Токовые импульсы отрицательных микроразрядов в поверхностном барьерном разряде в присутствии оксида на коронирующем электроде

И. В. Селивонин[1], С. Е. Кувардин[1,2] и И. А. Моралев[1]
[1] Объединенный институт высоких температур РАН, Ижорская ул., 13, стр.2, Москва 125412, Россия
[2] Московский физико-технический институт (государственный университет), Институтский пер., 9, Долгопрудный 141701, Россия

E-mail: inock691@ya.ru

Статья поступила в редакцию 26 октября 2023 г.

Аннотация. Экспериментально исследовано влияние оксидных отложений на кромке коронирующего электрода на характеристики отрицательных токовых импульсов в поверхностном барьерном разряде в воздушной среде при атмосферном давлении. Показано, что при наличии оксидного слоя на кромке наблюдается уменьшение средней величины передаваемого за импульс заряда и увеличение количества микроразрядов. Показано, что в присутствии оксида импульс тока имеет фронт со временем нарастания менее 1 нс. В случае очищенной от оксида металлической кромки возникает предымпульс с фронтом длительностью 2–5 нс, за которым следует основной импульс тока с коротким временем нарастания. https://doi.org/10.33849/2023301

1. ВВЕДЕНИЕ

Поверхностный барьерный разряд (ПБР) — импульсный слаботочный разряд высокого давления, инициируемый вдоль поверхности диэлектрика, установленного в межэлектродном промежутке [1, 2]. ПБР может быть использован в качестве источника низкотемпературной плазмы в различных областях: обработка биологических объектов [3], генерация озона [4, 5], изменение свойств поверхности [6], управление внешним потоком газа [7, 8] и модификация поверхностей [9].

Для конфигураций ПБР с открытым (коронирующим) металлическим электродом характерна выраженная асимметрия разряда при изменении полярности коронирующего электрода относительно заряженной поверхности диэлектрического барьера. Если электрод является анодом, разряд развивается в виде серии катодонаправленных поверхностных стримеров; если электрод является катодом, то разряд существует в виде нестационарных областей тлеющего разряда, равномерно распределенных по кромке электрода. Состояние кромки электрода может оказывать существенное влияние на газоразрядные процессы. В результате осаждения оксидных образований на кромке могут существенно меняться ее эмиссионные свойства, а также распределение напряженности электрического поля в разрядной области. В кислородсодержащей среде на металлическом электроде всегда присутствует природный оксид в виде пассивационных диэлектрических пленок.

В ряде работ было показано, что при горении разряда в кислородсодержащей среде происходит заметная деградация открытых частей электрода [10, 11]. В результате физического и химического травления, образования измененного поверхностного слоя и переосаждения оксидов изменяется морфология кромки электрода. Деградация электродов в основном происходит за счет распыления и окисления материала электрода и переосаждения продуктов эрозии. Скорость деградации электрода и его конечная структура в значительной степени определяются физико-химическими свойствами оксида [11, 12]. При инициировании разряда в воздухе металлический электрод легируется ионами кислорода, что приводит к образованию оксидного слоя микронной толщины. В результате горения барьерного разряда этот слой имеет перфорированную структуру с отверстиями диаметром 100 нм от отдельных пробоев при развитии одиночных микроразрядов (МР).

Оксидные образования оказывают существенное влияние на развитие отдельных МР. Накопление заряда на покрывающем металлический электрод оксидном слое в процессе горения разряда приводит к стохастизации положений микроразрядов. Подробно физика деградации электродов и ее влияние на структуру разряда и характеристики МР описаны в [13]. Для разряда в отрицательной фазе (когда открытый электрод является катодом) наличие оксидных образований также может повлиять на таунсендовскую стадию развития МР. Микропробои в диэлектрическом слое и аномальная эмиссия электронов с поверхности окисленного электрода могут играть существенную роль на начальном этапе формирования катодного слоя отрицательного микроразряда [14].

В данной работе было исследовано влияние наличия оксидных образований на металлическом электроде на характеристики отрицательных микроразрядов в ПБР, питаемом переменным синусоидальным напряжением. Эксперименты проводились на воздухе при атмосферном давлении. Метод основан на анализе статистики и формы токовых импульсов. Результаты получены для алюминиевых электродов в трех состояниях: необработанный электрод с пассивационной оксидной пленкой толщиной 1–10 нм; электрод, очищенный от оксида, и электрод с оксидным слоем ~ 1 мкм, образованным в процессе длительного горения разряда.

2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследовался разряд в асимметричной поверхностной конфигурации кромка–плоскость. Схематичное изображение электродной системы показано на рисунке 1(a). В качестве диэлектрического барьера использовалась алундовая керамика толщиной 1 мм с диэлектрической проницаемостью 10. Электроды изготавливались из алюминиевой самоклеящейся фольги толщиной 20 мкм. Качество кромки контролировалось на отсутствие дефектов и загрязнений визуально, с помо-

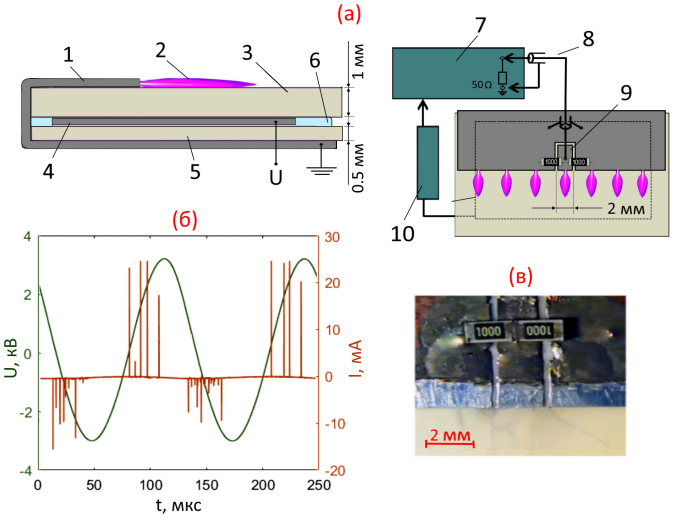

Рисунок 1. (а) — Схема разрядной ячейки со схемой подключения: 1 — коронирующий электрод, 2 — ПБР, 3 — керамический барьер, 4 — высоковольтный ответный электрод, 5 — дополнительная (нагрузочная) керамическая пластина, 6 — заливочный компаунд, 7 — осциллограф, 8 — 50-омный коаксиальный кабель, 9 — измерительная секция, 10 — высоковольтный щуп; (б) — осциллограммы питающего напряжения и тока разряда; (в) — изображение измерительной секции с токовым шунтом.

щью оптического стереомикроскопа МБС-10. Ответный электрод изолировался силиконовым компаундом для предотвращения развития разряда с него.

Высокое напряжение подводилось к ответному изолированному электроду, коронирующий электрод подключался к земле с помощью шины. Система питалась переменным синусоидальным напряжением с амплитудой 3 кВ и частотой 10 кГц. Разрядный ток регистрировался с секции коронирующего электрода шириной 2 мм, подключенной к основной части электрода через малоиндуктивный токовый шунт. Ширина секции выбиралась из условия единовременного старта с нее только одного микроразряда. Токовый шунт был выполнен из 2-х SMD-резисторов номиналом 100 Ом, соединенных параллельно. Изображение шунта представлено на рисунке 1(*в*). Шунт был подключен коаксиальным кабелем с волновым сопротивлением 50 Ом к 50-омному входу осциллографа. Измерительная схема была протестирована с применением осциллографа с полосой пропускания 6 ГГц, в результате чего полоса пропускания кабеля и разъема составила 3 ГГц, а полоса пропускания шунта — не хуже 4 ГГц. Образование каждого МР приводит к некоторому падению напряжения между электродами. Если МР возникает вне измерительного участка, то на осциллограмме тока будут наблюдаться импульсы противоположной полярности. Чтобы минимизировать влияние этого эффекта, емкость электродной системы была искусственно увеличена до 120 пФ с помощью дополнительной керамической пластины толщиной 0.5 мм, изготовленной из того же материала, что и основной барьер. Напряжение питания измерялось высоковольтным шунтом Tektronix P6015A с полосой пропускания 75 МГц и погрешностью не более 3%. Осциллограммы напряжения и тока регистрировались с помощью осциллографа LeCroy HDO6104AR с полосой пропускания 1 ГГц, вертикальным разрешением 12 бит и частотой дискретизации 10^9 выборок/с. При записи сигналов тока использовалась встроенная функция шумоподавления (−0.5 дБ) для подавления высокочастотного звона на границе полосы пропускания осциллографа. Как отмечалось ранее, активная фаза разряда с образованием МР существует 2 раза за один период синусоидального переменного напряжения. Типичные формы осциллограмм напряжения и тока, полученные в эксперименте, показаны на рисунке 1(*б*). Поскольку высокое напряжение прикладывается к ответному электроду, регистрируемая осциллограмма напряжения оказывается инвертированной по сравнению со случаем, когда питание подключается к коронирующему электроду.

Предположительно, при распространении катодонаправленных стримеров (положительные импульсы на рисунке 1(*б*)) влияние состояния кромки электрода на распространение микроразряда существенно только на стадии формирования головки стримера и несущественно после старта стримера. Поэтому в рамках настоящей работы изучалась только катодная фаза разряда (отрицательные импульсы на рисунке 1(*б*)), в которой происходит формирование катодного слоя, а основным источником электронов является кромка электрода.

Данные были получены для трех типов электродов: **необработанный** — покрытый естественными “неизбежными” оксидными образованиями, представляющими собой тонкую пассивационную оксидную пленку толщиной 1–10 нм; **обработанный** — очищенный от оксидов методом катодного распыления в тлеющем разряде в аргоне низкого давления (подробно метод очистки описан в [12]); **тренированный** — покрытый слоем пористого оксида микронной толщины, образовавшийся в результате 2-часовой работы ПБР в воздухе при атмосферном давлении [11, 15].

Накопление статистики токовых измерений осуществлялось в течение нескольких минут. Как показали предварительные исследования, заметного окисления и деградации кромки электрода за это время не происходит, и параметры разряда в этот период сохраняются постоянными.

Для каждого типа электродов были получены средние значения заряда, переносимого за один токовый импульс, количество импульсов на активную фазу и средняя форма импульсов. Для этого полученные сигналы фильтровались, после чего осуществлялось детектирование импульсов тока по заданному порогу. После этого найденные импульсы интегрировались по времени для получения значения переданного в импульсе заряда и сортировались по фазе питающего напряжения. Алгоритм обработки сигналов подробно описан в работе [13].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Статистика и средние параметры микроразрядов

На рисунке 2(*а*) показана двумерная гистограмма величин заряда, переносимого МР. Качественно гистограммы для всех типов электродов одинаковы, поэтому показаны данные только для обработанного электрода. Осциллограмма приложенного напряжения была инвертирована для соответствия случаю, когда оно прикладывается к коронирующему электроду.

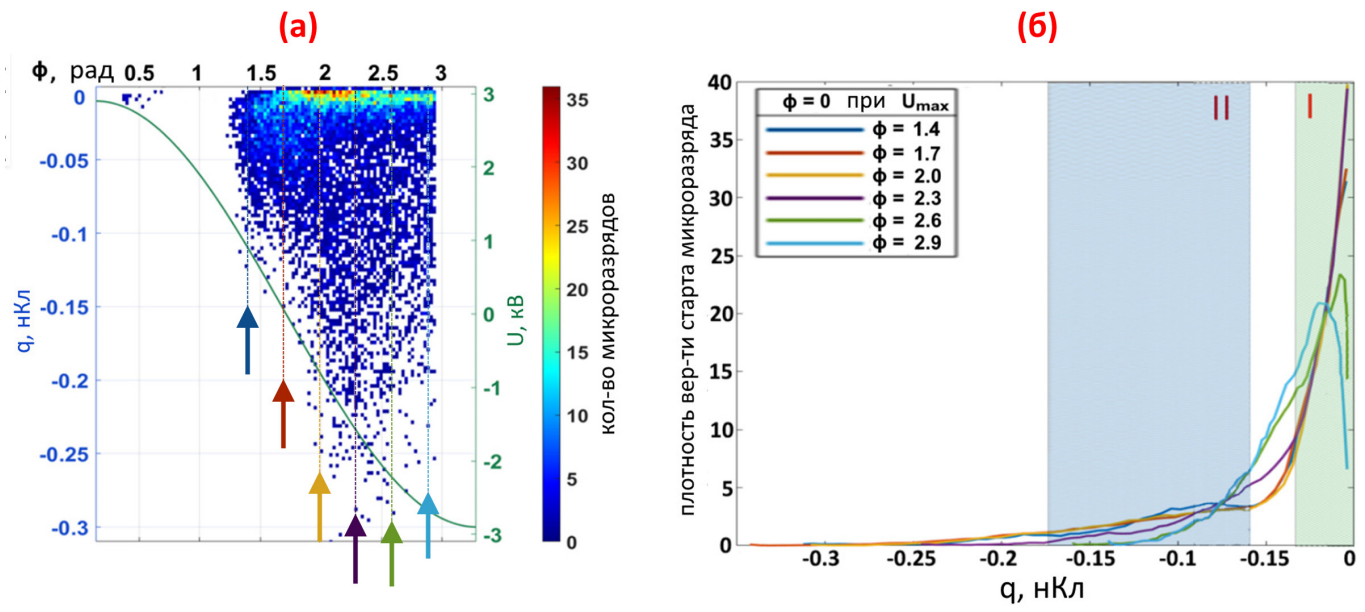

Рисунок 2. (а) — 2D-гистограмма величин перенесенного заряда в ПБР на обработанном электроде (очищенном от оксида). Цветом показано количество импульсов с перенесенным зарядом в интервале 0.01 нКл. Стрелки различных цветов указывают, для каких сечений распределения были построены плотности вероятности старта МР; (б) — плотности вероятности старта МР, переносящих указанное по оси X значение заряда, при различных фазах приложенного напряжения. Цвет кривых соответствует цвету стрелок, указывающих на выбранные сечения распределения. Области I и II соответствуют МР I и II типов. Фаза $\phi = 0$ рад соответствует максимуму приложенного напряжения.

Таблица 1. Статистически усредненные характеристики МР: N — количество МР за полупериод питающего напряжения, Q — величина перенесенного заряда за полупериод, <q> — средняя величина заряда, переносимого одиночным МР. Погрешности N и <q> определены как стандартные отклонения, погрешность Q является ошибкой измерения и интегрирования.

Состояние электрода	**N**	**Q, пКл**	**<q>, пКл**
Обработанный (очищенный от оксида)	18±3	780±40	43±15
Необработанный (оксидный слой 1–10 нм)	20±5	700±40	35±13
Тренированный в разряде (оксидный слой ∼ 1 мкм)	22±3	610±30	28±11

Для анализа формы распределения были получены плотности вероятности старта микроразрядов с разными величинами переносимого заряда. Для этого брались вертикальные сечения 2D-гистограмм величин перенесенного заряда (рисунок 2(*а*)) при различных фазах приложенного напряжения ϕ. Стрелками различных цветов указаны выбранные сечения. Суммарная величина заряда, переносимого импульсами в выборке, нормировалась на −1. Полученные распределения представлены на рисунке 2(*б*). Разным цветом показаны кривые, соответствующие различным фазам приложенного напряжения (разным поколениям МР). Можно выделить 2 типа МР [13]. На рисунке 2(*б*) типы МР показаны областями I и II.

Большинство МР переносят небольшой заряд $q < 30$ пКл и относятся к первому типу. Характеристики МР первого типа практически не зависят от фазы питающего напряжения, а также от материала открытого электрода или состояния кромки. Было проверено, при регистрации слабых токовых импульсов также регистрируется оптическое излучение вблизи кромки электрода. Предположительно, такие импульсы соответствуют МР малой длины, заряжающим ближайшие к краю электрода области диэлектрика [13], или пробоям между соседними доменами поверхности диэлектрика [16].

Второй тип МР характеризуется бóльшей величиной переносимого заряда, составляющей $q \sim 100$ пКл. На МР второго типа приходится бóльшая часть заряда, переносимого ПБР за полупериод питающего напряжения. Для них характерно увеличение величины переносимого заряда на поздних фазах напряжения питания, причем для более поздних фаз времени спад импульсов становится длиннее. На основе статистики импульсов, накопленных за 1000 полупериодов питающего напряжения, можно сравнить средние характеристики МР второго типа для обработанных, необработанных и тренированных электродов. Эти значения показаны в таблице 1.

Можно сделать вывод, что образование оксидного слоя и увеличение его толщины приводит к заметному уменьшению средней величины переносимого МР заряда, а также к увеличению количества МР за полупериод питающего напряжения. Этот эффект может быть обусловлен изменением пространственной организации ПБР.

При отсутствии оксида на электроде наблюдается стабилизация привязок групп микроразрядов и ор-

ганизация квазифиламентированного режима горения разряда. Предположительно, этот эффект наблюдается вследствие локального нагрева газа, электрода и барьера. В случае наличия оксида на кромке происходит его зарядка, что приводит к экранированию соответствующего участка электрода в дополнение к экранирующему эффекту заряда на поверхности барьера [11, 12]. Этот механизм доминирует над тепловыми механизмами, поэтому при накоплении заряда на покрывающем электрод оксидном слое привязки МР перемещаются по кромке. Кроме того, возникающая однородность поверхностного заряда на барьере подавляет ветвление МР [13]. Старт микроразрядов последующих поколений происходит с других участков кромки электрода, где электрическое поле наименее ослаблено поверхностным зарядом того же знака. При этом старт МР становится возможным при более низком потенциале открытого электрода. Это приводит к увеличению количества МР за полупериод и снижению величины заряда, перенесенного в МР.

Изменения в величинах интегрального переносимого заряда (соответственно, и среднего энерговклада в ПБР) также может быть связано с измерениями в структуре разряда. При локализованных привязках микроразрядов в их окрестностях формируется стабильный тепловой след. Локальный рост температуры приводит к увеличению приведенного поля у кромки и соответствующему увеличению среднего тока разряда. При распределении микроразрядов вдоль размаха кромки их развитие происходит при меньшей температуре. Таким образом, при гомогенизации разряда, вызванной хаотизацией микроразрядных привязок на оксидированной кромке, будет наблюдаться снижение интегрального заряда, переносимого в ПБР.

3.2. Форма импульсов тока

Средняя форма импульсов тока рассчитывалась как среднее значение кривых 1, где K — количество импульсов в выборке. Усреднение проводилось по микроразрядам второго типа, для каждой фазы питающего напряжения отдельно (см. рисунок 2(*б*)). Из выборки были исключены импульсы с артефактами в виде вторых максимумов, секвенций и высокочастотного звона. Каждая выборка включала около 50 импульсов.

$$\langle I(t)\rangle = \frac{\sum_{i=1}^{K} I_i}{K}, \qquad (1)$$

На рисунке 3 представлена усредненная форма импульсов тока для всех трех типов электродов. Кривые разного цвета соответствуют разным фазам питающего напряжения, т.е. различным поколениям МР. Видно, что с образованием оксидного слоя и увеличением его толщины становится заметен эффект удлинения затухания импульса на поздних фазах питающего напряжения. Такое явление было продемонстрировано в [13]. Удлинение затухания импульса на поздних фазах объясняется активацией механизма отлипания электронов от отрицательных ионов O_2^-, образовавшихся в результате прилипания электронов к O_2 при развитии и распаде микроразрядов предыдущих поколений. Согласно оценкам, за время между МР последовательных поколений

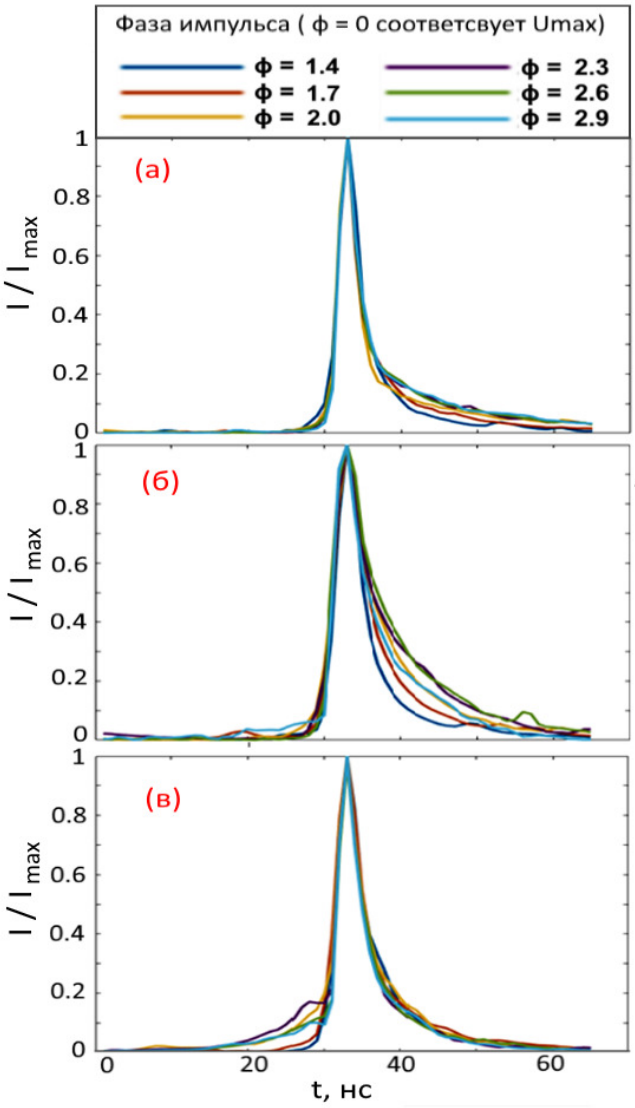

Рисунок 3. Средняя форма токовых импульсов: (а) — необработанный электрод (оксидный слой 1–10 нм), (б) — тренированный в разряде электрод (оксидный слой $\sim$ 1 мкм), (в) — обработанный электрод (очищенный от оксида). Разными цветами показаны импульсы, соответствующие микроразрядам при различных фазах питающего напряжения. Нормировка выполнялась по амплитуде импульсов.

этот объемный отрицательный ионный заряд не успевает покинуть разрядную область в результате дрейфа в электрическом поле, поэтому во время активной фазы разряда происходит его накопление в разрядном промежутке. Роль этого механизма определяется главным образом пространственной структурой разряда и временной статистикой микроразрядов. Полученных к настоящему времени данных недостаточно, чтобы объяснить различный вклад этих механизмов при развитии разряда с очищенных и окисленных кромок.

В присутствии оксида импульсы имеют крутой фронт с длительностью нарастания 1–2 нс, что, по всей видимости, ограничено полосой пропускания осциллографа. Для очищенной от оксида кромки фронт импульса имеет сложную форму. На рисунке 4 представлена форма одиночных импульсов без усреднения при фазе напряжения питания $\phi = 2.3$ рад. Видно, что длитель-

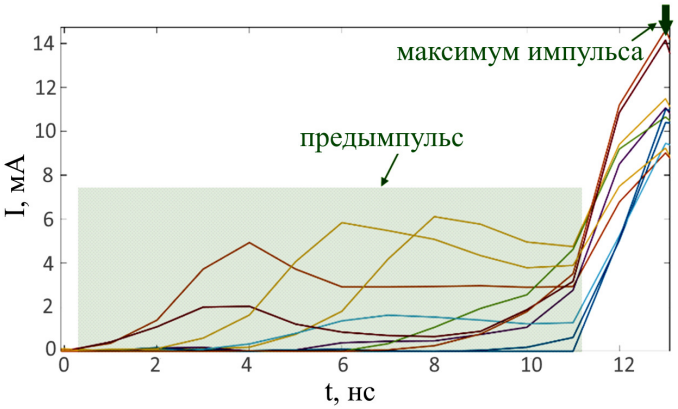

Рисунок 4. Форма начальной части 10 импульсов тока без усреднения и нормировки. Обработанный электрод, $\phi = 2.3$ рад.

ность предымпульса и его амплитуда имеют большой разброс даже в пределах одного поколения микроразрядов. Время нарастания тока в предымпульсе значительно превышает длительность фронта основного импульса и находится на уровне 2–5 нс.

Возможную гипотезу, описывающую сложную форму фронта импульса, можно сформулировать по аналогии с механизмом формирования импульса Тричела [17]. Развитие микроразряда всегда начинается с таунсендовской стадии [2]. При этом вблизи кромки формируется объемный положительный ионный заряд N_2^+. Это приводит к локальному усилению поля у кромки электрода, в результате чего по направлению к катоду развивается высокоскоростная волна ионизации (ВВИ). После развития ВВИ положительные ионы N_2^+ достигают катода и доминирующим кинетическим механизмом становится вторичная ионно-электронная эмиссия. До прихода основного ионного заряда электроны образуются в основном за счет фотоэмиссии с катода. При этом свойства и состояние кромки электрода могут оказывать существенное влияние на эффективность фотоэмиссии. Это косвенно подтверждается существующими исследованиями коронного разряда, в которых было показано, что нанесение на катод различных слоев, изменяющих коэффициент фотоэмиссии, приводит к существенному искажению формы фронта импульса тока, что свидетельствует об изменении соотношения различных механизмов эмиссии электронов [17].

При наличии оксидных образований на катоде развитие микроразряда начинается с полевой Мальтеровской эмиссии [18, 19] с покрытой диэлектрическим слоем поверхности электрода и электрического пробоя этого слоя. При этом процессы пробоя диэлектрической пленки протекают на порядок быстрее, чем объемные эффекты переноса заряда в газоразрядной области, что должно приводить к снижению времени нарастания токового импульса, соответствующего одиночному МР.

Для проверки этой гипотезы в будущем будет исследована зависимость формы токовых импульсов от давления плазмообразующего газа, что позволит явно разделить газоразрядные процессы в объеме и процессы в диэлектрических пленках, покрывающих поверхность электрода.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Оксидные образования на кромке коронирующего электрода оказывают существенное влияние на развитие поверхностного барьерного разряда и характеристики отдельных микроразрядов. С образованием оксидного слоя и увеличением его толщины среднее значение величины переносимого микроразрядом заряда уменьшается, а количество микроразрядов увеличивается. Наличие оксидного слоя приводит к заметным искажениям формы токовых импульсов, соответствующих индивидуальным микроразрядам, что свидетельствует об изменении соотношения вкладов различных механизмов эмиссии электронов на начальных стадиях развития микроразрядов. В случае очищенного от оксида металлического электрода импульс имеет передний фронт сложной формы с предымпульсом и двумя максимумами, что характерно для импульсов Тричела в отрицательном коронном разряде. В случае развития разряда с электрода, покрытого оксидом, токовые импульсы имеют один максимум при высокой скорости нарастания тока, и структура переднего фронта не разрешается осциллографом с полосой пропускания 1 ГГц.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (Госзадание № 075-01129-23-00).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kogelschatz U, Eliasson B and Egli W 1997 *J. PHYS IV Fr.* **7** 1997405
2. Brandenburg R 2017 *Plasma Sources Sci. Technol.* **26** 053001
3. Fridman G, Brooks A D, Balasubramanian M, Fridman A, Gutsol A, Vasilets V N, Ayan H and Friedman G 2007 *Plasma Process. Polym.* **4** 370–5
4. Yagi S and Tanaka M 1979 *J. Phys. D. Appl. Phys.* **12** 1509–20
5. Eliasson B, Hirth M and Kogelschatz U 1979 *J. Phys. D. Appl. Phys.* **12** 1509–20
6. Roth J R, Rahel J, Dai X and Sherman D M 2005 *J. Phys. D. Appl. Phys.* **38** 555–67
7. Corke T C, Jumper E J, Post M L, Orlov D and McLaughlin T E 2002 *Proc. 40th AIAA Aerosp. Sci. Meet. Reno, NV, U.S.A.* 0350
8. Kriegseis J, Simon B and Grundmann S 2016 *Appl. Mech. Rev.* **68** 020802
9. Ouyang L, Cao Z, Wang H, Hu R and Zhu M 2017 *J. Alloys Compd.* **691** 422–35
10. Pescini E, De Giorgi M G, Francioso L, Taurino A and Lavoie P 2016 *Proc. 54th AIAA Aerosp. Sci. Meet. Kissimmee, Florida, USA.* 0196
11. Selivonin I V, Lazukin A V, Moralev I A and Krivov S A 2018 *Plasma Sources Sci. Technol.* **27** 085003
12. Selivonin I V and Moralev I A 2021 *J. Phys. Conf. Ser.* **2100** 012014
13. Selivonin I and Moralev I 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 035005
14. Mesyats G A 2005 *Plasma Phys. Control. Fusion.* **47** A109–51
15. Lazukin A V, Selivonin I V, Moralev I A and Krivov S A 2017 *J. Phys. Conf. Ser.* **927**
16. Synek P, Zemánek M, Kudrle V and Hoder T 2018 *Plasma Sources Sci. Technol.* **27** 045008

17. Černák M, Hosokawa T, Kobayashi S and Kaneda T 1998 *J. Appl. Phys.* **83** 5678–90
18. Владимиров Г Г 2013 *Физическая электроника* (Санкт-Петербург: Лань)
19. Воробьев Г А и Мухачев В А 1977 *Пробой тонких диэлектрических пленок* (Москва: "Советское радио")