

На правах рукописи

Заклецкий Захар Александрович

Влияние плазмы на взаимодействие микроволнового излучения с
порошковыми засыпками металлических и диэлектрических
микрочастиц

Специальность 1.3.9. Физика плазмы

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-
математических наук

Москва – 2024

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Федеральном исследовательском центре «Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук» (ИОФ РАН)

Научный руководитель: Гусейн-заде Намик Гусейнага оглы
доктор физико-математических наук,
профессор, главный научный
сотрудник ИОФ РАН

Официальные оппоненты: Шахатов Вячеслав Анатольевич
доктор физико-математических наук,
ведущий научный сотрудник Института
нефтехимического синтеза им. А.В.
Топчиева РАН

??????????????

Ведущая организация: Федеральное государственное
бюджетное образовательное
учреждение высшего образования
«Московский государственный
университет имени М. В. Ломоносова»

Защита диссертации состоится XX XXXXXXXX 2024 г. в XX:XX на заседании диссертационного совета 24.1.223.02 при ИОФ РАН по адресу: 119991, Москва, ул. Вавилова, д. 38, корп. 1, конференц-зал.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ИОФ РАН <https://diss.gpi.ru/all/>.

Автореферат разослан «__» _____ 2023 г.

Ученый секретарь диссертационного совета 24.1.223.02 канд. физ.-мат. наук тел.: +7 (499) 503-8777 доб. 1-47 Т.Б. Воляк

Актуальность темы диссертации

В данной диссертационной работе проведено исследование влияния плазмы на взаимодействие микроволнового излучения гигагерцового диапазона с металлодиэлектрическими средами. К таким средам можно отнести порошковые засыпки из металлических и диэлектрических частиц с характерным размером от микрона до миллиметра. При этом в большинстве случаев при взаимодействии излучения с такой средой будет происходить инициирование микроволнового разряда, который также будет взаимодействовать как с излучением, так и с частицами и газовой атмосферой. Данная задача является частью более общего направления, связанного с взаимодействием микроволновых разрядов с поверхностью твёрдых тел. К такому направлению можно отнести, например, осаждение алмазных и алмазоподобных пленок из газовой фазы микроволнового разряда, поддерживаемого микроволновыми пучками гигагерцового диапазона или синтез наночастиц из газоплазменного микроволнового факела.

Взаимодействие микроволнового излучения с плазмой является важной частью задачи плазмохимии в микроволновых разрядах при давлении в газовой среде более 10^{-2} Торр. Одной из разновидностью микроволновых разрядов является подпороговый микроволновый разряд, который распространяется в свободном пространстве в электромагнитном поле с допробойной величиной электрической напряжённости для данной среды. В зависимости от параметров инициирующего и поддерживаемого микроволнового излучения происходит образование неустойчивости электронной концентрации в разряде. В таком случае микроволновые разряды являются сильно пространственно неоднородными, состоят из двух областей контрагированных нитей, связанных с образованием ионизационно-перегревных неустойчивостей и диффузионного ореола вокруг них. Параметры плазмы в области неустойчивости близки к параметрам квазиравновесной плазмы, в которой газовая температура имеет значения более 5000 К. Такая плазма генерируется, например, в дуговых разрядах, однако в отличие от них микроволновый разряд поддерживается в свободном пространстве, что позволяет избежать эрозии электродов в продукты химических реакций. Также пространственная неоднородность позволяет диссоциировать большой класс химических газообразных соединений с высокой скоростью и при соответствующей величине диффузии активных частиц в холодные области разряда, замедлять скорость обратных реакций, что обеспечивает стабилизацию продуктов плазмохимического синтеза.

Данные виды разрядов движутся противоположно направлению волнового вектора микроволнового излучения со скоростью, зависящей от мощности излучения. В случае, если на пути распространения разряда расположить диэлектрические препятствие с линейным размером большим диаметра микроволнового пучка разряд после взаимодействия с диэлектрическим препятствие будет некоторое время до нескольких мс поддерживаться вблизи ее поверхности. О данном виде взаимодействия известно достаточно мало, однако можно ожидать, что данный вид разряда может быть схож по своим параметрам

с разрядом, который возникает при облучении микроволновым излучением порошковых засыпок металлических и диэлектрических частиц.

Микроволнового разряд в порошковых засыпках состоит из стадии иницирования, поддержания и релаксации, каждая из которых определяется собственными физико-химическими процессами, что существенно усложняет исследование. Также стоит отметить, что иницирование разряда возможно как в плотноупакованных засыпках, так и в свободных засыпках, в которых происходит подъём отдельных частиц порошковой засыпки в газовый объём. Однако несмотря на высокую сложность задачи на данный момент микроволновый разряд в порошках позволяет исследовать ряд интересных в промышленности направлений, связанных с порошковыми технологиями. Одно из ключевых направлений применения данного разряда является синтез сложных металлодиэлектрических частиц, типа металлических наночастицы, внедрённые в поверхности микроразмерных оксидных, оксонитридных и нитридных частиц-носителей. Данные частицы вызывают высокий интерес в каталитической промышленности, например, недавние наши работы, связанные с получением частиц Pt/Pd на оксидном носителе Al_2O_3 показали их высокую каталитическую активность в реакциях дегидрирования метилциклогексана, являющегося жидким носителем водорода. Кроме этого, были получены также частицы Al, Ni, Cu, Ag и др. металлов на оксидных носителях, которые также являются катализаторами во многих технологических химических процессах. Стоит отметить, что данный метод получения микроразмерных порошков катализаторов является уникальным не только в России, но и в мире. Другим направлением применения разряда в порошках является иницирование твердотельных химических реакций, так же известных как самораспространяющийся высокотемпературный синтез (СВС), который используется для синтеза керамик. Основным интересом применения микроволнового разряда является уникальный метод поджига, в отличие от традиционных методов контактного поджига, микроволновое излучение может иницировать разряд не только на поверхности смесей, но и в её объёме. На данный момент в ИОФ РАН была продемонстрирована возможность поджига термитных смесей, например Al-Fe₂O₃ на воздухе в плотноупакованных засыпках. Данный метод поджига СВС также является уникальным в мире. Ещё одним важным направлением является использование микроволнового разряда для поджига металлических частиц в окислительной среде. Подобные работы, могут представлять интерес как для синтеза частиц, вида шпинелей и более сложных оксидных керамик, так и исследования процессов горения частиц в пылевых облаках. По сравнению с химическими методами получения частиц катализаторов, микроволновый разряд, инициированный в воздушной среде, является экологически чистым методом, который не требует использования дорогостоящих прекурсоров.

Для развития и масштабирования для технологических применений приведённых выше задач в ИОФ РАН необходимо провести совокупность работ,

направленных на модернизацию методов диагностики параметров микроволнового разряда, а также разработку новых инженерных решений позволяющих осуществить управление процессом взаимодействия микроволнового излучения с порошковыми засыпками, например, оценка толщины и формы порошкового слоя для увеличения напряжённости электрического поля в микроволновом пучке для уменьшения порога пробоя. Все эти улучшения также приведут к развитию фундаментальных научных знаний о физико-химических процессах, происходящих при взаимодействии микроволнового излучения с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических частиц. Именно на решение ряда этих задач и направлены исследования проводимые в данной диссертационной работе.

Цели работы - исследование инициирования и развития микроволнового разряда в порошковых засыпках металлических и диэлектрических частиц приводящего к активации физико-химических процессов между частицами и газовой средой.

Для достижения поставленной цели решались следующие задачи:

Развитие экспериментального метода инициирования подпорогового микроволнового разряда на поверхности металлодиэлектрических мишеней

Описание процесса взаимодействия импульсного микроволнового излучения с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических частиц в воздушной атмосфере при нормальных условиях.

Определение особенностей взаимодействия микроволнового излучения с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических частиц влияющих на инициирование микроволнового разряда и синтез частиц.

Научная новизна

1. Экспериментально продемонстрирован процесс инициирования и распространения микроволнового подпорогового разряда на поверхности металлодиэлектрических мишеней

2. Получено значение колебательной и вращательной температуры газовых компонент и электронная плотность микроволнового разряда гигагерцевого диапазона инициированного на поверхности металлодиэлектрической мишени

3. Экспериментально показано при инициировании микроволнового разряда происходит испарение металлической фазы серебра с поверхности мишени

4. Разработана экспериментальная схема для исследования пространственного распределения мощности микроволнового пучка при его прохождении через порошковые засыпки металлических и диэлектрических частиц с целью определения точек инициирования микроволнового разряда.

5. С помощью решения Ми для двухслойных частиц оценён вклад микроволнового нагрева при взаимодействии микроволнового разряда с микронными частицами металлов и диэлектриков.

6. Получена динамика температуры поверхности микронных частиц в порошковой засыпке при инициирование микроволнового разряда и его

поддержании на протяжении 6 мс с помощью микроволнового излучения интенсивностью 10 кВт/см^2 в воздушной атмосфере.

7. С помощью оптической и электронной микроскопии после экспериментальной серии по иницированию микроволнового разряда в порошковых засыпках обнаружены характерные продукты сгорания частиц алюминия в виде полых сферических гладких микронных частиц.

Положения, выносимые на защиту

1. В сфокусированном микроволновом пучке импульсного излучения гигагерцового диапазона интенсивностью 10 кВт/см^2 реализовано иницирование и поддержание разряда на поверхности металлодиэлектрической мишени, содержащей серебряные включения субмикронного размера в атмосфере воздуха при нормальном давлении, в котором вращательная температура газовой компоненты CN составляет более 5000 К при электронной плотности порядка 10^{14} см^{-3} , что приводит к испарению металлической фазы с поверхности мишени.

2. С помощью эксперимента и численного моделирования показано, что на иницирование разряда в порошковой засыпке металлических и диэлектрических частиц микронного размера оказывает микроволновый нагрев и перераспределение напряжённости поля из-за дифракции микроволнового пучка при этом определено влияние микроволнового нагрева на температуру металлических и диэлектрических частиц в засыпке до момента иницирования разряда.

3. Экспериментально доказано, что при взаимодействии микроволнового излучения с интенсивностью 10 кВт/см^2 с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических частиц в воздушной атмосфере при нормальных условиях происходит иницирование разряда приводящий к нагреву металлических частиц до температуры достаточной для активации химических реакций горения.

Соответствие результатов исследования паспорту специальности:

Решённые в данной диссертационной работе задачи и полученные результаты соответствуют областям исследования научной специальности 1.3.9 Физика плазмы, а именно пункты паспорта специальности по ВАК номер 4, 10.

Практическая значимость работы

Представленные в диссертационной работе результаты направлены на разработку и создание новых методов обработки поверхности твёрдых тел, получения сложных металлодиэлектрических частиц связанных с физико-химическими процессами взаимодействия микроволнового излучения гигагерцового диапазона и иницированного с помощью данного излучения подпорогового микроволнового разряда. Оба полученных результата имеют возможность быть использованы для разработки технологического процесса, направленного на замещение текущих химическими методами требующих дорогостоящих и токсичных прекурсоров на физические методы, использующие

только электроэнергию. Также в получении результатов важную роль играет развитие электроники высоких мощностей, а именно создание возможностей для использования таких экспериментальных установок на базе гиротронов, которые в будущем могут занять важное место во многих технологических процессах синтеза микро и наночастиц.

Личный вклад автора

Для всех глав все представленные результаты диссертационной работы получены автором лично или при его непосредственном участии в выполнении эксперимента. Автором лично были предложены и реализованы все экспериментальные и теоретические работы, а также полностью обработаны все экспериментальные данные со всех доступных диагностик. Интерпретация результатов осуществлялась автором лично.

Апробация работы и публикации

Основные результаты диссертационной работы опубликованы в 4 статьях в рецензируемых научных изданиях из перечня ВАК, также входящих в международные базы данных WoS и Scopus. Результаты работы докладывались на семи всероссийских и международных конференциях, а также на научных семинарах ИОФ РАН, Физфака МГУ им. М.В. Ломоносова и др.

Объем и структуры диссертации

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 100 страниц, включая 42 рисунка и 1 таблицы. Список литературы включает в себя 70 наименований.

Содержание работы

Во введении обозначены актуальность данной работы, сформулированы основные цели и задачи, которые будут решаться в работе, также приведены новизна, практическая значимость, личный вклад, апробация результатов диссертации и положения, выносимые на защиту.

В первой главе проведено экспериментальное исследование инициирования и поддержания микроволнового разряда на поверхности диэлектрической пластины с внедрёнными частицами серебра микронного размера (мишень рисунок 1) с помощью гигагерцового линейно-поляризованного излучения гиротрона при средней интенсивности в гауссовом пучке 10 кВт/см^2 (рисунок 2). Было показано, что для мишени с микронными металлическими внедрениями в воздушной атмосфере при нормальных условиях задержка инициирования разряда составляет от 10 до 40 мкс, что хорошо согласуется с ранее полученным соотношением интенсивности в пучке Ψ и длительности импульса τ_i $\Psi\tau_i \geq 0.1 \text{ Дж/см}^2$, определяющего пробой на металлодиэлектрической мишени в поле гигагерцового излучения.

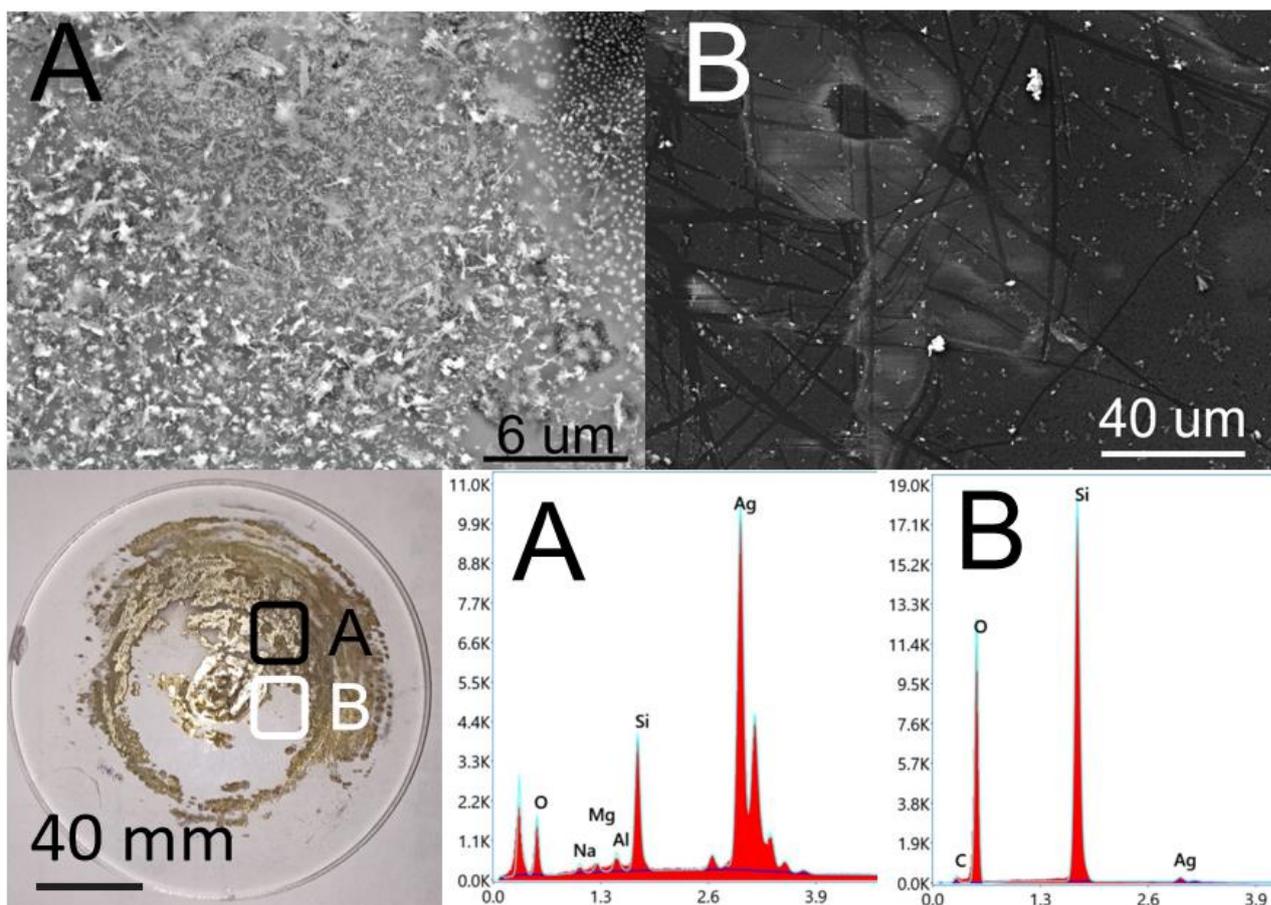


Рисунок 1 – На рисунке изображена поверхность металл/диэлектрической мишени для которой приведены результаты ЭДС сканирования двух характерных областей: А - в области микрометаллических образований серебра и Б - область кварцевой подложки.

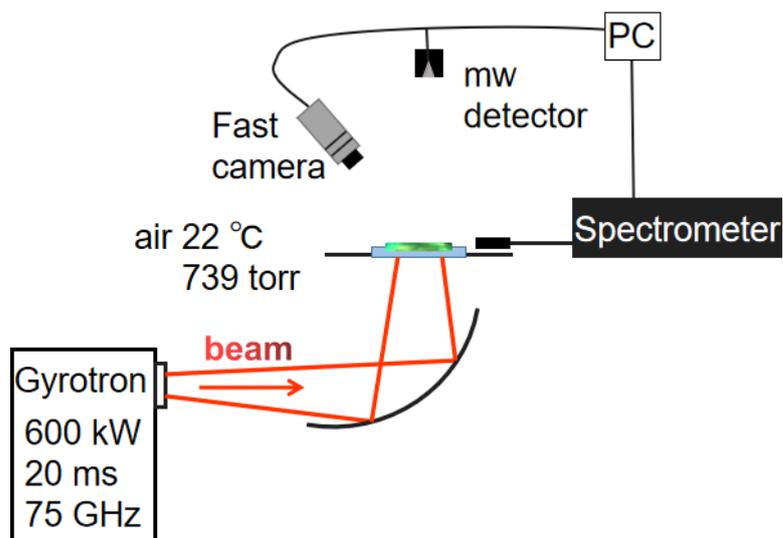


Рисунок 2 – Схема экспериментального стенда для исследования поверхностного микроволнового разряда

После инициирования, разряд представляет собой плазменный слой, распространяющийся вдоль поверхности мишени, толщина слоя составляет от 100 мкм до 1 мм. Определена средняя по длительности импульса скорость фронта

разряда вдоль направления вектора электрической напряжённости в пучке, которая составляет от 10 до 40 м/с. Средняя скорость распространения разряда в поперечном направлении относительно вектора электрической напряжённости намного меньше соответствующей величины скорости сонаправленной с вектором электрического поля. При последовательном облучении мишени 6 микроволновыми импульсами с одинаковыми параметрами интенсивности и длительности показано, что площадь покрытия разряда пучком имеет пороговый характер, связанный с уменьшением металлических вкраплений в результате их испарения и окисления. В таком случае для наибольшей скорости распространения разряда на всю площадь пучка необходимо создать условия, при которых разряд будет инициироваться при наибольшей концентрации металлических включений. Пространственная структура разряда является неоднородной по сечению пучка. Наблюдаются концентрические периодические области, которые связаны с перераспределением напряжённости поля пучка в следствии дифракции на круглой диэлектрической мишени. В области разряда наблюдаются яркие точечные объекты, соответствующие нагретым металлическим частицам серебра. Скорость релаксации разряда по результатам видеонаблюдений и спектральных измерений составляет менее 1 мс, что соответствует литературным данным по исследованию подпороговых гигагерцовых разрядов.

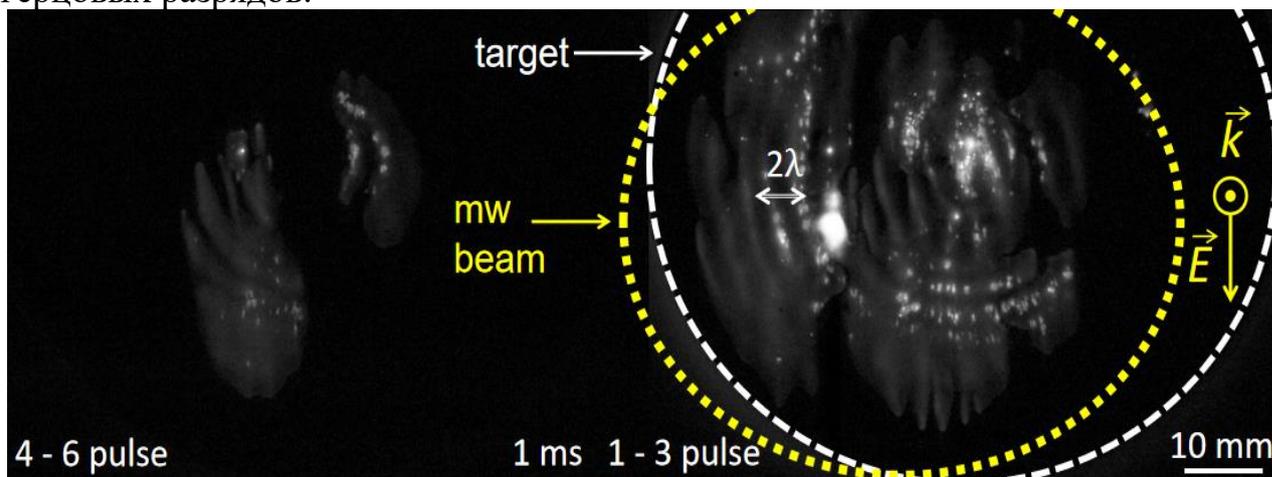


Рисунок 3 – Характерные изображения поверхностного микроволнового разряда в первых трех импульсах и в трех последующих в момент времени 1 мс после начала генерации микроволнового импульса

Спектральный анализ разряда свидетельствует о процессе испарения металлических включений на протяжении всей длительности СВЧ импульса, которая в данных экспериментах составляла 6 мс. Также подтверждается гипотеза о начале пробоя вблизи металлической поверхности частиц, поскольку в спектрах наблюдаются атомарные линии металлов одновременно (в одном кадре интегрирования спектра излучения во времени) и молекулярные полосы, соответствующие возбуждению вращательно-колебательных уровней двухатомных молекул в газовой атмосфере.

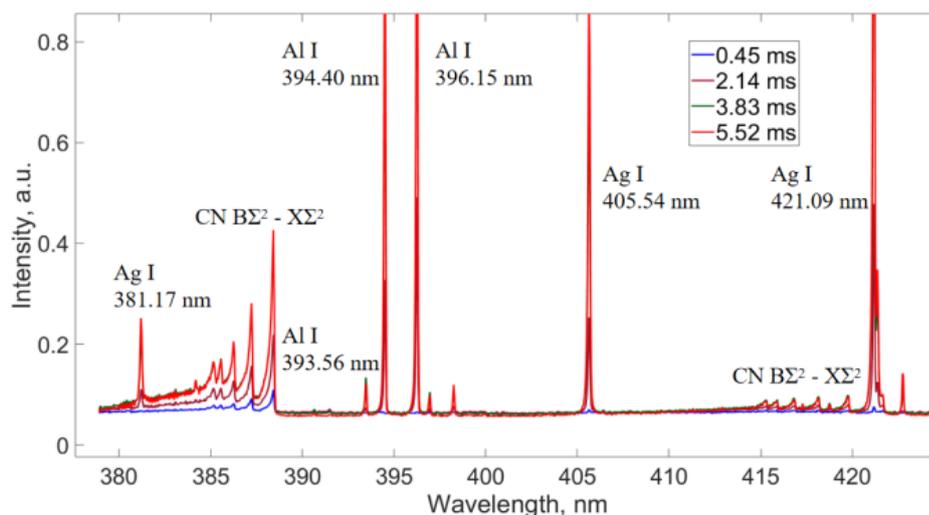


Рисунок 4 – Обзорный спектр для диапазона длин волн 375-430 нм

По вращательно-колебательной полосе, соответствующей электронному переходу $B^2\Sigma-X^2\Sigma$ молекулы CN, с помощью оригинальной программы была рассчитана колебательная ($T_{\text{vib}} = 6800$ K) и вращательная ($T_{\text{rot}} = 5500$ K) температуры. Для расчета использовалась аппроксимация методом наименьших квадратов экспериментального нормированного на величину максимальной интенсивности линии в полосе синтезированным спектром, учитывающем распределение интенсивности линий по молекулярной полосе согласно принципу Франка-Кондона. Выражение для интенсивности линии для вращательного перехода между двумя уровнями в двухатомной молекуле:

$$I_{j',j''} = C_{\text{em}} \frac{S_{j',j''} Q_{v',v''}}{Q_{\text{rot}} \nu'} (v_{j',j''})^4 e^{-F'J'hc/kT_{\text{rot}}} e^{-G'v'hc/kT_{\text{vib}}}$$

где C_{em} – коэффициент излучения, $S_{j',j''}$ – фактор Холна-Лондона, $Q_{v',v''}$ – коэффициент Франка-Кондона, $\nu_{j',j''}$ – колебательный переход волнового числа (v',v''), Q_{rot} – вращательная статистическая функция, F' и G' – колебательные и вращательные термы, T_{vib} и T_{rot} – колебательная и вращательная температуры. Для сравнения необходимо полученное значение интенсивности в линии свернуть с аппаратной функцией, определяющую разрешающую способность спектрометра σ :

$$I_s(v') = \int I_{j',j''}(v') \frac{1}{2\sqrt{2}\sigma} e^{-\frac{(v-v')}{2\sigma}} dv$$

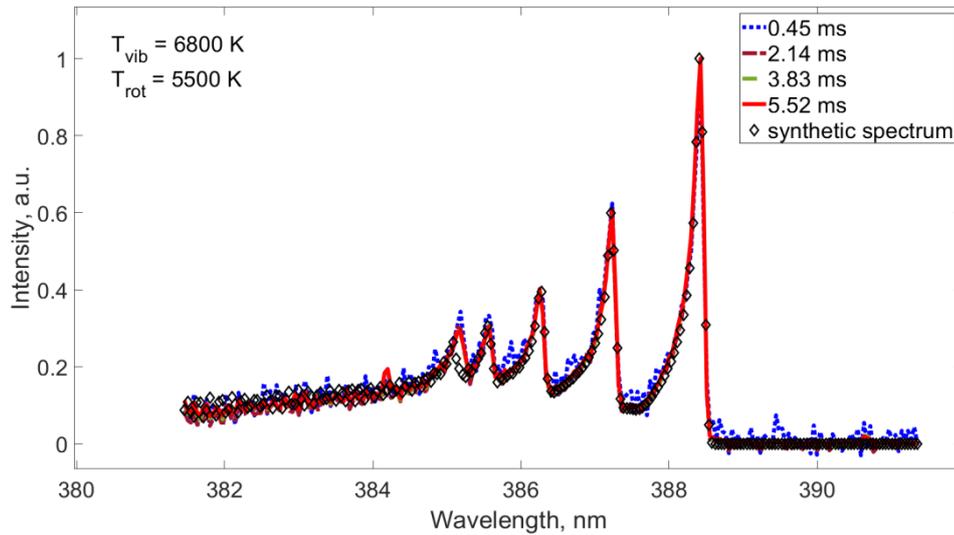


Рисунок 5 - 4 наложенных спектра испускания молекулярной полосы CN в момент времени 0.45, 2.14, 3.83 и 5.52 мс после начала генерации микроволнового излучения и точками представлен расчётный спектр

Расчитанные значения температур сохраняются на протяжении всей длительности СВЧ импульса. Из этого следует, что разряд у поверхности находится в состоянии с устоявшимся распределением возбуждённых частиц в результате нагрева частиц и поглощения энергии микроволнового энергии импульса.

Для оценки плотности электронов в разряде был использован приближенный метод, основанный на равенстве толщины плазменного слоя и глубине проникновения δ_e электрического поля в разряд.

$$\delta_e = \frac{c}{\omega} \left(-\frac{N_c}{N_e} - 1 + \sqrt{\left(1 - \frac{N_e}{N_c}\right)^2 + \left(\frac{N_e v}{N_c \omega}\right)^2} \right)^{-1/2}, \quad (1)$$

$$N_c = \frac{m_e(v^2 + \omega^2)}{4\pi e^2}, \quad (2)$$

Эффективная частота соударений электронов с молекулами газа v без учёта вклада паров металлов можно оценить по формуле, учитывающей температуру электронов и отношение концентраций компонент газа:

$$v = 2.9 \cdot 10^{-7} N_{N_2} T_e (1 + T_e^{1/2})^{-1} + 1.6 \cdot 10^{-8} N_{O_2} T_e^{1/2} (1 + 4.5 T_e^{1/2}), \quad (3)$$

а также по более простой формуле:

$$v = (5.3 \cdot 10^9 \frac{Hz}{Torr}) P. \quad (4)$$

В таком случае плотность электронов N_e (рис.4) может приближаться к критической величине отсечки при учете температуры электронов при расчете частоты электрон-нейтральных соударений (формула 3). В приближении локального термодинамического равновесия для атомов алюминия с помощью метода Больцмана рассчитан диапазон значений температуры T_e , он составляет 6500 – 7500 К.

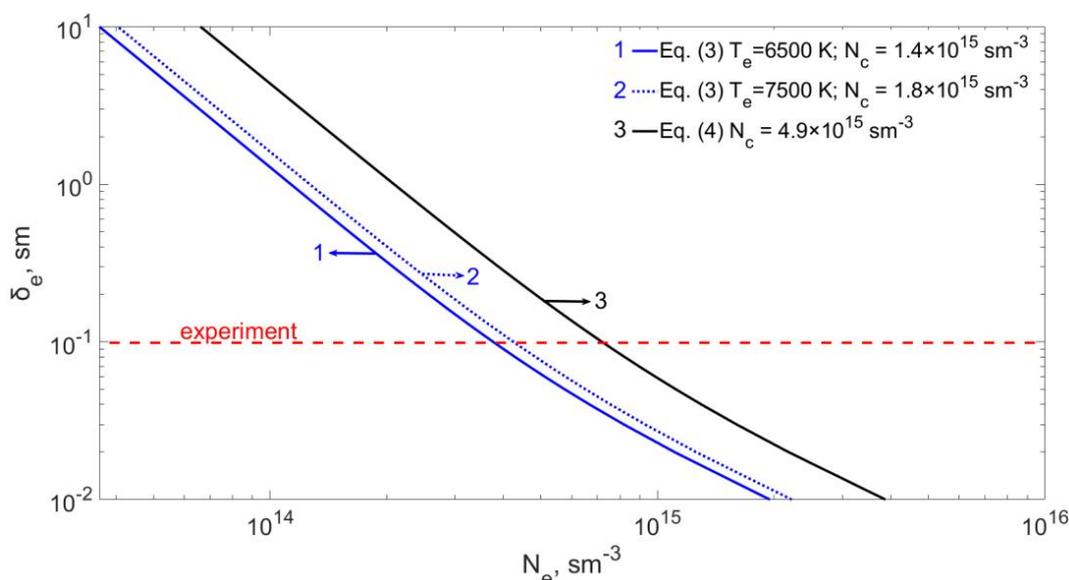


Рисунок 4 - Зависимость глубины проникновения электромагнитного поля в микроволновый плазменный разряд от концентрации электронов в разряде

Во второй главе проведено экспериментальное исследование инициирования микроволнового разряда в порошковых смесях алюминия (металл) и оксида алюминия (диэлектрик) при интенсивности излучения 10 кВт/см^2 . Концентрация металла составляла 20%, средний размер металлических и диэлектрических частиц составлял порядка 50 мкм. Было показано, что инициирование разряда происходит аналогично случаю с металл-диэлектрической мишенью, область разряда при инициировании и поддержании микроволновым излучением занимало тонкий слой у поверхности подложки с порошками частиц (рисунок 5).

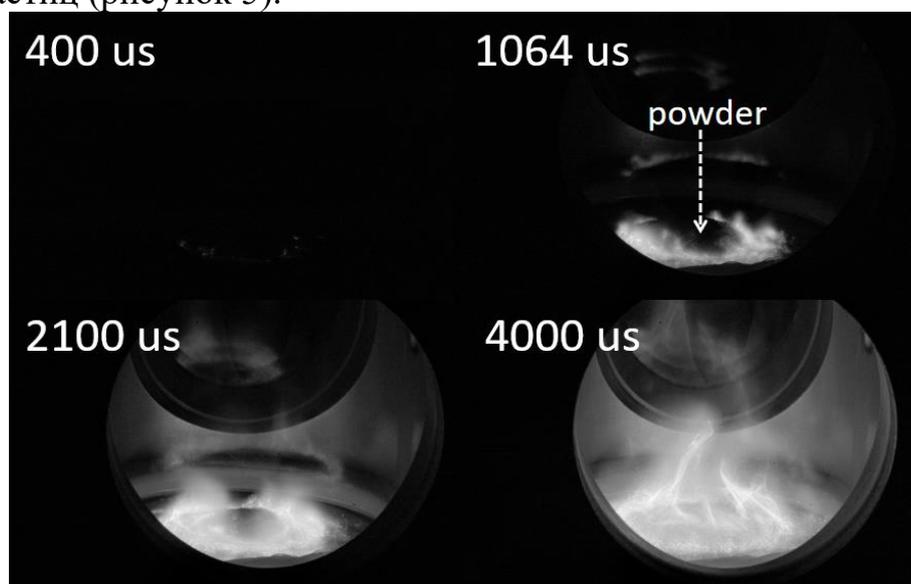


Рисунок 5 - Изображения развитие процессов инициирования, распространения микроволнового разряда, нагрева и разлета частиц порошка.

Объем реактора, в котором находятся частицы можно разделить на две пространственные области: вблизи подложки и порошков (SP-1) и верхняя часть

реактора, в которую происходит подъем частиц (SP-2). При анализе спектров излучения из данных областей можно отметить их существенные различия. Вблизи подложки спектр излучения (рис. 6) состоит из слабо различимых молекулярных полос в области CN, а также теплового континуума, связанного с нагревом частиц. Длительность импульса в экспериментах составляла 6 мс, можно отметить, в течении импульса Виновская температура частиц составляет порядка 2000 К и постепенно уменьшается, что связано с подъемом частиц. После окончания СВЧ импульса, Виновская температура продолжает плавно уменьшаться, что связано с радиационным и конвективным охлаждением частиц, также это подтверждает, что континуум не принадлежит разряду, поскольку его время наблюдения составляет более 1 мс.

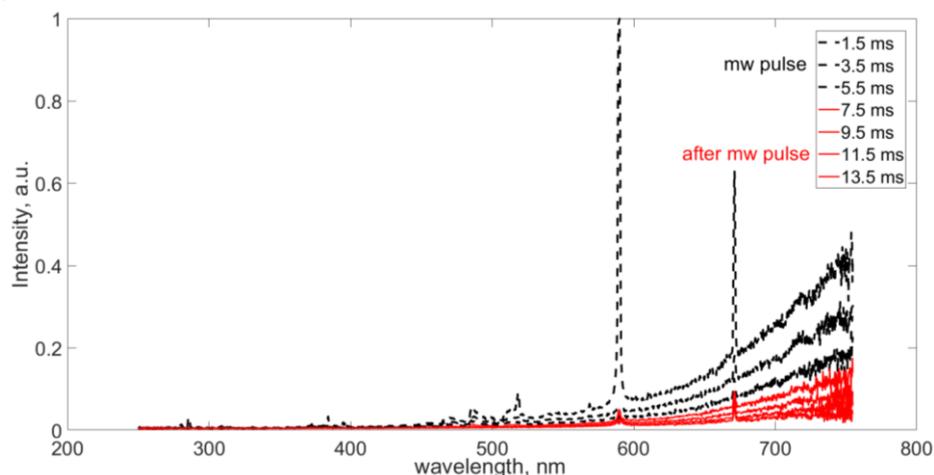


Рисунок 6 - Характерный спектр SP-1 с нижней части плазмохимического реактора

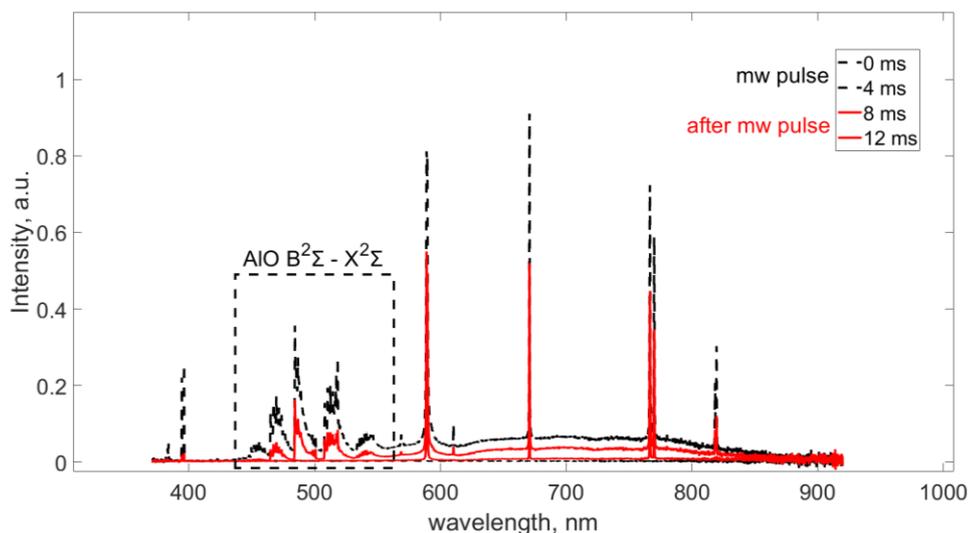


Рисунок 7 - Характерный спектр SP-2 в верхней части плазмохимического реактора

Если рассмотреть спектр в верхней части реактора можно обнаружить, что континуум смещён в область более высоких Виновских температур и по оценкам составляет от 2700 до 3000 К, также на спектре можно выделить молекулярные полосы (450 - 550 нм) двухатомной молекулы AlO электронного перехода $B^2\Sigma - X^2\Sigma$.

X²Σ. Появление данной полосы связано с воспламенением металлического алюминия в воздушной атмосфере после его нагрева при взаимодействии с поверхностным микроволновым разрядом и его подъеме в воздушную атмосферу, содержащую кислород. Наши оценки, которые показали, что для частиц алюминия с размером от 1 до 100 мкм, характерное время горения в наших условиях составляет от нескольких мс до 15 мс и продолжается после окончания генерации излучения, температура горения, рассчитанная по вращательно-колебательному спектру молекулы AlO составляет от 3200 до 3700 К.

По результатам оптических и микроволновых измерений (мощности прошедшего микроволнового излучения через область взаимодействия порошковой смеси и разряда) можно представить 3 характерные области физико-химических процессов синтеза частиц. Область инициирования разряда (А рисунок 8); развитие, поддержание и взаимодействие разряда с порошковой смесью (В); релаксация разряда и физико-химических процессов с частицами (С).

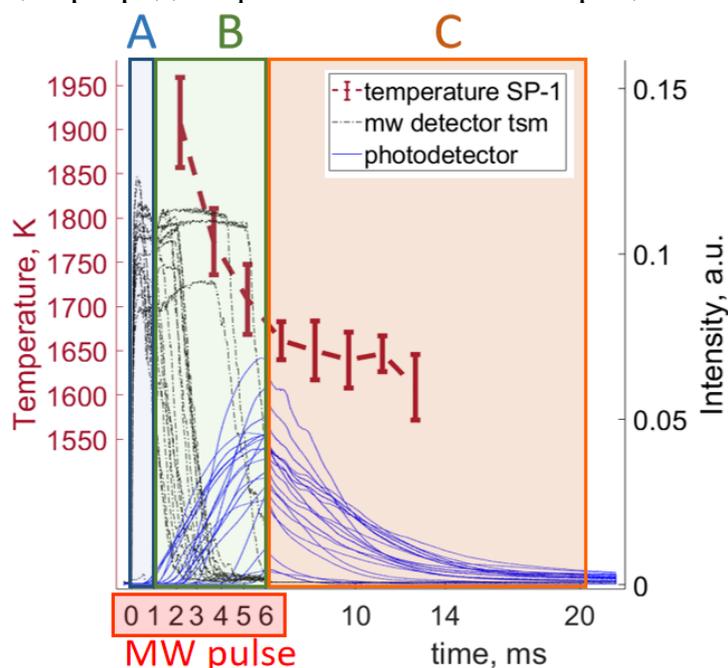


Рисунок 8 - Зависимости от времени интенсивности излучения фотодетектора, прошедшего сигнала СВЧ-детектора (tsm) и температуры поверхности порошковой смеси

После взаимодействия микроволнового излучения с порошковой смесью частицы оседают на дне и внутренних стенках реактора. Собранные с внутренних стенок реактора частицы представляют собой керамические агломераты оксида алюминия с размером от нескольких десятков до сотен мкм, с внедрёнными на его поверхность металлическими частицами алюминия нано и микронного размера (рис.8а). Также были обнаружены полые частицы оксида алюминия с трещинами на поверхности (рис.8б-в), которые могли быть образованы в результате горения частиц алюминия. Таким образом было показано, что в условиях взаимодействия микроволнового излучения и порошковых смесей металлических и диэлектрически частиц возможно образование

металлокерамических частиц. Воспламенение металлических частиц в процессе синтеза является негативный фактором уменьшающим концентрацию металлической фазы, а следовательно и количество продуктов синтеза.

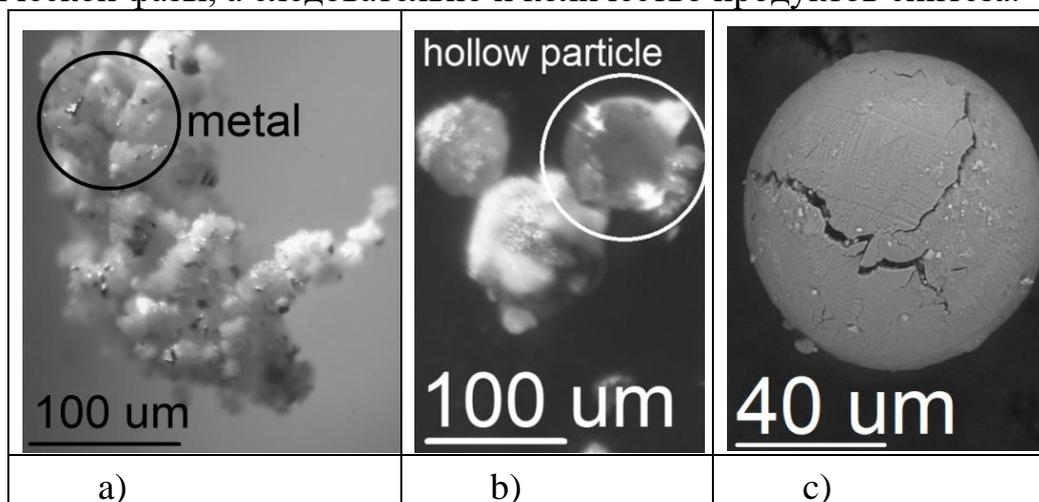


Рисунок 9 - а) Оптическое изображение синтезированных частиц после проведения эксперимента б) СЭМ-изображением и с) Оптическое изображением сгоревших частиц алюминия обнаруженные в продуктах синтеза

В третьей главе проведено исследование поглощения микроволнового излучения гигагерцового диапазона на металлических и диэлектрических частицах, находящихся в порошковых засыпках на поверхности цилиндрической диэлектрической подложки. Получено пространственное распределение температуры нагрева смеси порошков при их облучении микроволновым излучением с интенсивностью 5 кВт/см^2 при длительности импульса 1 мс. Были использованы 5 типов порошковых смесей с различными по размеру металлическими частицами алюминия. В образце 1 использовался оксид алюминия со средним размером 50 мкм, толщина слоя порошка составляла менее 5 мм, диаметр засыпки был ~ 5 см. В образце 2 в концентрации 10% по массе к порошку оксида алюминия был добавлен порошок алюминия марки АСД-6 с линейным размером частиц менее 10 мкм, аналогично для образцов 3-5 были добавлены порошки алюминия марок АСД-4 (размер менее 30 мкм), ПА-2 (размер частиц менее 250 мкм), ПА-3 (размер частиц менее 450 мкм).

На каждый из образцов воздействовали последовательно четырьмя микроволновыми импульсами. Температура нагрева регистрировалось с верхней поверхности порошковых смесей с помощью быстрой калиброванной тепловизионной камеры. Было показано, что частицы оксида алюминия нагреваются слабо в пределах 1 -2 К. При этом была обнаружена дифракция микроволнового пучка на цилиндрической подложке, приводящая к перераспределению электрического поля в микроволновом пучке. Для определения поля в интерференционных кольцах было проведено численное моделирование распространения микроволнового пучка через модель подложка-порошок оксида алюминия в программном пакете COMSOL MultyPhysics (рис. 9).

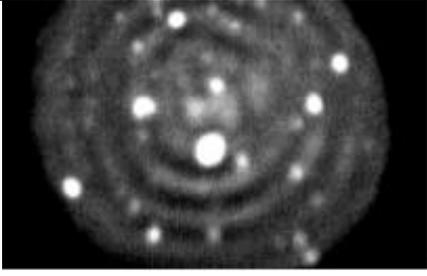
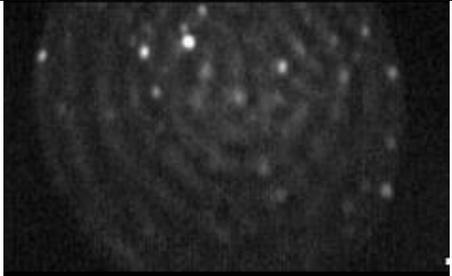
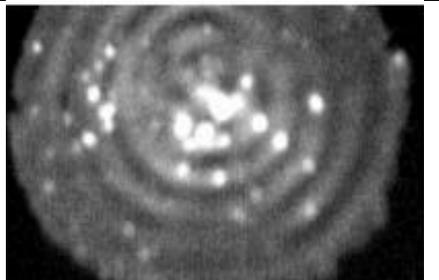
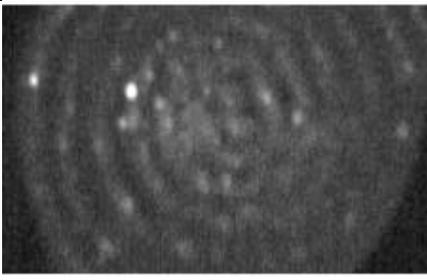
Таблица 1 - Тип частиц в порошковых образцах

Номер образца	Размер частиц (2а), мкм	Коммерческое название	Тип частиц
1	50<	Для хроматографии (Марка В)	сферические
2	10<	ASD-6	сферические
3	30<	ASD-4	сферические
4	250<	РА-2	смешанный
5	450<	РА-3	смешанный

При этом модель засыпки металлических и диэлектрических частиц аппроксимировалась в виде плотноупакованного порошкового слоя с резкими граница в геометрии согласующий с засыпкой порошков в эксперименте.

При моделировании максимальная напряжённость электрического поля в центре пучка составила 500 В/м.

Таблица 2 - Пространственное распределения нагрева порошковых засыпок металлических и диэлектрических частиц при облучении микроволновым излучением гигагерцового диапазона.

		
$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Обр. 1)	ASD-6 (10%) + $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Обр. 2)	ПА-2 (10%) + $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Обр. 4)
		
ASD-4 (10%) + $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Обр. 3)	ПА-3 (10%) + $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Обр. 5)	

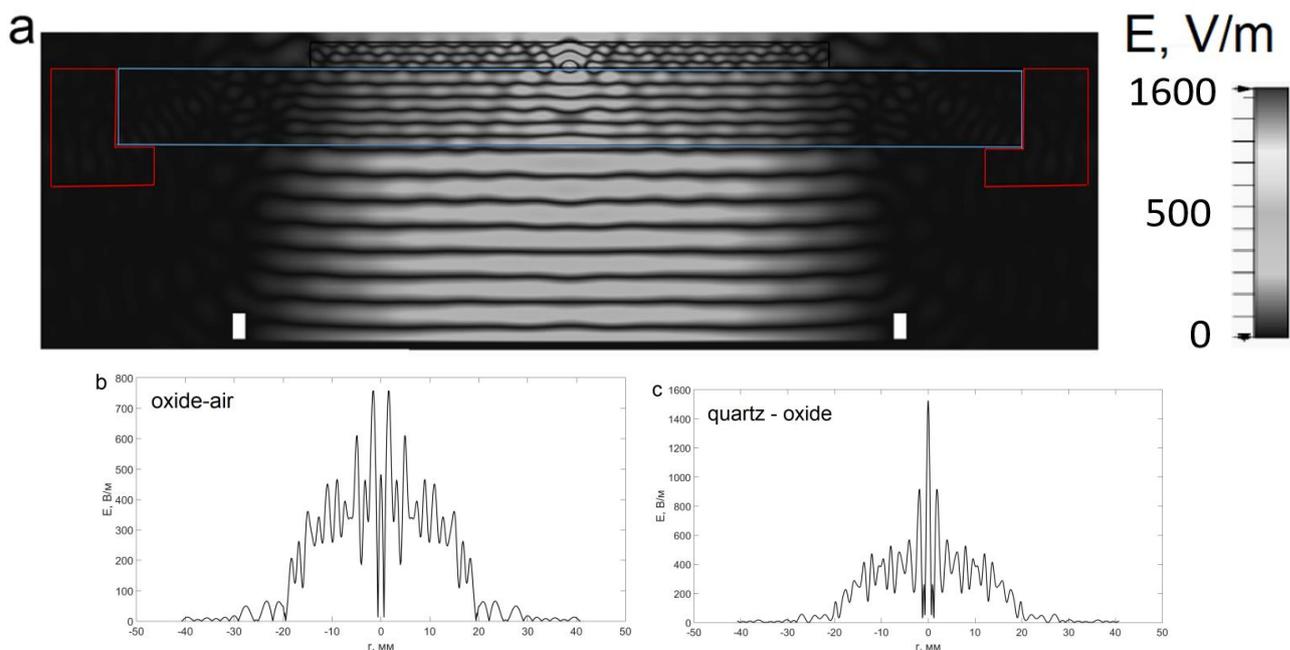


Рисунок 10 - а) Интерференционная картина распределения интенсивности вектора электрической напряжённости в гауссовом пучке линейно поляризованной волны, б) распределение напряжённости поля на границе оксид алюминия - воздух, в) распределение напряжённости поля на границе кварцевая подложка-оксид алюминия.

Моделирование показало, что усиление напряжённости электрического поля может быть увеличено в 1.5 раза на верхней поверхности порошковой смеси и порядка 3 раз на границе раздела оксидных частиц и подложки.

Для образцов 2-3 максимальная температура частиц соответствовала центральной области порошковой смеси и составляла 48 и 44 °С соответственно. Для образцов 4-5 максимальная температура наблюдалась на периферийной области и соответствовала 30 и 25 °С соответственно, что в первую очередь связано с объёмным распределением частиц в порошковой смеси, когда в область максимума электрического поля попадает малое количество частиц в сравнении с образцами 2-3.

Для интерпретации экспериментальных результатов была подобрана модель расчёта на основе метода наименьших квадратов интерполяции экспериментальных данных поглощения излучения гигагерцового диапазона. Поскольку длина волны в металлических частицах соизмерима с длиной волны излучения, то в расчёте необходимо было использовать решение задачи рассеяния на шаре, полученное Ми,

При этом поскольку на металлических частицах в воздушной атмосфере присутствует естественная оксидная плёнка толщина которой всего на порядок меньше характерной толщины скин-слоя для алюминия для излучения 75 ГГц необходимо учесть ее наличие при расчёте. Для этого в работе было выбрано два пути решения: использование приближения эффективной среды для расчёта диэлектрических свойств комбинированной металлодиэлектрической однородной частицы и второй путь использование решения Ми для двухслойной

частицы при граничных условиях не учитывающих зарядку внешней оксидной оболочки. Таким образом было получено 4 вида решений. В первом решение была использован модель эффективной среды Буггермана (ЕМА):

Для нее эффективная диэлектрическая проницаемость ϵ_{eff} выражается как [7]:

$$2\beta\epsilon_{\text{eff}}^2 + [\beta(3C_s - 2) + \alpha\epsilon_i(1 - 3C_s)]\epsilon_{\text{eff}} - \alpha\epsilon_i = 0, \quad (6)$$

$$\beta = 2\epsilon_i + \epsilon_c + (\epsilon_i - \epsilon_c)/d_r^3, \quad (7)$$

$$\alpha = 2\epsilon_i + \epsilon_c + 2(\epsilon_i - \epsilon_c)/d_r^3, \quad (8)$$

$$d_r = b/a, \quad (9)$$

здесь C_s объёмная концентрация металла, b толщина диэлектрической оболочки, ϵ_i и ϵ_c диэлектрическая проницаемость для оболочки и металла соответственно.

Во втором решение использована квазиволновая модель эффективной среды (WaveЕМА):

$$2v_1\epsilon_{\text{eff}}^2 + [v_1(3C_s - 2) + v_2\epsilon_c(3C_s - 1)]\epsilon_{\text{eff}} - 2\alpha v_2\epsilon_c = 0, \quad (10)$$

$$v_1 = k_c^2 a^2 \sin(k_c a) + k_c a \cos(k_c a) - \sin(k_c a), \quad (11)$$

$$v_2 = k_c a \cos(k_c a) - \sin(k_c a). \quad (12)$$

В третьем решении использовано двухслойное решение Ми (Drude-shell). В четвёртом решении использовано двухслойное решение Ми для диэлектрической проницаемости и волновая модель эффективной среды для магнитной проницаемости (Drude-shell- μ_{eff}):

$$2(v_3 + k_c^2 a^2)\mu_{\text{eff}}^2 + [v_3(9C_s - 4) + k_c^2 a^2(3C_s - 2)]\mu_{\text{eff}} + 2v_3 = 0, \quad (13)$$

$$v_3 = k_c a \cot(k_c a) - 1. \quad (14)$$

В других случаях, например, для металлической частицы без оболочки решение Ми даёт сильно заниженные значения поглощённой мощности на уровне диэлектрических частиц, которые не соответствуют эксперименту. Для расчёта (рис. 10) использовались два значения напряжённости электрического поля, первое соответствует средней напряжённости поля в микроволновом пучке 1.8 кВ/см, второе соответствует усиленному в следствии интерференции значению 2.4 кВ/см. Пересчёт поглощённой мощности в температуру нагрева частиц осуществлялся с помощью уравнения теплового баланса, которое в случае слабого нагрева частиц до температуры менее 50 °С не учитывает тепловые потери:

$$\frac{4\pi}{3} b^3 (c\rho)_{Al} \frac{\Delta T}{\Delta t} = W, \quad (15)$$

здесь $c\rho$ - удельная теплоёмкость и плотность алюминия, W - поглощённая мощность микроволнового излучения, $\frac{\Delta T}{\Delta t}$ - приращение температуры частицы.

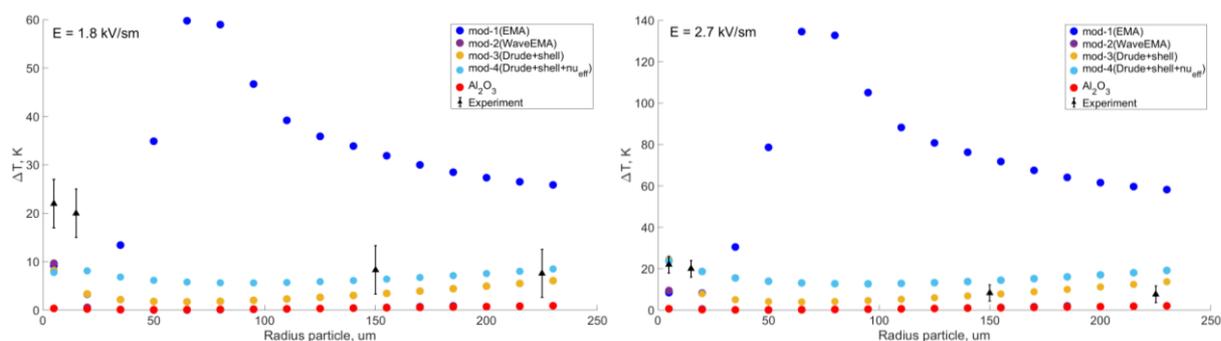


Рисунок 11 - Зависимость нагрева частицы от ее радиуса для двух значений напряжённости поля волны

Определено, что решение Ми для двухслойной частицы (mod 3-4) адекватно описывает нагрев металлических частиц при облучении их гигагерцовым излучением. В дальнейшем данное решение было использовано для оценки возможности достижения температуры плавления частиц алюминия за время импульса при увеличенной интенсивности излучения. Для этого в уравнения теплового баланса были внесены соответствующие радиационному охлаждению и конвективному теплообмену слагаемые, для верхней оценки было принято, что температура среды остаётся постоянной и составляет 300 К, а также коэффициент излучательной способности алюминия составлял 1. Для расчёта использовалась напряжённость 2.4 кВ/см соответствующая максимальной рабочей мощности генератора излучения 400 кВт, а также максимальная напряжённость, полученная с учётом моделирования 7.5 кВ/см.

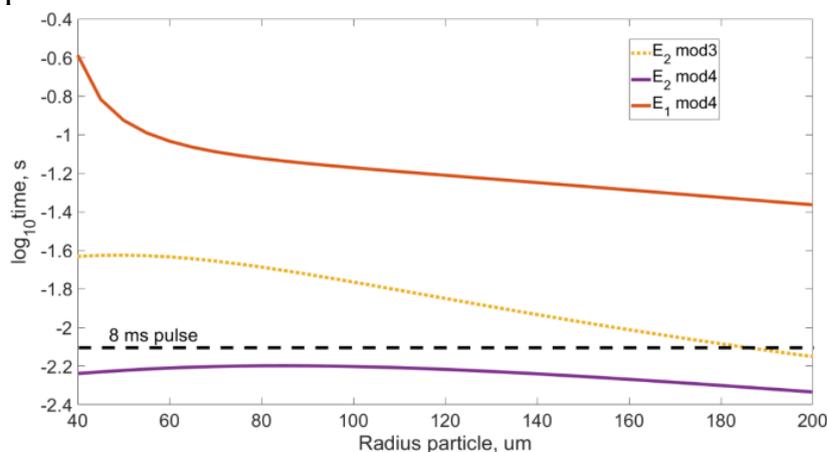


Рисунок 12 - Зависимость десятичного логарифма времени плавления от размера частиц

Показано, что за время микроволнового импульса (8 мс) температура плавления можно быть достигнута только в узкой области пространства вблизи первых максимумов интерференции, при этом для средней напряжённости поля в пучке плавление может быть достигнуто за времена существенно больших длительности импульса.

С помощью упрощённой модели микроволнового пробоя одноатомного тяжёлого газа и эмпирической формулы для воздуха может быть рассчитана пробойная кривая для напряжённости поля микроволново излучения на длине волны генерации гиротрона. Для аргона и воздуха были получены пробойные

кривая (рисунок 13) для 4 случаев диффузионной длины (4, 0.4, 0.04 и 0.004 см), два предельных случая (4 мкм и 4 см) соответствуют разряду в порах порошковой засыпки со средним диаметром частиц 50 мкм и характерной ширине микроволнового пучка.

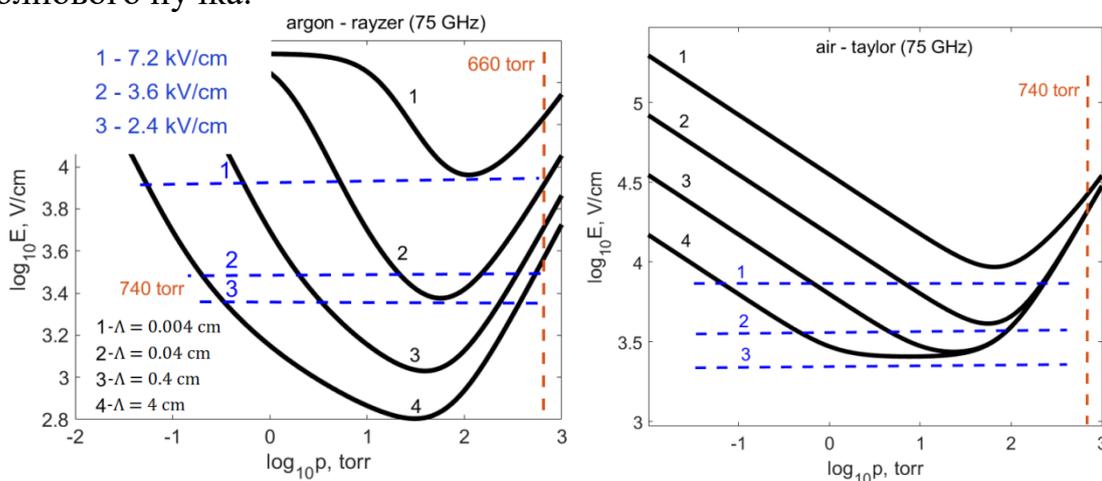


Рисунок 13 - Зависимость десятичного логарифма напряжённости поля на частоте 75 ГГц от десятичного логарифма давления газовой среды

Получено, что для максимальной напряжённости в условиях эксперимента в среде аргона $E = 2.4$ кВ/см усиление поля благодаря эффекту дифракции микроволнового пучка на порошковой засыпке может приводить к иницированию разряда в порах порошковой засыпки, а также на диффузионной длине соответствующей длине волны микроволнового излучения. Для воздуха при нормальных условиях микроволновый пробой не может быть объяснен только усилением поля на диэлектрическом порошковом слое и обладает сложным механизмом связанным с усилением поля на металлических агломератах, при этом нагревов отдельных частиц в случае металлических порошков можно пренебречь, так как он будет мал по сравнению с характерным временем пробоя (рисунок 3).

В заключении сформулированы основные результаты и выводы диссертационной работы

Статьи в журналах

[A1] Zakletskii, Z.A., Malakhov, D.V. Parameters of Surface Microwave Discharge Initiated by the Passage of a Gyrotron Microwave Pulse through a Quartz Plate with Embedded Metal Particles. *Plasma Phys. Rep.* 49, 1228–1236 (2023). <https://doi.org/10.1134/S1063780X23601001>

[A2] Z A Zakletskii et al 2021 *J. Phys.: Conf. Ser.* 2055 012013, DOI 10.1088/1742-6596/2055/1/012013

[A3] Исследование поглощения импульсного микроволнового излучения гиротрона в смеси порошков Al/Al_2O_3 Заклецкий З.А., Андреев С.Е., Соколов А.С., Москва, Россия, т. 66, н. 7-8, 2023, с. 664-673, DOI: 10.52452/00213462_2023_66_07_664

[A4] Горение частиц при взаимодействии излучения гиротрона со смесью порошков металл/диэлектрик Заклецкий З.А., Гусейн-заде Н.Г., Малахов Д.В., Бадьянова Л.В., Воронова Е.В., Степахин В.Д., Журнал технической физики, Москва, Россия, том 93, номер 9, 2023, стр. 1279-1287

Тезисы докладов конференций

[A5] Заклецкий З.А., "Исследование синтеза катализаторов платиновой группы в мощном микроволновом разряде гиротрона", школа- конференция молодых ученых «Прохоровские недели», 19-21 октября 2021 года (устный доклад)

[A6] Заклецкий З.А. и др., «Синтез платиновых катализаторов в плазмохимических процессах, инициируемых СВЧ-импульсами мощного гиротрона», XII Всероссийский семинар по радиофизике миллиметровых и субмиллиметровых волн, Нижний Новгород, 28 февраля - 4 марта 2022 года (устный доклад)

[A7] Заклецкий З.А. и др., «Исследование коэффициента поглощения СВЧ-импульса излучения гиротрона в смесях порошков Al_2O_3/Pt », XLIX Международная звенигородская конференция по физике плазмы и управляемому термоядерному синтезу, Звенигород, 14-18 марта 2022 года (устный доклад)

[A8] Заклецкий З.А., «Исследование поведения локального показателя Херста для рельефа, синтезированного fbm и его применение для определения фрактальных параметров поверхности керамических носителей», VI Международной научно- практической конференции, «Актуальные проблемы и перспективы развития радиотехнических и инфокоммуникационных систем» «РАДИОИНФОКОМ-2022», Москва 6 - 10 июня, 2022

[A9] Z.A.Zakletskii, «Experimental investigation of the process of discharge during the interaction of microwave radiation with a metal-dielectric powder mixture», 18th International Workshop Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation, Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia, 11-13 April, 2022

[A10] Z.A.Zakletskii, «Impact of air atmosphere on the conditions for the synthesis of ceramic materials in the interaction of a microwave pulse of a gyrotron with a mixture of Al_2O_3 /Al powders", The 5-the International Conference Terahertz And Microwave Radiation: Generation, Detection And Applications (TERA-2023) 27 February — 2 March 2023, Moscow, Russia <https://tera2023.mephi.ru/ru/publications/abstracts/>

[A11] Заклецкий З.А. и др., «Инициация плазменного разряда с поверхности кварцевой пластины при прохождении СВЧ-импульса гиротрона (75 ГГц, 400 КВТ, 8 МС)», I Международная звенигородская конференция по физике плазмы и управляемому термоядерному синтезу ICPAF-2023 20 – 24 марта 2023 г. г. Звенигород, <http://www.fpl.gpi.ru/Zvenigorod/L/Sbornik-2023.pdf>