02;03;04;10;12 Воздействие импульсных пучков электронов на примесь сероуглерода в воздухе

© Ю.Н. Новоселов, А.И. Суслов, Д.Л. Кузнецов

Институт электрофизики УрО РАН, 620016 Екатеринбург, Россия e-mail: nov@iep.uran.ru

(Поступило в Редакцию 21 ноября 2002 г.)

Приведены результаты экспериментальных и теоретических исследований процессов воздействия импульсных электронных пучков нано- и микросекундной длительности на азотно-кислородную смесь атмосферного давления с примесью сероуглерода CS₂. Обнаружены два режима конверсии примеси, зависящие от типа используемого пучка и отличающиеся как механизмом, так и конечными продуктами. Экспериментально исследовано влияние на конверсию примеси внешнего электрического поля. Создана компьютерная модель процессов и выполнен анализ обнаруженных в опытах эффектов.

1. Введение

В газообразных отходах ряда химических производств содержатся примеси сероуглерода CS₂. Особенно высокая концентрация молекул сероуглерода зафиксирована в отходящих газах производства вискозы. Один из путей решения проблемы очистки воздуха от этой токсичной примеси состоит в создании в потоке газа области слабоионизированной плазмы электронными пучками или электрическими разрядами и активизации плазмохимических процессов, приводящих к удалению токсичной компоненты. В последнее время подобный подход находит все более широкое распространение [1,2].

Преимущества использования импульсных электронных пучков для ионизации воздуха с целью удаления токсичных примесей по сравнению с непрерывными пучками продемонстрированы в [3] на примере диоксида серы SO₂. Применение импульсных пучков и инициируемых ими несамостоятельных объемных разрядов позволяет получить оптимальный с точки зрения энергетических затрат режим конверсии токсичной примеси за счет подбора параметров пучка и разряда. Так, в [3] применение импульсных электронных пучков позволило реализовать цепной механизм окисления SO₂ в плазме, что привело к снижению затрат энергии на удаление одной молекулы SO2 в несколько раз по сравнению с непрерывными электронными пучками. В настоящей работе приведены результаты экспериментальных исследований и моделирования физико-химических процессов, протекающих при воздействии импульсных электронных пучков на азотно-кислородные смеси атмосферного давления, содержащие примесь сероуглерода и моделирующие отходящие газы.

Методика экспериментов и экспериментальные установки

Все эксперименты, результаты которых представлены ниже, выполнялись в модельных газовых смесях на основе азота и кислорода. При этом содержание азота N₂ изменялось от 89 до 99%, кислорода O₂ — от 0.1 до 10%. Содержание исследуемой примеси CS₂ изменялось от 50 ppm до 1%. Смеси готовились в специальном смесителе, внутри которого был установлен вентилятор, обеспечивающий принудительное перемешивание газов. Во всех опытах давление смеси было атмосферным. Анализ состава смеси и продуктов удаления сероуглерода проводился методом газовой хроматографии на детекторе по теплопроводности с использованием трехметровой колонки, заполненной сорбентом марки "Силохром-120". Пробу для анализа объемом 2 cm³ отбирали через постоянно прокачиваемую со скоростью 100 cm³/min петлю крана дозатора. Типичная ошибка измерений концентраций примеси не превышала 10% в диапазоне 10-100 ррт и 3% при концентрации примеси более 100 ррт.

Для облучения модельных газовых смесей использовались два ускорителя электронов с разными параметрами. В наносекундном диапазоне времени использовался малогабаритный ускоритель РАДАН, имеющий взрывоэмиссионный катод [4]. Генерируемый им пучок электронов имел параметры: энергия электронов 180 keV, длительность импульса на полувысоте $\tau \sim 3$ ns, плотность тока пучка сечением 1 cm² $j \sim 800$ A/cm², частота следования импульсов до $10 \, {\rm s}^{-1}$. Этот ускоритель использовался при облучении малого объема газа около 10 cm³ при общем объеме камеры 3 1. В ряде экспериментов в облучаемом объеме зажигался несамостоятельный разряд, инициируемый наносекундным пучком электронов. Разряд зажигался в промежутке длиной 1 ст при подключении к нему конденсатора емкостью $12 \cdot 10^{-9}$ F, заряжаемого до напряжения 1.0-25.0 kV.

В микросекундном диапазоне времени использовался ускоритель с плазменным катодом, аналогичный [5], работающий в режиме одиночных импульсов. Этот ускоритель формировал радиально расходящийся пучок электронов сечением ~ 1.5 m^2 , с энергией электронов 280–300 keV, плотностью тока $j \sim 10^{-4} - 10^{-2} \text{ A/cm}^2$, длительность импульса $\tau \sim 48 \,\mu$ s. Облучению подвергался газовый объем 1701. Конструкция установки

предусматривала возможность зажигания в этом же объеме несамостоятельного разряда, поддерживаемого пучком электронов. Разряд зажигался между двумя коаксиальными электродами, одним из которых являлась заземленная выводная фольга ускорителя, другим электродом являлся металлический цилиндр, к которому подключался конденсатор емкостью 9 · 10⁻⁶ F, заряжаемый до напряжения 0–20 kV. Межэлектродный промежуток составлял 10 ст.

Облучение исследуемого газа осуществлялось сериями импульсов. При этом за один импульс пучка наносекундной длительности в газ вводилась энергия $\sim 3 \cdot 10^{-4}$ J/cm³, а в режиме облучения пучком электронов микросекундной длительности $\sim 1 \cdot 10^{-4}$ J/cm³, т.е. величины одного порядка. В ходе экспериментов определялись как абсолютное изменение концентрации примеси ΔC , так и степень ее конверсии, а также затраты энергии на удаление одной молекулы примеси. Степень конверсии (степень очистки газа от примеси) η и затраты энергии ε в eV на одну молекулу (eV/molecule) вычислялись так:

$$\eta = \Delta C/C_0, \quad \varepsilon = (W_b + W_E)N/e\Delta C.$$
 (1)

Здесь $\Delta C = C_0 - C$ — изменение концентрации молекул сероуглерода за серию импульсов облучения (cm⁻³); C_0 и C — начальная и текущая концентрации примеси исследуемой смеси (cm⁻³); W_b и W_E — удельная энергия, вводимая в газ электронным пучком и от внешнего электрического поля за один импульс (J/cm³); N количество импульсов в серии облучения; e — заряд электрона (Coul). Общая погрешность измерений величины ε с учетом погрешности определения удельной поглощенной энергии $W = W_b + W_E$ не превышала 0.3.

3. Режимы конверсии сероуглерода

1. Наносекундный режим. При облучении смеси наносекундным пучком электронов получены зависимости концентрации молекул сероуглерода от количества импульсов облучения. Все эти зависимости имеют линейный характер, т.е. с увеличением числа импульсов облучения и соответственно вложенной в газ энергии концентрация CS₂ снижается пропорционально, кроме того, начальная концентрация CS2 слабо влияет на угол наклона полученных характеристик. Минимальное значение затрат энергии є в этих опытах было равно 0.8 eV/molecule, что существенно меньше энергии диссоциации молекулы сероуглерода — 4.5 eV. Это свидетельствует о том, что механизмом удаления CS₂ не может быть диссоциация сероуглерода под действием прямого электронного удара. Подобный эффект импульсного воздействия наблюдался нами ранее в [3] при воздействии импульсными электронными пучками на смесь N2-O2-SO2, что было связано с осуществлением цепного механизма окисления SO2. Вероятной причиной малости затрат энергии на удаление молекул сероуглерода также может быть цепной механизм окисления

 CS_2 [6,7]. В пользу механизма окисления примеси свидетельствует тот факт, что в качестве основного конечного продукта процесса конверсии CS_2 в экспериментах с наносекундным пучком электронов был зарегистрирован диоксид серы SO_2 . Кроме того, в малых количествах были зафиксированы оксиды углерода CO, CO_2 и азота NO, NO₂. Зависимость концентрации образовавшегося SO_2 от количества импульсов облучения в смеси N₂ : O_2 : $CS_2 = 89 : 10 : 1$ представлена на рис. 1, *a*, зависимость от количества конвертированных молекул $\Delta[CS_2]$ — на рис. 1, *b*.

При достаточном количестве кислорода полное окисление CS_2 описывается реакцией

$$\mathrm{CS}_2 + 3\mathrm{O}_2 \to \mathrm{CO}_2 + 2\mathrm{SO}_2,\tag{1}$$

а при недостатке кислорода протекает реакция неполного окисления

$$CS_2 + O_2 \to CS + SO_2 \tag{2}$$

с образованием радикала CS. Из стехиометрического соотношения сероуглерода и диоксида серы как продукта окисления для обеих реакций видно, что при окислении одинакового количества CS_2 по реакции (1) SO_2 образуется в два раза больше, чем по реакции (2).

На рис. 1, *b* (кривая 3) приведена зависимость концентрации диоксида серы от количества удаленных из модельной смеси молекул сероуглерода $\Delta[CS_2]$ в режиме облучения смеси наносекундным пучком. Видно, что с ростом $\Delta[CS_2]$ концентрация молекул диоксида серы увеличивается, а затем стабилизируется примерно на одном уровне. Экспериментальная зависимость изменения концентрации SO₂ от количества импульсов при разложении CS₂ (кривая 3) не описывается процессами (1) и (2), представленными на рис. 1, *b* зависимостями *1* и 2 соответственно.

В несамостоятельных объемных разрядах поддержание разряда осуществляется независимо от напряжения на плазме. Благодаря этому величину напряженности электрического поля можно выбирать с точки зрения оптимизации передачи энергии в определенные степени свободы молекул [8]. Например, в [3] было экспериментально показано, что таким образом можно существенно снизить затраты энергии ε на удаление одной молекулы SO₂. В частности, цепные процессы окисления SO₂ ускоряются в слабых полях с напряженностью $E \sim 150-200$ V/cm за счет роста концентрации колебательно-возбужденных молекул кислорода O₂ [9].

В связи с этим представляло интерес выяснить влияние внешнего электрического поля на процессы коверсии молекул сероуглерода. На рис. 2 представлена зависимость количества удаленных молекул Δ [CS₂], а также зависимость величины затрат энергии ε от напряженности поля в столбе объемного разряда. Видно (рис. 2, *a*), что в интервале напряженности электрического поля *E* от 0 до 1.5 kV/cm значение ε изменяется незначительно



Рис. 1. Зависимость концентрации образовавшегося SO₂ в смеси N₂ : O₂ : CS₂ = 89 : 10 : 1 при облучении пучком электронов наносекундной длительности: a — от количества импульсов облучения N, b — от количества удаленных молекул Δ [CS₂] (1 — полное окисление CS₂, 2 — неполное окисление CS₂, 3 — эксперимент).



Рис. 2. Зависимость затрат энергии ε (*a*) на удаление одной молекулы примеси и количества удаленных молекул Δ [CS₂] (*b*) от напряженности поля *E* в столбе несамостоятельного разряда, инициируемого наносекундным пучком электронов. Точки — эксперимент, кривые — расчет.

и находится в пределах 0.6–0.9 eV/molecule. Это значительно ниже энергии диссоциации как сероуглерода, так и кислорода. Минимальное значение $\varepsilon = 0.6 \text{ eV/molecule}$ было получено при напряженности поля E = 0.5 kV/cm, что соответствует максимальному значению $\Delta[\text{CS}_2]$ на рис. 2, b. Увеличение напряженности поля приводит к значительному росту затрат энергии ε , величина которых при E > 10 kV/cm превышает 35 eV/molecule. При этом рост ε происходит не только за счет увеличения вводимой в газ энергии электронного пучка, но и за счет уменьшения количества конвертированных молекул $\Delta[\text{CS}_2]$ (рис. 2, b).

Таким образом, проведенные эксперименты показали, что при воздействии на исследуемую смесь пучка элек-

тронов наносекундной длительности, во-первых, затраты энергии на конверсию одной молекулы CS_2 существенно ниже энергии разрыва связей, во-вторых, вероятным механизмом конверсии является окисление молекул CS_2 с образованием SO_2 , в-третьих, наложение внешнего электрического поля приводит к снижению эффективности конверсии.

2. Микросекундный режим. В режиме облучения смеси слаботочным пучком микросекундной длительноси также зафиксировано линейное снижение концентрации CS_2 с ростом числа импульсов облучения. Зависимости количества удаленных молекул $\Delta[CS_2]$ и затрат энергии ε от начальной концентрации CS_2 показаны на рис. 3. В интервале начальных концентраций



Рис. 3. Зависимости затрат энергии ε (1) и количества удаленных молекул Δ [CS₂] (2) от начального содержания сероуглерода в смеси [CS₂]₀ при ее облучении слаботочным пучком электронов микросекундной длительности.



Рис. 4. Зависимость количества молекул сероуглерода Δ [CS₂], удаленных за 30 импульснов пучка электронов микросекундной длительности (точки) и расчетная зависимость скорости v_i генерации отрицательных ионов O_2^- в реакции (12) (сплошная кривая) от напряженности E электрического поля в несамостоятельном разряде.

 $[CS_2]_0 = 0.3-1.0\%$ количество удаленных молекул изменяется от $3.7 \cdot 10^{16}$ до $5.25 \cdot 10^{16}$ сm⁻³, при этом затраты энергии ε составляют 1.2-1.8 eV/molecule.

При облучении газовой смеси слаботочным электронным пучком микросекундной длительности механизм цепного окисления CS_2 не может быть причиной малых значений ε , поскольку в этом режиме содержание диоксида серы SO_2 , конечного продукта цепного механизма было зафиксировано в малых, почти следовых, количествах.

Установлено, что после обработки модельной смеси микросекундным электронным пучком боковые поверхности и дно плазмохимического реактора покрыты конденсированной твердой фазой желтого цвета, а верхняя горизонтальная поверхность реактора — темнокоричневой вязкой жидкостью. Элементный анализ показал, что обнаруженное в качестве конечного продукта соединение соответствует общему элементному составу $(-CS-)_n$. Агрегатное состояние соединение $(-CS-)_n$ зависит от молекулярной массы, т. е. числа *n*. Низкомолекулярное соединение возгоняется и конденсируется на верхней части реактора в виде жидкости, а соединение с большим числом *n* выпадает в виде твердого порошка. Однако молекулярные массы конденсированных фаз не определялись. Таким образом, вероятным механизмом конверсии сероуглерода в описываемом режиме являются процессы полимеризации радикалов CS.

Существенным образом отличаются и зависимости количества удаленных молекул $\Delta[CS_2]$ и затрат энергии ε от напряженности электрического поля, прикладываемого к ионизованной газовой смеси. В опытах с объемным разрядом, поддерживаемым пучком электронов микросекундной длительности, при напряженности поля в межэлектродном промежутке $E \sim 10-500$ V/cm наблюдалась ярко выраженная немонотонная зависимость $\Delta[CS_2]$ от E (рис. 4).

4. Моделирование процессов конверсии сероуглерода

1. Численная модель. Для анализа механизмов конверсии CS₂ была создана модель плазмохимических процессов, инициируемых импульсными электронными пучками в азотно-кислородных смесях с примесью сероуглерода. Модель включала расчет системы подвода энергии к газовой смеси от электронного пучка и, в случае зажигания объемного разряда, передачи энергии в разрядный промежуток от емкостного накопителя, а также расчет характеристик плазмы, констант скорости элементарных процессов с участием электронов, кинетики заряженных частиц и свободных радикалов. В начале определялась функция распределения электронов по энергиям, при ее расчете использовались данные о спектрах плазменных электронов (скорости рождения электронов в единичном интервале энергий в 1 cm³ в секунду), полученные методом Монте-Карло. Определение констант скорости образования электронов, ионов и радикалов под действием электронного пучка проводилось путем расчета вкладов вторичных электронов деградационного каскада в процессы ионизации и диссоциации O2 и N2. При этом рассчитывалось распределение энергии электронного пучка по различным электронным и колебательным состояниям газовых компонент смеси, а также определялись начальные концентрации этих компонент и концентрации заряженных частиц. На основе полученных данных рассчитывалась кинетика заряженных частиц и свободных радикалов. Набор рассматриваемых реакций включал процессы с участием электронов, отрицательных и положительных ионов, молекул и радикалов в основном и возбужденном состояниях. Всего в модели учитывалось более 300 процессов. Таким образом решалась самосогласованная





 10^{17}

10¹¹

0

 u^{-3} cm⁻³

Рис. 5. Зависимости от времени концентраций основных компонент плазмы, создаваемой в смеси $N_2 : O_2 : CS_2 = 89 : 10 : 1$ пучком электронов (*a*) наносекундной длительности, несамостоятельным объемным разрядом с напряжением горения 10kV/cm (*b*).

задача: с одной стороны, проводился учет влияния всех типов потерь энергии на функцию распределения электронов по энергиям, с другой стороны, с помощью функции распределения рассчитывались коэффициенты скорости и потери энергии электронов для различных каналов возбуждения. На основе совместного численного решения уравнений кинетики и уравнения Больцмана определялись такие характеристики плазмы, как подвижность электронов и проводимость плазмы.

2. Окислительная конверсия CS_2 при облучении газа сильноточным пучком наносекундной длительности. Эксперименты показывают наличие в качестве конечного продукта разложения CS_2 газообразных оксидов серы и углерода, что дало основание для предположения об окислительном механизме конверсии молекул сероуглерода. Низкие значения затрат энергии на конверсию одной молекулы указывают на возможность осуществления цепного процесса.

Из расчетов по описанной выше модели следует, что основная доля энергии пучка расходуется на ионизацию и диссоциацию N_2 и O_2 . В частности, для случая возбуждения смеси сильноточным электронным пучком наносекундной длительности получено, что концентрация электронов составляет величину $\sim 10^{14}$ сm⁻³. Анализ кинетики плазмохимических процессов показывает,

что основные реакции конверсии примеси протекают с характерными временами, существенно превышающими длительность импульса электронного пучка. На рис. 5 представлены временные зависимости концентраций основных компонент плазмы: a — создаваемой электронным пучком, b — несамостоятельным объемным разрядом при напряженности электрического поля 10 kV/cm. На рисунке не приведены зависимости для заряженных частиц, поскольку бо́льшая часть электронов и ионов гибнет в реакциях электрон-ионной рекомбинации за время $t < 10^{-6}$ s.

Из зависимостей рис. 5, *а* видно, что уменьшение концентрации CS_2 происходит после окончания импульса тока электронного пучка, при этом основными конечными продуктами являются газообразные оксиды серы, азота и углерода. Согласно проведенному анализу, при ионизации сильноточным наносекундным пучком реализуется цепной механизм окисления CS_2 , в котором инициирующим реагентом является атомарный кислород:

$$CS_2 + O \rightarrow CS + SO,$$
 (3)

$$SO + CS \rightarrow CO + S_2,$$
 (4)

$$O + S_2 \to SO + S, \tag{5}$$

$$SO + O_2 \rightarrow SO_2 + O,$$
 (6)

$$S + O_2 \rightarrow SO + O.$$
 (7)

Наработка атомарного кислорода в смеси $N_2-O_2-CS_2$ атмосферного давления происходит под действием пучка через электронные состояния O_2 и в реакциях с электронно-возбужденными молекулами азота N_2^*

$$e + O_2 \rightarrow 2O,$$
 (8)

$$N_2^* + O_2 \rightarrow N_2 + 2O. \tag{9}$$

В данном случае вклад в наработку радикалов О реакции диссоциативного прилипания очень мал по сравнению с реакциями, протекающими через электронновозбужденные состояниями кислорода и азота, на образование которых идет примерно половина энергии электронного пучка. При достаточной интенсивности пучка наработанного в реакциях (8) и (9) количества радикалов О достаточно для запуска цепного механизма (3)–(7). При снижении концентрации CS₂ ниже некоторой критической цепной механизм прерывается, атомарный кислород перестает нарабатываться в реакциях (6), (7) и окисление сероуглерода прекращается. Согласно расчетам, основными продуктами разложения CS₂ являются оксиды серы SO₂ и углерода CO, в небольших количествах образуются NO, SO и S₂ (рис. 5).

Процессы окисления CS_2 в смеси $N_2-O_2-CS_2$ в основном аналогичны процессам в химическом CO лазере [10,11], однако наличие азота N_2 приводит к изменениям механизма конверсии сероуглерода. В первую очередь это связано с протеканием реакции колебательновозбужденных молекул азота с атомарным кислородом [12]

$$N_2(\nu) + O \to NO + N, \tag{10}$$

которая приводит к потере свободных радикалов O за счет синтеза оксидов азота и к снижению эффективности процесса конверсии CS_2 в целом. Другим процессом, ускоряющим образование NO в ионизированной смеси, является реакция

$$N + O_2 \rightarrow NO + O. \tag{11}$$

Эти реакции представляют собой эффективный цепной механизм синтеза монооксида азота [13].

Концентрация колебательно-возбужденных молекул азота при возбуждении смеси только электронным пучком мала, поэтому механизм (10), (11) играет существенную роль лишь при достаточно высокой напряженности электрического поля, т.е. при зажигании несамостоятельного объемного разряда, инициируемого электронным пучком. При этом нарабатывается значительная концентрация колебательно-возбужденных молекул азота $N_2(\nu)$ и реакции (10), (11) протекают наиболее эффективно. При напряженности поля $E \sim 10 \, kV/cm$ потери радикалов О таковы, что за счет этого механизма практически полностью прерывается цепной процесс окисления CS₂.

Из рис. 5, b видно, что зажигание объемного разряда приводит к снижению концентраций атомарного кислорода, оксидов серы и углерода и значительному, более чем на порядок, возрастанию концентрации NO. Именно с образованием оксида азота и обусловленными этим потерями радикалов кислорода связаны наблюдаемое в экспериментах (рис. 2) снижение количества конвертированных молекул $\Delta[CS_2]$ и рост затрат энергии ε .

Созданная модель позволила получить численные значения степени конверсии и затрат энергии на удаление одной молекулы сероуглерода.

3. Ионно-молекулярные процессы конверсии CS2 при облучении газа слаботочным пучком микросекундной длительности. Другой механизм конверсии сероуглерода реализуется в случае возбуждения смеси N2-O2-CS2 слаботочным пучком микросекундной длительности. В этом случае электронный пучок не обладает достаточной интенсивностью и плотность электронов плазмы на два порядка меньше, чем в режиме облучения пучком с высокой плотностью тока. Концентрация создаваемых слаботочным пучком заряженных частиц мала и соизмерима с концентрацией свободных радикалов О (рис. 6). При этом цепной механизм не возникает, хотя реакции окисления CS_2 и происходят: из сравнения рис. 5, *a* и 6 видно, что при облучении микросекундным пучком электронов концентрация SO₂ — основного газообразного продукта окисления CS₂ — на три порядка меньше, чем в наносекундном режиме. Согласно расчетам, здесь потери ионов за счет электрон-ионной рекомбинации резко снижаются и в плазме создаются благоприятные условия для конверсии CS₂ через образование кластерных ионов. Концентрация таких ионов составила для условий наших экспериментов величину $[A^{\pm}] \sim 10^{13} \,\mathrm{cm}^{-3}$ (рис. 6). Снижение концентрации CS2 в ионизованной смеси



Рис. 6. То же, что на рис. 5, для плазмы, создаваемой слаботочным пучком электронов микросекундной длительности.

происходит в быстрых реакциях образования кластеров. Скорость этих процессов значительно выше, чем скорости реакций с участием свободных радикалов О. Наличие кластеров типа $A^{\pm}(CS_2)_n$ было показано в масс-спектрометрических исследованиях [14], где ионы A^{\pm} также создавались электронным пучком. В кластерах, составленных в основном из радикалов CS, создаются условия для эффективной полимеризации с образованием конденсированной фазы $(-CS-)_n$.

В расчетах было получено, что электроны гибнут в основном в реакции трехчастичного прилипания к кислороду

$$e + O_2 + M \to O_2^- + M,$$
 (12)

где в качестве третьей частицы *М* могут выступать молекулы кислорода или азота.

Известно [15], что скорость этого процесса существенным образом зависит от энергии электронов, т.е. от напряженности внешнего электрического поля. В связи с этим изменение напряженности поля в столбе несамостоятельного разряда, поддерживаемого электронным пучком, существенно сказывается на процессе конверсии (рис. 4). В нашем случае зависимость скорости процесса (12) v_i от напряженности внешнего поля имеет ярко выраженный немонотонный характер. Эта зависимость представлена на рис. 4 сплошной кривой. Видно, что созданная модель качественно описывает результаты экспериментов, однако количественное сравнение по эффективности конверсии нам провести не удалось из-за отсутствия необходимых данных по константам скоростей ионно-молекулярных реакций образования кластеров с участием ионов O_2^- .

5. Заключение

В работе представлены результаты комплексного исследования процесса и результатов воздействия импульсных электронных пучков на примесь сероуглерода в азотно-кислородной смеси атмосферного давления. При этом было использовано два режима облучения: в первом — сильноточный электронный пучок наносекундной длительности и во втором — слаботочный пучок электронов микросекундной длительности.

Показано, что затраты энергии на конверсию одной молекулы примеси CS₂ существеннно ниже энергии ее диссоциации. При этом экспериментально установлено, что следует различать два различных механизма конверсии CS₂, различающихся конечными продуктами. В первом случае конечными продуктами конверсии примеси являются оксиды элементов газовой смеси SO₂, CO, CO₂, NO, NO₂, во втором — соединение (-CS-)_n в жидком или твердом состоянии.

Создана расчетно-теоретическая модель конверсии примеси CS_2 в ионизованной азотно-кислородной смеси. При примерном равенстве вводимой в газ удельной энергии рассмотрены два режима облучения. Показано, что в случае высокой скорости наработки свободных радикалов О, соответствующей наносекундному пучку с высокой плотностью тока, основной механизм конверсии примеси — цепное окисление. В случае малой концентрации радикалов, соответствующей слаботочному пучку микросекундной длительности, конверсия CS_2 протекает по ионному каналу — через образование кластеров и полимеризации примеси в них. При некоторых промежуточных значениях длительности импульса и плотности тока электронного пучка оба механизма конверсии реализуются одновременно.

Экспериментально и методом численного моделирования исследовано влияние электрического поля на процесс конверсии сероуглерода в двух режимах взаимодействия электронного пучка с газом: с преимущественной генерацией свободных радикалов и с преимущественной генерацией ионов. Показано, что в плазме, создаваемой пучком электронов высокой плотности, наложение внешнего электрического поля приводит к образованию оксидов азота NO и NO2, и соответственно снижению интенсивности главного механизма конверсии цепного окисления CS2. При воздействии на смесь слаботочного пучка механизм конверсии меняется: за счет снижения интенсивности электрон-ионной рекомбинации увеличивается вклад ионно-молекулярных процессов, происходит формирование кластеров и полимеризация сероуглерода в них. Эффективность удаления молекул CS₂ из ионизованного воздуха становится очень чувствительной к электрическому полю в области его малых значений, что связано с резкой зависимостью скорости генерации ионов, образующих кластеры, от напряженности поля.

Список литературы

- Non-thermal Plasma Techniques for Pollution Control / Ed. B.M. Penetrante, S.E. Schultheis. NATO ASO Series. Vol. G34. Berlin; Heidelberg: Springer Verlag, 1993. Pt. A, B.
- [2] Пикаев А.К. // ХВЭ. 2000. Т. 34. № 3. С. 163–176.
- [3] Novoselov Yu.N., Mesyats G.A., Kuznetsov D.L. // J. Phys. D. 2001. Vol. 34. N 8. P. 1248–1255.

- [4] Ельчанинов А.С., Котов А.С., Шпак В.Г. и др. // Электронная техника. Сер. 4. 1987. Вып. 2. С. 33–37.
- [5] Ефремов А.М., Ковальчук Б.М., Крейндель Ю.Е. и др. // ПТЭ. 1987. № 1. С. 167–169.
- [6] Денисов Г.В., Новоселов Ю.Н., Филатов И.Е. // Письма в ЖТФ. 1995. Т. 21. Вып. 18. С. 89–93.
- [7] Денисов Г.В., Кузнецов Д.Л., Новоселов Ю.Н. // ХВЭ. 1997.
 Т. 31. Вып. 6. С. 471–472.
- [8] Бычков Ю.И., Королев Ю.Д., Месяц Г.А. и др. Инжекционная газовая электроника. Новосибирск: Наука, 1982. 142 с.
- [9] Новоселов Ю.Н. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. Вып. 23. С. 58–61.
- [10] Бронфин Б., Джефферс В. // Химические лазеры. М.: Мир, 1980. С. 703–756. (Handbook of Chemical Lasers / Ed. by R.W.F. Gross, J.F. Bott. New York; London; Sydney; Toronto: A Wiley-Interscience Publication John Wiley & Sons, 1976).
- [11] Елецкий А.В. // Химия плазмы / Под ред. Б.М. Смирнова. М.: Атомиздат, 1974. С. 67–119.
- [12] Новоселов Ю.Н., Суслов А.И. // Докл. РАН. 2002. Т. 384. № 4. С. 505–508.
- [13] Русанов В.Д., Фридман А.А. Физика химически активной плазмы. М.: Наука, 1984. 416 с.
- [14] Hiraoka K., Fujimaki S., Aruga K., Yamabe S. // J. Phys. Chem. 1994. Vol. 98. N 7. P. 1802–1809.
- [15] Месси Г. Отрицательные ионы. М.: Мир, 1979. 754 с.