

О ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ РОСТА НАНОЧАСТИЦ ПРИ КОНДЕНСАЦИИ УГЛЕРОДНОГО ПАРА

Вагнер Х.Г.¹, Емельянов А.В.², Еремин А.В.^{2*}

¹ГУ, Геттинген, Германия, ²ИТЭС ОИВТ РАН, Москва, Россия

*eremin@ihed.ras.ru

Проанализированы результаты многочисленных экспериментов по формированию углеродных наночастиц в процессах горения и пиролиза углеродосодержащих веществ за ударными волнами в широком диапазоне температур от 1200 до 3500 К. Показано, что расхождение в температурах максимального выхода частиц может быть приписано отличиям в эндотермике пиролиза различных молекул. При таком подходе удается показать, что максимальный выход частиц как в пламенах, так и за ударными волнами соответствует одной и той же реальной температуре 1600 К. Более того, температурная зависимость выхода частиц оказывается весьма подобной как в углеводородах, так и при пиролизе молекул, не содержащих водород. Этот вывод доказывает, что роль полиароматических соединений в росте конденсированных углеродных частиц не существенна на последних стадиях процесса, т.е. при размерах частиц более 1 нм. Иными словами, эта стадия роста частиц должна подчиняться закономерностям конденсации пересыщенного углеродного пара. Максимальный размер частиц, образующихся при 1600 К, составляет во всех исследованных системах 30–40 нм. Дальнейшее увеличение температуры приводит к уменьшению конечного размера частиц (рис. 1).

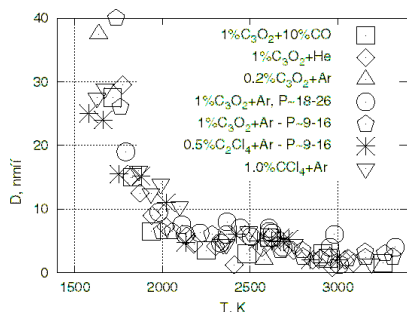


Рис. 1. Температурная зависимость конечного размера углеродных частиц при пиролизе различных веществ

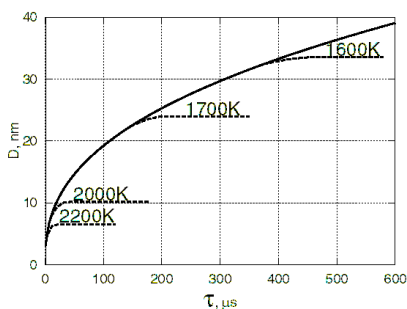


Рис. 2. Рост углеродных наночастиц при различных температурах

Анализ температурной зависимости характерного времени роста частиц также показал, что процесс может быть описан едиными закономерностями в различных исходных веществах. Таким образом, связав конечный размер частиц D с характерным временем его достижения τ , удается представить последнюю стадию роста углеродных наночастиц

обобщенным эмпирическим соотношением $D \sim r^{0.4}$ описывающим рост частиц при различных температурах до тех пор, пока не израсходуется существенная часть атомов углерода (рис. 2). При этом рост температуры проявляется во все более раннем расходе атомарного углерода, что в свою очередь определяется увеличением начальной концентрации растущих кластеров. Наблюдаемая закономерность (см. рис. 2) подтверждает рекомбинационный механизм конденсации $C_N + C \rightarrow C_{N+1}$ в отличие от коагуляционного механизма конденсации $C_N + C_M \rightarrow C_{N+M}$, описываемого уравнением Смолуховского $d[C_{N+M}] = k_{coag} [C_N][C_M]$. Действительно, при рекомбинационном механизме, число атомов в частице N должно расти как $dN/dt = k_r[C]$, где константа скорости рекомбинации $k_r \sim T^{-1/2}$ [1], и поскольку для сферических частиц $D \sim N^{1/3}$, наблюдаемое $D \sim r^{0.4}$ выглядит вполне разумно.

Работа выполнена при поддержке DFG и РФФИ.

1. Вагнер Х.Г., Власов П.А., Еремин А.В. и др. // Кин. Кат. 2001. V.42. №5. P.645.