#### \_\_\_\_\_ ДИАГНОСТИКА \_ ПЛАЗМЫ

УЛК 537.5

## ЭЛЕКТРОННЫЕ КОЭФФИЦИЕНТЫ ПЕРЕНОСА В НЕРАВНОВЕСНОЙ ПЛАЗМЕ ПАРОВ ВОДЫ И ТОПЛИВО-КИСЛОРОДНЫХ СМЕСЕЙ

© 2019 г. И. В. Кочетов<sup>a, b</sup>, Н. Л. Александров<sup>c, \*</sup>

 $^a$  Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований, Троицк, Москва, Россия  $^b$  Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, Россия

 $^{c}$  Московский физико-технический институт, Долгопрудный, Россия

\*e-mail: nick\_aleksandrov@mail.ru
Поступила в редакцию 26.01.2019 г.
После доработки 02.03.2019 г.
Принята к публикации 25.03.2019 г.

Выполнен расчет коэффициентов, определяющих перенос электронов в неоднородной слабоионизованной неравновесной плазме паров воды и топливно-кислородных смесей в зависимости от степени окисления горючего. Вычисления сделаны для водородного и углеводородного топлива. Показано, что наработка паров воды при окислении топлива оказывает наибольшее влияние на электронные коэффициенты переноса. С использованием полученных коэффициентов определены области параметров, при которых возможно развитие термотоковой неустойчивости в рассматриваемых газовых смесях. Область приведенных электрических полей, для которых возможно развитие этой неустойчивости в плазме, расширяется с ростом степени окисления горючего и становится наибольшей при полном окислении горючего.

### **DOI:** 10.1134/S0367292119080055

#### 1. ВВЕДЕНИЕ

Перенос электронов определяет электрический ток в разрядной плазме и многие другие ее свойства. В неравновесных условиях, вызванных присутствием сильного электрического поля в слабоионизованной плазме, коэффициенты электронного переноса зависят от неравновесного распределения электронов по энергиям, которое обычно находится из численного решения уравнения Больцмана [1, 2]. Методы экспериментального и теоретического определения электронных коэффициентов хорошо развиты [2], поскольку они являются входными параметрами при моделировании свойств низкотемпературной неравновесной плазмы, а также используются при получении информации о сечениях рассеяния электронов на атомах и молекулах. При этом основное внимание уделяется скорости дрейфа и коэффициенту поперечной диффузии электронов, и, в несколько меньшей степени, коэффициенту продольной диффузии электронов. Отчасти последнее связано с тем, что расчет этого коэффициента более сложен – для этого надо не только определять функцию распределения электронов по энергиям в однородной плазме, но и вычислять ее поправку (в первом порядке теории

возмущений) из-за неоднородности плотности электронов [2].

В ряде случаев становится необходимым учитывать и коэффициенты, описывающие электронный перенос, вызванный неоднородным электрическим полем. Этот перенос имеет термодиффузионную природу, поскольку приведенное электрическое поле E/N (N — плотность нейтральных частиц) контролирует среднюю энергию электронов в неравновесной слабоионизованной плазме. От этих коэффициентов зависит, например, развитие некоторых неустойчивостей в разрядной плазме [3-7]. Расчет этих электронных коэффициентов также требует не только численного решения уравнения Больцмана для однородной плазмы, но и вычисления поправок к функции распределения электронов для учета неоднородности напряженности электрического поля. Электронные коэффициенты "термодиффузии" были вычислены для различных газов [8, 9]. При этом не только определялись их величины в зависимости от параметра E/N, но и изучалось влияние на эти коэффициенты внешнего магнитного поля [10], электрон-электронных столкновений при повышенной степени ионизации плазмы [11] и ударов второго рода при повышенной степени колебательного возбуждения молекул [12].

Неравновесная плазма в парах воды, влажном воздухе и других Н<sub>2</sub>О-содержащих газовых смесях встречается в условиях атмосферы и при развитии разрядов вблизи поверхности воды. Плазма такого типа находит применение в ряде областей, включая очистку воздуха от вредных примесей и плазменную медицину [13-15]. Свойства такой плазмы, включая ее устойчивость, в значительной степени зависят от рассеяния электронов на молекулах Н<sub>2</sub>О, которое идет особенно эффективно при малых энергиях электронов из-за большого постоянного дипольного момента этих молекул. Другим направлением приложений неравновесной низкотемпературной плазмы, может происходить взаимодействие электронов с парами воды, является стимулированное плазмой воспламенение и горение [16-20]. Для моделирования воздействия плазмы на процессы окисления и горения необходимо знать электронные характеристики, включая электронные коэффициенты переноса. При частичном окислении топлива образуются углекислый газ и пары воды, появление которых в смесях топлива с кислородом может сильно сказаться на свойствах плазмы.

В данной работе проведен расчет электронных коэффициентов диффузии и "термодиффузии", описывающих их перенос поперек и вдоль электрического поля, для плазмы в парах воды и топливо-кислородных смесях в зависимости от степени окисления топлива. Результаты вычислений использованы для анализа условий развития термотоковой неустойчивости такой плазмы. Эта работа является продолжением исследования [21], где для аналогичных смесей выполнены расчеты энергетического распределения электронов, их скорости дрейфа и констант скорости электронных процессов. Полученные данные использовались в [21] для самосогласованного моделирования окисления топлива под действием периодического импульсного наносекундного разряда.

#### 2. ЭЛЕКТРОННЫЕ КОЭФФИЦИЕНТЫ ПЕРЕНОСА

В слабоионизованном газе или плазме, находящихся во внешнем электрическом поле E, энергетическое распределение электронов становится неравновесным, если приведенное электрическое поле E/N достаточно велико, а степень ионизации достаточно мала [1, 2]. При неоднородном распределении в пространстве плотности электронов n и параметра E/N потоки электронов поперек и вдоль электрического поля имеют вид [3—6]

$$\Gamma_T = -D_T \nabla_{\perp} n - n \frac{\partial D_T}{\partial (E/N)} \nabla_{\perp} \left( \frac{E}{N} \right)$$
 (1)

$$\Gamma_L = nw - D_L \nabla_{\parallel} n - n \frac{D_E}{E/N} \nabla_{\parallel} \left(\frac{E}{N}\right), \tag{2}$$

где  $D_T$  и  $D_L$  — коэффициенты поперечной и продольной диффузии электронов соответственно, а *w* — скорость дрейфа электронов. Последние члены в правых частях уравнений (1) и (2) имеют термодиффузионную природу. Выражения (1) и (2) справедливы в случае, когда степень неоднородности невелика:  $L \gg \lambda_{\varepsilon}$ , где L – характерный размер неоднородности плотности электронов и электрического поля, а  $\lambda_{\epsilon}$  – характерная длина релаксации энергии электронов. Значения w и  $D_T$ находятся при интегрировании функции распределения электронов по энергиям, получаемой в однородных условиях, а для определения коэффициентов  $D_L$  и  $D_E$  необходимо дополнительно решать уравнение Больцмана для электронов в первом порядке разложения по градиентам и и E/N. Уравнения для определения  $D_L$  в рамках известного двучленного приближения приведены, например, в [2], а уравнения для определения  $D_E$ получены в [3] и использовались в расчетах [8—

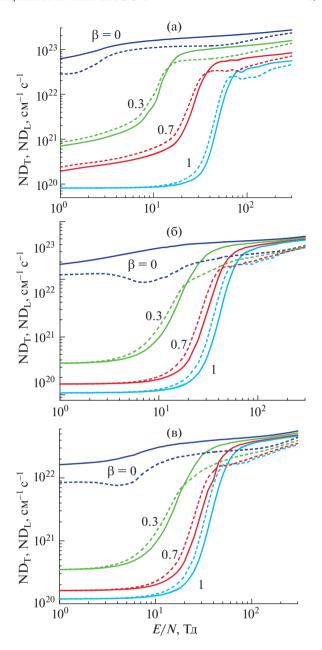
В условиях, когда степень неравновесности энергетического распределения электронов мала, степень анизотропии диффузии и "термодиффузии" электронов также малы, т.е.  $D_L \approx D_T$  и  $D_E \approx (E/N)\partial D_T/\partial (E/N) = \partial D_T/\partial \ln(E/N)$ . В случае неравновесного распределения электронов эти процессы переноса являются изотропными только при условии, что частота релаксации импульса электронов  $V_m$  не зависит от энергии электронов [3—6]. Это условие редко выполняется при рассеянии электронов на нейтральных частицах, и в неравновесных условиях перенос электронов вдоль электрического поля и поперек него сильно различаются между собой.

В данной работе, наряду с часто вычисляемым коэффициентом  $D_T$ , были вычислены коэффициенты  $D_L$  и  $D_E$  в плазме паров воды и в стехиометрических смесях "топливо : О2" при различных степенях окисления топлива. Расчет коэффициентов  $D_L$  и  $D_E$  выполнялся на основе уравнений, приведенных в [3, 8-12]. Степень окисления определялась как  $\beta = 1 - N_f / N_{f0}$ , где  $N_f$  — концентрация молекул топлива в смеси при его частичном окислении, а  $N_{f0}$  — начальная концентрация молекул топлива (без окисления). В роли топлива рассматривались часто используемые при изучении плазменного воспламенения Н2 и углеводороды — метан ( $CH_4$ ) и пропан ( $C_3H_8$ ). При полном окислении топлива в стехиометрических смесях с  $O_2$  в результате образуется  $H_2O$  в случае водородного топлива и смесь CO<sub>2</sub>: H<sub>2</sub>O в

случае углеводородного топлива. При этом окисление идет многоступенчато с образованием разных промежуточных компонентов. В случае Н2 к ним относятся, в частности, соединения ОН, НО и Н<sub>2</sub>О<sub>2</sub>. При окислении углеводородов также образуются разнообразные углеводородные радикалы [22]. Обычно их концентрация относительно невелика, и, как показано в расчетах [21], при вычислении энергетического распределения электронов и интегральных электронных характеристик можно пренебречь рассеянием электронов на промежуточных компонентах. Поэтому в данном исследовании электронные характеристики вычислялись с учетом рассеяния электронов на  $H_2$ ,  $O_2$  и  $H_2O$  при окислении в смеси  $H_2$ :  $O_2$ . В случае смесей  $CH_4$ :  $O_2$  и  $C_3H_8$ :  $O_2$  учитывалось рассеяние электронов на молекулах СН<sub>4</sub>, С<sub>3</sub>Н<sub>8</sub>, Н<sub>2</sub>О и СО<sub>2</sub>. Основные расчеты были выполнены со следующими самосогласованными наборами электронных сечений:  $H_2$  [23],  $O_2$  [24],  $H_2O$  [25],  $CO_2$  [26],  $CH_4$  [27],  $C_3H_8$  [28]. На основе этих сечений было ранее получено хорошее согласие между расчетными электронными характеристиками и измерениями в чистых газах. Поскольку в данной работе роль рассеяния электронов на молекулах Н<sub>2</sub>О оказалась особенно велика, то некоторые вычисления были выполнены также с сечениями рассеяния электронов на Н<sub>2</sub>О, взятыми из [29].

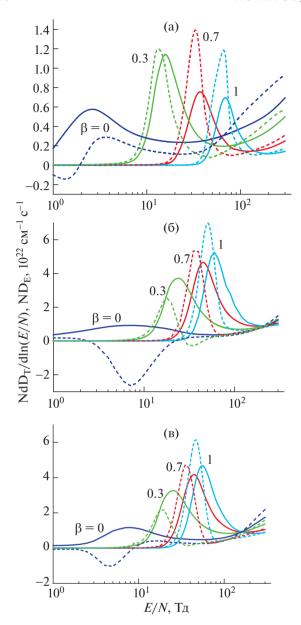
На рис. 1 приведены результаты расчета коэффициентов  $D_L$  и  $D_T$ . Все исследуемые коэффициенты обратно пропорциональны плотности газа N. Поэтому вычисленные коэффициенты приведены умноженными на N, как это обычно делается при представлении коэффициентов диффузии [2]. Расчеты выполнены при различных значениях E/N и степени окисления горючего для температуры газа T = 300 К. Как показано в [21], рост этой температуры может повлиять на электронные характеристики только при малых значениях E/N, когда электроны мало нагреты, и их средняя энергия близка к средней энергии молекул. расчета коэффициентов  $\partial D_T/\partial \ln(E/N)$  представлены на рис. 2. Масштаб изменения исследуемых коэффициентов в рассматриваемой области параметров составляет несколько порядков величины. Поэтому их удобно представлять в логарифмическом масштабе, что и сделано на рис. 1. Однако коэффициент  $D_E$ , в отличие от коэффициентов  $D_T$  и  $D_L$ , может менять знак, из-за этого на рис. 2 выбран линейный масштаб по оси ординат.

Как следует из данных, приведенных на рис. 1, изменение коэффициентов  $D_L$  и  $D_T$  с ростом E/N достаточно близко друг к другу при различных степенях окисления и различных видах топлива. Это изменение удобно анализировать на основе зависимости частоты релаксации импульса элек-



**Рис. 1.** Коэффициенты  $ND_T$  (сплошные линии) и  $ND_L$  (штриховые линии) в стехиометрических смесях  $H_2: O_2$  (а),  $CH_4: O_2$  (б) и  $C_3H_8: O_2$  (в) в зависимости от E/N. Расчеты сделаны при различных степенях окисления топлива  $\beta$ .

тронов  $V_m$  от их энергии. Величина  $V_m$  в чистых газах в зависимости от температуры электронов  $T_e$ , определенной по средней энергии электронов, вычислялась в [21]. Эта зависимость для рассматриваемых газов приведена на рис. 3. Об изменении частоты  $V_m$  с ростом приведенного электрического поля E/N можно также судить по логарифмической производной  $\hat{w} = \ln w/\partial \ln (E/N)$ ,



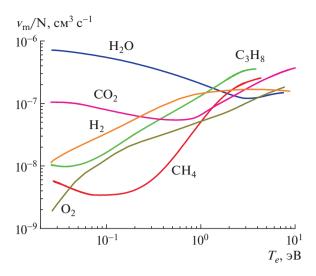
**Рис. 2.** Коэффициенты  $N\partial D_T/\partial \ln(E/N)$  (сплошные линии) и  $ND_E$  (штриховые линии) в стехиометрических смесях  $H_2: O_2$  (а),  $CH_4: O_2$  (б) и  $C_3H_8: O_2$  (в) в зависимости от E/N. Расчеты сделаны при различных степенях окисления топлива  $\beta$ .

которая связана с логарифмической производной частоты  $\hat{\mathbf{v}}_m = \partial \ln \mathbf{v}_m / \partial \ln (E/N)$  соотношением

$$\hat{w} = 1 - \hat{v}_m. \tag{3}$$

На рис. 4 представлены результаты расчета производных  $\partial \ln w/\partial \ln (E/N)$  в исследуемых смесях в зависимости от E/N и степени окисления топлива

Как следует из данных, приведенных на рис. 1, в исходных смесях топливо :  $O_2$  в отсутствие окис-



**Рис. 3.** Частота релаксации импульса электронов в чистых газах в зависимости от температуры электронов.

ления ( $\beta = 0$ ) коэффициент  $D_T$  растет только в несколько раз при изменении E/N на порядки величины. Этот рост связан с тем, что  $D_T \sim mT_e/v_m$ . При этом частота  $v_m$  с нагревом электронов обычно растет медленнее, чем  $T_e$ , как это следует из кривых на рис. З для  $O_2$  и  $H_2$ , которые являются основными компонентами рассматриваемых смесей при  $\beta=0$ . Поэтому рост  $T_e$  с увеличением E/N приводит к относительно медленному росту коэффициента  $D_T$ . Ситуация меняется, когда в результате окисления горючего в смесях появляются молекулы Н<sub>2</sub>О, имеющие из-за большого постоянного дипольного момента аномально высокие сечения упругого (см., например, рис. 3) и неупругого (возбуждение вращательных и колебательных уровней) рассеяния для электронов малых энергий. С ростом энергии электронов эти сечения резко уменьшаются. В результате при не слишком высоких значениях E/N электроны остаются холодными, а коэффициент  $D_T$  при этом не зависит от E/N. Только при увеличении этого параметра до 10-30 Тд (1 Тд =  $10^{-17}$  В · см<sup>2</sup>) начинается нагрев электронов и резкий рост  $D_T$ Этот рост замедляется при высоких полях, когда сечения и частоты рассеяния электронов на Н2О становятся сравнимыми с аналогичными величинами для других молекул.

Поведение коэффициента  $D_L$  удобно анализировать с использованием приближенной теории, развитой в [8, 30] (см. также [4]) на основе уравнения баланса средней энергии электронов в неравновесной плазме. Согласно этой теории

$$(D_T - D_L) \sim \frac{\partial \ln v_m}{\partial \ln T_e} \sim \hat{v}_m. \tag{4}$$

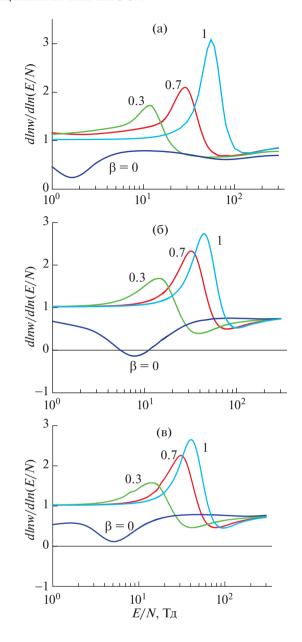
В целом, коэффициент  $D_L$  меняется с ростом E/Nи  $\beta$  подобно коэффициенту  $D_{\tau}$ . Различия между ними наибольшие, когда частота у " сильно меняется с ростом энергии электронов. Это в отсутствие окисления имеет место в смеси  $H_2$ :  $O_2$  при очень малых  $E/N \sim 1-2$  Тд, когда частота  $v_m$  для  $O_2$  резко растет с  $T_e$  (см. рис. 3), и производная  $\hat{w}$ особенно мала (см. рис. 4а). В смесях углеводородов с О2 также наблюдается минимум в зависимости  $D_L$  от E/N из-за резко растущего транспортного сечения рассеяния электронов на молекулах углеводородов после минимума, вызванного эффектом Рамзауэра. При этом в смеси с СН<sub>4</sub> даже имеется область падающей зависимости скорости дрейфа электронов от E/N (см. рис. 46). Для смеси с  $C_3H_8$  эта область отсутствует, поскольку в стехиометрических смесях топливо: О2 доля углеводородов меньше для более сложных углеводородов.

Степень анизотропии диффузии электронов, характеризуемая отношением  $D_L/D_T$ , меняется с ростом E/N и  $\beta$ , поскольку она зависит от степени неравновесности и, как следует из (4), от знака  $\hat{\mathbf{v}}_{m}$ . В смесях в отсутствие окисления топлива  $\hat{\mathsf{v}}_{\scriptscriptstyle m} > 0$  и, как следует из (4),  $D_{\scriptscriptstyle L} \leq D_{\scriptscriptstyle T}$ . При частичном или полном окислении топлива в смеси появляются пары воды с аномально большими сечениями и частотами рассеяния низкоэнергичных электронов на молекулах H<sub>2</sub>O. В этом случае при малых E/N электроны оказываются термализованными с равновесным распределением по энергиям, в результате чего  $D_L \approx D_T$ . С ростом E/Nэлектроны нагреваются, и их распределение по энергиям становится неравновесным. При этом  $\hat{\mathbf{v}}_m < 0$  из-за падающей зависимости  $\mathbf{v}_m$  от энергии электронов для молекул  $H_2O$  и  $CO_2$  (см. рис. 3) и, как следствие, диффузия электронов вдоль электрического поля оказывается более эффективной, чем диффузия поперек поля,  $D_L > D_T$ . Наконец, как следует из данных на рис. 3, при очень высоких энергиях электронов, частота у,, становится растущей функцией от  $T_e$  для всех рассматриваемых молекул, что приводит к неравенству  $D_L \le D_T$  в пределе высоких E/N.

Коэффициенты  $\partial D_T/\partial \ln(E/N)$  и  $D_E$ , описывающие "термодиффузию" электронов поперек и вдоль электрического поля, ведут себя с ростом E/N и  $\beta$  более сложным образом. По аналогии с (4), для них имеется соотношение [8]

$$\left(D_E - \frac{\partial D_T}{\partial \ln(E/N)}\right) \sim \hat{\mathbf{v}}_m f(\mathbf{v}_m, \mathbf{v}_{\varepsilon}), \tag{5}$$

где  $f(v_m, v_{\epsilon})$  — достаточно сложная знакопеременная функция от частот релаксации импульса и энергии электронов. Поскольку, согласно дан-



**Рис. 4.** Производная  $\partial \ln w/\partial \ln(E/N)$  в стехиометрических смесях  $H_2: O_2$  (а),  $CH_4: O_2$  (б) и  $C_3H_8: O_2$  (в) в зависимости от E/N. Расчеты сделаны при различных степенях окисления топлива  $\beta$ .

ным на рис. 1, скорость роста  $D_T$  с увеличением E/N уменьшается и при очень малых, и при очень больших значениях E/N, то коэффициент  $\partial D_T/\partial \ln(E/N)$  проходит через максимум при умеренных величинах E/N. Этот максимум особенно велик для смесей, содержащих пары воды, которые образуются при окислении топлива. При этом с ростом E/N происходит резкое увеличение  $D_T$ , когда электроны перестают быть термализованными и начинают резко нагреваться в электрическом поле. Поведение коэффициента  $D_E$  в

значительной степени напоминает поведение коэффициента  $\partial D_T/\partial \ln(E/N)$ . Коэффициент  $D_E$  также проходит через максимум с ростом E/N, этот максимум почти всегда увеличивается с ростом степени окисления из-за наработки  $H_2O$ , приводящей к увеличению  $\hat{\mathbf{v}}_m$ . По той же причине максимум для  $D_E$  в смесях с  $H_2O$  выше максимума для  $\partial D_T/\partial \ln(E/N)$ . Наконец, как и в случае диффузии электронов, их "термодиффузия" вдоль поля оказывается более эффективной по сравнению с "термодиффузией" поперек поля везде, кроме слишком малых и слишком больших электрических полей.

# 3. ТЕРМОТОКОВАЯ НЕУСТОЙЧИВОСТЬ ПЛАЗМЫ

Вычисленные в работе электронные коэффишиенты были использованы для анализа условий развития в плазме паров воды и смесей топливо: О2 термотоковой неустойчивости, которая может приводить к распространению в разряде волн вдоль электрического поля. Обзор теоретических и экспериментальных исследований этого типа неустойчивости слабоионизованной плазмы дан в [31]. Впервые на возможность развития такой неустойчивости в квазинейтральной плазме указано в [32]. Теоретическое исследование условий ее развития с учетом анизотропии электронных коэффициентов переноса выполнено в [4]. Экспериментальное подтверждение ее развития было получено для квазистационарного тлеющего разряда в гелии [33]. При этом наблюдались периодические колебания тока, напряжения на электродах и потенциала зонда в плазме. Полученные зависимость периода колебаний от давления газа и область приведенных электрических полей E/N, где наблюдались колебания, соответствовали выводам теории.

Вызванные этой неустойчивостью согласованные изменения плотности электронов и электрического поля могут существовать в слабоионизованной плазме в квазистационарном электрическом поле. Механизм развития неустойчивости легко понять для условий, когда длина релаксации энергии электронов  $\lambda_{\epsilon}$  много короче длины волны плазменных возмущений, что позволяет использовать гидродинамическое описание. При наличии неоднородного распределения плотности электронов и электрического поля электронный поток, вызванный этими неоднородностями вдоль электрического поля (вдоль оси x), записывается в виде [3, 4]

$$\Gamma_D = -D_L \frac{\partial n}{\partial x} - n \frac{D_E}{E/N} \frac{\partial (E/N)}{\partial x}.$$
 (6)

Градиенты плотности электронов и электрического поля однозначно связаны между собой при постоянстве плотности электрического тока:

$$enw = const,$$
 (7)

где e — элементарный заряд. В этом случае амбиполярный диффузионный поток двухкомпонентной (электроны и положительные ионы) плазмы вдоль электрического поля сводится к виду [4]

$$\Gamma_A = -(D_L - D_E/\hat{w}) \frac{\mu_i}{\mu_e} \frac{\partial n}{\partial x}, \tag{8}$$

где  $\mu_i$  — подвижность ионов,  $\mu_e$  — подвижность электронов. Из (8) следует, что при выполнении условия

$$D_I < D_E/\hat{w} \tag{9}$$

Диффузия плазмы вдоль электрического поля заменяется на "антидиффузию", когда возмущения плотности не рассасываются, а наоборот, обостряются.

Вывод об обострении возмущений имеет место только при выполнении условия

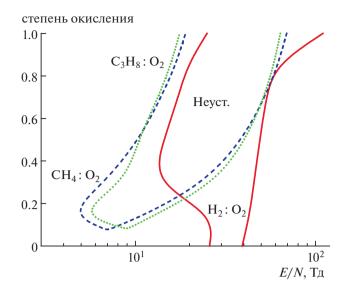
$$v_{\varepsilon} \tau_{M} \ll 1,$$
 (10)

где  $V_{\epsilon}$  — частота релаксации энергии электронов,  $\tau_M$  — максвелловское время релаксации объемного заряда. Если неравенство (10) не выполняется, то продольная амбиполярная диффузия определяется нарушением квазинейтральности плазмы, что всегда приводит к стабилизации возмущений [4].

Из гидродинамической теории следует, что инкремент развития термодиффузионной неустойчивости стремится к бесконечности в пределе малых длин волн. Это означает, что для последовательного описания неустойчивости необходимо использовать кинетический подход. Однако порог развития неустойчивости может быть определен и в рамках более простого гидродинамического подхода на основе расчета транспортных коэффициентов  $D_L$ ,  $D_F$  и w.

Прежние вычисления коэффициентов  $D_L$ ,  $D_E$  и w показали, что условие (9) развития термотоковой неустойчивости выполняется для Не при 4 < E/N < 7 Тд [4, 34], для  $N_2$  при 0.07 < E/N < 0.2 Тд и 70 < E/N < 130 Тд [35] и для  $CO_2$  при 7 < E/N < 23 Тд [36]. Вывод о возможности развития данной неустойчивости в Не при 4 < E/N < 7 Тд был подтвержден и в рамках кинетического подхода на основе численного решения неоднородного уравнения Больцмана для электронов [37].

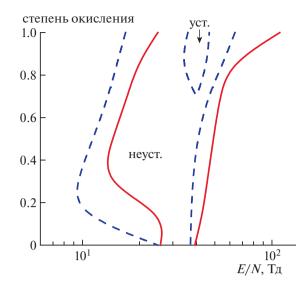
В настоящей работе результаты расчета коэффициентов  $D_L$ ,  $D_E$  и w, приведенные в предыдущем разделе, были использованы для определения областей параметров, в которых возможно развитие термотоковой неустойчивости в смесях  $H_2: O_2, CH_4: O_2$  и  $C_3H_8: O_2$ . На рис. 5 показана



**Рис. 5.** Границы области развития термотоковой неустойчивости в стехиометрических смесях  $H_2: O_2$ ,  $CH_4: O_2$  и  $C_3H_8: O_2$  в плоскости  $\beta - E/N$ .

область, где выполняется условие (9) развития неустойчивости, в плоскости ( $E/N-\beta$ ). Из расчетов следует, что плазма в указанных смесях может стать неустойчивой в диапазоне E/N от 5 до  $100~\mathrm{Tд}$ . При этом в отсутствие окисления топлива ( $\beta=0$ ) область неустойчивости по E/N присутствует только для смеси  $H_2:O_2$ . Даже небольшой степени окисления ( $\beta\sim0.1$ ) достаточно для появления областей неустойчивости и в других исследованных смесях. С ростом степени окисления эти области расширяются и становятся наибольшими при завершении окисления топлива ( $\beta=1$ ), когда стехиометрическая смесь  $H_2:O_2$  превращается в пары воды, а стехиометрические смеси углеводород:  $O_2$  превращаются в смеси  $H_2O:CO_2$ .

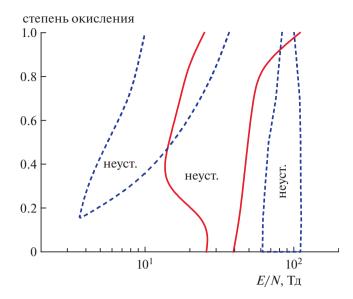
Рассматриваемое поведение электронных коэффициентов переноса, приводящее к существованию области неустойчивости в изучаемых смесях, в значительной мере вызвано рассеянием электронов на молекулах Н<sub>2</sub>О, образуемых при окислении топлива. Представляет интерес вопрос о том, насколько полученный результат чувствителен к выбору набора электронных сечений для этих молекул. Поэтому все расчеты для смеси Н<sub>2</sub>: О<sub>2</sub> с использованием самосогласованного набора сечений рассеяния электронов на Н<sub>2</sub>О [28] были повторены при замене этого набора на другой самосогласованный набор, взятый из [29]. Сравнение полученной области неустойчивости в плоскости ( $E/N - \beta$ ) с найденной ранее (и приведенной на рис. 5) представлено на рис. 6. Использование нового набора сечений приводит к некоторому смещению области неустойчивости в сторону меньших значений E/N. Кроме того, при



**Рис. 6.** Границы области развития термотоковой неустойчивости в стехиометрической смеси  $H_2: O_2$  в плоскости  $\beta - E/N$ . Расчеты выполнены с набором сечений рассеяния электронов на молекулах  $H_2O$  из [28] (сплошные линии) и [29] (штриховые линии).

 $\beta > 0.7$  появляется небольшой "островок" устойчивости. Однако общий вывод о том, что термотоковая неустойчивость может развиваться в плазме  $H_2: O_2$ , и о расширении области неустойчивости с ростом степени окисления, остается неизменным. В частности, сохраняется вывод о возможности развития неустойчивости в плазме паров воды.

Для практических приложений стимулированного плазмой воспламенения представляет интерес также исследовать вопрос о развитии неусточивости в смесях топлива с воздухом. В [38] на основе подхода, использованного в данной работе, были выполнены расчеты границ области развития термотоковой неустойчивости в стехиометрической смеси  $H_2$ : воздух. На рис. 7 сравниваются результаты расчета данной работы для смеси  $H_2$ :  $O_2$  с результатами расчета [38] для смеси Н<sub>2</sub>: воздух, в которой главным компонентом является N<sub>2</sub>. Оба расчета выполнены с использованием сечений рассеяния электронов на Н2О, взятых из [28]. Разбавление смеси Н2: О2 азотом приводит к существенному изменению границ области развития неустойчивости. В отсутствие окисления ( $\beta = 0$ ) плазма становится неустойчивой при  $25 \le E/N \le 40$  Тд для смеси  $H_2 : O_2$ , в то время как для смеси Н<sub>2</sub>: воздух это имеет место при  $60 \le E/N \le 110$  Тд. С ростом степени окисления водорода область неустойчивости расширяется в смеси  $H_2$ :  $O_2$  и сжимается в смеси  $H_2$ : воздух. Но в последней смеси при увеличении степени окисления до 0.15 и выше появляется



**Рис. 7.** Границы области развития термотоковой неустойчивости в стехиометрических смесях  $H_2: O_2$  (сплошные линии) и  $H_2:$  воздух (штриховые линии) в плоскости  $\beta-E/N$ .

дополнительная область неустойчивости при малых E/N, которая с увеличением  $\beta$  расширяется и сдвигается к большим значениям приведенного электрического поля. Можно сделать вывод, что разбавление смеси  $H_2: O_2$  азотом не приводит к стабилизирующему действию. Вместо этого существенно меняется структура области неустойчивости в плоскости ( $E/N-\beta$ ).

Характерные пространственный и временной масштабы развития термотоковой неустойчивости —  $\lambda_{\varepsilon} \sim D_L/w$  и  $20\lambda_{\varepsilon}/w_i$ , соответственно, где  $w_i = \mu_i E$  — скорость дрейфа ионов [31]. Оценочные значения этих масштабов имеют порядок величины  $\sim 10^{-2}$  см и  $\sim 100$  мкс соответственно, для стехиометрической смеси  $H_2$ :  $O_2$  при  $\beta = 1$  (пары воды), E/N = 10-100 Тд, температуре газа 300 К и давлении 100 Торр. Эта неустойчивость может развиваться в квазистационарных и импульсных (при достаточной продолжительности импульсов) разрядах в парах воды [39-43], которые в последнее время привлекают внимание в связи с их перспективностью в ряде приложений. В то же время термотоковая неустойчивость не успевает развиваться в наносекундных разрядах, которые широко используются для изучения влияния неравновесной разрядной плазмы на окисление и воспламенение топлива [16-20]. Плазма здесь может стать неустойчивой, если она создается высоковольтными наносекундными импульсами и поддерживается между ними в умеренных электрических полях. Такая комбинация импульсного наносекундного разряда и квазистационарного разряда была предложена в [44], чтобы ускорить

воспламенение горючего в топливно-кислородных смесях. В этом случае наносекундный разряд развивается в сильном электрическом поле, а квазистационарный разряд поддерживается в подкритическом электрическом поле. Расчеты данной работы показывают, что термотоковая неустойчивость может в этих условиях развиться в промежутках между высоковольтными импульсами.

Важным является вопрос о том, как может повлиять развитие термотоковой неустойчивости на воспламенение в топливно-кислородных и топливно-воздушных смесях. Поскольку эта неустойчивость приводит к неоднородному распределению в пространстве электрического поля и плотности плазмы, то можно ожидать, что при этом наработка активных частиц в плазме также станет неоднородной. В результате могут образовываться области с повышенной плотностью активных частиц, что должно приводить к ускорению воспламенения. Для количественного описания данного эффекта необходимо провести кинетический (на основе неоднородного уравнения Больцмана для электронов) анализ нелинейной стадии развития неустойчивости. Если характерное время развития неустойчивости сравнимо с временами химических процессов, данная расчетная задача усложняется, поскольку в этом случае надо моделировать развитие неустойчивости с учетом происходящих в плазме химических реакций. Эти вопросы сложны для теоретического рассмотрения и находятся вне рамок настоящей работы.

#### 4. ВЫВОДЫ

В работе проведен расчет транспортных коэффициентов, описывающих перенос электронов в неоднородной слабоионизованной неравновесной плазме для стехиометрических смесей  $H_2$ :  $O_2$ ,  $CH_4 : O_2$  и  $C_3H_8 : O_2$  в зависимости от степени окисления горючего, а также для паров воды. Изменение состава газа при окислении горючего существенно сказывается на электронных коэффициентах диффузии и "термодиффузии". При этом меняются их значения на порядки величины и степень анизотропии, когда перенос электронов вдоль электрического поля может быть как больше, так и меньше переноса поперек поля. Полученные результаты интерпретируются на основе зависимости частот релаксации импульса электронов от их энергии при столкновении с различными молекулами. Основной вклад в резкое изменение транспортных свойств электронов при окислении горючего дают процессы упругого и неупругого рассеяния электронов на молекулах Н<sub>2</sub>О, которые особенно эффективны при малых энергиях электронов.

Вычисленные коэффициенты переноса электронов использованы для исследования возможности развития термотоковой неустойчивости плазмы в рассматриваемых газовых смесях и парах воды. Расчеты показывают, что неустойчивость может развиваться в смеси  $H_2: O_2$  при любой степени окисления водорода, а также в парах воды. В смесях  $CH_4: O_2$  и  $C_3H_8: O_2$  плазма устойчива при отсутствии окисления углеводородов. Однако даже небольшая степень окисления приводит к появлению неустойчивости. С ростом степени окисления топлива область приведенных электрических полей, где может наблюдаться неустойчивость, расширяется.

Полученные результаты могут представлять интерес при исследовании квазистационарных и импульсных разрядов в парах воды и в импульсно-периодических разрядах, используемых при исследовании воздействия неравновесной плазмы на воспламенение в топливно-кислородных смесях.

Работа выполнена при поддержке гранта РНФ № 17-12-01051.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *Райзер Ю.П*. Физика газового разряда. М.: Наука, 1992.
- 2. *Хаксли Л., Кромптон Р.* Диффузия и дрейф электронов в газах. М.: Мир, 1977.
- 3. *Александров Н.Л., Напартович А.П., Старостин А.Н.* // Физика плазмы. 1980. Т. 6. С. 1123.
- 4. Александров Н.Л., Кончаков А.М., Напартович А.П., Старостин А.Н. // Химия плазмы / Под ред. Смирнова Б.М. М.: Энергоатомиздат, 1984. Вып. 11. С. 3.
- 5. *Баранов В.Ю., Напартович А.П., Старостин А.Н.* // Итоги науки и техники. Сер. Физика плазмы / Под. ред. Шафранова В.Д. М.: ВИНИТИ, 1984. Т. 5. С. 90.
- Aleksandrov N.L. // Electron Kinetics and Applications of Glow Discharges / Eds. U. Kortshagen, L. D. Tsendin. N.Y.: Plenum Press, 1998. P. 179.
- 7. Dyatko N.A., Kochetov I.V., Napartovich A.P. // Plasma Sources Sci. Technol. 2014. V. 23. P. 043001.
- 8. *Александров Н.Л., Кончаков А.М.* // Физика плазмы. 1981. Т. 7. С. 185.
- 9. *Александров Н.Л., Кончаков А.М.* // Теплофизика высоких температур. 1983. Т. 21. С. 1.
- 10. *Александров Н.Л., Кончаков А.М.* // Физика плазмы. 1985. Т. 11. С. 1140.
- 11. *Александров Н.Л., Кочетов И.В.* // Физика плазмы. 1991. Т. 17. С. 728.
- Aleksandrov N.L., Kochetov I.V. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1993. V. 26. P. 387.
- 13. *Fridman A*. Plasma chemistry. Cambridge: Cambridge University Press, 2008.
- 14. Kong M.G., Kroesen G., Morfill G., Nosenko T., Shimizu T., van Dijk J., Zimmermann J.L. // New J. Phys. 2009. V. 11. 115012.

- Bruggeman P.J., Kushner M.J., Locke B.R., Gardeniers J.G.E., Graham W.G., Graves D.B., Hofman-CarisR.C.H.M., Maric D., Reid J.P., Ceriani E., Fernandez Rivas D., Foster J.E., Garrick S.C., Gorbanev Y., Hamaguchi S., Iza F., Jablonowski H., Klimova E., Kolb J., Krcma F., Lukes P., Machala Z., Marinov I., Mariotti D., Mededovic Thagard S., Minakata D., Neyts E.C., Pawlat J., Petrovic Z.Lj., Pflieger R., Reuter S., Schram D.C., Schroter S., Shiraiwa M., Tarabova B., Tsai P.A., Verlet J.R.R., von Woedtke T., Wilson K.R., Yasui K., Zvereva G. // Plasma Sources Sci. Technol. 2016. V. 25. 053002.
- Starikovskaia S.M. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2006.
   V. 39, P. R265.
- Adamovich I.V., Choi I., Jiang N., Kim J.-H., Keshav S., Lempert W.R., Mintusov E., Nishihara M., Samimy M., Uddi M. // Plasma Sources Sci. Technol. 2009. V. 18. P. 034018.
- 18. Starikovskiy A., Aleksandrov N. // Progr. Energy Comb. Sci. 2013. V. 39. P. 61.
- Starikovskaia S.M. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2014.
   V. 47. P. 353001.
- Ju Y., Sun W. // Progr. Energy Comb. Sci. 2015. V. 48.
   P. 21.
- 21. Kochetov I.V., Aleksandrov N.L. // Plasma Sources Sci. Technol. 2018. V. 27. P. 115004.
- 22. Варнатц Ю., Маас У., Диббл Р. Горение. Физические и химические аспекты, моделирование, эксперименты, образование загрязняющих веществ. М.: Физматлит, 2003.
- 23. TRINITI database, www.lxcat.net, retrieved on November 20, 2017.
- 24. Ionin A.A., Kochetov I.V., Napartovich A.P., Yuryshev N.N. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2007. V. 40. P. R25.
- 25. *Hayashi M.* database, www.lxcat.net/Hayashi, retrieved on November 20, 2017.
- 26. *Кочетов И.В., Наумов В.Г., Певгов В.Г., Шашков В.М.* // Квантовая электроника. 1979. Т. 6. С. 1446.
- 27. Деминский М.А., Чернышева И.В., Уманский С.Я., Стрелкова М.И., Баранов А.Е., Кочетов И.В., Напартович А.П., Соммерер Т., Садюги С., Хербон Дж., Потапкин Б.В. // Хим. физ. 2013. Т. 32. С. 24.
- Hayashi M. // Electron collisi on cross-section determined from beam and swarm data by Boltzmann analysis Series B: Physics. V. 220 / Eds. M. Capitelli, J.N. Bardsley. N.Y.: Plenum Press, 1990. P. 333.
- 29. Yousfi M., Azzi N., Segur P., Gallimberti I., Stangherlin S. Electron-molecule collision cross sections and electron swarm parameters in some atmospheric gases. Report CPAT. Toulouse: Universit'e Paul Sabatier, 1988.
- 30. Parker J.H., Lowke J.J. // Phys. Rev. 1969. V. 181. P. 290.
- 31. *Dyatko N.A., Kochetov I.V., Napartovich A.P.* // Plasma Sources Sci. Technol. 2014. V. 23.P. 043001.
- 32. Тимофеев А.В. // ЖТФ. 1970. Т. 40. С. 192.
- 33. Акишев Ю.С., Дятко Н.А., Лораткин И.Н., Минина И.В., Напартович А.П., Кочетов И.В. // Тез. докл. VII Всесоюз. конф. по физике низкотемпературной плазмы. Ташкент: Фан, 1987. Ч. 1. С. 261.
- 34. *Aleksandrov N.L., Kochetov I.V.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 1991. V. 24. P. 2164.

- 35. Aleksandrov N.L., Kochetov I.V., Konchakov A.M. // J. Phys. D: Appl. Phys. 1995. V. 28. P. 1072.
- Александров Н.Л., Кочетов И.В. // Физика плазмы. 1991. Т. 17. С. 735.
- 37. *Швейгерт В.А.* // Физика плазмы. 1988. Т. 14. С. 1263.
- 38. Kochetov I.V., Aleksandrov N.L. // Plasma Sources Sci. Technol. 2019. V. 28. P. 025009.
- Sato M. // Plasma Sources Sci. Technol. 2008. V. 17. P. 024021.
- Rybkin V., Kuvaldina E., Grinevich A., Choukourov A., Iwai H., Biederman H. // Plasma Process. Polim. 2008. V. 5. P. 778.

- 41. Шуаибов А.К., Генерал А.А., Кельман В.А., Шевера И.В. // Письма ЖТФ. 2008. Т. 34. С. 6.
- 42. Шуаибов А.К., Генерал А.А., Шпеник Ю.О., Жменяк Ю.В., Шевера И.В., Грицак Р.В. // Письма ЖТФ. 2008. Т. 34. С. 6.
- 43. *Avtaeva S.V., General A.A., Kel'man V.A.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2010. V. 43. P. 315201.
- 44. *Mao X., Rousso A., Chen Q., Ju Y.* // AIAA SciTech Forum and Exposition (American Institute of Aeronautics and Astronautics, Kissimmee, FL, 8–12 January 2018). 2018. AIAA paper 2018-0928.