореоле не превышает 700 К.

В разделе 1.2 представлены результаты исследования параметров плазмы разряда, поддерживаемого в сфокусированных квазиоптических пучках непрерывного миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц. Методами оптической эмиссионной спектроскопии были определены температура возбуждения атомов аргона, колебательная и вращательная температуры (для молекул азота, подмешиваемых в плазменный объем из окружающей факел атмосферы). Температура возбуждения атомов аргона описывает распределение возбужденных электронных энергетических уровней и в неравновесных разрядах является оценкой снизу для температуры электронов. Было показано, что температурные характеристики в разряде имеют существенно неравновесное распределение и не изменяются в пределах погрешности с ростом поглощенной мощности. Температура возбуждения верхних уровней атомов аргона примерно составляет 0.43 эВ, колебательная и вращательная температуры азота равны 0.27 и 0.13 эВ соответственно.

С помощью двойного электрического зонда было проведено измерение электронной температуры в плазменном факеле. Было показано, что температура электронов не изменяется с ростом поглощенной мощности и составляет 1 эВ, что примерно в 2 раза больше температуры возбуждения атомов аргона и более чем в 15 раз больше температуры газа ореоле. В работе приведено объяснение полученной динамики температурных характеристик разряда, определена роль молекулярных газов, подмешиваемых в плазменный объем из окружающей атмосферы.

Методами СВЧ зондирования было проведено измерение электронной плотности в разряде атмосферного давления, поддерживаемом в сфокусированном квазиоптическом пучке непрерывного миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц. С учетом частоты столкновений, электронная плотность близка к критическому значению для частоты греющего поля, не изменяется с ростом поглощенной мощности и составляет $8 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$.

Основные результаты, изложенные в первой главе, опубликованы в работах [A1-A4, A8, A10, A12, A13, A16-A18].

Во второй главе представлены результаты исследования параметров разряда атмосферного давления, поддерживаемого в потоке аргона в окружающем воздухе в сфокусированном квазиоптическом пучке непрерывного субтерагерцового излучения с частотой 263 ГГц.

В разделе 2.1 данной главы описаны параметры источника субтерагерцового излучения и экспериментальная установка. Исследованы форма и размер пучка субтерагерцового излучения в области перетяжки, обсуждаются режимы поддержания плазменного факела. В качестве источника субтерагерцового излучения был использован гиротрон с частотой излучения 263 ГГц и максимальной выходной мощностью в непрерывном режиме 1100 Вт. Излучение гиротрона с помощью системы параболических зеркал вводилось в газоразрядную камеру, где фокусировалось на срезе металлической трубки напуска плазмообразующего газа – аргона (рисунок 3).

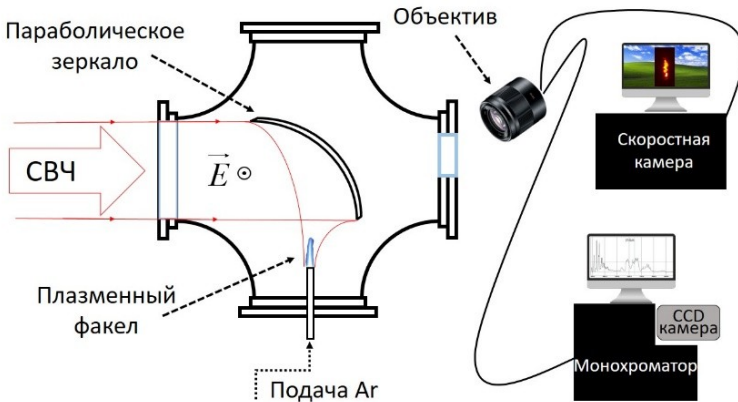


Рис. 3. Схема экспериментальной установки по поддержанию плазменного факела атмосферного давления в сфокусированном пучке непрерывного субтерагерцового излучения.

В сфокусированном квазиоптическом пучке в потоке аргона в окружающей атмосфере воздуха при нормальном давлении инициировался газовый разряд, представляющий собой плазменный факел.

В разделе 2.2 представлены результаты исследования пространственно-временной динамики плазменного факела атмосферного давления, поддерживаемого в сфокусированном квазиоптическом пучке субтерагерцового излучения. По фотографиям разряда на фотокамеру со скоростным электронным затвором и с временем экспозиции 20 – 1000 нс, было проведено исследование структуры плазменного факела (рисунок 4).

Было показано, что газовом разряде такого типа существует структура, положение, размер и форма которой не изменяются с ростом поглощенной разрядом мощности. Плазменный ореол, окружающий такую структуру, является нестационарным и распространяется навстречу падающему пучку субтерагерцового излучения. Неоднородная структура плазменного ореола может быть обусловлена распределением стоячей структуры поля в области поддержания разряда. **В разделе 2.3** представлены результаты исследования параметров плазмы разряда, поддерживаемого в сфокусированном квазиоптическом пучке субтерагерцового излучения. Аналогично исследованиям, проведенным в разделе 1.2 данной работы, методами оптической эмиссионной спектроскопии были определены температура возбуждения атомов аргона, колебательная и вращательная температуры молекул азота, подмешиваемых в плазменный объем из окружающей атмосферы воздуха. Определённые температурные характеристики имеют существенно неравновесное распределение и слабо выраженную зависимость от поглощенной мощности. Температура возбуждения атомов аргона более чем в 11 раз превышает вращательную температуру молекул газа в плазменном факеле и составляет 1.6 эВ.

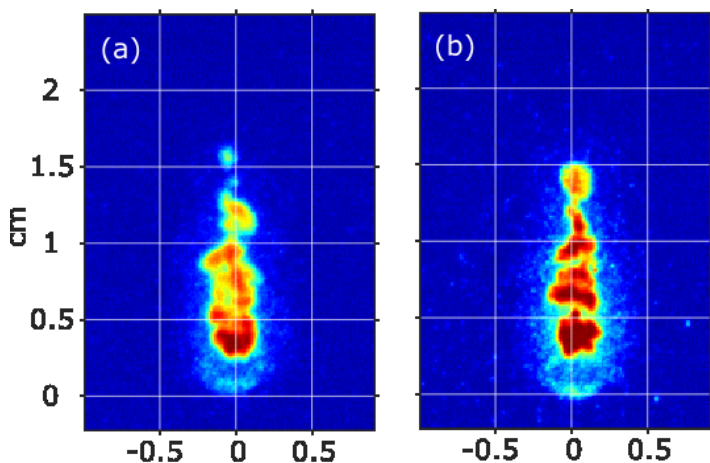


Рис. 4. Фотографии разряда, полученные с помощью скоростной камеры. Левая фотография - мощность нагрева 1 кВт, поток аргона 10 л/мин, время экспозиции 20 нс. Правая фотография - мощность нагрева 0.78 кВт, поток аргона 10 л/мин, время экспозиции 20 нс.

Эта величина примерно в 3 раза больше температуры возбуждения атомов аргона в разряде, поддерживаемом в сфокусированном квазиоптическом пучке миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц. В разделе представлены оценки электронной температуры, приведено объяснение динамики плазменных параметров в зависимости от поглощенной разрядом мощности.

Также представлены результаты измерения электронной плотности в плазменном факеле, поддерживаемом в сфокусированном квазиоптическом пучке непрерывного субтерагерцового излучения гиротрона с частотой 263 ГГц. Концентрация электронов была определена по штарковскому уширению линий водорода H_α и H_β серии Бальмера. Водород в небольшом количестве был подмешан в плазмообразующий газ. С помощью фильтра H_α с полосой пропускания 650 – 660 нм было показано, что подмешанный водород равномерно возбуждается во всем плазменном объеме. Получено, что электронная плотность составила $2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$, что близко к критической для частоты греющего поля.

Основные результаты, изложенные в первой главе, опубликованы в работах [A5, A7, A9, A19].

В третьей главе диссертации представлены результаты экспериментов по разложению углекислого газа в разряде атмосферного давления, локализованного электродинамической структурой, поддерживаемого непрерывным сфокусированным излучением с частотой 24 ГГц в потоках аргона и углекислого газов.

В разделе 3.1 представлен обзор современных плазменных методов утилизации углекислого газа путем его разложения до монооксида углерода. Подробно обсуждаются преимущества и недостатки разрядов атмосферного давления, поддерживаемых источниками непрерывного сантиметрового излучения.

В разделе 3.2 описаны экспериментальная установка и локализирующая металлическая электродинамическая структура конической формы, приведены результаты численного расчета распределения напряженности электрического поля. Применение металлической электродинамической структуры позволило увеличить плотность мощности в области перетяжки пучка на 20%, локализовать газовые потоки плазменного факела и увеличить долю мощности, поглощенной разрядом до 60% от введенной (рисунок 5).

Разряд, поддерживаемый в сфокусированном пучке миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц, инициируется в потоке аргона в окружающей атмосфере углекислого газа, который по отдельной трубке газового напуска вводится внутрь локализирующей электродинамической структуры.

В разделе 3.3, аналогично разделам 1.2 и 2.3, представлены результаты спектроскопического исследования температурных характеристик плазменного факела, поддерживаемого в сфокусированном пучке непрерывного излучения с частотой 24 ГГц. Вращательная температура была определена по электронно-колебательно-вращательным переходам молекулы C_2 (система

Свана). Было показано, что температура возбуждения атомов аргона в 2-3 раза превышает газовую температуру и составляет 0.5 – 0.8 эВ.

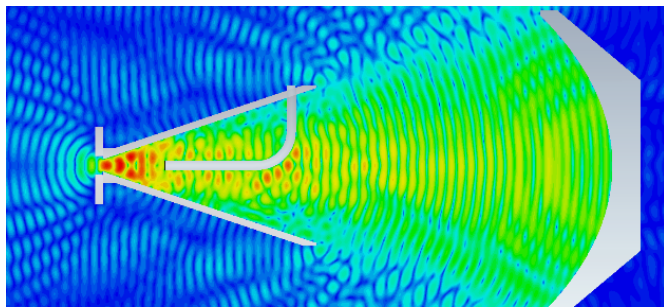


Рис. 5. Пространственное распределение электрического поля в области перетяжки пучка миллиметрового излучения с локализирующей электродинамической структурой.

В разделе 3.4 представлены результаты экспериментов по разложению углекислого газа в неравновесном плазменном факеле атмосферного давления, поддерживаемого в сфокусированном пучке непрерывного миллиметрового излучения с частотой 24 ГГц и локализованного металлической электродинамической структурой. В разделе обсуждается динамика конверсии углекислого газа и энергоэффективности в зависимости от поглощенной мощности и потока плазмообразующей смеси аргон–углекислый газ. Экспериментально было определено оптимальное соотношение компонент газовой смеси аргон–углекислый газ как 5:1, что соответствует наибольшим экспериментально достигнутым значениям конверсии углекислого газа и энергоэффективности его разложения. При большем содержании аргона в плазмообразующей смеси не удавалось стабилизировать газовые потоки внутри локализирующей электродинамической структуры, из-за чего невозможно было повысить мощность нагрева плазмы. Также было показано, что увеличение мощности нагрева приводит к выравниванию температурных характеристик плазмы и увеличению степени конверсии углекислого газа с одновременным уменьшением энергоэффективности. Максимальное полученное значение конверсии углекислого газа составило 31% при энергоэффективности 10% (мощность нагрева 3 кВт и потоке газовой смеси Ar/CO₂ в соотношении 5:1 40 л/мин). Максимальная энергоэффективность была достигнута при том же значении скорости потока плазмообразующей смеси и мощности нагрева 1300 Вт на уровне 17% при степени конверсии 24%.

Полученные результаты выглядят многообещающе на мировом уровне и превышают многие современные рекордные значения для разрядов атмосферного давления без использования катализаторов. В работе также обсуждаются методы увеличения достигнутых значений конверсии и энергоэффективности.

Основные результаты, изложенные в третьей главе, опубликованы в работах [A6, A20].

В заключении сформулированы основные выводы и результаты, описанные в диссертации.

Публикации по теме работы

Статьи в научных журналах

[A1]. Kornev R. A., Sennikov P. G., Sintsov S. V., Vodopyanov A. V. Microwave Interferometry of Chemically Active Plasma of RF Discharge in Mixtures Based on Fluorides of Silicon and Germanium // Plasma Chemistry and Plasma Processing. 2017. Vol. 37, no. 6. P. 1655–1661.

[A2]. Kornev R. A., Sennikov P. G., Shabarova L. V., Shishkin A. I., Drozdova T. A., Sintsov S. V. Reduction of Boron Trichloride in Atmospheric-Pressure Argon–Hydrogen Radiofrequency Induction Plasma // High Energy Chemistry. 2019. Vol. 53, no. 3. P. 246–253.

[A3]. Sintsov S., Vodopyanov A., Mansfeld D. Measurement of electron temperature in a non-equilibrium discharge of atmospheric pressure supported by focused microwave radiation from a 24 GHz gyrotron // AIP Advances. 2019. Vol. 9, no. 10. P. 1–8.

[A4]. Sintsov S., Tabata K., Mansfeld D., Vodopyanov A., Komurasaki K. Optical emission spectroscopy of non-equilibrium microwave plasma torch sustained by focused radiation of gyrotron at 24 GHz // Journal of Physics D: Applied Physics. 2020. Vol. 53, no. 30. P. 541–550.

[A5]. Sintsov S. V., Vodopyanov A. V., Viktorov M. E., Morozkin M. V., Glyavin M. Yu. Non-equilibrium Atmospheric-Pressure Plasma Torch Sustained in a Quasi-optical Beam of Subterahertz Radiation // Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves. 2020. Vol. 41, no. 6. P. 711–727.

[A6]. Mansfeld D., Sintsov S., Chekmarev N., Vodopyanov A. Conversion of carbon dioxide in microwave plasma torch sustained by gyrotron radiation at frequency of 24GHz at atmospheric pressure // Journal of CO₂ Utilization. 2020. Vol. 40. P 191–197.

Труды конференций

[A7]. Vodopyanov A. V., Sidorov A. V., Razin S. V., Dubinov I. D., Sintsov S. V., Proyavin M. D., Glyavin M. Y. Parameters of a CW Plasma Torch of Atmospheric Pressure Sustained by Focused Sub-Terahertz Gyrotron Radiation // International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves. 2018. P. 111–112.

[A8]. Vodopyanov A., Mansfeld D., Sintsov S., Viktorov M. Method for determining plasma density in a magnetic field // Journal of Physics: Conference Series. 2019. Vol. 1400. P. 077022.

[A9]. Sidorov A., Glyavin M., Golubev S., Razin S., Sintsov S., Veselov A., Vodopyanov A. Applications of the gas discharge sustained by the powerful radiation of THz gyrotrons // Journal of Physics: Conference Series. 2019. Vol. 1400. P. 077032.

Тезисы докладов конференций

[A10]. Синцов С.В., Водопьянов А. В., Корнев Р. А., Шишкин А.Н. Степень равновесности аргон-водородной и аргон-азотной плазмы атмосферного давления // Тез. докл. «VIII Международный симпозиум по теоретической и прикладной плазмохимии». – ИГХТУ, г. Иваново (10-15 сентября 2018 г.), С. 132.

[A11]. Корнев Р.А., Сенников П.Г., Синцов С.В., Водопьянов А.В. Диагностика химически активной плазмы ВЧЕ разряда в смесях летучих галогенидов с водородом // Тез. докл. «VIII Международный симпозиум по теоретической и прикладной плазмохимии». – ИГХТУ, г. Иваново (10-15 Сентября 2018 г.). С. 124.

[A12]. Синцов С.В., Водопьянов А. В. Параметры стационарного СВЧ разряда атмосферного давления, поддерживаемого сфокусированным излучением гиротрона // Тез. докл. «23-я нижегородская сессия молодых ученых», ННГУ, г. Нижний Новгород (23-24 мая 2018), т. 2 с. 48.

[A13]. Sintsov S.V., Vodopyanov A.V., Mansfeld D.A., Viktorov M.E. Parameters of the atmospheric pressure CW microwave discharge sustained by focused gyrotron radiation. // 15th HTTP, Toulouse, France (2-6 July 2018). P. 19.

[A14]. Kornev R., Sennikov P., Sintsov S., Vodopyanov A.. Diagnostics of Chemically Active Plasma of RFCC Discharge in $H_2 + SiCl_4$, $H_2 + GeCl_4$, and $H_2 + BCl_3$ mixtures // 11th International Symposium on Non-Thermal / Thermal Plasma Pollution Control Technology and Sustainable Energy. Book of abstracts. Montegrotto Terme, Italy, July 1-5, 2018. P. 111.

[A15]. Kornev R., Sennikov P., Shabarova L., Sintsov S. RF-IC Plasmatron with Tangential Stabilization of the Gas Flow: Diagnostics of Chemically Active Plasma and Application //11th International Symposium on Non-Thermal/Thermal Plasma Pollution Control Technology and Sustainable Energy. Book of abstracts. Montegrotto Terme, Italy, July 1-5, 2018. P.112.

[A16]. Мурзанев А.А., Водопьянов А.В., Ромашкин А.В., Синцов С.В., Степанов А.Н. Интерферометрический контроль параметров плазмы при непрерывном СВЧ разряде в аргоне, поддерживаемом гиротроном // X международная конференция «Фундаментальные проблемы оптики – 2018», Санкт-Петербург, (15-19 октября 2018), с. 86-87.

[A17]. Синцов С.В., Водопьянов А. В. Неравновесный разряд атмосферного давления, поддерживаемый непрерывным излучением субтерагерцового гиротрона // Тез. докл. «24-я нижегородская сессия молодых ученых», г. Нижний Новгород (21-24 мая 2019), т. 1 с. 110.

[A18]. Sintsov, S., Vodopyanov, A., Mansfeld, D., Viktorov, M. (2019) Non-equilibrium atmospheric pressure discharge, sustained by focused CW gyrotron radiation with a frequency of 24 GHz. Conference paper ISPC24, Naples, Italy (9-14 June 2019).

[A19]. Vodopyanov, A., Sintsov, S., Viktorov, Sidorov, A., M., Mansfeld, D., Morozkin, M., Fokin, A., Glyavin. M. (2019) Features of the atmospheric pressure CW discharge, sustained by the 263 GHz gyrotron radiation. Conference paper ISPC24, Naples, Italy (9-14 June 2019).

[A20]. Mansfeld, D., Vodopyanov, A., Sintsov, S. (2019) Disintegration of carbon dioxide in a microwave plasma torch sustained by gyrotron radiation at a frequency of 24 GHz at atmospheric pressure. Conference paper ISPC24, Naples, Italy (9-14 June 2019).

Цитируемая литература

[1]. Полак Л.С., Овсянников А.А., Словецкий Д.И., Вурзель Ф.Б. Теоретическая и прикладная плазмохимия. М. : Наука, 1975.

[2]. Словецкий Д.И. Химия плазмы. Вып. 1 / Под ред. Б. М. Смирнова. М. : Атомиздат, 1974.

[3]. Русанов В.Д., Фридман А.А., Шолин Г.В. Химия плазмы. Вып. 5 / Под ред. Б.М. Смирнова. М. : Атомиздат, 1978.

[4]. Lebedev Y. A. Microwave Discharges in Liquids: Fields of Applications // High Temperature. 2018. Vol. 56, no 5. P. 811–820.

[5]. Akhmadullina N. S., Skvortsova N. N., Obratsova E. A., Stepakhin V. D., Konchekov E. M., Letunov A. A., Konovalov A. A., Kargin Y. F., & Shishilov O. N. Plasma-chemical processes under high-power gyrotron's discharge in the mixtures of metal and dielectric powders // Chemical Physics. 2019. Vol. 516. P. 63–70.

[6]. Hong Y., Niu J., Pan J., Bi Z., Ni W., Liu D., Wu Y. Electron temperature and density measurement of a dielectric barrier discharge argon plasma generated with tube-to-plate electrodes in water // Vacuum. 2016. Vol. 130. P. 130–136.

[7]. Artem'ev K. V., Batanov G. M., Berezhetskaya N. K., Borzosekov V. D., Gritsinin S. I., Davydov, A. M., Shakhmatov, V. A. Synthesis of Nitrogen Oxides in a Subthreshold Microwave Discharge in Air and in Air Mixtures with Methane // Plasma Physics Reports. 2020. Vol. 46, no. 3. P. 311–319.

[8]. Spencer L.F., Gallimore A.D. CO₂ dissociation in an atmospheric pressure plasma/catalyst system: a study of efficiency // Plasma Sources Sci. Technol. 2012. Vol. 22. P. 15–19.

[9]. Artem'Ev K. V., Batanov G. M., Berezhetskaya N. K., Davydov A. M., Kossyi I. A., Nefedov V. I., Kharchev N. K. Subthreshold self-sustained discharge initiated by a microwave beam in a large volume of high-pressure gas // Journal of Physics: Conference Series. 2017. Vol. 907, no. 1. P. 214–217.

- [10]. Sennikov P. G., Kornev R. A., & Shishkin A. I. Preparation of Boron Carbide from BF_3 and BCl_3 in Hydrogen Plasma of Arc RF Discharge // *Plasma Chemistry and Plasma Processing*. 2017. Vol. 37, no. 4. P. 997–1008.
- [11]. Fridman A. *Plasma Chemistry*. Cambridge: Cambridge University Press, 2008.
- [12]. Фридман А. Л., Шолин Г. В. Физика химически активной плазмы с неравновесным колебательным возбуждением молекул // *Успехи физических наук*. 1981. Т. 134, № 2. С. 185–235.
- [13]. Gaponov A. V., Petelin M. I., Yulpatov V. K. The Induced radiation of excited classical oscillators and its use in high frequency electrons // *Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved., Radiofiz.* 1967. Vol. 10. P. 1414.
- [14]. Glyavin M. Y., Denisov G. G., Zapevalov V. E., Kuftin A. N., Luchinin A. G., Manuilov V. N., Morozkin M. V., Sedov A. S., Chirkov A. V. Terahertz gyrotrons: State of the art and prospects // *Journal of Communications Technology and Electronics*. 2014. Vol. 59, no. 8. P. 792-797.
- [15]. Litvak A. Freely localized gas discharges in microwave beams, in *Applications of High Power Microwaves* // Artech House, Boston. 1994. P. 145–167.
- [16]. Gildenburg V.B., Kim A.V. Ionization-thermal instability of an rf discharge in an electromagnetic wave // *Physics of Plasmas*. 1980. Vol. 6, no. 4. P. 496–499.
- [17]. Brodskii Y.Y., Venediktov I.P., Golubev S.V., Zorin V.G., Kossyi I.A. Nonequilibrium microwave discharge in air at atmospheric pressure // *Technical Physics Letters*. 1984. Vol. 10, no. 2. P. 77.
- [18]. Gritsinin S. I., Kossyi I. A., Silakov V. P., Tarasova N. M. The decay of the plasma produced by a freely localized microwave discharge // *Journal of Physics D: Applied Physics*. 1996. Vol. 29, no. 4. P. 1032–1034.
- [19]. Avetisov V., Gritsinin S., Kim A., Kossyi I., Kostinskiy A., Misakyan M., Nadezhdinskiy A., Tarasova N., Khusnutdinov A.D. Ionization collapse of rf plasma filament in dense gas // *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*. 1990. Vol. 51. P. 348.

Синцов Сергей Владиславович

**РАЗРЯД АТМОСФЕРНОГО ДАВЛЕНИЯ,
ПОДДЕРЖИВАЕМЫЙ В СФОКУСИРОВАННЫХ
КВАЗИОПТИЧЕСКИХ ПУЧКАХ
НЕПРЕРЫВНОГО МИЛЛИМЕТРОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ**

А в т о р е ф е р а т

Подписано к печати 5 октября 2020 г.
Формат $60 \times 90 \frac{1}{16}$. Усл. печ. л. 1,25.
Тираж 100 экз. Заказ № 36 (2020).

Отпечатано в типографии Института прикладной физики РАН
603950, Н. Новгород, ул. Ульянова, 46