

УДК 537.527.9  
EDN: OTIOGL

PACS: 52.80.Tn



## Влияние частоты следования импульсов напряжения на эффективность синтеза озона в воздухе в барьерном разряде

В. В. Андреев, Л. А. Васильева, А. Н. Матюнин

*Исследовано при атмосферном давлении в воздухе влияние частоты следования и формы высоковольтных импульсов на производительность по озону плоскопараллельной ячейки диэлектрического барьерного разряда (ДБР). Для различных частот проанализированы вольтамперные характеристики, а также зависимости концентрации синтезированного озона от действующего значения напряжения. Кроме того, производительность по озону в значительной мере зависит от длительности и амплитуды периодических импульсов высоковольтного напряжения на электродах. Так, при коротких последовательностях высоковольтных импульсов (в эксперименте 20 кВ пиковое значение) с длительностью 70 нс, следующих с частотой 400 Гц, производительность по озону такая же, как и при использовании переменного напряжения с действующим значением 5,3 кВ и периодом 1/400 с. В первом случае активная потребляемая разрядной ячейкой мощность существенно меньше, чем во втором случае.*

**Ключевые слова:** диэлектрический барьерный разряд, синтез озона, низкотемпературная плазма, вольтамперная характеристика, активная потребляемая мощность.

DOI: 10.51368/1996-0948-2024-1-25-31

### Введение

Низкотемпературная атмосферная плазма, генерируемая в ячейке диэлектрического барьерного разряда (ДБР), находит широкое применение в самых разнообразных сферах [1–4]: синтез озона, биомедицина, разложение загрязняющих веществ, преобразование энер-

гии, модификация поверхностей материалов. С применением образующейся в ячейке ДБР «холодной» плазмы разрабатываются и развиваются, например, технологии плазменного («сухого») травления, а также направленного изменения физико-химических свойств поверхностных слоев материалов. Другими эффективными и перспективными областями использования ячеек ДБР с генерируемой в них плазмой могут являться технологии синтеза наночастиц [5], улучшения эффективности преобразования энергии при разработке сенсibilизированных красителем солнечных элементов в качестве сравнительно недорогих фотоэлектрических преобразователей [6], управления высокоскоростными потоками воздуха, обтекающими движущиеся в воздухе объекты, путём воздействия на характеристики пограничного слоя с помощью электрических разрядов и «холодной» плазмы [7–9]. Таким образом, очень важны как теоретические, так и экспериментальные исследования,

**Андреев Всеволод Владимирович**, доцент, к.ф.-м.н.

E-mail: andreev\_vsevolod@mail.ru

**Васильева Людмила Анатольевна**, старший преподаватель.

E-mail: ask\_lyuda@mail.ru

**Матюнин Алексей Николаевич**, доцент, к.т.н.

E-mail: matyunin86@mail.ru

ФГБОУ ВО «Чувашский государственный университет имени И. Н. Ульянова».

Россия, 428015, г. Чебоксары, Московский пр., 15.

Статья поступила в редакцию 20.11.2023

После доработки 26.01.2024

Принята к публикации 30.01.2024

Шифр научной специальности: 1.3.9

© Андреев В. В., Васильева Л. А., Матюнин А. Н., 2024

направленные на всесторонний анализ микро-разрядных и электрохимических процессов в ячейках ДБР, с целью получения низкотемпературной плазмы с требуемыми и контролируемыми характеристиками. Сложность исследования возникающих в подобных разрядных системах процессов состоит в том, что протекают они очень быстро и являются нелинейными [10].

Характер плазмохимических процессов зависит существенным образом от множества взаимосвязанных факторов, включая свойства диэлектрика, его толщину [11], пространственно-временную конфигурацию создаваемого в разрядной ячейке ДБР электрического поля [12, 13], следовательно, геометрическую конфигурацию высоковольтных электродов. Ранее были исследованы плазмохимические процессы в ячейках ДБР с вращающимся диэлектриком [14, 15]. Микро-разряды, в отличие от традиционных систем без вращающихся элементов, в этом случае в разрядной ячейке возникают при подаче на электроды постоянного высоковольтного напряжения. В работе [16] исследовано влияние полярности подаваемого на электроды напряжения на количество озона, синтезируемого в воздушном зазоре между высоковольтным электродом и диэлектриком. Энергетическая цена синтеза озона в ячейке ДБР с многополосными электродными системами, имеющими различные геометрические размеры, исследована в работе [17]. Различные составы короностойких покрытий для нанесения на поверхность диэлектрика с целью увеличения срока его службы в разрядной ячейке исследованы в работе [18]. Для повышения производительности генератора озона, работающего на ДБР, в работе [19] предложено использовать высоковольтные электроды с высоким активным электрическим сопротивлением. Влияние формы высоковольтного импульса, подаваемого на электроды ячейки ДБР, исследовано в работе [20].

В данной работе исследовано при атмосферном давлении в воздухе влияние частоты следования и формы высоковольтных импульсов на производительность по озону ячейки ДБР, состоящей из двух плоскопараллельных электродов, диэлектрика между ними, а также воздушного зазора, в котором синтезируется

озон. Получены и проанализированы также вольтамперные характеристики (ВАХ). Следует отметить, что в ячейках ДБР необходимо учитывать нелинейный характер протекающих процессов. Например, повышение частоты следования импульсов высокого напряжения в разрядной ячейке ДБР, с одной стороны, ведёт к увеличению количества синтезируемого за единицу времени озона, но, с другой стороны, рост частоты может стать причиной разогрева разрядной ячейки. Так, в работе [21] отмечено, что с повышением частоты рост концентрации озона происходит лишь до определённого предела.

### Экспериментальные установки

Эксперименты с ДБР проведены в герметичной плоскопараллельной разрядной ячейке. В качестве двух плоских параллельных электродов использованы алюминиевые пластины. Размер и площадь поверхности одного такого плоского электрода равнялись  $S = 15,5 \text{ см} \times 7,5 \text{ см} = 116,25 \text{ см}^2$ . Диэлектрик из стеклотекстолита толщиной 1 мм был прикреплён к поверхности одного из электродов. Воздушный зазор между стеклотекстолитом и вторым электродом составлял 1,5 мм. Электрическая ёмкость такой ячейки ДБР определялась измерителем RLC E7-8 и оказалась равной  $C_{dc} = 0,14 \text{ нФ}$ . При измерениях через разрядную ячейку продувался воздушный поток со скоростью  $V = 1,8 \text{ л/мин}$ . Концентрация озона измерялась газоанализатором модели «МедОзон 254/5б». Разрядная ячейка охлаждалась направленным на неё воздушным потоком.

Измерения проведены с двумя разными источниками питания, генерирующими электрические импульсы разной геометрической формы, различной длительности и частоты следования. Электрическая схема первой установки приведена на рис. 1. На вход автотрансформатора 1 подаётся переменное напряжение с частотой  $f_{Bx} = 50 \text{ Гц}$  и действующим значением  $U_{Bx,д} = 220 \text{ В}$ . На выходе ЭМП 2 форма переменного напряжения отличается от синусоидальной. Так, при амплитудном значении напряжения на выходе ЭМП  $U_{2,А} = 200 \text{ В}$  действующее значение равно  $U_{2,д} = 111,8 \text{ В}$ . Для синусоидальной формы



ческая схема которой приведена на рис. 1, на вход ВИИП подаётся напряжение с действующим значением 220 В и с частотой 50 Гц. На выходе ВИИП импульсы имеют следующие параметры: фронт импульса  $t_f = 20$  нс; полуширина импульса  $t_{и} = 70$  нс; частота следования импульсов  $f_{и} = 400$  Гц; амплитуда импульса  $U_{и} = 20$  кВ.

### Эксперименты и анализ результатов

На рис. 3 представлена ВАХ ячейки ДБР при подключении её электродов к высоковольтному источнику напряжения в соответствии с электрической схемой, представленной на рис. 1. По оси абсцисс отложены действующие значения напряжения на электродах, а по оси ординат – средние значения тока через разрядный промежуток.

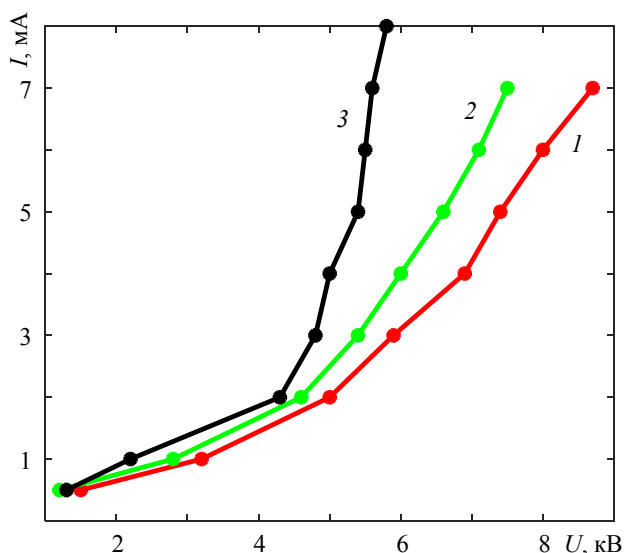


Рис. 3. ВАХ ячейки ДБР при разных частотах высоковольтного напряжения на электродах: 1 – 200 Гц; 2 – 250 Гц; 3 – 400 Гц. По оси ординат отложены средние значения тока. По оси абсцисс отложены действующие значения напряжения

При действующих значениях напряжения, превышающих 4,0 кВ, имеется на ВАХ точка излома. Эти точки излома смещаются слева направо и снизу вверх с ростом частоты высоковольтного напряжения, приложенного к электродам ячейки ДБР. Многими исследователями отмечено [2], что иногда вблизи излома имеет место разброс экспериментальных точек. Подобное наблюдается на рис. 3 и 4. ВАХ подразделяется на два участка: первый –

слева от точки излома; второй – справа от точки излома. На левом участке отсутствует ДБР, а на правом он имеет место. При этом в области действующих значений напряжения от 4,0 кВ до 4,5 кВ происходит синтез озона в малых количествах, т. е. указанная область является переходной от участка 1 к участку 2. Величина критического напряжения, соответствующего излому ВАХ, может зависеть от концентрации синтезируемого озона, от рода газа и его давления, а также от конструктивных особенностей разрядной ячейки, например, от геометрической конфигурации электродов. Уравнения линейной регрессии, полученные методом наименьших квадратов для наборов экспериментальных данных, соответствующих правым линейным участкам ВАХ, имеют вид:  $I_{ср} = 1,36U_{4,д} - 5,03$ ,  $I_{ср} = 1,71U_{4,д} - 6,11$  и  $I_{ср} = 4,0U_{4,д} - 15,67$  для кривых 1, 2 и 3, соответственно, представленных на рис. 3. Отношение частот для ВАХ 2 и 1 составляет 1,25, а отношения коэффициентов соответствующих этим ВАХ уравнений линейной регрессии соответственно равны:  $1,71/1,36 = 1,26$  и  $6,11/5,03 = 1,21$ . Таким образом, для близких частот наблюдается линейная зависимость среднего тока от частоты на всём участке измерений действующих значений напряжения на электродах разрядной ячейки. Для ВАХ 3 и 1 отношение частот равно 2, а отношения коэффициентов соответствующих им уравнений линейной регрессии –  $4,0/1,36 = 2,94$  и  $15,67/5,03 = 3,11$  соответственно. Для ВАХ, заданных кривыми 3 и 2, получаются следующие результаты: отношение частот 1,6, а отношения коэффициентов уравнений линейной регрессии  $4,0/1,71 = 2,34$  и  $15,67/6,11 = 2,56$ . Следовательно, зависимость среднего тока через разрядный промежуток от частоты высоковольтного напряжения на электродах ячейки ДБР становится нелинейной.

На интервале действующих значений напряжения примерно от 4,5 кВ до 5,5 кВ наблюдается резкий рост концентрации озона. Затем производительность по озону ячейки ДБР в среднем выходит на постоянный уровень. Но длина горизонтального плато уменьшается с ростом частоты напряжения на электродах (рис. 4). Это связано с тем, что с ростом количества синтезируемого озона при большей частоте напряжения на электродах

возрастает также количество распадающегося озона. Так как реакция распада озона сопровождается выделением теплоты, то вследствие этого повышается температура в разрядной ячейке. При большей температуре интенсивность распада озона ещё более возрастает. При увеличении действующего значения напряжения горизонтальное плато переходит в спадающую область (рис. 4). Нелинейный характер (выход на горизонтальное плато и спад в дальнейшем) зависимости концентрации озона от действующего значения напряжения связан с тем, что при его росте увеличивается активная мощность ДБР. Это приводит к разогреву ячейки ДБР.

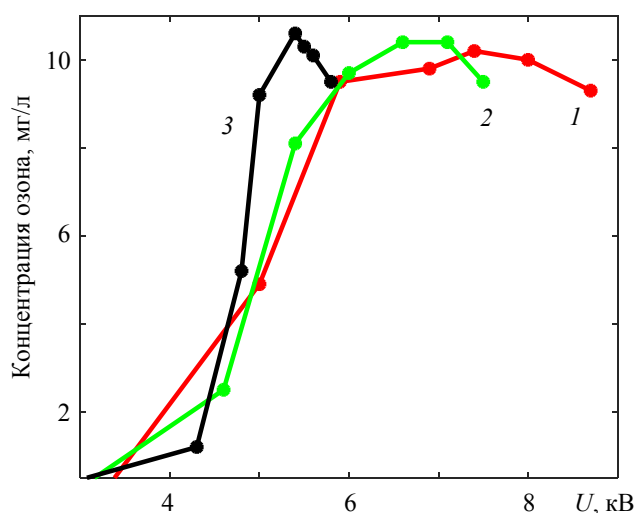


Рис. 4. Зависимость от действующего значения напряжения на электродах концентрации озона на выходе ячейки ДБР при разных частотах: 1 – 200 Гц; 2 – 250 Гц; 3 – 400 Гц

Проанализируем влияние на производительность по озону формы импульса электрического напряжения на электродах ячейки ДБР. Измерялась концентрация озона с использованием ВИИП, представленного на рис. 2. При частоте следования импульсов  $f_{и} = 400$  Гц, имеющих полуширину  $t_{и} = 70$  нс, фронт  $t_{ф} = 20$  нс и амплитуду  $U_{и} = 20$  кВ, концентрация озона равнялась 9,8 мг/л. Вычислим отношение активных мощностей для кривой 3 на рис. 4 (частота импульсов в этом случае также 400 Гц) при действующем значении напряжения  $U_{4,д} = 5,3$  кВ, что примерно соответствует максимальной концентрации синтезируемого озона. Средний ток в этом случае равен 6 мА. Средний ток в разрядной ячейке в случае её подключения в соответ-

ствии со схемой на рис. 2 равен  $I_{ср,2} = 51$  мА. Тогда активная потребляемая мощность ячейки ДБР оценивается по формулам  $U_{4,д}I$  и  $((U_{и})^2(t_{и} + t_{ф}/2)f_{и})^{0,5}I_{ср,2}$  в случае экспериментов с подключением по схемам на рис. 1 и рис. 2 соответственно. Во втором случае форма импульса приближённо предполагается прямоугольной с шириной  $t_{и} + t_{ф}/2$ . В результате получим  $U_{4,д}I/(((U_{и})^2(t_{и} + t_{ф}/2)f_{и})^{0,5}I_{ср,2}) = 5,3 \times 6 / ((4 \times 10^8 \times (70 + 10) \times 10^{-9} \times 400)^{0,5} \times 5,1 \times 10^{-2}) = 31,8 / 5,77 = 5,51$ . Следовательно, при питании ячейки ДБР от источника коротких импульсов длительностью в несколько десятков наносекунд в рассматриваемых случаях при практически одинаковых концентрациях синтезированного озона потребляемая активная мощность во втором случае меньше. В то же время при нелинейно протекающих процессах усреднённые энергетические характеристики иногда дают лишь достаточно грубые оценки. Поэтому полученная оценка, возможно, завышенная. Следует отметить, что при использовании источника питания с короткими высоковольтными импульсами ячейка ДБР нагревается в значительно меньшей степени. Это одна из причин меньших энергозатрат на синтез озона при использовании ВИИП. В дальнейшем планируется проведение экспериментов для детального исследования влияния формы высоковольтных импульсов на эффективность синтеза озона.

## Заключение

Таким образом, при разработке ячеек ДБР для синтеза озона важно учитывать нелинейный характер протекающих процессов. Производительность такого генератора озона существенным образом зависит как от частоты следования высоковольтных импульсов, так и от формы самих импульсов. Причём эта зависимость при разных параметрах, характеризующих ДБР, проявляется по-разному.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Yu G., Peng B., Jiang N., Wang R., Sun H., Liu Z., Shang K., Lu N., Li J. / J. Phys. D: Appl. Phys. 2023. Vol. 56. P. 475206.
2. Лунин В. В., Попович М. П., Ткаченко С. Н. Физическая химия озона. – М.: Изд-во МГУ, 1998.

3. Самойлович В. Г., Гибалов В. И., Козлов К. В. Физическая химия барьерного разряда. – М.: Изд-во МГУ, 1989.
4. Тренкин А. А., Алмазова К. И., Белоногов А. Н., Боровков В. В., Горелов Е. В., Морозов И. В., Харитонов С. Ю. / Журнал технической физики. 2021. Т. 91. Вып. 2. С. 255–261.
5. Wenxi Yang, Mingxia Sun, Hongjie Song, Yingying Sub, Yi Lv / J. Mater. Chem. C. 2020. Vol. 8. P. 16949–16956.
6. Zen S., Teramoto Y., Ono R., Oda T. / Jpn. J. Appl. Phys. 2012. Vol. 51. P. 056201.
7. Шибаков В. М., Александров А. Ф., Ершов А. П., Тимофеев И. Б., Черников В. А., Шибакова Л. В. / Физика плазмы. 2005. Т. 31. № 9. С. 857–864.
8. Leonov S. B., Sermanov V. N., Soloviev V. R., Yarantsev D. A. Supersonic Rupture's Shock Control by Electrical Discharge. In: Zhuang F. G., Li J. C. (eds) New Trends in Fluid Mechanics Research. – Springer, Berlin, Heidelberg. 2007. P. 190–193.
9. Баранов С. А., Киселев А. Ф., Курячий А. П., Сбоев Д. С., Толкачев С. Н., Чернышев С. Л. / Известия РАН. Механика жидкости и газа. 2021. № 1. С. 67–79.
10. Jiting Ouyang, Ben Li, Feng He, Dong Dai / Plasma Sci. Technol. 2018. Vol. 20. P. 103002.
11. Zhi-jie Liu, Wen-chun Wang, De-zheng Yang, Shuai Zhang, Yang Yang, Kai Tang / J. Appl. Phys. 2013. Vol. 113. № 23. P. 233305.
12. Соколова М. В. / Электричество. 2011. № 7. С. 15–18.
13. Chao Wang, Hai-Xing Wang, Chang-Yu Liu, Xian Meng, Guang-Yuan Jin, He-Ji Huang, Jin-Wen Cao, Su-Rong Sun, Cong Yan / Physica Scripta. 2023. Vol. 98. № 8. P. 085605.
14. Андреев В. В., Пичугин Ю. П., Телегин В. Г., Телегин Г. Г. / Физика плазмы. 2011. Т. 37. № 12. С. 1130–1135.
15. Андреев В. В., Пичугин Ю. П. / Физика плазмы. 2014. Т. 40. № 6. С. 563–570.
16. Андреев В. В., Пичугин Ю. П. / Прикладная физика. 2017. № 3. С. 47–51.
17. Андреев В. В., Васильева Л. А., Пичугин Ю. П. / Прикладная физика. 2014. № 3. С. 43–46.
18. Andreev V. V., Kravchenko G. A., Pichugin Yu. P. / IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering. 2020. Vol. 862. P. 062086.
19. Andreev V. V., Kravchenko G. A., Matyunin A. N., Pichugin Yu. P. / IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering. 2020. Vol. 919. P. 062048.
20. Andreev V. V., Vasilyeva L. A., Pichugin Yu. P. / IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering. 2021. Vol. 1047. P. 012198.
21. Курников А. С., Власов В. Н. / Вестник ВГАВТ. 2003. № 5. С. 50–54.
22. Андреев В. В., Пичугин Ю. П., Телегин В. Г., Телегин Г. Г. / Приборы и техника эксперимента. 2013. Т. 56. № 3. С. 58–60.
23. Андреев В. В., Пичугин Ю. П. / Приборы и техника эксперимента. 2016. № 3. С. 134–137.

PACS: 52.80.Tn

## Influence of voltage pulse repetition rate on the effectiveness of ozone synthesis in air in a dielectric barrier discharge

V. V. Andreev, L. A. Vasilyeva and A. N. Matyunin

Chuvash State University  
15 Moskovskii pr., Cheboksary, 428015, Russia  
E-mail: andreev\_vsevolod@mail.ru

Received 20.11.2023; revised 26.01.2024; accepted 30.01.2024

***At atmospheric pressure in air influence of repetition rate and shape of high-voltage pulses on the productivity by ozone of a plane-parallel dielectric barrier discharge (DBD) cell is studied. For various frequencies current-voltage characteristics, as well as dependence of synthesized ozone concentration on effective voltage value are analyzed. In addition, the ozone productivity largely depends on the duration and amplitude of periodic high-voltage voltage pulses on the electrodes. So, with short sequences of high-voltage pulses (in the experiment the peak value equal to 20 kV) with duration 70 ns and following with frequency equal to 400 Hz, the ozone productivity is the same as when using AC voltage with an effective value equal to 5.3 kV and period with duration 1/400 s. In the first case, active power consumed by the discharge cell is significantly less than in the second case.***

**Keywords:** dielectric barrier discharge, ozone synthesis, low-temperature plasma, current-voltage characteristic, active power consumption.

## REFERENCES

1. Yu G., Peng B., Jiang N., Wang R., Sun H., Liu Z., Shang K., Lu N. and Li J., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **56**, 475206 (2023).
2. Lunin V. V., Popovich M. P. and Tkachenko S. N., *Physical Chemistry of Ozone*, Moscow, MGU, 1998 [in Russian].
3. Samoilovich V. G., Gibalov V. I. and Kozlov K. V., *Physical Chemistry of the Barrier Discharge*, Moscow, MGU, 1989 [in Russian].
4. Tren'kin A. A., Almazova K. I., Belonogov A. N., Borovkov V. V., Gorelov E. V., Morozov I. V. and Kharitonov S. Yu., *Tech. Phys.* **66**, 243–249 (2021).
5. Wenxi Yang, Mingxia Sun, Hongjie Song, Yingying Sub and Yi Lv, *J. Mater. Chem. C* **8**, 16949–16956 (2020).
6. Zen S., Teramoto Y., Ono R. and Oda T., *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 056201 (2012).
7. Shibkov V. M., Aleksandrov A. F., Ershov A. P., Timofeev I. B., Chernikov V. A. and Shibkova L. V., *Plasma Phys. Rep.* **31**, 795–801 (2005).
8. Leonov S. B., Sermanov V. N., Soloviev V. R. and Yarantsev D. A. *Supersonic Rupture's Shock Control by Electrical Discharge*. In: Zhuang F. G., Li J. C. (eds) *New Trends in Fluid Mechanics Research*. Springer, Berlin, Heidelberg, 2007, pp. 190–193.
9. Baranov S. A., Kiselev A. F., Kuryachii A. P., Sboev D. S., Tolkachev S. N. and Chernyshev S. L., *Fluid Dyn.* **56**, 66–78 (2021).
10. Jiting Ouyang, Ben Li, Feng He and Dong Dai, *Plasma Sci. Technol.* **20**, 103002 (2018).
11. Zhi-jie Liu, Wen-chun Wang, De-zheng Yang, Shuai Zhang, Yang Yang and Kai Tang, *J. Appl. Phys.* **113** (23), 233305 (2013).
12. Sokolova M. V., *Elektrichestvo (Electricity)*, № 7, 15–18 (2011) [in Russian].
13. Chao Wang, Hai-Xing Wang, Chang-Yu Liu, Xian Meng, Guang-Yuan Jin, He-Ji Huang, Jin-Wen Cao, Su-Rong Sun and Cong Yan, *Physica Scripta* **98** (8), 085605 (2023).
14. Andreev V. V., Pichugin Yu. P., Telegin V. G. and Telegin G. G., *Plasma Phys. Rep.* **37** (12), 1053–1057 (2011).
15. Andreev V. V. and Pichugin Yu. P., *Plasma Phys. Rep.* **40** (6), 481–487 (2014).
16. Andreev V. V. and Pichugin Yu. P., *Applied Physics*, № 3, 47–51 (2017) [in Russian].
17. Andreev V. V., Vasilyeva L. A. and Pichugin Yu. P., *Applied Physics*, № 3, 43–46 (2014) [in Russian].
18. Andreev V. V., Kravchenko G. A. and Pichugin Yu. P., *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering* **862**, 062086 (2020).
19. Andreev V. V., Kravchenko G. A., Matyunin A. N. and Pichugin Yu. P., *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering* **919**, 062048 (2020).
20. Andreev V. V., Vasilyeva L. A. and Pichugin Yu. P., *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering* **1047**, 012198 (2021).
21. Kurnikov A. S. and Vlasov V. N., *Bulletin of VSAWT*, № 5, 50–54 (2003) [in Russian].
22. Andreev V. V., Pichugin Yu. P., Telegin V. G. and Telegin G. G., *Instrum. Exp. Tech.* **56** (3), 299–301 (2013).
23. Andreev V. V. and Pichugin Yu. P., *Instrum. Exp. Tech.* **59** (3), 462–465 (2016).