



基于电致伸缩效应的水中纳秒脉冲放电起始机制

李元 李林波 温嘉烨 倪正全 张冠军

Initiation of nanosecond-pulsed discharge in water: Electrostriction effect

Li Yuan Li Lin-Bo Wen Jia-Ye Ni Zheng-Quan Zhang Guan-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 024701 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201048

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201048>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

大气压管板结构纳秒脉冲放电中时域X射线研究

Properties of temporal X-ray in nanosecond-pulse discharges with a tube-to-plane gap at atmospheric pressure

物理学报. 2017, 66(10): 105204 <https://doi.org/10.7498/aps.66.105204>

窄线宽纳秒脉冲光纤拉曼放大器的理论模型和数值分析

Theoretical and numerical study on narrow-linewidth nanosecond pulsed Raman fiber amplifier

物理学报. 2018, 67(15): 154202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172679>

放电参数对爆燃模式下同轴枪强流脉冲放电等离子体的影响

Influence of discharge parameters on pulsed discharge of coaxial gun in deflagration mode

物理学报. 2019, 68(10): 105203 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190218>

同轴枪正、负脉冲放电等离子体特性的对比

Comparative study of positive and negative pulsed discharge plasma characteristics of coaxial gun

物理学报. 2020, 69(3): 035202 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191321>

纳秒脉冲激光诱导空气等离子体的近红外辐射特性

Near infrared characteristics of air plasma induced by nanosecond laser

物理学报. 2020, 69(2): 029502 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190753>

脉冲放电产生螺旋流注的等离子体特性研究

Plasma characteristics of helical streamers induced by pulsed discharges

物理学报. 2017, 66(15): 155202 <https://doi.org/10.7498/aps.66.155202>

基于电致伸缩效应的水中纳秒脉冲放电起始机制*

李元[†] 李林波 温嘉焯 倪正全 张冠军[‡]

(西安交通大学电气工程学院, 电力设备电气绝缘国家重点实验室, 西安 710049)

(2020年7月2日收到; 2020年8月4日收到修改稿)

水中纳秒脉冲放电的起始阶段包含了丰富的物理过程, 现有实验诊断技术在揭示数纳秒内液体中电荷运输、倍增过程方面还有不少困难, 放电起始的机制尚不明确. 本文建立了针板电极二维轴对称水中放电物理模型, 仿真研究纳秒脉冲导致的水中电致伸缩效应、空化过程和随后的液体电离过程. 结果表明, 在纳秒脉冲电压作用下, 电致伸缩效应可导致针尖附近数微米区域内的液体发生空化, 形成大量纳米尺度的空腔; 空腔在其表面电致伸缩压强的作用下膨胀, 为电子提供了加速空间; 高能电子可引发水分子的碰撞电离, 使局域液体被快速电离. 电致伸缩机制为理解水中纳秒脉冲放电的起始过程提供了新的视角.

关键词: 纳秒脉冲放电, 水中放电, 电致伸缩, 空化**PACS:** 47.40.-x, 52.27.Ny, 51.50.+v, 52.20.Fs**DOI:** 10.7498/aps.70.20201048

1 引言

水中脉冲放电是在极短时间内水中电极间的放电现象. 放电通常会形成丰富的热、光、力、声学等物理效应, 即“液电效应”^[1], 被广泛应用于油气增产^[2]、岩石破碎^[3,4]、材料回收^[5]及水下高强度声源^[6]等多学科领域. 此外, 水中放电过程还会生成过氧化物、自由基(如·OH)等高氧化电位产物, 在环境处理领域具有广阔应用, 如有机物降解^[7]、废水处理^[8,9]、杀菌消毒^[10,11]. 研究水中放电的特性与机理, 有助于深入认识放电引起的复杂物理现象. 理解放电的起始、发展过程, 对于丰富现有的液体放电理论, 继而调控放电实现不同应用有重要意义.

相较于气体放电等离子体中相对丰富的击穿模型和机理, 学术界对于水中脉冲放电的认识水平还很滞后, 尚缺乏合理的放电理论解释不同脉冲条件下放电起始的原因^[12]. 通常认为, 水中微秒脉冲放电的起始与水中气泡形成有关^[13-16]. 在强电场

作用下, 液体电导率增加, 焦耳热汽化了局部液体形成气泡. 气泡给电子提供了较大的自由程, 利于电子能量积累, 容易引发电子雪崩, 所以放电从气泡中起始. 由于水的加热汽化过程需要数百纳秒以上^[13], 所以气泡放电机理无法解释水中纳秒级快脉冲放电现象. 水中纳秒放电的形成时间极短(放电时延仅数纳秒甚至数百皮秒), 放电起始早于气泡形成^[17,18], 表明水中纳秒脉冲放电的起始存在其他诱导机制.

纳秒脉冲电压的特征在于上升时间极短, 数纳秒内电极附近的不均匀电场迅速增强, 导致水中出现有质动力(ponderomotive force). 有质动力作用于液体介质并指向电场更强的区域(电极处), 电极周围的液体被拉伸发生形变, 这种效应称为电致伸缩^[19]. 当液体被拉伸到一定程度, 液体的连续性被破坏, 水中会形成大量纳米尺度的空腔(nanopores), 即水局部发生空化^[20]. 已有实验研究表明, 水中纳秒脉冲放电的起始过程与空腔形成有关. Pekker等^[21]通过纹影图像证明了纳秒脉冲电压会破坏针

* 国家自然科学基金(批准号: 51607139)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liyuan8490@xjtu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: gjzhang@xjtu.edu.cn

尖电极附近液体的连续性. Starikovskiy 等^[22]认为空腔是促进水中纳秒脉冲放电起始的关键条件. 需要指出: 因电致伸缩效应形成的空腔与水中气泡存在本质不同, 空腔是由局域液体撕裂形成的, 内部可近似为真空环境, 且空腔的半径处于纳米量级^[20,23], 远小于气泡(微米级). 空腔对纳秒脉冲放电起始的作用, 特别是对电荷形成、倍增等关键环节的影响方式, 还需要进一步通过实验和仿真等研究手段明确.

然而, 目前从实验手段观测放电现象(电流电压波形、放电图像等), 揭示水中纳秒脉冲放电的起始机制还面临诸多困难^[24]. 大量的物理过程都发生在数纳秒甚至更短时间内, 通过宏观现象能够获得的信息十分有限, 实验获得亚纳秒级时间分辨的放电图像、光谱信息的难度非常大^[25,26]. 基于此, 有必要借助仿真技术研究放电起始的物理模型, 明确电致伸缩效应对放电起始的影响机制, 提升对快脉冲下液体中电荷输运、倍增机制的理解. 本文建立二维轴对称针板放电物理模型, 仿真研究纳秒脉冲在针尖周围液体中引起的电致伸缩作用、空化过程, 获得空化区内的液体电离速率、电子密度等电输运参量的时空演化. 本研究旨在揭示空腔形成对液体快速电离的作用机理, 为合理解释水中纳秒脉冲放电的起始过程提供新视角.

2 水中纳秒脉冲放电模型的建立

如上所述, 水中纳秒脉冲放电起始可能包含液体的电致伸缩、空化和液体电离等基本过程^[27]. 纳秒脉冲电压会引发液体的电致伸缩效应, 液体受到拉伸导致水中局域发生空化; 电子在空化区内快速倍增, 液体被迅速电离, 最终导致放电起始. 纳秒脉冲放电起始阶段基本物理过程如图 1 所示. 本文将建模仿真研究各物理过程, 定量描述有质动力引

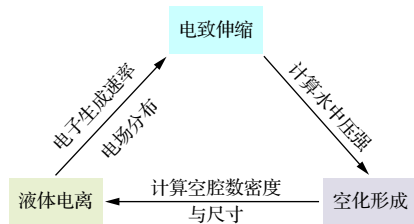


图 1 水中纳秒放电起始阶段各物理过程的关系

Fig. 1. Correlations between the processes during the nano-second discharge initiation in water.

起水中压强变化形成空化的动态发展, 展现空化诱导液体电离的时空演化. 以下对放电起始阶段的各物理过程进行详细阐述.

2.1 电致伸缩

在针电极上施加纳秒脉冲电压, 水中会产生有质动力. 假设水的介电常数不变, 极不均匀电场产生的有质动力由 (1) 式表示^[20]:

$$\mathbf{F} = \frac{\epsilon_0}{2} \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \rho \right) \nabla E^2 \approx \frac{\alpha \epsilon_0 \epsilon}{2} \nabla E^2, \quad (1)$$

其中, \mathbf{F} 为作用于液体的有质动力, ϵ_0 为真空介电常数, ϵ 为水的相对介电常数, ρ 为水的密度, E 为电场强度, α 为经验系数(对于水 $\alpha \approx 1.5$).

有质动力导致局部液体运动, 使局域水密度和压强发生变化, 这一过程可用流体的质量和动量连续性方程描述^[21], 如 (2) 式和 (3) 式所示:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla(\rho \mathbf{u}) = 0, \quad (2)$$

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla p + \mathbf{F}, \quad (3)$$

其中, ρ 为液体密度, \mathbf{u} 为液体运动速度, p 为液体静压强. 需要指出, 电致伸缩效应能够导致的液体流动速度为数米每秒^[21], 可估计出针尖附近液体单位面积上黏性力在 10^2 Pa 数量级, 远小于水中由有质动力引发的液体压强(可达 10^7 Pa^[21]), 所以 (3) 式中忽略了流体运动的黏性力. 在计算 (3) 式时, 需要给出液体局部密度 ρ 与压强 p 的关系. 对于水, 引入 Tait 方程描述该约束关系^[28]:

$$p = (p_0 + 3.07 \times 10^8)(\rho/\rho_0)^{7.5} - 3.07 \times 10^8, \quad (4)$$

其中 p_0 为常温常压下水中压强, 10^5 Pa; ρ_0 为常温常压下水密度, 1000 kg/m^3 .

联立 (1) 式与 (3) 式, 将 (3) 式右侧简化为 $-\nabla[p - (\alpha \epsilon_0 \epsilon / 2) E^2]$. 可见, 有质动力的作用可等效为与静压强 p 符号相反的压强(即负压强), 说明有质动力对液体起到拉伸效果. 此时, 水中总压强 $p_{\text{total}} = p - (\alpha \epsilon_0 \epsilon / 2) E^2$, 可表征液体受拉伸的程度.

2.2 空化

电致伸缩效应使局域水发生空化, 形成大量纳米空腔. 液体的空化程度由空腔的数密度与尺寸表征, 空腔密度依赖于空腔生成速率. 经典成核理论(CNT)可以直接获得不同负压强下空腔的生成

速率, 适用于计算快脉冲放电时水中压强变化剧烈的过程^[29,30]. 由 CNT, 水中空腔的生成速率满足 (5) 式^[30]:

$$\Gamma = \Gamma_0 \exp\left(-\frac{E_b}{k_B T}\right), \quad (5)$$

其中 Γ 为空腔生成速率; Γ_0 为液体中空腔生成点的数密度与空腔形成频率的乘积^[31]; E_b 为空腔形成需克服的能量阈值; k_B 为玻尔兹曼常数; T 为温度. Γ_0 与 E_b 均为水中负压强的函数. 在 CNT 中, 能量阈值 E_b 等于静态空腔具有的能量^[29], 这种估计忽略了空腔形成中由于液体黏度等阻尼作用造成的能量损耗, 实际的能量阈值应高于经典成核理论的估计^[32]. 借助水中空化实验数据, 可以对 CNT 估计的 E_b 进行优化. 前期研究已经证明, 使用优化的 E_b 计算的空腔生成速率 Γ 更加准确^[27].

空腔形成后, 其表面受到电致伸缩力、表面张力、周围液体压力的共同作用^[31,33], 会导致空腔膨胀或坍缩. 不同于描述气泡半径变化的 Rayleigh 方程^[34], 在计算空腔的半径变化时, 无须考虑空腔内的气体压力. 为定量描述空腔尺寸, 将空腔近似为球形, 其半径演化的控制方程满足 (6) 式^[31,33]:

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dt} \left[R^3 \left(\frac{dR}{dt} \right)^2 \right] \\ &= \frac{2}{\rho} R^2 \frac{dR}{dt} \left[\frac{3}{4} (\alpha - 1) \varepsilon_0 \varepsilon E^2 - \frac{2k_\sigma \sigma}{R} - p \right], \quad (6) \end{aligned}$$

其中 R 为空腔半径, ρ 为水的密度, p 为液体静压强, σ 为水的表面张力系数, k_σ 为表面张力系数的修正因子^[23]. 方程右侧括号内的 3 项分别表示空腔表面的电致伸缩压强、拉普拉斯压强 (由表面张力引起) 和液体静压强. 求解 (6) 式, 需要给定空腔半径 R 的初始条件, 本文取为 25 °C 下声空化实验^[35] 得到的空腔半径 (1.22 nm) 作为初始空腔半径. 由于空腔膨胀对周围液体的挤压作用, 液体静压强 p 随空腔膨胀而增加, 液体静压强的变化量 Δp 与空腔体积的所占的比例有关^[23], 可表示为

$$\Delta p = c_s^2 \rho_0 n_{\text{pore}} V_{\text{pore}}, \quad (7)$$

其中, c_s 为水中声速 (约为 1482 m/s), n_{pore} 为空腔的数密度, V_{pore} 为单个空腔体积.

2.3 液体电离

空腔形成后, 由于其界面两侧介电常数突变,

空腔内电场显著增强^[36], 空腔界面处水分子比液相内水分子更易被电离. 空腔界面处的电子产生率 G_1 可根据场致电离 Zener 模型给出^[37]:

$$G_1(|E|) = \frac{qn_s a |E_s|}{h} \exp\left(-\frac{\pi^2 m^* a \Delta^2}{qh^2 |E_s|}\right), \quad (8)$$

其中 q 为元电荷量; n_s 为单个空腔界面上水分子数, $n_s = n_{\text{water}} \times V_{\text{pore}}$ (水的分子数密度 $n_{\text{water}} \approx 3.3 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$); a 为分子间距; E_s 为空腔界面的电场强度, 与空腔内部的电场强度相同, 为 1.5 倍的外施电场强度^[36]; h 为普朗克常量; m^* 为有效电子质量; Δ 为水分子的电离能^[38]. 注意 (8) 式中, n_s 表示单个空腔界面上有多少个水分子, G_1 的单位为 s^{-1} , 表示单个空腔表面每秒电离出的电子数.

在界面处产生的电子进入空腔, 并在电场作用下加速获得能量. 电子穿过半径为 R 的空腔最大可获得能量 $\varphi = 2E_{\text{pore}}R$ (eV), 其中 E_{pore} 为空腔内的电场强度. 当电子能量 φ 超过水分子发生 (二体) 碰撞电离所需的能量阈值时, 高能电子轰击空腔壁进入液相与水分子发生碰撞电离, 促进液体电离过程. 单个高能电子造成的碰撞电离次数 $\delta(\varphi)$ 是电子能量的函数, 可由电子与水相互作用的蒙特卡罗仿真得到^[39].

由于空化区内存在大量空腔, 考虑空腔数密度的水中碰撞电离速率 G_{imp} 可表示为^[27]

$$G_{\text{imp}} = G_1 \delta(\varphi) n_{\text{pore}}, \quad (9)$$

其中 $\delta(\varphi)$ 为单个高能电子引发的碰撞电离次数, 对于 $12.6 \text{ eV} < \varphi < 130.0 \text{ eV}$, 取 $\delta(\varphi) = 0.6178 + 0.0414 \times (\varphi - 12.6)$; n_{pore} 为空腔数密度.

碰撞电离过程导致水中不断产生电子、正离子, 由于吸附作用, 亦能形成负离子. 使用电荷连续性方程描述荷电粒子的产生和漂移扩散过程^[40], 使用泊松方程求解电场强度, 如 (10) 式—(13) 式所示:

$$\begin{aligned} & \frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot (n_e \mu_e \mathbf{E}) - D_e \nabla^2 n_e \\ &= G_{\text{imp}} - k_{pe} n_p n_e - \frac{n_e}{\tau_e}, \quad (10) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial n_p}{\partial t} + \nabla \cdot (n_p \mu_p \mathbf{E}) - D_p \nabla^2 n_p \\ &= G_{\text{imp}} - k_{pe} n_p n_e - k_{pn} n_p n_n, \quad (11) \end{aligned}$$

$$\frac{\partial n_n}{\partial t} + \nabla \cdot (n_n \mu_n \mathbf{E}) - D_n \nabla^2 n_n = -k_{pn} n_p n_n + \frac{n_e}{\tau_e}, \quad (12)$$

$$\nabla \cdot (\varepsilon \mathbf{E}) = q(n_p - n_e - n_n), \quad (13)$$

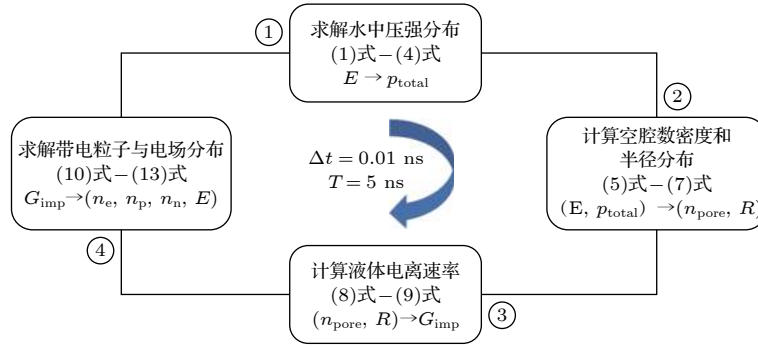


图 2 数值模拟流程

Fig. 2. Flow chart of simulation.

其中 n_e , n_p 和 n_n 分别是电子、正离子和负离子数密度; μ_e , μ_p 和 μ_n 分别为电子、正离子和负离子的迁移率; k_{pe} 和 k_{pn} 分别为正离子-电子、正-负离子的复合率 $10^{-19} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ [41]; τ_e 为电子-水分子吸附时间 200 ns[42]. 对于水中电子迁移率为 μ_e 的取值, 考虑到电子在水中会迅速溶剂化, 因此本文选取液态水中溶剂化电子的迁移率 $1.3 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ [43]. 对于水中的正、负离子的迁移率 μ_p 和 μ_n , 取值与水中 H^+ 和 OH^- 离子的迁移率相同, 分别为 $3.5 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $2 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ [38].

为了更好地说明上述电致伸缩、空化和液体电离过程的物理模型是如何耦合计算的, 给出数值模拟流程如图 2 所示. 仿真中, 设置时间步长 $\Delta t = 0.01 \text{ ns}$, 计算总时长 $T = 5 \text{ ns}$.

3 放电起始过程的仿真结果

本文使用多物理场有限元仿真软件 COMSOL Multiphysics 建立二维轴对称针板放电模型, 仿真研究水中纳秒脉冲放电的起始过程. 设置针尖曲率半径为 $25 \mu\text{m}$, 针板间距为 1.5 mm . 纳秒脉冲电压上升沿为 3 ns , 脉宽为 10 ns , 在 5 ns 时电压可达最大值 23.1 kV . 仿真条件设置与水中纳秒脉冲放电实验条件[44]一致.

3.1 电致伸缩对液体压强的影响

为考察电致伸缩效应对水压强的影响, 图 3 给出了脉冲电压施加后 $t = 2 \text{ ns}$ 和 $t = 3 \text{ ns}$ 时针尖电极附近水中压强分布和局域液体流速分布. 可以看出, 在脉冲电压作用下, 针尖附近形成高负压区, 表明该区域内液体处于拉伸状态. 针尖表面负压最强, 负压随脉冲电压的升高而增加, 从 2 ns 时

的 -16 MPa 迅速增至 3 ns 时的 -59 MPa . 对于水, 空化发生的临界负压强在 -6 MPa 至 -50 MPa 之间[45], 可见本文条件下的电致伸缩足以引起针尖附近液体发生空化. 纳秒脉冲电压施加后, 有质动力使水向针尖流动, $t = 3 \text{ ns}$ 时液体流速最大达到 4.2 m/s .

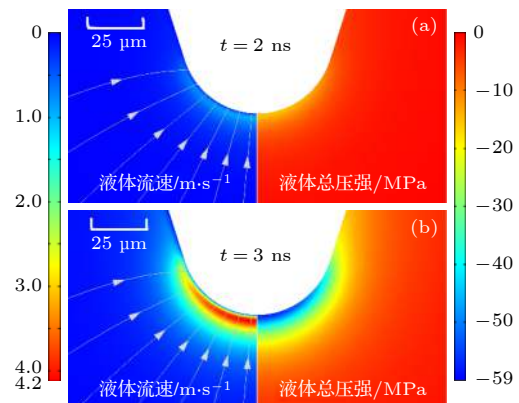


图 3 脉冲电压施加后水的流速与压强分布 (a) $t = 2 \text{ ns}$; (b) $t = 3 \text{ ns}$

Fig. 3. Distribution of liquid velocity and pressures: (a) $t = 2 \text{ ns}$; (b) $t = 3 \text{ ns}$.

不同时刻针板电极对称轴上的压强分布如图 4 所示. $t = 2 \text{ ns}$ 时, 针尖表面处电致伸缩压强约为 -18 MPa . 由于液体向针尖区域移动, 使针尖处的静压强增至 2 MPa , 此时液体总压强为 -16 MPa . 随着液体加速向针尖流动, $t = 3 \text{ ns}$ 时针尖处的静压强达 10 MPa . 但此时由于脉冲电压的升高, 电致伸缩压强为 -69 MPa , 导致液体中总压强较 2 ns 时进一步增加, 达到 -59 MPa . 可见, 在纳秒脉冲电压作用下, 局域液体运动导致静压强升高, 但电致伸缩压强对水中总压强仍起主导作用, 导致水中负压强不断增加, 使得水局域发生空化.

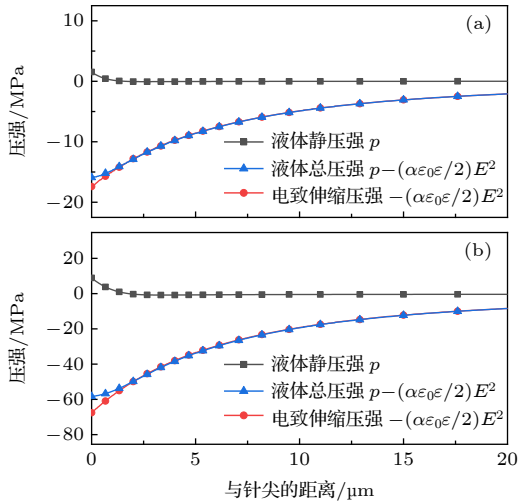


图 4 脉冲电压施加后针板电极对称轴上压强分布 (a) $t = 2$ ns; (b) $t = 3$ ns
 Fig. 4. Pressures along the symmetric axis since the start of pulsed voltage: (a) $t = 2$ ns; (b) $t = 3$ ns.

3.2 空腔的产生与膨胀

脉冲电压施加后不同时刻电极对称轴上空腔数密度分布如图 5 所示. 空腔大量分布在针尖附近, 随针尖距离增加而迅速减小. 随着针尖附近的负压强不断增加, 空腔数量迅速增长, 在 $t = 2.5$ ns 时, 针尖处空腔数密度达到约 10^{15} m^{-3} . $t = 3.5$ ns 后, 针尖附近空腔密度逐渐饱和, 约为 10^{20} m^{-3} . 空腔密度饱和与空腔的膨胀有关. 需要指出, 前 2 ns 内, 水中没有形成空腔.

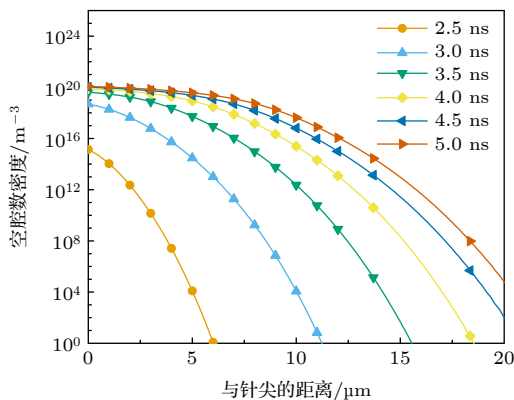


图 5 不同时刻针板电极对称轴上空腔数密度分布
 Fig. 5. Temporal evolution of number density of nanopores along the symmetric axis.

空腔形成后, 在其表面压强的作用下, 空腔半径将发生变化. 根据 (6) 式, 空腔膨胀需满足 $\frac{3}{4}(\alpha - 1)\epsilon_0\epsilon E^2 - \frac{2k_\sigma\sigma}{R} - p > 0$, 即空腔表面的电致伸缩压强要克服拉普拉斯压强和液体静压强. 空腔

半径的时间演化过程如图 6 所示. 在 $t = 3$ ns 时, 虽然空腔已经形成, 但此时脉冲电压幅值较低, 空腔表面的电致伸缩压强不足以使空腔膨胀. $t = 3.5$ ns 时, 针尖附近空腔开始膨胀, 且满足膨胀条件的区域不断扩大. 到 5 ns 时, 针尖附近约 $8 \mu\text{m}$ 的区域内空腔均满足膨胀条件.

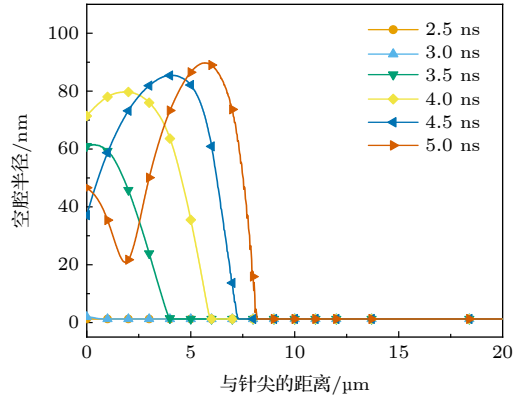


图 6 不同时刻针板电极对称轴上空腔半径
 Fig. 6. Temporal evolution of nanopore radii along the symmetric axis.

空腔膨胀后液体静压强 p 升高, 将抑制空腔的膨胀过程, 使空腔无法持续扩张, 空腔半径达到最大值 (约 $80\text{--}90 \text{ nm}$) 后开始收缩. 当空腔半径缩小, p 亦减小, 空腔会再次膨胀. 液体静压强 p 升高部分弥补了水中负压强, 使空腔的生成速率降低, 这与图 5 中 $t = 3.5$ ns 后针尖附近空腔数密度增加不明显的现象一致.

空化发生后, 液体中部分区域被空腔占据. 以 $t = 5$ ns 距离针尖 6 nm 的位置为例, 空腔的数密度约为 10^{19} m^{-3} , 空腔半径约为 90 nm (如图 5 和图 6), 可得液体中空腔占比约为 3%. 然而, 空腔的出现并不表示液体密度降低或产生“气泡”. 在空化区内, 局域液体的密度是非均匀的, 空腔短时间内产生和膨胀将挤压液态水, 造成空腔外部液体密度升高, 但整个区域的水分子总数不发生变化, 即总体上水的平均密度不变. 此外, 由于电致伸缩力指向针尖处, 会使针尖附近的液体缓慢向针尖处移动. 因此, 针尖附近的液体密度并没有减小而是逐渐增加.

3.3 液体电离过程

膨胀的空腔为电子在高电场下提供了足够的加速空间. 对称轴上电子能量分布的时空演化如图 7 所示. 由图可知, 电子在高场下最大可获得约

100 eV 能量. 理论上, 当电子能量超过水分子 (二体) 碰撞电离所需的能量阈值 12.6 eV, 碰撞电离即可发生. 由于大量电子的能量远大于水分子的电离能, 局域发生碰撞电离的区域不断扩大, $t = 5 \text{ ns}$ 时, 距离针尖约 $8 \mu\text{m}$ 的区域内能够发生碰撞电离. 对比图 6 中空腔膨胀的结果表明, 一旦空腔满足膨胀条件, 即可将电子加速至水分子碰撞电离能量阈值以上.

电子的生成速率和密度的轴向分布如图 8 所示. 由图 8(a), 在 $t = 3.5 \text{ ns}$ 时, 针尖处电子生成速率为 $10^{22} \text{ m}^{-3}\cdot\text{ns}^{-1}$, $t = 5 \text{ ns}$ 针尖处电子生成速率升至 $10^{24} \text{ m}^{-3}\cdot\text{ns}^{-1}$. 需要注意, 电子生成速率随距针尖距离的增加而迅速降低. 这是由于在远离针尖的方向, 电场强度显著降低, 空腔壁上水分子的场

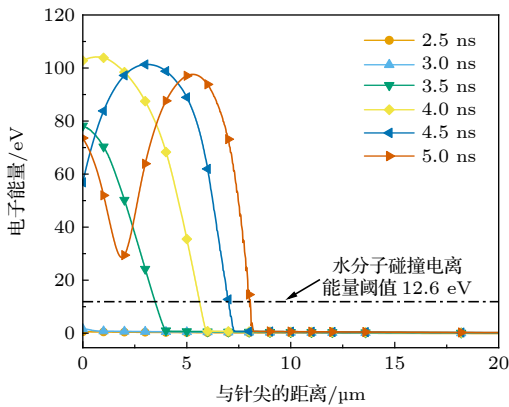


图 7 针板电极对称轴上电子能量分布的时空演化
Fig. 7. Temporal evolution of electron energy along the symmetric axis.

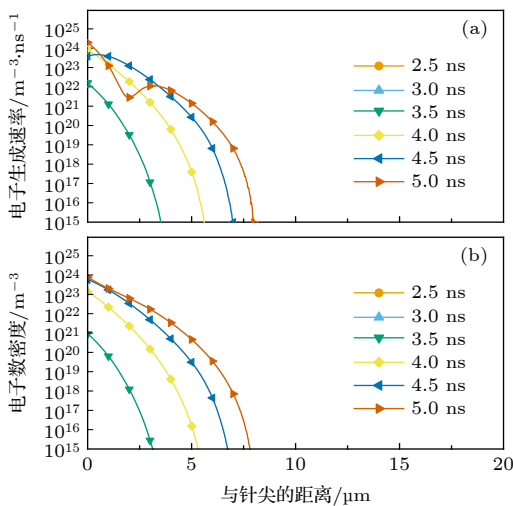


图 8 不同时刻水中电离过程 (a) 电子生成速率; (b) 电子数密度

Fig. 8. Temporal evolution of ionization process in water: (a) Electron generation rate; (b) electron density.

致电离过程减弱 (空腔中加速的种子电子减少). 虽然在距针尖较远区域电子能量依然很高 (约 100 eV), 但由于在空腔中加速的电子数量减少, 液体中碰撞电离速率也随之降低.

由图 8(b), $t = 3.5 \text{ ns}$ 时, 针尖处电子密度约 10^{21} m^{-3} . 随着液体的电离, 电子密度不断增加, 同时电子的复合和吸附的概率逐渐增大. $t = 4.5 \text{ ns}$ 时, 针尖处 (y 轴) 的电离、复合与吸附过程基本达到平衡, 电子密度达到 10^{24} m^{-3} , 不再明显增加. 同等实验条件下水中纳秒脉冲放电实验结果表明^[17,46], 放电时电子密度可达 10^{23} — 10^{26} m^{-3} 量级, 本文仿真得到的电子密度量级与实验结果相符.

4 讨论

4.1 空腔导致水中电子快速增加的作用

空腔形成后, 水中电子可通过以下途径产生: 1) 空腔壁上水分子发生场致电离不断提供种子电子并在空腔内加速; 2) 加速后的电子进入液体, 与水分子发生碰撞电离, 电子迅速增加. 电子在空腔中最大可获得 100 eV 的能量 (图 6), 电子进入液体后, 其能量会在水中行进十几纳米后迅速耗散成为水合电子^[47]. 可以认为, 碰撞电离发生在空腔外约十几纳米的区域内.

空腔表面不断提供种子电子进入空腔成为高能电子, 再进入空腔外的区域轰击水分子发生碰撞电离, 因此, 可将单个空腔视作 1 nm 级的电离源, 不断电离其周围的液体. 在空化区内, 大量空腔共同作用, 使针尖区域迅速电离. 空腔导致液体电离的机制如图 9 所示.

不同于水中气泡导致放电的机制, 电致伸缩效

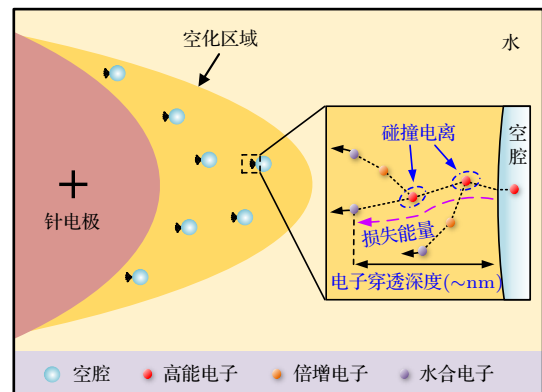


图 9 空腔导致液体电离的机制

Fig. 9. Schematic of nanopore-induced liquid ionization.

应形成的空腔能够解释纳秒时间尺度内水中电子的快速倍增. 首先, 水中空腔形成所需时间短, 本文的仿真表明, 水中空腔能够在 3 ns 内大量生成, 远低于水中气泡形成的时间 (数百纳秒^[13]). 其次, 由于空腔近似为真空环境, 空腔中的电子在进入液体前不会与水分子发生弹性或非弹性碰撞, 能量积累的效率很高. 此外, 针尖附近的空腔数密度 (约 10^{20} m^{-3}) 很高, 使碰撞电离在空化区各处发生, 有利于局域液体快速电离.

需要指出, 本文中探究的电致伸缩效应导致高能电子产生和液体电离的过程, 是一种水中纳秒脉冲放电起始与发展的合理解释. 随着高能电子不断从空腔射入液体, 电子的能量会在与水分子相互作用的过程中沉积到液体中, 使空腔外部十几纳米厚的局域液体加热^[48]. 根据 Seepersad 等的实验研究^[49], 脉冲电压施加 2.6 ns 后即可观测到放电导致汽化的阴影区域, 表明高能电子能量沉积使液体加热的速率可能非常高, 远高于焦耳热使液体汽化的速率 (数百纳秒^[13]). 一旦针尖处汽化区域形成, 即可产生气相放电通道, 使放电进一步发展.

4.2 场致电离在水中放电中的作用

在本文水中放电模型中, 考虑了空腔壁上水分子的场致电离过程, 该过程为随后的碰撞电离提供种子电子, 而模型没有考虑液相内水分子的场致电离对液体电离的贡献. 然而, 前期研究表明, 在变压器油中场致电离也可产生电子, 引起液相放电起始^[50], 因此有必要深入分析水中放电中场致电离的作用.

在液相内分子场致电离导致放电的机制中, 不考虑空腔导致的局部电场增强和碰撞电离过程. 对于水, 液相中场致电离速率 G_F 如 (14) 式所示:

$$G_F(|E|) = \frac{q^2 n_0 a |E|}{h} \exp\left(-\frac{\pi^2 m^* a \Delta^2}{qh^2 |E|}\right), \quad (14)$$

其中, n_0 估计为水的分子数密度 $3.3 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$, E 为水中的电场强度, 其余参数与 (8) 式相同.

本文对相同电场强度下电致伸缩机制的碰撞电离速率 G_{imp} 和液相场致电离机制的电离速率 G_F 进行了比较. 使用与第 3 节相同的纳秒脉冲电压进行仿真, $t = 5 \text{ ns}$ 时两种机制下电离速率和电场强度如图 10 所示. 可以看出, 在相同的外施电场下, G_{imp} 比 G_F 高出 4 个数量级. 如 4.1 节的讨论, 空腔的产生会导致液体快速电离, 空腔使液体电离

的效率远高于液相分子场致电离的效率. 因此, 当空腔出现后, 液相内水分子的场致电离对整个电离过程的贡献很小, 可以忽略.

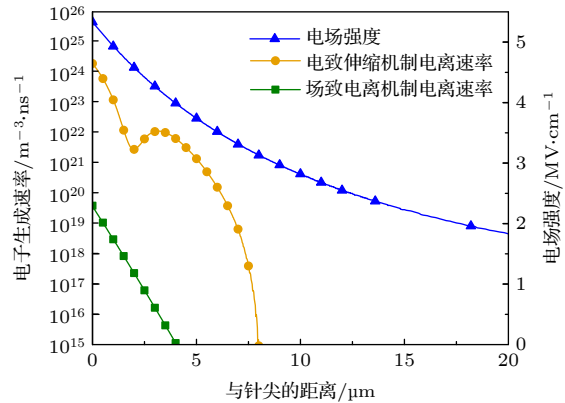


图 10 由水中电致伸缩和场致电离机制得到的电离速率 ($t = 5 \text{ ns}$)

Fig. 10. Ionization rate induced by electrostriction and field ionization mechanisms ($t = 5 \text{ ns}$).

Aghdam 等^[51]的研究指出, 当水中电场强度达到 10 MV/cm 时, 水中场致电离速率 G_F 可达 $8 \times 10^{24} \text{ m}^{-3} \cdot \text{ns}^{-1}$, 此时水中电子密度快速增加. 注意到本文仿真中电场强度更低 (5 ns 时电场强度最大值约为 5.3 MV/cm), 考虑空腔的作用, 电子产生速率同样达到 $10^{24} \text{ m}^{-3} \cdot \text{ns}^{-1}$ 量级. 水中空腔的形成成为较低场强下水中电子的快速倍增提供了一种新的解释.

5 结 论

本文建立了针板电极二维轴对称水中放电物理模型, 仿真研究了纳秒脉冲电压下在针尖附近液体中引起的电致伸缩效应、空化过程和随后的液体电离过程, 得到以下结论.

1) 纳秒脉冲电压施加后, 电致伸缩效应使液体中负压强不断增加. 在本文仿真条件下, $t = 3 \text{ ns}$ 时水中最大负压强达 -59 MPa, 足以引起针尖附近局域液体发生空化.

2) 空化导致液体发生撕裂产生空腔, 在针尖处空腔数密度可达 10^{20} m^{-3} . 随脉冲电压的升高, 空腔表面电致伸缩压强增大促使空腔膨胀. 受液体静压强的限制, 空腔无法持续膨胀, 空腔最大半径约为 80—95 nm.

3) 电子在膨胀的空腔中加速, 最大可获得约 100 eV 的能量, 足够引发水中碰撞电离. 在本文仿

真条件下, 针尖电场强度为 5.3 MV/cm 时电子产生速率约 $10^{24} \text{ m}^{-3} \cdot \text{ns}^{-1}$, 电子密度可达 10^{24} m^{-3} . 电致伸缩效应导致的空腔形成为较低场强下水中电子的快速倍增提供了一种新的解释.

参考文献

- [1] Yutkin 1962 *Electro-hydraulic Effect* (Beijing: Science Press) pp45–50 (in Chinese) [尤特金 1962 液电效应 (北京: 科学出版社) 第45—50页]
- [2] Torres L, Yadav O P, Khan E 2016 *Sci. Total Environ.* **539** 478
- [3] Liu Y, Li Z Y, Li X D, Lin F C, Pan Y 2016 *Transactions of China Electrotechnical Society* **31** 71 (in Chinese) [刘毅, 李志远, 李显东, 林福昌, 潘垣 2016 电工技术学报 **31** 71]
- [4] Fu R Y, Sun Y H, Liu K, Gao Y H, Xu X Z, Yan P 2018 *High Power Laser and Particle Beams* **30** 131 (in Chinese) [付荣耀, 孙鹤鸿, 刘坤, 高迎慧, 徐旭哲, 严萍 2018 强激光与粒子束 **30** 131]
- [5] Bluhm H, Frey W, Giese H, Hoppe P, Schultheiss C, Strassner R 2000 *IEEE Trans. Dielect. Electr. Insul.* **7** 625
- [6] Lu X P, Pan Y, Zhang H H 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1768 (in Chinese) [卢新培, 潘垣, 张寒虹 2002 物理学报 **51** 1768]
- [7] Cheng H, Ye Q Z, Qin S X, Li J 2007 *High Voltage Engineering* **2** 150 (in Chinese) [程虎, 叶齐政, 覃世勋, 李劲 2007 高电压技术 **2** 150]
- [8] Chen Y S, Zhang X S, Chang S, Dai Y C, Yuan W K 2005 *Acta Scientiae Circumstantiae* **25** 113 (in Chinese) [陈银生, 张新胜, 常胜, 戴迎春, 袁渭康 2005 环境科学学报 **25** 113]
- [9] Cao Y, Jiang N, Duan L J, Guo H, Ren J Y, Wang P, Zhou J T, Li J, Wu Y 2018 *Chinese Journal of Environmental Engineering* **12** 956 (in Chinese) [曹颖, 姜楠, 段丽娟, 郭贺, 任景俞, 王璞, 周集体, 李杰, 吴彦 2018 环境工程学报 **12** 956]
- [10] Zhang M Y, Wen J Y, Li Y, Song B P, Zhang G J 2019 *High Voltage Engineering* **45** 4130 (in Chinese) [张梦瑶, 温嘉焯, 李元, 宋佰鹏, 张冠军 2019 高电压技术 **45** 4130]
- [11] Sato M, Ohgiyama T, Clements J S 1996 *IEEE Trans. Ind. Appl.* **32** 106
- [12] Li X D 2018 *Ph. D. Dissertation* (Wuhan: Huazhong University of Science and Technology) (in Chinese) [李显东 2018 博士学位论文 (武汉: 华中科技大学)]
- [13] Fujita H, Kanazawa S, Ohtani K, Komiya A, Kaneko T, Sato T 2014 *J. Appl. Phys.* **116** 213301
- [14] Jones H M, Kunhardt E E 1995 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28** 178
- [15] Li X D, Liu Y, Zhou G Y, Liu S W, Li Z Y, Lin F C, Pan Y 2018 *Proceeding of the CSEE* **38** 1562 (in Chinese) [李显东, 刘毅, 周古月, 刘思维, 李志远, 林福昌, 潘垣 2018 中国电机工程学报 **38** 1562]
- [16] Dong D E, Zhu X L, Zou X B, Wang X X 2019 *High Voltage Engineering* **45** 1461 (in Chinese) [童得恩, 朱鑫磊, 邹晓兵, 王新新 2019 高电压技术 **45** 1461]
- [17] Marinov I, Starikovskaia S, Rousseau A 2014 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47** 224017
- [18] Šimek M, Hoffer P, Tungli J, Prukner V, Schmidt J, Bílek P, Bonaventura Z 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29**
- [19] Shneider M, Pekker M, Fridman A 2012 *IEEE Trans. Dielect. Electr. Insul.* **19** 1579
- [20] Shneider M N, Pekker M 2013 *J. Appl. Phys.* **114** 214906
- [21] Pekker M, Seepersad Y, Shneider M N, Fridman A, Dobrynin D 2014 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47** 025502
- [22] Starikovskiy A 2013 *Plasma Sources Sci. Technol.* **22** 012001
- [23] Pekker M, Shneider M N 2017 *Fluid Dyn. Res.* **49** 035503
- [24] Tu J Y, Chen S, Wang F 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 095202 (in Chinese) [涂婧怡, 陈赦, 汪汎 2019 物理学报 **68** 095202]
- [25] Zhang C, Shao T, Long K H, Wang Y, Zhang D D, Yan P 2010 *High Power Laser and Particle Beams* **22** 479 (in Chinese) [章程, 邵涛, 龙凯华, 王珏, 张东东, 严萍 2010 强激光与粒子束 **22** 479]
- [26] Zhou Z S, Zhang C, Shao T, Yang W J, Fang Z, Zhang D D 2014 *High Voltage Engineering* **40** 3290 (in Chinese) [周中升, 章程, 邵涛, 杨文晋, 方志, 张东东 2014 高电压技术 **40** 3290]
- [27] Li Y, Li L, Wen J, Zhang J, Wang L, Zhang G J 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 075005
- [28] Li Y H 1967 *J. Geophys. Res.* **72** 2665
- [29] Fisher J C 1948 *J. Appl. Phys.* **19** 1062
- [30] Caupin F, Arvengas A, Davitt K, Azouzi M E M, Shmulovich K, Ramboz C, Sessoms D, Stroock A D 2012 *J. Phys. Condens. Matter* **24** 284110
- [31] Shneider M N, Pekker M 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 224902
- [32] Delale C F, Hruby J, Marsik F 2003 *J. Chem. Phys.* **118** 792
- [33] Pekker M, Shneider M N 2015 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48** 424009
- [34] Grosse K, Held J, Kai M, von Keudell A 2019 *Plasma Sources Sci. Technol.* **28** 085003
- [35] Davitt K, Arvengas A, Caupin F 2010 *Europhys. Lett.* **90** 16002
- [36] Babaeva N Y, Tereshonok D V, Naidis G V 2015 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48** 355201
- [37] Zener C, Fowler R H 1934 *Proc. Trans. R. Soc. A* **145** 523
- [38] Qian J, Joshi R P, Schamiloglu E, Gaudet J, Woodworth J R, Lehr J 2006 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** 359
- [39] Bordage M C, Bordes J, Edel S, Terrissol M, Franceries X, Bardiès M, Lampe N, Incerti S 2016 *Phys. Med.* **32** 1833
- [40] Wang Q, Wang M, Wang Y, Yan P 2020 *High Power Laser and Particle Beams* **32** 63 (in Chinese) [王琪, 王萌, 王珏, 严萍 2020 强激光与粒子束 **32** 63]
- [41] Pontiga F, Castellanos A 1996 *IEEE Trans. Dielect. Electr. Insul.* **3** 792
- [42] Hernandez J P 1991 *Rev. Mod. Phys.* **63** 675
- [43] Barnett R N, Landman U, Nitzan A 1990 *J. Chem. Phys.* **93** 8187
- [44] Seepersad Y, Pekker M, Shneider M N, Fridman A, Dobrynin D 2013 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46** 355201
- [45] Shneider M N, Pekker M 2013 *Phys. Rev. E* **87** 043004
- [46] Dobrynin D, Seepersad Y, Pekker M, Shneider M, Friedman G, Fridman A 2013 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46** 105201
- [47] Meesungnoen J, Jay Gerin J P, Filali Mouhim A, Mankhetkorn S 2002 *Radiat. Res.* **158** 657
- [48] Qian J, Joshi R P, Kolb J, Schoenbach K H, Dickens J, Neuber A, Butcher M, Cevallos M, Krompholz H, Schamiloglu E, Gaudet J 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 113304
- [49] Seepersad Y, Fridman A, Dobrynin D 2015 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48** 424012
- [50] Li Y, Mu H B, Den J B, Zhang G J, Wang S H 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 124703 (in Chinese) [李元, 穆海宝, 邓军波, 张冠军, 王曙鸿 2013 物理学报 **62** 124703]
- [51] Aghdam A C, Farouk T 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 025011

Initiation of nanosecond-pulsed discharge in water: Electrostriction effect*

Li Yuan[†] Li Lin-Bo Wen Jia-Ye Ni Zheng-Quan Zhang Guan-Jun[‡]

(*State Key Laboratory of Electrical Insulation and Power Equipment, School of Electrical Engineering,*

Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(Received 2 July 2020; revised manuscript received 4 August 2020)

Abstract

Underwater nanosecond-pulsed discharges have been widely utilized in numerous industrial applications. The initial stage of nanosecond-pulsed discharge in water contains extremely abundant physical processes, however, it is still difficult to reveal the details of charge transportation and multiplicative process in liquid within several nanoseconds by currently existing experimental diagnostic techniques. Up to now, the initiation mechanism of underwater nanosecond discharge has been still a puzzle. In this paper, we develop a two-dimensional axially symmetric underwater discharge model of pin-to-plane, and numerically investigate the electrostriction process, cavitation process, and ionization process in water, induced by nanosecond-pulsed voltage. The negative pressure in water caused by tensile ponderomotive force is calculated. The creation of nanoscale cavities (so-called nanopores) in liquid due to negative pressure is modeled by classical nucleation theory with modified nucleation energy barrier. When estimating the temporal development of nanopore radius, a varying hydrostatic pressure is considered to restrain the unlimited expansion of nanopores. We estimate the electron generation rate by the product of the generation rate of incident electrons and the number density of nanopores. The simulation results show that cavitation occurs in liquid within several microns from pin electrode due to the electrostriction, which results in the formation of a large number of nanopores. The expansion of nanopore, caused by electrostrictive pressure on nanopore surface, provides a sufficient acceleration distance for electrons. The impact ionization of water molecules can be triggered by energetic electrons, leading the local liquid to be ionized rapidly. The effects of nanopores on rapid electron generation in water are discussed. Once nanopores are formed, the electrons can be generated in the following ways: 1) Field ionization of water molecules on the nanopore wall continuously provides seed electrons; 2) the seed electrons accelerated in nanopores enter into the liquid and collide with water molecules, resulting in the rapid increase of electrons. It can be inferred that the randomly scattered nanopores act as micro-sources of charges that contribute to the continuing ionization of liquid water in cavitation region near pin electrode. Electrostriction mechanism provides a new perspective for understanding the initiation of nanosecond-pulsed discharge in water.

Keywords: nanosecond-pulsed voltage, underwater discharge, electrostriction, cavitation

PACS: 47.40.-x, 52.27.Ny, 51.50.+v, 52.20.Fs

DOI: 10.7498/aps.70.20201048

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51607139).

[†] Corresponding author. E-mail: liyuan8490@xjtu.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: gjzhang@xjtu.edu.cn