

Граница перехода к полым пылевым структурам в разряде постоянного тока в неоне с микрочастицами

В. В. Шумова, Д. Н. Поляков, Л. М. Василяк

Экспериментально получена граница (линия) перехода от сплошных пылевых структур к полым пылевым структурам в координатах «давление – ток разряда» в тлеющем разряде в неоне. Эксперименты выполнены для сферических частиц диаметром 2,55 и 4,14 мкм. Проведено моделирование линии перехода с помощью диффузионно-дрейфовой модели положительного столба разряда в неоне с учетом радиального градиента температуры. В результате моделирования экспериментальных данных обнаружено, что сила термофореза, действующая на микрочастицы в пылевой структуре, связана с параметрами разряда, зависит от размера микрочастиц и пылевой структуры. Результаты работы могут быть использованы в технологиях с пылевой плазмой.

Ключевые слова: пылевая плазма, заряженные пылевые частицы, полые пылевые структуры, войд, тлеющий разряд, неон, термофорез.

Введение

Пылевая плазма применяется в экспериментальных и технологических реакторах как рабочая среда, где происходят плазмохимические процессы, используемые для модификации поверхности и нанесения ориентированных покрытий на частицы микронных и субмикронных размеров [1–3]. Плазма электрических разрядов используется для синтеза частиц субмикронных размеров, которые зависят в реакционном объеме и образуют пылевую плазму [4–7]. Пылевая плазма образуется также вследствие эрозии поверхности разрядных устройств, либо как побочный продукт в различных технологических процессах, либо при плазменном травлении поверхности [8]. С помощью плазмы и введенных в нее частиц микронного и субмикронного размера возможно получение принципиально новых нано-структурированных и композитных материалов вследствие синергетического эффекта, возникающего при комбинированном воздействии на вещество радиационных, плазмохимических и тепловых процессов [9]. Частицы с покрытиями, обладающими заданными

физико-химическими характеристиками и новыми поверхностными свойствами, применяются, либо могут применяться в различных современных промышленных технологиях и медицине [1, 4, 10].

Количество и концентрация удерживаемых в реакционном объеме плазмы микрочастиц, а также форма и положение пылевых структур самосогласованным образом определяются параметрами потенциала, задаваемого суперпозицией сил, действующих на пылевые частицы в плазме. При наличии теплового поля на пространственное расположение и форму пылевых структур оказывают влияние термофоретические силы, определяемые градиентами температуры в газе [11, 12]. С помощью различных тепловых воздействий можно изменять форму и положение плазменно-пылевых структур в разряде [11–18], а также осуществлять пространственную сепарацию пылевых частиц по размерам [14]. Тепловые поля используются для диагностики и расчета полей сил, действующих на пылевые частицы [15, 16], заряда пылевых частиц и величины электрического поля [17]. Увеличение тепловыделения в разряде приводит к изменению формы пылевых структур [11], что может приводить к образованию пылевых структур с полостью (полым пылевым структурам) – пылевых войдов [11, 14, 18, 19].

Исследование параметров плазмы, при которых происходит изменение формы пылевых структур, дает возможность получить данные о соотношении сил, действующих на пылевые частицы. В работе [19] с помощью диффузионно-дрейфовой модели положительного столба тлею-

Шумова Валерия Валерьевна, с.н.с., к.ф.-м.н.

Поляков Дмитрий Николаевич, с.н.с.

Василяк Леонид Михайлович, г.н.с., д.ф.-м.н.

Объединенный институт высоких температур РАН.

Россия, 125412, Москва, ул. Ижорская, 13, стр. 2.

Тел. 8(495) 484-26-10. E-mail: shumova@ihed.ras.ru

Статья поступила в редакцию 15 марта 2018 г.

© Шумова В. В., Поляков Д. Н., Василяк Л. М., 2018

шего разряда с микрочастицами было показано, что вклад термофоретической силы в радиальное равновесие пылевых частиц, определяющее положение границы перехода к полым пылевым структурам, может превышать вклад силы ионного увлечения.

В данной работе ставилась задача экспериментально получить эту границу перехода к полым пылевым структурам для частиц различного размера и провести моделирование полученных данных в рамках единой модели, применимой для тлеющего разряда в неоне с микрочастицами различного размера.

Описание эксперимента

Измерения выполнены в тлеющем разряде постоянного тока в неоне при давлении 0,14–1,4 Торр в диапазоне тока 0,1–4,5 мА в стеклянной разрядной трубке длиной 20 см с внутренним радиусом $R = 8,25$ мм. Пылевые структуры удерживались в положительном столбе разряда между двумя дополнительными кольцевыми электродами, впаянными в стенку разрядной трубки. Изображения пылевых частиц регистрировались в отраженном свете плоского лазерного луча с помощью микроскопа и видеокамеры в продольном сечении разряда. Измерялись величина тока разряда I , падение напряжения ΔU между кольцевыми электродами, радиус пылевой структуры r_d и средняя концентрация пылевых частиц в структуре n_d . Средняя величина продольной напряженности электрического поля рассчитывалась как $E_l = \Delta U/l$, где l – расстояние между измерительными электродами. Более подробное описание экспериментальной установки приведено в [20]. Измерения проведены для частиц из меламин-формальдегида диаметром $d = 2,55$ и $4,14$ мкм.

Численная модель

Моделирование плазмы разряда постоянного тока с пылевыми частицами проведено на основе диффузионно-дрейфовой модели однородного положительного столба тлеющего разряда в неоне с пылевыми частицами [21–23]. Модель учитывает тепловыделение разряда и диссипацию энергии плазмы на стенках разрядной трубки и микрочастицах, в том числе за счет тушения возбуждения метастабильных атомов неона. Средняя энергия электронов, транспортные коэффициенты и константы скоростей реакций возбуждения и ионизации с участием электронов получены с помощью SIGLO Database [24] и пакета BOLSIG+ [25]. Распределение пылевых частиц по радиусу $n_d(r)$ было задано осесимметричным плоским профилем

$n_d(r) = n_{d,0} \exp((r_d - r)/0,1R)$, $r > r_d$ и $n_d(r) = n_{d,0}$ при $r \leq r_d$. Используя этот подход, рассчитываются радиальные распределения компонент плазмы и радиальной $E_r(r)$ составляющей электрического поля, а также его продольная составляющая E_l . Расчеты выполнялись для полученных в эксперименте значений параметров разряда и пылевых структур. Радиальный профиль температуры газа $T(r)$ в разрядной трубке рассчитан путем решения стационарного одномерного уравнения теплопроводности [19].

Результирующая сила F_{res} , действующая на пылевую частицу в радиальном направлении, равна

$$F_{res}(r) = F_e(r) + F_{th}(r) + F_i(r), \quad (1)$$

где $F_e(r)$ – сила электрического поля, $F_i(r)$ – сила ионного увлечения, $F_{th}(r)$ – сила термофореза. Сила радиального электрического поля равна

$$F_e(r) = Z_d(r) e E_r(r), \quad (2)$$

где Z_d – заряд пылевой частицы. Сила ионного увлечения записывается как в работе [26], а именно,

$$F_i = -m_i n_i \int v v f_i(v) [\sigma_c(v) + \sigma_s(v)] dv, \quad (3)$$

где m_i и n_i – масса и концентрация ионов, v – скорость потока ионов, $f_i(v)$ – функция распределения ионов по скоростям, $\sigma_c(v)$ и $\sigma_s(v)$ – зависящие от скорости сечения передачи импульса при захвате и рассеянии иона пылевой частицей соответственно (рассчитаны в [26]). В нашем случае зависимость $F_i(r)$ определяется радиальными профилями напряженности электрического поля и концентрации ионов.

Сила термофореза на пылевую частицу рассчитана в приближении сплошной среды для теплового потока на стенку и свободномолекулярного режима для потока на пылевую частицу. В [27] для силы термофореза на микрочастицу в одноатомном газе получено выражение:

$$F_{th}(r) = -3,33 (ka^2/\sigma_{tr}) dT/dr, \quad (4)$$

где k – константа Больцмана, σ_{tr} – транспортное сечение неона [28], a – радиус микрочастицы. В нашем случае использовано выражение

$$F_{th}(r) = -C (ka^2/\sigma_{tr}) dT/dr, \quad (5)$$

где C – переменная, значение которой обсуждается ниже. Положение пылевой частицы в радиальном направлении определяется ее потенциальной энергией в поле равнодействующей силы [11]:

$$U(r) = -\int_{0-r} [F_e(r) + F_{th}(r) + F_i(r)] dr. \quad (6)$$

При моделировании границы перехода к полым пылевым структурам в качестве критерия образования внутренней полости в пылевых структурах принято образование минимума на профиле потенциальной энергии $U(r)$ пылевой частицы. При выполнении этого критерия граничным является значение тока, при котором вблизи оси разряда равнодействующая сила F_{res} принимает отрицательное значение.

Результаты и обсуждение

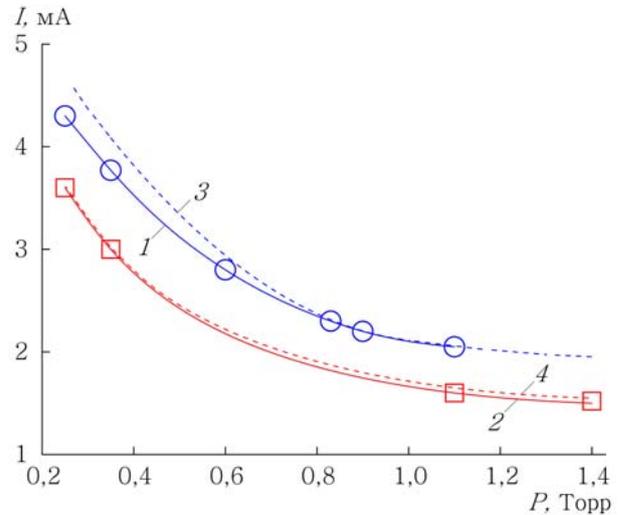
Тепловыделение в разряде растет как с увеличением тока разряда, так и с увеличением давления неона, поскольку последнее приводит к возрастанию напряженности продольного электрического поля E_l [29]. В [19] была показана определяющая роль термофоретической силы в изменении формы пылевых структур с ростом тока разряда. Расчеты в [19] были выполнены в предположении, что термофоретическая сила не зависит от давления газа и температуры, как это принято в большинстве литературных источников, например, в [27, 30], то есть значение, используемое в формуле (5), $C = \text{const}$. При этом было получено качественное согласие рассчитанной границы с данными измерений, проведенными с использованием частиц диаметром 2,55 мкм.

В данной работе были проведены расчёты параметров границы перехода к структурам с полостью и анализ её положения при тех же параметрах разряда (давления газа, тока разряда, концентрации пылевых частиц в пылевых структурах), также для пылевых частиц с большим диаметром – 4,14 мкм (см. рисунок). Концентрация пылевых частиц составляла $2 \times 10^4 \text{ см}^{-3}$. Экспериментальные данные для частиц двух размеров моделировались в рамках единого подхода, описанного выше.

Расчеты показали, что удовлетворительная точность совместного моделирования данных экспериментов для частиц двух различных размеров может быть достигнута только с использованием меньших значений C для расчета термофореза для частиц 4,14 мкм, чем для частиц 2,55 мкм, но при тех же значениях давления. Иными словами, моделирование выявило зависимость C от размера пылевых частиц при одинаковых параметрах разряда и пылевых структур.

Результаты моделирования для частиц двух размеров представлены совместно с данными экспериментов на рисунке, а значения C для различных значений давления и размеров частиц – в таблице. Из представленных данных видно, что C уменьшается как с ростом давления газа, так и с увеличением размера микрочастиц. (Что есте-

ственно, поскольку для больших тел сила термофореза мала).



Экспериментальные данные (знаки), аппроксимация экспериментальных данных (сплошные линии 1 и 2) и результаты расчёта (пунктирные линии 3 и 4) соответствующие границе перехода от однородных к полым пылевым структурам для частиц диаметром: 2,55 мкм (1, 3 и круги) и 4,14 мкм (2, 4 и квадраты). Ниже границы структуры однородны, выше – с внутренней полостью.

Таблица

Расчётные значения C в формуле (5) при различных значениях давления и размера пылевых частиц

$d \setminus P$	0,3 Торр	0,6 Торр	1,1 Торр
2,55 мкм	3,05	2,25	1,5
4,14 мкм	1,8	1,5	1,1

Анализ величины силы термофореза в экспериментах с пылевыми частицами был проведен в работе [30]. Авторы [30, 31] показали, что в условиях ограниченной плазмы сила термофореза на пылевую частицу меньше, чем в неограниченной плазме, на расстоянии до нескольких длин свободного пробега молекул газа от стенки. Полученный нами результат подтверждает сделанный в работе [31] вывод о том, что действующая на микрочастицу в плазме термофоретическая сила может быть рассчитана по классической формуле [27] только в случае неограниченной плазмы и уединенной микрочастицы, то есть при соблюдении условий, в которых формула была получена.

В нашем случае микрочастица находится внутри пылевой структуры, при этом роль «стенок» играют соседние микрочастицы, создающие эффект затенения. Действительно, при давлении 0,3 Торр средняя длина свободного пробега атомов в неоне составляет 340 мкм, а расстояние до соседней пылевой частицы в пылевой структуре в нашем случае составляет 370 мкм, то есть лишь ненамного превосходит длину пробега.

Полученные данные свидетельствуют о том, что сила термофореза, действующая на микрочастицы в пылевых структурах в плазме разряда низкого давления, связана с размером микрочастиц и параметрами пылевых структур более сложным образом, чем это предполагалось ранее. В зависимости от размера микрочастиц, параметров пылевых структур и разряда величина силы термофореза может быть меньше, чем для уединенной пылевой частицы. Данный вопрос ставит задачу дальнейшего его изучения.

Заключение

Экспериментально получена линия перехода однородных сплошных пылевых структур к структурам с полостью (войдом) в координатах «давление – ток разряда» в тлеющем разряде в неоне для микрочастиц двух размеров. Проведенное моделирование линии перехода с помощью диффузионно-дрейфовой модели положительного столба разряда в неоне с учетом градиента температуры показало, что сила термофореза, действующая на микрочастицы, связана с размером микрочастиц и параметрами пылевых структур более сложным образом, чем предсказывает классическая теория для уединенной частицы в неограниченной плазме.

Результаты работы могут быть использованы в технологиях с пылевой плазмой.

Работа выполнена при поддержке программы Президиума РАН № 13 «Конденсированное вещество и плазма при высоких плотностях энергии».

ЛИТЕРАТУРА

1. Kersten H., Thieme G., Frohlich M., Bojic D., Tung D. H., Quaas M., Wulff H., Hippler R. // *Pure Appl. Chem.* 2005. Vol. 77. No. 2. P. 415.
2. Vasilyak L. M., Vasil'ev M. N., Vetchinin S. P., Polyakov D. N., Fortov V. E. // *Tech. Phys. Lett.* 2005. Vol. 31. P. 827.
3. Васильева Т. М. // *Химия высоких энергий.* 2011. Т. 45. № 1. С. 66.
4. Vladimirov S. V., Ostrikov K. // *Physics Reports.* 2004. Vol. 393. P. 175.
5. Cavarroc M., Mikikian M., Tessier Y., Boufendi L. // *IEEE Transact. Plasma Sci.* 2008. Vol. 36. No. 4. P. 1016.
6. Boufendi L., Jouanny M. Ch., Kovacevic E., Berndt J., Mikikian M. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2011. Vol. 44. P. 174035.
7. Huttel Y. *Gas-phase synthesis of nano-particles.* – Weinheim: Wiley VCH, 2017.
8. Kersten H., Deutsch H., Stoffels E., Stoffels W. W., Kroesen G. M. W. // *Internat. J. Mass Spectrometry.* 2003. Vol. 223–224. P. 313.
9. Vasiliev M. N., Mahir A. H. // *Surf. Coat. Technol.* 2004. Vol. 180–181. P. 132.
10. Поликарпов Н. А., Новикова Н. Д., Вальяно Г. Е., Василяк Л. М., Климовский И. И., Печеркин В. Я., Добринский Э. К., Малашин С. И. // *Авиакосмическая и экологическая медицина.* 2010. Т. 44. № 6. С. 40.
11. Balabanov V. V., Vasilyak L. M., Vetchinin S. P., Nefedov A. P., Polyakov D. N., Fortov V. E. // *J. Exp. Theor. Phys.* 2001. Vol. 92. No. 1. P. 86.
12. Jellum G. M., Daugherty J. E., Graves D. B. // *J. Appl. Phys.* 1991. Vol. 69. No. 10. P. 6923.
13. Vasilyak L. M., Vetchinin S. P., Zimmukhov V. S., Polyakov D. N., Fortov V. E. // *J. Exp. Theor. Phys.* 2003. Vol. 96. No. 3. P. 436.
14. Vasilyak L. M., Vetchinin S. P., Polyakov D. N., Fortov V. E. // *J. Exp. Theor. Phys.* 2005. Vol. 100. No. 5. P. 1029.
15. Arp O., Block D., Klindworth M., Piel A. // *Phys. Plasmas.* 2005. Vol. 12. P. 122102.
16. Molotkov V. I., Petrov O. F., Pustyl'nik M. Yu., Torchinskii V. M., Fortov V. E., Khrapak A. G. // *High Temp.* 2004. Vol. 42. No. 6. P. 827.
17. Land V., Smith B., Matthews L. // *IEEE Transact. Plasma Sci.* 2010. Vol. 38. No. 4. P. 768.
18. Schmidt C., Arp O., Piel A. // *Phys. Plasmas.* 2011. Vol. 18. P. 013704.
19. Шумова В. В., Поляков Д. Н., Василяк Л. М. // *Прикладная физика.* 2015. № 4. С. 27.
20. Shumova V. V., Polyakov D. N., Vasilyak L. M. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2017. Vol. 50. No. 40. P. 405202.
21. Shumova V. V., Polyakov D. N., Vasilyak L. M. // *Plasma Sources Sci. Technol.* 2014. Vol. 23. No. 6. P. 065008.
22. Shumova V. V., Polyakov D. N., Vasilyak L. M. // *J. Phys.: Conf. Ser.* 2015. Vol. 653. P. 012132.
23. Shumova V. V., Polyakov D. N., Vasilyak L. M. // *Plasma Sources Sci. Technol.* 2017. Vol. 26. No. 3. P. 035011.
24. Pitchford L. C. // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2013. Vol. 46. No. 33. P. 330301.
25. Hagelaar G. J. M., Pitchford L. C. // *Plasma Sources Sci. Technol.* 2005. Vol. 14. No. 4. P. 722.
26. Khrapak S. A., Ivlev A. V., Morfill G. E., Thomas H. M. // *Phys. Rev. E.* 2002. Vol. 66. No. 4. P. 046414.
27. Rothermel H., Hagl T., Morfill G. E., Thoma M. H., Thomas H. M. // *Phys. Rev. Lett.* 2002. Vol. 89. No. 17. P. 175001.
28. Varney R. N. // *Phys. Rev.* 1952. Vol. 88. No. 2. P. 362.
29. Polyakov D. N., Shumova V. V., Vasilyak L. M. // *Plasma Phys. Rep.* 2017. Vol. 43. No. 3. P. 397.
30. Havnes O., Nitter T., Tsyrovich V., Morfill G. E., and Hartquist T. // *Plasma Sources Sci. Technol.* 1994. Vol. 3. P. 448.
31. Gallis M. A., Rader D. J., Torczynski J. R. // *Aerosol Sci. Tech.* 2002. Vol. 36. P. 1099.

Boundary of transition to hollow dusts structures in a dc discharge in neon with microparticles

V. V. Shumova, D. N. Polyakov, and L. M. Vasilyak

Joint Institute for High Temperatures of Russian Academy of Sciences
Bld. 2, 13 Izhorskaya str., Moscow, 125412, Russia
E-mail: shumova@ihed.ras.ru

Received March 15, 2018

The boundary of the transition (line) of homogeneous dust structures to hollow structures in coordinates gas pressure – discharge current, has been experimentally obtained in a glow discharge in neon. The experiments have been carried out for spherical particles with a diameter of 2.55 and 4.14 μm . The simulation of the transition line has been carried out using the diffusion-drift model of the positive column of glow discharge in neon, taking into account the radial temperature gradient. As a result of simulation of experimental data, it was found that the thermophoretic force acting on the microparticles in the dust structure depends on the discharge parameters and on the sizes of microparticles and dust structure. The results of the work can be used in technologies with dusty plasma.

Keywords: dusty plasma, charged dust particles, hollow dust structures, void, glow discharge, neon, thermophoresis.

REFERENCES

1. H. Kersten, G. Thieme, M. Frohlich, D. Bojic, D. H. Tung, M. Quaas, H. Wulff, and R. Hippler, *Pure Appl. Chem.* **77** (2), 415 (2005).
2. L. M. Vasilyak, M. N. Vasil'ev, S. P. Vetchinin, D. N. Polyakov, and V. E. Fortov, *Tech. Phys. Lett.* **31**, 827 (2005).
3. T. M. Vasil'eva, *High Energy Chem.* **45** (1), 66 (2011).
4. S. V. Vladimirov and K. Ostrikov, *Phys. Rep.* **393**, 175 (2004).
5. M. Cavarroc, M. Mikikian, Y. Tessier, and L. Boufendi, *IEEE Transact. Plasma Sci.* **36** (4), 1016 (2008).
6. L. Boufendi, M. Ch. Jouanny, E. Kovacevic, J. Berndt, and M. Mikikian, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44**, 174035 (2011).
7. Y. Huttel, *Gas-Phase Synthesis of Nano-Particles* (Weinheim, Wiley VCH, 2017).
8. H. Kersten, H. Deutsch, E. Stoffels, W. W. Stoffels, and G. M. W. Kroesen, *International Journal of Mass Spectrometry* **223–224**, 313 (2003).
9. M. N. Vasiliev and A. H. Mahir, *Surface and Coating Technology.* **180–181**, 132 (2004).
10. N. A. Polikarpov, N. D. Novikova, G. E. Val'yano, L. M. Vasilyak, I. I. Klimovskii, V. Ya. Pecherkin, E. K. Dobrinskii, and S. I. Malyshin, *Aviakosmich. i Ekologich. Meditsina* **44** (6), 40 (2010).
11. V. V. Balabanov, L. M. Vasilyak, S. P. Vetchinin, A. P. Nefedov, D. N. Polyakov, and V. E. Fortov, *J. Exp. Theor. Phys.* **92** (1), 86 (2001).
12. G. M. Jellum, J. E. Daugherty, and D. B. Graves, *Appl. Phys.* **69** (10), 6923 (1991).
13. L. M. Vasilyak, S. P. Vetchinin, V. S. Zimmukhov, D. N. Polyakov, and V. E. Fortov, *J. Exp. Theor. Phys.* **96** (3), 436 (2003).
14. L. M. Vasilyak, S. P. Vetchinin, D. N. Polyakov, and V. E. Fortov, *J. Exp. Theor. Phys.* **100** (5), 1029 (2005).
15. O. Arp, D. Block, M. Klindworth, and A. Piel, *Phys. Plasmas.* **12**, 122102 (2005).
16. V. I. Molotkov, O. F. Petrov, M. Yu. Pustyl'nik, V. M. Torchinskii, V. E. Fortov, and A. G. Khrapak, *High Temp.* **42** (6), 827 (2004).
17. V. Land, B. Smith, and L. Matthews, *IEEE Transact. Plasma Sci.* **38** (4), 768 (2010).
18. C. Schmidt, O. Arp, and A. Piel, *Phys. Plasmas.* **18**, 013704 (2011).
19. V. V. Shimova, D. N. Polyakov, and L. M. Vasilyak, *Prikl. Fiz. No. 4*, 27 (2015).
20. V. V. Shumova, D. N. Polyakov, and L. M. Vasilyak, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** (40), 405202 (2017).
21. V. V. Shumova, D. N. Polyakov, and L. M. Vasilyak, *Plasma Sources Sci. Technol.* **23** (6), 065008 (2014).
22. V. V. Shumova, D. N. Polyakov, and L. M. Vasilyak, *J. Phys.: Conf. Ser.* **653**, 012132 (2015).
23. V. V. Shumova, D. N. Polyakov, and L. M. Vasilyak, *Plasma Sources Sci. Technol.* **26** (3), 035011 (2017).
24. L. C. Pitchford, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46** (33), 330301 (2013).
25. G. J. M. Hagelaar, L. C. Pitchford, *Plasma Sources Sci. Technol.* **14** (4), 722 (2005).
26. S. A. Khrapak, A. V. Ivlev, G. E. Morfill, and H. M. Thomas, *Phys. Rev. E.* **66** (4), 046414 (2002).
27. H. Rothermel, T. Hagl, G. E. Morfill, M. H. Thoma, and H. M. Thomas, *Phys. Rev. Lett.* **89** (17), 175001 (2002).
28. R. N. Varney, *Phys. Rev.* **88** (2), 362 (1952).
29. D. N. Polyakov, V. V. Shumova, and L. M. Vasilyak, *Plasma Phys. Rep.*, **43** (3), 397 (2017).
30. O. Havnes, T. Nitter, V. Tsytovich, G. E. Morfill, and T. Hartquist, *Plasma Sources Sci. Technol.* **3**, 448 (1994).
31. M. A. Gallis, D. J. Rader, and J. R. Torczynski, *Aerosol Sci. Tech.* **36**, 1099 (2002).