

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 учёной 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:** доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник Федерального государственного бюджетного учреждения науки Федеральный исследовательский центр «Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук»

**Официальные оппоненты:** доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Федерального государственного бюджетного учреждения науки Ордена Трудового Красного Знамени Институт нефтехимического синтеза им. А.В. Топчиева Российской академии наук

**Гусейн-заде Намик Гусейнага оглы**

доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Федерального государственного бюджетного учреждения науки Ордена Трудового Красного Знамени Институт нефтехимического синтеза им. А.В. Топчиева Российской академии наук

**Шахатов Вячеслав Анатольевич**

кандидат физико-математических наук, доцент, старший научный сотрудник Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего профессионального образования «Санкт-Петербургский государственный университет»

**Павлов Сергей Иванович**

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

Защита состоится « » \_\_\_\_\_ 2024 г. в \_\_\_ ч. \_\_\_ мин. на заседании диссертационного совета 24.1.193.01 (Д 002.110.02), созданного на базе Федерального государственного бюджетного учреждения науки **Объединенного института высоких температур Российской академии наук** по адресу 125412, г. Москва, Ижорская ул., д. 13, стр. 2., конференц-зал.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте Федерального государственного бюджетного учреждения науки Объединённого института высоких температур: [jiht.ru/science/dissert-council/](http://jiht.ru/science/dissert-council/).

Отзывы на автореферат в двух экземплярах, заверенные гербовой печатью, просьба направлять по адресу: 125412, г. Москва, Ижорская ул., д. 13, стр. 2, на имя ученого секретаря диссертационного совета.

Автореферат разослан «\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2024 г.

Ученый секретарь  
Диссертационного совета 24.1.193.01 (Д 002.110.02)

© Федеральное государственное бюджетное учреждение науки **Объединенный институт высоких температур Российской академии наук**, 2024

### **Актуальность темы диссертации**

В данной диссертационной работе проведено исследование влияния плазмы на взаимодействие микроволнового излучения гигагерцового диапазона с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических микрочастиц. В рассмотренных в диссертационной работе экспериментах при взаимодействии микроволнового излучения с такими порошками происходит инициирование микроволнового разряда, который начинает взаимодействовать как с излучением, так и с частицами и газовой атмосферой. Похожие проблемы возникают, например, при осаждении алмазных и алмазоподобных пленок из газовой фазы микроволнового разряда, поддерживаемого электромагнитными пучками гигагерцового диапазона, или при синтезе наночастиц из газоплазменного микроволнового факела [1].

Это взаимодействие с плазмой является важной частью задачи плазмохимии в микроволновых разрядах при давлении в газовой среде более  $10^{-2}$  Торр. Одной из разновидностей таких разрядов является подпороговый микроволновый разряд, который распространяется в свободном пространстве в электромагнитном поле с допробойной величиной электрической напряжённости [2]. В этом случае микроволновые разряды могут являться сильно пространственно-неоднородными и состоят из двух областей. Одна из них, представляет собой – контрагированные нити, связанные с образованием ионизационно-перегретых неустойчивостей, а вторая – диффузионный ореол вокруг них. Параметры плазмы в области контрагированных нитей близки к параметрам квазиравновесной плазмы, в которой газовая температура имеет значения более 5000 К. Такая плазма обычно характерна для дуговых разрядов, однако отличительной особенностью микроволнового разряда является то, что он поддерживается в свободном пространстве и это позволяет избежать эрозии электродов и их воздействия на продукты химических реакций. Пространственная неоднородность разрядов также позволяет диссоциировать большой класс химических газообразных соединений и при диффузии активных частиц в холодные области разряда, замедлять скорость обратных реакций, что обеспечивает стабилизацию продуктов плазмохимического синтеза.

Микроволновый разряд распространяется в противоположном направлении от волнового вектора микроволнового излучения с зависящей от мощности излучения скоростью. В случае наличия на пути распространения разряда диэлектрических препятствий с линейными размерами больше диаметра микроволнового пучка, разряд некоторое время (нескольких миллисекунд) поддерживается вблизи ее поверхности [3]. Хотя этот вопрос еще недостаточно изучен, однако можно предположить, что схожая ситуация возникает при разряде, возникающим при облучении микроволновым излучением порошковых засыпок металлических и диэлектрических частиц, который и является предметом исследования данной диссертационной работы.

Развитие микроволнового разряда в порошковых засыпках состоит из стадии инициирования, поддержания и релаксации, каждая из которых определяется собственными физико-химическими процессами, что существенно усложняет исследование. Также стоит отметить, что инициирование микроволнового разряда возможно как в плотноупакованных засыпках, так и в свободных засыпках, когда происходит подъём отдельных частиц порошковой засыпки в газовый объём [4].

Однако несмотря на высокую сложность задачи микроволновый разряд в порошках позволяет исследовать ряд интересных в промышленности направлений, связанных с порошковыми технологиями, например, такими как синтез сложных металлдиэлектрических частиц, типа металлические наночастицы, внедрённые в поверхности микроразмерных керамических (оксидных, нитридных и оксонитридных) частиц-носителей. Данные частицы вызывают высокий интерес в каталитической промышленности, например, полученные таким образом Pt/Pd гетерогенные катализаторы на оксидном носителе  $Al_2O_3$  показали их высокую каталитическую активность в реакциях дегидрирования метилциклогексана, являющегося

жидким носителем водорода. Взаимодействие микроволнового излучения гигагерцового диапазона с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических микрочастиц позволяет получить также и катализаторы на основе Ni, Cu, Ag и других металлов на керамических носителях, применяемые во многих технологических химических процессах. Стоит отметить, что рассматриваемый метод получения микроразмерных порошковых катализаторов является уникальным не только в России, но и в мире. По сравнению с химическими методами получения частиц катализаторов, микроволновый разряд, инициированный в воздушной среде, является экологически чистым методом, который не требует использования дорогостоящих прекурсоров.

Другим направлением применения разряда в порошках является инициирование синтеза химических соединений заданного состава и структуры в процессе твёрдопламенного горения (ТПГ) известного как самораспространяющийся высокотемпературный синтез (СВС). Использование микроволнового разряда в качестве уникального метода поджига, в отличие от традиционных методов контактного поджига, позволяет инициировать разряд не только на поверхности смесей, но и в ее объёме. Возможность такого варианта поджига в атмосфере воздуха для плотноупакованных засыпок термитных смесей ( $Al-Fe_2O_3$ ) была продемонстрирована в наших пионерских экспериментах в отделе физики плазмы в ИОФРАН [5].

Еще 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.

Для технологических применений плазмы разряда, возникающей при взаимодействии микроволнового излучения гигагерцового диапазона с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических микрочастиц, необходимо также знать характеристики плазмы разряда. Без фундаментальных научных знаний о физико-химических процессах, происходящих при взаимодействии микроволнового излучения с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических частиц невозможно использование его для народного хозяйства.

**Цель работы** – исследование инициирования и развития плазмы микроволнового разряда, возникающего при взаимодействии микроволнового излучения большой мощности (100-400 кВт) гигагерцового диапазона с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических микрочастиц, а также ее влияния на происходящие физико-химические процессы.

Для достижения поставленной цели решались следующие **задачи**:

- Исследование процесса взаимодействия импульсного микроволнового излучения с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических микрочастиц в воздушной атмосфере при нормальных условиях.
- Исследование условий, влияющих на инициирование плазмы микроволнового разряда на поверхности металлодиэлектрических мишеней и порошковых засыпок металлических и диэлектрических микрочастиц, при воздействии на них импульсным миллиметровым излучением гиротрона.
- Определение параметров плазмы, влияющих на реакции синтеза, возникающих при взаимодействии микроволнового излучения с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических частиц.

#### **Научная новизна**

1. Впервые экспериментально продемонстрирован процесс инициирования и распространения микроволнового разряда на поверхности металлодиэлектрических мишеней

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

3. Экспериментально показано, что при инициировании и поддержании плазмы микроволнового разряда происходит испарение металлической фазы серебра с поверхности металлодиэлектрической мишени

4. С помощью решения Ми для двухслойных сферических частиц оценён вклад микроволнового нагрева на образование плазмы микроволнового разряда.

5. Получена зависимость температуры поверхности микронных частиц в порошковой засыпке от времени при инициировании плазмы микроволнового разряда и его поддержании на протяжении 6 мс с помощью микроволнового излучения интенсивностью 10 кВт/см<sup>2</sup> в воздушной атмосфере.

6. Впервые с помощью методов оптической и электронной микроскопии после экспериментальной серии по образованию плазмы микроволнового разряда в порошковых засыпках в воздушной среде показано наличие продуктов сгорания микрочастиц алюминия.

#### **Положения, выносимые на защиту**

1. В сфокусированном микроволновом пучке импульсного (2-8 мс) излучения интенсивностью 10 кВт/см<sup>2</sup> происходит инициирование и поддержание плазмы разряда на поверхности металлодиэлектрической мишени, содержащей серебряные включения субмикронного размера в воздушной атмосфере.

2. На образование плазмы микроволнового разряда в порошковых засыпках не влияет импульсный (2-8 мс) микроволновый нагрев с интенсивностью до 20 кВт/см<sup>2</sup> металлических и диэлектрических микрочастиц.

3. При взаимодействии импульсного (2-8 мс) микроволнового излучения с интенсивностью 10 кВт/см<sup>2</sup> с порошковыми засыпками микрочастиц алюминия (металл) и оксида алюминия (диэлектрик) в воздушной атмосфере происходит образование плазмы микроволнового разряда, приводящей к активации химических реакций горения микрочастиц алюминия.

#### **Соответствие результатов исследования паспорту специальности:**

Решённые в данной диссертационной работе задачи и полученные результаты соответствуют областям исследования научной специальности ВАК 1.3.9 – «физика плазмы», а именно пункты 4 и 10 паспорта специальности.

#### **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 гигагерцевого диапазона и плазмой инициированного с помощью данного излучения подпорогового микроволнового разряда. Полученные результаты 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, четырёх глав, заключения и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 87 страниц, включая 49 рисунков и 5 таблиц. Список литературы включает в себя 65 наименований.

#### **Содержание работы**

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

**В первой главе** приведён обзор литературы по теме диссертационной работы, особое внимание уделено задачам, которые на протяжении более 40 лет решались в отделе физики плазмы ИОФ РАН с помощью мощных микроволновых приборов.

**Во второй 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  $10 \text{ кВт/см}^2$  (рисунок 2) [А1]. 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  $\Psi$  и длительности импульса  $\tau_i$ :  $\Psi\tau_i \geq 0.1 \text{ Дж/см}^2$ , определяющего пробой на металлодиэлектрической мишени в поле гигагерцового излучения [6].

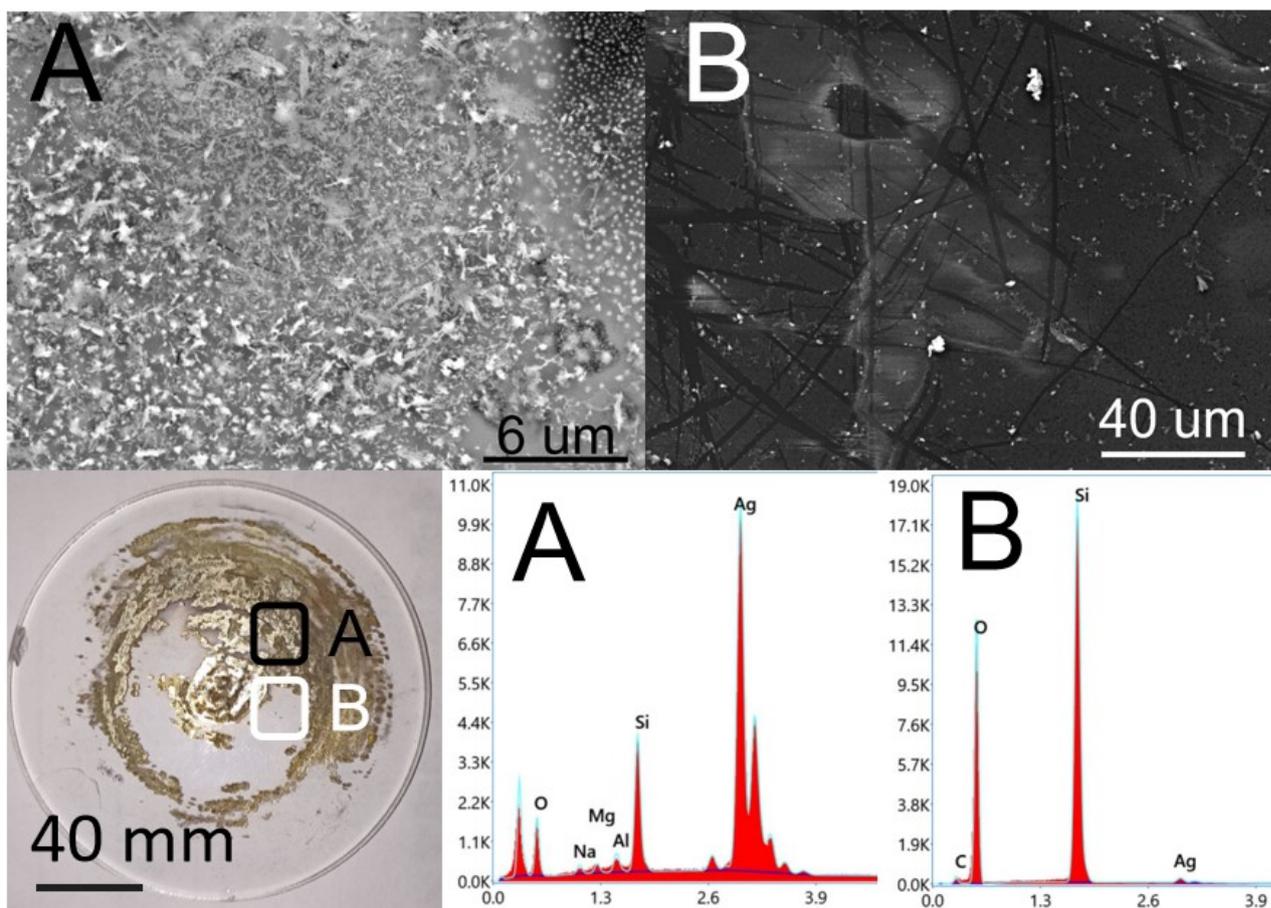


Рисунок 1 – На рисунке изображена поверхность металл/диэлектрической мишени для которой приведены результаты ЭДС сканирования двух характерных областей: А - в области микрометаллических образований серебра и Б - область кварцевой подложки.

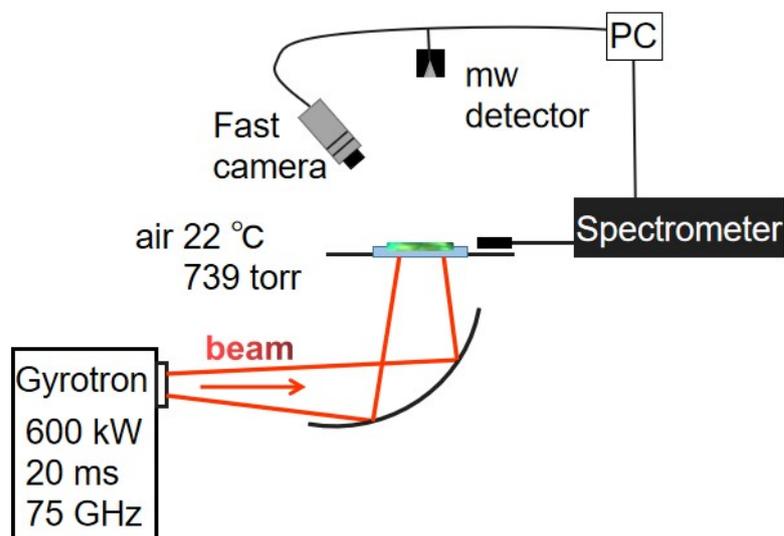


Рисунок 2 – Схема экспериментального стенда для исследования поверхностного микроволнового разряда

После инициирования, разряд представляет собой плазменный слой, распространяющийся вдоль поверхности мишени, толщина слоя составляет от 100 мкм до 1 мм (рисунок 3). 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 внедрений 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.

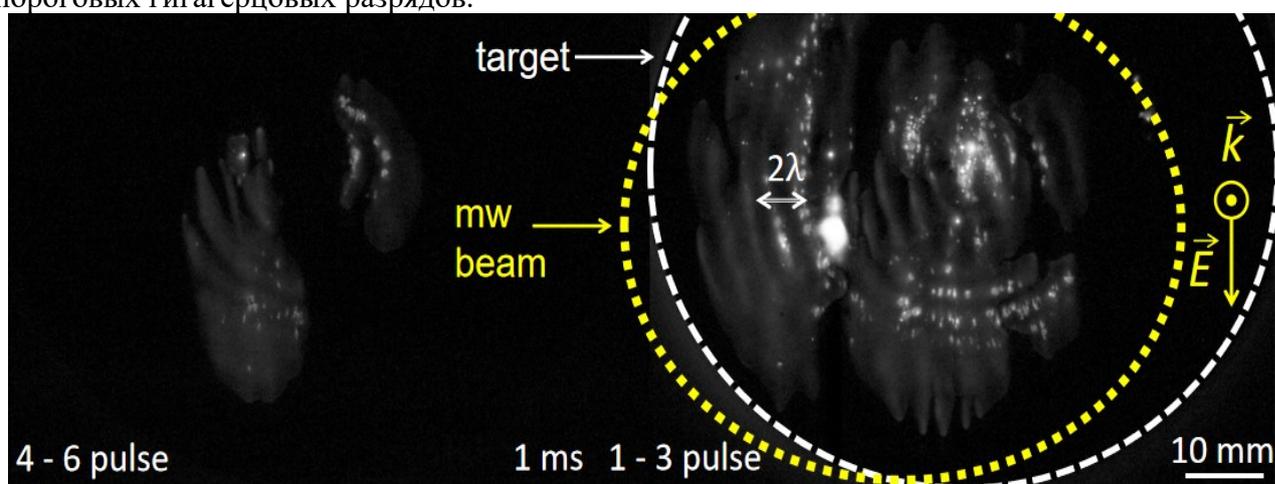


Рисунок 3 – Характерные изображения поверхностного микроволнового разряда в первых трех импульса и в трех последующих в момент времени 1 мс после начала генерации микроволнового импульса

Оптический эмиссионный спектральный анализ (рисунок 4-5) 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.

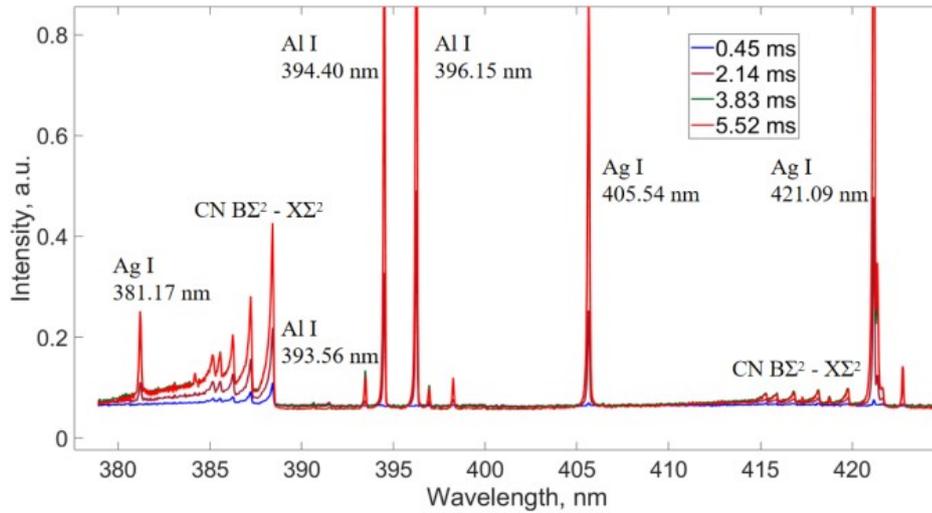


Рисунок 4 – Обзорный спектр для диапазона длин волн 375-430 нм

По вращательно-колебательной полосе, соответствующей электронному переходу  $B^2\Sigma - X^2\Sigma$  молекулы CN, с помощью оригинальной программы была рассчитана колебательная ( $T_{vib} = 6800$  K) и вращательная ( $T_{rot} = 5500$  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 [7]. Выражение для интенсивности линии для вращательного перехода между двумя уровнями в двухатомной молекуле:

$$I_{j'j''} = C_{em} \frac{S_{j'j''} q_{v',v''}}{Q_{rot} v'} (v_{j'j''})^4 e^{-F'hc/kT_{rot}} e^{-G'v'hc/kT_{vib}} \quad (1)$$

где  $C_{em}$  – коэффициент излучения,  $S_{j'j''}$  – фактор Холна-Лондона,  $q_{v',v''}$  – коэффициент Франка-Кондона,  $v_{j'j''}$  – 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  $\sigma$ , без учёта реабсорбции и уширения:

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

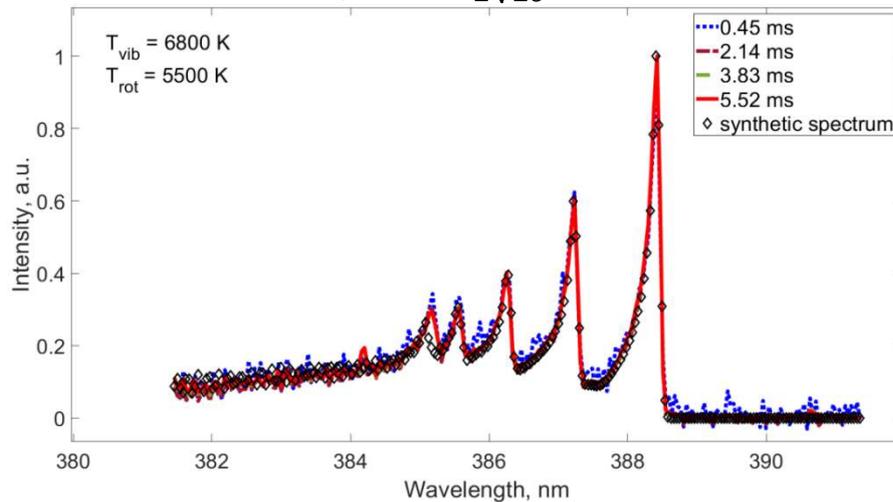


Рисунок 5 - 4 наложенных спектра испускания молекулярной полосы CN в момент времени 0.45, 2.14, 3.83 и 5.52 мс после начала генерации микроволнового излучения и точками представлен расчётный спектр

Рассчитанные 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.

Эффективная частота соударений электронов с молекулами газа  $\nu$  без учёта вклада паров металлов можно оценить по формуле, учитывающей температуру электронов и отношение концентраций компонент газа [8]:

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

а также по более простой формуле:

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

Для оценки плотности электронов в плазме микроволнового разряда был использован приближенный метод, основанный на равенстве толщины плазменного слоя и глубине проникновения  $\delta_e$  электрического поля в разряд.

$$\delta_e = \frac{c}{\omega} \left( -\frac{\frac{N_c}{N_e} - 1 + \sqrt{(1 - \frac{N_e}{N_c})^2 + (\frac{N_e \nu}{N_c \omega})^2}}{2} \right)^{-1/2}, \quad (5)$$

$$N_c = \frac{m_e (\nu^2 + \omega^2)}{4\pi e^2}, \quad (6)$$

В таком случае плотность электронов  $N_e$  (рисунок 6) может приближаться к критической величине отсечки при учете температуры электронов при расчёте 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.

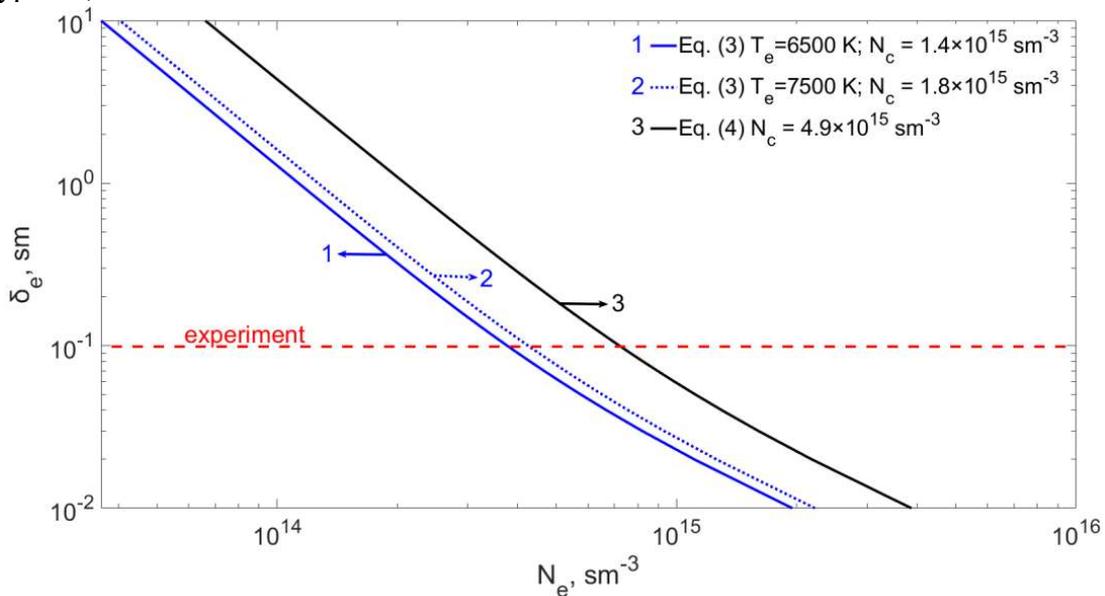


Рисунок 6 - Зависимость глубины проникновения электромагнитного поля в плазму микроволнового разряда от концентрации электронов в разряде

**В третьей главе** проведено экспериментальное исследование инициирования микроволнового разряда в порошковых смесях алюминия (металл) и оксида алюминия (диэлектрик) при интенсивности излучения  $10 \text{ кВт/см}^2$  [A2]. Концентрация металла составляла 20%, средний размер металлических и диэлектрических частиц составлял порядка 50 мкм. Экспериментальная установка представлена в работе [A3]. Было показано, что инициирование разряда происходит аналогично случаю с металлодиэлектрической мишенью,

область разряда при иницировании и поддержании микроволновым излучением занимало тонкий слой у поверхности подложки с порошками частиц (рисунок 7).

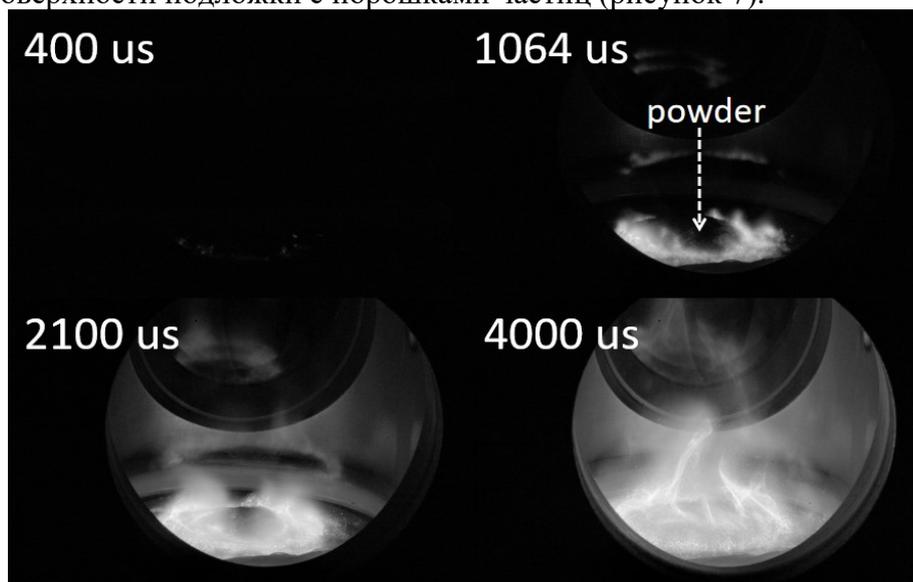


Рисунок 7 - Изображения развитие процессов иницирования, распространения плазмы микроволнового разряда, нагрева и разлета частиц порошка.

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 (рисунок 8) 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 [9] 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.

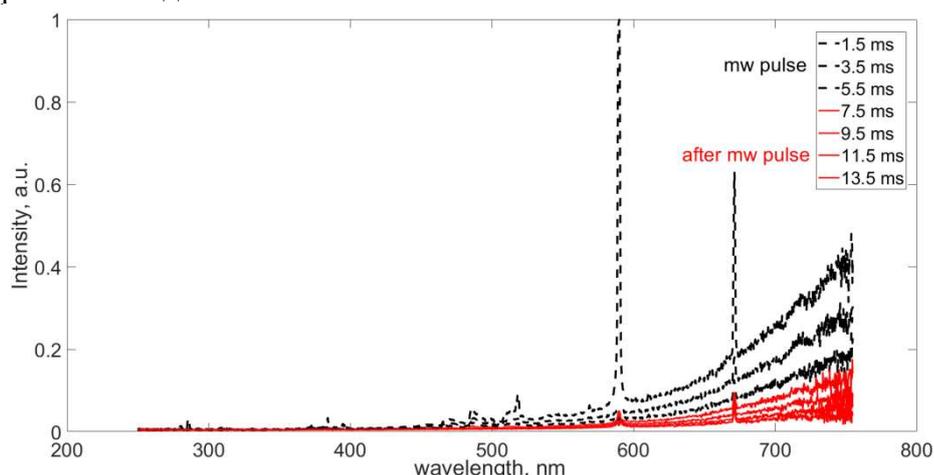


Рисунок 8 - Характерный спектр SP-1 с нижней части плазмохимического реактора

Если рассмотреть спектр в верхней части реактора (рисунок 9) 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  $B^2\Sigma-X^2\Sigma$ . 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.

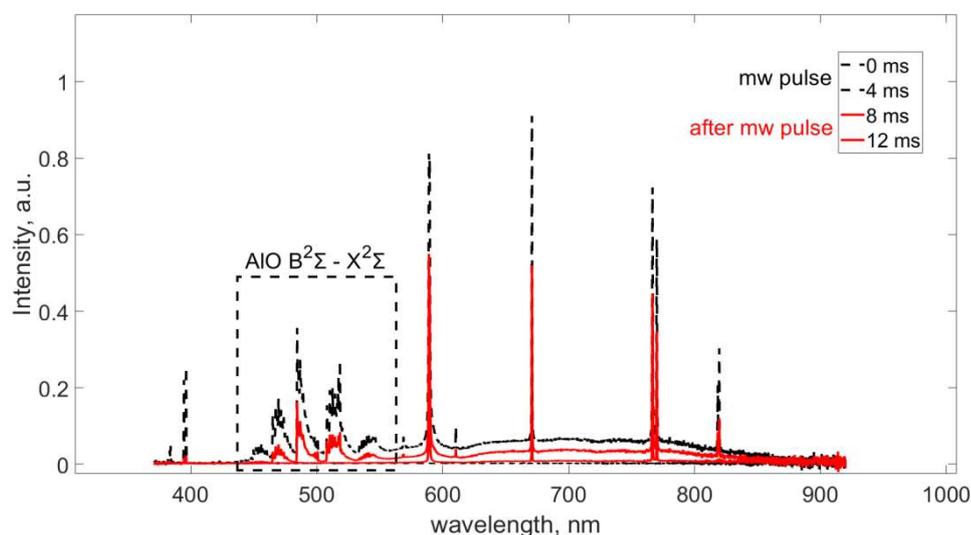


Рисунок 9 - Характерный спектр SP-2 в верхней части плазмохимического реактора

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 иницирования разряда (А рисунок 10); развитие, поддержание и взаимодействие разряда с порошковой смесью (В); релаксация разряда и физико-химических процессов с частицами (С).

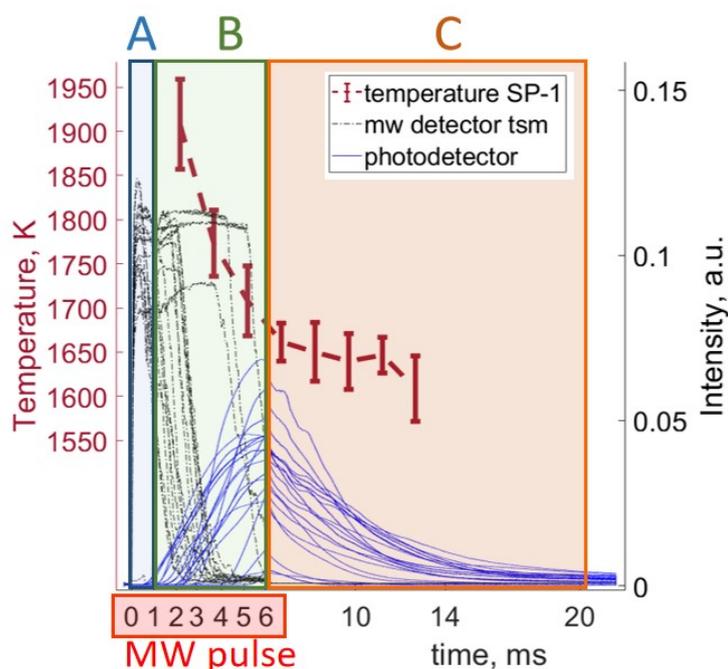


Рисунок 10 - Зависимости от времени интенсивности излучения фотодетектора, прошедшего сигнала СВЧ-детектора (tsm) и температуры поверхности порошковой смеси

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. 11а). Также были обнаружены полые частицы оксида алюминия с трещинами на поверхности (рис. 11б-в), которые могли быть образованы в результате горения частиц алюминия [10]. Таким образом было показано, что в условиях взаимодействия микроволнового излучения и порошковых смесей металлических и диэлектрических частиц возможно образование металлокерамических частиц. Воспламенение металлических частиц в процессе синтеза является негативный фактором уменьшающим концентрацию металлической фазы, а следовательно и количество продуктов синтеза.

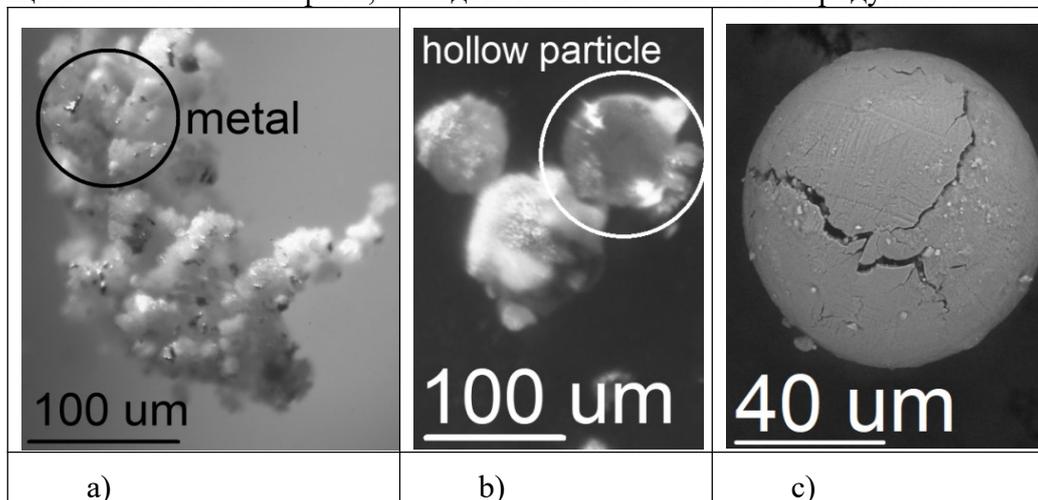


Рисунок 11 - а) Оптическое изображение синтезированных частиц после проведения эксперимента б) СЭМ-изображением и в) Оптическое изображением сгоревших частиц алюминия обнаруженные в продуктах синтеза

**В четвёртой главе** проведено исследование поглощения микроволнового излучения гигагерцового диапазона на металлических и диэлектрических частицах, находящихся в порошковых засыпках на поверхности цилиндрической диэлектрической подложки [А4]. Получено пространственное распределение температуры нагрева смеси порошков при их облучении микроволновым излучением с интенсивностью  $5 \text{ кВт/см}^2$  при длительности импульса 1 мс. Были использованы 5 типов порошковых смесей с различными по размеру металлическими частицами алюминия (таблица 1). В образце 1 использовался оксид алюминия со средним размером 50 мкм, толщина слоя порошка составляла менее 5 мм, диаметр засыпки был  $\sim 5$  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).

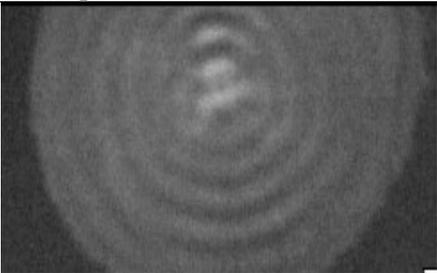
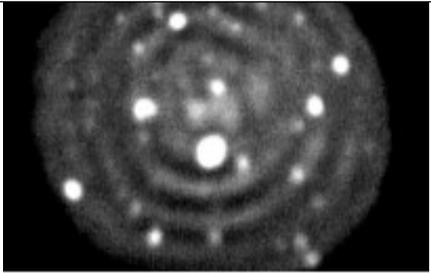
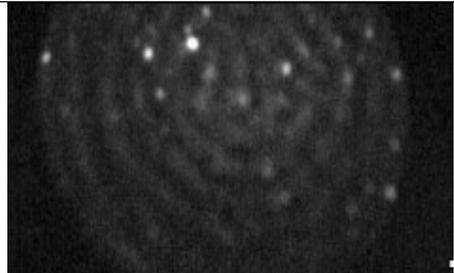
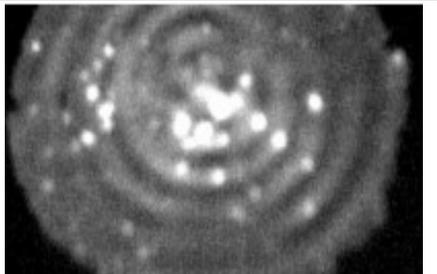
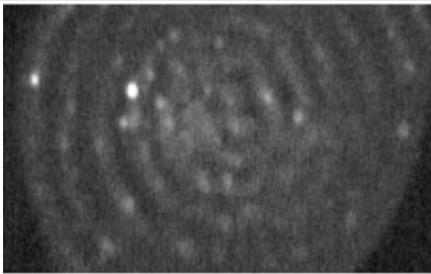
На каждый из образцов воздействовали последовательно четырьмя микроволновыми импульсами. Температура нагрева регистрировалось с верхней поверхности порошковых смесей с помощью быстрой калиброванной тепловизионной камеры (таблица 2). Было показано, что частицы оксида алюминия нагреваются слабо в пределах 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 (рисунок 12).

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)	

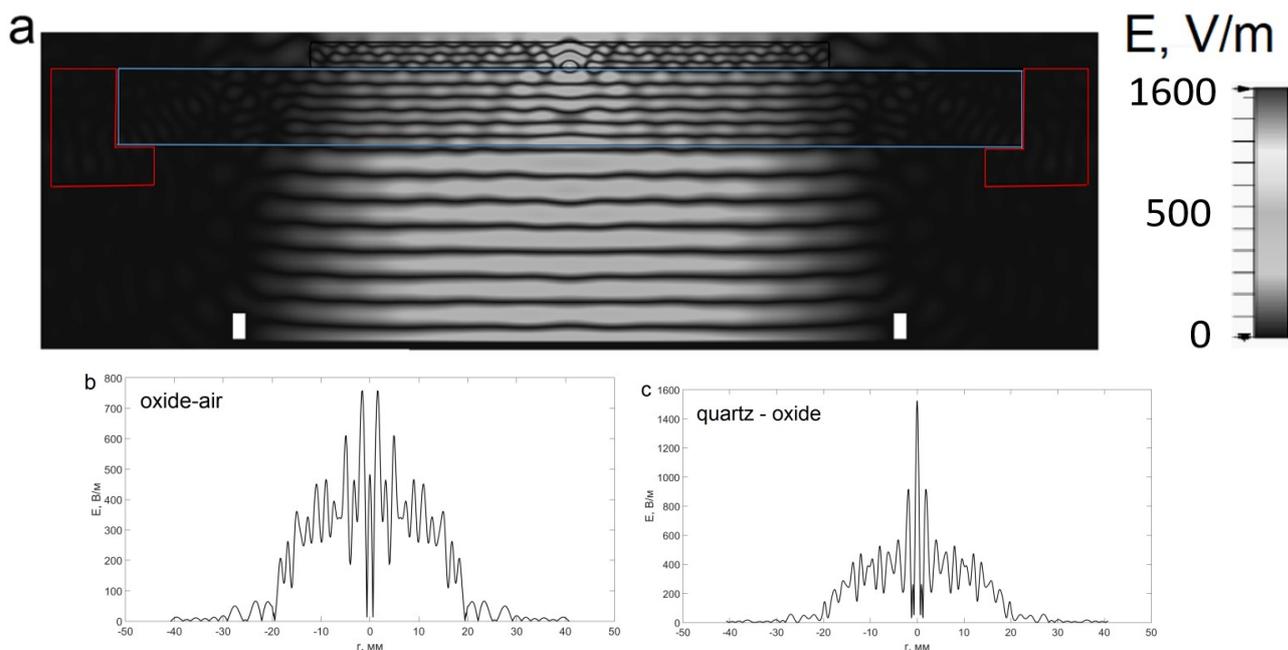


Рисунок 12 - а) Интерференционная картина распределения интенсивности вектора электрической напряжённости в гауссовом пучке линейно поляризованной волны, б) распределение напряжённости поля на границе оксид алюминия - воздух, в) распределение напряжённости поля на границе кварцевая подложка-оксид алюминия.

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 [11].

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 [12]. Таким образом было получено 4 вида решений. В первом решение была использован модель эффективной среды Буггермана (ЕМА):

Для нее эффективная диэлектрическая проницаемость  $\epsilon_{eff}$  выражается как:

$$2\beta\epsilon_{eff}^2 + [\beta(3C_s - 2) + \alpha\epsilon_i(1 - 3C_s)]\epsilon_{eff} - \alpha\epsilon_i = 0, \quad (7)$$

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

$$\alpha = 2\epsilon_i + \epsilon_c + 2(\epsilon_i - \epsilon_c)/d_r^3, \quad (9)$$

$$d_r = b/a, \quad (10)$$

здесь  $C_s$  объёмная концентрация металла,  $b$  толщина диэлектрической оболочки,  $\epsilon_i$  и  $\epsilon_c$  диэлектрическая проницаемость для оболочки и металла соответственно.

Во втором решении использована квазиволновая модель эффективной среды (WaveEMA):

$$2v_1\epsilon_{eff}^2 + [v_1(3C_s - 2) + v_2\epsilon_c(3C_s - 1)]\epsilon_{eff} - 2\alpha v_2\epsilon_c = 0, \quad (11)$$

$$v_1 = k_c^2 a^2 \sin(k_c a) + k_c a \cos(k_c a) - \sin(k_c a), \quad (12)$$

$$v_2 = k_c a \cos(k_c a) - \sin(k_c a). \quad (13)$$

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- $\nu_{eff}$ ):

$$2(v_3 + k_c^2 a^2)\mu_{eff}^2 + [v_3(9C_s - 4) + k_c^2 a^2(3C_s - 2)]\mu_{eff} + 2v_3 = 0, \quad (14)$$

$$v_3 = k_c a \cot(k_c a) - 1. \quad (15)$$

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 (рисунок 13) 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:

$$\frac{4\pi}{3} b^3 (c\rho)_{Al} \frac{\Delta T}{\Delta t} = W, \quad (16)$$

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

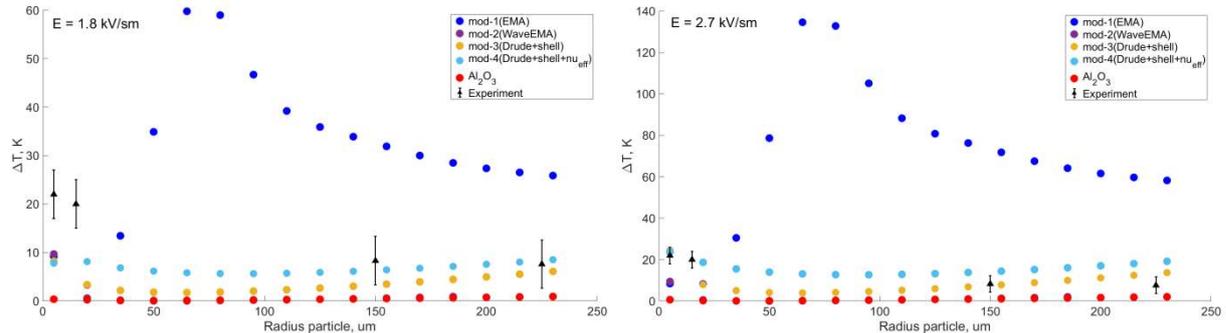


Рисунок 13 - Зависимость нагрева частицы от ее радиуса для двух значений напряжённости поля волны

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 и коэффициент излучательной способности алюминия составлял 1. Для расчёта использовалась напряжённость  $E_1 = 2.4$  кВ/см соответствующая максимальной рабочей мощности генератора излучения 400 кВт, а также максимальная напряжённость, полученная с учётом моделирования  $E_2 = 7.2$  кВ/см (рисунок 14).

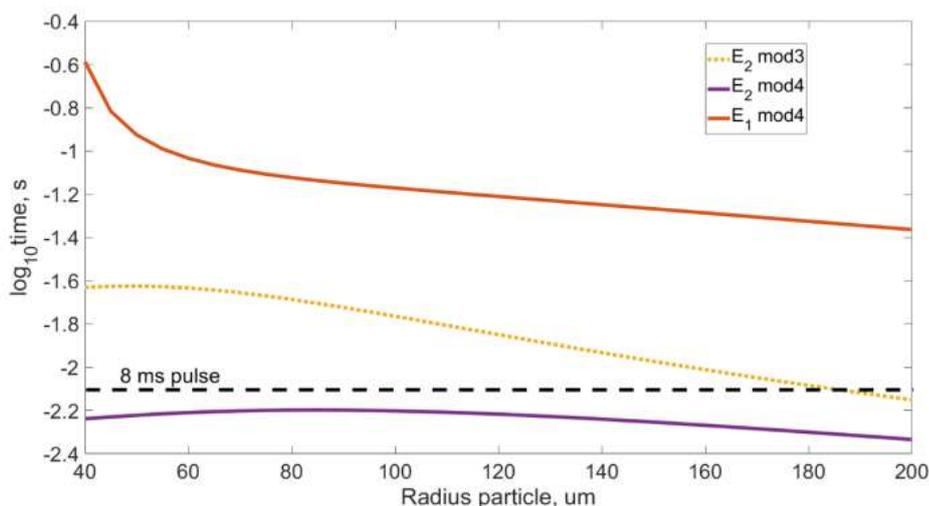


Рисунок 14 - Зависимость десятичного логарифма времени плавления от размера частиц

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. За характерные времена микроволнового пробоя (40-100 мкс) высокой температуры частиц для изменения газовой среды вблизи них достичь не удастся. Так как приращение температуры в нашей модели линейно зависит от времени, за 100 мкс приращение температуры составит порядка 10 градусов в случае максимальной напряжённости поля  $E_1$ .

С помощью упрощённой модели микроволнового пробоя одноатомного тяжёлого газа [13] и эмпирической формулы для воздуха [14] может быть рассчитана пробойная кривая для напряжённости поля микроволнового излучения на длине волны генерации гиротрона. Для аргона и воздуха были получены пробойные кривые (рисунок 15) 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.

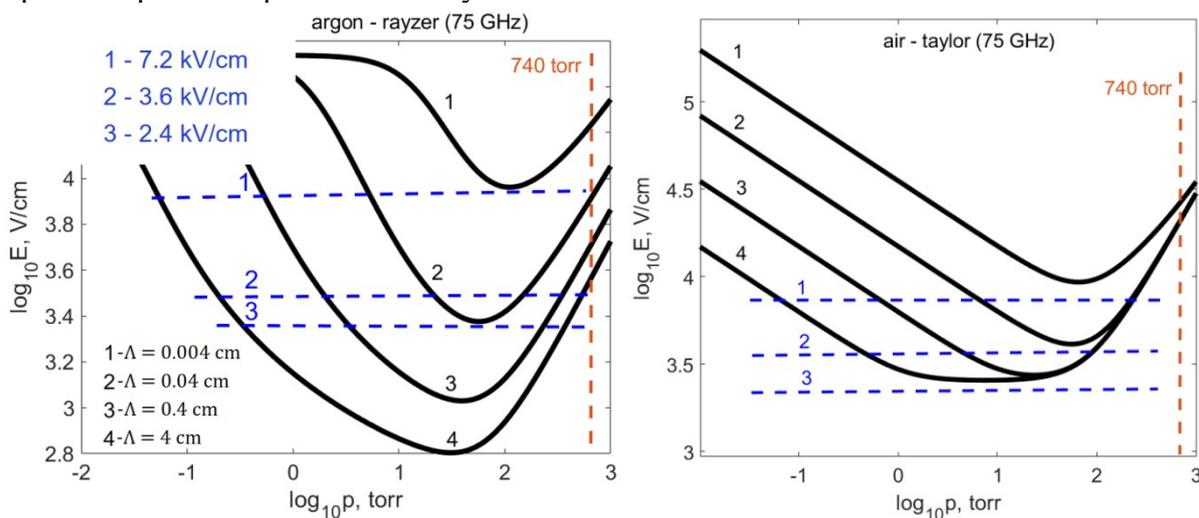


Рисунок 15 - Зависимость десятичного логарифма пробойной напряжённости поля на частоте 75 ГГц от десятичного логарифма давления газовой среды

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 инициированию разряда на поверхности 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.

**В заключении** сформулированы основные результаты и выводы диссертационной работы, а именно:

1. Определена возможность пробоя вблизи диэлектрической подложки с металлическими серебряными микровключениями с помощью микроволнового излучения гиротрона с интенсивностью от 3 до 10 кВт/см<sup>2</sup>.

2. В поле микроволнового излучения с интенсивностью 10 кВт/см<sup>2</sup> обнаружено распространение микроволнового разряда вдоль диэлектрической подложки с металлическими серебряными микровключениями.

3. Оценены параметры плазмы микроволнового разряда: температура электронов составляет порядка 0.5 эВ при концентрации от  $5 \times 10^{14}$  до  $5 \times 10^{15}$  см<sup>-3</sup> и газокINETической температуре тяжёлых молекул порядка 5500 К

4. Определены температурные режимы нагрева микрочастиц в эксперименте по взаимодействию плазмы микроволнового разряда с порошковыми засыпками металлических и диэлектрических микрочастиц.

5. Экспериментально доказано, что взаимодействие металлических частиц алюминия с плазмой микроволнового разряда приводит к их воспламенению в окислительной воздушной среде при атмосферном давлении.

6. Экспериментально и теоретически показано влияние параметров (мощность, длительность) микроволнового излучения на процесс микроволнового пробоя в порошковых засыпках металлических и диэлектрических частиц в атмосфере аргона и воздуха.

#### **Публикации**

##### **Список литературы**

1. A. L. Vikharev, A. M. Gorbachev, D. B. Radishev, Physics and application of gas discharge in millimeter wave beams, J. Phys. D: Appl.Phys. 52, 014001, 2019., <https://doi.org/10.1088/1361-6463/aae3a3>

2. K. Tabata et al., Experimental investigation of ionization front propagating in a 28 GHz gyrotron beam: Observation of plasma structure and spectroscopic measurement of gas temperature, J. Appl. Phys. vol. 127, 2020., <https://doi.org/10.1063/1.5144157>

3. G.M. Batanov et al., Plasma formation during solid-body irradiation by microwaves and its application for localizing the energy input, Journal of Physics D: Applied Physics. T. 29., №6., С. 1641-1648., 1996., <https://doi.org/10.1088/0022-3727/29/6/034>

4. G.M. Batanov, I.A. Kossyi, Pulsed microwave discharges in powder mixtures: Status, problems, and prospects. Plasma Phys. Rep. 41, 847–857, 2015., <https://doi.org/10.1134/S1063780X15090020>

5. G.M. Batanov et al., Pulse ignition of heterogeneous condensed systems by a set of surface Sparks generated by a microwave beam. Dokl. Phys. 51, 180–185, 2006., <https://doi.org/10.1134/S1028335806040057>

6. G. M. Batanov et al., Interaction of high-power microwave beams with metal-dielectric media, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 26, 11-16, 2004, <https://doi.org/10.1051/epjap:2004016>

7. Г.Герцберг, Спектры и строение двухатомных молекул, Издательство иностранной литературы, Москва, 1949, стр. 403

8. А.В. Гуревич, Нелинейная теория распространения радиоволн в ионосфере, Издательство Наука, Москва, 1973, стр. 272

9. Магунов А.Н. Спектральная пирометрия. Физматлит, Москва, 2012, стр. 248

10. Beckstead, M.W., Liang, Y. & Puddupakkam, K.V. Numerical Simulation of Single Aluminum Particle Combustion (Review), Combust Explos Shock Waves, 41, 622–638, 2005., <https://doi.org/10.1007/s10573-005-0077-0>

11. C.F. Bohren, D.R. Huffman, Absorbption and Scattering of Light by small Particles, 1998, <https://doi.org/10.1002/9783527618156>

12. К.И. Рыбаков, В.Е. Семенов, Микроволновый нагрев электропроводящих материалов, Известия Вузов. Радиофизика, том 10-11, стр. 997, 2005

13. A.Vyskrebentsev and Y. Raizer, A simple theory of breakdown of monatomic nonlight gases in fields of any frequency from low to optical, J. Appl. Mech. Tech. Phys. 14, 32, 1973., <https://doi.org/10.1007/BF00850574>

14. W. C. Taylor, W. E. Scharfman, and T. Morita, in Advances in Microwaves, Academic, New York, 1971, Vol. 7., pg. 308

#### **Статьи в журналах**

[A1] З.А. Заклецкий, Д.В. Малахов, Параметры поверхностного микроволнового разряда инициируемого при прохождении СВЧ-импульса гиротрона через кварцевую пластину с внедрёнными частицами металла// Физика плазмы.— 2023.— Т. 49, № 10.— СС 1024-1033. DOI: 10.31857/S0367292123600541

[A2] З.А. Заклецкий, Н.Г. Гусейн-Заде, Д.В. Малахов, Л.В. Бадьянова, Е.В. Воронова, В.Д. Степахин, Горение частиц как основной механизм релаксации плазмохимической реакции на воздухе при взаимодействии гиротронного излучения со смесью порошков метал-диэлектрик//ЖТФ.— 2023.— вып. 9.— 1279. DOI: 10.21883/JTF.2023.09.56214.127-23; <https://journals.ioffe.ru/articles/56214>

[A3] Z.A. Zakletskii, N.N. Skvortsova, V.D. Stepakhin, D.V. Malakhov, Investigation of the Process of Absorption of Microwave Radiation Generated by a Powerful Gyrotron in Powder Mixtures  $Al_2O_3/Pd$ // Journal of Physics: Conference Series.—2021.— 2055.— 012013. DOI: 10.1088/1742-6596/2055/1/012013

[A4] З.А. Заклецкий, Андреев С.Е., Соколов А.С., Исследование поглощения импульсного микроволнового излучения гиротрона в смеси порошков  $Al_2O_3/Al$  // Известия Вузов: Радиофизика.— 2023.— т. 66, № 7-8.— сс. 664-673. DOI: 10.52452/00213462\_2023\_66\_07\_664

#### **Тезисы докладов конференций**

[A5] З.А. Заклецкий, Д.В. Малахов, Н.Н. Скворцова, Методика определения коэффициента поглощения СВЧ-излучения гиротрона в смеси порошков  $Al_2O_3/Pd$ //XII конференция «Современные методы диагностики плазмы и их применение», Институт Лазерных и плазменных технологий НИЯУ МИФИ (16-18 декабря 2020).— Сборник тезисов докладов: Москва, НИЯУ МИФИ.— 2020.— с 84. [http://plasma.mephi.ru/ru/uploads/files/conferences/SSD\\_2020.pdf](http://plasma.mephi.ru/ru/uploads/files/conferences/SSD_2020.pdf)

[A6] З.А. Заклецкий, Гусейн-Заде Н.Г., Скворцова Н.Н., Шишилов О.Н., Ахмадулина Н.С., Борзосек В.Д., Кончечков Е.М., Колик Л.В., Соколов А.С., Козак А.К., Петров А.Е., Малахов Д.В., Летунов А.А., Степахин В.Д. Исследование плазмохимического синтеза микро и наночастиц при взаимодействии мощного гиротронного импульса со смесями порошков  $Al_2O_3/Pd$ //IX Международный симпозиум по теоретической и прикладной плазмохимии. (13 – 17 сентября 2021 г., Иваново, Россия): сборник трудов/ Иван. гос. хим.-технол. ун-т. — Иваново.— 2021. – с. 48. <https://conf.isuct.ru/istapc/proceedings> .

[A7] З.А. Заклецкий, Малахов Д.В., Скворцова Н.Н., Борзосек В.Д., Степахин В.Д., Гусейн-заде Н.Г., Исследование коэффициента поглощения СВЧ-импульса излучения гиротрона в смесях порошков  $Al_2O_3/Pt$  //XLIX Международная (Звенигородская) конференция по физике плазмы и УТС, 14–18 марта 2022, ICPAF-2022: Сб. тезисов, Москва.— 2022.— с. 194. DOI: 10.34854/ICPAF.2022.49.1.154. [http://www.fpl.gpi.ru/Zvenigorod/XLIX/Sbornik\\_ICPAF-2022.pdf](http://www.fpl.gpi.ru/Zvenigorod/XLIX/Sbornik_ICPAF-2022.pdf)

[A8] Z.A.Zakletskii, D.V.Malakhov, 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”, Moscow, Russia, April 11–15, 2022. — Book of abstracts 18th International Workshop “Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with

Electromagnetic Radiation”: Moscow.— 2022.— p. 65. eLIBRARY ID: 48217716.  
<https://cloud.mail.ru/public/PG1J/YBkwRLD2J>

[A9] Z.A.Zakletskii, N.G. Gusein-Zade, D.V. Malakhov, L.V. Badyanova, E.V. Voronova, V.D. Stepakhin, 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<sub>2</sub>O<sub>3</sub> /Al Powders// The 5-th International Conference Terahertz and Microwave Radiation: Generation, Detection and Applications (TERA-2023) 27 February — 2 March 2023, Moscow, Russia.— Сб. тезисов: Москва.— 2023.— стр. 9. <https://tera2023.mephi.ru/ru/publications/abstracts/>

[A10] З.А. Заклецкий, Малахов Д.В., Гусейн-заде Н.Г., Воронова Е.В., Бадьянова Л.В., Степахин В.Д., 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 ICRAF-2023 20 – 24 марта 2023 г. г. Звенигород: Москва.—2023.— стр. 261. <http://www.fpl.gpi.ru/Zvenigorod/L/Sbornik-2023.pdf>

[A11] З.А. Заклецкий, Малахов Д.В., Микроволновой пробой металлических микронных частиц// Актуальные проблемы и перспективы развития радиотехнических и инфокоммуникационных систем" ("Радиоинфоком-2023"): Сборник научных статей по материалам VII Международной научно-практической конференции.— Москва.— 2023.— С. 165-166. ISBN 978-5-7339-1523-4. <https://forum.mirea.ru/2023.pdf>

**Заклецкий Захар Александрович**

**ВЛИЯНИЕ ПЛАЗМЫ НА ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ МИКРОВОЛНОВОГО  
ИЗЛУЧЕНИЯ С ПОРОШКОВЫМИ ЗАСЫПКАМИ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ И  
ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ МИКРОЧАСТИЦ**

Автореферат

Подписано в печать		Формат 60x84/16
Печать офсетная	Уч.-изд.л. 1,5	Усл.-печ.л. 1,5
Тираж 100 экз.	Заказ N	Бесплатно

ОИВТ РАН. 125412, Москва, Ижорская ул., 13, стр. 2