

Б. БРОДСКАЯ, Р. ЭЙСКОП, А. ПАЮ

ОСОБЕННОСТИ РАЗВИТИЯ ИМПУЛЬСНЫХ РАЗРЯДОВ В СИЛЬНОПРОВОДЯЩИХ ЖИДКОСТЯХ

Как показали наши исследования, для проведения химических реакций необходимо организовать импульсный разряд в жидкостях, обладающих резко различной проводимостью, в диапазоне от 10^{-5} до $0,1 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ [1-3].

При изучении пробоя жидкостей с различной проводимостью предел проводимости изучаемых сред составлял в основном от 10^{-14} до $10^{-4} \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ [4, 5]. Разряд в жидкостях с более сильной проводимостью изучался небольшим числом исследователей [6, 7].

Установлено, что с повышением электропроводности раствора снижаются значения критических напряжений, увеличивается число и яркость ветвей и уменьшается скорость их развития. Г. А. Остроумов с сотрудниками [7, 8] обнаружили ряд особенностей развития разряда в электролитах и показали, что в жидкостях с проводимостью свыше $0,1 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ пробой отсутствует даже при малых разрядных промежутках (0,25 мм). Они показали также, что род ионов имеет второстепенное значение в процессе пробоя. Необходимо отметить, что в указанных работах энергия, вводимая в разрядный промежуток, составляла 20 дж. Из анализа литературных данных следует, что в настоящее время отсутствуют экспериментально обоснованные представления о развитии импульсного разряда в жидких средах с разной проводимостью на больших промежутках при резко неоднородном поле.

В настоящем сообщении приведены некоторые закономерности развития разряда в электролитах (щелочных, нейтральных и кислых средах) в зависимости от параметров разрядного контура, электрофизических свойств среды, полярности и геометрии разрядного промежутка.

Методика

Исследование разрядов проводилось на установке, принципиальная схема которой изображена на рис. 1. Импульсная высоковольтная установка позволила изменять параметры разряда в широком диапазоне: напряжение с крутым фронтом $\tau = 10^{-7} \text{ сек}$ — до 50 кВ, емкостью C от 0,044 до 3 мкФ, с максимальной индуктивностью контура L 6,3 мкГн [1].

Сигналы тока и напряжения подавались на пластины осциллографа ОК-17. Сигналы тока снимались с безындукционных трубчатых шунтов, сигналы напряжения на разрядном промежутке подавались на осциллограф через емкостный или омический делитель. Параллельно процесс развития разрядов исследовался фотографически.

Производилось интегральное (статическое) фотографирование процесса фотоаппаратом «Зенит» с применением различных светофильтров и скоростное фотографирование разряда с помощью фоторегистрирующей установки СФР-2М в режиме лупы времени; скорость съемки была $1,5 \cdot 10^6$ кадров/сек. Разряд инициировался высоковольтным им-

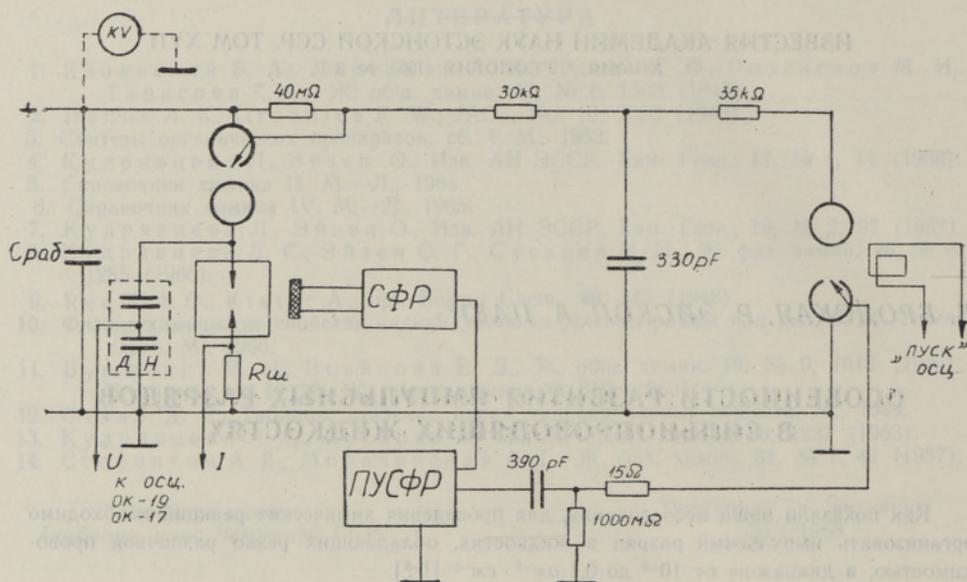


Рис. 1. Принципиальная схема импульсной установки.

пульсом, поступающим от СФР-2М. Таким образом, синхронно с оптической картиной разряда регистрировались напряжение на разрядном промежутке и ток.

Исследование проводилось в герметичных реакторах: в стальном реакторе цилиндрической формы, позволяющем изменять емкость, и в плексиглазовом реакторе прямоугольной формы, с отверстиями для производства фотоснимков, отбора проб газа и жидкости. Процесс развития разрядов изучался для симметричного искрового промежутка типа острие — острие С—С (точечные электроды) и несимметричного острие — плоскость С—П при различных полярностях импульсных напряжений и межэлектродных расстояниях от 3 до 20 мм.

Разряды исследовались в щелочных (KOH), кислых (H_2SO_4 , раствор Фрике) и нейтральных средах (NaCl, KCl). Изменение электропроводности достигалось различной концентрацией электролита в растворе. Электропроводность исследуемой жидкости измерялась кондуктометром ММЗЧ-64. Кондуктометрический датчик представлял собой сосуд с двумя платиновыми электродами.

В отдельных случаях основные электрические характеристики разряда определялись графо-аналитическим методом, с использованием зависимости и закона сохранения энергии для цепи, состоящей из последовательного соединения C , L и R [9]:

$$P_k = d \frac{Li^2}{2} / dt + d \frac{Cu^2}{2} / dt.$$

Результаты такого графического построения позволили разделить зарегистрированное на осциллограмме напряжение $U = f(t)$ на активную $U_R = R_k(t)$, индуктивную $U_L = L_k(t) di/dt$ и емкостную $U_C = U_0 - 1/C \int idt$ составляющие и проследить за их изменением в ходе разряда, а также за изменением во времени сопротивления плазменного канала. Для определения изменения удельного сопротивления ρ и плотности тока γ в период образования и расширения плазмы производились также скоростные снимки.

Результаты исследований

Всего было проведено около тысячи опытов. Параллельные опыты с сильно проводящими электролитами отличались хорошей воспроизводимостью.

Исследования показали, что в изучаемых электролитах с электропроводностью до $0,1 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ возможно образование плазменного пробоя.

Изменение концентрации электролита приводит, при прочих равных условиях, к изменению характера развития разряда. С уменьшением электропроводности с 10^{-1} до $10^{-5} \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ средняя скорость развития светящихся ионизированных ветвей возрастает от (0,4—1,2) до (20—40) км/сек, а ветвистость уменьшается от (20—30) до (1—3).

Для иллюстрации на рис. 2 и 3 приведены скоростная фотография развития разряда, осциллограммы тока и напряжения в растворе NaCl при различной проводимости (рис. 2, 3). Как видно из рисунков, в одном случае образуется мощный плазменный пробой, в другом — густая сеть самосветящихся ветвей, отходящих от электродов. Осциллограммы показали, что следует различать два режима разряда — режим пробоя с периодически затухающим разрядом, с характерным срывом напряжения и скачком тока и режим стекания заряда конденсаторов в среду с характерным плавным спадом напряжения.

Отсутствие пробоя в случае повышенной проводимости электролитов обусловлено несоответствием параметров разрядной цепи.

При увеличении энергии (разрядной емкости) или уменьшении межэлектродного промежутка плазменный пробой происходит и во втором случае, при более высоких значениях проводимости.

В табл. 1 приведены основные показатели развития разрядов в дозиметрическом растворе Фрике $\gamma = 0,135 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ при расстояниях между точечными электродами от 3 до 20 мм и энергии единичных импульсов от 45 до 1300 дж.

Приведенные данные являются усредненными по результатам пяти-восьми измерений и вычислений.

С увеличением межэлектродного промежутка в бесплазменном режиме длина самосветящихся ветвей почти не изменяется и средняя скорость их прорастания снижается (при прочих равных условиях) незначительно. Таким образом, для образования ионизированных ветвей решающее значение имеет распределение градиентов электростатического поля в приэлектродной области.

Одной из особенностей развития разряда в сильнопроводящих жидкостях является соизмеримость максимальных значений токов при стекании заряда конденсаторов и при пробое, измеряемых килоамперами.

Развитие разряда в концентрированных электролитах $\gamma = 0,1$ до $10^{-3} \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ сопровождается образованием густой сети самосветящихся ветвей, развивающихся от острия при любой полярности.

Увеличение разрядной емкости при неизменном напряжении приводит к интенсификации ионизационных процессов, выражающихся в распространении ветвей по силовым линиям электрического тока вглубь разрядного промежутка. Перекрытие межэлектродного пространства происходит в результате преобладающего развития одной или нескольких близко расположенных друг к другу ветвей.

При дальнейшем незначительном увеличении емкости происходит плазменный пробой.

Процессы электролиза и газовой выделения играют значительную роль в развитии разрядов.

О роли ионизационных процессов до образования пробоя свидетельствуют результаты определения выхода окисленного железа в зависимости от мощности дозы, которые близки к данным радиационно-химического окисления [2].

Таблица 1
 Основные показатели развития разрядов в растворе Фрике ($\gamma = 0,135 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$)
 при различных расстояниях между точечными электродами и разрядной емкости
 $U = 30 \text{ кв}$

Показатели	A = 45 Дж, C = 0,1 мкФ					A = 270 Дж, C = 0,6 мкФ					A = 540 Дж, C = 1,2 мкФ					A = 1,3 · 10 ³ Дж, C = 3,0 мкФ				
	при межэлектродном промежутке, мм																			
	3	5	8	10	20	5	8	10	15	20	8	10	15	20	8	10	15	20		
Максимальный ток, ка	3,2*	1,7	1,7	1,6	1,5	5,4*	3,8	3,7	3,2	3,2	6,7*	5,7	4,7	4,6	11,4*	10,6*	6,9	6,9		
Продолжительность разряда, мксек	2,3	2,9	2,8	2,8	3,0	6,9	7,2	7,9	8	8,5	10,2	11	11	12	17	18	19	19,5		
Максимальная мощность, ква	22	23	24	24	27	41	45	49	48	44	65	67	63	65	76	75	75	78		
к. п. д., %	75	70	71	74	95	70	51	60	66	68	63	58	58	63	60	58	54	54		
Длина «+» ветвей, мм	—	2,4	1,8	1,6	1,6	—	4,6	4,4	4,2	4,2	—	6,4	6,0	5,9	—	—	11	11		
Длина «-» ветвей, мм	—	1,0	1,2	1,2	1,2	—	3,0	3,0	2,5	2,0	—	3,4	3,7	3,7	—	—	5,4	6,0		
Средняя скорость разветвляния «+» ветвей, км/сек	2,5	0,7	0,6	0,5	0,5	1,6	0,7	0,6	0,5	0,5	1,5	0,6	0,6	0,4	1,2	—	0,6	0,6		
Средняя скорость разветвляния «-» ветвей, км/сек	—	0,4	0,4	0,4	0,4	—	0,4	0,4	0,3	0,2	—	0,4	0,3	0,3	—	—	0,3	0,3		

* Режим плазменного пробоя.

Таблица 2

Основные показатели развития импульсных разрядов в водных растворах при одинаковой электропроводности $L = 15$ мм, $\gamma = 0,135$ ом⁻¹·см⁻¹, $U = 30$ кв

Показатели	H ₂ SO ₄			KOH			NaCl		
	при емкости, мкф								
	0,6	1,2	2,4	0,6	1,2	2,4	0,6	1,2	2,4
Максимальный ток, ка	3,0	4,45	5,8	2,7	3,7	5,0	3,0	3,9	5,3
Продолжительность разряда, мксек	8,8	11,2	16,2	8,75	13,7	17,5	8,7	11,2	15,0
Мощность разряда, квт	63,0	74,0	93,2	64,2	73,0	92,2	55,7	69,0	80,0
к. п. д., %	96,4	73,3	65,5	99,4	80,8	72,5	88,0	68,5	66,5
Сопротивление, ом	4,0	1,5	0,12	4,0	2,3	2,2	4,0	2,0	1,0
Энергия, дж	260	395	706	268	390	781	260	369	718
Длина «+» ветвей, мм	6,3	5,6	5,0	6,3	4,5	4,3	6,3	5,6	4,3
Длина «-» ветвей, мм	4,5	5,0	10	3,0	4,0	5,0	3,0	3,5	5,0
Скорость развития «+» ветвей, мк/сек	2,5	3,0	5,0	2,5	3,5	4,0	2,5	3,0	4,0
Скорость развития «-» ветвей, мк/сек	1,12	0,94	1,0	0,75	0,53	0,53	0,75	0,66	0,53
Время до максимального свечения, мксек	4,0	5,3	10,0	4,0	6,6	9,35	4,0	5,32	9,35
Время свечения, мксек	15,3	22,0	48,6	33,3	48,0	58,6	44,6	65,3	106

При одинаковой высокой электропроводности и вводимой в разрядный промежуток энергии от 50 до 1000 дж наблюдается различие в развитии разрядов в зависимости от рода ионов и их концентрации в водном растворе.

Это можно проиллюстрировать данными о действии разрядов в средах, характеризующихся различной рН: H₂SO₄, KOH и NaCl. Электропроводность всех трех растворов равна 0,135 ом⁻¹·см⁻¹. При отсутствии плазменного пробоя осциллограммы тока и напряжения почти одинаковы. Различие отмечается лишь при сопоставлении скоростных фотографий (см. рис. 4).

В начале процесса наблюдается эмиссионное свечение у катода. При дальнейшем развитии ветвей это явление не играет существенной роли.

В кислой среде происходит развитие ветвей преимущественно от положительного электрода. В щелочной и нейтральной средах полярность выражена слабо. Различие отмечается в продолжительности видимого свечения — от максимальной интенсивности до полного затухания. Этот период наибольший у NaCl и наименьший у H₂SO₄. Различие в развитии разряда в зависимости от рода ионов обнаруживается еще больше при увеличении разрядной емкости. На рис. 5 приведены скоростные фотографии тех же растворов электролитов и при энергии, равной 1000 дж.

Как видно из рис. 5, в растворе H₂SO₄ соединение самосветящихся каналов привело к образованию плазменного пробоя. В случае растворов KOH и NaCl увеличение энергии до 1000 дж приводило лишь к увеличению объема самосветящейся зоны. Осциллограммы тока и напряжения (см. рис. 6) различны и подтверждают образование плазменного пробоя в растворе H₂SO₄ с характерным срывом напряжения и незначительным скачком тока.

Основные показатели развития импульсных разрядов в водных раст-

ворах при одинаковой электропроводности и различных параметрах разрядной цепи приведены в табл. 2. Эти данные подтверждают, что род ионов влияет на развитие импульсных разрядов.

При развитии разрядов в сильных электролитах, так же как и в других жидкостях, наблюдается эффект полярности [4-7].

В наших опытах отличительной особенностью является меньшая выраженность этого эффекта и зависимость не только от электропроводности раствора, но и от рода ионов и величины подводимой энергии.

С увеличением электропроводности растворов эффект полярности уменьшается.

При значительном увеличении концентрации электролита решающую роль в развитии каналов играют токи проводимости и меньшую — ионизационные процессы.

Этим, по-видимому, можно объяснить тот факт, что ветви развиваются как от положительных, так и от отрицательных электродов. Образование большого числа ветвей приводит к изменению градиента поля острия, к выравниванию поля и созданию эквивалентных условий для образования светящихся ветвей вдоль любой из силовых линий.

Выводы

Установлена возможность развития плазменного пробоя в сильных электролитах (кислых, щелочных и нейтральных средах). Выявлены особенности развития ионизированных ветвей в зависимости от электропроводности и концентрации растворов и от рода ионов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Бродская Б., Изв. АН ЭССР, Сер. физ.-матем. и техн. наук, **15**, № 3, 454 (1966).
2. Губергриц М., Бродская Б., Паальме Л., Изв. АН ЭССР, Серия физ.-матем. и техн. наук, **15**, № 3, 462 (1966).
3. Бродская Б., Паальме Л., Губергриц М., Развитие электрических разрядов при ведении химических реакций в жидкостях различной проводимости. Тр. конф. по электрической обработке материалов, 1967 г., АН МССР (в печати).
4. Бальгин И. Е., Электрическая прочность жидких диэлектриков, М.—Л., 1964.
5. Пробой диэлектриков и полупроводников, Сб. докл. на IV Межвузовской конференции по пробую диэлектриков и полупроводников, «Энергия», 1964.
6. Кужикин И. П., ЖТФ, **36**, вып. 9 (1966).
7. Мельников Н. П., Остроумов Г. А., Стояк М. Ю., ЖТФ, **39**, вып. 4 (1964).
8. Стояк М. Ю., Электронная обработка материалов, № 4, 6 (1966).
9. Андреев С. И., Ванюков М. И., ЖТФ, **31**, вып. 9, 61 (1965).

Институт химии
Академии наук Эстонской ССР

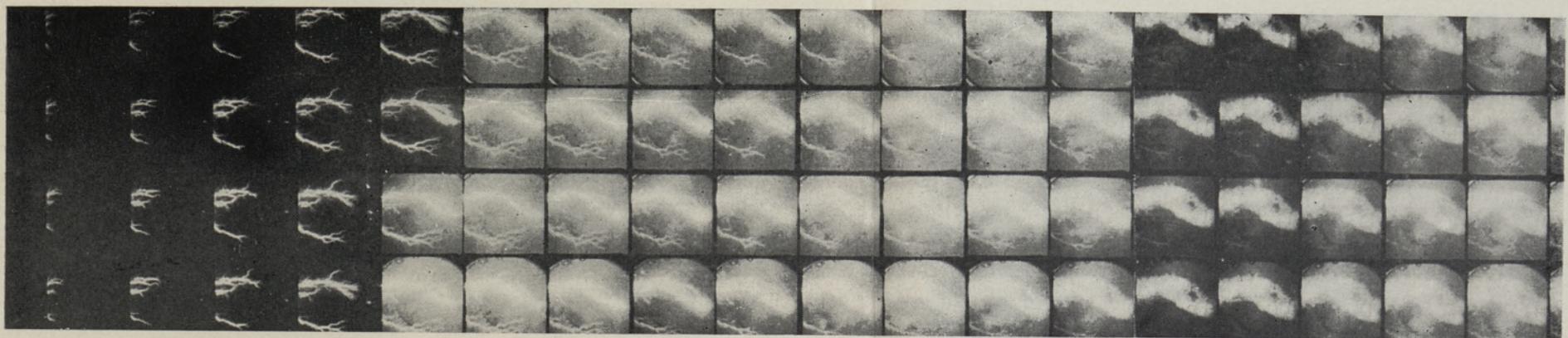
Поступила в редакцию
12/III 1968

B. BRODSKAJA, R. EISKOP, A. PAJU

IMPULSSLAHENDUSTE ARENEMISE ISEÄRASUSED HEA ELEKTRIJUHTIVUSEGA VEDELIKES

Kõrgepinge elektrilahenduste arenemise elektrofüüsikalisel uurimisel erineva elektrijuhtivusega vedelikes saadi piisavaid lähteandmeid tarvilike režiimide loomiseks, mis peavad kindlustama keemiliste reaktsioonide kulgemise happelistes, leeliselistes ja neutraalsetes keskkondades.

Keemiliste reaktsioonide teostumiseks, sõltuvalt nende iseloomust, on vaja organiseerida impulsslahendus vedelikes, mille elektrijuhtivus on diapsoonis 10^{-5} kuni $0,1 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$.



1



2

Рис. 2. Скоростная фотография развития разряда ($1,5 \cdot 10^6$ кадр/сек) в растворе NaCl при различной проводимости:
 1 — $\gamma = 3,3 \cdot 10^{-3} \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ ($K = 0,26\%$); 2 — $\gamma = 0,135 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ ($K = 11\%$); $U = 30 \text{ кв}$; $C = 2,4 \text{ мкф}$; $L = 25 \text{ мм}$.

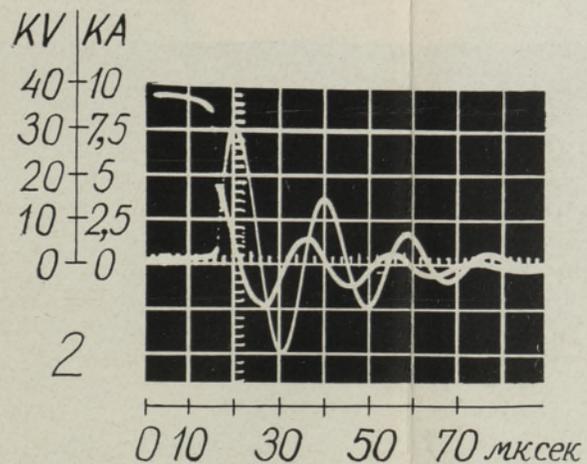
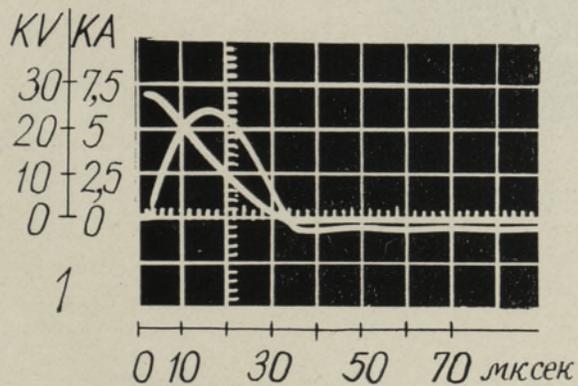
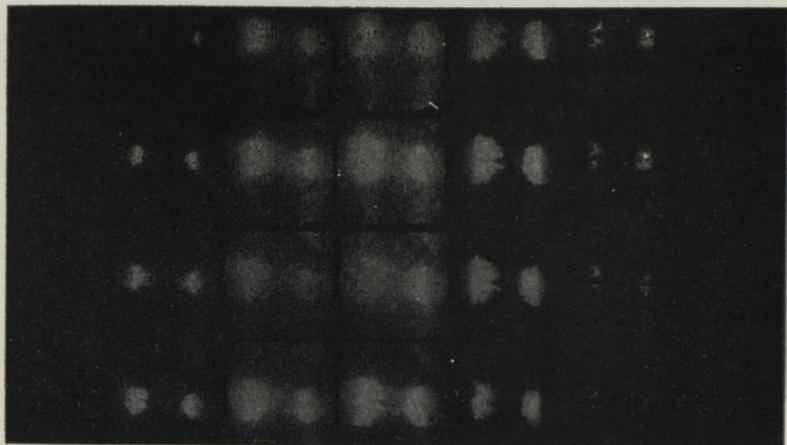


Рис. 3. Осциллограммы тока и напряжения для раствора NaCl с различной проводимостью ($U = 30 \text{ кв}$; $C = 2,4 \text{ мкф}$, $L = 25 \text{ мм}$):

1 — $\gamma = 3,3 \cdot 10^{-3} \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ ($K = 0,26\%$);

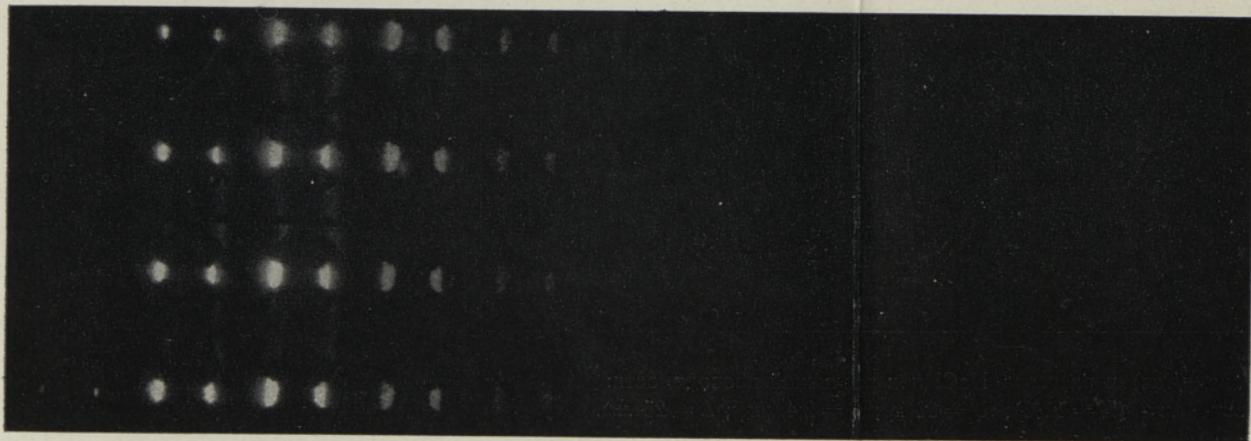
2 — $\gamma = 0,135 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ ($K = 11\%$).



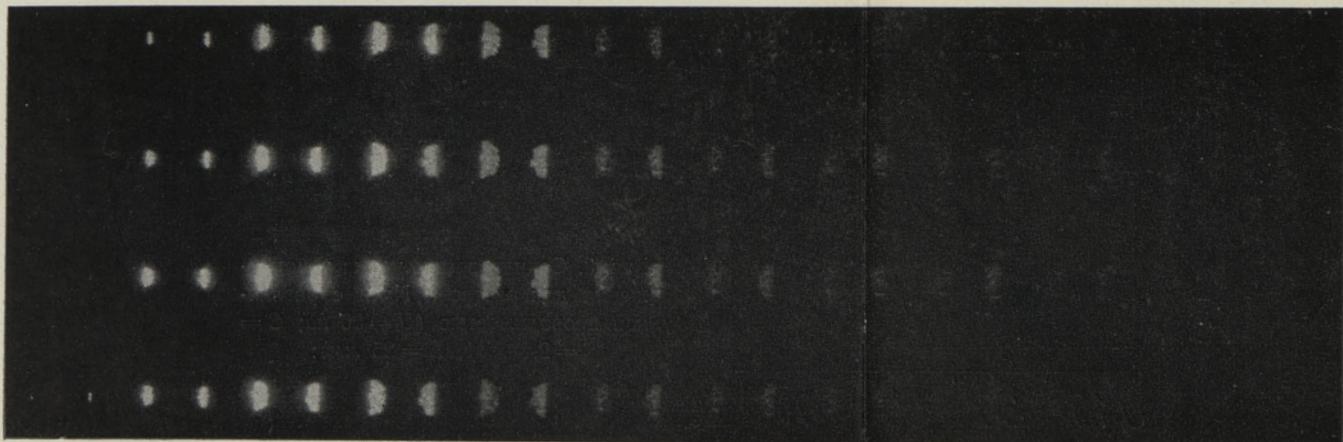
1

Рис. 4. Скоростная фотография развития разряда ($1,5 \cdot 10^6$ кадр/сек) в электролитах с одинаковой электропроводностью $\gamma = 0,135 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ и с энергией $A = 250 \text{ дж}$, вводимой в разрядный промежуток:

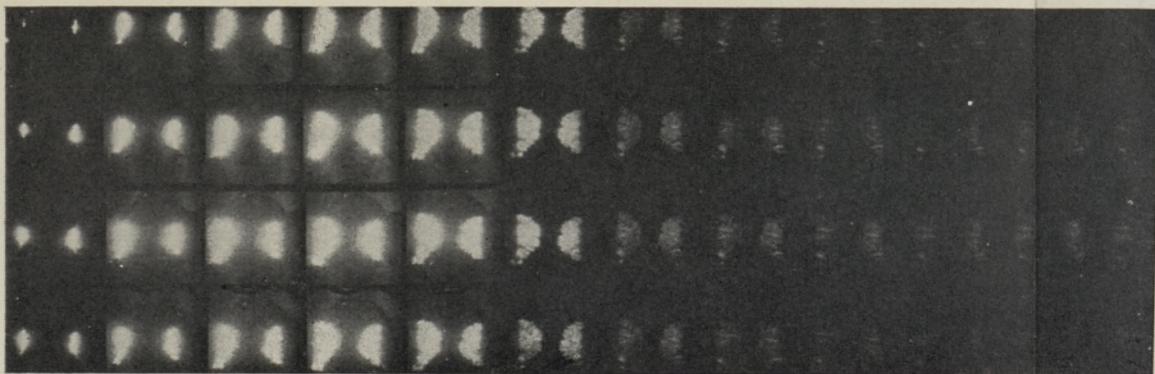
- 1 — H_2SO_4 ;
- 2 — KOH ;
- 3 — NaCl .



2



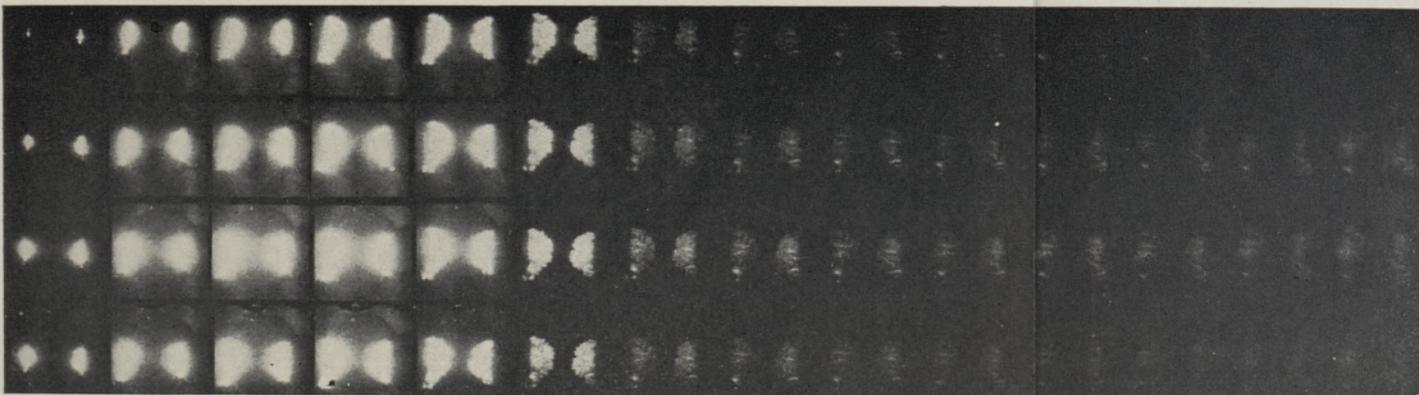
3



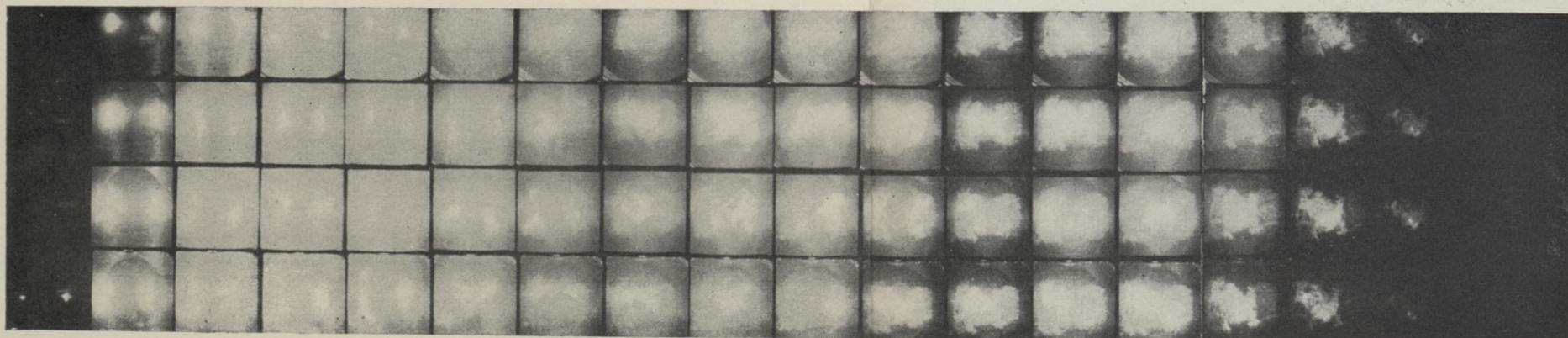
1

Рис. 5. Скоростная фотография развития разряда ($1,5 \cdot 10^6$ кадр/сек в электролитах с одинаковой электропроводностью $\gamma = 0,135 \text{ ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ и с энергией $A = 100 \text{ Дж}$, вводимой в разрядный промежуток:

- 1 — NaCl;
- 2 — KOH;
- 3 — H₂SO₄.



2



3

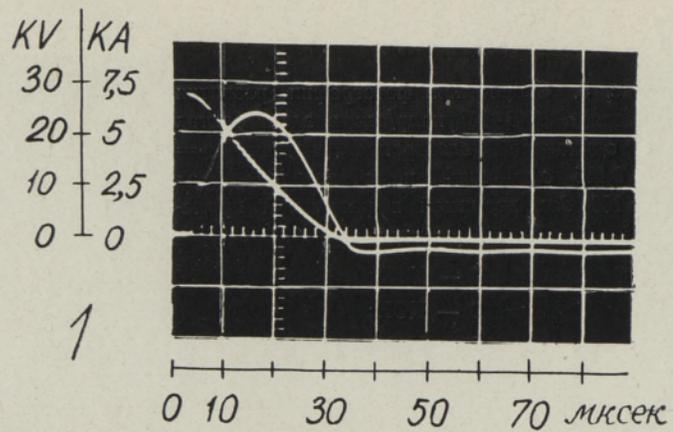
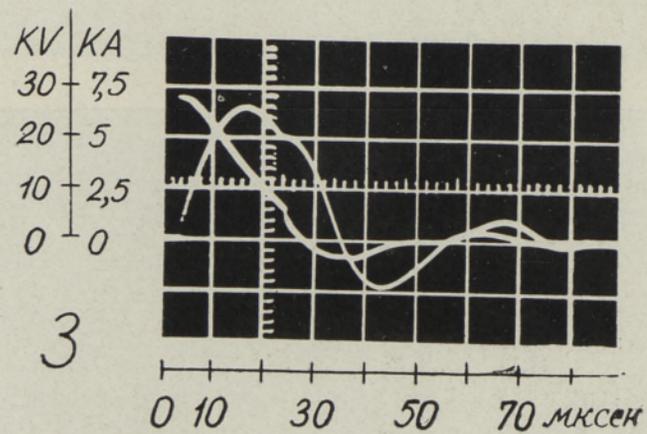
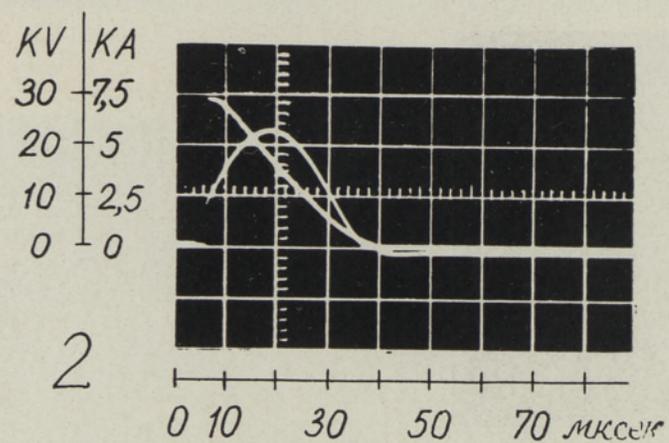


Рис. 6. Осциллограммы тока и напряжения для растворов с одинаковой электропроводностью $\gamma = 0,135 \cdot \text{ом}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ и энергией $A = 1000 \text{ Дж}$, вводимой в разрядный промежуток:

- 1 — NaCl;
- 2 — KOH;
- 3 — H₂O₄.



Artiklis on näidatud plasmalise läbilöögi teostatavus hästi juhitavais vedelikes ja ioniseeritud harude arenemise iseärasused.

Optilise uurimise tulemusena tehti ülikirkaameraga fotografeerides kindlaks, et ühesuguste katsetingimuste korral kasvab elektrijuhtivuse (kontsentratsiooni) vähenemisel isehelenduvate ioniseeritud harude arenemise kiirus, väheneb hargnevus ja kergenevad plasmalise läbilöögi tingimused.

Uuriti polaarsuse mõju ioniseeritud harude arenemisele. Näidati, et numbrilised erinevused sõltuvad lahuse elektrijuhtivusest, tema kontsentratsioonist ja ioonide loomusest. Elektrijuhtivuse tõusuga polaarsuse erinevused vähenevad.

Elektrolüüdi ühesuguse elektrijuhtivuse puhul toimub kontsentratsiooni ümberjaotus vastavalt anoodil ja katoodil, mis veelgi süvendab polaarsuse mõju.

B. BRODSKAYA, R. EISKOP, A. PAJU

PECULIARITIES OF THE DEVELOPMENT OF PULSE DISCHARGES IN LIQUIDS OF A GOOD ELECTRICAL CONDUCTIVITY

The result of the investigation of the development of the high voltage electrical discharge in liquids of a different electrical conductivity gave sufficient initial data for the creation of the required regimes which guarantee the proceeding of the chemical reactions in acidic, basic and neutral media.

To carry out chemical reactions depending on their character requires the realisation of the pulse discharge in liquids that have electrical conductivity within the range $10^{-5} \text{ ohm}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ to $10^{-1} \text{ ohm}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$.

There in the article is shown the realizability of the plasmic break-down in liquids with the good conductivity and the peculiarities of the development of the ionized branches.

It was established by means of optical studies from photographs taken by the fast camera that by the equal conditions of the experiment with the decreasing of the electrical conductivity (concentration) the velocity of the development of the luminous ionized branches increases, the branching decreases and the conditions of the plasmic break-down lighten.

The influence of the polarity on the development of the ionized branches was studied. It was shown that numerical differences depend on the electrical conductivity of the solution, on its concentration and on the nature of the ions. With the increasing of the electrical conductivity the differences of the polarity decrease.

By the equal electrical conductivity of the electrolyte the redividing of the concentration occurs accordingly by the anode and by the cathode which strenghtens the influence of the polarity.