

УДК 621.314.5:537.523:661.666.4

Л. З. БОГУСЛАВСЬКИЙ, Д. В. ВІННИЧЕНКО, Н. С. НАЗАРОВА, Ю. О. АДАМЧУК, С. В. ЧУЩАК

ДОСЛІДЖЕННЯ ЕЛЕКТРОФІЗИЧНИХ ХАРАКТЕРИСТИК ВИСОКОВОЛЬТНОЇ ОБРОБКИ ГАЗОПОДІБНИХ ВУГЛЕВОДНІВ ДЛЯ ОТРИМАННЯ ВУГЛЕЦЕВИХ НАНОМАТЕРІАЛІВ

Проведено дослідження електрофізичних характеристик режиму продуктивного синтезу нановуглецю. Визначено типові форми динамічних вольт-амперних характеристик, при яких здійснюється синтез вуглецевих наноматеріалів, та їх залежність від потужності в каналі розряду і довжини міжелектродного проміжку. Визначено функціонали, які характеризують форму розрядних імпульсів. На основі їх аналізу визначено найбільш інформативну характеристику для моніторингу довжини міжелектродного проміжку.

Ключові слова: електрофізичні характеристики, високовольтна обробка, газоподібні вуглеводні, синтез нановуглецю.

Вступ. Аналіз літературних джерел [1, 2, 3, 4] показав широкий спектр досліджень по всьому миру в області обробки газоподібних вуглеводнів, але відомі методи електророзрядного синтезу вуглецевих наноматеріалів (ВНМ) із вуглецевовмісних газів на сьогодні мають невелику продуктивність і високе питоме енергоспоживання. Метод обробки газоподібних вуглеводнів струмом кілогерцового діапазону [5], має високі показники продуктивності і якості отриманих ВНМ. Тому розвиток наукових основ та фізико-технічних принципів реалізації високочастотного методу синтезу з вуглецевовмісних газів аморфного нановуглецю є перспективним та потребує створення високочастотної електророзрядної технології та розробки спеціалізованого високовольтного електрообладнання для її реалізації. В зв'язку з цим визначення особливостей електрофізичних характеристик електророзрядного синтезу ВНМ є актуальною задачею.

Метою роботи є визначення електрофізичних характеристик високовольтної обробки газоподібних вуглеводнів, за якими здійснюється синтез вуглецевих наноматеріалів, і їх взаємозалежностей.

Матеріали дослідження. Для дослідження процесу високовольтної обробки газоподібних вуглеводнів електророзрядного синтезу використовувалась установка, опис якої наведено в [5], з джерелом живлення електричного розряду, побудованим за принципами, наведеними в [6]. Джерело живлення електричного розряду містить високочастотний інвертор напруги із послідовним резонансним контуром, паралельно якому підключено підвищуючий високовольтний трансформатор, вторинна обмотка якого замкнена на канал електричного розряду. Виконана за такою побудовою система є джерелом живлення із стабілізованим значенням середньоквадратичного струму. В режимі короткого замикання вихідний струм має трикутну форму. За підвищенням опору навантаження форма вихідного струму наближається до синусоїдальної. Напруга на виході такого джерела зумовлена параметрами навантаження.

Дослідження характеристик газового розряду проводилось в суміші вуглеводнів зі складом: пропан – 78 %, бутан та ізобутан – 12 %, суміш важких вуглеводнів – 5 %, вода та інше – 5 %.

При продуктивному режимі синтезу [7] можна виділити два характерних процеси – це пробій газовой

го середовища і самостійний газовий розряд в процесі синтезу ВНМ. Параметри цих процесів досі не досліджувались, їх опис відсутній.

Пробій здійснюється в момент часу, коли напруга в міжелектродному проміжку перевищує характерний потенціал підпалу розряду для даного газового середовища та обраної електродної системи. Розрядний струм в цей момент різко зростає й розряджає паразитну ємність вторинної обмотки підвищуючого трансформатора, в результаті чого напруга на каналі розряду різко падає, що у свою чергу викликає спад струму. За рахунок того, що електрична міцність розрядного проміжку частково відтворюється, а струм від перетворювача протягом часу одного імпульсу підвищує напругу на трансформаторі, таких коливань може бути декілька. На рис. 1, а цей процес можна спостерігати протягом першого періоду розрядних імпульсів (або декілька перших періодів). Як правило вже на другому періоді напруга на каналі розряду встановлюється біля стабілізованого значення, характерного для електричного розряду змінного струму, яке визначається тепловою дією струму та параметрами відводу тепла. Вже за кілька мілісекунд розряд має більш стаціонарну форму (див. рис. 1, б).

Для визначення напруги гарантованого пробою U_i для газової суміші проведено дослідження для різних довжин міжелектродного проміжку за атмосферним тиском. Потенціал підпалу (напруга гарантованого пробою) U_i і приведена напруженість електричного поля гарантованого пробою E_i/p відповідно до закону подібності [8] визначаються тільки відношенням pd (добуток тиску і відстані між електродами). За результатами вимірювання характеристик розряду, які наведено в [9], напруженість електричного поля гарантованого пробою E_i проміжку становить (у середньому) 2 кВ/мм, а питома робоча напруга синтезу нановуглецю E_s – 0,11 кВ/мм. За отриманими точками побудовано ділянки кривої гарантованого пробою для цієї суміші та робочої напруги в діапазоні режиму синтезу (див. рис. 2).

Аналіз питомих напруг показує, що різниця між напругою гарантованого пробою і робочою напругою синтезу відрізняється в середньому у 20 разів, що зумовлює вимоги до джерела живлення для електричного розряду у атмосфері газоподібних вуглеводнів в режимі продуктивного синтезу нановуглецю.

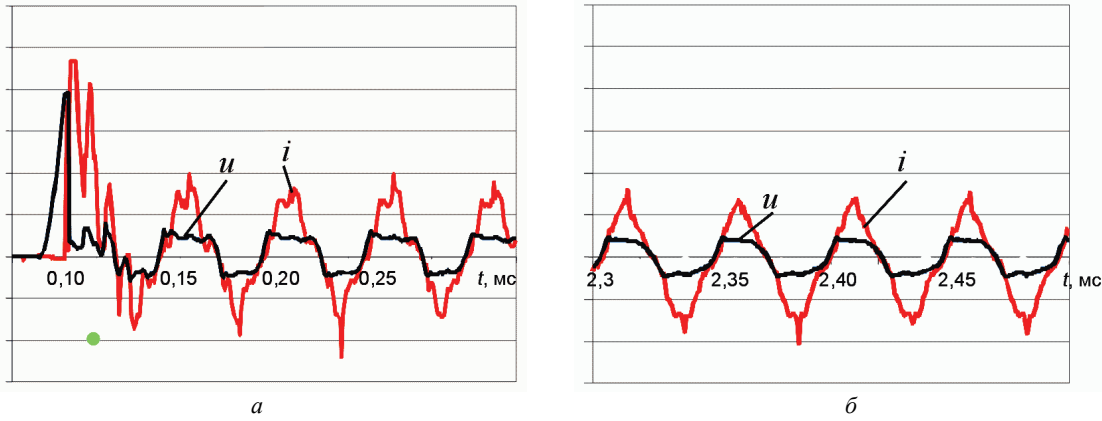


Рисунок 1 – Осцилограми розрядного струму

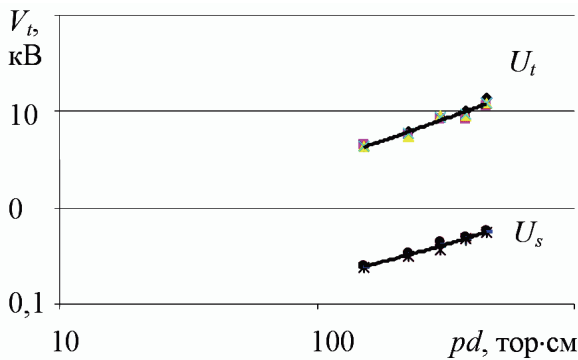


Рисунок 2 – Напруга гарантованого пробою U_t і напруга в режимі синтезу U_s

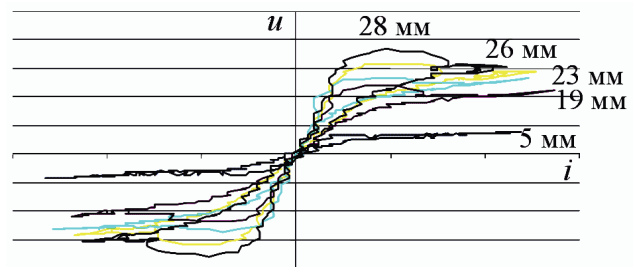


Рисунок 3 – Форми динамічних ВАХ в режимі синтезу нановуглецю

Напруга синтезу на каналі розряду практично лінійно залежить від його довжини і не залежить від розрядного струму в області потужностей, які відповідають режиму продуктивного синтезу із найменшими питомими витратами енергії на одиницю маси отриманого нановуглецю (до 200 кДж/г).

Для дослідження інших характеристик газового розряду в режимі синтезу проаналізовано отримані за стабілізованим значенням середньоквадратичного розрядного струму для різних довжин міжелектродного проміжку осцилограми і побудовані на їх основі динамічні вольтамперні характеристики (ВАХ). Порівняння ВАХ, наведених на рис. 3, дозволяє стверджувати, що між зростанням довжини міжелектродного проміжку, напруги та потужності існує зв'язок.

Аналіз динамічних ВАХ показує, що величини розрядного струму і напруги характерні для тліючого розряду. Однак відомо, що динамічна ВАХ термостатованої електричної дуги має лінійну форму (лінійну залежність між струмом і напругою) [10]. В умовах, коли енергія дуги розсіюється, а її температура менша за температуру термодинамічної рівноваги, динамічна ВАХ дуги є ломаною і має як мінімум дві ділянки - лінійну ділянку (лінійну залежність між струмом і напругою) і ділянку, на якій напруга не перевищує деякого значення незалежно від струму. Якщо потужність електричного розряду ще зменшити, то на ВАХ з'явиться ділянка з від'ємним динамічним опором. Розсіювання енергії дуги зумовлює такі форми ВАХ. Якщо не здійснюється відвід тепла від каналу розряду (в умовах термостатованого розряду), динамічна ВАХ

є лінійною.

Провівши аналогію з досліджуваним розрядом, навіть без визначення його характеру, можна стверджувати, що витрати теплової енергії на синтез нановуглецю є каналом гарантованого відводу енергії. Зайва енергія витрачається на розігрів газового середовища. Тобто продуктивний синтез можливий тільки в умовах двох типів ВАХ (лінійноломаної – рис. 3 – ВАХ для довжини міжелектродного проміжку 5 мм), і з ділянками від'ємного динамічного опору (інші ВАХ на рис. 3), тобто в умовах динамічної рівноваги, за якою більша частина теплової енергії відводиться на синтез нановуглецю, а менша - на розігрів газового середовища.

Імпульси струму і напруги на рис. 3 і відповідні їм динамічні ВАХ мають складну форму, яка залежить від співвідношення довжини каналу розряду і потужністю в ньому. Для отримання залежностей між технологічними параметрами процесу синтезу ВНМ і електричними характеристиками введено зручні для аналізу функціонали, декілька із яких є засобами формального опису форми ВАХ. Визначено показані на рис. 4 функціонали, що характерні для динамічних ВАХ в режимі синтезу нановуглецю: максимальне значення імпульсу напруги $U_{CH,max}$, напруга за максимальним значенням струму $U_{CH,Imax}$, максимальне значення струму $I_{CH,max}$. Крім того, для аналізу використано стандартні функціонали і характеристики: поточна напруга (миттєве значення) на каналі розряду $u_{CH}(t)$, середньоквадратична напруга

$$U_{CH_RMS} = \sqrt{\frac{1}{T} \int u_{CH}(t)^2 dt}, \quad \text{середня напруга}$$

$$U_{CH_AV} = \frac{1}{T} \int u_{CH}(t) dt, \quad \text{поточний розрядний струм}$$

(миттєве значення) $i_{CH}(t)$, середньоквадратичний струм $I_{CH_RMS} = \sqrt{\frac{1}{T} \int i_{CH}(t)^2 dt}$, середній струм

$$I_{CH_AV} = \frac{1}{T} \int i_{CH}(t) dt, \quad \text{середня вихідна потужність}$$

$$P_{AV_OUT} = \frac{1}{T} \int i_{CH}(t) \cdot u_{CH}(t) dt.$$

Як функціонали також використано визначені коефіцієнти форми імпульсів.

$$k_{U_f1} = \frac{U_{CH_RMS}}{U_{CH_AV}}, \quad (1)$$

$$k_{U_f2} = \frac{U_{I_max}}{U_{CH_RMS}}, \quad (2)$$

$$k_{U_A} = \frac{U_{max}}{U_{I_max}}, \quad (3)$$

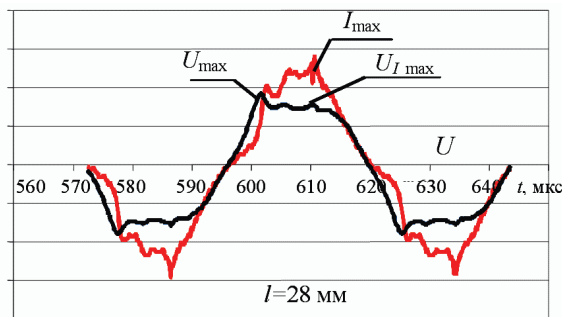
$$k_{I_f1} = \frac{I_{CH_RMS}}{I_{CH_AV}}, \quad (4)$$

$$k_{P_f1} = \frac{I_{CH_RMS} \cdot U_{CH_RMS}}{P_{AV}}. \quad (5)$$

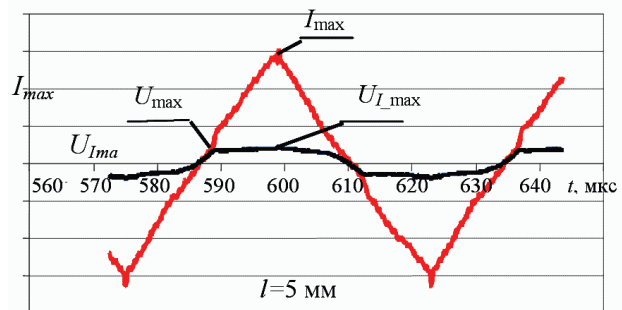
Проведено експерименти для визначення коефіцієнтів форми імпульсів для стабілізованого струму і різної довжини міжелектродного проміжку, та побудовано відповідні залежності в нормованому вигляді (рис. 5).

Аналіз характеристик показав, що форма імпульсів змінюється при зміні довжини міжелектродного проміжку (для порівняння див. рис. 4). При збільшенні довжини міжелектродного проміжку коефіцієнт форми K_{U_f2} (2) збільшується, тобто форма імпульсів від трапецеїдальної має тенденцію наближення до трикутної, тобто горизонтальна ділянка характеристики підіймається вгору. Коефіцієнт K_{U_f1} (1) має таку ж тенденцію, але є менш чутливим до збільшення довжини проміжку. Коефіцієнт амплітуди (3) також підвищується, що показує підвищення різниці між напругою пробою і напругою горизонтальної ділянки імпульсу напруги. Але ця різниця значно менша ніж така, яка виникає при іскровому пробі міжелектродного проміжку (див. рис. 1, а).

Залежності коефіцієнтів форми імпульсів струму, наведені на рис. 5, б, показують, що форма імпульсів також змінюється. За малою середньою вихідною потужністю (режим, наближений до короткого замикання розрядного проміжку) імпульс струму має майже трикутну форму, а при збільшенні довжини міжелектродного проміжку коефіцієнт форми показує тенденцію збільшення ввігнутих ділянок характеристики. При цьому коефіцієнт (4) змінюється незначно.

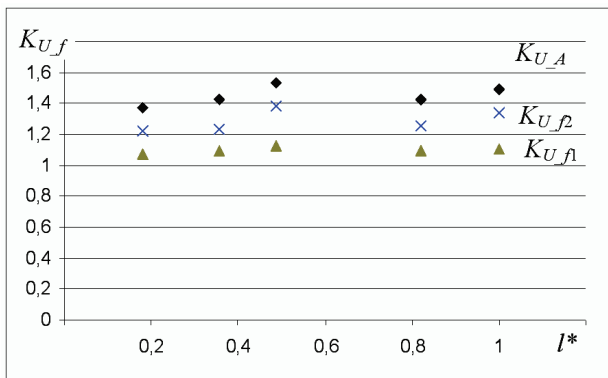


а

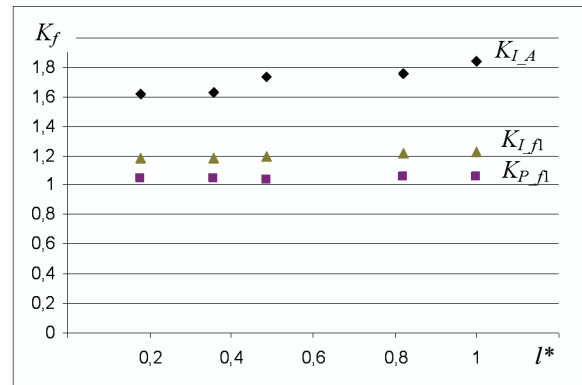


б

Рисунок 4 – Осцилограми для довжини міжелектродного проміжку 28 мм (а) і 5 мм (б)



а



б

Рисунок 5 – Залежності коефіцієнтів форми імпульсів напруги K_U (а) та форми імпульсів струму K_I й потужності K_P (б) від довжини міжелектродного проміжку l^*

Найбільш постійний характер має коефіцієнт форми потужності $K_{P, \lambda}$ (5) (див. рис. 5, б), що дозволяє стверджувати, що незалежно від довжини каналу розряду і форми імпульсів зберігаються однакові відношення між середнім значенням вихідної потужності та добутком середньоквадратичних значень струму і напруги. Стандартне відхилення цих величин не перевищує 0,017, тобто на них найменше впливають випадкові процеси, властиві електричному розряду зі змінним міжелектродним проміжком.

Цей результат дає можливість використовувати для аналізу одночасно заданий стабілізований середньоквадратичний струм і середню потужність. Відповідно до (5) потужність пропорційна напрузі на каналі розряду, яка в свою чергу визначається довжиною міжелектродного проміжку (див. рис. 2). Таким чином, повинна існувати лінійна залежність між потужністю й довжиною каналу розряду. Також цей результат дає можливість визначати середньоквадратичну напругу на каналі розряду без її вимірювань в разі відомої потужності.

На рис. 6 показано експериментально отриману для двох значень стабілізованого приведенного середньоквадратичного струму $I_{CH_RMS_SH}^*$ залежність приведеної середньої вихідної потужності $P_{AV_OUT}^*$ від приведеної довжини міжелектродного проміжку l^* , яка має майже лінійну форму з величиною достовірності апроксимації близької до 1. Це є підставою для визначення довжини міжелектродного проміжку за результатами вимірювання вихідної потужності в каналі розряду. За формою ВАХ вихідна потужність є активною.

Для порівняння на рис. 7 показано залежності середніх значень визначених вище функціоналів, що описують форми імпульсів напруги, в нормованому вигляді для приведенного середньоквадратичного струму $I_{CH_RMS_SH}^* = 0,48$.

Характер цих залежностей від довжини міжелектродного проміжку дещо відрізняється від лінійного, хоча їх також можна апроксимувати лінійною функцією але із меншим коефіцієнтом достовірності ніж для потужності. Тобто, використання середнього значення вихідної потужності для визначення довжини міжелектродного проміжку є найбільш доцільним, ніж використання функціоналів, що визначають форми імпульсів напруги, тому що воно є більш інформативним і точним.

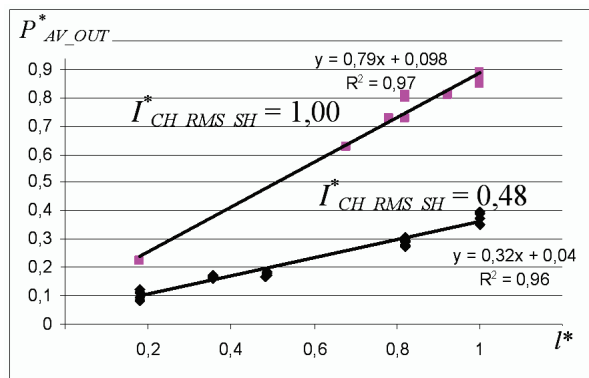


Рисунок 6 – Залежність вихідної потужності від довжини міжелектродного проміжку

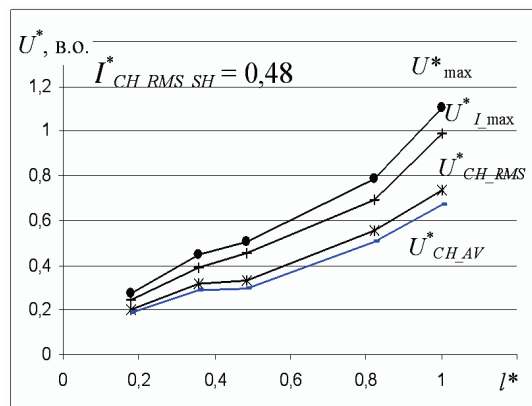


Рисунок 7 – Залежність характерних напруг від довжини міжелектродного проміжку

Висновки. Визначено електрофізичні особливості формування плазмового каналу у вуглецевмісному газі (суміші пропана - бутана). Показано, що напруга гарантованого пробою вуглецевмісної газової суміші відрізняється від робочої напруги синтезу у 20 разів.

Отримано характерні форми динамічних ВАХ електричного розряду, що відповідають випадку активного відводу від каналу розряду енергії, яка витрачається на синтез ВНМ, тобто випадку нерівноважної плазми.

Визначено коефіцієнти форми розрядних імпульсів, необхідних для аналізу залежностей електричних характеристик від довжини міжелектродного проміжку. Аналіз експериментально отриманих коефіцієнтів форми дозволив визначити найбільш стабільну характеристику для визначення довжини міжелектродного проміжку, якою є вихідна потужність.

Список літератури: 1. Чурилов Г.Н. Получение фуллеренов и нанотрубок в угольной плазменной струе килогерцового диапазона частот / Г.Н. Чурилов, А.Я. Корец, Я.Н. Татаренко // ЖТФ. – 1996. – Т. 66, вып. 1. – С. 191-194. 2. Shenqiang Zhao, Ruoyu Hong, Zhi Luo, Haifeng Lu, Biao Yan Carbon Nanostructures Production by AC Arc Discharge Plasma Process at Atmospheric Pressure // Hindawi Publishing Corporation. Journal of Nanomaterials. – Vol. 2011. – Article ID 346206. – 6 p. 3. Антипов В. Б. Получение нанотрубок из природного газа в плазме СВЧ-разряда / В. Б. Антипов, Ю. В. Медведев, С. А. Фирсов, Ю. И. Цыганок // Доклады ТУСУРа. – Декабрь 2011. – № 2 (24), часть 2. 4. Method of production of fluorinated carbon nanostructures. United States Patent N0: US 7,939,141 B2 Date of Patent: May 10, 2011. Edward Stephen Matthews, Bedfordshire (GB); Xiaoming Duan, Essex (GB); Richard Llewellyn Powell, Chester (GB). 5. Богуславський Л. З. Високовольтна установка для синтезу нановуглецю з onion-like структурою з системою керування електричними характеристиками газового розряду / Л. З. Богуславський, Д. В. Вінниченко, Н. С. Назарова // Вісник НТУ «ХПІ». – Х.: НТУ «ХПІ», 2015. – № 20 (1129). – С.11-23. 6. Вінниченко Д. В. Розробка принципів керування режимними параметрами електротехнічної системи для електророзрядного синтезу вуглецевих наноматеріалів / Д. В. Вінниченко, Н. С. Назарова // Вісник НТУ «ХПІ». – Х.: НТУ «ХПІ», 2015. – № 12 (1121). – С. 292-297. 7. Богуславський Л. З. Физические процессы синтеза аморфного нанотрубок высокочастотным электроразрядным методом из газообразных углеводородов / Л. З. Богуславский, Д. В. Вин-

ниченко, Н. С. Назарова, Л. Е. Овчинникова // Вісник НТУ «ХПІ». – Х.: НТУ «ХПІ», 2012. – № 52 (958). – С. 25-30. **8.** Райзер Ю. П. Физика газового разряда: Учеб. руководство / Ю. П. Райзер. – М.: Наука, 1987. – 592 с. **9.** Винниченко Д. В. Визначення оптимальних характеристик високовольтної електророзрядної системи для реалізації технології електроімпульсного синтезу нановуглецю / Д. В. Винниченко // Технічна електродинаміка. – 2014. – № 4. – С. 129-131. **10.** Свенчанский А. Д. Электрические промышленные печи. Ч.2. Дуговые печи : Учебное пособие для вузов / А. Д. Свенчанский, М. Я. Смеляков. – М.: Энергия, 1970. – 264 с.

Bibliography (transliterated): 1. Churilov, G.N., Korets, A. Ya., Tatarenko, Ya. N. Poluchenie fullerenov i nanotrub v ugolnoy plazmennoy strue kilogertsovogo diapazona chastot, ZhTF, 1996, 1(66), 191-194. **2.** Shenqiang Zhao, Ruoyu Hong, Zhi Luo, Haifeng Lu and Biao Yan. Carbon Nanostructures Production by AC Arc Discharge Plasma Process at Atmospheric Pressure. Hindawi Publishing Corporation Journal of Nanomaterials, Volume 2011, Article ID 346206, 6 pages. **3.** Antipov, V. B., Medvedev, Yu. V., Firsov, S. A., Tsyiganok, Yu. I. Poluchenie nanouglerodnykh struktur iz prirodnogo gaza v plazme SVCh-razryada. Doklady TUSURa, 2011, 2(24), chast 2. **4.** Method of production of fluorinated carbon nanostructures. United States Patent Patent No.: US 7,939,141 B2 Date of Pat-

ent: May 10, 2011. Edward Stephen Matthews, Bedfordshire (GB); Xiaoming Duan, Essex (GB); Richard Llewellyn Powell, Chester (GB). **5.** Bohuslavskiy, L. Z., Nazarova, N. S., Vinnychenko, D. V. Vysokovoltna ustanovka dlia syntezu nanovuhletsii z onion-like strukturoiu z systemoiu keruvannia elektrychnymy kharakterystykamy hazovoho rozriadu. Visnyk NTU «KhPI», 2015, 20 (1129), 11-23. **6.** Vinnychenko, D. V., Nazarova, N. S. Rozrobka pryntsyviv keruvannia rezhymnymy parametryamy elektrotekhnichnoi systemy dlia elektrorozriadnogo syntezu vuhletsevykh nanomaterialiv. Visnyk Natsionalnoo tekhnichnogo universytetu "KhPI". Kharkiv: NTU "KhPI", 2015, 12 (1121), 292-297. **7.** Boguslavskiy, L. Z., Vinnichenko, D. V., Nazarova, N. S., Ovchinnikova, L. E. Fizicheskie protsessy synteza amorfnoho nanougleroda vyisokochastotnym elektrorazryadnym metodom iz gazoobraznykh uglevodorodov. Visnyk NTU «HPI», 2012, 52 (958), 25-30. **8.** Rayzer, Yu. P. Fizika gazovogo razryada: Ucheb. rukovodstvo. Moscow: Nauka. 1987, 592. **9.** Vinnychenko, D.V. Vyznachennia optymalnykh kharakterystyk vysokovoltnoi elektrorozriadnoi systemy dlia realizatsii tekhnolohii elektroimpulsnogo syntezu nanovuhletsii. Tekhnichna elektrodynamika, 2014, 4, 129-131. **10.** Sвенчанский, А. Д., Смеляков, М. Я. Электрические промышленные печи. Ч.2. Дуговые печи. Учебное пособие для вузов. Moscow: Energiya, 1970. 264.

Надійшло (received) 05.02.2016

Відомості про авторів / Сведения об авторах / About the Authors

Богуславський Леонід Зиновійович – кандидат технічних наук, доцент, в.о. зав. наук. відд. Інститут імпульсних процесів і технологій (ІПТ) НАН України, м. Миколаїв; тел: (0512) 58-71-39; e-mail: dpes@iipt.com.ua.

Bohuslavskiy Leonid Zynoviyovych – Ph.D., Associate Professor, Acting Head. Science. give. Institute Pulse Processes and Technologies NAS of Ukraine (IPPT NASU), Mykolaiv; Tel: (0512) 58-71-39; e mail: dpes@iipt.com.ua.

Винниченко Дмитро Валерійович – Молодший науковий співробітник; Інститут імпульсних процесів і технологій (ІПТ) НАН України, e-mail: vdvvvs@inbox.ru.

Vinnichenko Dmitro Valerijovich – Junior scientific researcher; Institute Pulse Processes and Technologies NAS of Ukraine (IPPT NASU), Mykolaiv, e-mail: vdvvvs@inbox.ru.

Назарова Наталія Станіславівна – кандидат технічних наук, доцент, Інститут імпульсних процесів і технологій (ІПТ) НАН України, м. Миколаїв.

Nazarova Natalia Stanislavivna – Ph.D., Associate Professor, Institute Pulse Processes and Technologies NAS of Ukraine (IPPT NASU), Mykolaiv.

Адамчук Юрій Олегович – Магістр електротехніки, інженер, Інститут імпульсних процесів і технологій (ІПТ) НАН України, м. Миколаїв.

Adamchuk Yuriy Olegovich – Master of Electrical Engineering, engineer, Institute Pulse Processes and Technologies NAS of Ukraine (IPPT NASU), Mykolaiv.

Чушчак Сергій Володимирович – Інженер, Інститут імпульсних процесів і технологій (ІПТ) НАН України, м. Миколаїв.

Chushchak Serhiy Volodymyrovych – Engineer, Institute Pulse Processes and Technologies NAS of Ukraine (IPPT NASU), Mykolaiv.