

RELAZIONE SCIENTIFICA SULL'ATTIVITÀ SVOLTA

PROGRAMMA SHORT-TERM-MOBILITY 2011

Studioso: Stefano di Stasio – Istituto Motori CNR

Visita presso: Combustion Physics Division / Direttore: Prof. Marcus Alden

Studioso corrispondente Svedese: Prof. Frederik Ossler

Periodo della visita: dal 7 al 28 Giugno 2011

Evidenza di strutture grafite sub-nanometriche in fiamme di idrocarburi per mezzo di tecniche SAXS e WAXS di radiazione di Sincrotrone

Lo scopo dell'attività STM 2011 da parte del proponente/fruttore Italiano è stato di continuare l'attività di collaborazione iniziata presso i laboratori ESRF/Grenoble con lo studioso ospitante Prof. Frederik Ossler nel corso nel 2010.

Il proponente è utente dei laboratori ESRF dal 2005 e ha svolto numerosi esperimenti sul tema della formazione di nanostrutture di carbonio in fiamma, sia in autonomia [1,2] sia in collaborazione con altri gruppi di ricerca fra cui l'Istituto di Fisica dell'Università di Rennes I [3-9].

Nel corso del 2010 è stato svolto l'esperimento # MA 956 il cui proponente principale è il prof. Frederik Ossler dell'Università di Lund. L'obiettivo è stato lo studio in-situ della formazione di strutture di carbonio in una configurazione di fiamma premiscelata etilene-aria a stagnazione.

Lo scopo di questa particolare configurazione costituita da una fiamma premiscelata che viene ancorata a un piatto di stagnazione refrigerato ad acqua, è quello di consentire il deposito del materiale carbonioso sulla parete del piatto. Infatti le strutture di carbonio generate in fiamma di dimensioni più piccole (meno di 5 nm) hanno una cross section di scattering troppo piccola rispetto a quelle più grandi. La sezione di scattering dipende dalla sesta potenza della dimensione dello scatteratore. Perciò il segnale proveniente dalle particelle per es. di 20 nm è a parità di configurazione sperimentale circa 10 milioni di volte più intenso rispetto a quello originato da particelle di 2 nm. Il contributo SAXS di queste ultime risulta perciò sommerso dal rumore di fondo. Come sarà descritto in dettaglio nel seguito della relazione, nella configurazione dell'esperimento # MA 956 è stato possibile aumentare localmente la concentrazione delle particelle più piccole che si vanno formando nelle "valli" dei depositi accumulati sulla piastra che risultano inaccessibili alle particelle e agli aggregati di maggiori dimensioni.

Per la prima volta è stata concepita e realizzata una configurazione sperimentale in grado di fornire misure di scattering di piccolo angolo (SAXS) e, contemporaneamente, di tipo wide angle (WAXS) utilizzando uno schema di generazione di strutture di carbonio messo a punto dal partner svedese [10]. L'abbinamento delle due tecniche consiste di ottenere informazioni sia sulle dimensioni, la concentrazione e le proprietà di scattering di superficie, tramite il SAXS, sia circa le caratteristiche di ordinamento strutturale cristallografico, attraverso il WAXS.

Il carbonio è un materiale che è stato negli ultimi quindi anni riscoperto attraverso la sintesi di nanostrutture. Nanotubi, fullereni, grafene, sono solo esempi delle molteplici proprietà di cui godono le strutture di carbonio a nanoscala.

Il premio Nobel della Fisica per il 2010 è stato conferito agli studiosi Andre Geim e Konstantin Novoselov per il loro contributo nel settore degli switch molecolari basati sul materiale bidimensionale costituito dalla grafene.

Recentemente sono state scoperte applicazioni del grafene nel settore biosensing per applicazioni di monitoraggio di patologie e di sicurezza ambientale.

La configurazione di misura, descritta in dettaglio altrove [10], è riportata in Fig. 1 così come è stata impiegata negli esperimenti a ESRF ID-02. Consiste in un bruciatore a setto poroso (diametro 20 mm) che genera una fiamma parzialmente premiscelata etilene-aria. Il fascio di raggi X ha una sezione di 200×200 micron, il flusso è di 10^{13} fotoni/s e l'energia è 12.46 keV ($\lambda=0.995$ Å) e 14 keV ($\lambda=0.886$ Å), a seconda dell'esperimento. La fiamma viene intercettata da una piastra refrigerata da acqua corrente, che fluisce in due dotte ricavate all'interno della piastra. Il diametro utile del setto poroso del bruciatore è 20 mm. La miscela di etilene e aria viene inviata al bruciatore con un flusso totale costante pari a $5 \text{ cm}^3/\text{s}$ per una velocità di efflusso di gas freddo alla bocca del bruciatore pari a 1.6 cm/s. La fuliggine prodotta in fiamma si deposita per termoforesi sulla parete inferiore della piastra. Il flusso di gas di fiamma viene intercettato dalla piastra e crea un campo di moto stagnante con la formazione di vortici. Il fascio di raggi X è

indirizzato nello spazio fra la bocca del bruciatore e la piastra a una distanza da quest'ultima variabile, per diverse configurazioni sperimentali fra 1 e 2 mm. Inizialmente il segnale SAXS relativo alle strutture più piccole di 5 nm è immerso nel rumore di background perché le strutture di fuliggine generate in fiamma di dimensioni maggiori generano un segnale di scattering che oscura quello delle strutture più piccole. Come sopra accennato, infatti, la cross-section di scattering, a parità di lunghezza d'onda, dipende dalla sesta potenza della dimensione dello scatteratore. Al crescere dello spessore del deposito, da un certo tempo in poi il fascio X intercetta lo strato di fuliggine depositato sulla superficie della piastra. Su una scala dell'ordine del nanometro questo significa che l'interazione con il volume di misura sarà relativo a una superficie irregolare con monti e valli. Le particelle e gli aggregati di maggiori dimensioni vengono intrappolati in questa superficie e pertanto localmente la loro concentrazione rimarrà costante. Nelle "valli" della superficie, viceversa, aumenterà la concentrazione delle particelle di minori dimensioni finché sarà generato un segnale SAXS utile che emerge dal rumore di fondo in corrispondenza dei valori più elevati del momento q . Normalmente lo spettro della intensità $I(q)$ del segnale SAXS dipende dalla distanza fra campione e rivelatore $d(s-d)$. Al crescere della distanza, a parità di dimensioni del rivelatore, l'angolo solido di scattering θ diventa più piccolo e dunque lo spettro delle $q = (4\pi/\lambda) \sin(\theta/2)$ si estende verso valori minori di q . Per lo studio delle particelle più piccole è dunque necessario scegliere delle configurazioni di misura con $d(s-d)$ più piccole. Negli esperimenti effettuati la distanza per la rivelazione delle particelle più grandi e degli aggregati (>20 nm) è stata scelta $d(s-d)=10$ m mentre quella per rivelare le particelle più piccole (<10 nm) è stata $d(s-d)=1.2$ m. Il rivelatore WAXS è stato posizionato a 11 cm dalla sezione di misura in modo da formare un angolo di 31.9° rispetto alla direzione del fascio X. La Fig. 1 a destra mostra il set-up in funzione nel corso delle misure.

La temperatura è stata monitorata durante gli esperimenti per mezzo di termocoppie disposte a diverse altezze sul bruciatore. In Fig. 2 vengono riportate le posizioni di misura per la giunzione delle tre termocoppie adoperate. T_b , T_m , T_p rappresentano la temperatura all'uscita del bruciatore, sulla faccia inferiore della piastra di stagnazione e ad un'altezza pari alla metà della distanza bruciatore-piastra, rispettivamente. Prima di ogni nuovo esperimento la piastra viene ripulita dal deposito di fuliggine accumulato. Nella Fig. 2 a destra vengono riportate le tre temperature nel corso di un esperimento relativo a una distanza fra campione e rivelatore $d(s-d)=10$ m.

La Fig. 3 riporta un esempio delle misure di intensità SAXS (a sinistra) e WAXS (a destra) relative alla configurazione $d(s-d)=1.2$ m, flusso di etilene puro $\Phi_{C_2H_4} = 5$ cm³/s, $E=14$ keV, $\lambda=0.886$ Å. La configurazione geometrica è: distanza fra X-beam e bocca del bruciatore = 13.5 mm, coordinata radiale rispetto all'asse del bruciatore $r = 0$, distanza fra X-beam e parete inferiore della piastra di deposizione = 2.0 mm.

L'elaborazione dei dati SAXS viene di solito effettuata con software disponibili in rete (Argonne, Daisy). Nel corso della visita lo studioso Italiano ha utilizzato il software IRENA rilasciato da Ian Ilwsky e Greg Boucage. Si tratta di un software elaborato in una macro utilizzata dal software Igor Pro 6.

Il software consente, per un assegnato set di dati sperimentali di ottenere informazioni circa le principali grandezze di rilievo nella fattispecie raggio di girazione, concentrazione, coefficiente di Porod e invarianti di Porod.

È concepito secondo uno schema gerarchico nel quale il fit dei dati sperimentali è realizzato partendo dal livello di scatteratori di dimensioni inferiori e procedendo dal livello inferiore i a quello $i+1$ relativo agli scatteratori in ordine di dimensioni.

Il concetto di base [11-13] è di ritenere la curva di scattering la sovrapposizione in regioni adiacenti di valori del vettore momento di scattering q come giustapposizione di regimi di Guinier e Porod (livello i), poi di livelli Guinier e Porod (livello $i+1$) e così via per dimensioni crescenti.

Dallo stesso software è possibile risalire a una serie di informazioni circa le funzioni di distribuzioni di dimensioni che meglio approssimano la curva sperimentale. Il vettore intensità di scattering infatti è la trasformata di Fourier della autocorrelazione di densità di massa dello scatteratore. Questa funzione, a sua volta, è collegata alla pair-distribution function cioè alla funzione di autocorrelazione delle distanze delle coppie di punti nella struttura dello scatteratore.

In Fig. 4 viene riportato un esempio di elaborazione con la macro IRENA di un set di misure sperimentali SAXS relativo alla configurazione a $t=1899$ s con $d(s-d)=1.2$ m, file #370.

Il fit in questione è stato realizzato partendo dal livello delle q più grandi, attorno a $q \sim 0.2$ Å⁻¹ = 0.02 nm che corrisponde alle particelle di minori dimensioni. Per il livello 1, ovvero nel sub-set delle q individuate (vedi freccia della prima casella di testo), vengono dunque modellati i dati introducendo un fit in regime di Guinier (q più basse) e uno in regime di Porod (q più alte). Si ottiene: $Rg_1=14.99$ Å, $G_1=0.03071$, $P_1=3.6438$, $B_1=1.303 \times 10^{-5}$. La prima costante rappresenta il raggio di girazione delle particelle al livello 1, la seconda è legata alla concentrazione delle particelle, la terza è il coefficiente di Porod nel regime di scattering di power-law, l'ultima rappresenta un'informazione sull'invariante di Porod ovvero sul numero totale delle particelle relative alle dimensioni in questione. Analogamente al livello delle q immediatamente inferiori, ($q \sim 0.08$ Å⁻¹ = 0.008 nm), ovvero il livello 2, si ottengono informazioni circa particelle con raggio di girazione $Rg_2=30.867$ Å e al livello 3 di circa $Rg_3=74.557$ Å. È importante precisare quanto segue: il raggio di girazione è relativo a una distribuzione di dimensioni di particelle. Così nell'esempio riportato si attende che ci saranno tre modi (valori modali cioè con un massimo della densità di probabilità) della distribuzione di dimensioni

delle particelle. Se ciascun modo è distribuito secondo una distribuzione log-normale è possibile dimostrare che R_g corrisponde all'incirca alla dimensione media delle particelle se le particelle sono sferiche e non aggregate [XX] (Beaucage, 2004). Viceversa nel caso di aggregati di particelle di dimensioni più piccole, così come si verifica per gli aggregati frattali composti di sfere primarie, il diametro della sfera di minor raggio che include l'aggregato è pari a circa 1.4 R_g . Si ricorda che per una sfera di diametro d , cioè in ipotesi di assenza di dispersione di dimensioni è $d=2.86 R_g$ essendo $r = d/2 = \sqrt{5/3} R_g$. La bontà del fit (curva in rosso in Fig. 4) relativa ai dati sperimentali SAXS (curva in nero) è misurata dalla scala dei residui standard riportata a destra della elaborazione. Infine le costanti sono determinate tutte con un'accuratezza a più e meno σ dove σ è la deviazione standard dei dati di fit rispetto ai dati sperimentali, anche questa riportata nelle label di elaborazione. Per es. i valori delle costanti determinate comprensive l'accuratezza di fit del livello 3 è: $R_{g3}=74.557 \pm 9.3232 \text{ \AA}$, $G_3=18.501 \pm 5.7798$, $P_3=4 \pm 0$, $B_3=6.3095 \times 10^{-6} \pm 2.1125 \times 10^{-6}$. Nello stesso fit è indicato il valore dell'Invariante di Porod che è 9.8799×10^{19} e il rapporto superficie-volume delle particelle $2002.3 \text{ m}^2/\text{cm}^3$, che è calcolabile solo quando l'esponente di Porod è 4 come in questo caso. Proprio da quest'ultimo esempio di dato numerico, è possibile rendersi conto che la superficie specifica di queste particelle è enorme. Un solo centimetro cubo, corrispondente a circa 2 grammi di queste particelle carboniose [2] è caratterizzato da una superficie di oltre 2000 metri quadri, quanto circa metà di un campo di calcio ($90 \times 45 \text{ m}^2$). Sullo spunto di questa precisazione si comprende quali possano essere le applicazioni di queste particelle tutte le volte che nei processi chimico-fisici è fondamentale l'area della superficie di interazione (adsorbimento, catalisi).

La Fig. 5 riporta per la stessa configurazione di Fig. 4, $d(s-d)=1.2 \text{ m}$, $d(b-p)=15.5 \text{ mm}$, $d(X-p)=2.0 \text{ mm}$, $E=14 \text{ keV}$, $\lambda=0.886 \text{ \AA}$, flusso di etilene puro $\Phi_{C_2H_4} = 5 \text{ cm}^3/\text{s}$, l'analisi dei risultati delle elaborazioni al livello di fit 1 (particelle più piccole) su tutti i run dell'esperimento. Il tempo riportato nei grafici di 1750 s rappresenta il tempo in cui si cominciano a osservare le prime strutture grafittiche sui dati WAXS con la presenza dei picchi a 1.5 e 2.75 \AA^{-1} . In Fig. 5 sono riportate le barre di errore a $\pm\sigma$ secondo quanto ricavato dalla procedura di fit. L'errore di determinazione del raggio di girazione R_{g1} è di circa il 29%, quello delle relative concentrazioni N_1 di circa il 100%. Questi errori di fit rappresentano la varianza dei dati sperimentali rispetto a quelli di fit e non alterano le conclusioni sugli andamenti delle grandezze medie misurate. In questo caso si vede che il raggio R_{g1} decresce in corrispondenza della transizione fra le condizioni di condensazione delle particelle di carbonio nel gas di fiamma libera rispetto alla condensazione che si verifica in fase gassosa sulla superficie della fuliggine depositata sulla piastra di stagnazione. Così, Fig. 5 in alto, mentre nella fiamma libera al livello 1 di fit venivano create particelle di 45 \AA , sulla superficie del deposito si evidenzia la presenza di particelle anche 10 volte più piccole, di diametro circa 5 \AA . La concentrazione delle particelle di dimensioni maggiori è circa 10^{14} cm^{-3} , mentre quella delle particelle più piccole (5 \AA) sale a valori dell'ordine di 10^{19} (Fig. 5 in mezzo) del tutto comparabili alle concentrazioni dei cluster molecolari. D'altra parte una particella di 5 \AA contiene circa $(5/2)^3 = 16$ atomi di carbonio essendo il diametro di un atomo di C pari a circa 2 \AA . In Fig. 5 in basso viene riportato l'andamento dell'esponente nel regime di scattering di Porod di queste particelle più piccole. La linea rossa è tracciata come una guida all'osservazione. Dopo la transizione alla condensazione sulla superficie 2D, l'esponente di potenza prima diminuisce e poi risale verso il valore standard 4 caratteristico dello scattering di Porod.

La Fig. 6 riporta in alto il raggio di girazione R_{g2} e la concentrazione N_2 delle particelle relative al livello 2 di fit (particelle di dimensioni intermedie) e in basso le stesse grandezze, R_{g3} e N_3 , relative alle particelle di dimensioni più grandi rivelate nella configurazione con $d(s-d)=1.2 \text{ m}$. Al livello 2 di fit (Fig. 6 in alto) si osserva una brusca diminuzione delle dimensioni delle particelle create sulla superficie di deposito rispetto a quelle create nelosservate in fiamma libera e un conseguente aumento di concentrazione di circa 4 ordini di grandezza. Anche al livello 3 di fit (particelle più grandi) vengono confermati gli andamenti osservati per le particelle più piccole (livello 1 e livello 2). In particolare (Fig. 6 in basso) il raggio di girazione diminuisce da 90 a 70 \AA e la concentrazione aumenta di oltre due ordini di grandezza. Si noti che le particelle rivelate che risultano associate al livello 2 di fit hanno dimensione di circa 120 \AA in fiamma libera, cioè corrispondono alle cosiddette particelle *sub-primarie* [1,6] le quali si aggregano a formare le particelle *primarie* di $20\text{-}50 \text{ nm}$ che sono i mattoni degli aggregati frattali di fuliggine [1,2,6]. Dopo la transizione alla fase di condensazione sulla piastra di stagnazione il diametro delle particelle scende a circa 40 \AA , che corrisponde alla dimensione dei nuclei elementari osservati precedentemente all'analisi TEM [1].

La Fig. 7 riporta l'elaborazione dei dati WAXS per gli stessi esperimenti relativi alle Figg. 4-6. Si evidenzia come il segnale WAXS riesce a rivelare la presenza di strutture grafittiche (picco A a $q=1.5 \text{ \AA}^{-1}$ e picco B a 2.75 \AA^{-1}) a partire da circa 1750 s. Questi picchi corrispondono rispettivamente alla distanza fra gli strati della grafite (interlayer distance) e alla distanza fra gli atomi di carbonio disposti in un singolo strato. Queste posizioni appaiono traslate di circa 0.25 \AA^{-1} verso valori inferiori di q a causa della geometria fra il rivelatore WAXS e il bruciatore. Il valore dello shift dimostra anche che la grafite si forma in corrispondenza della periferia della fiamma e non lungo la posizione radiale $r = 0$ (asse del bruciatore). Il picco B è relativo alle distanza fra gli atomi di carbonio legati da legame chimico in strutture aromatiche e quindi la posizione del picco non cambia perché tali distanze sono interatomiche fisse. Viceversa il picco A, con il trascorrere del tempo, si sposta leggermente verso q più elevate indicando che l'accumularsi di strati di grafite (stacking of layers) induce uno strizzamento (shrinking) delle strutture risultanti. Tale effetto può essere di natura

strutturale dovuto all'accumulo di nuovi strati oppure può essere indotto da fenomeni di scambio termico con il progressivo raffreddamento delle strutture cristalline.

In corrispondenza di tale tempo (1750 s), come sopra visto, il segnale SAXS rivela una brusca diminuzione delle dimensioni da 45 a 5 Å per le particelle più piccole alle quali corrisponde un aumento della concentrazione di circa 5 ordini di grandezza. Il coefficiente di Porod relativo al livello 1 di fit indica che le particelle cambiano la forma passando da $P1 \sim 4$ a $P1 \sim 1$ per poi raggiungere nuovamente $P1 \sim 3.5$. La natura dello scattering di superficie di tali particelle piccole passa dunque da quella relativa a scatteratori con una superficie smooth e un passaggio di densità di elettroni a step fra l'interno e l'esterno della particella ($P=4$ per una sfera dura), a quella di particelle filiformi ($P=1$) per poi ripassare a quelle di particelle sferoidali con superficie rugosa ($P=3$).

Il risultato fondamentale della ricerca è di aver provato per la prima volta l'esistenza della formazione in fiamma di strutture carboniose a reticolo cristallino di tipo grafitico con dimensioni comprese fra 2 e 50 Å.

I partner Italiano e Svedese hanno sottoposto un lavoro congiunto a conferenza internazionale [14] e stanno elaborando una paper da sottoporre alla rivista *Carbon*. Durante la visita sono stati presi contatto con un altro gruppo di ricerca della divisione Molecular Physics dell'Università di Lund per avviare una collaborazione allargata nel settore della spettroscopia a attosecondo. Le misure SAXS e WAXS infatti risulterebbero idealmente completate da uno studio capace di osservare la creazione real-time di singole strutture di carbonio man mano che le formazioni di legame chimico e lo stacking di layer genera configurazioni di dimensioni via via crescenti.

Lo studioso Italiano responsabile e proponente del Programma STM 2011:

Dr. Stefano di Stasio
Primo Ricercatore
Aerosol e Nanostructures Lab
Istituto Motori CNR – Via Marconi 8 – 80125 Napoli
e-mail s.distasio@im.cnr.it
mobile: 347 0525117



Napoli, 21 Luglio 2011

BIBLIOGRAFIA

- [1] S. di Stasio "Electron Microscopy Evidence of Aggregation under Three Different Size Scales for Soot Nano-Particles in Flame", *Carbon* **39** (2001) 1 109-118.
- [2] S. di Stasio. "Observation of Restructuring of Nanoparticles Soot Aggregates in a Diffusion Flame by Static Light Scattering", *J. Aerosol Sci.* **32** (2001) 4, 509-524.
- [3] S. di Stasio, J.L. LeGarrec, J. B. A. Mitchell "Synchrotron Radiation Studies of Additives in Combustion II: Soot Agglomerate Microstructure Change by Alkali and Alkaline Earth Metal Addition to a Partially Premixed Flame", *Energy & Fuels*. **25** (2011) 3 916-925
- [4] J.B. Mitchell, S. di Stasio, J.L. LeGarrec, A.I. Florescu-Mitchell " Synchrotron radiation studies of additives in combustion I: Water " *Nuclear Instrum. Methods B* **268** (2010) 1486-1491
- [5] J.B. Mitchell, S. di Stasio, J.L. LeGarrec, A.I. Florescu-Mitchell, T. Narayanan, M. Sztucki "Small angle x-ray scattering study of flame soot nanoparticle aggregation and restructuring" *J. Appl. Phys* **105** (2009) 124904-124912
- [6] di Stasio S, Mitchell J.B.A., LeGarrec J.L., Biennier L, Wulff M "Synchrotron SAXS <in-situ> Identification of Three Different Size Modes for Soot Nanoparticles in a Diffusion Flame", *Carbon* **44** (2006) 7, 1267-1279
- [7] di Stasio S, Braun A "Comparative NEXAFS Study on Soot Obtained from an Ethylene/Air flame, a Diesel engine, and Graphite", *Energy & Fuels* **20** (2006) 187-194
- [8] Mitchell J.B.A., Le Garrec J.L., Florescu-Mitchell A.I., di Stasio S. "Small-angle neutron scattering study of soot particles in an ethylene-air diffusion flame" *Combust. Flame* **145** (2006) 1-2 80-87.
- [9] Mitchell J.B.A. Florescu-Mitchell A.I., di Stasio S. Courbe J., Weiss T. "Demonstration of Soot Particle Resizing in an Ethylene Flame by Small Angle X-Ray Scattering" *J. Appl. Phys.* **100** (2006) 124918-1,-5.

- [10] Ossler F, Canton SE, Larsson J “X-ray scattering studies of the generation of carbon nanoparticles in flames and their transition from gas phase to condensed phase” *Carbon* **47** (2009) 3498-3507.
- [11] Beaucage G, Kammler HK, Pratsinis SE “ Particle size distributions from small-angle scattering using global scattering functions” *J. Appl. Cryst.* **37** (2004) 523-535.
- [12] Beaucage G “Approximations Leading to a Unified Exponential/Power-Law Approach to Small-Angle Scattering” *J. Appl. Cryst.* **28** (1995) 717-728
- [13] Beaucage G “ Small-Angle Scattering from Polymeric Mass Fractals of Arbitrary Mass-Fractal Dimension” *J. Appl. Cryst.* **29** (1996) 134-146
- [14] Ossler F, Vallengag L, Canton SE, Mitchell JBA, Le Garrec J-L, di Stasio S, Sztucki M (2011) “ In-situ study of the dynamics of nanoparticle and phase transitions in ethylene flames by measurements of combined extended small-angle x-ray scattering and wide-angle x-ray scattering” *Carbon Materials for Energy Storage and Generation Intern’l Conference, Shanghai 24 July 2011*

FIGURE ALLEGATE ALLA RELAZIONE SULL’ATTIVITA’ SCIENTIFICA SVOLTA:

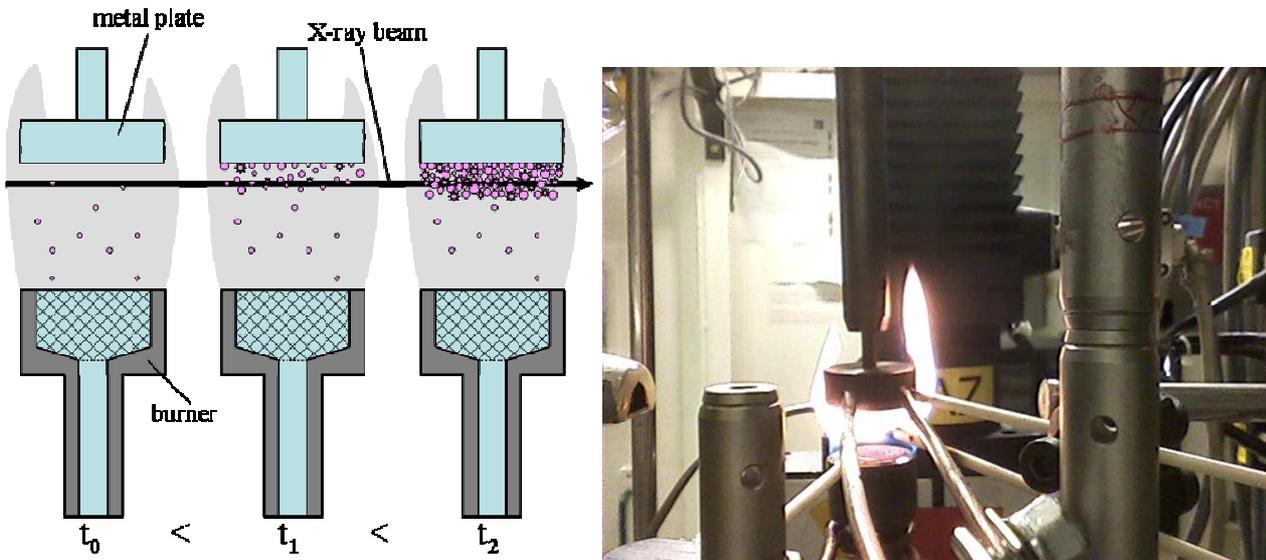


Figura 1. Set-up sperimentale: a sinistra, schema di principio. A destra fotografia durante gli esperimenti.

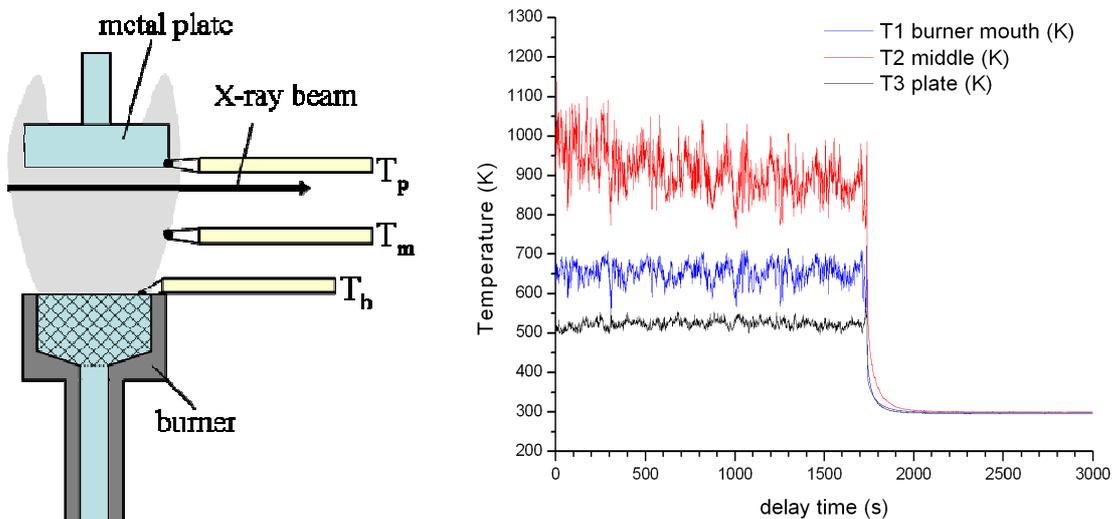


Figura 2. A sinistra: posizione delle tre termocoppie adoperate per la misura della temperatura; a destra: esempio di misura di temperatura alla bocca del bruciatore, sulla faccia inferiore della piastra di deposizione e alla altezza intermedia.

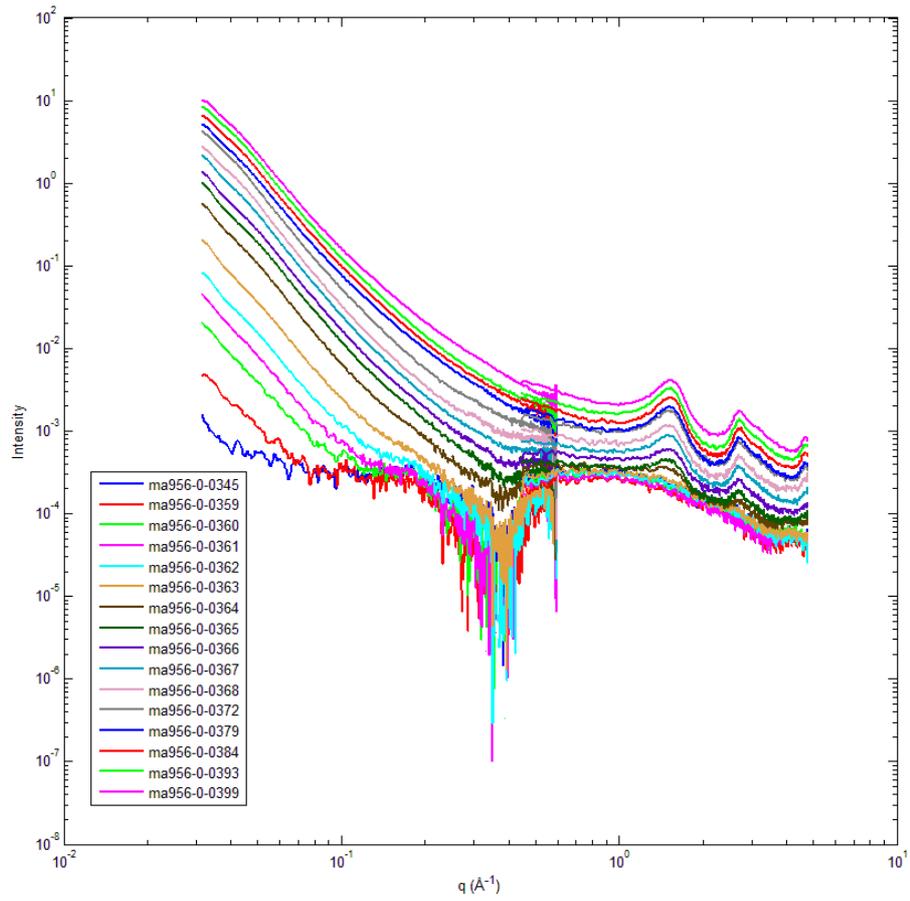


Figura 3. Intensità SAXS negli esperimenti relativi a $d(s-d)=1.2$ m. $E=14$ keV, $\lambda=0.886$ Å. La piastra di stagnazione è posizionata a 15.5 mm sulla bocca del bruciatore. Lo spot X è a 2.0 mm dalla piastra, ovvero a 13.5 mm dal bruciatore e a coordinata radiale $r=0$. Il gas è etilene puro $\Phi_{C_2H_4}=300$ cm³/min = 5 cm³/s. Nello stesso diagramma vengono riportate per $q>0.4$ Å⁻¹ le intensità di scattering wide angle (WAXS). Il numero di file corrisponde al tempo di misura (file#344 e #384 corrispondono ai tempi $t=0$ e $t=2179$ s).

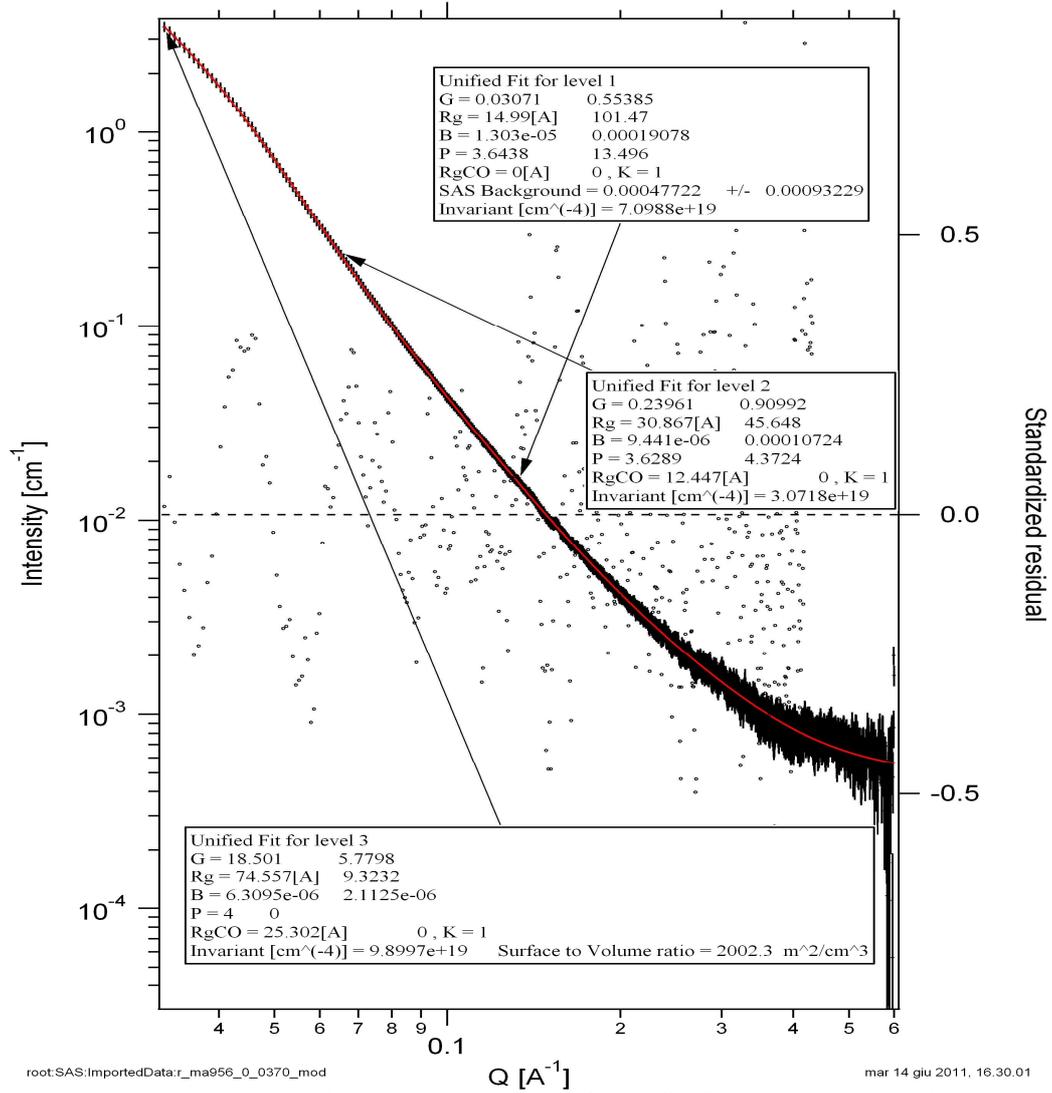


Figura 4. Esempio di elaborazione dei dati SAXS mediante la macro IRENA. Configurazione con $d(s-d)=1.2$ m, a $t = 1899$ s (file #370). Distanza bruciatore-piastra = 15.5 mm, distanza X-spot – bruciatore 13.5 mm. $E=14$ keV, $\lambda=0.886$ Å.

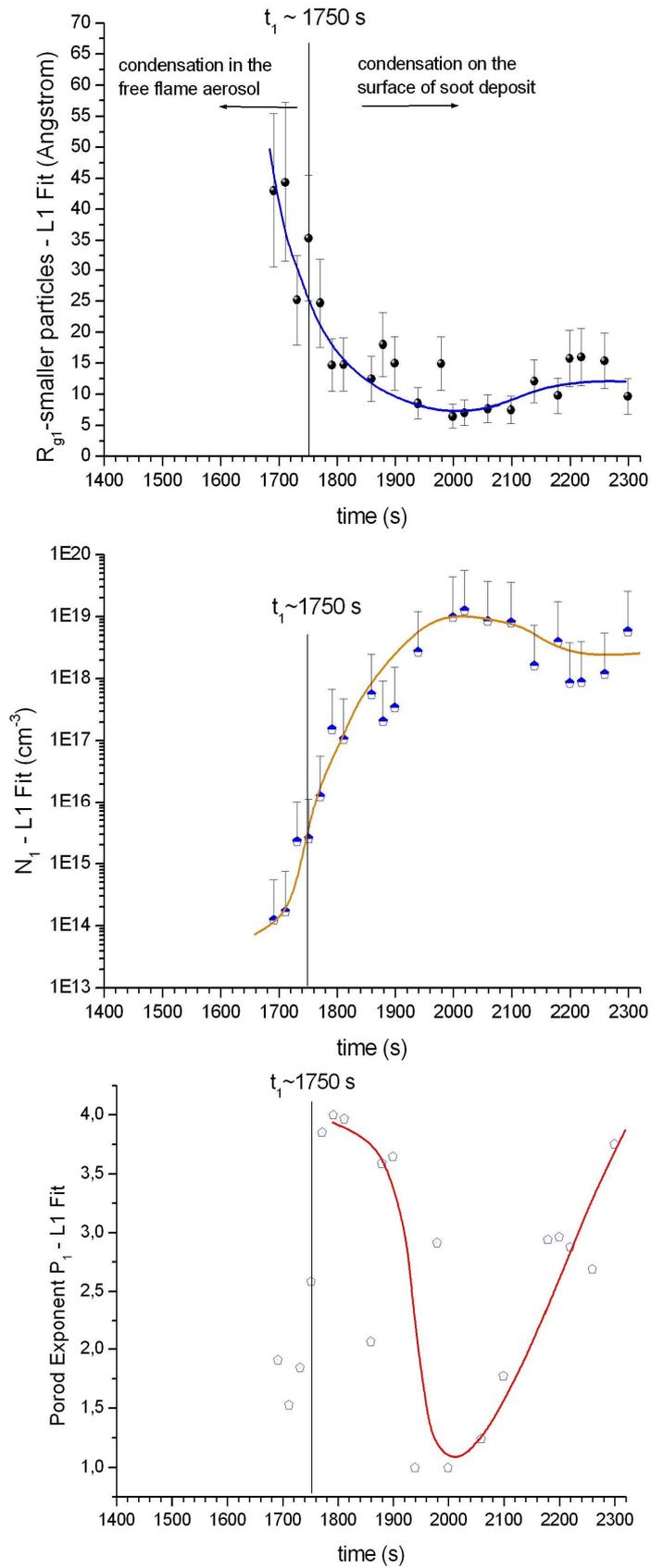


Figura 5. Livello 1 di fit (label "L1", per le particelle più piccole). Esempio delle elaborazioni relative al set di dati sperimentali SAXS con distanza campione-rivelatore pari a 1.2 m. $E=14$ keV. Flusso di puro etilene $\Phi_{\text{C}_2\text{H}_4} = 5 \text{ cm}^3/\text{s}$ (aria 0% del flusso fluente attraverso il setto poroso alla bocca del bruciatore).

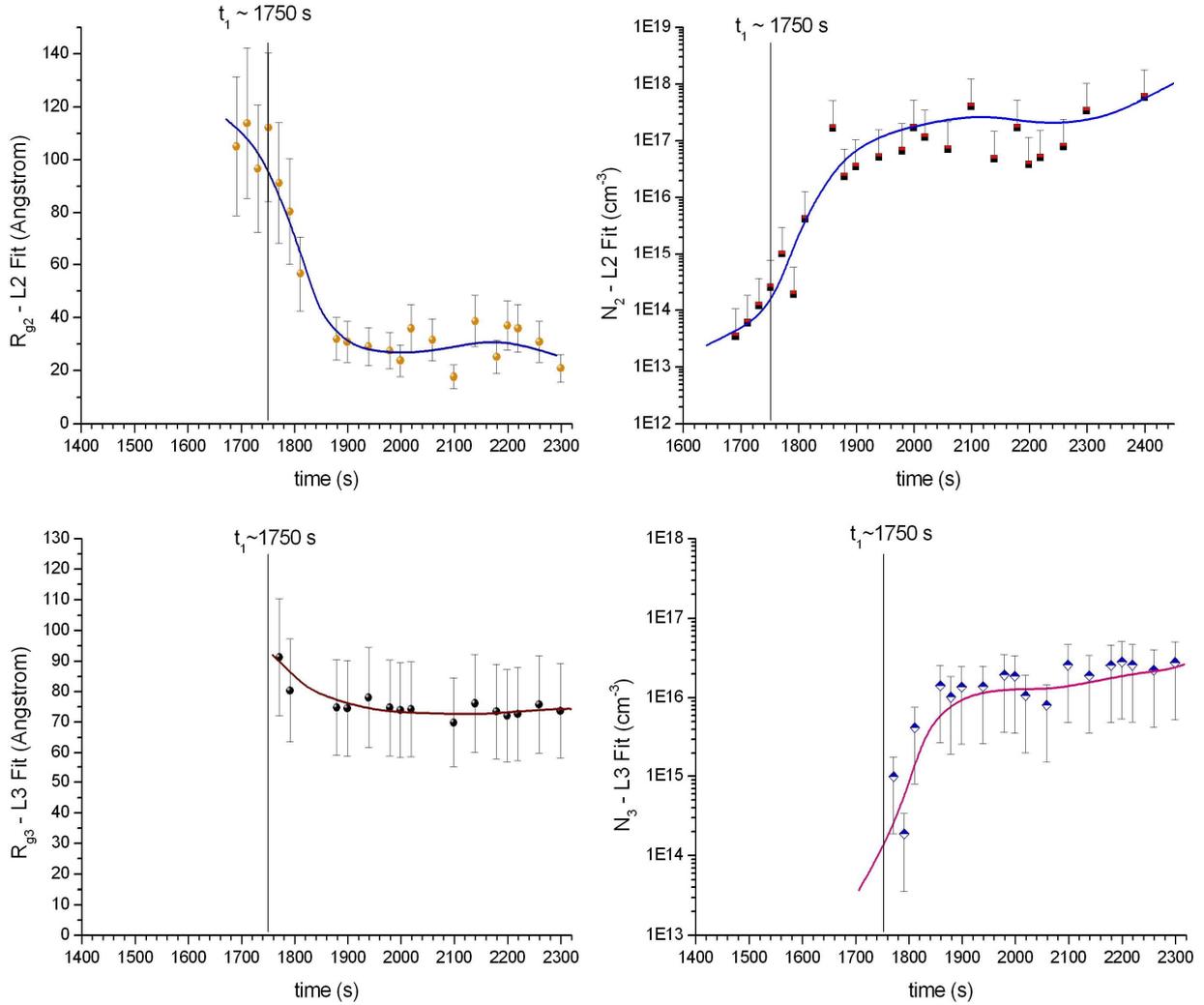


Figura 6. Sopra) Livello 2 di fit: vengono riportati il raggio di girazione e la concentrazione delle particelle di dimensioni intermedie. Sotto) come sopra per il Livello 3 di fit (“L3” per indicare le particelle più grandi). Configurazione come in Fig. 5

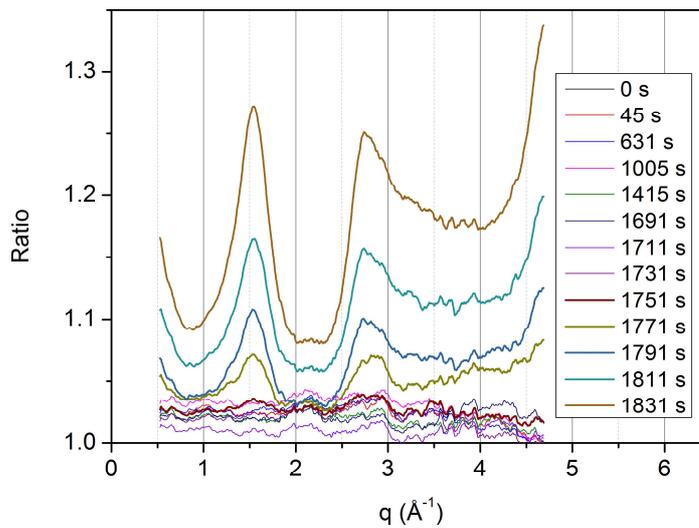


Figura 7. Elaborazione dei segnali WAXS nella configurazione sperimentale con distanza campione-rivelatore pari a 1.2 m. $E=14$ keV, $\lambda=0.886$ Å. Flusso di puro etilene $\Phi_{C_2H_4} = 5$ cm³/s (aria 0% del flusso fluente attraverso il setto poroso alla bocca del bruciatore).