

- Периодические волны конечной амплитуды в вязкой жидкости (Обзор) // Электронная обработка материалов. 2004. № 4. С. 66–78.
18. *Nayfeh A.H.* Finite amplitude surface waves in a liquid layer//J. Fluid Mech. 1970. V.40. Part 4. P. 671–684.
19. *Bhimsen K., Sh.* Nonlinear stability of surface waves in electrohydrodynamics // Quart. of Appl. Math. 1979. V. 35. P. 423–427.
20. *Malik S.K., Rama Kant.* Second harmonic resonance in electrohydrodynamics // Quart. of Appl. Math. 1986. V. 43. P. 23–24.
21. *Michael D.H.* Nonlinear effects in electrohydrodynamic surface wave propagation // Quart. of Appl. Math. 1977. V.35. P.139–143, 345–355.
22. *Michael D.H.* Note on electrohydrodynamic stability //Quart. of Appl. Math. 1970. V. 28. № 1. P. 139–143.
23. *Rama Kant, Jindia R.K., Malik S.K.* Finite amplitude surface waves in electrohydrodynamics // Quart. of Appl. Math. 1981. V. 39. P. 23–24.

Поступила 15.02.05

Summary

The asymptotic analytical solution of a problem of nonlinear capillary-gravity waves in a layer of finite depth of ideal fluid in forth approximation on wave amplitude is found. It is shown that the dependence of nonlinear corrections to amplitudes and frequency of waves is qualitatively and quantitatively changed at the transition from thick to thin layers.

С.А. Хайнацкий, В.В. Шамко, Л.З. Богуславский*

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СКОРОСТИ ПРОРАСТАНИЯ ИМПУЛЬСНОЙ КОРОНЫ В СИЛЬНЫХ ЭЛЕКТРОЛИТАХ

*Институт импульсных процессов и технологий НАН Украины,
пр. Октябрьский, 43-А, г. Николаев, 54018, Украина
*Николаевский филиал Европейского университета,
ул. Мореходная, 2-А, г. Николаев, 54010, Украина*

Введение. Исследования последних лет показали, что при определенных условиях импульсная корона (ИК) в жидкостях обладает достаточно высокой интенсивностью гидродинамических возмущений, сравнимых по крайней мере с возмущениями, генерируемыми подводным искровым разрядом [1]. Такая гидродинамическая особенность присуща ИК в сильных электролитах, для которых характерно наличие короны в виде сплошного плазменного образования (СПО). Поэтому вопрос определения скорости прорастания импульсной короны в сильных электролитах является ключевым в развитии представлений о характере и интенсивности гидродинамических возмущений, генерируемых разрядом в жидкости.

Реализовано уже несколько подходов к решению этой задачи. В [1] представлены экспериментальные результаты зависимости радиуса СПО для некоторых режимов разряда. В работе [2] приведены результаты моделирования ИК в постановке, когда скорость распространения границы плазменного образования определяется двумя процессами – скоростью распространения фронта ионизации и скоростью газодинамического расширения плазмы под действием разности давлений внутри плазмы и в окружающей жидкости. Скорость ионизации полагалась постоянной и задавалась параметрически. В [3] приводятся результаты экспериментальных исследований и моделирования протяженности переходного слоя и временной зависимости его относительного изменения в процессе разряда. В работе предполагается, что процессы, происходящие в переходном слое, во многом определяют динамику прорастания ИК.

Цель работы – исследование зависимости скорости прорастания ИК в сильных электролитах от их электропроводности и оценка влияния скорости фронта ионизации на этот процесс.

Постановка задачи. После подачи высокого напряжения ($U_0 \approx 10^4$ В) на разрядную камеру через электролит проводимостью σ_0 начинает течь ток, величина которого $I_0 = U_0/R_0 = 2\pi r_0 \sigma_0 U_0 \leq 10^3$ А (r_0 – радиус оконечности стержня положительного электрода). Максимальная плотность тока достигается у поверхности стержня положительного электрода $J_0 \approx I_0/(2\pi r_0^2) \geq 10^7$ А/м². Достижимая при этом плотность выделения мощности $N_0 \approx J_0^2/\sigma_0 \geq 10^{14}$ Вт/м³ оказывается достаточной для преобразования за время пробоя $t_{пр} \leq 10^{-6}$ с тонкого слоя электролита в плазменный слой. Действительно, плотность выделяемой в приэлектродном слое электролита энергии $\omega_0 \approx N_0 t_{пр} \approx 10^8$ Дж/м³ оказывается одного порядка с плотностью энергии в плазме подводного искрового [4] или импульсного диафрагменного [5] разряда. Появление плазменного слоя сопровождается скачком тока на осциллограммах [1].

Динамика формирования плазменного сгустка при импульсной короне, по-видимому, аналогична формированию канала сквозной проводимости при искровом разряде [3, 6]. То есть сначала происходят чисто омический нагрев электролита, его вскипание и потеря ионной проводимости, а затем пробой паровой прослойки из-за увеличения на ней напряженности электрического поля после потери проводимости. Однако после образования плазмы аналогия развития ИК с искровым разрядом заканчивается. В последнем электрическая энергия продолжает выделяться в плазменном канале, а в ИК из-за разницы в проводимостях плазмы и электролита, включенных последовательно в цепь, – в основном в прилегающем к плазменному сгустку слое вещества. Это вещество представляет собой нагретый до температур $T_* \approx (1-2) \cdot 10^3$ К газ переходного слоя [7] и прилегающий к последнему небольшой ($\delta \leq 4r_0$) слой электролита, где температура еще заметно отличается от исходной [8].

Под действием интенсивного энерговыделения в переходном слое его содержимое разогревается и ионизируется, пополняя состав плазменного сгустка. Процесс поступления вещества в плазменный сгусток выглядит следующим образом. Поскольку проводимость вещества в переходном слое σ_* гораздо меньше, чем в плазме σ_a , то в нем и будет выделяться более интенсивно, по сравнению с плазменным сгустком, джоулева энергия. И когда внутренняя энергия частиц переходного слоя ε_* сравняется с энергией плазмы ε_a , то можно считать, что произошло увеличение массы плазменного сгустка на то количество вещества переходного слоя, энергия которого достигла величины ε_a . Скорость перемещения границы, разделяющей вещество с $\varepsilon \geq \varepsilon_a$ и вещество с $\varepsilon < \varepsilon_a$, относительно нагретого газа переходного слоя v_f назовем скоростью распространения фронта ионизации. Величина этой скорости определяется физико-химическими свойствами электролита и интенсивностью выделения джоулевой энергии в переходном слое. В то же время прилегающий к переходному слою электролит под действием диссипируемой в нем энергии поля подвергается дальнейшему разогреву и испарению, пополняя убыль вещества переходного слоя. В результате происходит как бы "выгорание" электролита с некоторой эффективной скоростью горения $u \approx v_f$ [5, 9]. С течением времени зона, в которой протекает реакция, передвигается по электролиту и "горением" захватываются все новые и новые порции вещества. Этот процесс сопровождается также движением электролита благодаря расширению сжатого плазменного сгустка.

Поскольку скорость подвода джоулева тепла и испарения вещества в переходный слой значительно уступает скорости собственно ионизационных процессов, на самом деле лимитирующими факторами "прироста" переходного слоя являются именно эти процессы. Но сути происходящих явлений наиболее соответствует название "скорость распространения фронта ионизации", поэтому в дальнейшем будем использовать этот термин для определения "ионизационной" компоненты скорости прорастания импульсной короны в сильных электролитах.

Порядок величины зоны переходного слоя δ определяется расстоянием, на котором электролит испаряется (теряет свою проводимость). В первом приближении эту зону можно ограничить глубиной прогрева электролита до температуры $T_{c*} \approx 350-400^\circ\text{C}$ [3, 10], то есть до критической. Экспериментальная оценка протяженности переходного слоя [3] дает величину $\delta \approx 10^{-4}$ м. Поскольку характерные размеры явления (системы) существенно превышают толщину слоя, в котором идут химические реакции превращения электролита в плазму, то при описании движения вещества в целом (плазма–переходный слой–электролит) можно выделить чисто газодинамическую задачу [11] и отделить ее от задачи химической кинетики. И лишь при рассмотрении баланса энергии в системе и электрического потенциала в цепи возвратимся к рассмотрению внутренней структуры вещества переходного слоя и диссипации энергии в нем.

Эксперимент. Эксперименты проводились на установке со следующими параметрами генератора импульсных токов: напряжение заряда емкостного накопителя до 30 кВ, емкость 2–6 мкФ, индуктивность разрядного контура 3 мкГн. Разряд осуществлялся в специальной ячейке цилиндрической формы, заполненной водным раствором соли NaCl с электропроводностью от 0,1 до 20 См/м (предел насыщения раствора) при температуре 16–90°C. Использовалась электродная система "острие–плоскость", электрод "острие" располагался вдоль оси камеры, "плоскость" – днище разрядной ячейки.

Электропроводность раствора электролита измерялась кондуктометрическим способом, измерения контролировались регистрацией плотности раствора стандартным денситометром и определением электропроводности по справочным данным.

В основу экспериментальных исследований положен метод одновременного измерения электрических характеристик, регистрация волн сжатия и скоростная фоторегистрация разряда [1]. Разрядный ток и напряжение изменялись с помощью коаксиального шунта и емкостного либо омического делителя напряжения. Скоростная фоторегистрация динамики плазменной короны осуществлялась камерой ВФУ-1 с временным разрешением от $5 \cdot 10^{-7}$ с в режиме "лупы времени". В качестве подсветки использовалась импульсная лампа ИФК-2000. Проводилась также микросъемка с установкой промежуточного объектива с большим фокусным расстоянием, позволявшая достигать пространственного разрешения 10^{-5} м.

Параметры первичной и вторичной волн сжатия регистрировались пьезоэлектрическими датчиками давления, градуировка которых проводилась методом сравнения на установке с баллистическим маятником. Расстояние до датчиков давления составляло от 130 до 150 мм.

С целью уменьшения величины случайной погрешности измерения проводились серии из 5–10 разрядов на одну точку. Данные каждой серии усреднялись, определялись среднее квадратичное отклонение и доверительный интервал.

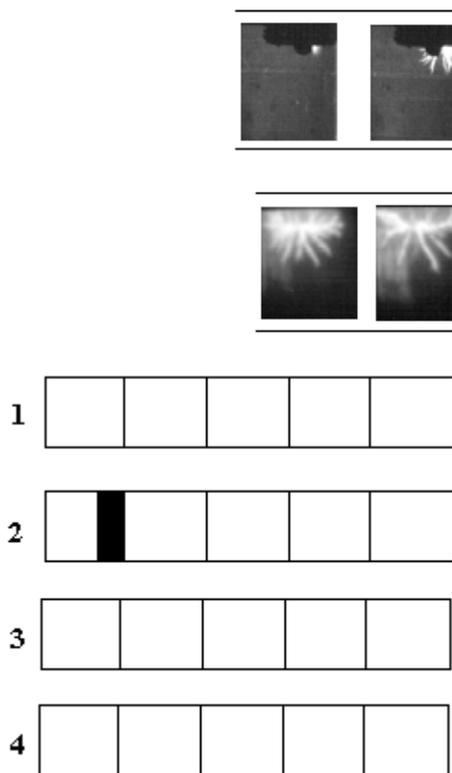


Рис. 1. Развитие во времени импульсной короны в зависимости от электропроводности σ_0 электролита. σ_0 , См/м: 1– 0,125; 2– 1,1; 3– 3,3; 4– 9,1

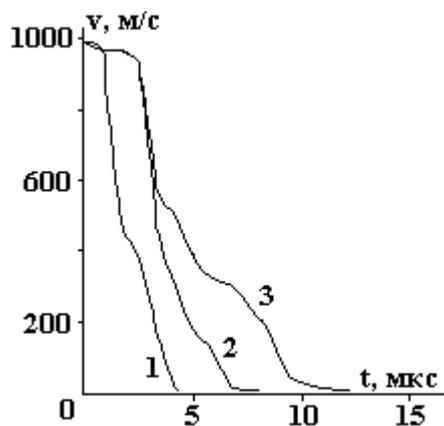


Рис. 2. Временная зависимость скорости ИК для различных электропроводностей. σ_0 , См/м: 1 – 9,1; 2 – 5,6; 3 – 3,3

Теневая картина пространственно-временного развития короны для параметров $U_0 = 28$ кВ, $\sigma_0 = 0,125$ – $9,1$ См/м, $r_0 = 5$ мм приведена на рис. 1. Для разрядов с $\sigma_0 \geq 3,3$ См/м характерно наличие короны в виде СПО. По скоростным фотограммам разряда определялся эффективный радиус плазменного образования, которое аппроксимировалось полусферой, полностью заполненной плазмой, и

скорость распространения ИК. Временная зависимость скорости ИК для трех различных электропроводностей приведена на рис. 2. Как видно из рисунка, зависимость скорости от электропроводности сохраняет тенденцию, определенную для линейного разряда (см., например, [4]), – с ростом электропроводности соответствующие значения скорости уменьшаются. Исключение составляет небольшой (менее одной микросекунды) начальный участок, но на нем велика вероятность возникновения погрешности из-за неточности оцифровки фотограмм.

Теория. В газодинамической постановке "зона выгорания электролита" (переходный слой) рассматривается как поверхность раздела плазмы и электролита, где состояние вещества испытывает скачок. Эта поверхность разрыва перемещается относительно электролита в нормальном к поверхности направлении со скоростью распространения фронта v_f . Тогда результирующая скорость передвижения плазменного фронта v в лабораторной системе координат может быть записана в виде суммы скоростей фронта ионизации v_f и гидродинамической скорости электролита v_h у поверхности плазменного сгустка:

$$v = v_f + v_h. \quad (1)$$

Для определения скорости фронта воспользуемся подходом авторов [5, 9], изучавших близкие по физической природе явления "светового горения" [9] и импульсного диафрагменного разряда [5]. С учетом, что при ИК преобладающим является джоулев подвод тепла в зону реакции, а не теплопроводностный, как при химическом или световом горении, можно записать уравнение для одномерного стационарного распространения реакции в системе координат, связанной с плазменным фронтом, в довольно простом виде:

$$\rho_0 v_f c_p \frac{dT}{dx} = F, \quad (2)$$

где ρ_0 , c_p – начальная плотность и удельная теплоемкость электролита, F – объемная плотность скорости энерговыделения (в данном случае выделяющаяся во фронте реакции объемная плотность джоулевой мощности).

Интегрируя это уравнение, получаем

$$\rho_0 v_f [h_a(T_a) - h_e(T_e)] = N_*(t) / S_a(t). \quad (3)$$

Здесь h_a – удельная энтальпия плазмы, соответствующая температуре поверхности плазменного сгустка T_a в момент времени t ; h_e – удельная энтальпия электролита, соответствующая температуре поверхности электролита T_e в тот же момент времени t ; $N_*(t)$ – выделяющаяся во фронте электрическая мощность; $S_a(t)$ – площадь поверхности плазменного сгустка. Поскольку $h_e \ll h_a$, то, взяв из газодинамических расчетов значения энтальпии плазмы

$$h_a = \varepsilon_a + P_a / \rho_a \approx \frac{\gamma}{\gamma - 1} \frac{P_a}{\rho_a}, \quad (4)$$

можно получить скорость движения фронта v_f относительно неподвижного электролита:

$$v_f = \frac{\gamma - 1}{4\pi\gamma\rho_0} \frac{N_*(t)\rho_a}{a^2 P_a}, \quad (5)$$

где a – радиус СПО.

В отличие от скорости распространения пламени при горении [12], которая является физико-химической константой данной горючей смеси, скорость распространения фронта ионизации, вообще говоря, величина, изменяющаяся со временем. Она зависит как от интенсивности энерговыделения $N_*(t)$ в переходном слое, так и от параметров состояния исходной среды (γ , ρ_0) и плазмы (a , ρ_a , P_a). Последние в свою очередь определяются интенсивностью энерговыделения в плазменном сгустке.

Приблизительную оценку v_f можно произвести, воспользовавшись экспериментальными данными, полученными в рамках этой работы. Известна зависимость от времени эффективного радиуса СПО для различных режимов разряда и тока. Для оценки электропроводности газа в переходном слое можно воспользоваться данными, приведенными в [10]. Временные зависимости толщины переходного слоя, полученные экспериментально, приведены в [3]. Для оценки давления в СПО воспользуемся результатами регистрации первичной волны сжатия в ближней зоне ИК. В самом грубом приближении процесс в СПО можно представить как политропический, с показателем политропы для плазмы канала разряда $\chi = 1,26$ [6]. В качестве приближенных значений ρ_a можно принять приведенные в [5] значения плотности плазмы диафрагменного разряда. Константу в уравнении политропы можно вычислить по известным из эксперимента P_{\max} и V_{\max} в момент времени, соответствующий

максимуму выделяющейся в промежутке мощности. Результаты расчета v_f для тех же начальных электропроводностей приведены на рис. 3. Зависимости v_f хорошо коррелируют с зависимостями тока от времени. Амплитудные значения v_f на порядок меньше, чем полученные экспериментально скорости прорастания импульсной короны, и значительно меньше значений газодинамической скорости, полученной при математическом моделировании коронного разряда в сильных водных электролитах [2].

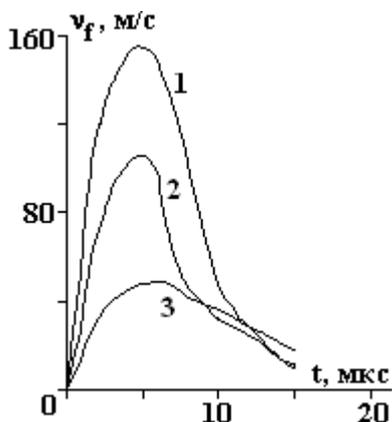


Рис. 3. Зависимость скорости фронта ионизации от времени для различных электропроводностей. σ_0 , См/м: 1 – 9,1; 2 – 5,8; 3 – 3,3

Заключение. Зависимость скорости прорастания импульсной короны от электропроводности в сильных электролитах, определенная экспериментально, сохраняет тенденцию, характерную для линейного разряда, – с ростом электропроводности соответствующие значения скорости уменьшаются. Максимальные значения скорости в 2–3 раза меньше, чем скорость прорастания лидерной системы в водопроводной воде, и примерно в 5 раз – чем в дистиллате.

Зависимости скорости распространения фронта ионизации v_f , полученные в рамках модели "электротеплового горения", хорошо коррелируют с зависимостями тока от времени. Характер зависимости v_f от начальной электропроводности электролита иной, чем для общей скорости прорастания импульсной короны в сильных электролитах, – v_f растет с ростом σ_0 . Амплитудные значения v_f на порядок меньше, чем полученные экспериментально скорости прорастания импульсной короны, и значительно меньше значений газодинамической скорости, полученной при математическом моделировании коронного разряда в сильных водных электролитах. Это может свидетельствовать о том, что по крайней мере в начальные моменты времени характер процесса определяет газодинамическая компонента скорости. Однако при сравнении полученных результатов с результатами работы [2] видно, что учет скорости распространения фронта ионизации вместе с газодинамической скоростью позволяет получить лучшее экспериментальным данным согласие модели.

ЛИТЕРАТУРА

1. Богуславский Л.З., Кучеренко В.В., Кривицкий Е.В. Динамика импульсного коронного разряда в водных электролитах. Николаев, 1993 (Препринт/ АН Украины. ИИПТ: № 22).
2. Шамко В.В., Богуславский Л.З. Математическое моделирование коронного разряда в сильных водных электролитах // Теория, эксперимент, практика электроразрядных технологий. Киев, 2002. Вып. 4. С. 34–44.
3. Boguslavsky L.Z., Khaynatsky S.A., Scherbak A.N. Optical Studies of the Plasma–Liquid Transition Layer in Pulsed Corona Discharges in Strong Water Electrolytes // Technical Physics. 2001. Vol. 46. No. 2. P. 174–178.
4. Кривицкий Е.В. Динамика электровзрыва в жидкости. Киев, 1986.
5. Резников Б.И., Жуков Б.Г., Сосновский А.В. Газодинамическая модель импульсного диафрагменного разряда в электролитах // Журнал технической физики. 1977. Т. 47. Вып. 12. С. 2487–2496.
6. Кривицкий Е.В., Шамко В.В. Переходные процессы при высоковольтном разряде в воде. Киев, 1979.
7. Шамко В.В. Особенности энерговыделения при коронном разряде в водных электролитах // Физика импульсных разрядов в конденсированных средах: Тез.докл. VIII научн.школы. Николаев, 1997.
8. Богуславский Л.З., Бристецкий Е.В., Дюпин В.А., Кривицкий Е.В. Исследование переходного слоя плазма – жидкость при коронном разряде в электролитах // Физика импульсных разрядов в конденсированных средах: Тез.докл. VIII научн.школы. Николаев, 1997.

9. Райзер Ю.П. Лазерная искра и распространение разрядов. М., 1974.
10. Qist A.S., Marshall W.L. Electrical conductance's of aqueous sodium chloride solutions from 0 to 8000 and at pressures to 4000 bars // Journ. Phys. Chem. 1968. V. 72. 12. P. 684–703.
11. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Гидродинамика. М., 1986.
12. Хитрин Л.Н. Физика горения и взрыва. М., 1957.

Поступила 25.01.05

Summary

Results of experimental investigations of dependence of pulse corona velocity in strong electrolytes are given. The contribution of rate of ionization front propagation to the general corona velocity is theoretically investigated. It is shown that hydrodynamic speed component has more substantial effect at starting points of time. At the same time the account of rate of ionization front propagation along with the hydrodynamic speed allows to receive better model accordance with the experimental data.

Л.А. Кузьмичева, А.И. Максимов, Ю.В. Титова

ВОССТАНОВЛЕНИЕ ПЕРМАНГАНАТА КАЛИЯ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ТЛЕЮЩЕГО РАЗРЯДА АТМОСФЕРНОГО ДАВЛЕНИЯ

*Институт химии растворов РАН,
ул. Академическая, 1, г. Иваново, 153045, Россия*

Введение

Под действием тлеющего разряда в растворах электролитов образуются первичные активные частицы, такие как атомарный водород, гидроксил-радикалы, сольватированные электроны. Вторичным продуктом, образующимся в плазменно-растворной системе, является пероксид водорода. Появление активных частиц инициирует протекание различных окислительно-восстановительных процессов в растворах, что найдет практическое применение для модифицирования полимерных материалов, стерилизации водных растворов и изделий, очистки воды.

Процессы окисления и реже восстановления неорганических соединений, инициируемые действием плазменной обработки в растворах, исследовались в основном для условий пониженного давления [1–10 по статье]. В то же время для практических целей более удобно использование менее изученного разряда атмосферного давления.

Цель работы – исследование процесса восстановления перманганата калия в водном растворе под действием положительного тлеющего разряда атмосферного давления (анод над поверхностью раствора в газовой фазе). Изучалось влияние тока разряда и начального значения рН раствора на кинетику восстановления, а также явление постэффекта (протекания процесса, инициируемого разрядом в растворе, после прекращения плазменной обработки).

Методика эксперимента

Изучалось восстановление перманганата калия под действием положительного тлеющего разряда атмосферного давления между электродом-острием в газовой фазе и поверхностью водного раствора электролита в качестве катода. Токи разряда составляли 2,5, 5 и 10 мА, напряжение на электродах не превышало 50 кВ. Объем обрабатываемого раствора – 400 мл. Концентрации рабочих растворов изменялись в пределах 0,1–0,3 ммоль/л. Изменение концентрации перманганата калия регистрировали спектрофотометрически на длине волны KMnO_4 525 нм. Схема установки представлена на рис. 1.

Через проточную систему объемом 400 мл с кварцевой ячейкой излучение галогеновой лампы попадало на входную щель зеркального монохроматора с дифракционной решеткой. Сигнал на выходе монохроматора регистрировался фотоэлементом Ф-4, повышался усилителем постоянного тока и через аналого-цифровой преобразователь (miniLAB 1008) подавался на компьютер. рН раствора измеряли рН-метром «Аквилон-И500». Концентрация пероксида водорода определялась йодометрическим титрованием с молибдатом аммония по стандартной методике [11].