

УДК 533.082.76

## **ДИАГНОСТИКА ПЛОТНОЙ ХИМИЧЕСКОЙ РЕАГИРУЮЩЕЙ ПЛАЗМЫ МЕТОДОМ ВЫСОКОЧАСТОТНОЙ МОДУЛЯЦИИ ПОТЕНЦИАЛА ЗОНДА**

**АРАВИН Г. С., ВЛАСОВ П. А., КАРАСЕВИЧ Ю. К.,  
МАКОЛКИН Е. В., ПОЛЯНСКИЙ В. А.**

Предлагается методика диагностики химически реагирующей плазмы с помощью электрического зонда, работающего в режиме модуляции потенциала высокочастотным синусоидальным напряжением. Методика основана на использовании численного решения задачи об электрическом зонде, помещенном под отрицательным потенциалом в стационарную низкотемпературную плазму, которая образуется в смеси химически реагирующих молекулярных газов. Рассматриваются условия, при которых концентрация заряженных частиц в невозмущенной зондом области постоянна вследствие равновесия скоростей ионизации и рекомбинации.

Существующие методики диагностики плазмы высокого давления при помощи электрических зондов с модуляцией потенциала основаны на использовании приближенных аналитических решений задачи об импедансе зонда [1–4]. Сложность этой задачи связана с необходимостью расчета распространения слабых возмущений, вызываемых модуляцией потенциала, по сильно неоднородному состоянию среды в окрестности зонда. Вследствие этого процедура нахождения аналитического решения сопровождается большим количеством упрощающих предположений, справедливость которых для конкретных экспериментальных условий не всегда удается проконтролировать. Получающиеся при этом аналитические соотношения, которые связывают характеристики импеданса с параметрами плазмы, чрезвычайно сложны и громоздки и их невозможно разрешить в явном виде относительно искомых параметров плазмы. Фактически удается решить только прямую задачу – получить согласие между теоретическими и экспериментальными данными об импедансе путем подстановки в аналитические соотношения соответствующим образом подобранных значений параметров исследуемой в эксперименте среды [4].

Однако указанный результат свидетельствует лишь о справедливости математической модели, принимаемой для описания состояния плазмы в окрестности зонда. Решение обратной задачи, состоящей в определении параметров плазмы по измеренным в эксперименте данным об импедансе, требует дальнейших значительных упрощений, существенно ограничивающих диапазон применимости окончательных соотношений.

Ниже рассматривается другой подход к интерпретации результатов измерений импеданса зонда, основанный на использовании численного решения задачи о зонде в достаточно общей постановке. Исследуется при этом диапазон параметров плазмы, в котором приближенные аналитические решения [1–4] неприменимы. Использование такого подхода в условиях нестационарной химически неравновесной плазмы молекулярных газов позволило разработать методику определения эффективной скорости ионизации по данным о величине нестационарного зондового тока при фиксированном потенциале зонда [5, 6].

Сформулируем кратко постановку задачи о зонде, работающем в режиме высокочастотной модуляции потенциала, и метод численного решения.

Газ, содержащий молекулярные компоненты, при температурах порядка 2000–4000 К и давлениях порядка атмосферного представляет собой сложную по составу частично ионизованную плазму, в которой заряженные частицы (ионы разных сортов и электроны) образуются в результате процессов химической ионизации (типа  $A+B \rightleftharpoons AB^+ + e$ ), процессов термической ионизации при столкновениях нейтральных частиц, различного типа процессов перезарядки. Возможно также прилипание электро-

нов с образованием отрицательных ионов. Наличие в плазме ионов многих сортов существенно усложняет интерпретацию зондовых измерений. Заметим, однако, что в смесях молекулярных газов весьма распространена ситуация, когда в среде в результате перечисленных выше процессов образуется преобладающий сорт ионов. Например, в воздухе преобладает ион окиси азота  $\text{NO}^+$  [7], в метано-кислородной смеси наибольшую концентрацию имеет ион гидроксония  $\text{H}_3\text{O}^+$  [8].

Указанное обстоятельство позволяет использовать для решения задачи об импедансе зонда модель плазмы, содержащей один сорт положительных ионов с эффективной плотностью  $n_i$ , электроны с плотностью  $n_e$  и нейтральные частицы, плотность которых в окрестности зонда считается постоянной. Скорость образования заряженных частиц  $\omega$  описывается в рамках принятой модели двумя эффективными параметрами  $\omega = w - \alpha n_i n_e$ , где  $w$  — эффективная скорость ионизации,  $\alpha$  — коэффициент электрон-ионной рекомбинации. Значения этих параметров определяют равновесную квазинейтральную плотность заряженных частиц.

Система уравнений, описывающая в приближении сплошной среды распределения плотностей заряженных частиц и электрического потенциала  $\varphi$  в окрестности цилиндрического зонда, в безразмерных переменных имеет вид

$$\frac{\partial n_s^*}{\partial t^*} + \frac{\delta_s}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} r^* j_s^* = 1 - n_i^* n_e^* \quad (1)$$

$$\frac{\varepsilon}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} r^* \frac{\partial \varphi^*}{\partial r^*} = n_e^* - n_i^* \quad (2)$$

$$j_s^* = - \frac{\partial n_s^*}{\partial r^*} \mp n_s^* \frac{\partial \varphi^*}{\partial r^*}, \quad s = i, e \quad (3)$$

$$j^* = j_i^* - \frac{\delta_e}{\delta_i} j_e^* - \frac{\varepsilon}{\delta_i} \frac{\partial^2 \varphi^*}{\partial r^{*2} \partial t^*} \quad (4)$$

$$r^* = \frac{r}{R}, \quad t^* = \frac{t}{\tau_c}, \quad \varphi^* = \frac{e\varphi}{kT}, \quad n_s^* = \frac{n_s}{n_0}, \quad j_s^* = \frac{j_s}{j_{sd}}, \quad j^* = \frac{j}{j_{id}} \quad (5)$$

$$n_0 = \left( \frac{w}{\alpha} \right)^{1/2} \quad (5)$$

$$\tau_c = (\alpha w)^{-1/2}, \quad j_{sd} = kT b_s n_0 R^{-1}, \quad s = i, e.$$

Здесь  $R$  — радиус зонда,  $T$  — температура,  $k$  — постоянная Больцмана,  $e$  — заряд протона,  $j_s$ ,  $b_s$  — плотность электрического тока и коэффициент подвижности ионов ( $s=i$ ) и электронов ( $s=e$ ),  $j$  — плотность полного тока, регистрируемого зондом,  $\tau_c$  — характерное время измерения концентрации заряженных частиц за счет химических реакций рекомбинации и ионизации.

В уравнения (1)–(4) входят три безразмерных коэффициента:

$$\delta_s = \frac{\tau_c}{\tau_s}, \quad s = i, e, \quad \varepsilon = \frac{r_d^2}{R^2} \quad (6)$$

$$\tau_s = \frac{R^2}{D_s}, \quad D_s = \frac{kT b_s}{e}, \quad r_d^2 = \frac{kT}{4\pi e^2 n_0}$$

Здесь  $\tau_s$  — характерное время диффузии частиц сорта  $s$ ,  $r_d$  — дебаевский радиус.

Граничные условия

$$r^* = 1, \quad n_i^*(1, t^*) = n_e^*(1, t^*) = 0$$

$$\varphi^*(1, t^*) = \varphi_p^* + \Delta\varphi^* \sin(2\pi f^* t^*) \quad (7)$$

$$\varphi_p^*, \Delta\varphi^* = \text{const}, \Delta\varphi^* > 0$$

$$r^* = r_m^* (r_m^* \gg 1), \quad \frac{\partial \varphi^*}{\partial r^*} = 0, \quad s = i, e, \quad \varphi^*(r_m^*, t^*) = 0$$

Здесь  $\Delta\varphi^*$  — амплитуда переменной составляющей потенциала зонда,  $\varphi_p^*$  — постоянная составляющая потенциала,  $f^* = f\tau_c$ ,  $f$  — частота модуляции потенциала, значение  $r^* = 1$  соответствует поверхности зонда, выбор величины  $r_m^*$  определяется в численном решении условием независимости решения от значения  $r_m^*$ .

В качестве начального состояния среды берется стационарное решение задачи (1)–(4), (7) при  $\Delta\varphi^* = 0$ . Это решение получается численно. В дальнейшем рассматривается случай, когда  $\varphi_p^* < 0$ .

В уравнениях (1), (3) не учитываются конвективный перенос заряженных частиц и термодиффузия, пренебрегается также инерционными слагаемыми в соотношениях для плотностей токов компонент. Последнее обстоятельство накладывает ограничение на частоту модуляции потенциала зонда в виде неравенства  $f \ll v_i$ , где  $v_i$  — частота столкновений ионов. При записи правых частей уравнений неразрывности (1) учитываются процессы образования заряженных частиц в реакциях химической и термической ионизации и электрон-ионная рекомбинация, при этом скорость ионизации и коэффициент рекомбинации принимаются постоянными.

Задача (1)–(4), (7) решалась численно с использованием неявной по времени разностной схемы. Решение нелинейной системы разностных уравнений на каждом временном слое находилось при помощи итераций с применением метода матричной прогонки. Значение  $r_m^*$  подбиралось в процессе решения так, чтобы дальнейшее увеличение  $r_m^*$  не влияло (с заданной точностью) на решение. Величина шага по времени выбиралась в зависимости от частоты модуляции потенциала. Как правило, отношение шага по времени к периоду изменения потенциала было не больше  $5 \cdot 10^{-3}$ . Это обеспечивало определение величины сдвига фазы тока на зонд с погрешностью не более  $\pm 2^\circ$ .

Численное решение дает распределение величин  $n_i^*$ ,  $n_e^*$ ,  $\varphi^*$  в окрестности зонда в каждый момент времени. По этим распределениям вычисляется величина  $j^*$  и определяется зависимость от времени полного размерного тока на зонд  $I = 2\pi R L j_{id}^*$ , где  $L$  — длина зонда. Расчеты показывают, что в условиях, когда отношение  $|\Delta\varphi^*/\varphi_p^*| < 0,2$ , функцию  $j^*(t^*)$  можно с достаточной точностью аппроксимировать соотношением

$$j^*(t^*) = j_0^* + \Delta j^* \sin(2\pi f^* t^* + \psi), \quad \Delta j^* > 0 \quad (8)$$

где  $j_0^*$  — стационарное значение тока на зонд при  $\Delta\varphi^* = 0$ , соответствующее потенциалу  $\varphi_p^*$ ,  $\psi$  — сдвиг фазы между током на зонд и потенциалом,  $\Delta j^*$  — амплитуда переменной составляющей плотности тока.

Физическую картину работы высокочастотного зонда в плотной химически реагирующей плазме можно представить, анализируя изменение во времени структуры возмущенной зондом области. Рассмотрим с этой целью решение задачи, полученное при следующих значениях параметров:  $b_i = 3,9 \cdot 10^{-3} \text{ м}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ ,  $b_e = 2 \text{ м}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ ,  $\alpha = 3 \cdot 10^{10} \text{ м}^3/(\text{моль} \cdot \text{с})$ ,  $w = 1,66 \cdot 10^{-2} \text{ моль}/(\text{м}^3 \cdot \text{с})$ ,  $n_0 = 7,4 \cdot 10^7 \text{ моль}/\text{м}^3$ ,  $R = 1,5 \cdot 10^{-4} \text{ м}$ ,  $\varphi_p = -9 \text{ В}$ ,  $\Delta\varphi = 1 \text{ В}$ ,  $f = 10^5 \text{ Гц}$ . Эти данные соответствуют воздуху при температуре  $3 \cdot 10^3 \text{ К}$  и давлении  $0,1 \text{ МПа}$ . Заметим, что для таких условий упрощающие неравенства, при которых в [2–4] получены приближенные аналитические решения задачи об импедансе, не выполняются.

Расчеты показывают, что непосредственно у поверхности зонда образуется область положительного объемного заряда, протяженность которой достигает  $60 r_d$ , при этом  $r_d \approx 0,04 R$ . Размер возмущенной квазинейтральной области порядка  $5 R$ . Величина объемного заряда и протяженность занимаемой им области периодически изменяются при модуляции потенциала, влияя при этом на значение электрического поля и градиентов концентрации заряженных частиц на поверхности зонда. В соответ-

ствии с (4) плотность полного тока, регистрируемая высокочастотным зондом, состоит из тока проводимости (первые два слагаемых в правой части (4)) и тока смещения (последнее слагаемое). В численном решении имеется возможность найти отдельно каждую из этих составляющих и проанализировать их зависимость от частоты. С увеличением частоты модуляции разность фаз между током и потенциалом стремится к  $\pi/2$ , так как слой объемного заряда, приводящий к появлению эффективной емкости в цепи зонда, не успевает реагировать на изменение потенциала. Амплитуда колебаний тока смещения при этом растет, а тока проводимости падает.

Цель решения задачи об импедансе состоит в разработке методики определения параметров плазмы по измеренным на разных частотах значениям амплитуды тока  $\Delta I$  на зонд и сдвига фаз  $\psi$ . Из (1) — (4), (7) видно, что величины  $\psi$  и  $\Delta j^*$  (амплитуда  $\Delta j^*$  пропорциональна измеряемой амплитуде  $\Delta I$ ) полностью определяются значениями безразмерных параметров  $\delta_i$ ,  $\delta_e$ ,  $\epsilon$ ,  $\varphi_p^*$ ,  $\Delta\varphi^*$ ,  $f^*$ . Численное решение позволяет найти  $\Delta j^*$  и  $\psi$  для каждого набора значений этих параметров. Величины  $\varphi_p^*$ ,  $\Delta\varphi^*$  при известной температуре являются заданными, остальные величины определяются свойствами плазмы и заданной частотой  $f$ . Можно оценить область изменения указанных параметров, рассматривая допустимый диапазон значений  $w$ ,  $\alpha$ ,  $b_i$ ,  $b_e$  для различных газовых смесей при давлениях порядка 0,1 МПа и температурах в диапазоне  $(2-4) \cdot 10^3$  К. Предварительно отметим, что для газовых смесей, в которых отрицательно заряженные частицы — электроны, величина  $\delta_e \gg 1$ . Варьирование  $\delta_e$  в диапазоне  $5 \cdot 10^2 - 10^4$  слабо влияет, как показывают расчеты, на величины  $j_0^*$ ,  $\Delta j^*$  при  $\varphi_p < -1$  В, поэтому определение  $\delta_e$  по данным о  $\Delta j^*$  некорректно. Область изменения остальных параметров ограничим на основе оценок неравенствами

$$0,1 \leq w/w_0 \leq 50, 1 \leq \alpha/\alpha_0 \leq 100, 0,1 \leq b_i/b_0 \leq 10, 2 \leq T/T_0 \leq 4 \quad (9)$$

$$w_0 = 1,7 \cdot 10^{-2} \text{ моль}/(\text{м}^3 \cdot \text{с}), \alpha_0 = 3 \cdot 10^{10} \text{ м}^3/(\text{моль} \cdot \text{с}), b_0 = 4 \cdot 10^{-3} \text{ м}^2/(\text{В} \cdot \text{с}).$$

$$T_0 = 10^3 \text{ К}$$

Эти неравенства определяют достаточно широкий диапазон значений эффективных параметров  $w$ ,  $\alpha$ ,  $b_i$  и дают возможность применять полученные ниже соотношения для большого класса практически интересных частично понижованных смесей молекулярных газов.

Задаваемые величины  $\varphi_p$ ,  $\Delta\varphi$ ,  $f$  будем менять в диапазонах:  $-45 \text{ В} \leq \varphi_p \leq -1 \text{ В}$ ;  $0,5 \text{ В} \leq \Delta\varphi \leq 5 \text{ В}$ ;  $10^5 \text{ Гц} \leq f \leq 10^7 \text{ Гц}$ . В расчетах при каждом значении  $\varphi_p$  величина  $\Delta\varphi$  бралась так, чтобы отношение  $|\Delta\varphi/\varphi_p| < 0,2$ .

В соответствии с (9) изменение безразмерных величин  $\epsilon$ ,  $\delta_i$  происходит в интервалах  $10^{-4} < \epsilon < 2 \cdot 10^{-2}$ ;  $0,1 < \delta_i < 30$ .

Представим на основании расчетов амплитуду переменной составляющей плотности тока на зонд и сдвиг фазы между током и потенциалом в виде

$$\Delta j^* = [(\Delta j_p^*)^2 + (\Delta j_c^*)^2]^{1/2} \quad (10)$$

$$\psi = \arctg(\Delta j_c^*/\Delta j_p^*) \quad (11)$$

где  $\Delta j_c^*$ ,  $\Delta j_p^*$  — соответственно амплитуды плотности тока смещения и переменной составляющей плотности тока проводимости.

В рассматриваемом диапазоне изменения параметров результаты численного решения можно аппроксимировать соотношениями

$$\Delta j_p^* = 0,967\delta_i^{-0,2}\epsilon^{-0,06}|\varphi_p^*|^{-0,6}|\Delta\varphi^*|^{0,9}f^{*-0,1} \quad (12)$$

$$\Delta j_c^* = 8,12\delta_i^{-1,04}\epsilon^{0,74}|\varphi_p^*|^{-0,4}|\Delta\varphi^*|f^*$$

Соотношения (10) — (12) могут быть положены в основу методики определения эффективной скорости ионизации  $w$  и коэффициента подвиж-

ности ионов  $b_i$  по результатам измерения амплитуды переменной составляющей тока на зонд и сдвига фаз между током и потенциалом.

Запишем соотношения (12) в размерных переменных

$$\begin{aligned}\Delta I_p &= 2\pi R L j_{id} \Delta j_p^* = A_p f^{-0,1} \\ A_p &= 8,74 \cdot 10^4 R^{0,52} L \Delta \varphi^{0,9} b_i^{0,8} w^{0,68} T^{0,44} |\varphi_p|^{-0,6} \alpha^{-0,33} \\ \Delta I_c &= 2\pi R L j_{id} \Delta j_c^* = A_c f \\ A_c &= 2,615 \cdot 10^{-6} R^{0,6} L \Delta \varphi b_i^{-0,04} w^{0,15} T^{0,1} |\varphi_p|^{-0,4} \alpha^{-0,11}\end{aligned}\quad (13)$$

Здесь  $\Delta I_p$ ,  $\Delta I_c$  — амплитуды колебаний полных токов проводимости и смещения на зонд. Числовые коэффициенты в выражениях для  $A_p$ ,  $A_c$  соответствуют единицам измерения в системе СИ.

Разрешая соотношения (13), (14) относительно величин  $b_i$  и  $w$ , получим

$$\begin{aligned}b_i &= C_b \Delta I_p \Delta I_c^{-4,62} \\ C_b &= 1,47 \cdot 10^{-31} R^{2,24} L^{3,6} \Delta \varphi^{3,7} f^{1,72} |\varphi_p|^{-1,24} \alpha^{-0,12}\end{aligned}\quad (15)$$

$$\begin{aligned}w &= C_w \Delta I_p^{0,27} \Delta I_c^{5,43} \\ C_w &= 9,5 \cdot 10^{28} R^{-3,4} L^{-5,7} f^{-5,4} |\varphi_p|^{2,33} \alpha^{0,7} T^{-0,66} \Delta \varphi^{-5,67}\end{aligned}\quad (16)$$

Величины  $\Delta I_p$ ,  $\Delta I_c$  определяются по измеренным на заданной частоте  $f$  амплитуде переменной составляющей полного тока на зонд  $\Delta I$  и сдвигу фазы между изменением тока и потенциала  $\psi$  при помощи соотношений

$$\Delta I_p = \Delta I \cos \psi, \quad \Delta I_c = \Delta I \sin \psi \quad (17)$$

В случае, когда измерение сдвига фазы на частоте  $f$  затруднительно, величины  $\Delta I_p$ ,  $\Delta I_c$  можно определить по значениям  $\Delta I_1$ ,  $\Delta I_2$  амплитуды полного тока, измеренным на двух разных частотах  $f_1$  и  $f_2$ . Из (13), (14), (17) следует:

$$\begin{aligned}A_p &= D (\Delta I_1^2 f_2^2 - \Delta I_2^2 f_1^2)^{1/2}, \quad f_1 < f_2 \\ A_c &= D (\Delta I_2^2 f_1^{-0,2} - \Delta I_1^2 f_2^{-0,2})^{1/2}, \quad D = (f_2^2 f_1^{-0,2} - f_1^2 f_2^{-0,2})^{-0,5}\end{aligned}\quad (18)$$

Величины  $\Delta I_p$ ,  $\Delta I_c$  определяются по найденным значениям  $A_p$ ,  $A_c$  с помощью (13), (14) для соответствующей частоты. Соотношения (13) — (16), (18) позволяют оценить погрешность в определении величин  $b_i$ ,  $w$  при известной погрешности измерений  $\Delta I$  на каждой из частот. Так, при наличии погрешности измерений амплитуды тока в 10%, погрешность определения  $b_i$ ,  $w$  составляет примерно 100% при  $f = 10^6$  Гц.

Таким образом, с помощью соотношений (15), (16) при известных температуре и величине коэффициента рекомбинации можно определить коэффициент подвижности ионов и эффективную скорость ионизации в равновесной плазме. Для этого необходимо измерить на выбранной частоте амплитуду колебаний тока на зонд и сдвиг фазы между колебаниями тока и потенциала либо измерить амплитуду колебаний тока на двух разных частотах. Невозмущенная равновесная концентрация электронов  $n_0$  находится после этого из соотношения  $n_0 = (w/\alpha)^{1/2}$ .

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Tarstrup J., Heikkila W. J. The impedance characteristic of a spherical probe in a isotropic plasma // Radio Sci. 1972. V. 7. № 4. P. 493—502.
2. Бакшт Ф. Г. Низкочастотный импеданс зонда в плотной плазме // Журн. техн. физики. 1978. Т. 48. Вып. 10. С. 2019—2026.
3. Прозоров Е. Ф., Ульянов К. И. Импеданс плоского зонда в неизотермической локаль-

но-столкновительной плазме // Теплофизика высоких температур. 1983. Т. 21. № 3. С. 538–543.

4. Прозоров Е. Ф., Ульянов К. Н. Импеданс цилиндрического зонда в неизотермической локально-столкновительной плазме. II // Теплофизика высоких температур. 1983. Т. 21. № 6. С. 1179–1185.
5. Aravin G. S., Karasevich Yu. K., Vlasov P. A. et al. Use of electric probes for studying the parameters of a dense unsteady plasma with chemical reactions // Proc. XV Intern. Conf. on Phenomena in Ionized Gases, 1981. Minsk, 1981. Pt 2. P. 957–958.
6. Аравин Г. С., Власов П. А., Карасевич Ю. К. и др. Зондовый метод диагностики в плотной нестационарной покоящейся плазме при наличии неравновесных химических процессов // Химические реакции в неравновесной плазме / Под ред. Полака Л. С. М.: Наука, 1983. С. 70–89.
7. Лосев С. А., Полянский В. А. Неравновесная ионизация воздуха за фронтом ударной волны при скорости 5–10 км/с // Изв. АН СССР. МЖГ. 1968. № 1. С. 176–183.
8. Аравин Г. С., Власов П. А., Карасевич Ю. К. и др. Исследование механизма химической ионизации при высокотемпературном окислении метана в ударных волнах // Физика горения и взрыва. 1982. Т. 18. № 1. С. 49–57.

Москва

Поступила в редакцию  
27.IV.1987