

АППАРАТУРА И МЕТОДЫ ОПТИЧЕСКОЙ ДИАГНОСТИКИ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

УДК 537.525.99, 551.594.22

## Формирование окислов азота в лабораторном разряде, имитирующем голубые струи

Э.А. Соснин<sup>1, 2</sup>, В.С. Кузнецов<sup>1</sup>, В.А. Панарин<sup>1</sup>, В.С. Скакун<sup>1</sup>,  
В.Ф. Тарасенко<sup>1, 2</sup>, Г.А. Ивлев<sup>3</sup>, А.В. Козлов<sup>3\*</sup>

<sup>1</sup>Институт сильноточной электроники СО РАН  
634055, г. Томск, пр. Академический, 2/3

<sup>2</sup>Национальный исследовательский Томский государственный университет  
634050, г. Томск, пр. Ленина, 36

<sup>3</sup>Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН  
634055, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

Поступила в редакцию 31.08.2020 г.

С помощью апокампического разряда проведена лабораторная имитация процесса формирования голубых струй в средней атмосфере Земли. Созданная установка позволила сравнить концентрацию  $\text{NO}_x$  в режиме с апокампом и без него. Полученные в условиях лабораторного эксперимента данные свидетельствуют о том, что голубые струи не оказывают значительного влияния на концентрацию окислов азота.

**Ключевые слова:** апокампический разряд, голубая струя, окислы азота, транзиентные световые явления; apokamp discharge, blue jet, nitrogen oxides, transient light phenomena.

### Введение

Контроль состояния атмосферы предполагает определение содержания окислов азота. В настоящее время установлено, что окислы азота ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ) образуются при разрушении стратосферного озона [1]. В нижней атмосфере их источниками являются молнии и техногенные объекты. Наблюдения и модельные оценки показывают, что в северных средних широтах молнии производят 20–30% тропосферного  $\text{NO}_x$  (для сравнения с 5–35% тропосферного  $\text{NO}_x$  поступает от самолетов), а в верхней тропической тропосфере молнии — основной источник  $\text{NO}_x$  [2].

Источники окислов азота в средней атмосфере — отдельный вопрос. В [3] были представлены экспериментальные и расчетные данные в поддержку гипотезы о том, что голубые струи, красные спрайты и другие транзиентные световые явления (или сокращенно — транзиенты, в англ. научной литературе — *transient luminous events*) могут быть источником  $\text{NO}_x$  в средней атмосфере, оказывая локальное влияние на концентрацию окислов. Далее мы ограничимся рассмотрением только голубых струй.

В природе появлению голубых струй над местами турбулентности грозовых облаков предшествует интенсивная электрическая деятельность, которая должна вносить основной вклад в химические превращения. А голубая струя — единичное событие, и ее вклад в образование окислов азота не должен быть велик. Проверить это можно путем имитации разрядов в лабораторных условиях. Такие эксперименты могут дать дополнительную информацию, поскольку традиционно применяемое пассивное дистанционное зондирование атмосферы имеет низкую чувствительность при определении содержания  $\text{NO}_x$  в атмосфере в случае голубых струй и красных спрайтов.

Поэтому в [4] было предложено изучать химию транзиентов с помощью измерения остаточных газов, образующихся в условиях лабораторного стримерного разряда между электродами в системе «острие — плоскость». На электроды подавали импульсы напряжения с амплитудой до 30 кВ при давлении воздуха 375 торр и ниже. Работа [4] подверглась критике, поскольку лабораторная имитация атмосферных разрядов требует осторожности. В частности, в [5] отмечалось, что сравнивать лабораторные разряды и транзиенты только на основании сходства цвета недостаточно. Кроме того, питание в экспериментах [4] не позволяло избежать вторичных стримеров, стартующих с острейшего электрода, и газового нагрева. Несмотря на критику, авторы признавали, что, хотя невозможно точно воспроизвести атмосферные условия в лабораторных экспериментах, такая имитация может быть полезна

\* Эдуард Анатольевич Соснин (Badik@loi.hcei.tsc.ru); Владимир Сергеевич Кузнецов (Robert\_smith\_93@mail.ru); Виктор Александрович Панарин (Panarin@yandex.ru); Виктор Семенович Скакун (Skakun54@bk.ru); Виктор Федотович Тарасенко (VFT@loi.hcei.tsc.ru); Георгий Алексеевич Ивлев (ivlev@iao.ru); Артем Владимирович Козлов (artem@iao.ru).

для изучения различных аспектов развития транзиентов. Эту точку зрения подтверждают наши исследования [6–9], в которых лабораторным аналогом голубых струй служит апокамп – светящаяся структура, возникающая на изгибе канала импульсно-периодического разряда.

В настоящей работе мы также используем это явление. Выбор обусловлен тем, что между апокампом и транзиентами средней атмосферы (голубыми струями и стартерами) существует шесть признаков сходства [9]. Цель работы – определение влияния апокампического разряда (как лабораторного имитатора голубых струй) на формирование окислов азота.

## Экспериментальная установка и методики исследований

Апокампы формировались в цилиндрической кварцевой колбе 1 внутренним диаметром 6,2 и длиной 60 см в установке, показанной на рис. 1. В колбе размещали стальные электроды 2 и 3 (межэлектродное расстояние 10 мм) одинаковой формы: с углом вершины 15° и радиусом кривизны острия 70 мкм. Давление воздуха в колбе 1 в ходе экспериментов можно было регулировать в диапазоне от 760 до 0,1 торр, откачивая или напуская воздух. Электрод 3 имел емкостную развязку ( $C = 5$  пФ) с землей. На электрод 2 подавали импульсы напряжения положительной полярности от источника 5. Источник обеспечивал амплитуды импульсов  $U_p < 15$  кВ с частотами следования  $3 < f < 58$  кГц и длительностью  $\tau = 1,5$  мкс. Апокампический разряд зажигался в воздухе атмосферного давления, относительная влажность составляла 65%, температура –  $32 \pm 5$  °С.

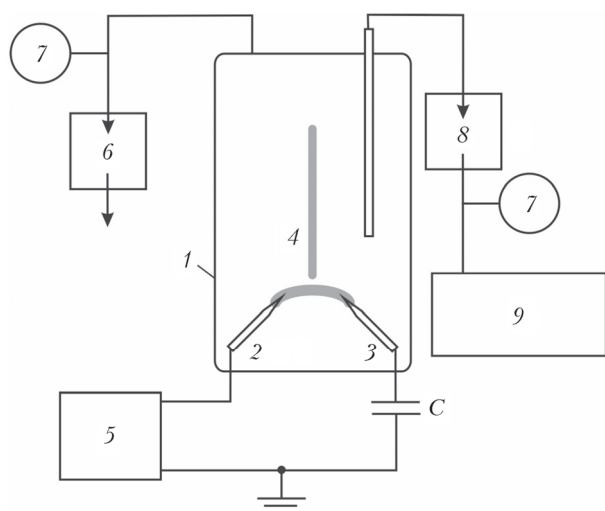


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки: 1 – цилиндрическая кварцевая колба; 2 – высоковольтный электрод; 3 – электрод, имеющий емкостную развязку с землей; 4 – апокамп; 5 – генератор импульсов напряжения положительной полярности; 6 – насос для откачки воздуха; 7 – манометры; 8 – насос для нагнетания воздуха; 9 – газоанализатор

Эксперимент включал в себя: 1) откачку воздуха в колбе 1 до величины 120 торр, что приблизительно отвечает высотам, на которых в природе образуются голубые струи; 2) зажигание разряда между электродами на фиксированный промежуток времени  $\Delta t$ , необходимый для образования окислов азота; 3) напуск воздуха в колбу 1; 4) забор полученной смеси насосом 8 с подачей его в газоанализатор 9 по тефлоновым трубкам диаметром 5 мм.

Для регистрации окислов азота применяли газоанализатор 9 Thermo Scientific, модель 42i (InterTech Corp.), предназначенный для выявления NO, NO<sub>2</sub>. Его можно использовать в режиме последовательного измерения концентраций NO, NO<sub>x</sub>. При измерении NO проба анализируемой газовой смеси смешивается с озоном в реакционной камере, где происходит реакция с появлением люминесценции, интенсивность которой прямо пропорциональна концентрации NO. При измерении NO<sub>x</sub> проба проходит через молибденовый конвертер, где весь имеющийся в пробе NO<sub>2</sub> преобразуется в NO, далее смесь поступает в реакционную камеру и измеряется NO<sub>x</sub> (NO + NO<sub>2</sub>). Значение NO<sub>2</sub> определяется прибором как разность между измеренными концентрациями NO<sub>x</sub> и NO. Во время проведения эксперимента промежуток времени  $\Delta t$  выбирали таким, чтобы концентрация NO<sub>x</sub> не выходила на насыщение при заданных параметрах импульсов напряжения от источника 5.

## Результаты и обсуждение

В экспериментах было реализовано два режима горения разряда. В первом режиме продукты распада плазмы накапливались после зажигания обычного импульсно-периодического разряда между электродами при пониженной величине пикового напряжения ( $U_p$ ). Во втором режиме за счет некоторого увеличения  $U_p$  зажигали разряд, над каналом которого формировался апокамп (4 на рис. 1) длиной 5–8 см. Рис. 2 позволяет сравнить процесс формирования NO<sub>x</sub> в обоих режимах.

До начала измерения концентрации окислов азота в колбе газоанализатор забирает из лабораторного помещения воздушную смесь, которой разбавляется проба из колбы. Поэтому на обоих графиках на рис. 2 есть промежуток времени, когда в воздушном тракте подачи пробы к газоанализатору одновременно присутствует как воздух из лабораторного помещения, так и анализируемая проба. За счет усреднения с достаточно большой постоянной времени – порядка 20 с – виден скачкообразный рост концентрации NO до 600 ppb в анализируемой разбавленной воздухом пробе. Как было отмечено ранее, мы использовали в эксперименте режим одновременного измерения концентраций NO, NO<sub>x</sub>, и при проведении измерений этих окислов и одновременного уменьшении их концентрации концентрация NO<sub>2</sub>, определяемая в период резкого падения значений NO, некорректна. Тем не менее видно, что в обоих режимах образуются и NO, и NO<sub>2</sub>, а преобладает NO.

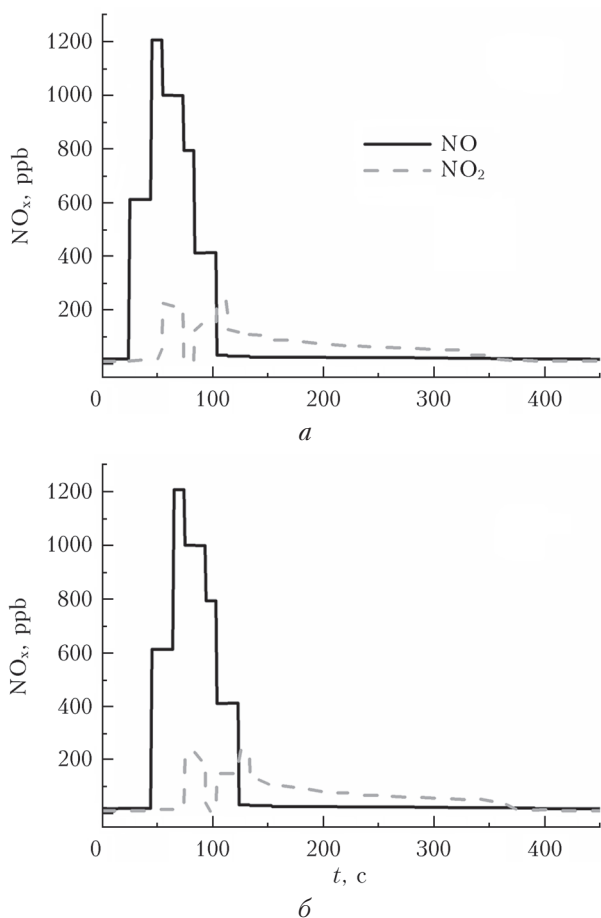


Рис. 2. Измерение содержания окислов азота,  $p = 120$  торр,  $f = 26$  кГц,  $U_p = 5,8$  (а) и  $7,1$  кВ (б)

Его концентрация достигает 1200 ppb (или 7320 ppb, если учесть процедуру измерений, связанную с разбавлением полученной смеси воздухом до атмосферного давления), что в  $\sim 6$  раз больше концентрации  $\text{NO}_2$ . Это косвенно свидетельствует в пользу того, что импульсный разряд также является источником озона, поскольку диоксид азота образуется преимущественно в реакциях  $\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}_2$ , которые называют «отравление разряда» [10].

Вклад трехчастичной реакции  $\text{O} + \text{NO} + \text{M} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{M}$  ( $\text{M}$  – любая частица в газе) при  $p = 120$  торр пренебрежимо мал. В условиях эксперимента термохимический канал образования окислов азота почти не работает, и они образуются за счет каталитической рекомбинации атомов кислорода и азота, а также реакций с участием электронов и возбужденных частиц [11].

Примечательно, что профили концентрации  $\text{NO}_x$  в обоих режимах – с апокампом и без него – почти идентичны. Это значит, что сам апокамп непосредственно не является источником окислов азота, они формируются высоковольтным каналом, от которого он стартует.

Лабораторной имитацией описанных во введении процессов формирования голубых струй в нашем эксперименте служит зажигание апокампического разряда. Роль внутриоблачных разрядов иг-

рает импульсный разряд между электродами 2 и 3 (см. рис. 1), причем разряд имеет положительный потенциал относительно земли, как верхняя часть облака. Окружающее пространство является аналогом отрицательно заряженной зоны, расположенной над куполом облака. То, что в обоих разрядных режимах – с апокампом и без него – были получены примерно одинаковые концентрации окислов азота, подтверждает тезис о том, что апокамп (и голубые струи в природе) не вносит существенного вклада в формирование  $\text{NO}_x$ .

В дальнейшем можно продолжить описанные эксперименты, например повышая величину  $U_p$ , масштабируя апокампический разряд до нескольких метров и одновременно снижая частоту следования импульсов. Кроме того, можно варьировать состав газа в колбе. Это позволит лучше понять справедливость наших выводов для других лабораторных условий.

## Заключение

Низкая чувствительность существующих методов дистанционного зондирования и сравнительная редкость возникновения голубых струй в атмосфере Земли затрудняют оценку содержания  $\text{NO}_x$  в атмосфере. В настоящей работе описана установка для лабораторной имитации процесса формирования окислов азота с помощью апокампического разряда. Показано, что производительность по окислам азота двух режимов горения разряда – с апокампом и без него – примерно одинакова. В обоих случаях при давлении воздуха 120 торр получены близкие значения  $\text{NO}$  и  $\text{NO}_2$ , составляющие 7320 и 1220 ppb соответственно. Эти данные свидетельствуют о том, что голубые струи не оказывают значительного влияния на концентрацию окислов азота, а основной вклад в их образование вносит внутриоблачный разряд, инициирующий голубую струю.

Работа выполнена в рамках госзаданий ИСЭ СО РАН (№ 13.1.4) и ИОА СО РАН II.10.3.2 «Комплексное исследование радиационно-значимых характеристик атмосферы Сибири и Российской Арктики в период современных климатических изменений» (№ АААА-А17-117021310142-5), а также при финансовой поддержке РФФИ (грант № 19-32-90023).

1. Cohen R.C., Murphy J.G. Photochemistry of  $\text{NO}_2$  in Earth's stratosphere: Constraints from observations // Chem. Rev. 2003. V. 103, N 12. P. 4985–4998.
2. Jourdain L., Hauglustaine D.A. The global distribution of lightning  $\text{NO}_x$  simulated on-line in a general circulation model // Phys. Chem. Earth Part C. 2001. V. 26, N 8. P. 585–591.
3. Neubert T., Rycroft M., Farges T., Blanc E., Charrion O., Arnone E., Odzimek A., Arnold N., Enell C.-F., Turunen E., Bosinger T., Mika A., Haldoupis C., Steiner R.J., van der Velde O., Soula S., Berg P., Boberg F., Thejll P., Christiansen B., Ignaccolo M., Fullekrug M., Verronen P.T., Montanya J., Crosby N. Recent results from studies of electric discharges in the mesosphere // Surv. Geophys. 2008. V. 29. P. 71–137.

4. *Peterson H., Bailey M., Hallett J., Beasley W.* NO<sub>x</sub> production in laboratory discharges simulating blue jets and red sprites // *J. Geophys. Res.* 2009. V. 114, N A00E07.
5. *Nijdam S., van Veldhuizen E.M., Ebert U.* NO<sub>x</sub> production in laboratory discharges simulating blue jets and red sprites // *J. Geophys. Res.* 2010. V. 115, N A12305.
6. *Соснин Э.А., Найдис Г.В., Тарасенко В.Ф., Скакун В.С., Панарин В.А., Бабаева Н.Ю.* О физической природе апокампического разряда // *ЖЭТФ.* 2017. Т. 152, № 5(11). С. 1081–1087.
7. *Соснин Э.А., Гольцова П.А., Панарин В.А., Скакун В.С., Тарасенко В.Ф., Диденко М.В.* Формирование окислов азота в источнике плазмы на основе апокампа // *Изв. вузов. Физ.* 2017. Т. 60, № 4. С. 126–130.
8. *Соснин Э.А., Кузнецов В.С., Панарин В.А., Скакун В.С., Тарасенко В.Ф.* Лабораторное моделирование влияния вулканического вещества на формирование транзиентных явлений вблизи границы средней и нижней атмосферы // *Оптика атмосф. и океана.* 2020. Т. 33, № 3. С. 227–231; *Sosnin E.A., Kuznetsov V.S., Panarin V.A., Skakun V.S., Tarasenko V.F.* Laboratory simulation of the effect of volcanic material on the formation of transient phenomena near the boundary between the middle and lower atmosphere // *Atmos. Ocean. Opt.* 2020. V. 33, N 4. P. 419–423.
9. *Соснин Э.А., Бабаева Н.Ю., Козырев А.В., Кожевников В.Ю., Найдис Г.В., Панарин В.А., Скакун В.С., Тарасенко В.Ф.* Моделирование транзиентных световых явлений средней атмосферы Земли с помощью апокампического разряда // *Успехи физ. наук.* 2020. DOI: 10.3367/UFNr.2020.03.038735 (в печати).
10. *Winkler H., Notholt J.* A model study of the plasma chemistry of stratospheric Blue Jets // *J. Atmos. Sol.-Terr. Phys.* 2015. V. 122. P. 75–85.
11. *Eliasson B., Kogelschatz U.* Modeling and applications of silent discharge plasmas // *IEEE Trans. Plasma Sci.* 1991. V. 19, N 2. P. 309–323.

*E.A. Sosnin, V.S. Kuznetsov, V.A. Panarin, V.S. Skakun, V.F. Tarasenko, G.A. Ivlev, A.V. Kozlov.*  
**Formation of nitrogen oxides in a laboratory discharge simulating blue jets.**

Using of apokamp discharge carried out on a laboratory simulation of the process of formation of blue jets in the Middle atmosphere of the Earth. The developed setup allowed to compare the NO<sub>x</sub> concentration in the apokamp discharge mode and without it. In both cases, at an air pressure of 120 torr, close values of NO and NO<sub>2</sub> were obtained, amounting to 7320 and 1220 ppb, respectively. The data obtained in a laboratory experiment indicate that blue jets do not significantly affect the concentration of nitrogen oxides.