

Роботу присвячено експериментальним дослідженням властивостей плазмово-рідинних систем на базі електричного розряду в газовому каналі з рідкою стінкою з додатковим збудженням ультразвукового поля в рідині. Показано, що наявність ультразвукового поля в рідинній фазі таких систем підвищує ефективність напрацювання азотистої кислоти та впливає на еволюцію компонентного складу випромінювання плазми.

1. Вступ

Плазмово-рідинні системи з поперечним розрядом атмосферного тиску можуть бути використані в таких технологіях, як синтез наночастинок, газифікація органічних відходів та інших [1–3]. Досить цікавим застосуванням подібних систем для вирішення проблем екології є реформування рідких вуглеводнів, та деструкція стійких токсичних вуглеводневих сполук у водних розчинах. Стимульоване плазмою реформування біопалив є перспективним для отримання збагаченого воднем синтез-газу, спалювання якого відбувається із суттєво меншим утворенням шкідливих сполук NO_x–SO_x. Стимульована плазмою деструкція складних молекулярних сполук у воді досить ефективна для очищення води від шкідливих органічних забруднень.

Газодинамічні плазмово-рідинні системи, що ґрунтуються на розрядах в газовому каналі з рідкою стінкою (DGCLW [7]), мають певні переваги перед іншими плазмово-рідинними системами. Ці переваги полягають в тому, що в таких системах збільшується ефективність взаємодії хімічно активних компонентів плазми з рідкою фазою завдяки збільшенню поверхні контакту плазми з рідиною. Також, потік газу, що формує газовий канал, примусово вносить частинки плазми в об'єм рідини. Це збільшує час взаємодії утворених у плазмі хімічно-активних агентів як з молекулами самої рідини, так і з молекулами розчинених в ній речовин.

Як відомо [8, 9], на хімічні процеси в розчинах стимулюючий вплив має збудження в рідині ультразвукового поля, інтенсивність якого перевищує поріг кавітації. Поєднання таких двох факторів, як плазмова та ультразвукова стимуляція хімічних процесів, в єдиній системі може привести до взаємного підсилення ефектів їх впливу. Так, наприклад, ультразвукова кавітація є відомим механізмом утворення мікропор в рідині. При накладанні на таку рідину різниці потенціалів навколо цих мікропор можуть виникати сильні електричні поля, в яких знижується поріг дисоціації молекул, що має вплинути на умови протікання хімічних реакцій. Кавітаційні мікронеоднорідності в рідині також можуть полегшувати умови пробою та впливати на протікання електричного розряду на ії поверхню. З іншого боку, ультразвукова стимуляція нетипових за нормальних умов хімічних реакцій в рідині може вплинути на склад середовища, в якому утворюється плазма, що може відобразитись на її властивостях.

Таким чином, плазмово-рідинні системи, що ґрунтуються на DGCLW-розрядах з додатковим збудженням ультразвукового поля є досить цікавими для вивчення та розробки. Ця робота присвячена експериментальним дослідженням властивостей саме таких систем.

2. Експериментальна установка та методика досліджень

Експериментальна установка для досліджень плазмово-рідинної системи, що ґрунтується на газовому розряді, зануреному в рідину з ультразвуковим полем, зображена на рис. 1. Вона складається

¹ Матеріали конференції III CESPC (23.08.2009 КНУ ім. Т. Шевченко).

з кварцового циліндра 1, герметично закритого з торців металевими фланцями. По геометричній осі циліндра крізь отвір у верхньому фланці в шар рідини 10 було введено циліндричний металевий електрод 3, оточений кварцовим ізолятором 4. Вздовж простору між зовнішньою боковою поверхнею електрода та внутрішньою боковою поверхнею циліндричного кварцового ізолятора подавали газ для створення газового каналу в рідині 11. Нижній металевий фланець 2, занурений у рідину, правив за другий електрод, до якого прикладали розрядну різницю потенціалів. В роботі розглянуто режим, коли негативний потенціал подавали на рідину. Таким чином, пробій газового розряду здійснювали між металевим електродом 3, та поверхнею рідини, що оточувала динамічний газовий канал. Крізь гумове ущільнення в центральному отворі фланця 2 вздовж оці циліндра в шар рідини було введено магнітострикційний ультразвуковий випромінювач 5. Резонансна частота випромінювача становила \sim 17 КГц. Збудження ультразвукового випромінювача здійснювали за допомогою лабораторного генератора звукової частоти та підсилювача потужністю 100 Вт. Досліджуваною рідиною була дистильована вода. Під час проведення досліджень струм на розряді підтримували постійним на рівні ~ 300 мА. Внаслідок того, що електропровідність дистиляту протягом часу експозиції плазмою зростала, напруга між електродами 2-3 змінювалась в межах 2,5-1,8 кВ. Інтенсивність ультразвукового випромінювання під час експериментів підтримували вище порога кавітації. Для створення газового каналу використовували повітря.

Параметри плазми досліджували за допомогою емісійної спектроскопії. Оптична вісь системи реєстрації емісійних спектрів прямувала крізь середину проміжку між електродом 2, та ультразвуковим випромінювачем 5. Випромінювання плазми проходило крізь шар робочої рідини вздовж оптичної осі системи та за допомогою кварцової лінзи 7 фокусувалось на вхідній щілині спектрометра 6.

Отримані таким чином емісійні спектри могли бути спотворені впливом на випромінювання плазми нестабільними в часі оптичними характеристиками рідини, що перебуває під дією розряду. Найбільш суттєвим фактором, що може впливати на розподіл випромінювання за довжиною хвилі, є зміна в часі спектрів поглинання робочої рідини внаслідок зміни її хімічного складу під дією плазми. Крім того, об'єм рідини під час протікання розряду дуже швидко заповнювався бульбашками газових продуктів електро-



Рис. 1. Схема експериментальної установка для досліджень плазмово-рідинної системи, що ґрунтується на газовому розряді, зануреному в рідину з ультразвуковим полем

літичного розкладання рідини. Проходження випромінювання крізь таке каламутне середовище також може відбиватись на вигляді емісійних спектрів.

Оскільки ці фактори впливають на випромінювання незалежно, вплив кожного з них можна дослідити окремо. Як відомо з [10] інтенсивність випромінювання I_r , що проходить крізь каламутну рідину, може бути описане рівнянням

$$I_r = I_0 \cdot 10^{-k \frac{C b d^3}{d^4 + \alpha \lambda^4}},$$
 (1)

де I_0 – інтенсивність випромінювання, що входить в рідину; C – концентрація центрів розсіювання; b – товщина прошарку рідини; d – середній діаметр центрів розсіювання; λ – довжина хвилі випромінювання; k та α – константи. Для системи, що наведена в цій роботі, центрами розсіювання є газові бульбашки. Оскільки їх характерний розмір суттєво більший за довжину хвилі – доданком $\alpha\lambda^4$ можна знехтувати. Таким чином, наявність газових бульбашок в прошарку рідини відзначається на емісійному спектрі як коефіцієнт ослаблення, що не залежить від довжини хвилі.

Для врахування впливу хімічного складу рідини, що змінюється, реєстрували спектри поглинання. Для цього випромінювання еталонного джерела світла 8 за допомогою кварцової лінзи 9 спрямовували вздовж оптичної осі крізь прошарок робочої рідини, та за допомогою кварцової лінзи 7, фокусували на вхідній щілині спектрометра 6. Сигнал з еталонного джерела реєстрували перед вмиканням розряду та безпосередньо після його вимкнення. Емісійний спектр реєстрували через фіксований проміжок часу після вмикання розряду. Протягом часу обробки робочої рідини плазмою та реєстрації емісійних спе-



Рис. 2. Типовий емісійний спектр плазми газового розряду, зануреного в рідину

ктрів, еталонне джерело світла тримали вимкненим. Було проведено серію дослідів для різних проміжків часу взаємодії плазми з рідиною в режимах з наявністю ультразвукового поля в рідині та його відсутністю.

3. Результати експериментальних досліджень

У результаті проведених дослідів було отримано емісійні спектри DGCLW-плазми, типовий вигляд яких наведено на рис. 2. В спектрах присутні лінії міді (матеріал електрода), лінії атомарного водню H_{α} та H_{β} серії Бальмера, молекулярні смуги другої позитивної системи азоту (С³П-В³П) та молекулярні смуги гідроксилу (А²Σ-Х²П). Було встановлено, що співвідношення різних компонент емісійного спектра змінюється зі зміною часу експозиції робочої рідини розрядом.

Методами спектрофотометрії були отримані абсорбційні спектри рідини, що перебувала під впливом DGCLW-плазми. Типовий вигляд цих спектрів наведено на рис. 3, а. Встановлено, що абсорбційні спектри поглинання однокомпонентні, відповідають смузі поглинання іона азотистої кислоти та залежно від наявності та відсутності ультразвукового поля в рідині свій вигляд не змінюють. Із зростанням часу експозиції спостерігалось монотонне зростання зареєстрованого піка поглинання. На рис. 3, в наведено залежності коефіцієнта поглинання на довжині хвилі 380,671 нм від часу експозиції дистиляту DGCLW-розрядом. Залежності було отримано для режимів наявності та відсутності ультразвукового поля в рідині. Наведені криві свідчать про те, що концентрація напрацьованої під дією розряду азотистої кислоти прямо пропорцій-



Рис. 3. Емісійні спектри дистильованої води, обробленої плазмою для різних інтервалів часу обробки (a), та залежність коефіцієнта поглинання на довжині хвилі 380,671 нм від часу обробки (b). Криві 1–7 на графіку (a) відповідають послідовному зростанню часу експозиції від 15 до 600 секунд. Сіра крива на графіку (b) відповідає режиму з присутністю ультразвуку в рідині, чорна крива – режиму з відсутністю ультразвуку

на часу експозиції плазмою і в присутності ультразвуку процес напрацювання іде більш ефективно.

З використанням отриманих залежностей коефіціснтів поглинання була проведена корекція емісійних спектрів на предмет впливу нестабільного хімічного складу робочої рідини. Крім того, з метою корекції впливу на емісійні спектри процесів розсіювання світла на газових бульбашках – інтенсивності всіх досліджуваних компонентів спектрів були пронормовані на інтенсивність атомарної лінії міді на довжині хвилі 578,913 нм.



Рис. 4. Залежності відносної інтенсивності молекулярної смуги гідроксилу в емісійних спектрах DGCLW-плазми, від часу обробки дистильованої води. Сіра крива відповідає режиму з ультразвуком, чорна – режиму без ультразвуку



Рис. 5. Залежності відносної інтенсивності молекулярної смуги 2⁺ системи азоту в емісійних спектрах DGCLW-плазми, від часу обробки дистильованої води. Сіра крива відповідає режиму з ультразвуком, чорна – режиму без ультразвуку

У результаті аналізу емісійних спектрів були отримані залежність відносної інтенсивності смуги гідроксилу (рис. 4), смуги другої позитивної системи азоту (рис. 5) та атомарної лінії H_{α} водню (рис. 6,*a*). Також за співвідношенням водневих ліній H_{α} та H_{β} було зроблено оцінку температури заселення $T_{\rm e}$ електронних станів водню. На рис. 6,*b* продемонстровано залежність цієї температури від часу експозиції.

Встановлено, що наявність ультразвуку по-різному впливає на поведінку різних компонент емісійних

ISSN 2071-0194. Укр. фіз. журн. 2010. Т. 55, №10



Рис. 6. Залежності відношення інтенсивності спектральної лінії водню H_{α} до інтенсивності спектральної лінії міді (a) та температури заселення електронних станів водню та міді T_e (b) в емісійних спектрах DGCLW-плазми від часу обробки дистильованої води. Сіра крива відповідає режиму з ультразвуком, чорна – без. Трикутні точки відображають температуру заселення атомів водню, круглі – міді

спектрів DGCLW-плазми. Так, з рис. 4 видно, що відносна інтенсивність випромінювання гідроксилу за відсутності ультразвуку немонотонно зростає зі збільшенням часу експозиції, а під дією ультразвуку досить швидко зменшується. Відносна інтенсивність випромінювання азоту (рис. 5) мало залежить від часу експозиції при відсутності ультразвуку та немонотонно змінюється, досягаючи максимуму на 360-й секунді експозиції в присутності ультразвуку. Відносна інтенсивність H_{α} зі збільшенням часу експозиції лінійно зростає (див. рис. 6,*a*) в обох режимах. Проте, наявність ультразвуку зменшує швидкість такого зростання в півтора раза.

За наявності зростання відносної інтенсивності випромінювання водню зростання температури заселення T_e його електронних станів не спостерігається, рис. 6, b. Наявність ультразвуку на поведінку T_e практично не впливає.

Важливо відзначити, що для всіх компонентів емісійних спектрів спостерігається дещо менша відносна інтенсивність випромінювання в присутності ультразвуку. Це може бути пояснено тим, що на частотах ~ 17 КГц ультразвук може поширюватися в повітрі. Більше того, стаціонарний контакт DGCLW-плазми з поверхнею рідини приводить до того, що різка границя між фазами перетворюється в перехідний шар, властивості якого можуть сприяти проникненню ультразвуку в газову фазу. Наявність ультразвукового поля в плазмі може підвищувати імовірність гасіння збуджених станів атомів внаслідок зіткнень, що приводить до зменшення середньої кількості актів випромінювання в одиницю часу. Таким чином, невелике зменшення загальної інтенсивності випромінювання DGCLW-плазми під дією ультразвуку може бути пов'язане з проникненням ультразвукового поля в плазмову фазу.

4. Висновки

У результаті проведеної роботи було показано:

Наявність ультразвукового поля в рідинній фазі плазмово-рідинних систем, що ґрунтуються на розряді в газовому каналі з рідкою стінкою підвищує ефективність напрацювання азотистої кислоти в робочій рідині приблизно в 1,5 раза.

Ультразвукове поле робочої рідини розрядів в газовому каналі з рідкою стінкою по-різному впливає на еволюцію компонентного складу випромінювання DGCLW-плазми. Так, в плазмі суттєво зменшується доля випромінювання молекул гідроксилу, по відношенню до випромінювання молекул азоту.

В плазмово-рідинних системах, що ґрунтуються на розряді в газовому каналі з рідкою стінкою спостерігається лінійне збільшення відносної інтенсивності атомарних ліній водню при збільшенні часу взаємодії плазми з дистильованою водою. Наявність ультразвукового поля зменшує швидкість такого зростання приблизно в 1,5 раза.

Наявність ультразвукового поля в рідинній фазі плазмово-рідинних систем, що ґрунтуються на роз-

ряді в газовому каналі з рідкою стінкою на температуру заселення електронних станів водню практично не впливає.

Роботу виконано за підтримки Міністерства освіти і науки України, проект № Ф29.1/042-2009.

- V. Chernyak, V. Naumov, V. Yukhymenko, V. Zrazhevskij, and I. Prisyazhnevych, in *Proceedings of the* 17-th International Symposium on Plasma Chemistry, Toronto, Canada, 7–12 August 2005, Contrib. Papers, edited by J. Mostaghimi et al. (2005), CD Paper C11.
- V. Chernyak, V. Naumov, A. Trokhymchuk, I. Prisyazhnevych, V. Yukhymenko, I. Babich, and Yu. Slyusarenko, Proceedings of the XVI-th Symposium on Physics of Switching Arc, Brno, Czech Republic, 5–9 September 2005, Contrib. Papers, edited by V. Aubrecht and J.Bartl, CD II: Invited Papers (2005), p. 223.
- V. Chernyak, V. Yukhymenko, I. Prisyazhnevych, Iu. Veremii, and V. Naumov, in *Proceedings of the 1-st Central European Symposium on Plasma Chemistry, Gdansk, Poland, 28–31 May 2006, Contrib. Papers,* edited by J. Mizeraczyk and M. Dors (2006), CD Paper O8.
- L. Bromberg, D.R. Cohn, A. Rabinovich, N. Alexeev, N. Samokhin, K. Nadidi, J. Palaia, and N. Margarit-Bell, *MIT Plasma Science & Fusion Center, Report JA-06-3*, (2006); http://www.psfc.mit.eduU.
- 5. V.Ya. Chernyak, NBC International 4, 55 (2003).
- V.I. Shapoval, V.Ya. Chernyak, V.V. Yukhymenko, V.V. Naumov, J. Mizeraczyk, and M. Dors, Visn. Kyiv. Univ. Ser. Fiz. Mat. 1, 296 (2007).
- Yu.P. Veremii, V.Ya. Chernyak, A.K. Trokhymchuk, Ya.V. Kondratyuk, and V.A. Zrazhevskij, Ukr. J. Phys., 51, 769 (2006).
- V. Velikodnyi, M. Berkova, V. Vorotinilin, V. Grishin, O. Kruchenko, V. Popov, E. Rychagov, O. Polotnyuk, A. Bykov, Ya. Dobryneths, B. Tolkunov, in *Abstracts of* the International Conference "Energy Efficiency-2007", 15–17 October 2007, Kyiv, Ukraine (2007), p. 91.
- 9. P.R. Gogate, Ultrason. Sonochem. 15, 1 (2008).
- A. Frydman, D.J. Caster, M. Schmal, and C.T. Campbell, J. Catalysis 157, 133 (1995); V.V. Dolgov, E.N. Ovanesov, and K.A. Shchetnikovich, *Photometry in Laboratory Practice* (Vital Diagnostiks, Saint Petersburg, 2004) (in Russian).

Одержано 25.02.10

ВЛИЯНИЕ УЛЬТРАЗВУКОВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА СВОЙСТВА ПЛАЗМЫ ГАЗОВОГО РАЗРЯДА, ПОГРУЖЕННОГО В ЖИДКОСТЬ

С.В. Ольшевский, Ок.В. Соломенко, В.Я. Черняк, Н.В. Беленок

Резюме

Работа посвящена экспериментальным исследованиям свойств плазмо-жидкостных систем на основе электрического разряда в газовом канале с жидкой стенкой с дополнительным возбуждением ультразвукового поля в жидкости. Показано, что наличие ультразвукового поля в жидкой фазе таких систем увеличивает эффективность наработки азотистой кислоты и влияет на эволюцию компонентного состава излучения плазмы.

INFLUENCE OF ULTRASONIC RADIATION ON THE PROPERTIES OF PLASMA IN A GAS DISCHARGE IMMERSED IN A LIQUID

 $S.V. \ Olszewski^1, \ Ok.V. \ Solomenko^1, \ V. Ya. \ Chernyak^1, \ N.V. \ Belenok^2$

¹Taras Shevchenko National University of Kyiv (2/5, Academician Glushkov Ave., Kyiv 03022, Ukraine; e-mail: chernyak_v@ukr.net),
²National Technical University of Ukraine
"Kyiv Polytechnic Institute" (37, Peremoga Ave., Kyiv 03056, Ukraine)

Summary

Experimental researches of the properties of plasma-liquid systems have been carried out by studying an electrical discharge in the gas channel with a liquid wall, with additional excitation of the ultrasonic field in a liquid. The ultrasound field in the liquid phase of such systems was demonstrated to enhance the nitrous acid yield and affect the composition evolution in the plasma radiation spectrum.