

Study of Microwave Discharges in Air on the Basis of Extended Fluid-Dynamic Model

O. G. Napalkov¹, E. V. Kustova¹, A. I. Saifutdinov²

¹ Department of Hydroaeromechanics, Saint Petersburg University,
St. Petersburg, 199034, Russia

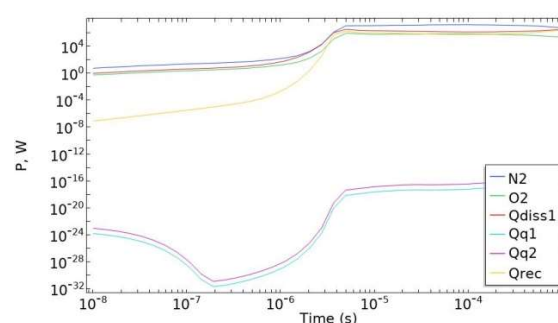
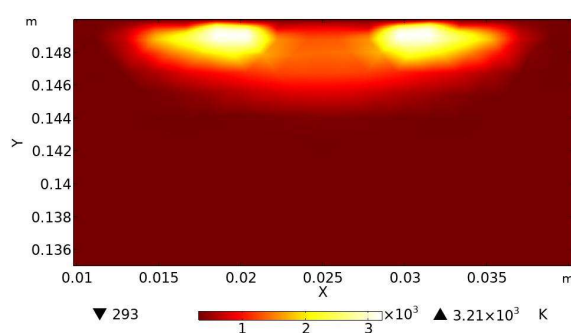
² Department of General Physics, Kazan National Research Technical University Named after
A. N. Tupolev, 420015, Kazan, Russia

oleg@np880.ru

Abstract

The present study is devoted to modeling a high-frequency plasma discharge in air based on an extended fluid-dynamic model. The aim of the work is to study the influence of various physico-chemical processes on the gas parameters. A numerical model was developed for propagation of electro-magnetic waves through the mixture of nitrogen and oxygen in a microwave plasma reactor, in which a discharge occurs due to microwave radiation with a frequency of 2.45 GHz. The model is based on a reduced set of plasma chemical reactions, which includes ionization of atoms and molecules of nitrogen and oxygen, excitation of electronic degrees of freedom, dissociation of molecules, their recombination and other chemical reactions that occur in plasma. Modeling was performed for two pressure values: 150 Torr and 760 Torr. Distribution fields of plasma parameters such as electron density, gas temperature, and heating source power for each mechanism are obtained. Results are analyzed and conclusions are drawn about the influence of pressure and fast heating mechanisms on plasma parameters. It is shown that nitrogen dissociation and elastic collisions of electrons with molecules make the most important contribution to the gas heating; on the opposite, reactions involving nitrogen molecule electronic states weakly affect the heating.

Keywords: microwave plasma, fluid-dynamic model, CFD, fast gas heating



Gas temperature distribution at a pressure of 760 Torr and $t=0.001$ s (left). Contribution of different gas heating mechanisms as functions of time (right)

УДК 533.9

Исследование СВЧ разряда в воздухе на основе расширенной гидродинамической модели

О. Г. Напалков¹, Е. В. Кустова¹, А. И. Сайфутдинов²

¹ Кафедра гидроаэромеханики Санкт-Петербургского государственного университета, Россия, Санкт-Петербург, 199034, Университетская набережная, д. 7–9

² Кафедра общей физики, КНИТУ-КАИ им. А.Н. Туполева, Россия, Казань, 420015, ул. Карла Маркса, 68

oleg@np880.ru

Аннотация

В работе представлена самосогласованная физико-математическая модель, описывающая СВЧ-разряд на поверхностной волне с частотой 2.45 ГГц в потоке воздуха (смеси кислорода и азота). Модель основана на расширенном гидродинамическом описании плазмы и включает в себя достаточно подробный набор элементарных процессов, в который входят ионизация атомов и молекул азота и кислорода, возбуждение электронных степеней свободы, диссоциация молекул, их рекомбинация и другие плазмохимические реакции. Расчёт был произведён для двух значений давления: 150 Торр и 760 Торр. Получены основные параметры СВЧ-разряда: концентрация электронов, температура газа, мощности источников нагрева для каждого механизма. На основе анализа полученных результатов были сделаны выводы о влиянии давления и механизмов быстрого нагрева на параметры плазмы. Показан существенный вклад диссоциации молекул азота и упругих соударений электронов с молекулами в общий нагрев газа и слабое влияние на нагрев реакций с изменением электронных состояний молекулы азота.

Ключевые слова: СВЧ-плазма, гидродинамическая модель, численное моделирование, быстрый нагрев

1. Введение

Неравновесная газоразрядная плазма является активной средой и используется для решения многочисленных задач, связанных с получением наноматериалов [1–3], экологическими приложениями [4], плазменной аэродинамикой [5–8], аналитической химией [9–10], и многих других современных проблем. Одним из перспективных источников неравновесной плазмы является сверхвысокочастотные (СВЧ) или микроволновые разряды в атомарных и молекулярных газах [11–12]. В таких разрядах, с одной стороны, исключается взаимодействие плазмы с электродами. С другой стороны, появляется возможность варьирования вкладываемой мощности в широком диапазоне и, как следствие, генерации плазмы с заданными свойствами, необходимыми для практики. Однако взаимосвязь различных физических процессов в СВЧ-разряде и различные масштабы времен их протекания делают экспериментальную диагностику плазмы таких разрядов затруднительной задачей. В связи с этим возникает необходимость в создании детальных самосогласованных моделей, которые бы в полной мере описывали СВЧ-разряды, а именно учитывали многомерный характер формирования плазмы, детальную физико-химическую кинетику, нагрев газа, а также электродинамическую структуру.

На сегодняшний день существуют различные подходы в моделировании газоразрядной плазмы. Это и различные варианты гидродинамических моделей, и полностью кинетические модели, и гибридные модели. Гидродинамический подход позволяет описать достаточно

большое количество явлений [13–20]. Этот факт совместно с относительной простотой в реализации гидродинамических моделей и вычислительной эффективностью сделал их наиболее популярными среди исследователей неравновесной газоразрядной плазмы.

Цель представленной работы заключается в численных исследованиях параметров плазмы СВЧ-разряда на поверхностной волне в потоке воздуха на основе расширенной гидродинамической модели в двумерном приближении.

2. Теоретическая модель

2.1. Основные уравнения

Для описания СВЧ электромагнитной волны в общем случае необходимо решать уравнения Максвелла

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}, \quad (1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, \quad (2)$$

где \mathbf{E} и \mathbf{H} – напряжённости электрического и магнитного полей; \mathbf{J} – плотность потока электронов; ε_0, μ_0 – электрическая и магнитная постоянные, соответственно. В рассматриваемом случае плоских волн и при следующих предположениях [17–18]:

- движением ионов по отношению к движению электронов можно пренебречь на временных масштабах СВЧ-излучения;
- плотность электронов можно считать постоянной на временных масштабах СВЧ-излучения.

Из уравнений Максвелла можно вывести уравнение Гельмгольца

$$\nabla \times (\mu_r^{-1} \nabla \times \mathbf{E}) - (\omega^2 \varepsilon \varepsilon_r - i\omega\sigma) \mathbf{E} = 0, \quad (3)$$

где $\sigma = e^2 n_e / [m_e (\nu_{el} + i\omega)]$ – электропроводность плазмы; ν_{el} – частота упругих столкновений электронов с нейтральными частицами; $f = \omega / (2\pi)$ – микроволновая частота; μ_r – магнитная проницаемость среды; ε_r – диэлектрическая проницаемость среды; $\omega_{pe} = (e^2 n_e / \varepsilon_0 m_e)^{1/2}$ – плазменная частота.

Решая это уравнение с соответствующими граничными условиями, можно определить энергию, передаваемую электронам от электромагнитного поля

$$Q_{rh} = \frac{1}{2} \operatorname{Re}(\bar{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{E}^*) \quad (4)$$

Развитие микроволнового разряда описывается системой уравнений расширенной гидродинамической модели. В данном исследовании газ предполагается покоящимся. Скорость изменения концентрации электронов n_e в покоящемся газе описывается уравнением непрерывности

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_e = R_e, \quad (5)$$

где Γ_e – вектор потока электронов, а R_e – их источник или сток. Выражения для источников запишутся через коэффициенты скоростей реакций, участвующих в изменении концентрации электронов

$$R_e = \sum_j x_j k_j N_n n_e \quad (6)$$

Здесь x_j – мольная доля рассматриваемого сорта частиц; k_j – константа реакции j ; N_n – концентрация нейтральных частиц.

Выражение для потока электронов можно получить из уравнения баланса импульса электронов, которое записывается следующим образом:

$$\frac{\partial}{\partial t}(n_e m_e \mathbf{u}_e) + \nabla \cdot n_e m_e \mathbf{u}_e \mathbf{u}_e^T = -(\nabla \cdot \mathbf{p}_e) + q n_e \mathbf{E} - n_e m_e \mathbf{u}_e \nu_m, \quad (7)$$

где m_e – масса электронов; \mathbf{u}_e – скорость электронов; \mathbf{p}_e – тензор давлений электронов; q – заряд электрона; ν_m – частота обмена импульсом. В случае Максвелловского распределения, используя уравнение состояния, тензор давлений можно записать следующим образом:

$$\mathbf{p}_e = n_e k_B T_e \mathbf{I}, \quad (8)$$

где k_B – постоянная Больцмана; T_e – температура электронов; \mathbf{I} – единичный тензор.

Исходя из этих предположений, можно вывести выражение для скорости электронов

$$\mathbf{u}_e = -\frac{k_B}{m_e \nu_m} \nabla T_e - \frac{k_B T_e}{n_e m_e \nu_m} \nabla n_e + \frac{q}{m_e \nu_m} \mathbf{E} \quad (9)$$

Здесь первое слагаемое описывает движение электронов под действием термодиффузии, второе слагаемое под действием диффузии и третье под действием электрического поля. Введем коэффициенты подвижности μ_e и диффузии D_e электронов

$$\mu_e = \frac{q}{m_e \nu_m}, \quad D_e = \frac{k_B T_e}{m_e \nu_m}, \quad (10)$$

Тогда, пренебрегая термодиффузионным слагаемым, можно получить выражение потока электронов в диффузионно-дрейфовом приближении

$$\Gamma_e = n_e \mathbf{u}_e = -(\mu_e \cdot \mathbf{E}) n_e - \nabla(D_e n_e) \quad (11)$$

Выражение для плотности энергии электронов запишется следующим образом:

$$\frac{\partial}{\partial t}(n_\varepsilon) + \nabla \cdot \Gamma_\varepsilon + \mathbf{E} \cdot \Gamma_e = S_{in} + S_{el} + Q_{rh}, \quad (12)$$

где Γ_ε – поток плотности энергии электронов, первое и второе слагаемые в правой части (12) описывают потерю или набор энергии за счёт упругих и неупругих соударений; Q_{rh} – внешний источник энергии (в данном случае от внешнего СВЧ электромагнитного поля), определяемый формулой (4); μ_ε – энергетическая подвижность электронов;

$$\Gamma_\varepsilon = -(\mu_\varepsilon \cdot \mathbf{E}) n_\varepsilon - \nabla(D_\varepsilon n_\varepsilon) \quad (13)$$

Неупругие потери энергии электронов определяются путём суммирования потерь энергии $\Delta\varepsilon_j$ по всем реакциям неупругих столкновений

$$S_{in} = \sum_j x_j k_j N_n n_e \Delta\varepsilon_j \quad (14)$$

Для реакций с участием электронов коэффициенты скоростей реакций вычисляются на основе функции распределения электронов по энергиям (ФРЭЭ) и данных о поперечных сечениях

$$k_k = \gamma \int_0^\infty \varepsilon \sigma_k(\varepsilon) f(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (15)$$

где σ_k – поперечное сечение столкновения; f – функция распределения. В данной работе используется Максвелловское распределение.

Для многокомпонентной смеси уравнения изменения концентраций тяжелой компоненты плазмы (ионов, возбужденных частиц и нейтралов) также записывались в диффузионно-дрейфовом приближении

$$\frac{\partial n_k}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_k = R_k, \quad (16)$$

где Γ_k – вектор потока концентрации тяжелых частиц плазмы сорта k ; R_k – является источником или стоком частицы сорта k в результате реакции для k -й компоненты.

Для описания самосогласованного поля в плазме записывалось уравнение Пуассона

$$\Delta \varphi = -\frac{e}{\varepsilon_0} \left(\sum_{k=1}^N z_k n_k - n_e \right), \quad \mathbf{E}_s = -\nabla \varphi, \quad (17)$$

где e – заряд электрона; z_k – безразмерное зарядовое число; φ – электрический потенциал.

Для учёта нагрева газа решается уравнение теплового баланса

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{q} = \alpha_p T \frac{\partial p}{\partial t} + Q, \quad (18)$$

где C_p – теплоёмкость; α_p – коэффициент термического расширения; Q – тепловой источник за счёт упругих соударений электронов с двухатомными азотом и кислородом, а также за счёт механизма быстрого нагрева.

2.2. Геометрия расчетной области и граничные условия

В работе рассматривалась двумерная расчетная область для описания СВЧ-разряда, представленная на рисунке 1. Горизонтальная область представляет собой диэлектрическую трубку, внутри которой прокачивается воздушная смесь азота и кислорода в массовом соотношении 76.85:23.15. Вертикальный элемент представляет собой волновод, по которому подается электромагнитное излучение с частотой 2.45 ГГц. В результате в диэлектрической трубке происходит микроволновой пробой и генерируется СВЧ-разряд.

Отметим, что уравнение Гельмгольца решалось во всей рассматриваемой области, а уравнения расширенной гидродинамической модели в горизонтальной области.

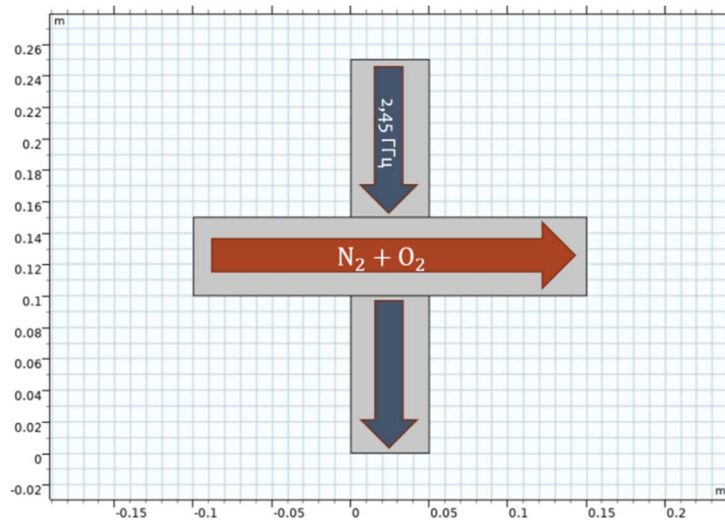


Рис. 1. Геометрическая модель плазменного реактора

Граничные условия для волнового уравнения задаются на металлических поверхностях волновода

$$\mathbf{n} \times \tilde{\mathbf{E}} = 0 \quad (19)$$

На диэлектрических поверхностях трубки и ее открытых концах ставится условие рассеяния второго порядка

$$\mathbf{n} \times (\nabla \times \tilde{\mathbf{E}}) - ik \mathbf{n} \times (\tilde{\mathbf{E}} \times \mathbf{n}) - \frac{1}{2ik} \nabla \times (\mathbf{nn} \cdot (\tilde{\mathbf{E}} \times \mathbf{n})) = 0 \quad (20)$$

В верхней части прямоугольного волновода, используемого для ввода СВЧ-энергии, был установлен идеальный источник TE_{10} с заданной мощностью и частотой. Математически источник построен таким образом, что отраженная волна не взаимодействует с падающей волной, генерируемой источником.

Для уравнений расширенной гидродинамической модели вводятся граничные условия на стенках трубки для концентраций электронов, тяжелых частиц плазмы, плотности энергии электронов, температуры газа, потенциала электрического поля и температуры газа следующим образом:

$$\mathbf{n} \cdot \Gamma_e|_{wall} = \frac{v_{eth} n_e}{4}, \quad \mathbf{n} \cdot \Gamma_k|_{wall} = \frac{v_{kth} n_k}{4}, \quad (21)$$

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{Q}_\varepsilon|_{wall} = \frac{v_{eth} n_e (2k_B T_e)}{4}, \quad (22)$$

$$\varphi|_{wall} = 0, \quad (23)$$

$$T|_{wall} = T_0 \quad (24)$$

Здесь $v_{eth} = \sqrt{8k_B T_e / \pi m_e}$ и $v_{kth} = \sqrt{8k_B T_k / \pi M_k}$ – средние тепловые скорости электронов и атомов азота соответственно (T в эВ). Условия непрерывности уравнений расширенной гидродинамической модели предполагалось выполненным на открытой границе диэлектрической трубки

$$\mathbf{n} \cdot \Gamma_e|_{open} = 0, \quad \mathbf{n} \cdot \Gamma_k|_{open} = 0, \quad (25)$$

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{Q}_\varepsilon|_{open} = 0, \quad (26)$$

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{E}|_{open} = 0, \quad (27)$$

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{q}|_{open} = 0, \quad T_v|_{open} = T_0 \quad (28)$$

В данной постановке задача решалась численно в пакете COMSOL Multiphysics.

2.3. Плазмохимия

В расчетах воздух рассматривался как смесь молекулярного кислорода O_2 и молекулярного азота N_2 , которая в ходе протекания плазмохимических реакций превращается в смесь нейтральных и заряженных частиц. На сегодняшний день существует достаточно большое число публикаций, посвященных плазмохимическим реакциям в воздухе, рекомендуемым к использованию при различных условиях горения разрядов [21–26]. Количество реакций в этих работах варьируется от нескольких единиц до нескольких сотен. Широко используемым и максимально охватывающим является набор из работы [21]. При этом большая часть работ, посвященных исследованию разрядов в воздухе, учитывает наборы плазмохимических реакций, тем или иным образом редуцированные из [21]. В [21] набор элементарных процессов включает 445 реакции, в которых участвует 46 химических компонентов (включая электрон) [21]. Можно выделить следующие реакции:

- Неупругие взаимодействия с электронами (возбуждение, ионизация и диссоциация);
- Ассоциативная ионизация;
- Рекомбинация положительных ионов с электронами;
- Прилипание и отлипание электронов;

- «Тушение» возбуждённых частиц;
- Конверсия ионов;
- Рекомбинация между положительными и отрицательными ионами;
- Другие реакции между нейтральными компонентами.

В данной работе используется сокращённый набор на основе [27], состоящий из 55 реакций, в которых участвуют 20 компонентов (включая электрон). Список реакций и коэффициенты их скорости представлены в таблице 1.

Реакции с участием электронов взяты из [28]. The Plasma Data Exchange Project – проект по сбору наиболее востребованных данных о различных плазмохимических процессах. Для данной работы будут использованы данные поперечных сечений взаимодействия электронов с атомами и молекулами азота и кислорода в их нейтральном, возбуждённом и ионизированном состояниях.

Уравнения с участием тяжёлых компонент и их коэффициенты скорости были взяты из следующих статей [21, 29].

Нагрев газа реализуется за счёт передачи энергии при упругом столкновении электронов с двухатомными азотом и кислородом, а также за счёт реализации механизма быстрого нагрева газа [11]. В работах по исследованию нагрева газа в воздухе было показано, что в мощных электрических полях основной вклад в быстрый нагрев вносят реакция диссоциации молекулы N_2 , а также реакции с участием тушения возбуждённых состояний азота и реакции рекомбинации [4]:

1. $N_2 + e \rightarrow N + N + e$
2. $N_2(A) + N_2(A) \rightarrow N_2(C) + N_2$
3. $N_2(A) + N_2(A) \rightarrow N_2(B) + N_2$
4. $N_2^+ + e \rightarrow N + N$

Таблица 1

Список реакций, моделируемых в работе

№	Реакция	Константа скорости ($\frac{1}{c}, \frac{cm^3}{c}, \frac{cm^6}{c}$)	Источник
1	$e + N_2 \rightarrow e + N_2$	Расчёт из ФРЭЭ ¹	[28]
2	$e + N_2 \rightarrow e + N_2(A)$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
3	$e + N_2 \rightarrow e + N_2(B)$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
4	$e + N_2 \rightarrow e + N_2(a)$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
5	$e + N_2 \rightarrow e + N_2(C)$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
6	$e + N_2 \rightarrow e + e + N_2^+$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
7	$e + N_2^+ \rightarrow N + N$	$1.8 \times 10^{-13} (300/T_e)^{0.15}$	[21,29]
8	$e + O_2 \rightarrow e + O_2$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
9	$e + 2O_2 \rightarrow O_2 + O_2^-$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
10	$e + O_2 \rightarrow e + e + O_2^+$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
11	$e + O_2 \rightarrow O + O + e$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
12	$e + O_2 \rightarrow O^- + O$	Расчёт из ФРЭЭ	[28]
13	$e + O_2^+ \rightarrow O + O$	$2.97 \times 10^{-9} T_e^{-0.7}$	[21,29]

¹ ФРЭЭ – функция распределения электронов по энергии.

14	$e + O \rightarrow O(^1D) + e$	Расчёт из ФРЭЭ	[21,29]
15	$O + O_2^- \rightarrow O_3 + e$	1.5×10^{-10}	[21,29]
16	$O + O^- \rightarrow O_2 + e$	5×10^{-10}	[21,29]
17	$O + O_3^- \rightarrow 2O_2 + e$	1.4×10^{-10}	[21,29]
18	$N_2 + O_2^- \rightarrow O_2 + N_2 + e$	$1.9 \times 10^{-12} (T/300)^{0.5} \exp(-4990/T)$	[21,29]
19	$O_2 + O_2^- \rightarrow 2O_2 + e$	2×10^{-10}	[21,29]
20	$O + O_3 \rightarrow 2O_2$	$2 \times 10^{-11} \exp(-2300/T)$	[21,29]
21	$O + 2O_2 \rightarrow O_3 + O_2$	$7.6 \times 10^{-34} (T/300)^{-1.9}$	[21,29]
22	$O + O_2 + N_2 \rightarrow O_3 + N_2$	$5.8 \times 10^{-34} (T/300)^{-2.8}$	[21,29]
23	$O + O_2 + O_3 \rightarrow 2O_3$	$1.5 \times 10^{-34} \exp(750/T)$	[21,29]
24	$2O + O_2 \rightarrow O_3 + O$	$2.15 \times 10^{-34} \exp(345/T)$	[21,29]
25	$N_2(A) + O_2 \rightarrow N_2 + 2O$	2.54×10^{-12}	[21,29]
26	$N_2(A) + O_2 \rightarrow N_2O + O$	7.8×10^{-12}	[21,29]
27	$N_2(A) + O_2 \rightarrow N_2 + O_2$	1.29×10^{-12}	[21,29]
28	$N_2(B) + N_2 \rightarrow N_2(A) + N_2$	3×10^{-11}	[21,29]
29	$N_2(B) + O_2 \rightarrow N_2 + 2O$	3×10^{-10}	[21,29]
30	$N_2(A) + N_2(A) \rightarrow N_2(C) + N_2$	1.6×10^{-16}	[21,29]
31	$N_2(A) + N_2(A) \rightarrow N_2(B) + N_2$	3×10^{-16}	[21,29]
32	$N_2(a) + N_2 \rightarrow N_2(B) + N_2$	2×10^{-13}	[21,29]
33	$N_2(a) + O_2 \rightarrow N_2 + 2O$	2.8×10^{-11}	[21,29]
34	$N_2(C) \rightarrow N_2(B)$	3×10^7	[21,29]
35	$N_2(C) + N_2 \rightarrow N_2(a) + N_2$	1×10^{-11}	[21,29]
36	$N_2(C) + O_2 \rightarrow N_2 + 2O$	3×10^{-10}	[21,29]
37	$O(^1D) + N_2 \rightarrow O + N_2$	$1.8 \times 10^{-11} \exp(107/T)$	[21,29]
38	$O(^1D) + O_2 \rightarrow O + O_2$	$6.4 \times 10^{-12} \exp(67/T)$	[21,29]
39	$2N_2 + O_2^+ \rightarrow N_2 + N_2O_2^+$	$9 \times 10^{-31} (T/300)^{-2}$	[21,29]
40	$N_2 + N_2O_2^+ \rightarrow 2N_2 + O_2^+$	$1.1 \times 10^{-6} (300/T)^{5.3} \exp(-2357/T)$	[21,29]
41	$2O_2 + O_2^- \rightarrow O_2 + O_4^-$	$3.5 \times 10^{-31} (300/T)$	[21,29]
42	$O_2 + N_2 + O_2^- \rightarrow N_2 + O_4^-$	$3.5 \times 10^{-31} (300/T)$	[21,29]
43	$O + O_2^- \rightarrow O_2 + O^-$	3.3×10^{-10}	[21,29]
44	$O + O_3^- \rightarrow O_2 + O_2^-$	3.2×10^{-19}	[21,29]
45	$O_2 + N_2 + O^- \rightarrow N_2 + O_3^-$	$1.1 \times 10^{-30} (300/T)$	[21,29]
46	$2O_2 + O^- \rightarrow O_2 + O_3^-$	$1.1 \times 10^{-30} (300/T)$	[21,29]
47	$N_2 + O_4^- \rightarrow O_2 + N_2 + O_2^-$	$1 \times 10^{-9} \exp(-1044/T)$	[21,29]
48	$O_2 + O_4^- \rightarrow O_2 + O_2 + O_2^-$	1×10^{-9}	[21,29]
49	$O_2^- + O_2^+ \rightarrow 2O_2$	$2 \times 10^{-7} (300/T)^{0.5}$	[21,29]
50	$O^- + O_2^+ \rightarrow O + O_2$	$2 \times 10^{-7} (300/T)^{0.5}$	[21,29]

51	$O_3^- + O_2^+ \rightarrow O_3 + O_2$	$2 \times 10^{-7} (300/T)^{0.5}$	[21,29]
52	$O_2^- + O_2^+ \rightarrow O_2 + 2O$	10^{-7}	[21,29]
53	$O_3^- + O_2^+ \rightarrow O_3 + 2O$	10^{-7}	[21,29]
54	$O_2 + O_2^- + O_2^+ \rightarrow 3O_2$	$2 \times 10^{-25} (300/T)^{2.5}$	[21,29]
55	$N_2 + O_2^- + O_2^+ \rightarrow 2O_2 + N_2$	$2 \times 10^{-25} (300/T)^{2.5}$	[21,29]

3. Результаты

Численные расчеты были рассмотрены для двух случаев. В первом предполагалось давление газа 150 Торр и учитывался нагрев газа только за счёт упругих соударений, а во втором – при атмосферном давлении с учётом механизмов быстрого нагрева газа. В момент времени $t = 0$ затравочные электроны начинают движение под действием внешнего сверхвысокочастотного электрического поля, создаваемого магнетроном. После этого происходит пробой, при котором резко увеличивается концентрация электронов и формируется плазмод. Рассмотрим подробнее полученные результаты.

На рис. 2 приведены распределения концентрации электронов момент времени $t = 0.001$ с. В обоих случаях плазмод образуется в верхней части трубки вблизи волновода. В первом случае плазмод имеет непрерывную форму, а во втором в случае при атмосферном давлении он имеет структурированную форму с двумя ярко выраженными максимумами. При давлении 760 Торр максимальная концентрация электронов составляет $\sim 9 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$, тогда как при давлении 150 Торр максимальная концентрация достигает значения $\sim 3 \times 10^{19} \text{ м}^{-3}$. Разницу в площади плазмода можно объяснить тем, что в случае низкого давления длина свободного пробега в газе выше, и СВЧ-излучение может глубже пройти в среду, в то время как при атмосферном давлении распространение излучения преграждается областью с плотностью электронов, превышающей критическую.

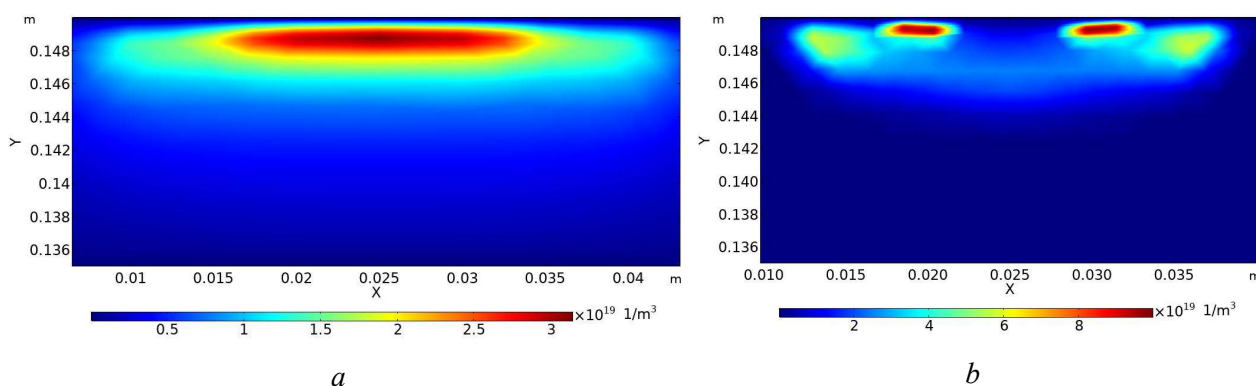


Рис. 2. Распределение плотности электронов – давление 150 Торр (a); давление 760 Торр (b)

На рис. 3 показаны распределения напряжённости электрического поля в момент времени $t = 0.001$ с. Напряжённость электрического поля в обоих случаях резко падает, проходя через область с газом. Это обусловлено тем, что концентрация электронов достигает критического значения для данной частоты, и значительная часть внешнего СВЧ электромагнитного поля начинает поглощаться плазмодом, тем самым происходит перераспределение напряженности электрического поля.

На рис. 4 представлены распределения температуры газа в момент времени $t = 0.001$ с. При низком давлении максимальная температура газа составила $\sim 850^\circ\text{K}$, а при атмосферном давлении она достигает $\sim 3210^\circ\text{K}$. Таковую разницу в нагреве можно объяснить более эффективным поглощением энергии плазмодом со стороны внешнего СВЧ-электромагнитного поля и учетом механизмов быстрого нагрева газа. В экспериментальной работе [31]

было показано, что температура газа в сформированном СВЧ-разряде находится в пределах $3000 \div 4000^\circ\text{K}$, однако, чтобы можно было опираться на эти данные, необходимо учесть движение газа в трубке.

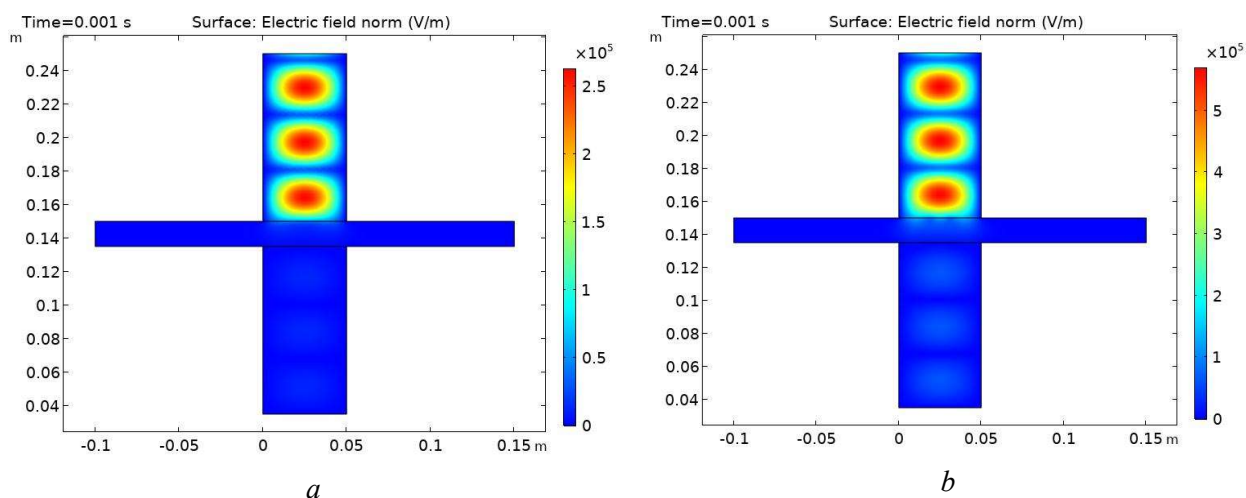


Рис. 3. Распределение напряжённости электрического поля – давление 150 Торр (a); давление 760 Торр (b)

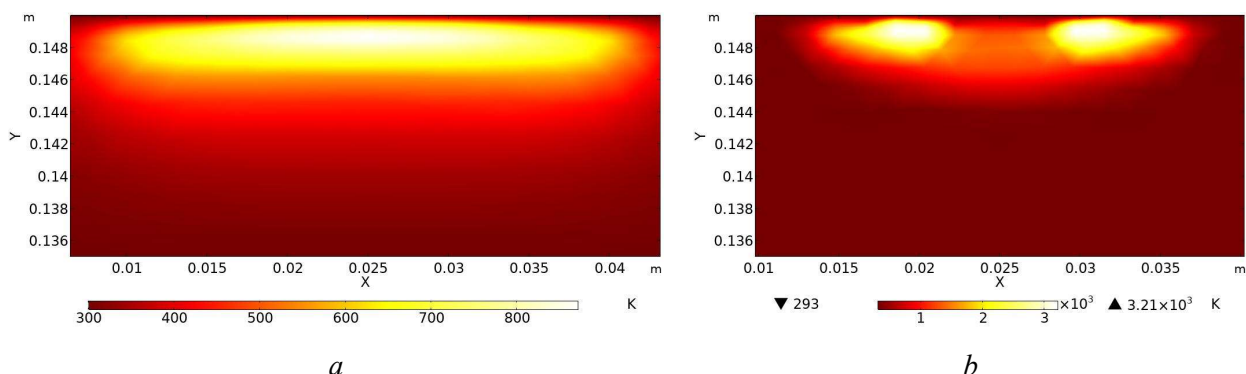


Рис. 4. Распределение температуры газа – давление 150 Торр (a); давление 760 Торр (b)

Далее рассмотрим, как меняются параметры плазмы с течением времени в случае атмосферного давления. На рис. 5 показана динамика распределения концентрации электронов в различные моменты времени. Видно, что с течением времени плазмоид вытягивается в форме дуги вблизи поверхности диэлектрической трубки на границе с волноводом. При этом образуется два ярко выраженных максимума. После вытягивания плазмоида на максимальную длину, равную ~ 2 см и сопоставимую с размером волновода, в центре образуются новые максимумы концентрации электронов.

На рис. 6 показано изменение распределения температуры газа с течением времени. Область нагрева постепенно расширяется вдоль трубки, повторяя движение плазмоида. При этом наиболее горячие точки соответствуют максимумам концентрации электронов.

На рис. 7 для наглядности показано изменение максимальной температуры газа с течением времени. Видно, что на временах порядка от нескольких микросекунд до 10^{-4} с наблюдается увеличение температуры газа до максимальной температуры 800°K , а в диапазоне времён с $\sim 10^{-4}$ до 10^{-3} с происходит резкое возрастание максимальной температуры газа до 3200°K . Если посмотреть на распределения плотности электронов, плотности молекул N_2 и температуры, то можно заметить, что максимальная температура достигается в максимумах

плотности электронов и концентрации молекул, из чего можно сделать вывод о высоком локальном вкладе обоих механизмов нагрева.

На рис. 8 показаны осреднённые значения мощности источников различных механизмов быстрого нагрева газа с течением времени. Под N_2 и O_2 обозначены вклады в нагрев газа в результате упругих соударений электронов с молекулами газа, соответственно азота и кислорода, Q_{diss1} , Q_{q1} , Q_{q2} , Q_{rec} – это реакции механизмов быстрого нагрева.

Наибольший вклад в нагрев газа оказывают соударения электронов с двухатомными молекулами азота (N_2).

Второй по величине вклад оказывает выделение энергии в результате реакции диссоциации молекулы азота (Q_{diss1}), третий – в результате упругих соударений электронов с молекулами кислорода (O_2). Четвёртая реакция из механизма быстрого нагрева (Q_{rec}) сначала не оказывает особого влияния, но с увеличением числа ионов её вклад в нагрев становится сопоставим с другими процессами. Реакции изменения электронных состояний молекул азота (Q_{q1} , Q_{q2}) вносят незначительный вклад в нагрев.

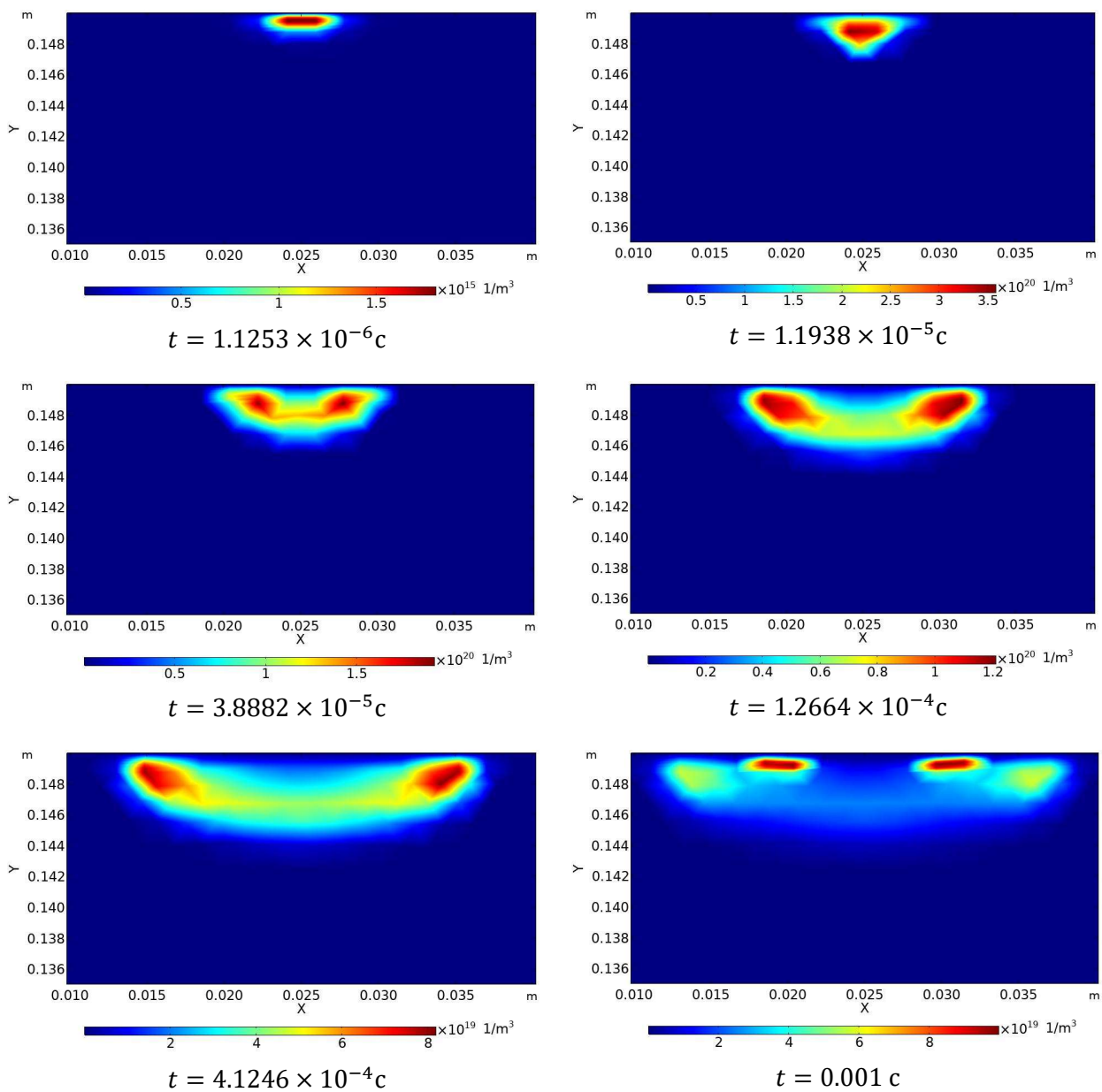


Рис. 5. Изменение распределения плотности электронов с течением времени

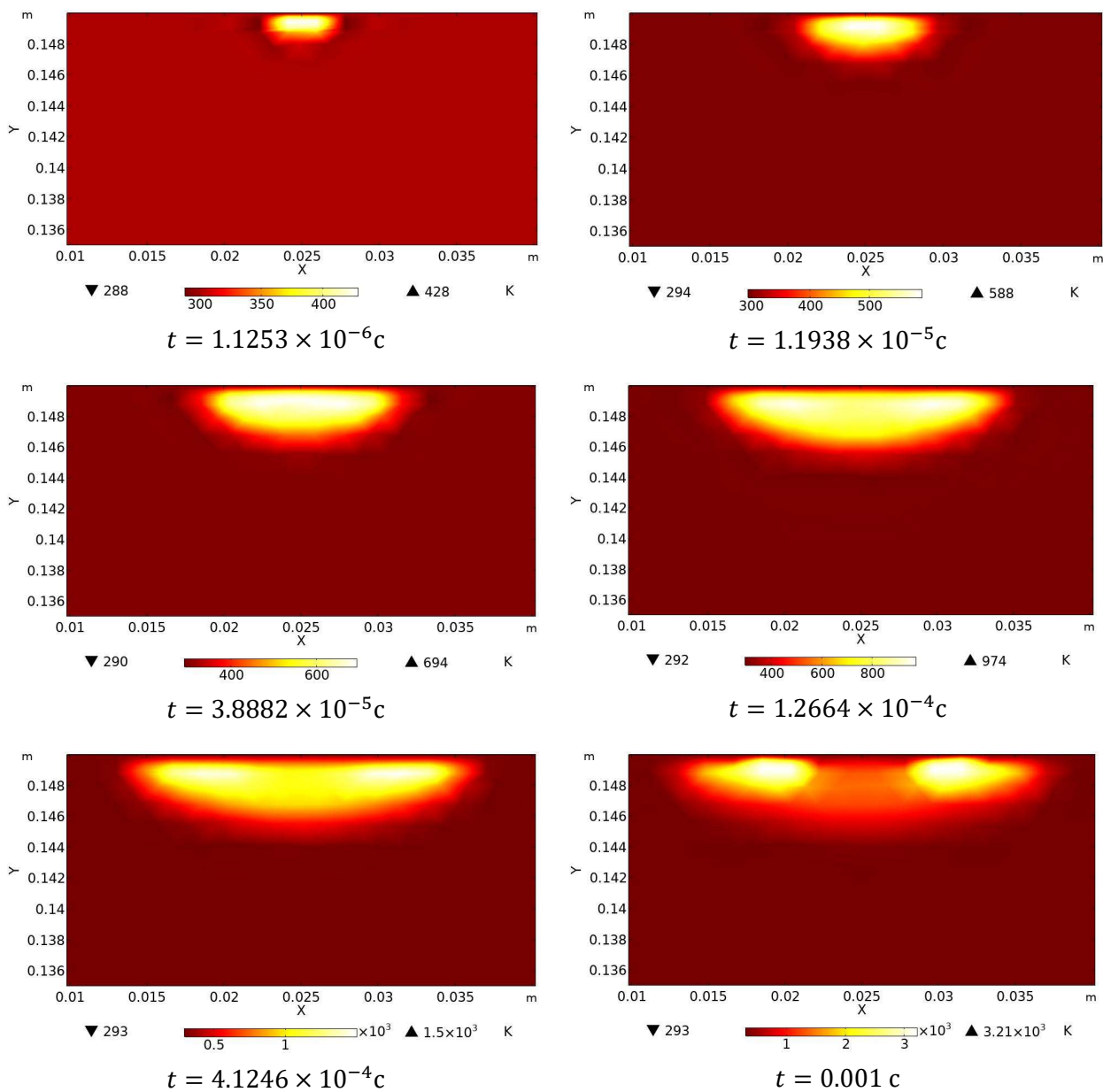


Рис. 6. Изменение распределения температуры газа с течением времени

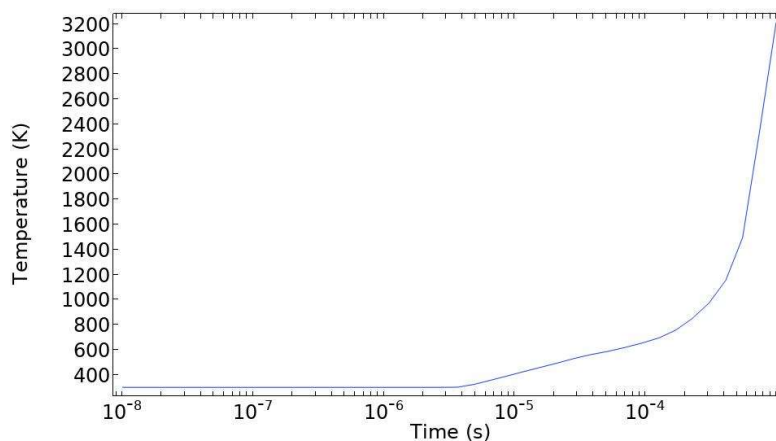


Рис. 7. Изменение максимальной температуры газа с течением времени

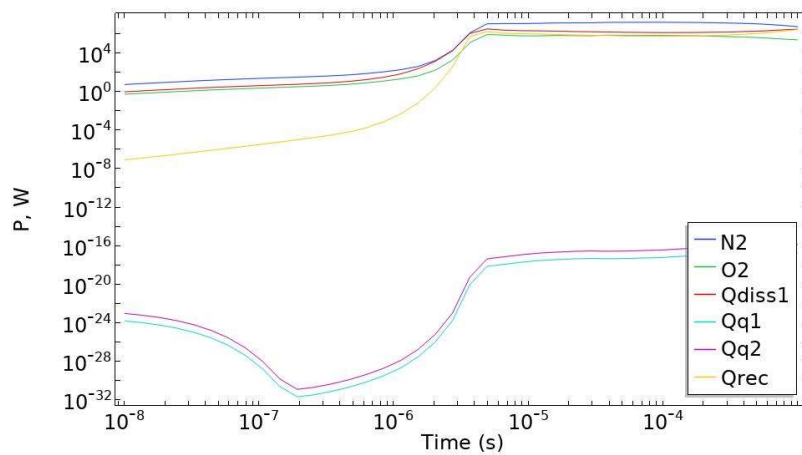


Рис. 8. Вклад реакций механизмов нагрева газа с течением времени

На рис. 9 показаны распределения концентрации нейтральных молекул N_2 и O_2 в момент времени $t = 0.001$ с. В области разряда наблюдается их снижение в результате нагрева газа согласно уравнению состояния. Особенно сильный провал для азота наблюдается в точках, соответствующих максимумам концентрации электронов.

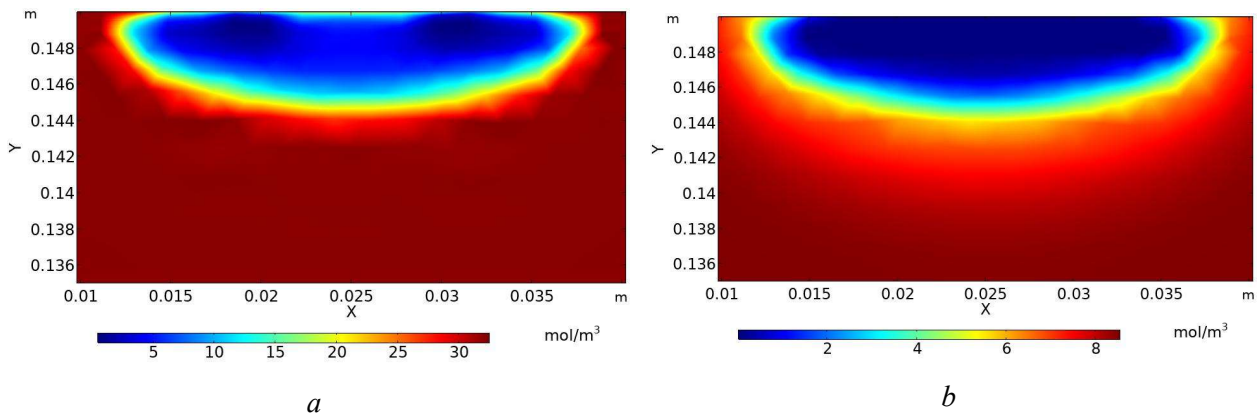


Рис. 9. Распределение концентраций – N_2 (a); O_2 (b)

На рис. 10 показаны концентрации для атомов N и O в момент времени $t = 0.001$ с. В этой же области происходит возрастание концентраций атомарных азота и кислорода, что обусловлено большой скоростью реакций диссоциации.

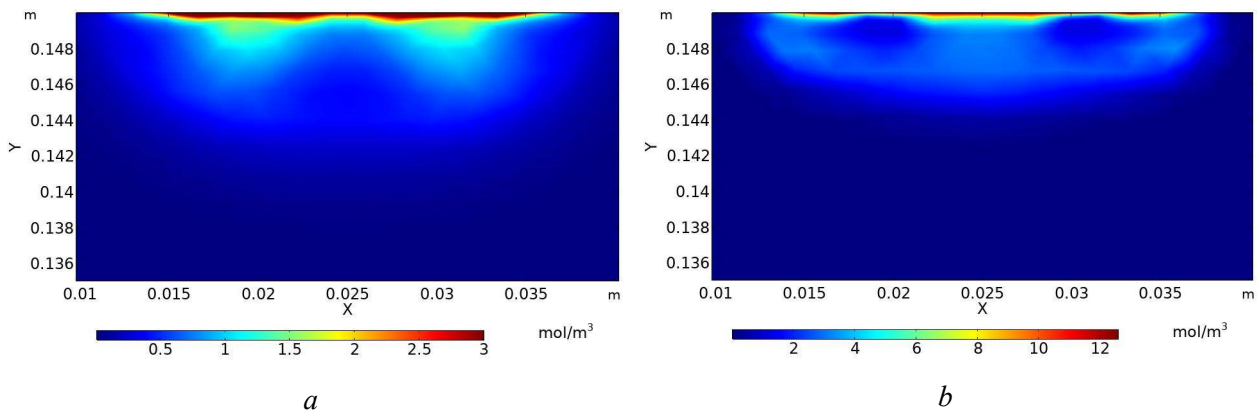


Рис. 10. Распределение концентраций – N (a); O (b)

На рис. 11 показано распределение концентраций ионов. Распределение концентраций как положительных, так и отрицательных ионов азота и кислорода повторяют движение плазмоида. При этом, максимальная концентрация ионов молекул азота достигается в зарождающихся очагах максимумов электронов, когда для ионов кислорода такое поведение не наблюдается. Необходимо отметить, что доминирующим сортом ионов является ион молекулярного азота, его концентрация ($1.05 \times 10^{20} \text{ 1/м}^3$) сравнима с концентрацией электронов, а концентрация молекулярного кислорода достигает значения $6.37 \times 10^{19} \text{ 1/м}^3$ или $1.06 \times 10^{-4} \text{ моль/м}^3$.

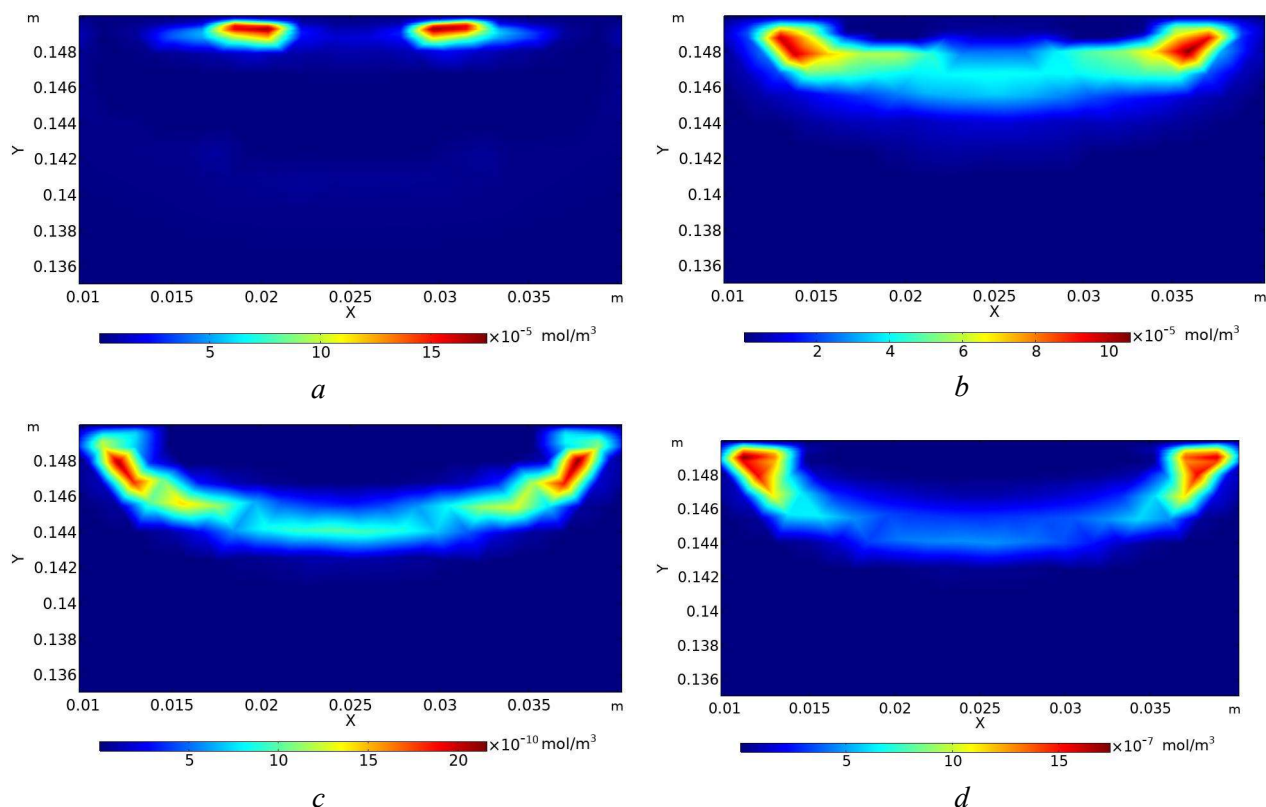


Рис. 11. Распределение концентраций ионов – N_2^+ (a); O_2^+ (b); O_2^- (c); O^- (d)

4. Заключение

В работе была сформулирована самосогласованная физико-математическая модель СВЧ-разряда в поверхностной волне в диэлектрической трубке в воздухе. Численные расчеты были проведены в лицензионном пакете COMSOL Multiphysics для двух условий: при давлении 150 Торр с учетом механизма нагрева газа только благодаря упругим столкновениям электронов с молекулами газа и во втором случае при давлении 760 Торр с учетом как упругих столкновений, так и механизмов быстрого нагрева газа. В результате были получены все основные распределения параметров плазмы СВЧ-разряда. В частности, в работе представлены распределения температуры газа, напряженности электрического поля, а также концентраций электронов и тяжелых частиц плазмы. Было продемонстрировано развитие СВЧ-разряда с течением времени. В результате моделирования было установлено, что реакции диссоциации молекул азота и упругих соударений электронов с молекулами газа вносят существенный вклад в общий нагрев газа, при этом реакции с изменением электронных состояний молекулы азота из моделирования нагрева можно исключить.

Полученная модель имеет ряд ограничений. Для молекул газа учитываются только поступательные и электронные степени свободы, при этом нет учёта колебательных, что особенно важно для азота. Также в этой модели газ в трубке покоится, что затрудняет сравнение теоретических результатов с экспериментальными, полученными для СВЧ-разряда в потоке воздуха.

Благодарности и ссылки на гранты

Данная работа была поддержана грантом № 22-1-1-17-2 Фонда развития теоретической физики и математики «БАЗИС».

Литература

1. R, Mohan Plasma Processing of Nanomaterials / Mohan R. — 1st Edition. — Boca Raton : CRC Press, 2012. — 430 p.
2. Lebedev, Y.A., Averin, K.A., Borisov, R.S. et al. // High Energy Chem, 2018, V. 52, № 324, Pp. 324–329.
3. Mariotti D., Sankaran R. M. Microplasmas for nanomaterials synthesis // Journal of Physics D: Applied Physics. – 2010. – V. 43. – № 32. – P. 323001.
4. Wang X., Zhou M., Jin X. Application of glow discharge plasma for wastewater treatment // Electrochimica Acta. – 2012. – V. 83. – Pp. 501–512.
5. Brovkin V.G., Kolesnichenko Y.F., Leonov S.B., Klimov A.I., Krylov A.A., and Ryvkin M.I. 30th AIAA plasmadynamics and Lasers Conference // Study of Microwave Plasma-Body Interaction in Supersonic AirFlow. Norfolk, Virginia. 1999. Vol. AIAA 99-3740.
6. Lashkov V., Mashek I., Ivanov V., Kolesnichenko Y., and Rivkin M., Gas-dynamic peculiarities of microwave discharge interaction with shock wave near the body // AIAA Paper. No. 2008-1410, 2008
7. Knight D., Kolesnichenko Y., Brovkin V., Khmara D., Lashkov V., Mashek I. Interaction of microwave-generated plasma with a hemisphere cylinder at mach 2.1 // AIAA J. 2009. V. 47(12). Pp. 2996–3010.
8. Lashkov V. A., Karpenko A. G., Khoronzhuk R. S., and Mashek I. Ch. Effect of Mach number on the efficiency of microwave energy deposition in supersonic Flow // Physics of Plasmas 23, 052305 (2016)
9. Andrade F. J. et al. Atmospheric pressure chemical ionization source. 1. Ionization of compounds in the gas phase // Analytical chemistry. – 2008. – V. 80. – № 8. – Pp. 2646–2653.
10. Schwartz A. J. et al. Atmospheric-pressure solution-cathode glow discharge: A versatile ion source for atomic and molecular mass spectrometry // Analytica chimica acta. – 2017. – T. 950. – C. 119-128.
11. MacDonald, A. D. Microwave breakdown in gases / A. D. MacDonald. — 1st Edition. — New York: Wiley, 1966. — 201 с.
12. Физика газового разряда / Ю. П. Райзер. - 3-е изд., перераб. и доп. - Долгопрудный: Интеллект, 2009. - 734 с. : ил., табл.; 25 см.; ISBN 978-5-91559-019-8 (в пер.)
13. Суржиков С. Т. Сравнительный анализ параметров нормального и аномального тлеющего разрядов постоянного тока // Физика плазмы, 2022, Т. 48, № 11, С. 1102–1114
14. Суржиков С. Т. и др. Нормальный тлеющий разряд: сравнение расчётных и экспериментальных данных // Доклады Академии наук. – 2019. – Т. 485. – № 4. – С. 422–427.
15. Surzhikov S. T. Two-dimensional model of the Penning discharge in a cylindrical chamber with the axial magnetic field // Technical Physics. – 2017. – Vol. 62. – no. 8. – P. 1177-1188.
16. Mokrov M. S., Raizer Y. P. 3D simulation of hexagonal current pattern formation in a DC-driven gas discharge gap with a semiconductor cathode // Plasma Sources Science and Technology. – 2018. – Vol. 27. – no. 6. – P. 065008.
17. Saifutdinov, A.I., Kustova, E.V. // Journal of Applied Physics, 2021, V. 129, № 023301, Pp. 1–15.
18. Saifutdinov A.I., Kustova E.V., Karpenko A.G., and Lashkov V.A. // Plasma Physics Reports, 2019, V. 45, № 6, Pp. 602–609.
19. Kourtzanidis, K. Three dimensional simulations of pattern formation during high-pressure, freely localized microwave breakdown in air / K. Kourtzanidis, J. P. Boeuf, F. Rogier. // Physics of Plasmas. — 2014. — № 21. — P. 123513.
20. Baeva M., Pott A., and Uhlenbusch J., Modelling of NOx removal by a pulsed microwave discharge. // Plasma Sources Sci. Technol. 11, 135–141 (2002).

21. Kossyi I.A., Kostinsky A.Yu., Marveyev A.A. and Silakov V.P. // *Plasma Source Sci. Technol.*, 1992, №1, Pp. 207–220.
22. Macheret S.O., Shneider M.N., Miles B. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, V. 30, P. 1301, 2002.
23. Соловьев В.Р., Кончаков А.М., Кривцов В.М., Александров Н.Л. // *Физика плазмы*, 2008, том 34, № 7, С. 648–662.
24. Sakiyama Y., Graves D. B, Chang H.-W., Shimizu T. and Morfill G. E. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 45 (2012) 425201 (19 pp.)
25. Shneider M.N., Zhelticov A.M., Miles R.B. // *Physics of Plasmas* 18, 063509 (2011). *J. Phys. D: Appl. Phys.* 30 (1997), Pp. 1616–1624.
26. Aleksandrov N. L., Bazelyan E. M., Kochetov I. V. and Dyatko N. A. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 30 (1997), Pp. 1616–1624.
27. Bak, M. S. A Reduced Set of Air Plasma Reactions for Nanosecond Pulsed Plasmas / M. S. Bak, M. A. Cappelli. // *IEEE Transactions on Plasma Science*. — 2015. — № 4. — Pp. 995–1001.
28. Scattering Cross Sections. — Текст : электронный // *Plasma Data Exchange Project* : [сайт]. — URL: https://us.lxcat.net/data/set_type.php (дата обращения: 26.05.2023).
29. Gordillo-Vázquez, F. J. Air plasma kinetics under the influence of sprites / F. J. Gordillo-Vázquez. // *Journal of Physics D: Applied Physics*. — 2008. — № 41. — P. 234016.
30. Popov N. A. Fast gas heating in a nitrogen–oxygen discharge plasma: I. Kinetic mechanism / N. A. Popov. // *Journal of Physics D: Applied Physics*. — 2011. — № 44. — P. 285201.
31. Microwave air plasma source at atmospheric pressure: Experiment and theory / E. Tatarova, F. M. Dias, E. Felizardo [и др.]. // *Journal of Applied Physics*. — 2010. — № 108. — P. 123305.

References

1. Sankaran R. M. (Ed.). *Plasma Processing of Nanomaterials* (1st ed.). CRC Press. 2012. <https://doi.org/10.1201/b11473>
2. Lebedev Y. A., Averin K. A., Borisov R. S., et al., Microwave Discharge in Liquid Hydrocarbons: Study of a Liquid Hydrocarbon after Exciting the Discharge, *High Energy Chem.*, 2018, vol. 52, pp. 324–329. <https://doi.org/10.1134/S0018143918040100>
3. Mariotti, Davide & Sankaran, R., Microplasmas for nanomaterials synthesis, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2010, vol. 43, no. 32. DOI: 10.1088/0022-3727/43/32/323001
4. Wang, Xiaoyan & Zhou, Minghua & Jin, Xl., Application of glow discharge plasma for wastewater treatment, *Electrochimica Acta*, 2012, vol. 83, pp. 501–512. 10.1016/j.electacta.2012.06.131
5. Brovkin V.G., Kolesnichenko Y.F., Leonov S.B., Klimov A.I., Krylov A.A., and Ryvkin M.I., AIAA Paper 99-3740. <https://doi.org/10.2514/6.1999-3740>
6. Lashkov V., Mashek I., Ivanov V., Kolesnichenko Y., and Rivkin M., Gas-dynamic peculiarities of microwave discharge interaction with shock wave near the body, AIAA Paper 2008-1410. <https://doi.org/10.2514/6.2008-1410>
7. Knight Doyle, Kolesnichenko Yuri, Brovkin Vadim, Lashkov Valeriy, Mashek Igor, Interaction of Microwave-Generated Plasma with Hemisphere-Cone-Cylinder, AIAA Paper 2010-1005. <https://doi.org/10.2514/6.2010-1005>
8. Lashkov V. A., Karpenko A. G., Khoronzhuk R. S., Mashek I. Ch., Effect of Mach number on the efficiency of microwave energy deposition in supersonic flow, *Physics of Plasmas*, 2016, vol. 23, no. 5. <https://doi.org/10.1063/1.4949524>
9. Andrade Francisco, Shelley Jacob, Wetzel William, Webb Michael, Gamez Gerardo, Ray Steven, Hieftje Gary, Atmospheric Pressure Chemical Ionization Source. 1. Ionization of Compounds in the Gas Phase, *Analytical Chemistry*, 2008, vol. 80, no. 8, pp. 2646–53. <https://doi.org/10.1021/ac800156y>
10. Schwartz Andrew, Williams Kelsey, Hieftje Gary, Shelley Jacob, Atmospheric-pressure solution-cathode glow discharge: A versatile ion source for atomic and molecular mass spectrometry, *Analytica Chimica Acta*, 2016, 950. <https://doi.org/10.1016/j.aca.2016.10.045>

11. MacDonald A. D., *Microwave breakdown in gases*, New York : Wiley. 1966.
12. Rajzer Ju. P., *Physics of gas discharge*, Dolgoprudnyj : Intellekt, 2009, ISBN 978-5-91559-019-8, [in Russian]
13. Surzhikov S. T., Comparative analysis of parameters of normal and abnormal glow DC discharges, *Plasma Physics Reports*, 2022, vol. 48, no. 11, pp. 1102–1114 [in Russian].
<https://doi.org/10.1134/S1063780X22700337>
14. Surzhikov S. T., et al., Normal glow discharge: comparison of numerical and experimental data [in Russian], *Doklady Akademii nauk*, 2019, vol. 485, no. 4, pp. 422–427.
15. Surzhikov S. T., Two-dimensional model of the Penning discharge in a cylindrical chamber with the axial magnetic field, *Technical Physics*, 2017, vol. 62, no. 8, pp. 1177–1188.
<https://doi.org/10.1134/S1063784217080278>
16. Mokrov M. S., Raizer Yu. P., 3D simulation of hexagonal current pattern formation in a dc-driven gas discharge gap with a semiconductor cathode, *Plasma Sources Science and Technology*, 2018, vol. 27, no. 6, P. 065008. <https://doi.org/10.1088/1361-6595/aac9fc>
17. Saifutdinov A. I., Kustova E. V., *Journal of Applied Physics*, 2021, vol. 129, no. 2.
<https://doi.org/10.1063/5.0031020>
18. Saifutdinov A.I., Kustova E.V., Karpenko A.G., and Lashkov V.A., *Plasma Physics Reports*, 2019, vol. 45, no. 6, pp. 602–609. DOI:10.1134/S1063780X19050106
19. Kourtzanidis K., Boeuf J. P., Rogier F., Three dimensional simulations of pattern formation during high-pressure, freely localized microwave breakdown in air, *Physics of Plasmas*, 2014, vol. 21, no. 12.
<https://doi.org/10.1063/1.4905071>
20. Baeva M., Pott A., and Uhlenbusch J., Modelling of NO_x removal by a pulsed microwave discharge, *Plasma Sources Sci. Technol.* 2002, vol. 11, no. 2. DOI:10.1088/0963-0252/11/2/302
21. Kossyi I. A., Kostinskiy Alexander, Matveev A. A., Kinetic scheme of the non-equilibrium nitrogen-oxygen mixtures, *Plasma Sources Science and Technology*, 1992, vol. 1, pp. 207–220.
22. Macheret S. O., Shneider M. N., Miles B., *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 2002, vol. 30, p. 1301
23. Solov'ev V. R., Konchakov A. M., Krivcov V. M., Aleksandrov N.L., *Plasma Physics Reports*, 2008, vol. 34, no. 7, pp. 648–662.
24. Sakiyama Y., Graves D. B., Chang H.-W., Shimizu T., and Morfill G. E., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2012, vol. 45, no. 42. DOI:10.1088/0022-3727/45/42/425201
25. Shneider M. N., Zhelticov A. M., Miles R. B., *Physics of Plasmas*, 2011, vol. 18, 063509. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1997, vol. 30, pp. 1616–1624.
26. Aleksandrov N. L., Bazelyan E. M., Kochetov I. V., and Dyatko N. A., *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1997, vol. 30, pp. 1616–1624. DOI:10.1088/0022-3727/30/11/011
27. Bak M. S., and Cappelli M. A., A Reduced Set of Air Plasma Reactions for Nanosecond Pulsed Plasmas, in *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 43, no. 4. DOI: 10.1109/TPS.2015.2409300
28. Scattering Cross Sections, Plasma Data Exchange Project, available at <http://www.lxcat.net> (accessed at 26.05.2023)
29. Gordillo-Vázquez F., Air plasma kinetics under the influence of sprites, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2008, vol. 41. 234016. DOI: 10.1088/0022-3727/41/23/234016
30. Popov Nikolay, Fast gas heating in a nitrogen–oxygen discharge plasma: I. Kinetic mechanism, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2011, vol. 44. DOI: 10.1088/0022-3727/44/28/285201
31. Tatarova Elena, Dias F., Felizardo Edgar, Henriques Júlio, Pinheiro Mario, Ferreira C., Gordiets B., Microwave air plasma source at atmospheric pressure: Experiment and theory. *Journal of Applied Physics*, 2010, vol. 108, pp. 3305–123305. DOI:10.1063/1.3525245

Статья поступила в редакцию 23 июля 2023 г.