

КОАГУЛЯЦИЯ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ В ПЫЛЕВОЙ ПЛАЗМЕ

И. А. Белов^a, А. С. Иванов^a, Д. А. Иванов^a, А. Ф. Паль^{b}, А. Н. Старостин^b,
А. В. Филиппов^b, А. В. Демьянов^b, Ю. В. Петрушевич^b*

^a *Российский научный центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия*

^b *Государственный научный центр Российской Федерации
Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований (ТРИНИТИ)
142092, Троицк, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 3 июня 1999 г.

Исследованы особенности поведения малых частиц в пылевой плазме, обусловленные, с одной стороны, подавлением коагуляции вследствие монополярной зарядки в области размеров частиц меньше дебаевского радиуса экранирования и, с другой, нивелированием этого обстоятельства для частиц больших размеров. На основании соотношений подобия, связывающих состав плазмы и заряд частиц с параметрами пылевой компоненты, определена область параметров, при которых справедлива линейная аппроксимация зависимости заряда частиц от их размера. В рамках модифицированной классической теории коагуляции в диффузионном приближении изучены некоторые аномалии в поведении распределения частиц по размерам. Установлено, что в отличие от обычного аэрозоля, в пылевой плазме с течением времени возможно уменьшение дисперсии распределения и среднего размера частиц. Впервые показана возможность реализации долгоживущего «квазиджидкого» состояния пылевой плазмы, связанного с аномальным поведением функции распределения коагулирующих заряженных частиц по размерам.

PACS: 51.50.+v; 52.25.-b; 92.60.Mt

1. ВВЕДЕНИЕ

Интерес к проблеме малых частиц в пылевой плазме обусловлен их довольно своеобразным и не всегда понятным поведением в лабораторных экспериментах. Прежде всего сюда следует отнести наблюдение квазикристаллических левитирующих пылевых структур, появление которых связывают, как правило, с сильной неидеальностью пылевой плазмы и возникающим в рассматриваемых условиях дальнедействующим взаимодействием частиц [1]. Поскольку пылевая плазма возникает в ряде случаев самопроизвольно в процессе разложения и последующей нуклеации в газовом разряде исходного вещества, для процессов самоорганизации пылевой плазмы важной является коагуляция частиц. Исследование коагуляции частиц в пылевой плазме также актуально в проблеме переноса вещества и загрязнения поверхностей при производстве полупроводниковых приборов [2]. Близкие вопросы возникают и в задачах, связанных с плазмохимическими технологиями получения порошковых материалов [3].

В последнем случае коагуляция является одним из основных механизмов роста пылинок. При этом в зависимости от условий эксперимента наблюдали целый ряд возникающих в процессе коагуляции различных объектов, от частиц со сложной структурой поверхности типа «цветной капусты» до фрактальных кластеров с разветвленными дендритными ответвлениями [4, 5].

Явление коагуляции достаточно подробно изучали при исследовании поведения различного рода аэрозолей, в том числе заряженных [6]. В ситуациях, встречающихся на практике, например в атмосферных облаках, как правило, наблюдается биполярная зарядка, иногда смещенная за счет включения различных механизмов зарядки частиц. В частности, если имеет место диффузионная зарядка в слабоионизированной атмосфере, наблюдается в среднем незначительное, практически симметричное зарядение с больцмановским распределением зарядов по частицам. Это обусловлено малой концентрацией электронов в атмосфере, содержащей электроотрицательные газы. Зарядка в таком случае осуществляется потоками положительных и отрицатель-

*E-mail: afpal@fly.troitski.troitski.ru, afpal@mics.msu.su

ных ионов, обладающих близкими друг другу значениями подвижности. Включение других механизмов, например, термо- или фотоэмиссии, электризации при диспергировании, естественно, смещает распределение зарядов в ту или иную сторону.

Заряжение частиц в плазме, имеющей достаточно высокую концентрацию электронов, обладает существенными отличиями. Вследствие значительной разницы в подвижностях электронов и положительных ионов возникает монополярная зарядка с весьма большими отрицательными зарядами дисперсных частиц [1].

В качестве объекта исследований в настоящей работе рассматривается плазма, создаваемая ионизацией газов (например, ксенона) продуктами распада радиоактивных пылевых частиц со следующими характерными параметрами: скорость рождения электрон-ионных пар 10^{15} – 10^{16} см⁻³.с⁻¹, давление ~ 1 атм, концентрация электронов при этом $\sim 10^{10}$ – 10^{11} см⁻³, времена заряжения пылинок 10^{-5} – 10^{-6} с, размеры пылинок до 100 мкм, концентрация пылинок до 10^7 см⁻³. Такая плазма может представлять интерес для создания ядерной батареи на основе радиоактивных отходов [7]. При этом распределение зарядов по частицам жестко связано с их размерами. Таким образом, функция распределения частиц по размерам оказывается одной из наиболее важных характеристик, описывающих поведение и свойства пылевой плазмы. Функция распределения формируется, в основном, в результате процессов коагуляции и осаждения пылевых частиц. В ряде работ [8, 9] было высказано предположение об установлении квазистационарного распределения частиц по размерам. Когда достигается такое состояние, прирост частиц данного размера уравнивается их потерями в результате коагуляции и осаждения. При этом для очень мелких частиц незначительны потери при осаждении, а для сравнительно крупных можно пренебречь коагуляцией.

Известно [10], что скорость коагуляции может возрастать или уменьшаться в зависимости от знаков и величин зарядов на частицах. Отношение констант коагуляции для заряженных и незаряженных частиц впервые рассчитано Фуксом [6]. Было показано, что для слабозаряженного биполярного аэрозоля увеличение коагуляции вследствие притяжения в значительной степени компенсируется уменьшением, вызванным отталкиванием. В то же время для сильнозаряженного биполярного аэрозоля возрастание коагуляции благодаря притяжению значительно превосходит ее уменьшение вследствие отталкивания, при этом скорость коагуляции возрастает.

Согласно [10], для монополярно заряженного аэрозоля электростатическое отталкивание приво-

дит к удалению одноименно заряженных частиц друг от друга, снижает скорость коагуляции и вызывает уменьшение концентрации аэрозоля. Отметим, что последнее утверждение вполне справедливо лишь при нарушении интегральной электронейтральности рассматриваемой системы.

Особенности поведения частиц в пылевой плазме, связанные, с одной стороны, с подавлением коагуляции вследствие монополярной зарядки в области размеров частиц меньше дебаевского радиуса экранирования R_d и, с другой, с нивелированием этого обстоятельства для размеров больше R_d , приводит к нарушению выявленных закономерностей.

В настоящей работе проведено исследование влияния некоторых аномалий в процессе коагуляции на поведение функции распределения частиц по размерам в пылевой плазме. Впервые показана возможность реализации долгоживущего «квазжидкого» состояния пылевой плазмы, связанного с аномальным поведением функции распределения коагулирующих заряженных частиц по размерам.

2. СОСТАВ ПЛАЗМЫ И ЗАРЯЖЕНИЕ МАЛЫХ ЧАСТИЦ

Прежде всего необходимо провести анализ зарядового состояния малых частиц и установить связь между величиной заряда, размером частиц и составом плазмы при заданных условиях (например, при заданной мощности источника ионизации). В настоящей работе рассматривается плазма без отрицательных ионов. Как уже отмечалось выше, при попадании в плазму дисперсные частицы заряжаются отрицательно, в основном вследствие того, что подвижность электронов существенно превышает подвижность ионов. Характерное время зарядки частиц составляет 10^{-5} – 10^{-6} с [10]. Следует отметить, что характерное время разрядки, определяемое диффузией ионов, заметно больше приведенных цифр, но все же существенно меньше характерных времен изменения функции распределения частиц по размерам за счет коагуляции в широком диапазоне размеров и концентраций пылинок. В связи с этим задачи заряжения частиц и формирования функции распределения могут быть разделены и решены последовательно. Оценка заряжения частиц в плазме выполнена в ряде работ [7, 11]. Величина стационарного заряда определяется из условия равенства электронного и ионного потоков на частицу. Легко показать, что заряд частиц q в случае малых концентраций пылинок N_d является линейной функцией радиуса:

$$eq = r_d U,$$

где U — плавающий потенциал, r_d — радиус частицы, e — элементарный заряд. Однако с ростом N_d это соотношение нарушается. Поскольку зависимость заряда от радиуса частицы является базовой для исследования процесса коагуляции, необходимо более детально изучить эту зависимость и оценить область параметров ее применимости.

Положим для определенности, что число пар ионов и электронов, образующихся в единице объема плазмы в единицу времени, равно Q . Такая плазма создается внешним ионизатором, например, электронным пучком, или радиоактивными пылинками. Поместим в плазму частицы аэрозоля и оценим их заряд в диффузионном приближении. Мы предполагаем, что длина свободного пробега ионов и электронов много меньше размеров частиц. При атмосферном давлении это условие выполняется для частиц размером $\geq 10^{-4}$ см.

Состав плазмы определяется уравнением сохранения заряда (условие квазинейтральности плазмы) и уравнением непрерывности для электронов и ионов:

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_-}{\partial t} + \operatorname{div} \mathbf{j}_- &= Q - \beta N_- N_+, \\ \frac{\partial N_+}{\partial t} + \operatorname{div} \mathbf{j}_+ &= Q - \beta N_- N_+, \\ \sum_k q_k n_{dk} + N_+ &= N_-, \\ \operatorname{rot} \mathbf{E} &= 0, \\ \mathbf{j}_- &= -D_- \nabla N_- - K_- N_- \mathbf{E}, \\ \mathbf{j}_+ &= -D_+ \nabla N_+ + K_+ N_+ \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь N_{\pm} , \mathbf{j}_{\pm} , D_{\pm} , K_{\pm} — концентрации, плотности тока, коэффициенты диффузии и подвижности ионов (с индексами «+») и электронов (с индексами «-»), \mathbf{E} — напряженность электрического поля, β — коэффициент электрон-ионной рекомбинации; $n_{dk} = n_d(r_k)$ — концентрация частиц с размерами от r_k до r_{k+1} (см. ниже). Эволюция функции распределения частиц по размерам рассматривается в следующем разделе.

В стационарном и в сферически-симметричном случае для токов J_{\pm} можно получить [11]:

$$J_{\pm} = 4\pi e r^2 \left(\pm D_{\pm} \frac{\partial N_{\pm}}{\partial r} - K_{\pm} E N_{\pm} \right). \quad (2)$$

Подвижности K_{\pm} и коэффициенты диффузии D_{\pm} ионов и электронов связаны соотношениями Эйнштейна

$$kT_{\pm} K_{\pm} = eD_{\pm}, \quad (3)$$

где k — постоянная Больцмана, T_{\pm} — температура.

Положим, что заряд частицы в области наиболее сильного изменения плотности ионов и электронов

не экранируется плазмой и напряженность электрического поля в этой области определяется законом Кулона. Данное положение справедливо, главным образом, при выполнении условия

$$L_+ \ll a_d, \quad (4)$$

где

$$L_+ = \frac{N_+^{\infty}}{|(\partial N_+ / \partial r)|_{r=r_d}}$$

— характерный размер области наиболее сильного изменения концентрации ионов,

$$a_d = \frac{1}{\sqrt[3]{(4/3)\pi N_d}}$$

— среднее межчастичное расстояние. Отметим, что условие (4) заведомо выполняется при выполнении более простого для оценок условия: $r_d \ll a_d$. Если заряд частицы $|q| \sim 10^2$ и радиус $r_d \sim 10^{-4}$ см, то поле $E \approx 1500$ В/см. Приведенная напряженность электрического поля при атмосферном давлении оказывается достаточно высокой $E/N_0 \approx 5 \cdot 10^{-17}$ В·см² (N_0 — число атомов в единице объема) и происходит отрыв температуры электронов, достигающей в среде инертных газов величины 1–5 эВ.

В стационарном состоянии при выполнении условия (4) для токов справедливо соотношение

$$J_+ = -J_- \approx \text{const}. \quad (5)$$

Интегрируя соотношение (5) для случая монодисперсного аэрозоля $n_{dk} = N_d$, $q_k = q$, $r_k = r_d$ для всех частиц с граничными условиями

$$N_{\pm}|_{r=\infty} = N_{\pm}^{\infty}, \quad N_{\pm}|_{r=r_d} = 0, \quad (6)$$

находим выражение, связывающее концентрации ионов и электронов вдали от пылевой частицы:

$$\frac{N_-^{\infty}}{N_+^{\infty}} = \frac{K_+}{K_-} \frac{1 - \exp\{-qe^2/kT_- r_d\}}{\exp\{qe^2/kT_+ r_d\} - 1}. \quad (7)$$

Это выражение совпадает с выражением для определения заряда пылевой частицы, полученным в приближении ограниченной орбитали (см. [1]) с естественной заменой отношения скоростей теплового движения ионов и электронов на отношение скоростей дрейфа или, в конечном счете, подвижностей в рамках диффузионного приближения. Принимая во внимание, что $T_- \gg T_+$ и $K_- \gg K_+$, для случая $N_+^{\infty} \approx N_-^{\infty}$ из (7) имеем

$$q = -\frac{kT_- r_d}{e^2} \ln \left(1 + \frac{K_-}{K_+} \right). \quad (8)$$

Таким образом, заряд частиц отрицателен и определяется температурой электронов. В частности, в

ксеноне при радиусе $r_d = 10^{-4}$ см и $kT_- = 2$ эВ, $|q| \approx 10^4$. Отношение подвижностей в ксеноне, согласно [12, 13], в рассматриваемых условиях $K_-/K_+ \approx 10^3$.

Условие равенства концентраций ионов и электронов на бесконечности выполняется в случае сравнительно невысоких концентраций аэрозольных частиц и достаточно интенсивной ионизации газа, когда концентрация электронов значительно превышает суммарный заряд, собранный на частицах пыли в единице объема. Однако, согласно приведенной оценке заряда, уже при концентрациях пыли $N_d \sim 10^7$ см $^{-3}$ и $N_- \sim 10^{11}$ см $^{-3}$ это условие нарушается.

Попробуем оценить влияние изменения концентрации электронов на эффект зарядки пылевых частиц. В рамках изложенного подхода эта задача может быть решена путем переопределения концентраций электронов и ионов на бесконечности. При выполнении условия (4) можно положить, что эти величины совпадают со средними по объему плазмы \bar{N}_{\pm} . Состав плазмы определяется уравнениями квазинейтральности и баланса скоростей рождения и гибели электронов и ионов:

$$\begin{aligned}\bar{N}_+ &= \bar{N}_- - qN_d, \\ Q &= \beta\bar{N}_+\bar{N}_- + J_+N_d/e.\end{aligned}\quad (9)$$

Дополнив эти уравнения соотношением (7), связывающим концентрации электронов и ионов вдали от частицы, после несложных преобразований найдем систему уравнений для определения заряда q и концентраций \bar{N}_+ и \bar{N}_- :

$$\begin{aligned}\bar{N}_+ &= \bar{N}_- - qN_d, \\ Q &= (\beta - \beta_{id})\bar{N}_+\bar{N}_- + \beta_{id}\bar{N}_+^2, \\ \frac{\bar{N}_-}{\bar{N}_+} &= \frac{K_+}{K_-} \frac{1 - \exp\{-qe^2/r_d kT_-\}}{\exp\{qe^2/r_d kT_+\} - 1},\end{aligned}\quad (10)$$

где β_{id} — эффективный коэффициент рекомбинации ионов на частицах пыли, который определяется соотношением

$$\beta_{id} = \frac{4\pi e K_+}{1 - \exp\{qe^2/r_d kT_+\}}. \quad (11)$$

При выполнении условия (4) выражение для β_{id} упрощается и принимает вид

$$\beta_{id} = 4\pi e K_+. \quad (12)$$

Такой же вид имеет выражение для коэффициента

ион-ионной рекомбинации в теории Ланжевена [13] в случае, когда один из ионов (в нашем случае — отрицательно заряженная пылевая частица) имеет практически нулевую подвижность.

Легко видеть, что зависимость \bar{N}_+ и \bar{N}_- от параметров пылевой компоненты плазмы определяется отношением q/r_d . Поэтому, согласно (10), само отношение q/r_d является функцией произведения $N_d r_d = \xi$. В связи с этим имеют место следующие соотношения подобия:

$$\begin{aligned}\bar{N}_- &= f_1(\xi, Q), \\ \bar{N}_+ &= f_2(\xi, Q), \\ q/r_d &= f_3(\xi, Q).\end{aligned}\quad (13)$$

Если положить, что $q \sim r_d$, т.е. $f_3(\xi, Q) = \text{const}$, то ξ пропорционально суммарному заряду, собранному на частицах аэрозоля. При этом соотношения (13) имеют достаточно простой смысл, заключающийся в том, что состав плазмы определяется только мощностью источника и суммарным зарядом, собранным диспергированным в ней аэрозолем. Отметим, что если $f_3 \neq \text{const}$, то параметр ξ уже не характеризует суммарный заряд и простая интерпретация соотношений (13), по-видимому, затруднена. Вместе с тем, соотношения подобия остаются в силе и могут быть использованы при анализе экспериментальных результатов. Отметим, что соотношения подобия для решения системы уравнений (10) можно представить в более простом виде:

$$\begin{aligned}\bar{N}_-/\sqrt{Q} &= f_4(\sqrt{Q}/\xi), \\ \bar{N}_+/\sqrt{Q} &= f_5(\sqrt{Q}/\xi), \\ q/r_d &= f_6(\sqrt{Q}/\xi).\end{aligned}\quad (14)$$

На рис. 1–3 приведены численные решения системы (10) для различных скоростей ионизации ксенона при атмосферном давлении. Температура электронов принята равной 0.25 эВ, а ионов — 300 К. Приведенные к атмосферному давлению подвижности составляют: $K_- = 3000$ см 2 /В·с [12] и $K_+ = 0.55$ см 2 /В·с [13]. Коэффициент диссоциативной рекомбинации Xe_2^+ (основных ионов в плазме ксенона при атмосферном давлении) при указанной выше температуре электронов равен $\beta = 0.9 \cdot 10^{-6}$ см 3 /с [14].

Согласно проведенным расчетам, кривая $q(\xi)/r_d$ (рис. 1) по форме напоминает слегка размытую ступеньку Ферми. Плавающий потенциал частиц $U = eq/r_d$ остается почти постоянным в широком интервале параметров пылевой компоненты плазмы

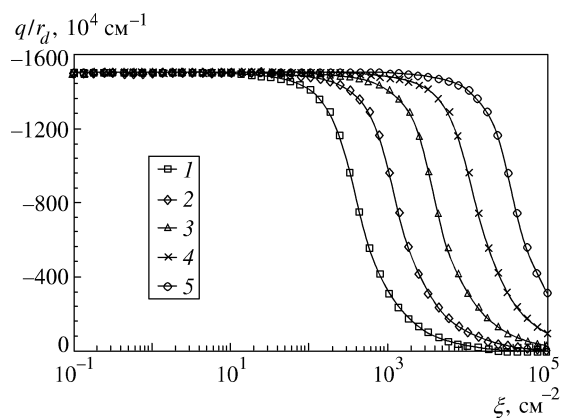


Рис. 1. Отношение заряда к радиусу пылевых частиц в зависимости от параметра ξ при различных скоростях ионизации. Кривые 1–5 соответствуют скоростям ионизации 10^{13} – $10^{17} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{c}^{-1}$

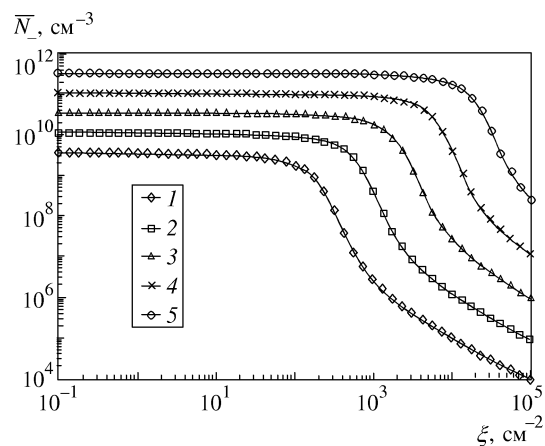


Рис. 2. Средняя концентрация электронов $\bar{N}_-(\xi)$ при различных скоростях ионизации. Соответствие кривых и скоростей ионизации, как на рис. 1

в области $\xi \leq \xi_0$. Величина параметра ξ_0 определяется мощностью источника ионизации. В частности, для $Q = 10^{15} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{c}^{-1}$ это утверждение справедливо с достаточно хорошей точностью вплоть до $\xi = \xi_0 \approx 10^3 \text{ cm}^{-2}$. На плоскости (r_d, N_d) область $\xi \leq \xi_0$ расположена между осями координат и гиперболой $N_d = \xi_0/r_d$ (см. рис. 4). Плавающий потенциал частиц остается постоянным при условии, что скорость объемной гибели электронов и ионов за счет электрон-ионной рекомбинации значительно превосходит скорость их гибели на поверхности пылевых частиц. Из выражений (10) и (12) получаем, что это условие выполняется в области параметров

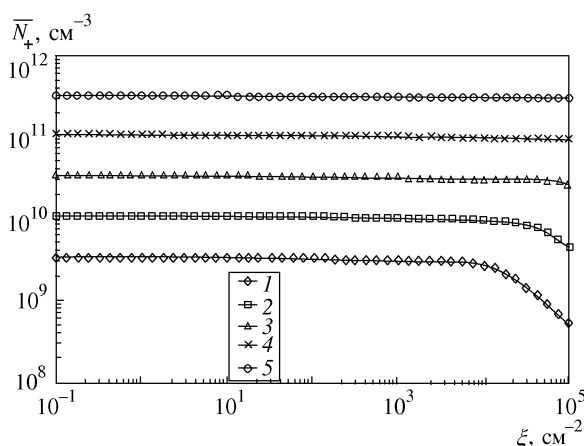


Рис. 3. Средняя концентрация ионов $\bar{N}_+(\xi)$ при различных скоростях ионизации. Соответствие кривых и скоростей ионизации, как на рис. 1

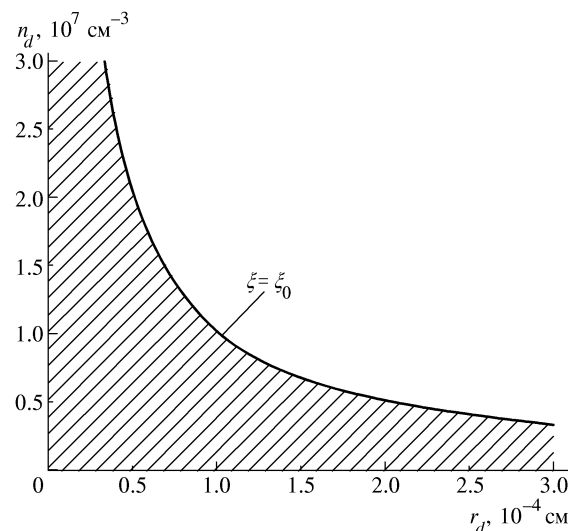


Рис. 4. Область выполнения условия $\xi \leq \xi_0$ на плоскости (r_d, N_d) , где плавающий потенциал частиц остается практически постоянным

пылевой компоненты, где

$$\xi \ll \frac{e^2}{T_-} \frac{\sqrt{Q/\beta}}{\ln(1 + K_-/K_+)} \quad (15)$$

Интересно отметить, что если исходные концентрации и размеры частиц аэрозоля удовлетворяют условию $\xi \leq \xi_0$, то в процессе коагуляции, сопровождающейся снижением концентрации частиц и ростом их размеров, неравенство $\xi \leq \xi_0$ остается в силе. Это позволяет провести исследование процесса коагуляции пылевых частиц при условии $U = \text{const}$, задавая исходное значение параметра ξ внутри заштрихованной области (рис. 4). В этом случае, как

видно из системы уравнений (1), процесс заряда полидисперсной системы пылевых частиц с функцией распределения по размерам n_{dk} будет такой же, как для монодисперсной системы с параметрами $N_d = \sum_k n_{dk}$ и $r_d = \sum_k n_{dk} r_k / N_d$. Поэтому полученные в этом разделе результаты для монодисперсных частиц могут использоваться и для полидисперсных при соблюдении условия $\xi \leq \xi_0$.

3. ФУНКЦИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ЧАСТИЦ ПО РАЗМЕРАМ

Перейдем теперь к исследованию коагуляции частиц в пылевой плазме. В теории коагуляции аэрозолей обычно исходят из предположения, что частицы коагулируют, т.е. слипаются или сливаются, при каждом соприкосновении. Подтверждение этому можно найти в многочисленных экспериментах [10]. Но если частицы обладают достаточно большими одноименными зарядами, то это предположение кажется не вполне обоснованным из-за электростатического отталкивания. Однако следует иметь в виду, что аэрозольные частицы не являются точечными. Во многих практически интересных случаях частицы обладают достаточно высокой электропроводностью, поэтому на расстояниях, сравнимых с размерами частиц, существенную роль в их взаимодействии друг с другом играет поляризация. Эффект поляризации может быть столь значителен, что приводит к притяжению одноименно заряженных частиц пыли. Кроме того, важную роль во взаимодействии заряженных пылевых частиц играет экранирование зарядов в плазме. Поэтому для последовательного решения задачи коагуляции, вообще говоря, необходим самосогласованный расчет взаимодействия по крайней мере двух неточечных частиц в ионизированном газе.

В наиболее примитивной модели коагуляции монодисперсного аэрозоля для упрощения задачи предполагают, что одна из частиц неподвижна, и определяют частоту соприкосновения с ней других частиц, совершающих тепловое движение. При этом форма и размер неподвижной частицы считаются неизменными. Такой подход позволяет оценить изменение концентрации аэрозольных частиц во времени. Полагая, что каждое соприкосновение уменьшает число частиц на единицу, записывают основное уравнение коагуляции в виде [6]

$$\frac{dN_d}{dt} = -GN_d^2. \quad (16)$$

Константа коагуляции G выражается формулой

$$G = 8\pi r_d D, \quad (17)$$

где D — коэффициент диффузии пыли. Например, в воздухе константа коагуляции частиц размером 10^{-4} см составляет $3.44 \cdot 10^{-10}$ см³·с⁻¹ [6]. Согласно формуле (14), время уменьшения концентрации аэрозоля с $N_d = 3 \cdot 10^8$ см⁻³ вдвое равно $t_{1/2} = 1/GN_d \approx 10$ с.

Описание коагуляции полидисперсной системы с произвольным начальным распределением частиц по размерам основано на решении системы кинетических уравнений

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_d(r_k, t)}{\partial t} = & - \sum_i (1 - (1/2)\delta_{ik}) G(r_i, r_k) n_d(r_i, t) n_d(r_k, t) + \\ & + (1/2) \sum_i \sum_j G(r_i, r_j) \theta_{ij}^k n_d(r_i, t) n_d(r_j, t), \quad (18) \end{aligned}$$

где $n_d(r_k, t)$ — концентрация частиц с радиусами от r_k до r_{k+1} в момент времени t , $G(r_i, r_j)$ — константы коагуляции частиц с радиусами r_i и r_j соответственно, δ_{ik} — символ Кронекера, θ_{ij}^k — коэффициент интерполяции ($i, j = 1 \div N$), причем (V_i — объем частицы радиуса r_i) [15]:

$$\begin{aligned} \theta_{ij}^k &= \frac{V_{k+1} - (V_i + V_j)}{V_{k+1} - V_k}, & \text{если } (V_i + V_j) \in [V_k, V_{k+1}], \\ \theta_{ij}^k &= \frac{V_{k-1} - (V_i + V_j)}{V_{k-1} - V_k}, & \text{если } (V_i + V_j) \in [V_{k-1}, V_k], \\ \theta_{ij}^k &= 0 & \text{в остальных случаях.} \end{aligned} \quad (19)$$

В случае диффузионной коагуляции константы определяются соотношениями [6]

$$G(r_i, r_j) = \frac{kT}{3\eta} (r_i + r_j) \left(\frac{1}{r_i} + \frac{1}{r_j} \right), \quad (20)$$

где η — вязкость газа.

Система уравнений (18) решается численно в целом ряде компьютерных программ, в частности, в коде NAUA [15]. Программа NAUA позволяет анализировать основные параметры коагулирующего аэрозоля и исследовать его осаждение в заданной геометрии. Однако зарядка частиц в этой программе до настоящего времени в расчет не принималась. Вообще говоря, модификация программы, позволяющая последовательно учесть зарядение частиц в плазме, представляет собой довольно сложную задачу. Однако предварительные оценки степени влияния зарядения частиц на процесс коагуляции и деформацию функции распределения по размерам могут быть выполнены при некоторых упрощающих предположениях.

Оценим константу коагуляции шарообразных частиц с радиусами r_i и r_k и зарядами q_i и q_k , следуя логике работы [6]. По-видимому, мы не сделаем

большой ошибки, используя метод [6] в случае частиц различного размера, так как константа скорости диффузионной коагуляции в рассматриваемой области слабо зависит от размеров частиц [10]. Обозначим силу электростатического взаимодействия частиц $F(r)$, где r — расстояние между их центрами. В процессе коагуляции мы имеем дело с диффузией броуновских частиц к поглощающей сфере в присутствии радиальной электростатической силы, под действием которой заряженные частицы приобретают скорость $V = BF$, где B — подвижность заряженных частиц пыли. В стационарном режиме

$$D\Delta n_d = B\operatorname{div}(\mathbf{F}n_d). \quad (21)$$

Учитывая сферическую симметрию задачи, находим

$$4\pi r^2 \left(D \frac{\partial n_d}{\partial r} - BF n_d \right) = J = \text{const}. \quad (22)$$

Отметим, что это уравнение вполне аналогично использованному выше соотношению (2). Первый член в левой части равен числу частиц, проходящих в единицу времени через сферическую поверхность за счет диффузии, а второй — благодаря упорядоченному движению в электрическом поле. В сумме они дают скорость осаждения частиц на сфере. Функция $n_d(r)$ должна удовлетворять граничным условиям $n_d = n_{d0}$ при $r = \infty$ и $n_d = 0$ при $r = r_i + r_k$, где n_{d0} — исходная концентрация пылевых частиц. Используя граничные условия и принимая во внимание соотношение Эйнштейна $D = BkT$, находим отношение констант коагуляции заряженных и незаряженных частиц ($\gamma = J/J_0$):

$$\gamma_{ik} = \left(\int_0^1 \exp \left\{ \frac{1}{kT} \Psi_{ik} \left(\frac{r_i + r_k}{x} \right) \right\} dx \right)^{-1}, \quad (23)$$

$$\Psi_{ik}(r) = eq_k \varphi_i(r),$$

где φ_i — электростатический потенциал, $x = (r_i + r_k)/r$.

В случае монополярной зарядки частиц аэрозоля заметную роль может играть эффект поляризации, особенно если отличие в зарядах частиц велико. Однако в настоящей работе его влияние мы в расчет не принимаем и учитываем лишь экранированный кулоновский вклад

$$\varphi_i(r) = \frac{eq_i}{r} \exp \left\{ -\frac{r}{R_d} \right\}, \quad (24)$$

где R_d — дебаевский радиус экранирования. В отсутствие экранирования, т. е. в предельном случае

$R_d \rightarrow \infty$ соотношение (23) легко интегрируется аналитически:

$$\gamma_{ik} = \frac{\lambda_{ik}}{e^{\lambda_{ik}} - 1}, \quad \lambda_{ik} = \frac{q_i q_k e^2}{(r_i + r_k) kT}. \quad (25)$$

Проведем оценку величины γ_{ik} в случае $q_i = q_k = 10$, $r_i = r_k = 5 \cdot 10^{-5}$ см, $T = 300$ К¹⁾. При этом $\gamma \sim 1.5 \cdot 10^{-2}$. Если же заряд частиц возрастает до 50, то $\gamma \sim 10^{-63}$. В последнем случае коагуляция, по-видимому, оказывается практически полностью подавленной. Согласно приведенным формулам, отношение констант коагуляции при условии $r_i = r_k$ (в области, представляющей практический интерес, $\lambda_{ik} > 1$) является монотонно убывающей функцией размера частиц. Однако учет экранирования приводит к качественно иному поведению константы коагуляции заряженных частиц. Рассмотрим более подробно ситуацию, в которой $U = \text{const}$, т. е. $eq_i = r_i U$ и $eq_k = r_k U$, тогда

$$\Psi_{ik} \left(\frac{r_i + r_k}{x} \right) = xU^2 \frac{r_i r_k}{r_i + r_k} \exp \left\{ -\frac{r_i + r_k}{x R_d} \right\}. \quad (26)$$

Соответственно этому матрица констант коагуляции заряженных частиц с радиусами r_i и r_k описывается соотношением

$$G(r_i, r_k) = \frac{kT}{3\eta} \frac{(r_i + r_k)^2}{r_i r_k} \times \left[\int_0^1 \exp \left\{ \frac{1}{kT} \Psi_{ik} \left(\frac{r_i + r_k}{x} \right) \right\} dx \right]^{-1}. \quad (27)$$

Результаты численного интегрирования соотношений (27) приведены на рис. 5 ($U = 0.15$ В, $R_d = 8.4 \cdot 10^{-4}$ см, $T = 300$ К). Согласно полученным результатам, характер поведения констант коагуляции в пылевой плазме радикально изменяется. Скорость коагуляции очень малых заряженных частиц с более крупными остается весьма высокой. Это связано, с одной стороны, с малой величиной заряда на таких частицах, а с другой, со сравнительно высокой их броуновской подвижностью. С возрастанием размера константы коагуляции частиц резко уменьшаются вследствие электростатического отталкивания зарядов. Однако, если размер по крайней ме-

1) Отметим, что диапазон изменения размеров частиц заметно расширяется в сторону малых размеров путем введения поправки Каннингема [6]. Учет этой поправки приводит к уменьшению констант коагуляции малых частиц. Однако уменьшение коагуляции за счет электростатического отталкивания заряженных частиц на порядки величины превышает этот эффект и его вклад в рассматриваемом диапазоне размеров приводит к небольшим количественным изменениям.

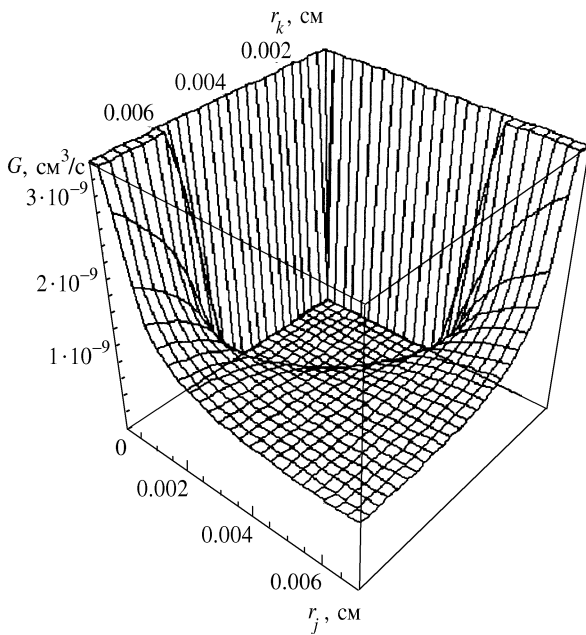


Рис. 5. Матрица констант коагуляции полидисперсного аэрозоля в пылевой плазме в зависимости от радиусов сталкивающихся частиц

ре одной из двух сталкивающихся частиц превышает дебаевский радиус, существенную роль начинает играть экранирование зарядов. При этом функция $G(r_i, r_k)$ с увеличением размеров частиц проходит через минимум, образуя глубокий провал, на внешнем берегу которого константа скорости коагуляции приближается к своему значению, характерному для незаряженного аэрозоля. Характерные размеры и форма образующегося провала определяются параметрами плазмы, поэтому в реальных ситуациях спектр их изменения весьма широк. Это приводит к разнообразным эффектам в поведении пылевых структур в процессе их самоорганизации.

Необходимо отметить, что дополнительным стимулом к объединению крупных частиц с мелкими является упомянутый выше эффект поляризации, приводящий к притяжению одноименно заряженных частиц на расстояниях порядка радиуса большей частицы. При этом, если дебаевский радиус того же порядка величины, электростатическое взаимодействие между частицами может изменить знак, что приведет к возрастанию скорости коагуляции даже по сравнению с ее значением в незаряженном аэрозоле. Немонотонная зависимость константы коагуляции от размеров частиц существенно меняет поведение функции распределения частиц по размерам.

Полученные формулы позволяют достаточно про-

сто модифицировать блок NAUA, описывающий коагуляцию аэрозолей, путем перенормировки констант коагуляции в уравнении (18) в соответствии с соотношениями (26) и (27). В расчетной схеме принято разбиение интервала изменения размеров частиц (r_{min}, r_{max}) в соответствии с соотношением

$$(m - 1) \ln(r_k / r_{k-1}) = \ln(r_{max} / r_{min}),$$

где m — число точек разбиения ($m = 60$). Для того чтобы частицы максимального размера не накапливались в системе и не деформировали функцию распределения, введено их осаждение.

Выполненные нами с учетом сказанного расчеты зависимостей концентраций от размеров частиц приведены на рис. 6а, б–8а, б. Для сравнения даны графики $n_d(r_k, t)$ незаряженного аэрозоля в различные моменты времени (рис. 6а–8а). В качестве исходного на рис. 6а, б выбрано довольно широкое нормально-логарифмическое распределение частиц по размерам со стандартным геометрическим отклонением равным двум, и средним радиусом $\bar{r}_k = 10^{-4}$ см (исходная полная концентрация пылевых частиц равна 10^8 см $^{-3}$). Расчеты проведены для плазмы с дебаевским радиусом $R_d = 8.4 \cdot 10^{-4}$ см и плавающим потенциалом $U = 0.15$ В. Интервал изменения размеров частиц ($r_{min} = 10^{-6}$ см, $r_{max} = 3 \cdot 10^{-3}$ см). Как и следовало ожидать для незаряженного аэрозоля (рис. 6а), на начальном этапе концентрация частиц быстро уменьшается, а их средний размер растет. На рис. 6б представлены кривые, описывающие распределение одноименно заряженных частиц в пылевой плазме. Сравнение рис. 6а и 6б показывает, что зарядка частиц приводит к общему торможению процесса коагуляции. Вместе с тем качественно меняется и характер поведения функции распределения. В начальный период времени интенсивно «выедается» мелкая фракция, испытывающая существенно меньшее торможение коагуляции по сравнению с более крупными частицами. За счет этого, по-видимому, появляются кластеры со структурой типа «цветной капусты», состоящие из множества мелких частиц. Столкновения более крупных частиц между собой затруднены возникающим кулоновским барьером. В своем движении в сторону увеличения размера частиц функция распределения как бы «наталкивается» на кулоновский барьер. Однако для частиц с размерами, сравнимыми или превышающими дебаевский радиус, эффект электростатического отталкивания снижается и их коагуляция оказывается вполне вероятной. Распределение сужается и его дисперсия уменьшается. Определенную роль в этом играет и осаждение более крупных частиц. Кроме того, по форме распределение становится более похожим на нор-

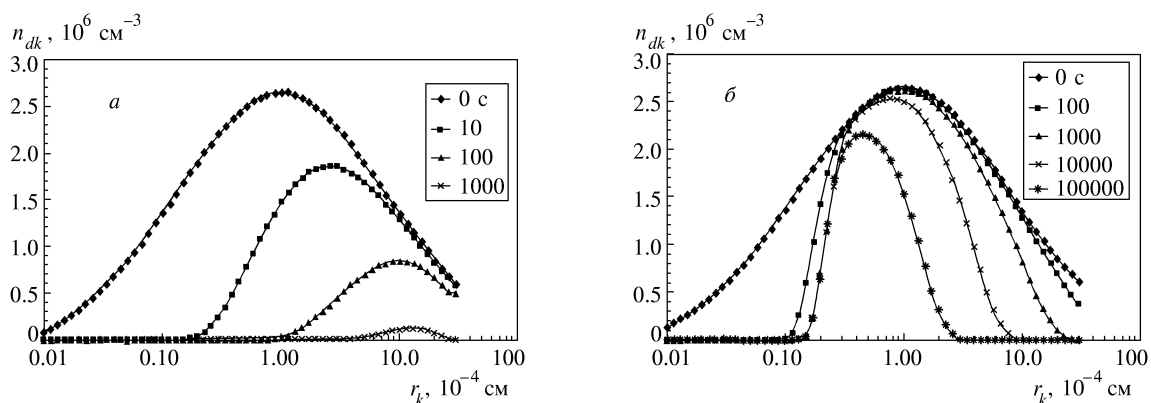


Рис. 6. Динамика изменения широкого распределения частиц по размерам в незаряженном полидисперсном аэрозоле (а) и в пылевой плазме (б) с $\bar{r}_k = 1 \cdot 10^{-4}$ см

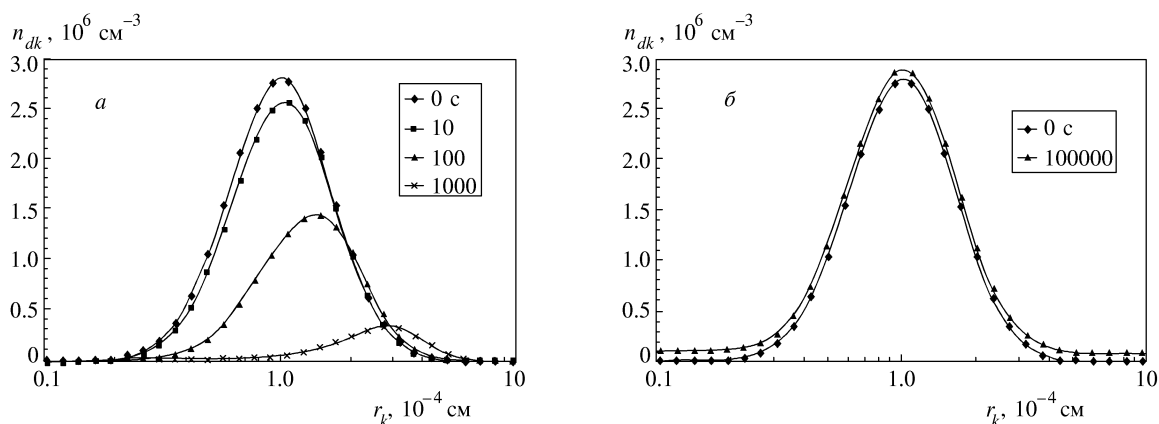


Рис. 7. Динамика изменения узкого распределения частиц по размерам в незаряженном полидисперсном аэрозоле (а) и в пылевой плазме (б) с $\bar{r}_k = 1 \cdot 10^{-4}$ см. Функции распределения для $t = 0$ с и для $t = 10^5$ с практически совпадают, поэтому последняя кривая сдвинута на одно деление вверх для удобства представления

мальное. Еще одной интересной особенностью поведения функции распределения в рассматриваемых условиях является возможность уменьшения среднего размера частиц с течением времени.

Выше дан анализ поведения распределения частиц по размерам со сравнительно широкой дисперсией. Если в качестве исходной принять достаточно узкую функцию распределения с $\bar{r}_k < R_d$ и исключить осаждение, связанное, в основном, с контактом со стенками и гравитацией, то сильно заряженный аэрозоль сможет существовать на протяжении длительного времени без ощутимых изменений концентрации частиц. Для иллюстрации этого утверждения на рис. 7а, б приведены распределения частиц по размерам в различные моменты времени с $\bar{r}_k = 10^{-4}$ см, существенно меньшим дебаевского радиуса ($R_d = 8.45 \cdot 10^{-4}$ см). Здесь и ниже стандартное геометрическое отклонение исходных распределений принимали равным 0.5, а интервал изменения размеров частиц ($r_{min} = 10^{-6}$ см, $r_{max} = 3 \cdot 10^{-2}$ см).

Рисунок 7а соответствует незаряженному, а рис. 7б — заряженному аэрозолю при отсутствии осаждения. Расчеты показывают, что в пылевой плазме (рис. 7б) заметные изменения в форме распределения отсутствуют для промежутков времени вплоть до 10^7 с. Что касается незаряженного аэрозоля, то его концентрация падает за счет коагуляции на порядки величины за время $\sim 10^3$ с (рис. 7а). На рис. 8 приведены графики распределений частиц по размерам с $\bar{r}_k = 2 \cdot 10^{-3}$ см в незаряженном аэрозоле (рис. 8а) и в пылевой плазме с $R_d = 8.45 \cdot 10^{-4}$ см (рис. 8б). В этом случае ($\bar{r}_k > R_d$) влияние заряжения на скорость коагуляции пылевых частиц оказывается не столь значительным по сравнению с предыдущим. Вместе с тем обращает на себя внимание тот факт, что в отсутствие осаждения в процессе коагуляции в области более крупных размеров на графике $n_d(r_k)$ возникает дополнительный максимум (рис. 8б).

Таким образом, поведение распределения частиц

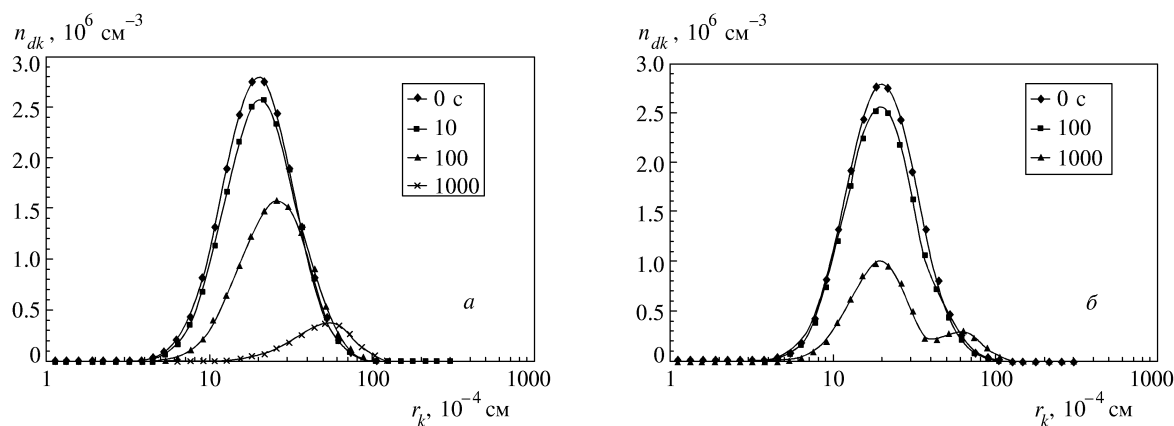


Рис. 8. Динамика изменения узкого распределения частиц по размерам в незаряженном полидисперсном аэрозоле (а) и в пылевой плазме (б) с $\bar{r}_k = 2 \cdot 10^{-3}$ см

по размерам в пылевой плазме аномально и обладает рядом интересных особенностей, которые могут привести к некоторым необычным физическим явлениям, например, левитации долгоживущей «квазижидкой» пылевой структуры в электростатической ловушке. Время существования незаряженного аэрозоля с концентрацией частиц более 10^9 см $^{-3}$ весьма ограничено, и его свойства, по-видимому, практически не исследованы. Поэтому создание стабильного аэрозоля со столь высокой плотностью частиц представляет не только прикладной, но и чисто научный интерес.

В заключение следует отметить, что настоящее исследование выполнено в диффузионном приближении. Однако качественно сходные результаты, по-видимому, имеют место и в случае низких давлений и более мелких частиц, т.е. в ситуации молекулярного течения. В связи с этим особый интерес представляет влияние рассмотренных эффектов на процессы структурной перестройки в космических пылевых объектах. Однако этот вопрос требует специального изучения.

Авторы выражают глубокую благодарность В. Ю. Баранову, В. Е. Фортову и Г. Хоре (Н. Нога) за интерес к работе и полезное обсуждение.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Н. Цытович, УФН **167**, 57 (1997).
2. S. J. Choi and M. J. Kushner, J. Appl. Phys. **74**, 853 (1993).
3. С. А. Крапивина, *Плазмохимические технологические процессы*, Изд-во Химия, Ленинград (1981).
4. S. R. Forrest and T. A. Witten, J. Phys. A: Math. Gen. **12**, L109 (1979).
5. F. J. Huang and M. J. Kushner, J. Appl. Phys. **81**, 5960 (1997).
6. Н. А. Фукс, *Механика аэрозолей*, Изд-во АН СССР, Москва (1955).
7. В. Ю. Баранов, И. А. Белов, А. В. Демьянов, и др., Препринт ИАЭ-6105/6, Москва (1998); И. А. Белов, А. С. Иванов, Д. А. Иванов, и др., Письма в ЖТФ **25**, 89 (1999).
8. G. M. Hidy and J. R. Brock, J. Col. Sci. **20**, 123 (1965).
9. G. M. Hidy and J. R. Brock, *The Dynamics of Aerocolloidal Systems*, Pergamon, Oxford (1970).
10. П. Райст, *Аэрозоли. Введение в теорию*, Мир, Москва (1987).
11. Б. М. Смирнов, *Аэрозоли в газе и плазме*, ИВТАН, Москва (1990).
12. J. J. Dutton, J. Chem. Phys. Ref. Data **4**, 577 (1975).
13. Б. М. Смирнов, *Ионы и возбужденные атомы в плазме*, Атомиздат, Москва (1974).
14. J. V. A. Mitchell, Phys. Rep. **186**, 215 (1990).
15. H. Bunz, M. Kouro, and W. Schock, NAUA Mod 4, KfK 3554, Karlsruhe (1983).