УДК 533.9.01

МОДЕЛИРОВАНИЕ СВЧ ПЛАЗМЫ, ГЕНЕРИРУЕМОЙ В ГАЗОВОМ ПУЗЫРЕ В ЖИДКОМ п-ГЕПТАНЕ¹⁾

А.В. ТАТАРИНОВ, Ю.А. ЛЕБЕДЕВ, И.Л. ЭПШТЕЙН

Институт нефтехимического синтеза им. А.В. Топчиева РАН, г. Москва E-mail: lebedev@ips.ac.ru

MODELING OF THE MICROWAVE PLASMA GENERATED IN A GAS BUBBLE IN LIQUID n-HEPTANE

A.V. TATARINOV, Yu.A. LEBEDEV, I.L. EPSTEIN

Topchiev's Institute of Petrochemical Synthesis RAS, Moscow

Аннотация

Проведено численное моделирование СВЧ-разряда в газовом пузыре, образующемся в кипящем жидком n-гептане при атмосферном давлении. Для описания двухфазной среды использовался метод фазовых полей. Проведенные расчеты позволили получить режим периодического образования пузырей и их дальнейшего всплывания.

Ключевые слова: Математическая модель, метод конечных элементов, многофазное течение.

Summary

Numerical simulations of the microwave discharge in a gas bubble, formed in the boiling n-heptane liquid at atmospheric pressure, have been carried out. The phase field method is used to describe the two-phase medium. The calculations allowed us to obtain the periodic formation and upwelling of bubbles.

Key words: Mathematical model, finite element method, phase field method method.

Введение

В последние 10 лет появились публикации, в которых исследуются СВЧ-разряды в газовых пузырях в жидких углеводородах: *n*-додекан [1]— [4], бензол [2], масло для жарки, машинное масло, масляные отходы [2], кремнийсодержащее масло [3], вода с метиленовой синью [5, 6], вода с трихлорэтиленом [6], *n*-гептан [7, 8]. Появились первые работы по моделированию таких разрядов [8] и по спектральной диагностике таких разрядов [9, 10]. Причиной интереса к этому типу разряда по данным разных авторов является возможность получения водорода, покрытий, наночастиц и нанотрубок. Поскольку плазма находится внутри жидкости, эффективность физико-химических процессов под действием ее активных частиц и излучения оказывается большой. Соответственно велики и скорости образования продуктов. Однако реальных данных для определения перспектив применения таких разрядов не достаточно. Во всех перечисленных выше работах для создаются либо за счет испарения жидкости, либо барботированием газа (аргон), либо воздействием ультразвука. Суммируя известные результаты можно сказать, что разрядная система существенно неравновесна и является эффективным средством проведения плазмохимических реакций. Но данные отрывочны и систематических исследований проведено не было.

Настоящая работа посвящена первому этапу моделирования этого типа разряда и связана с описанием образования паровых пузырей в *n*-гептане при атмосферном давлении и генерации плазмы на конце центрального проводника коаксиальной линии под действием СВЧ энергии.

¹⁾Работа выполнена при финансовой поддержке Минобрнауки РФ, проект № RFMEF157514X0060.



1. Математическая модель

Моделируемая в настоящей работе двумерная осесимметричная задача представлена на схеме. Отметим, что местоположение границ между жидкой и газовой фазой меняется со временем.

Для анализа процесса образования и кипения пузыря использовалась двумерная осесимметричная модель, включающая в себя систему уравнений Навье-Стокса для двухфазного дозвукого потока несжимаемой жидкости и сжимаемого газа, уравнение теплопроводности, уравнение Максвелла для СВЧ поля и уравнение баланса для концентрации электронов.

При постановке условий на границе жидкости и пара делаются следующие физические предположения [11, 12]:

1- Скорость на границе раздела связана со скоростью испарения жидкости \dot{m}

$$\boldsymbol{n} \cdot \rho_v \, \boldsymbol{u}_v = \dot{\boldsymbol{m}} \left(1 - \frac{\rho_v}{\rho_L} \right) + \, \boldsymbol{n} \cdot \rho_v \, \boldsymbol{u}_L \, .$$

Здесь n — единичный вектор нормали к границе раздела, нижний индекс L означает жидкую фазу, v — насыщенный пар, ρ — плотность, u — скорость.

2- Сила, действующая на жидкость на границе раздела сред состоит из силы поверхностного натяжения и суммы сил давления и вязкости. Массовый поток, покидающий жидкость приводит к увеличению давления паров и, следовательно, к расширению области пара.

3- Температура на границе раздела сред равняется температуре испарения жидкости.

4- Величина \dot{m} выражается из величины потока тепла

$$\dot{m} = -\left(\frac{M_w}{\Delta H_{vL}}\right) \mathbf{n} \cdot k_v \, \nabla T_v \, .$$

Здесь M_w – молекулярный вес пара, ΔH_{vL} – энтальпия испарения, k_v – коэффициент теплопроводности пара.

Основные проблемы численного моделирования такой системы связаны с тем, что граница раздела жидкости и пара двигается, и поэтому, нужно использовать метод Лагранжа. Для перехода к расчету по методу Эйлера с фиксированной сеткой, мы пользовались приближением, изложеным, например, в работах [11, 12]. В этом методе считается, что граница между двумя фазами имеет конечную толщину и характеризуется быстрым, но гладким изменением плотности, скорости и других физических параметров. Для перехода между фазами вводится безразмерная функция индикатора фазы ϕ , $-1 \leq \phi \leq 1$.

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \boldsymbol{\nabla} \phi - \dot{m} \delta \left(\frac{V_{f,v}}{\rho_v} + \frac{V_{f,L}}{\rho_L} \right) = \boldsymbol{\nabla} \cdot \frac{\gamma \lambda}{\epsilon^2} \boldsymbol{\nabla} \psi,$$

где $V_{f,v}$, $V_{f,L}$ — объемные доли пара и жидкости, соответственно, λ — плотность энергии смешения сред, ϵ — величина, определяющая толщину границы раздела сред. Два последних параметра связаны с коэффициентом поверхностного натяжения σ соотношением: $\sigma = (2\sqrt{2}/3) \lambda/\epsilon$; γ — подвижность, определяющая временной масштаб диффузии Кана-Хилларда. Она определяется эмпирически и должна быть достаточно большой, чтобы толщина поверхности раздела оставалась постоянной, но с другой стороны должна быть мала настолько, чтобы позволить конвективным потокам проходить через границу раздела сред. Вспомогательная переменная ψ определяется из уравнения

$$\psi = -\boldsymbol{\nabla}\cdot \ \epsilon^2 \, \boldsymbol{\nabla}\phi + \left(\phi^2 - 1\right)\phi.$$

Уравнение сохранения количества движения включает в себя силы поверхностного натяжения в виде объемного источника

$$\rho \frac{\partial \boldsymbol{u}}{\partial t} + \rho \left(\boldsymbol{u} \cdot \boldsymbol{\nabla} \right) \boldsymbol{u} = \boldsymbol{\nabla} \left[-p \boldsymbol{I} + \eta \left(\boldsymbol{\nabla} \boldsymbol{u} + (\boldsymbol{\nabla} \boldsymbol{u})^{\boldsymbol{T}} \right) \right] + \rho \boldsymbol{g} + G \boldsymbol{\nabla} \boldsymbol{\phi},$$

где *G* – химический потенциал, η – динамическая вязкость, *p* – давление.

В уравнении неразрывности учитывается переход жидкости в пар

$$\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{u} = \dot{m}\delta\left(\frac{1}{\rho_v} + \frac{1}{\rho_L}\right)$$

 δ — кривизна поверхности раздела двух фаз: $\delta = 6V_f(1 - V_f) |\nabla \phi|/2$. Величина скорости испарения жидкости \dot{m} определяется из выражения

$$\dot{m} = -\left(\frac{M_w}{\Delta H_{vL}}\right) \mathbf{n} \cdot k_v \nabla T_v \approx C \rho_L \frac{(T - T_{sat})}{T_{sat}}.$$

Здесь *С* — эмпирическая константа, выбираемая из условия сохранения на поверхности раздела температуры равной температуре кипения.

В уравнение теплопроводности вводится дополнительный источниковый член, связанный с испарением:

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho c_p \left(u \boldsymbol{\nabla} \right) T = - \boldsymbol{\nabla} \cdot \left(k \boldsymbol{\nabla} T \right) + Q_s - \frac{\dot{m} \delta \Delta H_{vL}}{M_w};$$

здесь c_p , k – теплоемкость и теплопроводность газовой и жидкой фазы, Q_s – источник тепла, вызванный СВЧ-полем, $Q_s = \sigma |E_m^2|$, $\sigma = f_{col}\epsilon_0 n_e/n_c$ электрическая проводимость плазмы, f_{col} – частота столкновений электронов с нейтралами, ϵ_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума, n_c – критическая плотность электронов, $n_c \approx 7 \times 10^{10}$ см⁻³ для заданной частоты СВЧ поля f = 2.45 ГГц.

В случае стационарной структуры ТМ волн уравнения Максвелла сводятся к решению единственного комплексного уравнения для магнитной компоненты волны:

$$\boldsymbol{\nabla} \times \left((\epsilon_r - j\sigma/\omega\epsilon_0)^{-1} \, \boldsymbol{\nabla} \times \boldsymbol{H}_{\boldsymbol{\theta}} \right) - \mu_r k_0^2 \, \boldsymbol{H}_{\boldsymbol{\theta}} = 0.$$

Здесь $\epsilon_r = 1 - n_e/n_c$ – относительная проницаемость плазмы. Относительная магнитная проводимость среды μ_r равна единице.

Уравнение для концентрации электронов, записанное в амбиполярном приближении имеет вид

$$\nabla \cdot (-D_{amb} \nabla n_e) = k_i \left(\frac{E}{N}\right) \cdot [C_7 H_{16}] \cdot n_e - k_{rec} n_e^2$$

Здесь D_{amb} – коэффициент амбиполярной диффузии, $D_{amb} \approx \mu_i \epsilon_x$ [13], k_i , k_{rec} – коэффициенты ионизации гептана и объемной рекомбинации основного иона гептана, μ_i – подвижность основного иона, ϵ_x – характеристическая энергия. Для расчета k_i требуется знание функции распределения электронов. На сегодняшний день нам не известен набор сечений, позволяющий ее рассчитать. Потому мы использовали известный [14] набор сечений для пропана. Сечение ионизации гептана было взято из работы [15].

Моделирование проводилось при помощи программы Comsol 3.5a, использующей метод конечных элементов [16]. Расчеты проводились на 12-ядерном процессоре Xeon с тактовой частотой 2.3 ГГц и оперативной памятью в 32 ГБ.

2. Результаты расчета

Расчеты позволяют проследить эволюцию во времени картины течения. В начальный момент внутри каверны задан небольшой пузырек перегретого газа. Сценарий дальнейшего процесса сильно зависят от подводимой СВЧ мощности P_0 . При маленьких мощностях этот пузырек либо пропадает, либо немного раздувается и остается на месте. При больших мощностях с течением времени пузырь переходит в столб перегретого пара. В небольшом промежуточном диапазоне мощностей возможен режим периодическо-го образования пузырей и их дальнейшего всплывания. На рис. 1 показана картина течения в различные



Рис. 1: Рассчитанные значения величины функции ϕ в разные моменты времени (слева направо) : 0.01, 0.02, 0.03, 0.06, 0.09, 0.12, 0.13 сек при падающей мощности $P_0 = 110$ Вт. Размеры цилиндрической емкости с п-гептаном: h = 5 см, r = 2 см; диаметр центрального электрода — 3 мм; глубина каверны — 1.5 мм.

моменты времени для этого последнего случая. Диаметр получающихся пузырей сравним с диаметром каверны. В нашем случае он составляет несколько миллиметров. Скорость всплывания пузырей составляет около метра в секунду. Скорость движения жидкости намного меньше и составляет около сантиметра в секунду. Плазма в нашем случае горит только внутри каверны, в непосредственной близости к центральному электроду. При всплывании пузыря плазма внутри него отсутствует. Это объясняется тем, что СВЧ-поле сосредоточено вблизи торца центрального цилиндрического электрода и очень резко падает вне его. При $P_0 = 110$ Вт величина СВЧ-поля на торце электрода достигает 1000 В/см. Соответственно, температура в этой области, обусловленная поглощением СВЧ-энергии в плазме, превышает 4000 К. Максимальная концентрация электронов составляет примерно 10^{10} см⁻³. По мере всплывания пузырь очень быстро остывает за счет испарения кипящей жидкости внутрь пузыря, и его температура становится примерно равной температуре кипения. В дальнейшем мы планируем учесть процессы термического разложения гептана, которые существенны уже при температуре больше 1000 К.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Nomura S., Toyota H. // Appl. Phys. Lett. 2003. V. 83. P. 4503.
- 2. Nomura S., Toyota H., Tawara M., Yamashota H. // Appl. Phys. Lett. 2006. V. 88. P. 231502.
- Nomura S., Toyota H., Mukasa S., Yamashita H., Maehara T., Kawashima A. // Appl. Phys. Lett. 2006. – V. 88. – P. 211503.
- Nomura S., Toyota H., Mukasa S., Yamashita H., Maehara T., Kawashima A. // J. Appl. Phys. 2009. – V. 106. – P. 073306.
- Ishijima T., Sugiura H., Satio R., Toyada H., Sugai H. // Plasma Sources Sci. & Technol. 2010. V. 19. – P. 015010.
- 6. Ishijima T., Hotta H., Sugai H. // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 91. P. 121501.
- Buravtsev N.N., Konstantinov V.S., Lebedev Yu.A., Mavlyudov T.B. // Microwave Discharges: Fundamentals and Applications (Proc. VIII Int. Workshop, 10-14 September 2012, Zvenigorod, Russia)/ Ed. Yu.A. Lebedev. – Yanus-K, 2012. – P. 167.
- Лебедев Ю.А., Константинов В.С., Шахатов В.А., Эпштейн И.Л., Юсупова Е.В. // XV Международная Звенигородская конференция по физике плазмы и УТС. 11-15 февраля 2013 г. – М.: ЗАО НТЦ «ПЛАЗМАИОФАН», 2013. – С. 166.
- Camerotto E., De Schepper R., Nikiforov A.Y. et al. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2012. V. 45. -P. 435201.
- Lebedev Yu. A., Epstein I. L., Shakhatov V. A., Yusupova E. V., Konstantinov V. S. // High Temperature. – 2014. – V. 52. – P. 319.
- 11. Sun Y.and Beckermann C. Diffuse interface modeling of two-phase flows based on averaging: mass and momentum equations // Physica D. 2004. V. 198. P. 281-308.
- 12. Jamet D. Diffuse interface models in fluid mechanics. http://pmc.polytechnique.fr/mp/GDR/docu/Jamet.pdf
- 13. Райзер Ю.П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1987.
- 14. Morgan database, http://www.lxcat.net, retrieved on August 29. 2014.
- Vacher J.R., Jorand F., Blin-Simiand N., Pasquiers S. Electron impact ionization cross-sections of n-heptane // International Journal of MassSpectrometry. – 2010. – V. 295 – P. 78-84.
- 16. COMSOL 3.5a. http://www.comsol.com

REFERENCES

- 1. Nomura S., Toyota H. // Appl. Phys. Lett. 2003. V. 83. P. 4503.
- 2. Nomura S., Toyota H., Tawara M., Yamashota H. // Appl. Phys. Lett. 2006. V. 88. P. 231502.
- Nomura S., Toyota H., Mukasa S., Yamashita H., Maehara T., Kawashima A. // Appl. Phys. Lett. 2006. – V. 88. – P. 211503.
- Nomura S., Toyota H., Mukasa S., Yamashita H., Maehara T., Kawashima A. // J. Appl. Phys. 2009. – V. 106. – P. 073306.
- Ishijima T., Sugiura H., Satio R., Toyada H., Sugai H. // Plasma Sources Sci. & Technol. 2010. V. 19. – P. 015010.
- 6. Ishijima T., Hotta H., Sugai H. // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 91. P. 121501.
- Buravtsev N.N., Konstantinov V.S., Lebedev Yu.A., Mavlyudov T.B. // Microwave Discharges: Fundamentals and Applications (Proc. VIII Int. Workshop, 10-14 September 2012, Zvenigorod, Russia) / Ed. Yu.A. Lebedev. – Yanus-K. – 2012. – P. 167.

- Lebedev Ju.A., Konstantinov V.S., Shakhatov V,A., Epstein I.L., Yusupova E.V. // XV International Zvenigorod conference on plasma physics and controlled thermonuclear fusion. February 11-15, 2013. – Moscow: Company SEC «PLASMAIOFAN», 2013. – P. 166. (in Russian)
- Camerotto E., De Schepper R., Nikiforov A.Y., et all. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2012. V. 45. -P. 435201.
- 10. Lebedev Yu. A., Epstein I. L., Shakhatov V. A., Yusupova E. V., Konstantinov V. S. // High Temperature. 2014. V. 52. P. 319.
- 11. Sun Y.and Beckermann C. Diffuse interface modeling of two-phase flows based on averaging: mass and momentum equations // Physica D 2004. V. 198. P. 281-308.
- 12. **Jamet D.** Diffuse interface models in fluid mechanics. http://pmc.polytechnique.fr/mp/GDR/docu/Jamet.pdf
- 13. Raizer Ju.P. Physics of gas discharge [Fizika gazovogo razrjada]. Moscow: Nauka, 1987. (in Russian)
- 14. Morgan database, http://www.lxcat.net, retrieved on August 29. 2014.
- Vacher J.R., Jorand F., Blin-Simiand N., Pasquiers S. Electron impact ionization cross-sections of n-heptane // International Journal of MassSpectrometry. – 2010. – V. 295 – P. 78–84.
- 16. COMSOL 3.5a. http://www.comsol.com