

УДК 537.528

ИНЖЕКЦИОННЫЙ ТОК И ОБРАЗОВАНИЕ ПУЗЫРЬКОВ В СИЛЬНЫХ РЕЗКО НЕОДНОРОДНЫХ ЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПОЛЯХ

С. М. Коробейников

Новосибирский государственный технический университет, 630092 Новосибирск

Решена задача о протекании нестационарного тока при инъекции из сферического электрода. Показано, что распределение поля может иметь максимум, перемещающийся в направлении от электрода со скоростью движения фронта инжестированного заряда. Проведен анализ образования пузырьков в предпробивных электрических полях, сделан вывод о возможности неионизационного образования пузырьков в диэлектрических жидкостях при действии высокого напряжения.

Введение. Анализ нестационарных инжекционных токов важен не только для изучения структуры диэлектрических и полупроводниковых материалов [1], но и для оценки приэлектродных электрических полей, энерговыделения и давления в приэлектродной области при действии на диэлектрики сильных электрических полей.

Нахождение общего решения задачи затруднительно из-за нелинейности уравнений, поэтому ранее задача была решена для частных случаев нестационарного тока, ограниченного объемным зарядом, инжестированным из плоского [1] или сферического электрода [2] при подключении к источнику постоянного напряжения. Предполагалось, что объемный заряд создан у электрода в начальный момент времени фотоинжекцией, либо электрод считался резервуарным. Эти предположения не выполняются в случае нестационарного тока в жидкости под действием сильного электрического поля. В многочисленных экспериментах (см., например, [3, 4]) показано, что зависимость тока от напряжения $I(U)$ в неполярных жидкостях типа гексана, тетраметилсилана, циклогексана для электродов с резко неоднородным полем имеет три характерных участка. При малом напряжении имеет место линейная зависимость, при достижении некоторого напряжения происходит увеличение тока на два-три порядка, при дальнейшем увеличении напряжения зависимость $I(U)$ принимает вид $I \sim U^2$. Первый участок соответствует закону Ома, второй — полевой эмиссии носителей заряда из электрода, третий — току, ограниченному объемным зарядом (ТООЗ). В неполярных жидкостях переход к режиму ТООЗ происходит при сравнительно малой локальной напряженности $E_l \leq 10^7$ В/см. Отметим, что характерной особенностью режима ТООЗ является слабая зависимость приэлектродной напряженности от напряжения.

Распределения электрического поля в приэлектродной области исследованы в экспериментах с электрооптической регистрацией предпробивных электрических полей в нитробензоле [5]. Показано, что пространственное распределение электрического поля у игольчатого катода после превышения некоторого порогового напряжения имеет максимум, перемещающийся в направлении от электрода. Вблизи электрода напряженность поля оставалась неизменной независимо от напряжения.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (код проекта 98-02-17903) и Министерства образования Российской Федерации (код проекта 97-5.3-114).

Модель. При моделировании описанного выше поведения тока и приэлектродного поля будем считать, что по мере увеличения напряжения приэлектродная напряженность сначала растет пропорционально напряжению (омический режим), затем наступает режим ТООЗ, и она остается на уровне напряженности, соответствующем переходу в этот режим. Промежуточный режим не рассматривается.

Для нахождения инжектированного заряда необходимо решить систему уравнений электродинамики с соответствующими начальными и граничными условиями.

Разработанный нами метод решения уравнений позволяет решить задачу для произвольного закона эмиссии и электродных систем, обладающих симметрией: плоскости, цилиндра, сферы [6]. Ограничимся наиболее важным для практики случаем сферического электрода с простым законом эмиссии. При расчете объемных зарядов, давлений, энерговыделения вкладом первых двух участков вольт-амперной характеристики можно пренебречь, поэтому будем считать, что эмиссия начинается при достижении некоторой пороговой напряженности E_i и при ее превышении электрод становится резервуарным. Для решения необходима информация о подвижности носителей заряда μ , которую примем гидродинамической [7], не учитывая ее зависимость от времени и напряженности поля.

Выпишем в безразмерном виде исходную систему уравнений, включающую уравнения непрерывности, Пуассона, полного тока и полного напряжения:

$$\begin{aligned} \frac{1}{r'^2} \frac{\partial}{\partial r'} (r'^2 E' \rho') + \frac{\partial \rho'}{\partial t'} = 0, \quad \frac{1}{r'^2} \frac{\partial}{\partial r'} (r'^2 E') = \rho', \\ \frac{\partial E'}{\partial t'} + \rho' E' = J', \quad \int_1^{\infty} E'(r', t') dr' = U'(t'). \end{aligned} \quad (1)$$

Переход от безразмерных к размерным величинам осуществляется по формулам

$$J = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon U^2 \mu}{r_0^3} J', \quad t = \frac{r_0^2}{\mu U} t', \quad \rho = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon U}{r_0^2} \rho', \quad r = r_0 r'.$$

Здесь J — плотность тока; U — амплитуда импульса напряжения; r_0 — радиус электрода; ε — диэлектрическая проницаемость жидкости; ε_0 — диэлектрическая постоянная. Гиперболическую систему уравнений (1) решаем методом характеристик [8]. Для этого в первое уравнение подставим второе:

$$\frac{\partial \rho'}{\partial t'} + \frac{\partial \rho'}{\partial r'} E' + \rho'^2 = 0.$$

Характеристиками этого уравнения являются кривые $dr'(t', t'_0)/dt' = E'$, где t'_0 — момент выхода характеристики из электрода (инъекции каждой порции заряда). Из условий на характеристике можно получить

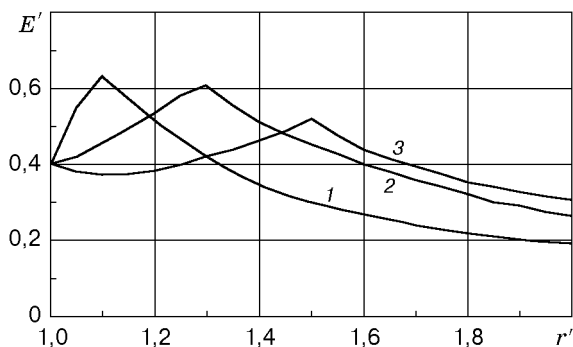
$$\frac{d\rho'}{dt'}(t', t'_0) = -\rho'^2, \quad \frac{d(E' r'^2)}{dt'}(t', t'_0) = J' r'^2$$

или после интегрирования

$$\begin{aligned} r'(t', t'_0) = 1 + 3(l(t') - l(t'_0) - Q(t'_0)(t' - t'_0))^{1/3}, \\ \rho'(r'(t', t'_0)) = \rho'_0 / (1 + (t' - t'_0)\rho'_0), \quad E'(r'(t', t'_0)) = (E'_i + Q(t') - Q(t'_0))/r'^2. \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь ρ'_0 — плотность объемного заряда в приэлектродной области в момент t'_0 ; $Q(t') = \int J'(t') dt'$; $l(t') = \int Q(t') dt'$. Подставляя (2) в уравнение полного напряжения, после преобразований получим

$$Q(t') = U'(t') - E'_i + \int_0^{t'} \frac{Q(t') [E'_i + (t' - t'_0) dQ/dt'_0]}{\{1 + 3[l(t') - l(t'_0) - Q(t'_0)(t' - t'_0)]\}^{4/3}} dt'_0. \quad (3)$$



Распределение напряженности электрического поля при инжекции носителей заряда:

1 — $t' = 0,3$; 2 — $t' = 0,6$; 3 — $t' = 1$

Для достаточно коротких импульсов напряжения уравнение (3) может быть решено методом последовательных приближений. В качестве нулевого приближения возьмем $Q'_0 = U(t') - E'_i$. Физический смысл нулевого приближения очевиден — это заряд геометрической емкости. Физический смысл Q_1 и последующих приближений заключается в увеличении емкости за счет эмиссионного объемного заряда. Выбирая критерий сходимости итерационного процесса $(Q_n - Q_{n-1})/Q_n < \delta$ (δ — заданное малое число), находим решение $Q(t')$.

На рисунке приведено распределение напряженности поля вблизи инжектирующего сферического электрода для разных моментов времени. Видно, что с течением времени минимум напряженности поля в зоне объемного заряда не остается у поверхности электрода, как в случае плоских электродов [1]. Для больших моментов времени объемный заряд распределяется по промежутку, так что максимум напряженности восстанавливается на электроде.

Из безразмерной величины $Q(t')$ можно получить оценки для нагрева жидкости ΔT и уменьшения давления ΔP в приэлектродной области в предпробивных условиях [5]

$$\Delta T = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon E_0^2}{c_p d} Q(t') E'_i, \quad \Delta P = \varepsilon_0 \varepsilon E_0^2 \frac{d}{dt} (Q - U'). \quad (4)$$

Здесь c_p , d — теплоемкость и плотность жидкости; E_0 — напряженность поля в отсутствие инжекции.

Анализ экспериментальных данных. При анализе экспериментов нужно учитывать, что достоверно неизвестно, являются ли пузырьки следствием ионизационных процессов в жидкости, преобразования микропузырька (микророзродыша) в “макропузырек” или неионизационных предпробивных процессов.

Оценки (4) показывают, что для условий экспериментов по исследованию предпробивных процессов в нитробензоле при $E_0 \approx 1$ МВ/см, $E'_i \approx 0,5$ [5] изменение температуры пренебрежимо мало ($\Delta T < 1$ К), определяющим фактором для возникновения пузырьков является отрицательное давление, составляющее до 1 МПа.

В экспериментах по измерению зависимости тока от напряжения при использовании системы электродов острие — плоскость с радиусом острия 0,5–10 мкм установлено:

- при указанной напряженности возникают короткие импульсы тока (менее 4 нс);
- инжектированный за импульс заряд определяется только радиусом кривизны и не зависит ни от приложенного напряжения, ни от давления;
- период времени между импульсами стабильно уменьшается с ростом напряжения;
- каждый импульс порождает пузырек у острия, размер и время жизни которого зависят от внешнего давления.

Из приведенных фактов следует, что в неполярных жидкостях напряженность начала ударной ионизации составляет несколько мегавольт на сантиметр, например для пентана и декана 7 МВ/см [9].

Рассмотрим образование пузырьков в приэлектродной области за счет инжекционных процессов. Непосредственно применить результаты расчета нестационарного инжекционного тока невозможно, поскольку в работе [9] условия протекания тока практически стационарны. Судя по напряженности поля, режим протекания тока близок к режиму ТООЗ.

Плотность заряда ρ при переходе к режиму ТООЗ оценивается как $\rho \sim \varepsilon_0 \varepsilon E_l / r_l$, где E_l — напряженность поля вблизи микроострия радиуса r_l , при которой ток переходит в режим ТООЗ. При эмиссии носителей заряда в режиме ТООЗ энерговыделение составляет

$$W \approx \rho \mu E_l^2 t \sim \varepsilon_0 \varepsilon \mu E_l^3 t / r_l. \quad (5)$$

При этом давление вблизи микроострия меньше атмосферного давления P_a из-за действия кулоновских сил на объемный заряд, т. е.

$$P = P_a - \frac{J r_l}{\mu} \sim P_a - \varepsilon_0 \varepsilon E_l^2. \quad (6)$$

Из оценок (5), (6) следует, что при достаточно высокой E_l в микрообласти должны возникать перегрев и кавитация вблизи микроострия. Это означает, что образование микропузырьков при достаточно высокой локальной напряженности возможно и во время действия импульса напряжения, причем практически при любой длительности импульса напряжения.

Проанализируем результаты работы [9] применительно к пузырьковой модели [10] с учетом эмиссии носителей заряда. Будем считать, что при напряженности поля около 7 МВ/см эмиссия электронов меняется с тока, ограниченного инжекцией (ТОИ), на ТООЗ. Плотность объемного заряда для острия радиусом 1 мкм равна примерно 0,01 Кл/см³. При подвижности носителей заряда $10^{-3} \div 10^{-4}$ см²/(В · с) плотность тока составит $7 \div 70$ А/см², отрицательное давление в установившемся режиме 7 МПа, а энерговыделение достигнет 1 кДж/см³ за 20–200 мкс. Диффузия тепла из области микроострия уменьшает температуру в приэлектродной области, но не влияет на уровень отрицательного давления. Поэтому вблизи микроострия должна возникать метастабильная область, в основном за счет отрицательного давления, что приводит к генерированию пузырька в результате гомогенной нуклеации. При высокой подвижности носителей заряда более сильным фактором становится перегрев жидкости, а при низкой подвижности — натяжение.

Скорость роста пузырька определяется степенью перегрева. Верхней оценкой скорости является скорость звука, нижней — характерная скорость рэлеевских пульсаций. Время роста пузырька до радиуса 1 мкм оценивается $1 \div 10$ нс. Объемный заряд, находящийся в приэлектродной зоне, выталкивается растущим пузырьком, что проявляется во внешней электрической цепи импульсом тока, длительность которого равна времени роста пузырька. Размер пузырька определяется радиусом скругления острия, значит, заряд, выталкиваемый пузырьком из зоны сильного поля, также определяется радиусом острия.

При гомогенной нуклеации частота S образования пузырьков в единице объема определяется глубиной проникновения в метастабильную область [11] и может быть записана в виде

$$S = \left[N \exp \left(- \frac{\lambda}{kT} \right) \left(\frac{2\sigma}{\pi m} \right)^{1/2} \right] \exp \left(\frac{-16\pi\sigma^3}{3kT(P_s(T) - P_a + \varepsilon_0 \varepsilon E_l^2)^2} \right). \quad (7)$$

Здесь N — концентрация молекул; m — молекулярная масса; λ — теплота парообразования; k — постоянная Больцмана; T — температура; σ — коэффициент поверхностного натяжения; $P_s(T)$ — давление насыщенных паров. Анализ зависимости (7) показывает, что выражение в квадратных скобках является большой величиной (10^{30} см³/с), слабо зависящей от глубины проникновения в метастабильную область. Определяющую роль играет

второй сомножитель, равный нулю на линии равновесия пар — жидкость, быстро возрастающий по мере удаления от линии равновесия, достигая при этом единицы в критической точке. В свою очередь, возможность глубокого проникания в метастабильную область сильно зависит от локальной напряженности. Это следует из приведенных ниже соображений. Если отрицательное давление и перегрев возникают до перехода режима ТОИ в ТООЗ, то энерговыделение будет экспоненциально зависеть от напряжения. В режиме ТООЗ энерговыделение имеет кубическую зависимость от напряжения. Зависимость частоты образования пузырьков от напряжения должна иметь пороговый характер в режиме как ТОИ, так и ТООЗ. Следовательно, образование пузырьков в зависимости от напряжения также должно носить пороговый характер. При этом порог по напряжению практически не зависит от давления, так как энерговыделение и отрицательное давление определяются эмиссионными процессами, и даже слабые изменения локальной напряженности компенсируют любые реальные изменения внешнего давления. Размер образовавшегося пузырька зависит от внешнего давления. Сброс перегрева в пузырек приводит к охлаждению приэлектродной области. Пузырек выбрасывается из нее за счет электрогидродинамических течений и диэлектрофоретической силы, охлаждается и схлопывается в соответствии с известной моделью рэлеевских пульсаций. После этого процесс повторяется: энерговыделение, отрицательное давление, образование пузырька и т. д. Период зависит от напряжения: чем больше напряжение, тем меньше период следования импульсов. При этом заряд, накапливаемый в приэлектродной области в режиме ТООЗ за период, практически не зависит от приложенного напряжения.

Указанным механизмом можно объяснить и появление пузырьков вблизи микроострия на поверхности плоских электродов в сильных электрических полях [11]. Как правило, вблизи микроострия поле увеличивается в 30–200 раз [12]. Это означает, что напряженность эмиссии 10 МВ/см будет достигнута уже при средней напряженности 100 кВ/см, т. е. в обычных условиях проведения экспериментов по пробое жидкостей. В свою очередь, это означает, что практически во всех “пробойных” экспериментах могло происходить образование микропузырьков неионизационного происхождения непосредственно во время действия импульса напряжения.

Заключение. Таким образом, анализ инжекционных токов и связанных с ними энерговыделения и отрицательного давления позволяет объяснить известные эксперименты по обнаружению предпробивных микропузырьков без использования гипотезы об ударной ионизации в жидкой фазе на предпробивной стадии.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ламперт М., Марк П. Инжекционные токи в твердых телах. М.: Мир, 1973.
2. Руденко А. И. Нестационарные токи, ограниченные пространственным зарядом при сферической геометрии // Физика и техника полупроводников. 1974. Т. 8, вып. 10. С. 1928–1935.
3. Schmidt W. F., Shnabel W. Electron injection into dielectric liquids by fields emission // Z. Naturforsch. 1971. V. 26. S. 169, 170.
4. Dotoku K., Yamada H., Sakamoto S., et al. Field emission into nonpolar organic liquids // J. Chem. Phys. 1978. V. 69. P. 1121–1126.
5. Коробейников С. М., Яншин К. В., Яншин Э. В. Предпробойные процессы в жидкой изоляции при импульсном напряжении // Импульсный разряд в диэлектриках: Сб. науч. тр. Новосибирск: Наука. Сиб. отд-ние, 1985. С. 99–114.
6. Коробейников С. М. Пузырьковая модель зажигания импульсного электрического разряда в жидкостях: Автореф. дис. ... д-ра физ.-мат. наук. Томск, 1998.
7. Felici N. J. Electrostatics and hydrodynamics // J. Electrostatics. 1977/1978. V. 4. P. 119–139.

8. **Годунов С. К.** Уравнения математической физики. М.: Наука, 1979.
9. **Kattan R., Denat A., Lesaint O.** Generation, growth, and collapse of vapor bubbles in hydrocarbon liquids under a high divergent electric field // J. Appl. Phys. 1989. V. 66. P. 4062–4066.
10. **Коробейников С. М.** О роли пузырьков в электрическом пробое жидкостей. Предпробойные процессы // Теплофизика высоких температур. 1998. Т. 36, № 3. С. 362–367.
11. **Jones H. M., Kunhardt E. E.** Development of pulsed dielectric breakdown in liquids // J. Phys. D. 1995. V. 28. P. 178–188.
12. **Королев Ю. Д., Месяц Г. А.** Физика импульсного пробоя газов. М.: Наука, 1991.

*Поступила в редакцию 12/II 1999 г.,
в окончательном варианте — 23/III 2000 г.*
