

УДК 537.525:539.19

Л.В. Месарош, О.К. Шуайбов, М.П. Чучман

Ужгородський національний університет, вул. Підгірна, 46, Ужгород, 88000

e-mail: liviamesarosh@gmail.com

ХАРАКТЕРИСТИКИ ТЛІЮЧОГО РОЗРЯДУ НАД ПОВЕРХНЕЮ ВОДНОГО РОЗЧИНУ СІРЧАНОКИСЛОГО АЛЮМІНІЮ $Al_2(SO_4)_3$

Представлено результати дослідження електричних і оптичних характеристик плазми тліючого розряду над поверхнею водного розчину солі сірчанокиислого алюмінію. Наведено вольт-амперні характеристики для різних міжелектродних проміжків та катодний спад напруги розряду і спектри випромінювання розряду.

Ключові слова: тліючий розряд, розчин сірчанокиислого алюмінію, спектри випромінювання, вольт-амперна характеристика.

Вступ

На даний час значний інтерес викликає генерування розрядів атмосферного тиску [1]. Окремий інтерес представляє тліючий розряд з рідкими електродами [2, 3]. Фізика розряду з рідкими електродами на даний час вивчена мало, особливо при застосуванні розчинів солей металів. Деякі характеристики розряду між металевим електродом і рідинним катодом описані у працях [4, 5], а між металевим катодом і рідинним анодом у [6, 7]. Вплив струму, відстані між електродами, складу електроліту та його концентрації досліджені у різних режимах розряду (переважно, для розчинів солей NaCl, KCl, LiCl у воді кислотах та лугах). Але в доступній для аналізу літературі відсутні результати дослідження тліючого розряду атмосферного тиску з рідким електродом на основі водного розчину $Al_2(SO_4)_3$.

Із аналізу літературних даних випливає, що коли рідкий електрод служив катодом, плазма має кілька точок дискретних контактів з поверхнею води. Така багатоканальна плазма не спостерігається, коли вода є анодом [8].

Електричні і спектроскопічні характеристики розряду при атмосферному тиску між металевим та рідким електродом вивчені для рідинного катода і для рідинного анода. Такі вимірювання дають інформацію про температуру газу в об'ємі плазми та описують процеси у прианодній

та прикатодній областях. Характеристики розряду над поверхнею електроліту на базі солей алюмінію являють собою значний інтерес для оптимізації умов синтезу наноструктур з оксиду алюмінію і до цієї пори практично не досліджувалися.

Метою нашої роботи було дослідити вольт-амперні характеристики та катодний спад напруги розряду при різних міжелектродних проміжках і спектри його випромінювання.

Техніка та методика експерименту

Тліючий розряд запалювався у кюветі, виготовленій з оргскла, одним електродом служила голка з міді, а другим – поверхня розчину $Al_2(SO_4)_3$. Дослідження проводилося при відстані між металевим електродом і поверхнею розчину 8 мм, товщина шару водного розчину сірчанокиислого алюмінію становила 2 мм. Для живлення розряду був використаний високовольтний випрямляч ($U = 1-25$ кВ; $I = 1-100$ мА). Випромінювання розряду аналізувалося за допомогою монохроматора МДР-2, фотопомножувача ФЕУ-106, підсилювача У5-9 та системи для автоматичної реєстрації спектрів на базі аналогово-цифрового перетворювача та ЕОМ Pentium-2 [9]. Реєстрація спектрів розряду проводилась в діапазоні довжин хвиль 200-700 нм, а їх ототожнення – за допомогою довідника [10].

1. Спектри випромінювання розряду

Досліджувалися спектри випромінювання тліючого розряду над поверхнею водного розчину сірчаноокислого алюмінію. Контрольні експерименти були проведені над поверхнею дистильованої води.

На рис. 1 та рис. 2 наведені спектри

випромінювання розряду над поверхнею дистильованої води та водного розчину сірчаноокислого алюмінію при струмах розряду 12 мА та 32 мА, відповідно. На вставках показано малоінтенсивне випромінювання молекул NO в діапазоні довжин хвиль 195-265 нм із розрядів на основі дистильованої води та розчину $Al_2(SO_4)_3$.

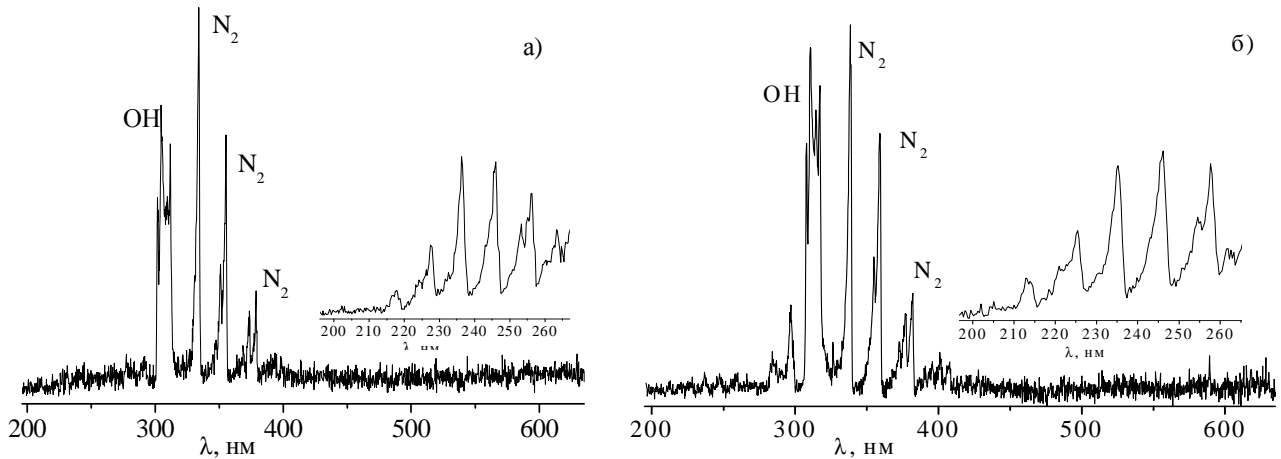


Рис. 1. Інтегральні спектри розряду при струмі 12 мА, зафіксовані в діапазоні довжин хвиль 200-670 нм: а) дистильована вода, б) 10 % розчин $Al_2(SO_4)_3$

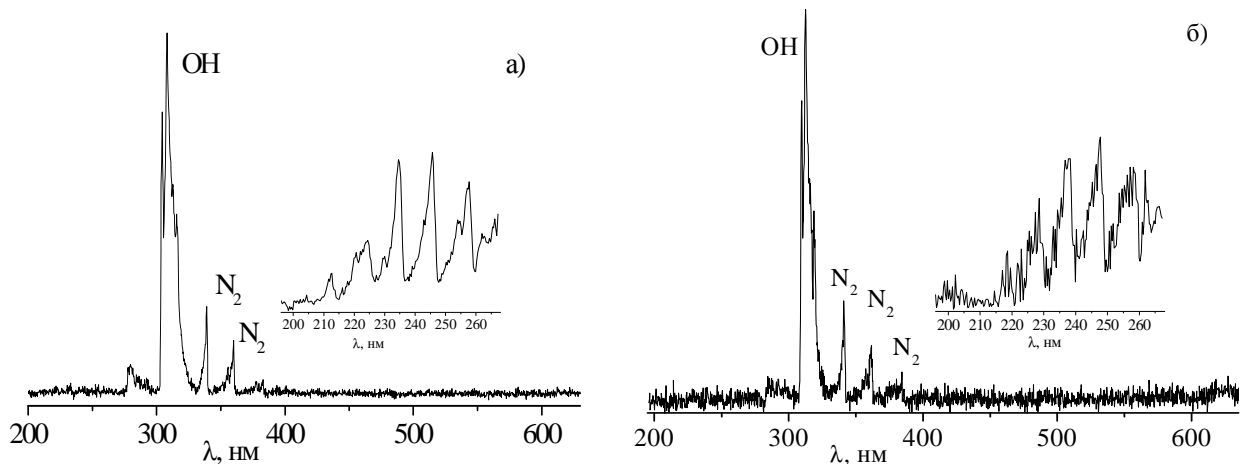


Рис. 2. Інтегральні спектри розряду при струмі 32 мА, зафіксовані в діапазоні довжин хвиль 200-670 нм: а) дистильована вода, б) 10 % розчин $Al_2(SO_4)_3$

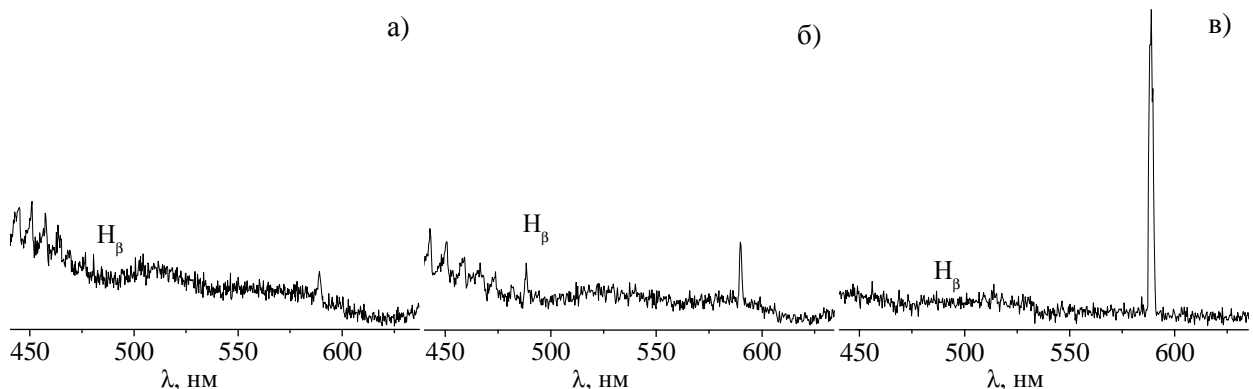


Рис. 3. Інтегральні спектри розряду при струмі 32 мА, зафіксовані в діапазоні довжин хвиль 445-670 нм: а) дистильована вода, б) 1 % розчин $Al_2(SO_4)_3$, в) 10 % розчин $Al_2(SO_4)_3$

На рис. 3 представлено інтегральні спектри розряду при струмі розряду 32 мА для дистильованої води та 1 % і 10 % розчину $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$. З рис. 1-3 випливає, що у спектрах домінує друга позитивна система смуг молекули нітрогену з максимумом на переході N_2 337,1 нм $^3\Pi \rightarrow ^3\Pi$ (0;0) та спостерігається випромінювання гідроксилу з максимумом на переході OH 306,4 нм $^2\Sigma \rightarrow ^2\Pi$ (0;0). З меншою інтенсивністю спостерігалось випромінювання смуг молекули NO з максимумом на коливному переході NO 247,8 нм $^2\Sigma \rightarrow ^2\Pi$ (0;2). У спектрах також

було зафіксовано випромінювання атома водню 486,1 нм H_β та 656,3 нм H_α .

Основні відмінності у спектрах дистильованої води та водного розчину сірчано-кислого алюмінію проявляються в спектральній області 250-400 нм. Інтенсивність випромінювання азоту із ростом концентрації розчину зменшується, а інтенсивність випромінювання NO росте. Лінія 327,4 нм Cu I , H_β та смуги NO проявляються тим інтенсивніше, чим більшими є час горіння розряду та концентрація розчину. При струмі розряду 12 мА добре видно зміну співвідношення інтенсивності смуг OH та N_2 (рис. 1).

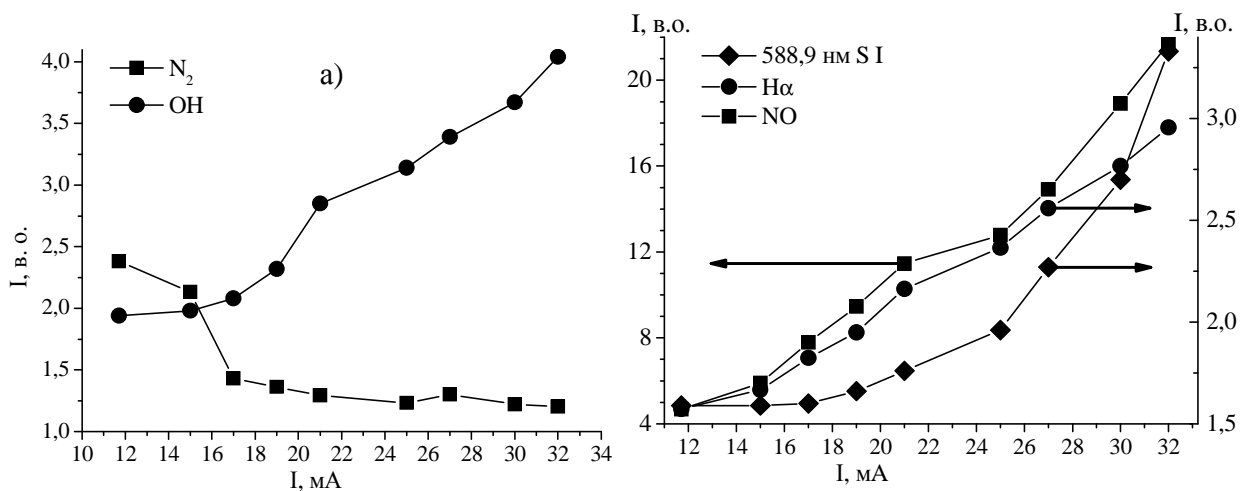


Рис. 4. Залежність інтенсивності випромінювання розряду від сили струму: : а) OH 306,4 нм $^2\Sigma \rightarrow ^2\Pi$ (0;0) та N_2 337,1 нм $^3\Pi \rightarrow ^3\Pi$ (0;0) (при напрузі ФЕП 720 В); б) NO 247,8 нм $^2\Sigma \rightarrow ^2\Pi$ (0;2), H_α 656,2 нм, 588,9 нм S I (при напрузі ФЕП 860 В)

Як видно з (рис. 3 та 4,б), випромінювання сірки 588,9 нм S I росте з концентрацією розчину та збільшенням струму розряду. Для дистильованої води при подібній довжині хвилі випромінюють іони міді.

Із збільшенням струму розряду інтенсивність смуги OH зростає, а N_2 зменшується (рис. 4). Детальніше аналізуючи зміну інтенсивності смуги OH від сили струму в розряді бачимо, що його характер змінюється при струмі 19-21 мА (в той час коли у випадку дистильованої води змінювався при 26 мА), після чого починає зростати швидше. При малих струмах розряду інтенсивність випромінювання азоту переважала інтенсивність випромінювання OH . Проте із ростом струму приблизно до 15 мА інтенсивність

випромінювання молекул азоту різко спадає, після чого змінюється мало. Ймовірно, що у розрядній плазмі відбуваються фізико-хімічні процеси, які приводять до гасіння випромінювання молекул азоту. Збудження молекули N_2 може передаватися до молекул з меншими енергіями дисоціації, а також можливим є розпад даної молекули з утворенням молекули NO . Як випливає з рис. 4, при струмах $I > 24$ мА інтенсивність випромінювання молекули NO різко зростає. Подібний характер зміни випромінювання OH , NO та H_α вказує на те, що атоми водню утворюються внаслідок розпаду OH , або у одному і тому самому процесі – взаємодії плазми з поверхнею води, руйнування якої може призвести до утворення атома водню і

радикалу OH . Молекули NO в плазмі розчину утворюються ефективніше, ніж у плазмі дистильованої води. Інтенсивність NO та $588,9 \text{ nm S I}$ після 25 mA починає зростати набагато швидше, ніж OH і H_α , що можна пояснити специфікою хімічних реакцій, які проходять на поверхні і всередині розчину.

2. Вольт-амперна характеристика та катодний спад потенціалу

На рис. 5 представлено вольт-амперні характеристики (ВАХ) для дистильованої води у випадку водяного катода та водяного анода. Хід залежності у випадку водяного катода для міжелектродних відстаней більших за 3 mm відзначається набагато більшою зміною напруги, а напруга для рідинного анода є суттєво меншою. Одержані нами ВАХ якісно

узгоджуються з ВАХ для розрядів з рідинними електродами на основі води, одержаними в [8].

На рис. 6 представлено ВАХ для водних розчинів сірчаноокислого алюмінію (1 та 10%). При міжелектродних відстанях $> 3 \text{ mm}$ і додаванні до води солі $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ спад напруги на ВАХ відбувається більш різко.

На рис. 7 представлено катодний спад потенціалу для рідинного катода та анода. При фіксованому струмі розряду визначалось падіння потенціалу на проміжку «анод-електроліт» як функція відстані катод-анод. Екстраполяція отриманої залежності до нульової відстані давала величину катодного падіння потенціалу U_k , яка визначає енергію позитивних іонів розряду, що бомбардують поверхню рідинного катода [11].

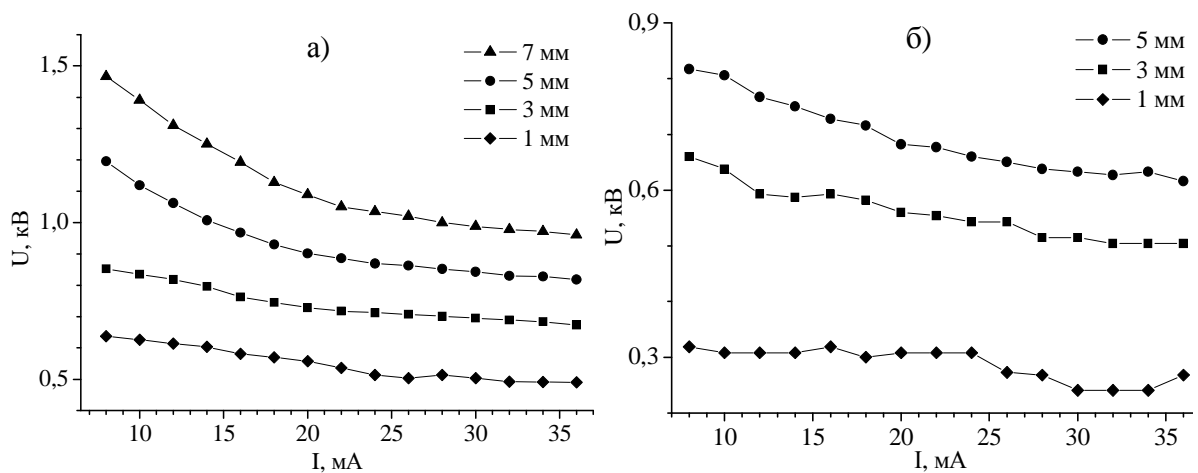


Рис. 5. Вольт-амперні характеристики для розряду на основі дистильованої води: а) водяний катод, б) водяний анод

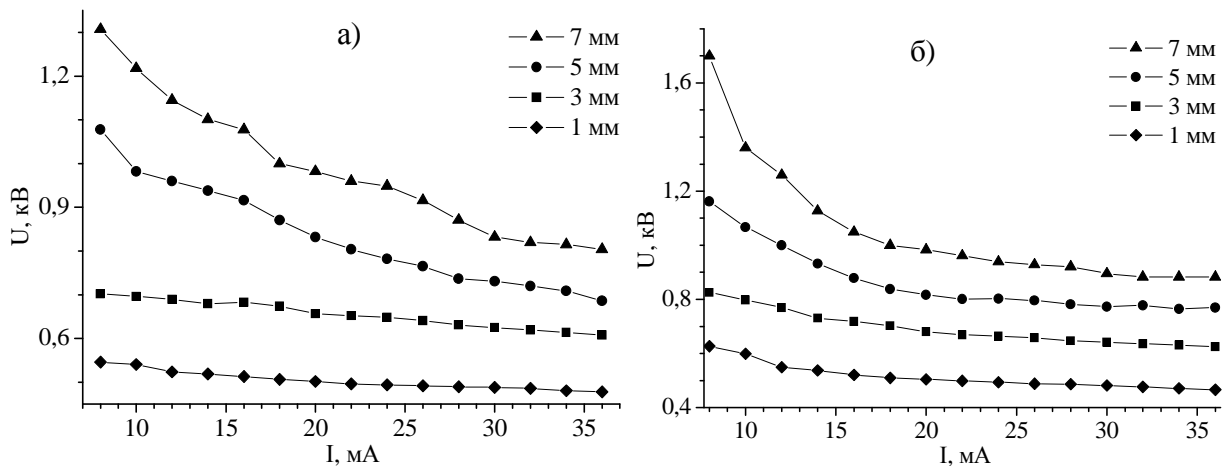


Рис. 6. Вольт-амперні характеристики для розряду на базі водного розчину сірчаноокислого алюмінію: а) 1% розчин, б) 10% розчин

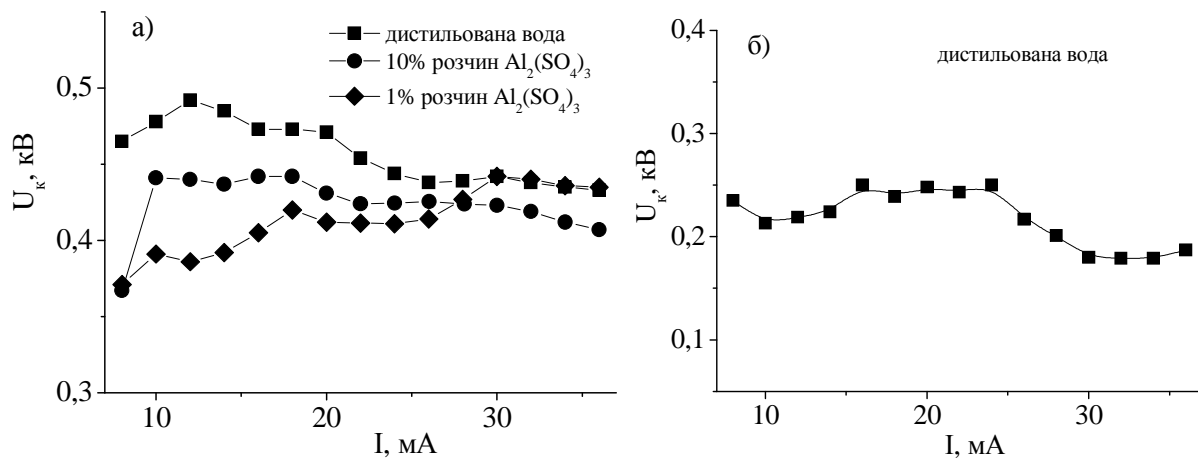


Рис. 7. Катодний спад потенціалу для тліючого розряду на основі а) рідинного катоду, б) аноду

В області струмів до 12 мА спостерігається різке збільшення катодного падіння потенціалу для випадку розряду з катодом на основі дистильованої води. У випадку дистильованої води катодне падіння потенціалу більше на величину приблизно 40 В від спаду напруги для 10 % розчину сірчаноокислого алюмінію, хоча в цілому залежність є подібною. У випадку розчинів для 1 % розчину спостерігалися три характерні області зміни напруги при наступних струмах розряду: 10-18, 19-30, 31-36 мА. В області струмів 10-18 мА падіння потенціалу для 1 % розчину менше, ніж для дистильованої води та 10 % розчину, а при струмах 31-36 мА катодний спад напруги співпадає з відповідною залежністю для дистильованої води. Спад напруги залежить від матеріалу електродів та стабільності їх поверхні.

Висновки

Дослідження емісійних характеристик тліючого розряду над поверхнею водного розчину сірчаноокислого алюмінію показало, що в його плазмі ефективно утворюються збуджені радикали гідрокси

лу та атомарного водню, а також окис нітрогену і молекули азоту у збуджених станах.

Характер залежності інтенсивності випромінювання ОН від сили струму змінюється при 19-21 мА. Із ростом стуму приблизно до 15 мА інтенсивність випромінювання молекул азоту різко спадає, після чого змінюється мало.

Інтенсивність NO та 588,9 нм S I після 25 мА починає зростати набагато швидше, ніж інтенсивність радикалів ОН і H_{α} , що можна пояснити специфікою хімічних реакцій, які проходять на поверхні і всередині розчину.

Хід залежності на ВАХ у випадку водяного катоду для міжелектродних відстаней > 3 мм відзначається набагато більшою зміною напруги, напруга для рідинного анода є суттєво меншою.

При міжелектродних відстанях > 3 мм і додаванні до води солі $Al_2(SO_4)_3$ спад напруги на вольт-амперних характеристиках також відбувається більш різко.

У випадку дистильованої води катодне падіння потенціалу більше на величину приблизно 40 В від спаду напруги для 10 % розчину сірчаноокислого алюмінію.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Kunhardt E.E. Generation of large-volume, atmospheric-pressure, non-equilibrium plasmas // IEEE Trans. Plasma Sci. – 2000. – 28. – P. 189–200.
2. Laroussi M, Lu X., Malott C.M. A non-equilibrium diffuse discharge in atmospheric pressure air // Plasma Sources Sci. Technol. – 2003. – 12. – P. 53–59.
3. Andre P., Barinov Yu., Faure G., Kaplan V., Lefort A., Shkolnik S., Vacher D. Experimental study of dis-

- charge with liquid non-metallic electrodes in air at atmospheric pressure // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 2001. – 34. – P. 3456–65.
4. Lu X., Laroussi M. Atmospheric pressure glow discharge in air using a water electrode // *IEEE Trans. Plasma Sci.* – 2005. – 33. – P. 272–275.
 5. Gaisin A.F., Son E.E. Vapor–air discharges between electrolytic cathode and metal anode at atmospheric pressure // *High Temp.* – 2005. – 43. – P. 1–7.
 6. Gaisin A.F. A vapor-air discharge between electrolytic anode and metal cathode at atmospheric pressure // *High Temp.* – 2005. – 43. – P. 680–687.
 7. Miao S.Y., Ren S., Wang D.Z., Zhang Y.T., Wang Y.N. Conical DC discharge in ambient air using water as an electrode // *IEEE Trans. Plasma Sci.* – 2008. – 36. – P. 126–156.
 8. Bruggeman P., Liu J., Degroote J., Kong M.G., Vierendeels J., Leys C. DC excited glow discharges in atmospheric pressure air in pin-to-water electrode systems // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 2008. – 41 – 215201 (11pp).
 9. Месарош Л.В., Чучман М.П., Шуайбов О.К. Вивчення розряду над поверхнею води // Тез. допов. "Новітні напрями в атомній фізиці та спектроскопії". Ужгород. – 2012. – С. 70-71.
 10. Пирс Р., Гейдон А. Отождествление молекулярных спектров. – Москва: Изд. иностранной литературы, 1949. – 248 с.
 11. Чумадова Е.С., Шикова Т.Г., Рыбкин В.В., Титов В.А. Образование и гибель активных частиц в жидком катоде под действием разряда атмосферного давления // *Химия и химическая технология.* – 2008. – 51. – 11. – С. 29-32.

Стаття надійшла до редакції 02.10.12

L.V. Mesarosh, A.K. Shuaibov, M.P. Chuchman
Uzhhorod National University, 88000, Uzhhorod, 54 Voloshyn Str.

THE GLOW-DISCHARGE CHARACTERISTICS ABOVE THE SURFACE OF THE AQUEOUS SOLUTIONS OF THE SULFURIC ACID ALUMINIUM $Al_2(SO_4)_3$

The results of investigation of the electrical and optical characteristics of plasma glow discharge above the aqueous solution of aluminum sulphate salt have been presented. The volt-ampere characteristics for different interelectrode gaps and cathode voltage drop discharge and the emission spectra of the discharge have been shown.

Keywords: glow discharge, solution of aluminum sulphate salt, emission spectra, current-voltage characteristic.

Л.В. Месарош, А.К. Шуайбов, М.П. Чучман
Ужгородский национальный университет, 88000, Ужгород, ул. Волошина, 54

ХАРАКТЕРИСТИКИ ТЛЕЮЩЕГО РАЗРЯДА НАД ПОВЕРХНОСТЬЮ ВОДНОГО РАСТВОРА АЛЮМИНИЯ СЕРНОКИСЛОГО $Al_2(SO_4)_3$

Представлены результаты исследования электрических и оптических характеристик плазмы тлеющего разряда над поверхностью водного раствора соли сернокислого алюминия. Приведены вольт-амперные характеристики для различных межэлектродных промежутков, катодное падение напряжения разряда и спектры излучения разряда.

Ключевые слова: тлеющий разряд, раствор алюминия сернокислого, спектры излучения, вольт-амперная характеристика.