

Особенности термической эрозии катода тлеющего разряда атмосферного давления в потоке аргона

*К.П. Савкин**, Д.А. Сорокин, Д.В. Белоплотов, А.Г. Николаев, М.В. Шандриков,
А.С. Бугаев, В.И. Гушенец, А.А. Черкасов, К.А. Щеглов

Институт сильноточной электроники СО РАН, Томск, Россия

**savkin@opee.hcei.tsc.ru*

Аннотация. Представлены результаты исследования эрозии материала катода тлеющего разряда при атмосферном давлении в потоке аргона в режиме электропитания униполярными импульсами напряжения. Частота следования импульсов составляла до 100 кГц при их длительности несколько микросекунд. Амплитуда импульсов тока составляла от 500 до 800 мА. Присутствие продуктов эрозии катодного материала в плазме определялось по наличию ионных и атомарных линий металла в спектре её излучения, а также в результате анализа порошковых материалов, получаемых в процессе функционирования разрядной системы. Показано, что в зависимости от способа создания температурных условий необходимых для эрозии катода, формируются наночастицы, которые отличаются по морфологии и химическому составу.

Ключевые слова: тлеющий разряд, атмосферное давление, газоразрядная плазма, термическая эрозия, атомы металлов, излучение, наночастицы.

1. Введение

Системы электродов неизбежно подвергаются разрушающему воздействию в результате электрической эрозии в катодных и анодных пятнах в коронном, искровом или дуговом разрядах [1], при ионном распылении в тлеющих разрядах, в том числе и при атмосферном давлении [2], а также вследствие тепловых нагрузок при джоулевым и радиационном нагреве. В разрядах при атмосферном давлении достаточно просто обеспечить условия, при которых даже для весьма умеренных параметров разряда, напряжения ≈ 500 В и тока ≈ 100 мА, плотность мощности может достигать существенных значений уровня 10 кВт/см³, вследствие локализации разрядной плазмы в объеме нескольких долей кубических сантиметров [3]. Это также способствует возникновению тепловой неустойчивости, приводящей, в конечном итоге, к переходу разряда в искровой режим с катодными пятнами [4]. Их функционирование сопровождается разлётом микрокапель расплавленного металла – материала катода, что является одним из механизмов инициирования очередных центров взрывной электронной эмиссии [5]. В результате теплового воздействия происходит эрозия в виде потока атомов материала электродов, который формируется при испарении или сублимации. Таким образом, продукты эрозии в первом случае являются отдельными микрокаплями или их кластерами, имеющими размеры от нескольких единиц до нескольких десятков микрометров, а во втором – субмикронными агломератами наноразмерных кристаллитов.

Одним из направлений дальнейшего развития физики разрядов при атмосферном давлении является исследование режимов генерации плазменных потоков с высоким содержанием атомных частиц металлов, когда катод подвергается эрозии в результате теплового воздействия со стороны приэлектродной области в столбе плазмы разряда [6]. Кроме того, что в этом случае реализуются условия горения тлеющего разряда со стабильными параметрами без перехода в искровую или дуговую форму, при этих условиях удается получать ультрадисперсные порошки оксидов металлов с приемлемой производительностью до 2 грамм за 1 час [7]. Целью настоящей работы было выявление

условий, обеспечивающих такой режим тлеющего разряда, а также его исследование в зависимости от конструктивных особенностей катодного узла, а также сравнение с эрозией, обеспечиваемой в идентичных температурных и газодинамических условиях с применением косвенного нагрева материала катода, предназначенного для эрозии.

2. Постановка эксперимента

Подробное описание конструкции разрядной системы генератора плазмы атмосферного давления, особенностей его электропитания и диагностики электрических параметров представлено в работе [6].

При помощи монохроматора МДР-23 ЛОМО и системы фокусирующих линз излучение плазмы подавалось на входную апертуру фотоэлектронного умножителя (ФЭУ) Hamamatsu H7732-10. Таким образом, производилось исследование зависимостей от времени фототоков, пропорциональных интенсивности оптического излучения. В монохроматоре была установлена решётка, имеющая 1200 штрихов/мм, что обеспечивало величину обратной линейной дисперсии 13 Å/мм. Ширина входной и выходной щелей монохроматора при этом была 30 мкм. Спектральное разрешение в этом случае составляло 0.04 нм. Экспериментально измеренное спектральное разрешение оказалось несколько хуже расчётного и составляло 0.05 нм.

Покртия, сформированные при осаждении порошковых частиц, исследовались методом растровой электронной микроскопии (РЭМ) с применением электронного микроскопа Hitachi S-3400N. Элементный анализ приповерхностного слоя выполнялся с применением энергодисперсионного спектрометра Bruker XFlash на основе ЭДС-детектора 4010/5010, которым был оснащен указанный микроскоп.

3. Результаты экспериментов и их обсуждение

Осциллограммы напряжения и тока разряда, представленные на Рис. 1, нормированы на амплитудные значения: 1 – напряжение U_d на 170 В; 2 – ток I_d на 680 мА; 3 – сигнал с анода ФЭУ на 4.35 мВ. Несложно оценить, что средняя мощность разряда составляла приблизительно 90 Вт. С учетом того, что основное падение напряжения происходит в прикатодном слое, очевидно, что поток тепла передается из разряда в тело катода, температуру которого можно оценить при помощи выражения (1):

$$T_c = T_0 + ql_{csh}\lambda^{-1}, \quad (1)$$

где $T_0 = 300$ К – начальная температура катода, q – поток тепла, передаваемый от плазмы разряда катоду через катодный слой l_{csh} , а $\lambda = (0.04 - 0.06) \text{ Вт} \cdot (\text{м} \cdot \text{К})^{-1}$ – коэффициент теплопроводности рабочего газа аргона [8]. Оценка протяженности $l_{csh} = 2 \cdot 10^{-6}$ м была выполнена в [9], исходя из закона Чайлда-Ленгмюра. В свою очередь, q возможно оценить по формуле (2):

$$q = U_d I_d f \tau (0.25 \pi d^2)^{-1}, \quad (2)$$

где $U_d = 170$ В – напряжение разряда, $I_d = 680$ мА – ток разряда, $f = 100$ кГц – частота следования импульсов, $\tau = 7.8$ мкс – длительность импульса (рис. 1), $d = 3 \cdot 10^{-3}$ м – диаметр катодной полости, в которой размещалась цинковая вставка. После подстановки в (1) и (2) известных значений, получается, что температура катода составляла $T_c = 780$ К. Поскольку температура плавления цинка ≈ 693 К, очевидно, что мощности разряда вполне достаточно для плавления цинковой вставки.

Режим генерации потоков атомов металла явно определялся при визуальном наблюдении. Положительный столб трансформировался из нитевидного в широкий

диффузный (Рис. 2) Также изменялся состав эмиссионного спектра плазмы разряда в соответствующих диапазонах. Например, появлялось излучение с длиной волны 334.5 нм, характерное для оптических переходов в атомах цинка, индикатором которого являлся импульс тока анода фотоэлектронного умножителя, инициируемый этим излучением, выделенным из интегрального потока при помощи монохроматора (Рис. 1). Следует отметить, что излучение атомов цинка достигало амплитуды спустя ≈ 9 мкс с момента инициирования тока разряда, а именно во временных промежутках между импульсами тока. На фронте импульса тока, напротив, наблюдалось снижение интенсивности излучения, которая через 1.1 мкс возрастала до 70% от амплитудного значения, а затем незначительно уменьшалась к моменту завершения импульса тока.

На основе полученных результатов было сделано предположение о преимущественно температурном механизме эрозии катодной вставки. Казалось очевидным, что при нагреве молибденового катода до температуры плавления материала вставки, а также при наличии потока инертного газа будет возможно получение потока атомов металла. Были проведены дополнительные исследования с применением модифицированного генератора плазмы, в котором вместо металлического анодного сопла применялась диафрагма из фторопласта.

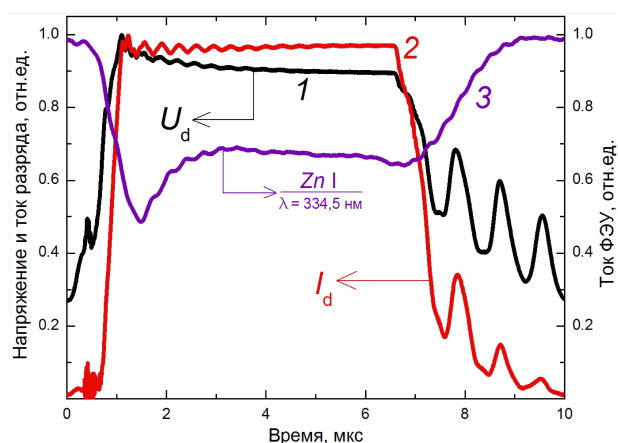


Рис. 1. Осциллограммы электрофизических характеристик разряда: 1 – напряжение; 2 – ток; 3 – интенсивность излучения на длине волны 334.5 нм (катодная вставка – цинк, рабочий газ – аргон, частота – 100 кГц).

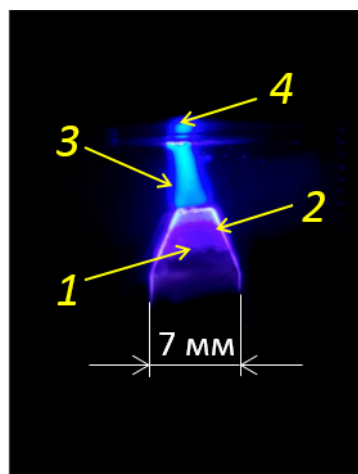


Рис. 2. Разряд с катодной вставкой из цинка: 1 – катод; 2 – катодное свечение; 3 – положительный столб разряда; 4 – токовая привязка на аноде.

Анодом разряда являлся массивный корпус – основание (Рис. 3). В этой системе нагрев вставки из легкоплавкого материала в полости катода осуществлялся в условиях диффузии тепла из прикатодной области разряда со стороны противоположной той, в которой находилась вставка. При этом соблюдались газодинамические условия, близкие к тем, при которых наблюдались эрозионные процессы при воздействии тлеющего разряда непосредственно на цинковую катодную вставку. Горение разряда осуществлялось по «короткой» траектории, а именно, между кромкой отверстия в корпусе, который был заземлен и выполнял функцию анода, и торцом катода-тигля в месте крепления к токовводу. При достижении температуры плавления цинка наблюдалось «переключение» катодного свечения в область цинковой вставки. При этом горение разряда происходило по, так называемой, «длинной» траектории, поскольку анодная токовая привязка по-прежнему оставалась на острой кромке кольцевого отверстия в корпусе. Очевидно, что данное «переключение» являлось индикатором появления атомов цинка в плазме. Об этом также

косвенно свидетельствовали характеристики её оптического излучения, в спектре которого появлялись линии, соответствующие возбужденным ионам и атомам цинка. Помимо этого, основным признаком эрозии материала катодной вставки были потоки вещества, выносимые за пределы разрядной системы струей рабочего газа. Однако время бесперебойного горения разряда по «длинной» траектории было ограничено на уровне нескольких секунд. Это может быть связано с тем, что приведенное электрическое поле E/N в положительном столбе разряда было значительно меньше, чем при более коротком расстоянии между катодом и анодом. Кроме того, по-видимому, имело место конвекционное охлаждение плазмы потоком рабочего газа. В любом случае, данный экспериментальный факт требует дальнейших исследований.

Для исключения влияния электрического разряда на процессы тепловой эрозии был создан экспериментальный макет (Рис. 4), в котором воспроизводились идентичные конструктивные параметры взаимного расположения рабочей поверхности катода и апертуры для выхода рабочего газа, а также температурные и газодинамические условия. Деталь конструктивно идентична катоду фактически являлась тиглем, в полости которого размещалась вставка из цинка. Его нагрев производился пламенем бытовой газовой горелки. С учетом доли тепла, передаваемого от пламени тиглю, мощность нагрева составляла приблизительно 200 Вт. Измерение температуры осуществлялось с применением калиброванной термопары. Количественно эрозия определялась в результате определения разницы значений массы тигля до и после температурного воздействия. Продукты эрозии оседали на внутренних поверхностях обечайки, диафрагмы, и также на поверхности тигля.

Анализ результатов измерения эрозии материала катода методом взвешивания на аналитических весах показал, что при горении тлеющего разряда в потоке аргона, когда эмиссионная поверхность катода приходится непосредственно на цинковую вставку, скорость эрозии составляет около 330 мкг/с. Кроме того, при визуальном осмотре в промежутках между включениями было заметно, что количество материала в полости уменьшалось с увеличением времени функционирования разрядной системы.

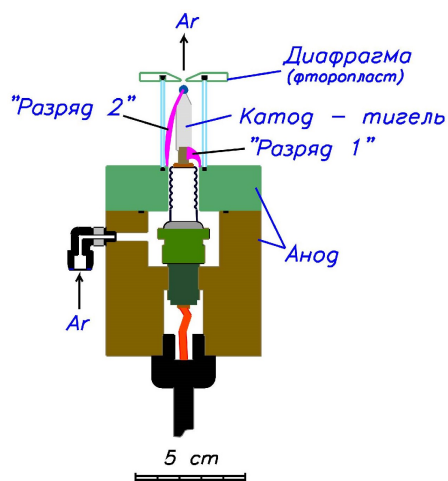


Рис. 3. Схема эксперимента с косвенным нагревом катодной вставки: «Разряд 1» – горение разряда по короткой «траектории»; «Разряд 2» – горение разряда по длинной траектории.

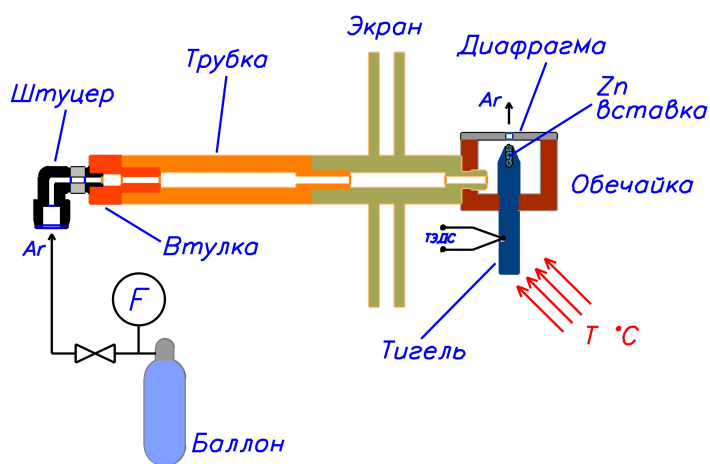


Рис. 4. Схема эксперимента для исследования особенностей тепловой эрозии катода – имитация условий с применением внешнего источника тепла.

При косвенном нагреве молибденового тигля источником тепла, не связанным с природой газового разряда, не удалось зарегистрировать заметной потери массы детали,

имитирующей катод. Нагрев тигля до температуры немногим более температуры кипения цинка (1220 ± 25 K) также не приводил к эрозии цинковой вставки.

По микроскопическим изображениям поверхностей покрытий, сформированных в результате сбора порошков, заметно, что их морфология существенным образом отличается. Продукты эрозии цинковой вставки, полученные в разряде, были агломератами, имеющими дендритное строение, со средним диаметром приблизительно 5 мкм (Рис. 5). Порошковые частицы, которые образовались при воздействии внешнего источника тепла на ячейку, имитирующую разрядную систему, имели форму прямоугольных пластинок с характерными размерами $20 \times 5 \times 1$ мкм³ (Рис. 6).

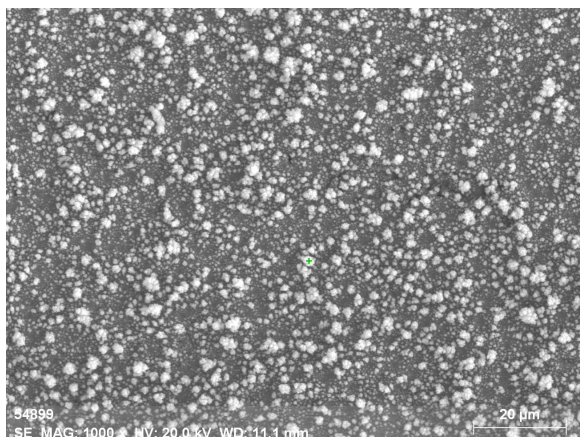


Рис. 5. РЭМ изображение поверхности (130×100 мкм) агломераций порошковых частиц, полученных при эрозии катода в тлеющем разряде атмосферного давления.



Рис. 6. РЭМ изображение поверхности (130×100 мкм) агломерации порошковых частиц, полученных при эрозии материала в результате воздействия внешнего источника тепла.

Исследование химического состава частиц показало, что порошковый материал, собранный при эрозии материала катода в разряде, состоит преимущественно из цинка и кислорода с отношением долей атомов $Zn:O = 3:5$. При воздействии внешнего источника тепла генерировались частицы, состоящие в основном из молибдена и кислорода в соотношении $Mo:O = 1:5$. Во всех образцах в составе материала частиц также определялись атомы углерода, хрома, железа, никеля. Их присутствие было обусловлено особенностями пробоподготовки, а именно приклеиванием порошков к токопроводящей углеродной ленте и размещением на предметных держателях, изготовленных из нержавеющей стали. Материалы этих элементов оснастки, а также их оксиды, могли быть источниками атомов «примеси».

В качестве объяснения того, как генерируются потоки атомов металлов в плазме тлеющего разряда при атмосферном давлении в потоке аргона имеется следующее предположение. Расширение расплавленного металла катодной вставки приводит к его частичному выходу за пределы полости в виде выпуклого возвышения над поверхностью катода. Такая форма обусловлена силами поверхностного натяжения на границе жидкого металла. По-видимому, обтекание этой выпуклости потоком аргона вызывает частичное понижение давления за ней вследствие возникновения вихревых возмущений потока рабочего газа [10], при достаточном значении числа Рейнольдса (в данном эксперименте $Re = 3000$). В эту область попадают атомы из парового слоя над поверхностью расплавленного металла, затем переносятся через плазму потоком рабочего газа, где они участвуют в столкновительных процессах, приводящих к их возбуждению и ионизации, после выносятся из разрядного промежутка через отверстие в аноде. По мере удаления от области генерации

плазмы частицы остывают и агломерируются. В результате попадания в воздушную среду происходит их окисление и формирование наночастиц оксидов.

Сравнение результатов экспериментов по нагреванию молибденового катода с цинковой вставкой тлеющим разрядом и воздействию пламенем горелки на молибденовый тигель – имитатор катода, также имеющий вставку из легкоплавкого цинка, показало, что существенное влияние на эрозию материала катодной вставки оказывает сам разряд. При нагреве иным способом, не связанным с природой газового разряда, до температуры плавления цинка и продувке аргона эрозия цинка не наблюдалась. Нагрев вплоть до температуры кипения цинка, напротив, привел к интенсивному взаимодействию молибдена с кислородом и парами воды, которые, как известно, неизбежно присутствуют в баллоне с аргоном, и образованию летучего оксида молибдена.

Известно, что возможно управлять течением газов при воздействии импульсных разрядов, генерирующих неравновесную низкотемпературную плазму [11]. Следовательно, и в настоящей работе имелись условия для возмущения потока рабочего газа в результате горения тлеющего разряда. Действительно, в результате джоулевого нагрева в области протекания тока разряда происходило уменьшение концентрации аргона. Одновременно с этим происходило конвективное охлаждение разрядного промежутка, поскольку рабочий газ подавался непрерывно. Очевидно, что совокупность этих процессов приводила к возникновению вихревых неоднородностей, в которых происходило перемешивание нагретого газа с более холодным. Наличие вихрей, в свою очередь, могло приводить к возникновению областей с пониженным давлением непосредственно над катодной вставкой, куда могли поступать атомы из парового слоя над расплавленным металлом, и т.д.

4. Заключение

Применение тлеющего разряда атмосферного давления в потоке инертного газа позволяет генерировать порошки оксидов металлов в результате эрозии катодного материала, что и было показано на примере разрядной системы с молибденовым катодом, имеющим вставку из легкоплавкого металла. Основными физическими механизмами, отвечающими за эрозию материала катодной вставки, являются тепловое воздействие из катодной области разряда, а также возмущения газового потока, вызванные конфигурацией катода и тепловым воздействием плазмы положительного столба разряда. Нагревание внешним источником тепла без горения разряда в области катодной вставки не обеспечивает существенный вклад в её эрозию.

Благодарности

Исследование выполнено за счёт гранта Российского научного фонда № 22-19-00265, <https://rscf.ru/project/22-19-00265/>.

5. Список литературы

- [1] I. Kronhaus, M. Kühn-Kauffeldt, J. Schein, Investigation of Cathodic Arc Plume in an Atmospheric Pressure Environment Using Stark Broadening, *IEEE Transactions Plasma Sci.*, **43**, 3570, 2015, doi: 10.1109/TPS.2015.2404830
- [2] Y.S. Kornbluth, R.H. Mathews, L. Parameswaran, L.M. Racz, L.F. Velásquez-García, Room-temperature, atmospheric-pressure microspattering of dense, electrically conductive, sub-100 nm gold films, *Nanotechnology*, **30**, 285602, 2019, doi: 10.1088/1361-6528/ab1281
- [3] Г.А. Месяц, Законы подобия в импульсных газовых разрядах, *УФН*, **176**, номер 10, 1069, 2006, doi: 10.3367/UFNr.0176.200610d.1069

- [4] Yu.D. Korolev, O.B. Frants, N.V. Landl, V.G. Geyman, and I.B. Matveev, Glow-to-Spark Transitions in a Plasma System for Ignition and Combustion Control, *IEEE Transactions Plasma Sci.*, **35**, 1651, 2007, doi: 10.1109/TPS.2007.910133
- [5] G.A. Mesyats, Ecton Mechanism of the Cathode Spot Phenomena in a Vacuum Arc, *IEEE Transactions Plasma Sci.*, **41**, 676, 2013, doi: 10.1109/TPS.2013.2247064
- [6] Д.В. Белоplotov, А.С. Бугаев, В.И. Гушенец, А.Г. Николаев, А.В. Никоненко, К.П. Савкин, Д.А. Сорокин, А.А. Черкасов, М.В. Шандриков, Слаботочный разряд в потоке аргона при атмосферном давлении в условиях образования атомов металлов: электрические и оптические характеристики, *Известия Вузов. Физика*, **65**, 11, 2022, doi: 10.17223/00213411/65/11/11
- [7] K. Savkin, D. Sorokin, D. Beloplotov, M. Ostapenko, V. Semin, A. Nikolaev, A. Bugaev, V. Gushenets, A. Kazakov, A. Nikonenko, M. Shandrikov, Synthesis of magnesium oxide and zinc oxide powders in a glow discharge plasma at atmospheric pressure, *Ceram. Int.*, **50**, 8185, 2024, doi: 10.1016/j.ceramint.2023.12.150
- [8] B.J. Bailey, K. Kellner, The thermal conductivity of liquid and gaseous argon, *Physica*, **39**, 444, 1968, doi: 10.1016/0031-8914(68)90097-9
- [9] K. Savkin, E. Oks, G. Yushkov, Yu. Ivanov, A low-current atmospheric pressure discharge generating atomic magnesium fluxes, *J. Appl. Phys.* **127**, 213303, 2020, doi: 10.1063/5.0006239
- [10] М. Ван-Дайк. *Альбом течения жидкости и газа* (Пер. с англ. Л.В. Соколовской, под ред. Г.И. Баренблатта и В.П. Шидловского. Москва: Мир, 1986.
- [11] А.Ю. Стариковский, Н.Л. Александров, Управление газодинамическими потоками с помощью сверхбыстрого локального нагрева в сильнонеравновесной импульсной плазме, *Физика плазмы*, **47**, 126, 2021, doi: 10.31857/S0367292121020062