

Université de Montréal

Étude statistique de l'influence des paramètres expérimentaux et du champ magnétique
sur les décharges sparks dans l'eau déionisée

Par

Korentin Géraud

Université de Montréal, Faculté des Arts et des Sciences,

Département de physique

Mémoire présenté en vue de l'obtention du grade de Maîtrise

en Physique, option Plasma – Cheminement international

Août 2022

©Korentin Géraud, 2022

Université de Montréal

Unité académique : Faculté des Arts et des Sciences, Département de Physique

Ce mémoire intitulé

Influence du champ magnétique sur des décharges Sparks dans un liquide diélectrique

Présenté par

Korentin Géraud

A été évalué par un jury composé des personnes suivantes

Joëlle Margot

Présidente-rapportrice

Ahmad Hamdan

Directeur de recherche

Flavien Valensi

Codirecteur

Philippe Teulet

Membre du jury

Résumé

Les décharges Sparks sont des décharges électriques transitoires avec une courte durée de vie. Par rapport à son initiation en milieu gazeux, l'initiation de ce type de décharges dans un liquide diélectrique induit de nouveaux phénomènes physico-chimiques dans le plasma et aux interfaces plasma-liquide et plasma-électrodes. Depuis une vingtaine d'années, la recherche scientifique exploite les propriétés de ces décharges pour des applications diverses : dépollution de liquide, synthèse de nanoparticules, usinage par électro-érosion, etc. Dans ce contexte, ce mémoire a pour objectif d'apporter une meilleure compréhension de la physique des décharges Sparks dans les liquides diélectriques.

Les décharges dans les liquides se caractérisent par un comportement stochastique fort. Des études statistiques d'un nombre important de décharges sur les caractéristiques électriques ont été effectuées en fonction de différents paramètres. Ces paramètres sont la distance inter-électrodes, la nature des électrodes ainsi que la polarité de la tension appliquée. L'acquisition des courbes courant-tension de chaque décharge permet de déterminer ses propriétés électriques, soient la tension de claquage, le courant de la décharge, le délai de claquage, la charge injectée, la probabilité de claquage, etc. L'influence d'un champ magnétique externe, en particulier son orientation par rapport à l'axe des électrodes, sur les caractéristiques de la décharge a ensuite été explorée. L'étude des interactions plasma-électrode en fonction de l'orientation du champ magnétique a été réalisée en analysant des images de la dispersion des impacts créés par les décharges sur la contre-électrode et de l'érosion de la pointe. De plus, nous avons démontré que la nature du matériau des électrodes, en particulier ses propriétés magnétiques, influe grandement le taux d'érosion de celles-ci.

Les résultats rapportés dans ce mémoire contribueront non seulement à l'avancement de la physique des décharges dans les liquides, mais aussi au développement / optimisation des applications dans des différents domaines technologiques.

Mots-clés : décharge Spark, décharge dans les liquides, champ magnétique, analyse statistique.

Abstract

Spark discharges are transient electric discharges with a short lifetime. Compared to its initiation in a gaseous medium, the initiation of this type of discharges in a dielectric liquid induces new physico-chemical phenomena in the plasma and at the plasma-liquid and plasma-electrode interfaces. For about twenty years, scientific research has been exploiting the properties of these discharges for various applications: liquid depollution, nanoparticle synthesis, electro-erosion machining, etc. In this context, this thesis aims to provide a better understanding of the physics of Sparks discharges in dielectric liquids.

Discharges in liquids are characterized by a strong stochastic behavior. Statistical studies of a large number of discharges on the electrical characteristics have been performed as a function of different parameters. These parameters are the inter-electrode distance, the nature of the electrodes and the polarity of the applied voltage. The acquisition of the current-voltage curves of each discharge allows to determine its electrical properties, i.e. the breakdown voltage, the discharge current, the breakdown delay, the injected charge, the breakdown probability, etc. The influence of an external magnetic field, in particular its orientation relative to the axis of the electrodes, on the characteristics of the discharge was then explored. The study of the plasma-electrode interactions as a function of the magnetic field orientation was performed by analyzing images of the dispersion of the impacts created by the discharges on the counter-electrode and the erosion of the tip. Furthermore, we have shown that the nature of the electrode material, in particular its magnetic properties, greatly influences the rate of electrode erosion.

The results reported in this thesis will contribute not only to the advancement of the physics of discharges in liquids, but also to the development / optimization of applications in different technological fields.

Keywords: spark discharges, discharges in liquids, magnetic field, statistical studies.

Table des matières

Résumé.....	3
Abstract	4
Table des matières	5
Liste des tableaux.....	8
Liste des figures.....	9
Remerciements	15
Introduction.....	16
Chapitre 1 – Décharges dans les liquides et influence du champ magnétique	18
Partie A : Décharges Sparks dans les gaz	18
1) L'état plasma	18
Mécanismes d'initiation	18
Avalanche électronique.....	19
Théorie des streamers.....	22
2) Transition streamer-spark.....	23
3) Décharges sparks.....	26
Partie B : Décharges Sparks dans les liquides diélectriques	28
1) Initiation du streamer	29
Théorie de l'ionisation directe	30
Théorie des bulles	30
Influence de la présence de bulle	33
2) Mode de propagation du streamer.....	35
3) Erosion des électrodes	36

4) Bulle de cavitation.....	37
Partie C : Influence d'un champ magnétique sur des décharges sparks	40
1) Mouvement de particules chargées sous influence d'un champ électromagnétique	40
Champ magnétique seul ($E=0$)	41
Particules chargées en présence d'un champ électromagnétique.....	42
2) Décharge électrique dans les liquides en présence d'un champ magnétique : Cas de l'usinage par électro-érosion	44
Confinement du canal plasma.....	45
Érosion du matériau	46
Stabilité des décharges.....	47
Conclusion	48
Chapitre 2 – Analyse statistique de décharges Sparks dans un liquide diélectrique : influence de la distance inter-électrode, le matériel des électrodes et de la polarité de la tension sur les caractéristiques des décharges.....	50
ABSTRACT	52
I. INTRODUCTION	53
II. EXPERIMENTAL SETUP AND DATA PROCESSING.....	54
A. Experimental setup	54
B. Data acquisition and processing method.....	56
III. RESULTS	58
A. Probability of discharge occurrence and electrode erosion.....	58
B. Electrical characteristics of the discharges	61
C. Voltage-current plot.....	73
IV. DISCUSSION.....	76
V. SUMMARY AND CONCLUSIONS	82

Chapitre 3 – Influence du champ magnétique sur des décharges Sparks dans un liquide diélectrique	84
ABSTRACT	86
1. INTRODUCTION	87
2. EXPERIMENTAL SETUP.....	88
3. RESULTS.....	91
3.1. Influence of the B-field and its orientation	91
3.2. Influence of the electrode material: Ni vs. W	97
4. DISCUSSION.....	99
4.1. Influence of the B-field orientation: B = 0 vs. B-parallel vs. B-perpendicular.....	100
4.2. Influence of the electrode material: Ni vs. W	104
5. CONCLUSION	106
6. SUPPLEMENTARY MATERIAL.....	107
Conclusion et Perspectives.....	108
Références bibliographiques.....	110
Annexes	117
Annexes I : Décharge Spark pulsée dans de l’eau déionisée – Mesures électriques et étude de la bulle de cavitation	117

Liste des tableaux

Tableau 1. – Number of occurred discharges /total number of high voltage pulses under different experimental conditions ($d = 50 \mu\text{m}$).....	58
Tableau 2. – Variations in water conductivity (i.e. differences between the values measured at the end of each experiment and the value corresponding to deionized water, i.e. $3 \mu\text{S/cm}$) measured under different experimental conditions.....	78
Tableau 3. – Summary of the major differences observed while processing the experimental data acquired with W or Ni electrodes under various experimental conditions of B-field.....	101

Liste des figures

Figure 1. –	Représentation schématique d'une avalanche électronique dans un gaz	19
Figure 2. –	Courbes de Paschen pour différent gaz [5].....	21
Figure 3. –	Propagation d'un streamer positif [5].....	22
Figure 4. –	Aperçu d'un streamer positif dans un gaz de N ₂ à 200 mbar [9].....	23
Figure 5. –	Photographie Schlieren de l'onde acoustique à différents moments (la décharge a lieu à l'instant t=0) : (a) pas de décharge, (b) t=0 μs, (c) t=2 μs, (d) t=5 μs, (e) t=10 μs, (f) t=20 μs [12].....	24
Figure 6. –	Illustration de la transition streamer positif-spark à partir d'un streamer secondaire. (a), (b) Formation du streamer primaire. (c) Formation d'un canal ionisé résiduel. (d), (e) Streamer secondaire. (f), (g) transition en spark [14].	25
Figure 7. –	Illustration des structures de charges dans les nuages et des configurations où un éclair peut survenir [16]	26
Figure 8. –	Caractéristique de la tension en fonction du temps d'une décharge dans un liquide diélectrique et schéma des étapes de la décharge [22].	29
Figure 9. –	Schéma des processus de création de régions à faible densité [25]	31
Figure 10. –	a) Contraintes radiales introduites par le champ électrique sur une cavité, b) Propagation d'une fissure [26].....	32
Figure 11. –	Développement d'un streamer à partir d'une fissure. (a) cathode avec un champ électrique important. (b) les forces électrostatiques forment une fissure à la surface de l'électrode. (c) des électrons se propagent dans la fissure et se comporte comme une extension de la cathode déformant le champ électrique. (d) des fissures secondaires se développent dans le champ déformé [28].....	33
Figure 12. –	Développement d'un streamer à pression atmosphérique dans un mélange N ₂ /O ₂ /H ₂ O (79/20/1) en présence de bulle à 0.2 atm. (gauche) Photoionisation. (droite) densité d'électrons. Les valeurs maximales sont indiquées en bas de chaque figure [29].....	34
Figure 13. –	Images typiques de streamers positifs dans une huile minérale [31].....	35

Figure 14. – Topographie (a) 2D et (b) 3D d'un cratère formé par un spark dans l'eau distillée par microscopie à force atomique [34].....	37
Figure 15. – Evolution temporelle d'une bulle de cavitation produite à partir d'une décharge spark entre deux électrodes en forme de pointe [34].....	38
Figure 16. – Évolution temporelle du rayon de la bulle et sa pression interne estimé par l'équation de Rayleigh-Plesset [37].....	39
Figure 17. – (a) Mouvement cyclotronique d'un électron dans le plan perpendiculaire à B (dirigé dans le sens de ex) ; (b) Mouvement hélicoïdal de l'électron suivant B [1].....	42
Figure 18. – Trajectoires d'un ion positif dans des champs E et B constants et uniformes pour les trois cas de rapport entre vd et ωcRL . (a) $vd \ll \omega cRL$, (b) $vd \approx \omega cRL$ et (c) $vd \gg \omega cRL$. Le champ B est dirigé vers le lecteur. Sur le schéma, $wd = vd$ et $rB = RL$ [1].	43
Figure 19. – Schéma du principe l'EDM [39]	45
Figure 20. – Schéma du confinement plasma et de l'influence du champ magnétique sur le flux d'électrons dans un procédé EDM [40].....	46
Figure 21. – Effet du champ magnétique sur les dimensions (profondeur et diamètre) du cratère [40]	47
Figure 22. – Évacuation des débris de l'usinage dans un MF EDM [43].....	48
Figure 23. – Scheme of the experimental setup.	55
Figure 24. – Voltage and current waveforms of typical occurred and failed discharges in pin-to-plate electrode configuration under positive polarity voltage (a and b) and under negative polarity voltage during the first (c and d) and reflected (e and f) pulses.	57
Figure 25. – Variation of the probability of discharge occurrence as a function of normalized discharge number with (a) Cu and (b) W electrodes at $d = 50, 200, \text{ and } 500 \mu\text{m}$, for positive and negative polarity conditions.....	59
Figure 26. – (a) Superimposed images of Cu and W electrode tips showing their modification after discharge ($d = 50 \mu\text{m}$, $+20 \text{ kV}$); the impacted area on the plate electrodes is also shown. (b) Variation of the diameter of the impacted area at the cathode surface as a function of d under various conditions. (c) Variation of the weight eroded from the pin electrode as a function of d under various conditions.....	61

Figure 27. – Variation of (a) breakdown voltage, (b) discharge current (peak value), (c) discharge delay (the blue line at 100 ns indicates the end of the rising period), (d) injected charge, and (e) injected energy as a function of normalized discharge number for discharges generated in water between two Cu electrodes under positive polarity condition.63

Figure 28. – Variation of (a) breakdown voltage, (b) discharge current (peak value), (c) discharge delay, (d) injected charge, and (e) energy as a function of normalized discharge number for discharges generated in water between two Cu electrodes under negative polarity condition. The yellow highlighted regions are representative of the discharges occurring in the reflected pulse.....67

Figure 29. – (a) Breakdown voltage profiles of the discharges generated with Cu and W electrodes. Discharge delay profiles of the discharges generated with (b) Cu and with (c) W electrodes. The gap distance is 50 μm and the applied voltage is +20 kV.69

Figure 30. – (a) Breakdown voltage profiles of the discharges generated with Cu and W electrodes. Discharge delay profiles of the discharges generated with (b) Cu and with (c) W electrodes. The yellow highlighted regions are representative of the discharges occurring in the reflected pulse. The gap distance is 50 μm and the applied voltage is -20 kV.71

Figure 31. – (a) Voltage and (b) current waveforms of typical occurred and failed discharges in plate-to-pin electrode configuration under positive polarity condition during the first and reflected pulses, respectively.....72

Figure 32. – Variation of breakdown voltage as a function of normalized discharge number for discharges generated using Cu electrodes, at $d = 50 \mu\text{m}$. Three configurations are investigated: (a) pin-to-plate, +20 kV; (b) pin-to-plate, -20 kV (discharges occurring in the reflected pulse are highlighted in yellow); and (c) plate-to-pin, +20 kV (discharges occurring in the reflected pulse are highlighted in green).....73

Figure 33. – Voltage-current plots of discharges sustained between Cu electrodes in pin-to-plate configuration, under positive and negative polarity conditions and at (a) $d = 50 \mu\text{m}$, (b) $d = 100 \mu\text{m}$, (c) $d = 200 \mu\text{m}$, (d) $d = 300 \mu\text{m}$, (e) $d = 400 \mu\text{m}$, and (f) $d = 500 \mu\text{m}$75

Figure 34. – Voltage-current plots of discharges sustained between W electrodes in pin-to-plate configuration, under positive and negative polarity conditions and at (a) $d = 50 \mu\text{m}$ and (b) $d = 500 \mu\text{m}$76

Figure 35. – Drawings showing the different discharges (red lines) that can be generated between unmodified and modified Cu and W electrodes: (0) Initial discharges that occur during the rising period (discharge delay $< 100 \text{ ns}$), (1) Subsequent discharges that occur during the rising period (discharge delay $< 100 \text{ ns}$), (2) Subsequent discharges that occur during the plateau period ($100 \text{ ns} < \text{delay} < 500 \text{ ns}$), (3) Subsequent discharges that occur during the falling period (discharge delay $> 500 \text{ ns}$).
.....79

Figure 36. – a) Scheme of the experimental setup. b) Superimposed images of W electrode tips showing their modification after 5000 discharges; the impacted area on the plate electrode is also shown.89

Figure 37. – FEMM (Finite Element Methods Magnetics) simulation of the B-field with a) magnet 1 and b) magnet 2. c) Line profiles of the B-field along the gap, as extracted from a) and b).90

Figure 38. – . a) Voltage and b) current waveforms of typical occurred and failed discharges ignited between two W electrodes immersed in water under different conditions of B-field.....92

Figure 39. – Variation of (a) breakdown voltage and (b) discharge current (peak value) as a function of discharge number for discharges generated between two W electrodes immersed in water under different conditions of B-field.94

Figure 40. – Voltage-current plots of discharges sustained between W electrodes under different conditions of B-field.95

Figure 41. – Variation of discharge delay as a function of discharge number for discharges generated between two W electrodes immersed in water under different conditions of B-field.
.....96

Figure 42. – Variation of injected charge as a function of discharge number for discharges generated between two W electrodes immersed in water under different conditions of B-field.
.....97

Figure 43. – Variation of a) breakdown voltage, b) discharge current (peak value), c) discharge delay, and d) injected charge as a function of discharge number for discharges generated in between two W or two Ni electrodes immersed in water under different conditions of B-field. In the case of W electrodes, only average data are shown so as not to charge the figure. e) Voltage-current plots of discharges sustained between Ni electrodes under B = 0, B-parallel, and B-perpendicular conditions. The slopes obtained with the W electrodes are added to the figure for comparison.....98

Figure 44. – Scheme showing the forces applied to charges close to the pin anode under different B-field conditions.102

Figure 45. – Optical emission spectra acquired under B = 0 and B-perpendicular (125 mT) conditions at a) 50 ns and b) 1 μ s ICCD exposure time.104

Figure 46. – Variation of injected charge as a function of discharge delay for discharges occurring in water with W electrode under different conditions: B = 0, B-parallel, and B-perpendicular.107

À Andréa

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Ahmad Hamdan et Flavien Valensi pour m'avoir fait confiance sur ce projet et m'avoir accueilli dans leur groupe de recherche respectif à l'Université de Montréal et au laboratoire LAPLACE à Toulouse. J'ai beaucoup appris en travaillant à leurs côtés et je suis très reconnaissant des expériences qu'ils m'ont permis de vivre à travers cette collaboration.

Je tiens tout particulièrement à remercier mes proches, à mes parents et mon frère pour leur support inestimable dans la réalisation de mes études et de mes projets et à ma compagne Andréa pour ton amour et ton soutien indéfectible malgré la distance. Merci infiniment à vous.

Je remercie également Joëlle Margot d'avoir accepté de présider mon jury de maîtrise et Philippe Teulet d'y participer et pour l'attention qu'ils vont porter à ce mémoire.

À mes colocataires, amies et compagnons de voyage, Claire et Amaia, merci pour tous ces bons moments que l'on a partagés ensemble durant cette année.

À mes amis et camarades de France, merci pour ces moments de joie et de convivialité dans les salles de classe, assis dans l'herbe du campus ou autour d'un verre. Merci à Pierre, Éléne, Camille, Alexia, Antoine, Anaïs et Méguie.

À mes amis collègues de l'Université de Montréal, merci pour tous ces rires partagés et tous vos conseils et aides durant cette année. Merci à Audren, Antoine, Raphaël, Charles, Laura, Simon, Fatima et Laure.

Je remercie enfin toutes les personnes que je ne peux citer ici sous peine de remplir d'autres pages. Merci à tous ceux qui ont pu m'aider et me soutenir dans mes études ou qui ont simplement partagé un bout du chemin avec moi, professeurs, étudiants, amis et connaissances d'ici et d'ailleurs.

Introduction

Ce mémoire porte sur l'influence de différents paramètres expérimentaux sur les décharges électriques dans l'eau déionisée et sur l'influence d'un champ magnétique externe sur ces décharges. Historiquement, les premières études fondamentales conduites sur les décharges électriques (comme celles de Townsend au début des années 1900) ont été faites dans les gaz et depuis différents types de décharges ont été découverts comme les décharges coronas, luminescentes, sparks (« étincelle ») et arcs dont la formation dépendent des paramètres expérimentaux (source d'alimentation, pression du milieu, configuration des électrodes). Les mécanismes d'initiation (avalanche électronique, streamer, leader) et la physique des décharges est aujourd'hui bien connue et elles sont utilisées dans de nombreux domaines d'applications : la microélectronique (gravure), les matériaux (dépôt de couche mince), la médecine, l'environnement, l'aérospatiale, etc.

Cependant, la physique fondamentale des décharges dans les liquides diélectriques est beaucoup moins bien comprise. Celle-ci constitue un sujet de recherche de longue date, les premières recherches ayant commencé il y a environ un siècle dans le cadre d'applications électrotechniques pour l'isolation de haute tension. Les mécanismes d'initiation et de propagation des décharges dans les liquides deviennent de plus en plus clairs mais aucune des théories émises ne fait consensus dans la littérature. La difficulté d'unification des différentes théories vient de la difficulté de comparer les résultats et interprétations des auteurs du fait de la pluralité des conditions expérimentales. Sur le plan industriel, les décharges dans les liquides sont aujourd'hui intégrées dans une multitude d'applications telles que l'électro-usinage, la dépollution de liquide ou encore la synthèse de nanoparticules.

Les décharges étudiées dans ce mémoire sont des décharges sparks dans les liquides diélectriques. Des premiers travaux sur l'influence du matériau des électrodes et l'observation de la bulle de cavitation formée par la décharge ont été menés au laboratoire Laplace à Toulouse en France sous la supervision de M. Flavien Valensi. Les résultats de ces travaux sont présentés dans l'annexe 1. Des premiers essais d'étude de l'influence d'un champ magnétique sur une décharge ont été réalisés. Ils ont permis de mettre en évidence des différences de

comportement électrique mesurables en utilisant des aimants permanents. Le mémoire se concentre sur les travaux effectués à l'Université de Montréal sous la direction de M. Ahmad Hamdan. L'objectif de ces travaux est d'améliorer les connaissances sur l'influence des paramètres expérimentaux et de confirmer et développer les observations sur l'influence du champ magnétique commencées au laboratoire Laplace.

Ce mémoire se compose de trois chapitres principaux ainsi que d'une annexe. Le chapitre 1 présente une synthèse bibliographique sur les décharges électriques dans les liquides. Il expose dans une première partie l'initiation des décharges dans les gaz (avalanche électronique, propagation du streamer). Il aborde ensuite les théories apportées pour comprendre la rupture diélectrique (claquage) d'un milieu liquide. Enfin, la dernière partie présente l'influence d'un champ magnétique externe sur les décharges électriques.

Le chapitre 2 est un article publié dans *Journal of Vacuum Science & Technology A*, intitulé « Statistical analysis of pulsed spark discharges in water: effects of gap distance, electrode material, and voltage polarity on discharge characteristics ». Dans cet article, nous avons étudié les caractéristiques électriques d'un nombre important de décharges successives (plusieurs milliers) effectuées dans de l'eau déionisée en configuration pointe-plan avec des conditions expérimentales variables de distance inter-électrode (50 – 500 μm), nature des électrodes (Cu et W) et polarité de la tension appliquée (amplitude de ± 20 kV).

Le chapitre 3 est un article en cours de publication dans *Journal of Physics D : Applied Physics*, intitulé « Influence of B-field on the characteristics of pulsed spark discharges in water ». Dans cet article, nous avons continué les études statistiques sur des décharges dans l'eau déionisée mais en rajoutant un champ magnétique grâce à des aimants permanents. Deux configurations ont été explorées : les lignes de champ magnétique sont soit perpendiculaires ou parallèles à l'axe des électrodes. Le matériau des électrodes a été choisi pour leur propriété magnétique différente, paramagnétique (W) et ferromagnétique (Ni).

Chapitre 1 – Décharges dans les liquides et influence du champ magnétique

Ce chapitre s'articule trois parties : les deux premières autour des mécanismes fondamentaux d'initiation et de propagation des décharges dans les gaz puis dans les liquides diélectriques et une troisième sur les mécanismes associés aux décharges électriques en présence d'un champ magnétique et les observations expérimentales de la littérature.

Partie A : Décharges Sparks dans les gaz

1) L'état plasma

Un plasma est un milieu gazeux partiellement ou totalement ionisé et qui est globalement électriquement neutre. Cela sous-entend que dans un volume suffisamment grand de plasma la densité des charges positives (ions positifs) est à peu près égale à la densité des charges négatives (électrons et ions négatifs). Un plasma est un milieu collisionnel (les différentes espèces sont continuellement en interaction). De ce fait, il émet de la lumière et contient des électrons, des ions, des atomes et des molécules sur leurs états fondamentaux et excités. Il existe plusieurs méthodes pour générer un plasma comme en chauffant un gaz ou par focalisation de micro-ondes. La technique la plus courante en laboratoire est le cas de la décharge électrique, c'est-à-dire l'application d'un champ électrique entre deux électrodes. Il est à noter que toutes les décharges électriques ne sont pas des plasmas, certaines ne respectant toujours pas la condition de neutralité [1].

Mécanismes d'initiation

Le terme décharge dans les gaz décrit la circulation d'un courant électrique à travers un milieu gazeux diélectrique. En fonction de la pression du gaz, de la puissance électrique, de la forme des électrodes et d'autres facteurs, une décharge peut prendre différentes formes : décharge Townsend, décharge luminescente, arc, etc. [2] Dans cette partie, nous nous intéresserons en particulier aux mécanismes d'initiation et de développement des décharges Sparks qui font l'objet des chapitres 2 et 3.

Avalanche électronique

Pour générer une décharge par application d'un champ électrique, la présence d'électrons germes présents entre les deux électrodes est nécessaire. Ces électrons peuvent venir de sources naturelles comme les rayonnements cosmiques, la radioactivité et le rayonnement ultraviolet naturel mais aussi de sources artificielles comme l'émission d'électron par chauffage de la cathode. Sous l'effet du champ électrique, les électrons germes vont être accélérés suivant la direction opposée à \vec{E} :

$$\vec{a}_e = \left| \frac{-e\vec{E}}{m_e} \right| \quad \#(1)$$

Sur son chemin, un électron germe pourra ioniser un atome ($A + e^- \rightarrow A^+ + 2e^-$) si son énergie cinétique est supérieure à l'énergie d'ionisation E_i de celui-ci. Cette énergie est fournie par l'accélération causée par la présence du champ électrique \vec{E} . Un électron parcourant une distance x entre deux collisions pourra ioniser un atome : $eEx > E_i$. Les deux électrons (l'électron germe et l'électron issu de l'ionisation) seront alors accélérés à leur tour et pourront engendrer des collisions ionisantes pour former de nouveaux électrons et ions. Ce mécanisme se répète encore et encore et le nombre d'électrons formés croît exponentiellement. C'est le phénomène d'avalanche électronique, schématisé dans la Figure 1.

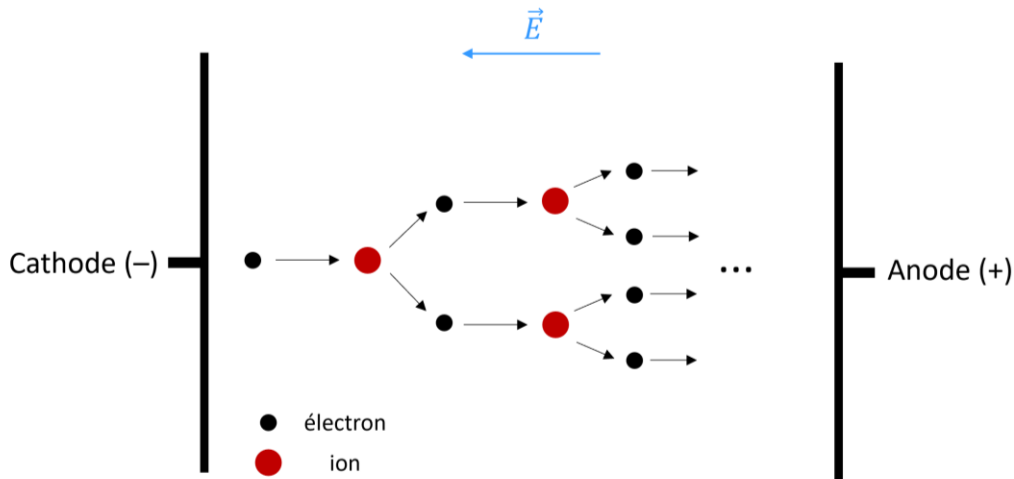


Figure 1. – Représentation schématisée d'une avalanche électronique dans un gaz

La théorie de Townsend nous permet de décrire le phénomène d'avalanche électronique en introduisant le premier coefficient de Townsend α et le deuxième coefficient de Townsend γ qui décrivent les gains en électrons d'un gaz entre deux électrodes soumis à un champ électrique [3]. α représente le phénomène d'ionisation par impact électronique. Celui-ci représente le nombre moyen d'électrons produits sur 1 cm, par un électron soumis à un champ \vec{E} dans un gaz.

$$\alpha = \frac{\text{Nombre d'ionisation par unité de longueur}}{\text{Nombre d'électrons}} \#(2)$$

Le nombre d'électrons créés dans le milieu par impact électronique, en notant N_0 le nombre initial d'électrons après avoir parcouru une distance x peut être déterminé par :

$$\frac{dN_e}{dx} = \alpha N \Rightarrow N_e(x) = N_0 e^{\alpha x} \#(3)$$

Le coefficient α est fonction de l'intensité du champ électrique (E) et de la pression (P) du gaz. Les constantes A et B sont reliées à la nature du gaz.

$$\alpha(E, P) = AP e^{-\frac{BP}{E}} \#(4)$$

Lorsqu'un ion arrive sur la cathode, il peut expulser un électron secondaire de celle-ci par conversion de son énergie cinétique. C'est le deuxième coefficient de Townsend γ qui régit ce phénomène. γ dépend uniquement de la nature de l'électrode.

$$\gamma = \frac{\text{Nombre d'électrons secondaires produits}}{\text{Nombre d'ions incidents}} \#(5)$$

On peut maintenant évaluer le nombre d'électrons générés par une avalanche électronique initié par un seul électron généré au niveau de la cathode. Le nombre d'électrons à une distance x de la cathode sera $N_e(x) = e^{\alpha x}$. Si on considère une distance d entre les deux électrodes, $e^{\alpha d}$ électrons arriveront sur l'anode. Le premier électron aura donc généré $e^{\alpha d} - 1$ ions qui arriveront sur la cathode et extrairont $\mu = \gamma(e^{\alpha d} - 1)$ électrons secondaires. Ce processus se répètera alors avec ces nouvelles charges et augmentera avec le temps causant un

claquage si le nombre d'électrons secondaires à chaque cycle est supérieur à 1 ($\mu \geq 1$). La condition d'auto-entretien des avalanches électroniques est définie pour $\mu = 1$.

$$\gamma(e^{\alpha d} - 1) = 1 \Leftrightarrow e^{\alpha d} = \ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right) \quad \#(6)$$

A partir de cette équation et de l'expression de α , Paschen a établi une relation entre la tension de claquage (V_c) et le produit pression x distance (pd) pour un champ électrique homogène ($E = \frac{V}{d}$) [4] :

$$V_c = \frac{B \cdot pd}{C + \ln(pd)} \text{ avec } C = \ln\left(\frac{A}{\ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right)}\right) \quad \#(7)$$

Dans le cas où la nature du gaz et des électrodes est connue (donc les valeurs de A, B et γ), V_c est seulement fonction du produit pd . Les courbes de Paschen sur la figure 2 sont les représentations de cette relation pour différents gaz. On remarque l'existence d'un minimum où la tension de claquage est la plus faible pour une valeur $(pd)_{\min}$. Les conditions pour la multiplication électronique γ sont optimales. En effet, à faible pd , le libre parcours moyen des électrons est très grand diminuant ainsi la probabilité des collisions ionisantes. La tension nécessaire doit être plus élevée pour compenser avec des électrons plus énergétiques. À fort pd , le libre parcours moyen des électrons est plus petit. Les pertes d'énergies par collisions deviennent trop importantes de sorte que la tension appliquée doit être suffisamment élevée pour permettre aux électrons de gagner assez d'énergie cinétique afin d'assurer une collision ionisante.

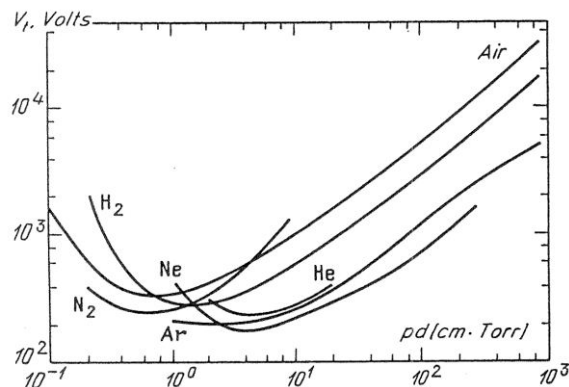


Figure 2. – Courbes de Paschen pour différent gaz [5]

Théorie des streamers

Les mécanismes de Townsend prédominent pour des valeurs faibles de pd ($pd < 200$ Torr.cm) et de tension appliquée. Les théories fondamentales des claquages des décharges Sparks ont été développées par Loeb [6], Meek [7] et Raether [8] vers 1940. La théorie est basée sur le concept du développement d'un mince canal ionisé (streamer) entre les électrodes. Au sein d'une avalanche électronique, le nuage d'électrons est contrôlé par le champ \vec{E} externe. On définit le streamer comme le moment où l'avalanche électronique a généré suffisamment de charges dans le milieu pour que le champ électrique généré par celles-ci ne soit plus négligeable devant le champ électrique appliqué.

Les électrons issus de l'avalanche électronique se déplacent vers l'anode, laissant donc derrière eux les ions ($\mu_e > \mu_i$). Cela provoque une séparation locale des charges entraînant la formation d'une charge d'espace et d'un champ résultant \vec{E}' . La transformation d'une avalanche électronique en streamer se fait lorsque le champ de charge d'espace atteint l'ordre de grandeur du champ appliqué ($\vec{E}' \sim \vec{E}$). Ce critère s'obtient lorsque le nombre d'électrons à la tête de l'avalanche avoisine les 10^8 d'après Meek.

On distingue deux types de streamers : les streamers positifs (se propageant vers la cathode) et les streamers négatifs (se propageant vers l'anode). Prenons le cas du streamer positif (Figure 3) pour expliquer les mécanismes de propagations des streamers.

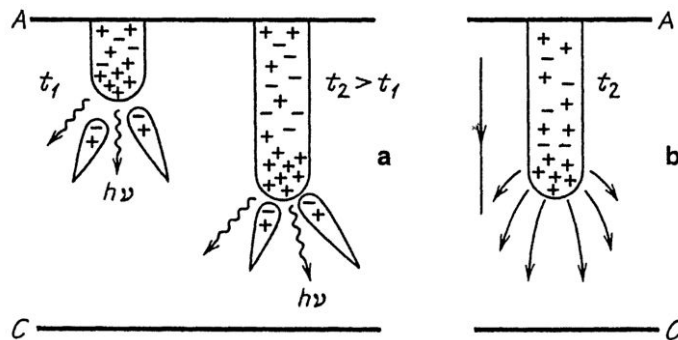


Figure 3. – Propagation d'un streamer positif [5]

Deux phénomènes permettent cette propagation : la charge d'espace et la photoionisation. Le champ \vec{E}' issu de la charge d'espace permet de créer de nouvelles avalanches électroniques à la tête du streamer. Ces avalanches électroniques génèrent des électrons qui vont se déplacer vers l'anode en laissant derrière eux des ions positifs. Une nouvelle charge d'espace se forme donc. En même temps, des atomes excités au niveau de la tête du streamer peuvent libérer des photons. Un ou plusieurs photons ainsi émis peuvent ioniser un atome proche de la tête du streamer si $h\nu > E_i$ et engendrer des avalanches secondaires. La propagation des photons est isotrope et aléatoire de sorte que le streamer peut avoir un aspect filamentaire avec une structure arborescente (Figure 4).

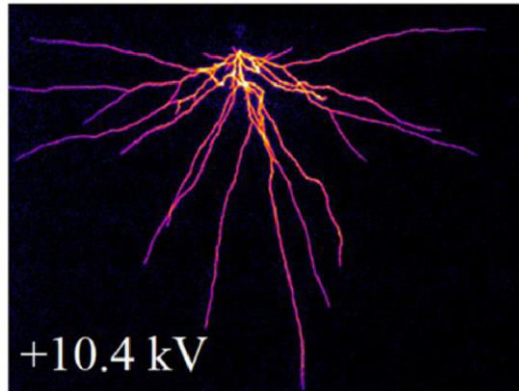


Figure 4. – Aperçu d'un streamer positif dans un gaz de N_2 à 200 mbar [9]

Les processus d'ionisations s'effectuent au niveau de la tête du streamer tandis que le plasma dans le canal du streamer est dans un régime de décroissance. Le champ électrique réduit E/N (N est la densité du gaz) peut aller jusqu'à 10^3 Td (1 townsend (Td) = 10^{-21} V.m²) au niveau de la tête du streamer alors qu'il serait d'environ 20 Td dans le canal. La densité électronique dans le canal est d'environ 10^{14} - 10^{15} cm⁻³. Durant la propagation, la température électronique (T_e) augmente à environ 1 eV tandis que le gaz reste à température ambiante.

Les mécanismes de propagation d'un streamer négatif sont sensiblement les mêmes. La différence majeure se situe au niveau de la tête du streamer, composé d'ions positifs pour le streamer positif et d'électrons pour le streamer négatif.

2) Transition streamer-spark

Comme mentionné dans la partie précédente, les processus d'ionisation sont très efficaces au niveau de la tête du streamer mais le champ électrique en amont est plus faible et le taux d'ionisation décroît. La densité électronique dans le canal du streamer décroît par réactions de recombinaison et/ou d'attachement. Par exemple, dans le cas d'une décharge générée dans l'air sec, la diminution d'électron est due à la recombinaison dissociative des électrons avec les ions O_4^+ puis l'attachement à trois corps avec l' O_2 . Il doit donc y avoir des processus pour contrebalancer ces pertes afin d'initier le claquage en accélérant les processus d'ionisation [10]. Plusieurs mécanismes seraient possibles :

- **Réduction de la densité de gaz** : Ce mécanisme est basé sur le chauffage ohmique du gaz dans le canal plasma. L'augmentation de la température du gaz T_g dans le canal entraîne une augmentation de la pression. Ce phénomène entraîne une onde de choc (Figure 5) qui évacue le gaz du canal plasma et réduit donc la densité du gaz N. Par ce phénomène, le champ électrique réduit E/N augmente et accélèrent les réactions d'ionisations par impact électronique [11].

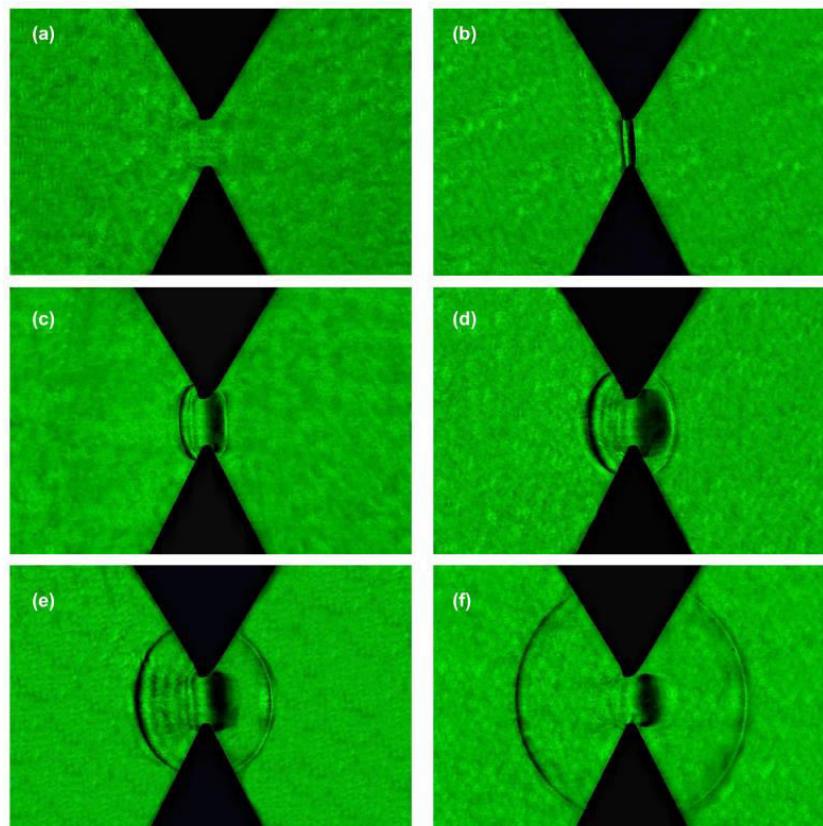


Figure 5. – Photographie Schlieren de l'onde acoustique à différents moments (la décharge a lieu à l'instant $t=0$) : (a) pas de décharge, (b) $t=0 \mu\text{s}$, (c) $t=2 \mu\text{s}$, (d) $t=5 \mu\text{s}$, (e) $t=10 \mu\text{s}$, (f) $t=20 \mu\text{s}$ [12]

- **Streamer secondaire** : Quand le streamer atteint la contre électrode, un canal résiduel reste entre les électrodes. La distribution du taux d'attachement le long du canal plasma produit une augmentation du champ électrique réduit près de l'anode ($\approx 80 \text{ Td}$) [13]. Cette région est appelée « streamer secondaire » par Loeb qui a supposé qu'il s'agit d'une nouvelle vague d'ionisation après le premier streamer. Une diminution de la densité du gaz à cause de l'onde de choc entraîne l'extension de cette région jusqu'à la cathode. Si le champ réduit E/N devient assez important, une décharge spark s'établit. La figure 6 illustre ces mécanismes de formation d'un spark. La moitié gauche de l'illustration de chaque étape montre la distribution du champ réduit E/N dans l'axe des électrodes et la moitié droite montre les densités relatives des électrons (\blacktriangledown), ions négatifs (∇) et positifs (\circ).

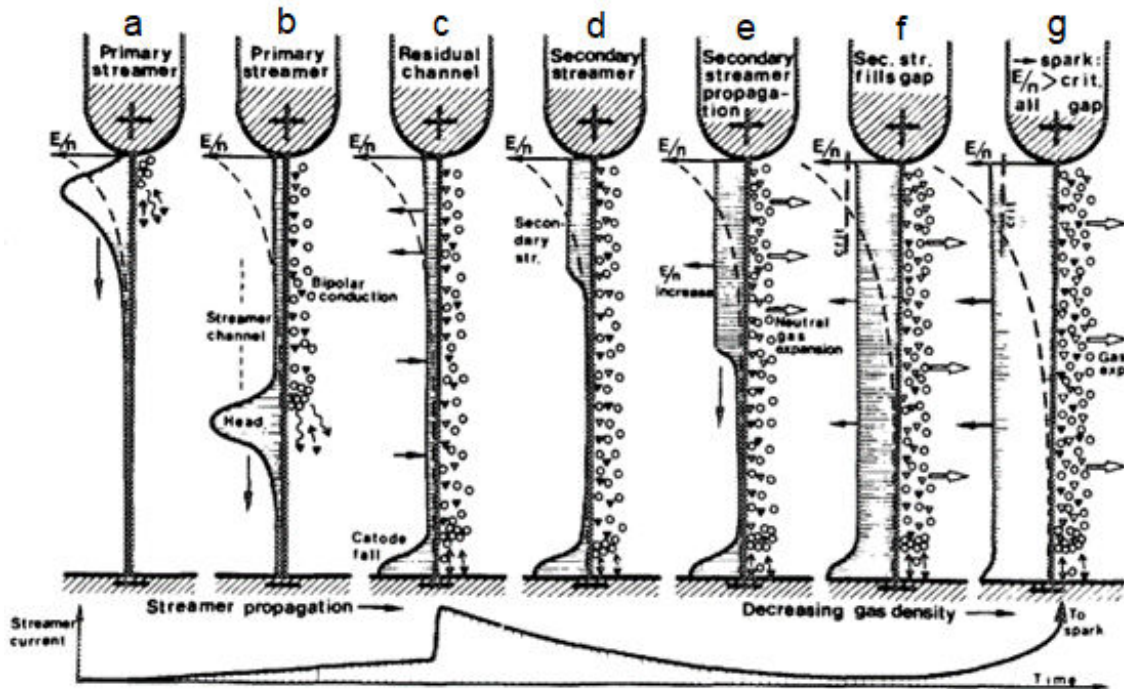


Figure 6. – Illustration de la transition streamer positif-spark à partir d'un streamer secondaire. (a), (b) Formation du streamer primaire. (c) Formation d'un canal ionisé résiduel. (d), (e) Streamer secondaire. (f), (g) transition en spark [14].

- **Accumulation d'espèce réactives** : Naidis a montré à l'aide d'un modèle 0D [15] que la transition streamer-spark dans l'air pouvait être due à l'accumulation d'espèces réactives (en particulier celles composées d'oxygène). Cette accumulation entraîne l'augmentation du taux de réactions de détachement et ainsi du gain en électrons.

Ces mécanismes agissent simultanément mais leurs contributions dépendent des conditions extérieures (pression, champ électrique, etc.). En effet, une diminution notable de la densité du gaz peut survenir à des temps supérieurs aux ratio du rayon du streamer et de la vitesse du son. A des valeurs typiques de rayons du streamer (centaine de micromètres), ces durées sont de l'ordre de la microseconde. Cela signifie que pour des conditions où la transition streamer-spark s'effectue à des échelles de temps inférieur $1 \mu\text{s}$, les mécanismes de cinétiques chimiques prédominent.

3) Décharges sparks

Les éclairs sont des décharges sparks naturelles à grande échelle. Ils peuvent faire plusieurs kilomètres de long et le claquage peut survenir entre un nuage et le sol ou entre deux nuages (Figure 7). Une décharge Spark dans les conditions de laboratoire est semblable à un éclair miniature.

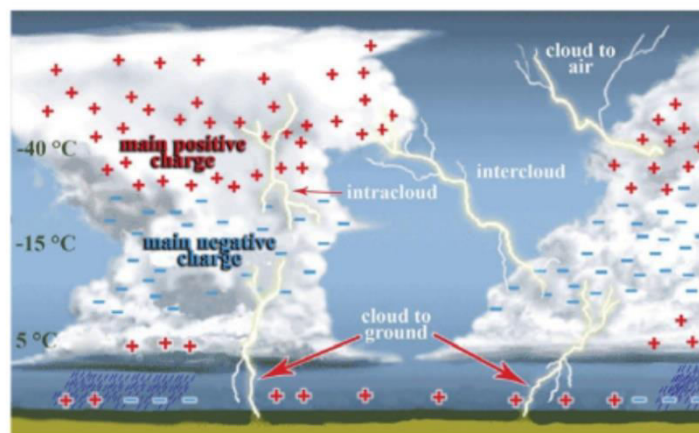


Figure 7. – Illustration des structures de charges dans les nuages et des configurations où un éclair peut survenir [16]

Quand la décharge spark est établie, après la transition streamer-spark, la densité électronique atteint des valeurs élevées de l'ordre de 10^{17} - 10^{18} cm^{-3} et la conductivité électrique du canal plasma augmente. C'est ce moment qu'on définit comme la rupture diélectrique (claquage) du milieu. Un fort courant électrique (de la dizaine à la centaine d'ampères) traverse alors le canal plasma et l'espace inter-électrode se remplit alors d'un canal lumineux, parfois avec des ramifications et des zigzags. Un spark s'accompagne d'un bruit de craquement, comme le tonnerre accompagne un éclair, causé par l'onde acoustique décrite plus haut [5]. Les propriétés physiques des décharges sparks ne sont pas encore totalement comprises car ce sont des phénomènes rapides (de la dizaine à la centaine de ns), transitoires et non stationnaires. Les décharges Sparks surviennent pour des distances inter-électrodes de quelques millimètres ou centimètres dans les gaz, à la pression atmosphérique ou au-delà. D'un point de vue pratique, il est plus simple d'initier un spark dans l'espace inter-électrode avec un champ électrique non-uniforme (configuration pointe-plan ou fil-plan), nécessitant des tensions appliquées plus faibles.

Dans une décharge spark, la densité électronique est assez importante pour que les électrons thermalisent les particules lourdes (neutres et ions), augmentant la température du gaz jusqu'à quelques milliers de kelvins. L'ionisation par thermo-émission devient prépondérante. Le destin ultérieur de la décharge dépend alors des paramètres d'alimentation (énergie fournie et durée d'alimentation). Si la durée d'alimentation est inférieure à $1 \mu\text{s}$, la thermalisation des espèces lourdes n'est pas complète et l'équilibre thermodynamique n'est pas atteint. L'équilibre thermodynamique dans un plasma se caractérise par la micro-réversibilité de tous les processus chimiques et $T_e \approx T_i, T_g$. Avec une source d'alimentation pouvant fournir de l'énergie sur une plus longue durée, l'équilibre thermodynamique est atteint et la décharge passe à un régime d'arc [17].

Partie B : Décharges Sparks dans les liquides diélectriques

Historiquement, ce sont les études en électrotechnique sur l'isolations des hautes tensions qui ont permis de s'intéresser aux décharges électriques dans les liquides. Aujourd'hui, les champs d'applications de ce type de décharges sont beaucoup plus variés. On peut citer par exemple le traitement des liquides (dépollution, création d'espèces réactives) [18], la synthèse de nanoparticules [19] et l'usinage par électro-érosion (EDM) [20]. Le choix du liquide diélectrique est dépendant de ses propriétés (composition chimique, polarité, permittivité) et de l'application. L'eau déionisée est le liquide le plus courant pour sa facilité d'utilisation et sa haute permittivité ($\epsilon \approx 80$) mais d'autres liquides sont utilisés comme des hydrocarbures (heptane, cyclohexane) des huiles ou de l'azote liquide.

Dans les liquides, les mécanismes du claquage sont plus complexes que ceux dans les gaz parce qu'il y a de nombreux processus physiques qui peuvent intervenir simultanément. Les processus impliqués dans les décharges dans les liquides sont donc différents de ceux pour les décharges dans les gaz. Trois facteurs principaux différencient les liquides des gaz d'un point de vue électrique : la densité en particules du milieu, la rigidité diélectrique et la présence d'ions et leur mobilité dans les solutions aqueuses. La rigidité diélectrique est traduite par la tension maximale que le milieu peut supporter sans qu'il ne claque. C'est une propriété liée à la nature du liquide, à la tension appliquée (valeur et durée de pulse), à la géométrie des électrodes et à la distance qui les sépare [21].

La caractéristique électrique typique en tension d'une décharge nanoseconde dans un diélectrique liquide est présentée dans la figure 8. Après la montée en tension (étape ①), une phase de pré-claquage (étape ②) commence correspondant à l'injection de charges dans le liquide. L'étape ③ est la propagation du streamer entre les deux électrodes. En se propageant dans le liquide, le canal du streamer se dilate en « poussant » le liquide et produit une onde de choc. Quand le streamer atteint l'autre électrode (étape ④), un canal conducteur s'établit entre les électrodes (claquage) et devient une décharge spark. D'un point de vue électrique, la rupture diélectrique du liquide est caractérisée par une forte chute de tension et un pic de courant de plusieurs dizaines d'ampères. Cette étape est accompagnée par l'émission d'un

continuum lumineux dans l'UV-visible. Le milieu est très dense et donc optiquement épais ce qui rend les diagnostics optiques complexes à mettre à place. Le continuum est principalement dû aux recombinaisons électrons-ions, au bremsstrahlung (rayonnement de freinage) et à l'émission du corps noir. L'étape ⑤ correspond à la phase d'après décharge. La décharge s'est éteinte et la tension et le courant sont nuls. Des lignes d'émission lumineuse émergent du continuum. Et l'énergie thermique générée par la décharge a fondu et évaporé les électrodes. La dernière étape ⑥ est la formation d'une bulle de cavitation qui présente une dynamique d'expansions-implosions successives sous la pression ambiante du liquide. Le système retourne à l'équilibre après la disparition de la bulle.

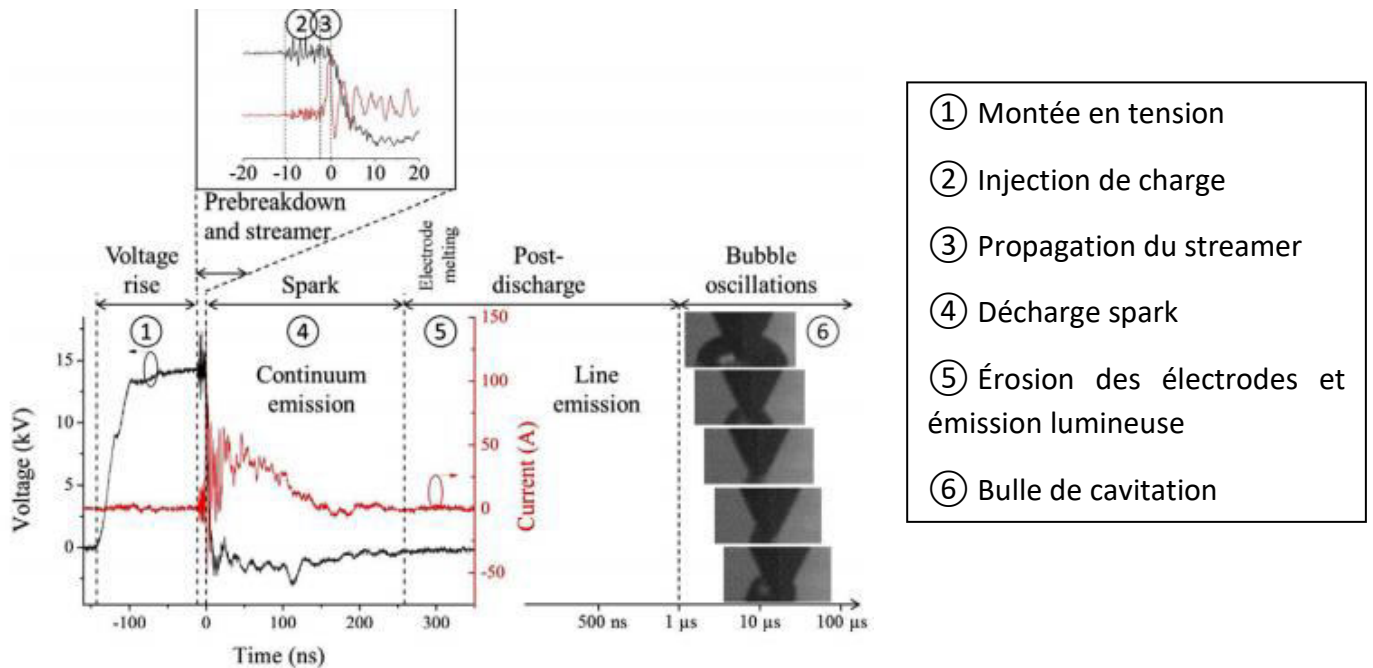


Figure 8. – Caractéristique de la tension en fonction du temps d'une décharge dans un liquide diélectrique et schéma des étapes de la décharge [22].

Dans cette seconde partie du chapitre, nous allons présenter plus en détails les différents mécanismes et phénomènes inhérents aux étapes de la décharge présentée ci-dessus.

1) Initiation du streamer

Les mécanismes d'initiation des décharges dans l'eau font l'objet de nombreux travaux mais aucun consensus n'a encore émergé à ce jour [21]. Cependant, deux théories principales

d'initiation des décharges dans les liquides sont avancées par différents auteurs : la théorie de l'ionisation directe et la théorie des bulles. La première présente des mécanismes semblables aux mécanismes de Townsend dans les gaz et correspond donc à une avalanche électronique générée par des électrons accélérés par le champ électrique. La deuxième théorie est décrite par des réductions locales de la densité du milieu par changement de phase et la formation de régions de faible densité où la décharge s'initierait.

Théorie de l'ionisation directe

Les claquages dans les liquides par un processus d'avalanche électronique peuvent être observés si l'influence du changement en phase gazeuse, c'est-à-dire la formation de la bulle induite par effet Joule, peut être minimisée. Cela se produit pour des conditions expérimentales strictes : petite distance inter-électrode ($\sim \mu m$), faible durée du pulse de tension ($\sim ns$), liquide purifié, filtré et dégazé et pression hydrostatique appliquée élevée. Néanmoins, même dans ces conditions, certains changements de phase perturbent les mécanismes de claquages [23]. La théorie de l'ionisation directe repose donc sur le processus d'avalanche électronique gouverné par le premier coefficient α de Townsend comme dans les gaz. Le champ électrique nécessaire au claquage est cependant plus important de plusieurs ordres de grandeur dans les liquides pour contrecarrer les pertes d'énergies des électrons par collisions. Ce champ est par exemple de l'ordre de 20 MV/cm [24] dans le cyclohexane contre 30 kV/cm dans l'air.

Théorie des bulles

Cette théorie explique que les décharges se forment à l'aide de réductions locales de la densité du milieu et la formation de cavités gazeuses par changement de phase. Les processus de réduction de la densité pourraient survenir (a) de la vaporisation du liquide, (b) de la décomposition moléculaire et (c) de mouvements mécaniques. Sur des durées courtes ($\sim ns$), un liquide se comporte comme un milieu solide et peut avoir des défauts de structure. Ces défauts peuvent contribuer à expliquer la nature filamentaire des streamers dans les liquides.

(a) Le premier mécanisme de vaporisation pourrait résulter d'une création de charges sous l'influence du champ électrique, charges qui contribueraient à un chauffage local par effet Joule. La création de charges peut avoir lieu soit par émission à la cathode par effet tunnel, soit par

dissociation ionique, sous des conditions de champ électrique intense. Le flux d'électrons lent mais constant transférerait continuellement de l'énergie par collisions avec les molécules du liquide dans la zone où le champ est important [21].

Lorsque le champ électrique dépasse le seuil de rigidité électrique, le liquide commence à se dégrader. Le chauffage ohmique par effet Joule cause des fluctuations et des micros-bulles à la pointe de l'électrode (Figure 9). Les micro-bulles se regroupent en un amas de bulles. Une décharge peut alors se produire dedans et créer une protubérance à la région gazeuse d'où peut s'initier un streamer [25].

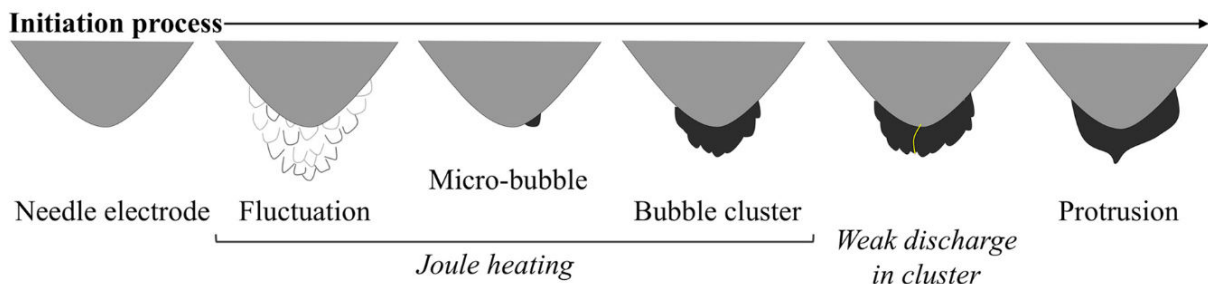


Figure 9. – Schéma des processus de création de régions à faible densité [25]

(b) L'existence d'un champ électrique fort à l'interface électrode-liquide introduit un décalage sur les niveaux d'énergie des atomes et des molécules. Le décalage en énergie est égal au produit entre le champ électrique local et la distance interatomique. Ce décalage peut induire une dissociation moléculaire. Ce phénomène intervient d'une façon significative dans les liquides suite à l'absence d'ordre dans la structure (par rapport au solide) [26].

Saitta et al. [27] ont montré qu'un champ électrique au-delà du seuil de $0,35 \text{ V/\AA}$ est capable de dissocier des molécules d'eau selon la réaction $2H_2O \rightleftharpoons OH^- + H_3O^+$. Au-delà de 1 V/\AA , 15% - 20% des molécules sont instantanément dissociées.

(c) Des fissures peuvent se former à partir de régions de plus faibles densités par effet électrostatique. T. J. Lewis [28] a montré que l'application d'un champ électrique entraîne une contrainte mécanique dans le liquide perpendiculaire au champ.

$$\Delta\sigma_E = -\varepsilon E^2 \quad (8)$$

Cette formule indique que tant qu'un champ \vec{E} existe dans le liquide, celui-ci produit une contrainte radiale tendant à dilater le liquide s'opposant aux forces cohésives entre les molécules du liquide. Ces contraintes permettent d'augmenter la durée de vie des microcavités engendrées par la vaporisation et la dissociation moléculaire et peuvent créer des fissures dans le liquide dans la direction du champ électrique. La formation de fissure repose sur la destruction des liaisons intermoléculaires tout au long de la ligne de fissure (Figure 10).

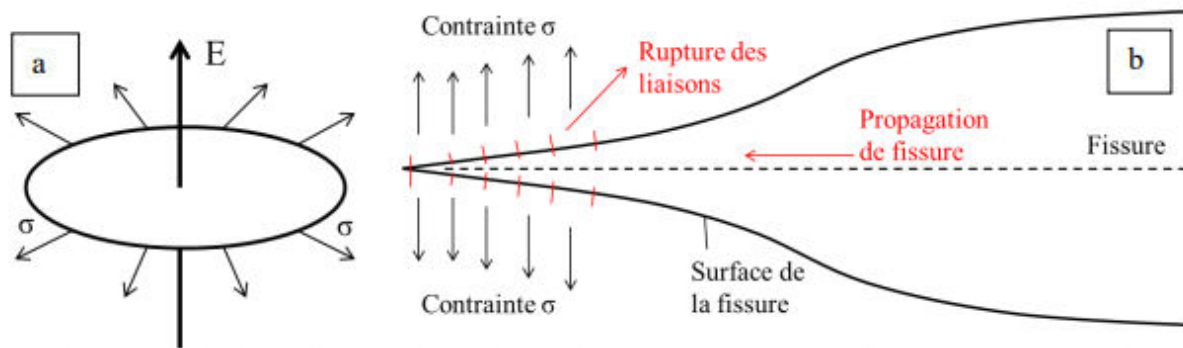


Figure 10. – a) Contraintes radiales introduites par le champ électrique sur une cavité, b) Propagation d'une fissure [26]

Un champ électrique de l'ordre de $10^8 - 10^9$ V/m peut être obtenu en configuration pointe-plan donnant un champ électrique non-uniforme. Pour de tel valeur de champ, les contraintes électrostatiques ne sont pas négligeables et une fissure se formant au niveau de l'électrode se propage dans la direction du champ électrique vers les régions où la concentration de microcavités est importante.

Une fissure se formant sur la cathode développe des caractéristiques spécifiques. Premièrement, elle va se développer dans la direction du champ électrique donc perpendiculairement à la surface de la cathode. Deuxièmement, elle est constituée d'une colonne de vide ou au moins de vapeur à basse pression dans laquelle un jet d'électrons pourra passer depuis la cathode. L'absence de molécules dans la fissure est importante pas seulement parce que les collisions sont évitées mais aussi parce que la présence de molécules sur la surface de la cathode limite l'injection d'électrons par effet tunnel. D'un point de vue électrique, la fissure devient presque instantanément une extension de la cathode générant un champ intense à son extrémité. En conséquence, une seconde génération de fissure se forme qui

facilitera l'initiation et la propagation d'un streamer. Ce phénomène est illustré sur la figure 11 où le voit que le champ résultant à la tête de la fissure peut avoir une distribution hémisphérique, faible du côté cathode mais fort du côté anode.

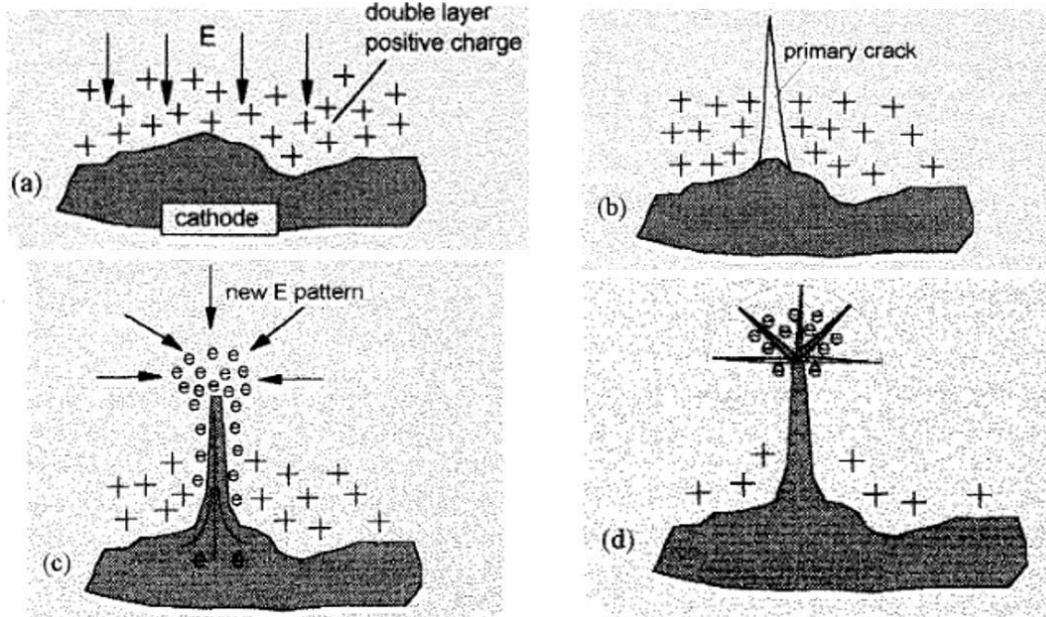


Figure 11. – Développement d'un streamer à partir d'une fissure. (a) cathode avec un champ électrique important. (b) les forces électrostatiques forment une fissure à la surface de l'électrode. (c) des électrons se propagent dans la fissure et se comporte comme une extension de la cathode déformant le champ électrique. (d) des fissures secondaires se développent dans le champ déformé [28].

Influence de la présence de bulles

Dans les conditions de laboratoire, le liquide contient souvent des micro- ou nano-bulles présentes avant l'expérience ou formées par les décharges antérieures dans le cas de décharges successives. Ces cavités gazeuses aident bien sûr aussi à l'initiation des décharges.

La présence de bulles modifie le champ électrique. En effet, à l'interface entre deux milieux, le vecteur de déplacement électrique \vec{D} se conserve.

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} \quad (9)$$

où ε est la permittivité du milieu, ε_0 la permittivité du vide et ε_r la permittivité relative.

$$\varepsilon_1 E_1 = \varepsilon_2 E_2 \Leftrightarrow E_1 = \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} E_2 \quad (10)$$

Une discontinuité du champ électrique apparaît si les permittivités ε_1 et ε_2 sont différentes. Plus le rapport $\varepsilon_2/\varepsilon_1$ est important, plus les lignes de champ électriques seront concentrées à l'interface créant des forts gradients de champs électriques aux interfaces. Dans le cas de bulles d'air ($\varepsilon=1$) dans l'eau déionisée ($\varepsilon=80$), le champ électrique est fortement concentré à l'interface liquide/gaz et des avalanches électroniques se forment plus facilement dans les bulles. La présence des bulles amène donc aussi à une structure arborescente du streamer. Ce phénomène est illustré dans la figure 12 à pression atmosphérique dans de l'air humide mais le processus est semblable dans un liquide diélectrique.

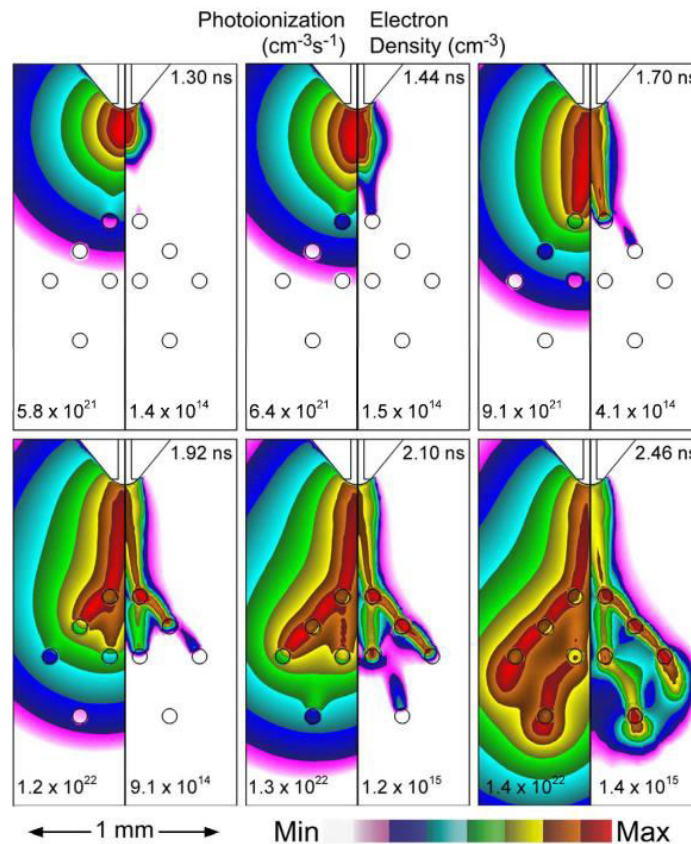


Figure 12. – Développement d'un streamer à pression atmosphérique dans un mélange $N_2/O_2/H_2O$ (79/20/1) en présence de bulles à 0.2 atm. (gauche) Photoionisation. (droite) densité d'électrons. Les valeurs maximales sont indiquées en bas de chaque figure [29].

2) Mode de propagation du streamer

Les nombreuses conditions expérimentales telles que la nature du liquide et des électrodes, la source d'alimentation, la configuration des électrodes, etc. engendrent un large panel de phénomènes modifiant le comportement des décharges.

Ce type de classification revient principalement à choisir la durée du pulse de tension appliquée comme paramètre de sélection (plus la durée du pulse est courte, plus la propagation de streamer est rapide) selon la polarité de l'électrode pointe (streamer positif et streamer négatif).

La classification d'Ushakov [30] et Lesaint [31] décrivent les différentes propagations des streamers positifs (qui se propagent vers la cathode) en fonction de la tension appliquée.

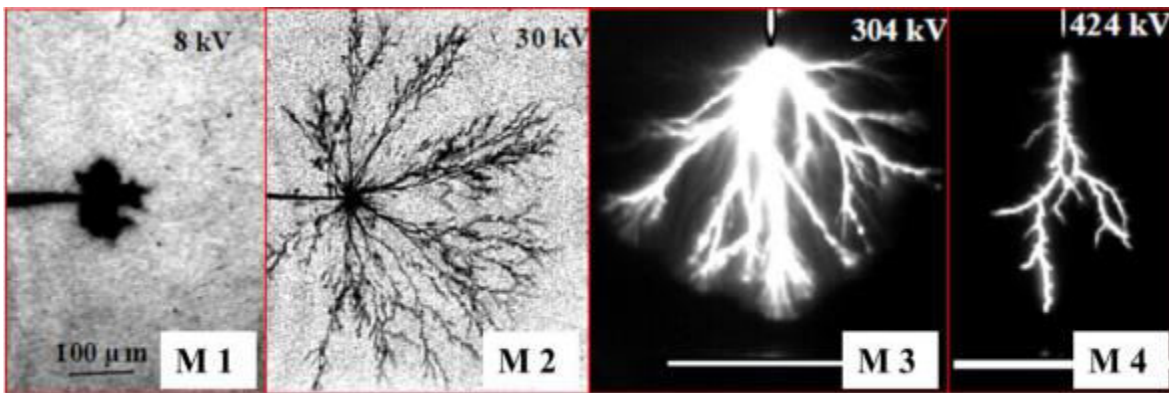


Figure 13. – Images typiques de streamers positifs dans une huile minérale [31]

Le premier mode de propagation (M1) (figure 13) est caractérisé par une vitesse subsonique ($10^2 - 10^3 \text{ m.s}^{-1}$), la formation de branches de forme hémisphérique et une faible intensité d'émission lumineuse. Quelques microsecondes après l'initiation, nombre de canaux (typiquement entre 2 et 6) apparaissent et se propagent vers la contre-électrode. Ce second mode de propagation (M2) est caractérisé par une vitesse supersonique (de l'ordre de 10^4 m.s^{-1}) et une intensité d'émission lumineuse plus importante. La longueur des canaux est proportionnelle à la tension appliquée. Le troisième mode de propagation (M3) apparaît pour une tension seuil U_b (la tension de claquage) et le nombre de canaux qui se propage de la pointe tend à augmenter. Et à partir d'une tension seuil U_a (la tension d'accélération), un ou deux

canaux se propagent à une vitesse ultra-rapide qui dépasse les 10^5 m.s^{-1} et remplissent la plupart de l'espace inter-électrodes. C'est le quatrième mode de propagation (M4).

De nombreux paramètres comme la nature du liquide (polarité, viscosité, conductivité), le champ électrique et la nature des électrodes peuvent modifier les mécanismes d'initiation et de propagation du streamer.

3) Erosion des électrodes

Les décharges sparks entraînent l'érosion des électrodes par des processus thermiques et mécaniques (onde acoustique, bulle de cavitation). Par exemple, dans une configuration d'électrodes en pointe-plan, cela se traduit par l'érosion de la pointe (augmentation du rayon de courbure) et la formation de cratères d'impact sur le plan. Ces phénomènes entraînent d'une part l'augmentation de la distance inter-électrode et d'autre part la projection de matière dans l'espace inter-électrode. Cette érosion modifie donc les conditions expérimentales du milieu pour les décharges suivantes.

Les cratères sont formés par (1) le chauffage de la surface de l'électrode à une température dépassant le point d'ébullition du matériau principalement dû à l'effet Joule et au bombardement ionique, (2) la propagation de l'onde de choc et (3) les surpressions et dépressions de la bulle de cavitation [32].

D'après Llewellyn Jones [33], la vaporisation du matériau est le mécanisme principal d'érosion causé par une décharge spark. Son modèle est basé sur le bilan énergétique à la surface de l'électrode au point d'ébullition en ne prenant pas en compte les processus d'érosion chimiques. En considérant l'énergie nécessaire pour chauffer un matériau jusqu'à son point d'ébullition et l'énergie perdue par rayonnement et conduction, Llewellyn Jones propose une équation pour déterminer le volume érodé V_e d'un cratère :

$$V_e = \frac{aU_b^2 - bT_b^4 - ck(T_b - T)}{\rho \left[c_p(T_b - T) + 21 \frac{T_b}{M} \right]} \#(11)$$

Où U_b est la tension de claquage, T_b le point d'ébullition, k la conductivité thermique, ρ la densité, c_p la capacité thermique et M la masse moléculaire du matériau. La constante a

dépend de la distance inter-électrode tandis que les constantes b et c dépendent du matériau de l'électrode et de la taille du cratère.

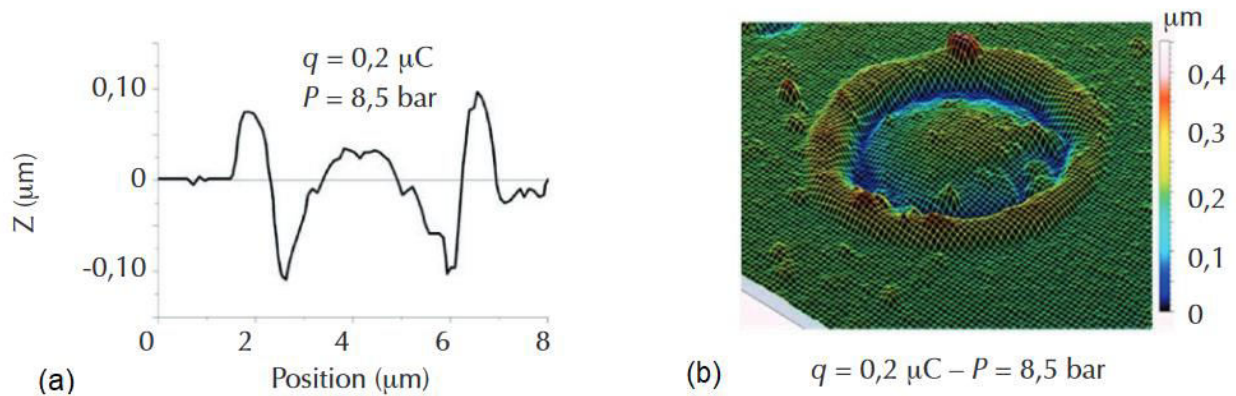


Figure 14. – Topographie (a) 2D et (b) 3D d'un cratère formé par un spark dans l'eau distillée par microscopie à force atomique [34]

La figure 14 représente la topographie d'un cratère créé par un spark dans l'heptane. L'impact est généralement caractérisé par un bourrelet externe formé par effet Thomson-Marangoni. Ces aspérités favorisent des effets de pointe quand une tension électrique est appliquée. Les décharges suivantes seront plus susceptibles de frapper à ces endroits.

4) Bulle de cavitation

La formation d'une bulle de cavitation est une conséquence de la décharge. La génération d'une décharge électrique dans l'eau déionisée entraîne la formation d'un canal plasma entre les électrodes dont la température peut atteindre plusieurs milliers de Kelvin. L'énergie thermique ainsi émise chauffe et évapore localement le liquide ce qui forme une bulle. La transition de la décharge vers la bulle n'est encore pas très claire. Dans ces premiers instants de sa formation, la bulle est soumise à des contraintes de haute température et de haute pression. Ces conditions extrêmes sont à l'origine d'une dynamique d'expansion-implosion. À sa formation, la bulle continue de s'étendre à cause de sa pression interne et de son inertie. Une fois qu'elle a atteint son rayon maximum, sa pression interne est alors inférieure à celle du liquide. Celui-ci va comprimer la bulle jusqu'à ce que sa pression réaugmente et redevienne plus grande que celle du liquide. La dynamique de la bulle de

cavitation est donc caractérisée par des oscillations amorties de son rayon. À chaque oscillation, son rayon maximum diminue de plus en plus jusqu'à qu'elle disparaisse (Figure 15).

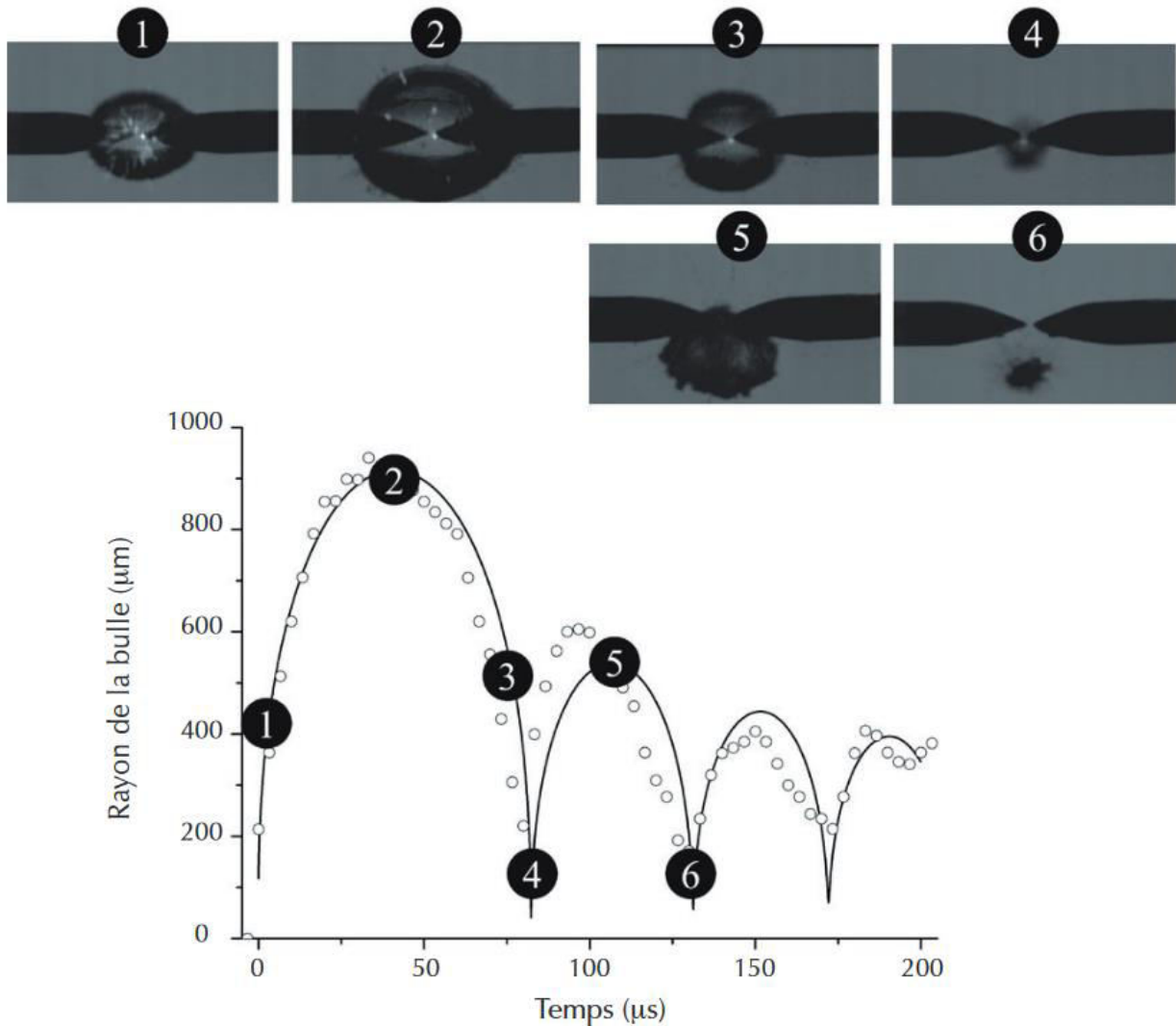


Figure 15. – Evolution temporelle d'une bulle de cavitation produite à partir d'une décharge spark entre deux électrodes en forme de pointe [34].

De nombreux modèles ont essayé de reproduire cette dynamique. La dynamique de la bulle de cavitation a d'abord été étudiée par Rayleigh en 1917 avec l'hypothèse d'un liquide incompressible [35]. Plesset a amélioré son équation en prenant en compte la viscosité du liquide et la tension de surface [36]. D'autres équations prennent en compte plus de paramètres comme Herring en 1941 qui, en négligeant les termes non linéaires et en gardant la vitesse du

son constante, propose un modèle basé sur une approximation acoustique qui consiste à utiliser l'équation d'onde acoustique à l'interface de la bulle ou Gilmore en 1952 qui prend en compte la compressibilité du liquide et que la vitesse du son varie en fonction de la pression. L'équation de Rayleigh-Plesset est cependant la plus simple d'utilisation et demandant moins de puissance de calcul :

$$R\ddot{R} + \frac{3}{2}\dot{R}^2 + \frac{4\nu_L}{R}\dot{R} + \frac{2\gamma}{R\rho_L} + \frac{P - P_\infty}{\rho_L} = 0 \quad (12)$$

R , \dot{R} , \ddot{R} représentent respectivement le rayon de la bulle, sa dérivée première et seconde. P est la pression à l'intérieur de la bulle et P_∞ la pression à l'infini soit la pression du liquide. Les termes ν_L et γ correspondent aux effets de la viscosité et à la tension de surface.

L'intérêt de ces modèles est de pouvoir déterminer l'évolution de la pression dans la bulle et donc d'estimer la surpression générée par la décharge. Un exemple de résolution est présenté en figure 16.

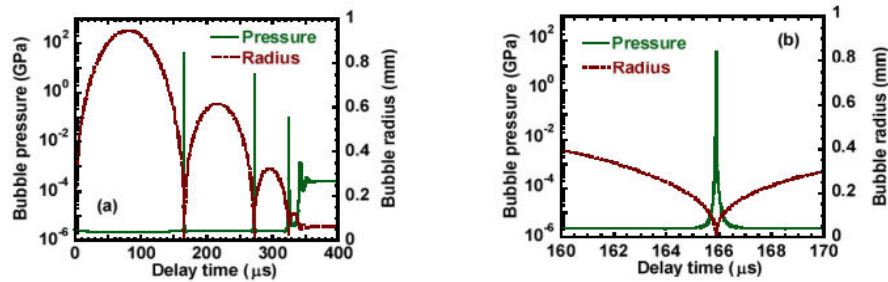


Figure 16. – Évolution temporelle du rayon de la bulle et sa pression interne estimée par l'équation de Rayleigh-Plesset [37].

Partie C : Influence d'un champ magnétique sur des décharges sparks

Dans cette troisième partie, nous allons exposer les effets d'un champ magnétique sur ce type de décharge en nous basant sur une approche théorique puis sur des observations expérimentales. L'approche théorique est la détermination du mouvement d'une particule chargée immergée dans un champ électromagnétique. Dans la littérature, l'influence du champ magnétique sur ce type de décharge n'a été étudié que dans le cadre de recherche sur l'amélioration des performances de procédé EDM (Electrical Discharge Machining). Un certain nombre d'observations décrivent des modifications de performances lorsque ce procédé est assisté d'un champ magnétique extérieur.

1) Mouvement de particules chargées sous influence d'un champ électromagnétique

Dans cette partie, nous allons exposer l'influence d'abord d'un champ magnétique constant seul puis d'un champ électromagnétique sur des particules chargées.

Soit une particule de masse m possédant une charge q , animée d'une vitesse $\vec{v} = \frac{d\vec{r}}{dt}$ et soit \vec{E} et \vec{B} respectivement les champs électrique et magnétique. La particule est soumise à l'action de la force de Lorentz qui dans le cas non relativiste est définie par :

$$\overrightarrow{F_{Lorentz}} = q(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B}) \#(13)$$

On distingue deux composantes dans la force de Lorentz : la force électrique $\overrightarrow{F_{elec}} = q\vec{E}$ et la force magnétique $\overrightarrow{F_{mag}} = q(\vec{v} \wedge \vec{B})$. Pour déterminer les équations de mouvement de cette particule, appliquons le principe fondamental de la dynamique à ce système.

$$m \frac{d^2\vec{r}}{dt^2} = q \left(\vec{E} + \frac{d\vec{r}}{dt} \wedge \vec{B} \right) \#(14)$$

On décompose cette expression sur chaque axe du système de coordonnées cartésiennes pour obtenir un système d'équations différentielles décrivant le mouvement d'une particule dans un champ électromagnétique :

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = q \left[E_x + \left(B_z \frac{dy}{dt} - B_y \frac{dz}{dt} \right) \right] \#(15.1)$$

$$m \frac{d^2 y}{dt^2} = q \left[E_y + \left(B_x \frac{dz}{dt} - B_z \frac{dx}{dt} \right) \right] \#(15.2)$$

$$m \frac{d^2 z}{dt^2} = q \left[E_z + \left(B_y \frac{dx}{dt} - B_x \frac{dy}{dt} \right) \right] \#(15.3)$$

Champ magnétique seul (E=0)

Considérons d'abord le cas où une particule chargée est seulement dans un champ magnétique \vec{B} . L'étude de ce cas simple nous permettra d'introduire les notions de pulsation cyclotronique et de mouvement hélicoïdal. On pose $\vec{B} = B \vec{e}_x$ avec B constant et d'après les équations (15.1) à (15.3), on obtient :

$$\frac{d^2 x}{dt^2} = 0 \#(16.1)$$

$$\frac{d^2 y}{dt^2} = \frac{qB}{m} \frac{dz}{dt} \#(16.2)$$

$$\frac{d^2 z}{dt^2} = -\frac{qB}{m} \frac{dy}{dt} \#(16.3)$$

On peut donc maintenant introduire la pulsation cyclotronique (fréquence angulaire) :

$$\omega_c = \frac{qB}{m} \#(17)$$

Par convention, le signe de ω_c est défini comme étant positif dans le cas des électrons. Dans le plan perpendiculaire à \vec{B} , la particule possède un mouvement circulaire de pulsation ω_c . Le rayon du mouvement est appelé rayon de Larmor et est défini par :

$$R_L = \frac{v}{\omega_c} = \frac{mv}{qB} \#(18)$$

On notera que l'augmentation de l'intensité du champ magnétique B entraîne une diminution du rayon de Larmor créant un effet de confinement des particules chargées autour des lignes de

champ magnétique. Le rayon de Larmor est aussi proportionnel à la masse de la particule, ce rayon est donc beaucoup plus important pour les ions que pour les électrons.

La combinaison de ce mouvement cyclotronique et du mouvement uniforme dans la direction parallèle à \vec{B} donne lieu à une trajectoire en forme d'hélice qui s'enroule autour de la ligne de force du champ magnétique comme illustré en figure 17.

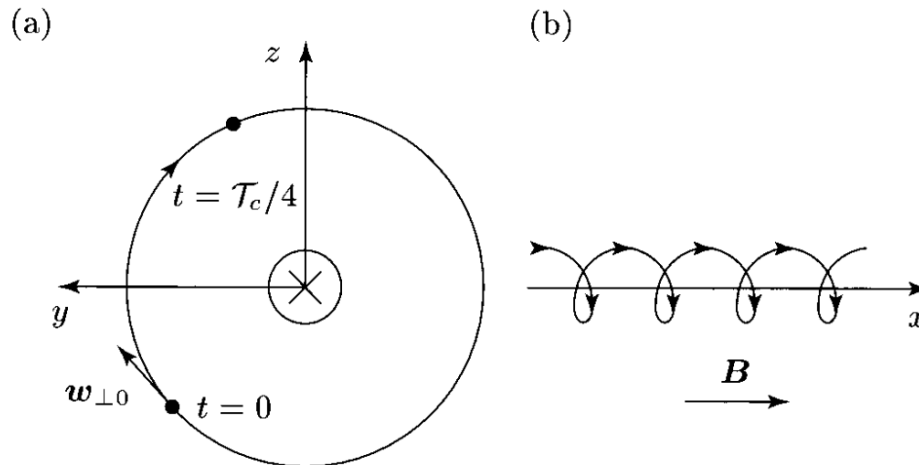


Figure 17. – (a) Mouvement cyclotronique d'un électron dans le plan perpendiculaire à \vec{B} (dirigé dans le sens de \vec{e}_x) ; (b) Mouvement hélicoïdal de l'électron suivant \vec{B} [1]

Particules chargées en présence d'un champ électromagnétique

Si on applique un champ magnétique externe \vec{B} constant à une décharge électrique générée par un champ électrique \vec{E} constant, on peut considérer deux cas particuliers :

- La direction du champ magnétique est parallèle à la direction du courant ($\vec{B} // \vec{j}$)
- La direction du champ magnétique est perpendiculaire à la direction du courant ($\vec{B} \perp \vec{j}$)

\vec{j} représente la densité de courant de la décharge et peut être définie comme telle :

$$\vec{j} = nq\vec{v} = nq\mu\vec{E} \quad (19)$$

où n est la densité de particules et μ leur mobilité électrique.

Dans le premier cas, le champ magnétique n'exerce aucune influence sur le mouvement des particules à cause du produit vectoriel $\vec{v} \wedge \vec{B}$ nul (équation 13). Dans le second cas, les particules possèdent un mouvement net dans la direction perpendiculaire à la fois à \vec{E} et \vec{B} , mouvement dit de dérive électrique (indépendant de la masse et de la charge des particules) de vitesse constante $v_d = E_{\perp}/B$, E_{\perp} étant la composante \vec{E} perpendiculaire à \vec{B} . Ce mouvement dépend de l'intensité de E_{\perp} et donc du rapport entre v_d et $\omega_c R_L$. Il faut alors considérer trois cas : (a) un champ électrique faible où la vitesse de dérive est telle que $v_d \ll \omega_c R_L$, (b) un champ électrique tel que $v_d \approx \omega_c R_L$ et (c) un champ électrique fort conduisant à $v_d \gg \omega_c R_L$. Ces cas sont illustrés sur la figure 18.

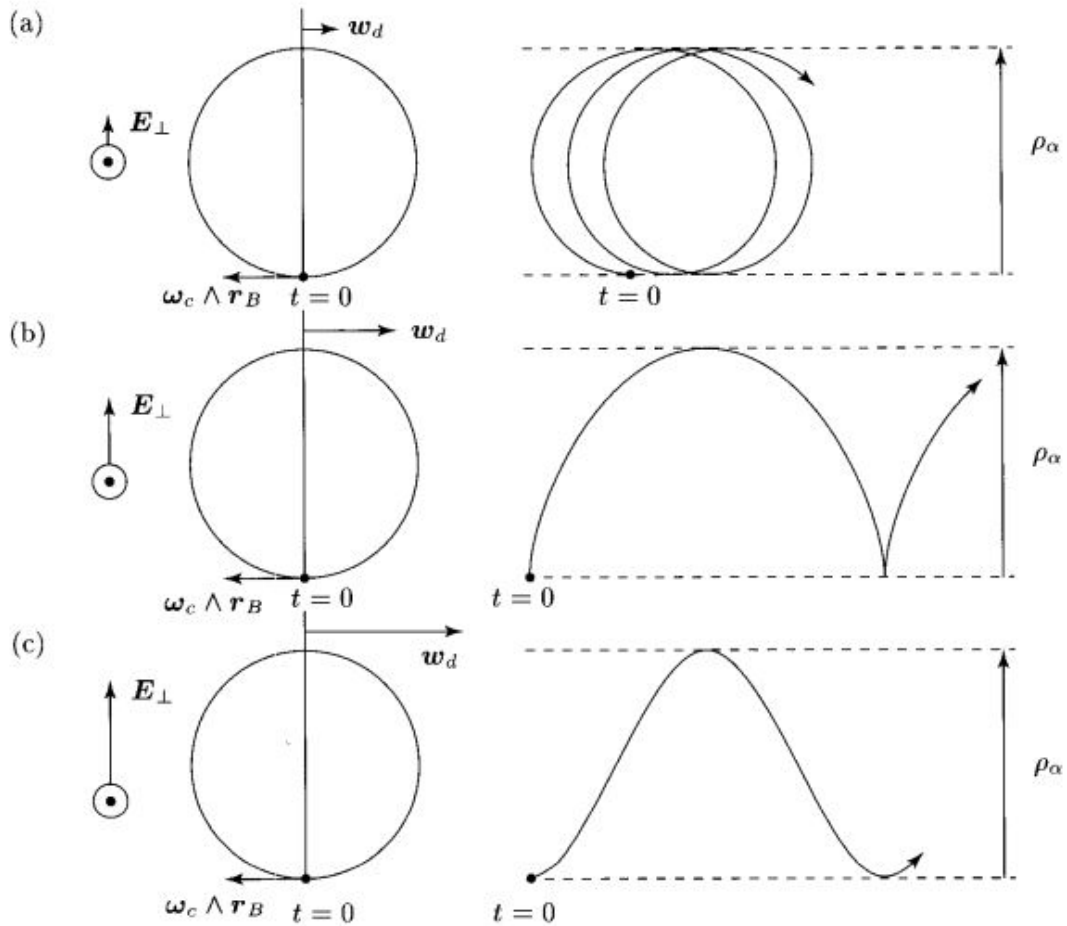


Figure 18. – Trajectoires d'un ion positif dans des champs \vec{E} et \vec{B} constants et uniformes pour les trois cas de rapport entre v_d et $\omega_c R_L$. (a) $v_d \ll \omega_c R_L$, (b) $v_d \approx \omega_c R_L$ et (c) $v_d \gg \omega_c R_L$. Le champ B est dirigé vers le lecteur. Sur le schéma, $w_d = v_d$ et $r_B = R_L$ [1].

(a) Pour $v_d \ll \omega_c R_L$, les trajectoires sont quasi cyclotroniques avec une faible vitesse de glissement de leur centre de guidage dans la direction perpendiculaire à \vec{E}_\perp et \vec{B} .

(b) Pour $v_d \approx \omega_c R_L$, les particules ont une trajectoire cycloïdale et n'effectue qu'une partie de la rotation cyclotronique.

(c) Pour $v_d \gg \omega_c R_L$, le champ électrique \vec{E}_\perp est suffisamment fort de sorte que la vitesse de la particule évolue entre $v_d + \omega_c R_L$ et $v_d - \omega_c R_L$ sans jamais changer de signe. La trajectoire prend alors une forme ondulée.

En résumé, l'application d'un champ magnétique externe sur une décharge électrique entraîne la modification du mouvement des particules chargées. Celles-ci se déplacent sur une trajectoire cyclotronique dont l'importance dépend de la valeur de la composante de champ électrique perpendiculaire au champ magnétique. Ces modifications de mouvement diminuent le libre parcours moyen des particules et donc augmente le nombre de collisions dans le canal plasma [38].

2) Décharge électrique dans les liquides en présence d'un champ magnétique : Cas de l'usinage par électro-érosion

La littérature sur l'influence d'un champ magnétique sur des décharge dans les liquides est restreinte aux recherches sur l'amélioration de performance d'usinage par électro-érosion, EDM en anglais pour Electrical Discharge Machining. L'usinage par décharge électrique ou électroérosion est une technique développée dans les années 1940. Elle consiste à enlever de la matière à une pièce métallique au moyen d'une série de décharges électriques répétées entre une électrode et la pièce à usiner [20]. Ce procédé possède une excellente aptitude à usiner des matériaux cassants ou durs grâce au dépôt d'énergie important et localisé. Le processus EDM adopte une alimentation pulsée à haute fréquence pour claquer dans le liquide diélectrique et générer un canal de plasma thermique à haute température (8000 à 12000 °C) entre l'électrode et la pièce à usiner pour faire fondre et vaporiser cette dernière (Figure 19).

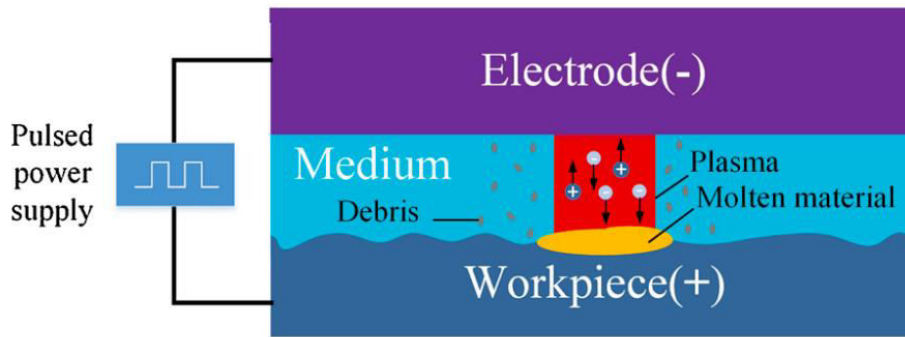


Figure 19. – Schéma du principe l'EDM [39]

Récemment, de nombreuses recherches ont émergé sur l'influence d'un champ magnétique externe sur les performances de ce procédé [39]. Ce nouveau procédé se nomme MF EDM pour Magnetic Field assisted EDM. Les champs magnétiques utilisés sont générés par des aimants permanents et plus rarement par des électroaimants et les valeurs de champ sont d'environ plusieurs centaines de mT. Nous allons donc maintenant présenter les modifications apportées par le champ magnétique.

Confinement du canal plasma

En général, un électron se déplaçant dans la colonne plasma de rayon R avec une vitesse v est soumis à force radiale vers l'extérieur dû à un champ électrostatique. Ce champ électrostatique radial à la surface de la colonne est donné par :

$$E_r = \frac{2n_e e}{Rv} \#(20)$$

La force électrostatique (F_E) de répulsion agissant sur les électrons à la frontière de la colonne plasma de rayon R est donnée par le produit de la charge et du champ électrique :

$$F_E = e \left(\frac{2n_e e}{Rv} \right) \#(21)$$

Quand les électrons se déplacent de la cathode à l'anode, ils produisent un champ magnétique induit B_s causé par le passage du courant donnée par la loi de Biot-Savart.

$$B_s = \frac{\mu_0}{4\pi} \int \frac{\vec{j} \wedge \vec{r}}{r^3} dV \#(22)$$

A ces forces, on ajoute la force générée par le champ magnétique externe B_E donnée par la force de Lorentz (eq. 13). En faisant le bilan des forces sur les électrons à la frontière de colonne plasma de la cathode à l'anode (figure 20), on obtient l'équation qui régit l'expansion radiale du canal :

$$\frac{d^2r}{dt^2} = \frac{2n_e e^2}{rvm_e} - \frac{eVB_S}{m_e} - \frac{eVB_E}{m_e} \quad \#(23)$$

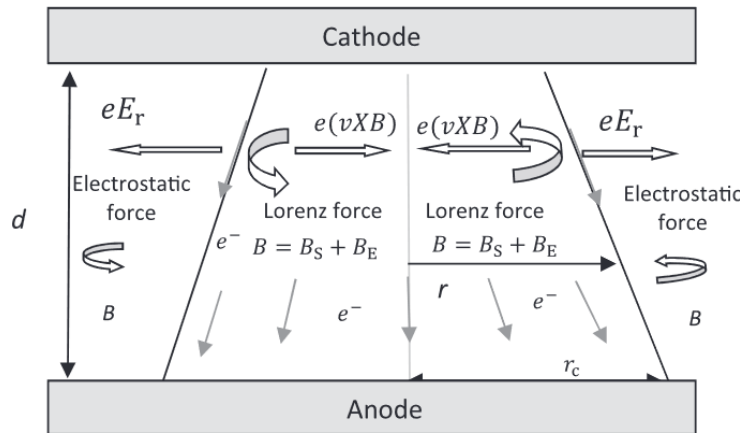


Figure 20. – Schéma du confinement plasma et de l'influence du champ magnétique sur le flux d'électrons dans un procédé EDM [40].

Le premier terme de l'équation (23) représente l'accélération radiale des électrons due à la force électrostatique. Le second terme est la composante du champ magnétique induit (B_S). Ce champ magnétique applique une force de Lorentz qui agit dans la direction vers le centre de la colonne plasma. Enfin, le troisième terme est actif lorsqu'on applique un champ magnétique externe (B_E) entre les deux électrodes. Les électrons sont alors soumis à une force de Lorentz additionnelle qui pousse les électrons vers le centre du canal. Les actions ci-dessus aident au confinement du flux d'électrons [41].

Érosion du matériau

L'électro-érosion repose sur la formation de cratères formés par les décharges comme présenté dans la partie B-3). Gupta et S. Joshi [40] ont montré expérimentalement et par un modèle mathématique prenant en compte le confinement plasma, la réduction du libre parcours moyen des électrons et la pulsation du champ magnétique des électroaimants que les cratères

d'impact sont plus profonds et moins larges pour un champ externe $B = 0,2 \text{ T}$ (Figure 21). La modification des dimensions des cratères est une conséquence directe du confinement du canal plasma [38].

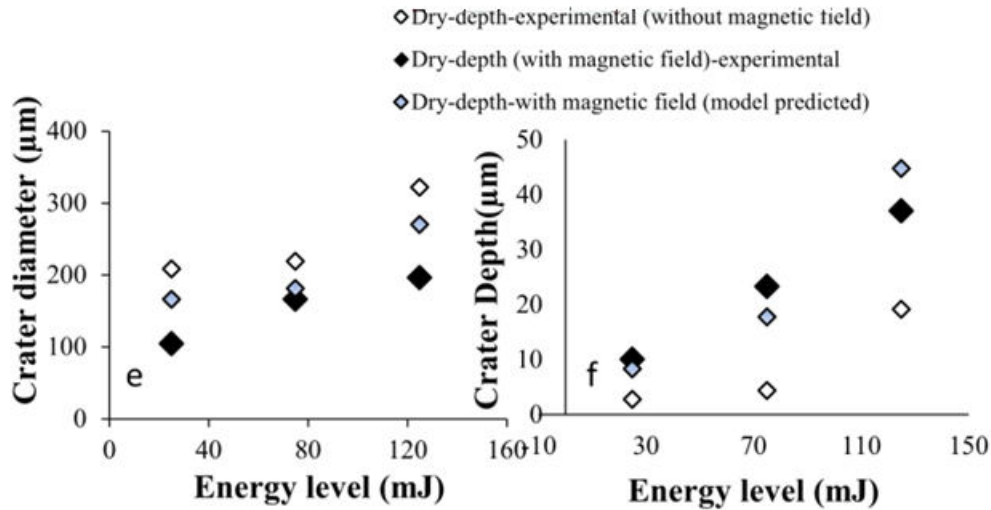


Figure 21. – Effet du champ magnétique sur les dimensions (profondeur et diamètre) du cratère [40]

De nombreux travaux ont aussi montré que la vitesse d'érosion (MRR : Material Removal Rate) est aussi plus élevée à partir d'un champ magnétique de $0,1 \text{ T}$ [42].

Stabilité des décharges

Les débris projetés dans l'espace inter-électrode, résultant des décharges par vaporisation ou fusion du matériau cible, sont un inconvénient pour le procédé d'usinage. En effet, l'augmentation en concentration de ces débris diminue la valeur capacitive du milieu et modifie le comportement (énergie, trajectoire, etc.) des décharges ultérieures.

La figure 22 montre l'évacuation des débris métalliques chargés par la décharge. Ces derniers sont soumis à une force de Lorentz résultante du courant et du champ magnétique qui les évacue en dehors de l'espace inter-électrode. Cette évacuation permet de conserver la stabilité des futures décharges.

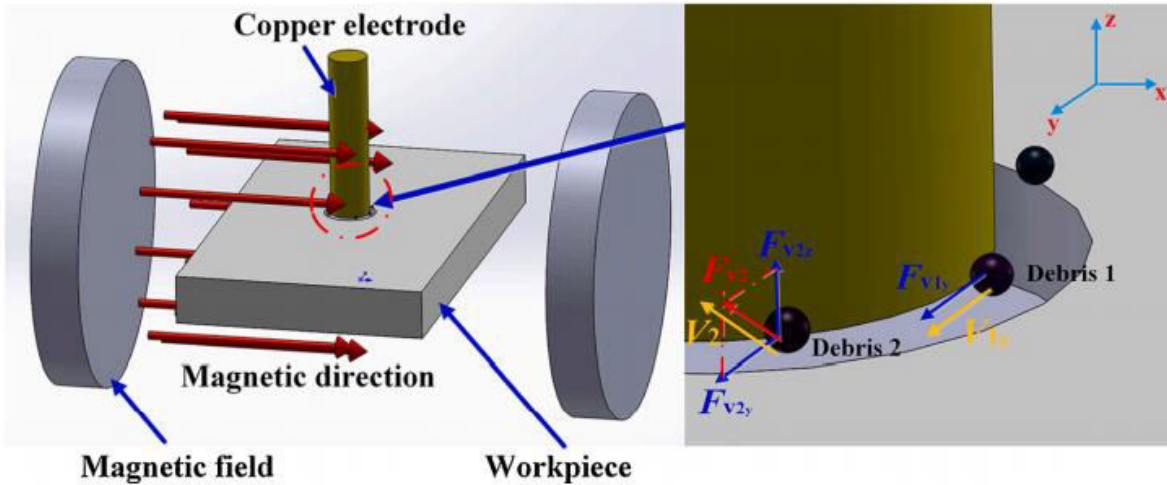


Figure 22. – Évacuation des débris de l'usinage dans un MF EDM [43]

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les mécanismes d'initiation des décharges spark dans les gaz et dans les liquides ainsi que les phénomènes résultant des décharges dans les liquides diélectriques (érosion des électrodes, bulle de cavitation). La littérature scientifique ne faisant pas consensus sur les phénomènes d'initiation et de propagations de ces décharges, un panorama des différentes théories a été présenté. Les paramètres expérimentaux sont nombreux de telle sorte que le comportement des décharges peut être très différent d'un dispositif expérimental à l'autre. L'application d'un champ magnétique externe à ce type de décharge apporte de nombreuses modifications : mouvement des particules chargées, réduction du libre parcours moyen, confinement du canal plasma, cratères d'impact plus profonds et moins larges et évacuation des débris métallique. Les diagnostics électriques de ce système n'ont jamais à ma connaissance été étudiés dans la littérature. La suite de ce mémoire aura justement l'objectif d'apporter de nouvelles connaissances sur les décharges sparks dans les liquides et les effets d'un champ magnétique sur celles-ci. Ces études s'organisent en deux chapitres : dans un premier temps une étude sur l'influence de plusieurs paramètres comme la distance inter-électrode, la nature des électrodes et la polarité de la tension appliquée à travers des études statistiques sur un grand nombre de décharges (chapitre 2). Puis une fois que les

effets de ces paramètres ont bien été compris, l'objectif est d'explorer l'influence d'un champ magnétique externe sur le comportement électrique des décharges sparks (chapitre3).

Chapitre 2 – Analyse statistique de décharges Sparks dans un liquide diélectrique : influence de la distance inter-électrode, du matériel des électrodes et de la polarité de la tension sur les caractéristiques des décharges

Article publié dans Journal of Vacuum Science & Technology A

<https://doi.org/10.1116/6.0001923>

Ce chapitre présente les résultats d'études statistiques effectuées sur des décharges Sparks successives dans l'eau déionisée afin d'étudier l'influence sur le comportement des décharges des paramètres suivants : distance inter-électrode, nature du matériau des électrodes et polarité de la tension appliquée. Les décharges ont été effectuées en configuration pointe-plan et à faible fréquence (3Hz). Pour chaque paramètre étudié, les décharges s'enchaînent jusqu'à leur extinction (absence de claquage) malgré l'application d'un pulse haute tension due à l'érosion des électrodes (distance inter-électrode plus grande et pointe arrondie) ensuite les données courant-tension de chaque décharge et des photographies des électrodes sont relevées.

Les décharges dans les liquides sont peu reproductibles à cause d'une part à la potentielle présence de micro ou nano bulles entre les deux électrodes et d'autre part à la dégradation des électrodes et du liquide modifiant les propriétés du milieu. L'analyse statistique sur un grand nombre de décharges est une méthode palliant ces phénomènes.

Les expériences ont été réalisées par Audren Dorval. Le traitement des données et l'analyse des résultats ont été réalisés par Audren Dorval et Korentin Géraud. Les co-auteurs ont participé à l'analyse des résultats, à la rédaction et à la révision de l'article.

Statistical analysis of pulsed spark discharges in water: effects of gap distance, electrode material, and voltage polarity on discharge characteristics

Audren Dorval¹, Korentin Geraud¹, Flavien Valensi², and Ahmad Hamdan^{1,*}

¹ Groupe de physique des plasmas, Département de Physique, Université de Montréal,
1375 Avenue Thérèse-Lavoie-Roux, Montréal, H2V 0B3, Québec, Canada

² Université de Toulouse, LAPLACE (Laboratoire Plasma et Conversion d'Énergie), 118 route de
Narbonne, F-31062 Toulouse Cedex 9, France

*corresponding author. Email: ahmad.hamdan@umontreal.ca

Keywords: Spark discharge, discharge in water, statistical analysis, electrical characteristics, electrode erosion.

ABSTRACT

Repetitive discharges in dielectric liquid are involved in many technological applications. The relatively poor reproducibility of such discharges, induced by significant modification of experimental conditions (electrode and liquid), hinders the understanding of their fundamental dynamics and optimizing processes. In this paper, we study the electrical characteristics of multiple discharges run in deionized water, at low frequency (3 Hz), using pin-to-plate electrode geometry, under varying conditions of gap distance (50–500 μm), electrode composition (Cu and W), and voltage polarity (amplitude of ± 20 kV and pulse width of 500 ns). The voltage and current waveforms of each occurring discharge are recorded and then processed to determine the probability of discharge occurrence, breakdown voltage, discharge current, discharge delay, injected charge, and injected energy. The results show that the highest numbers of occurring discharges are achieved at shortest distance, using the Cu electrode, and negative polarity. The data points comprising the electrical characteristics waveforms (e.g. breakdown voltage) are more or less dispersed, depending on electrode composition and voltage polarity. Moreover, in negative polarity, a reflected positive pulse of ~ 5 kV is observed when discharges do not occur in the first pulse. Considering that these pulses may induce discharges, their characteristics are also provided. Finally, the voltage-current plots show appreciable dependence on discharge conditions, and the data are well fitted by linear profiles with slopes, i.e. resistances, that may reflect the ignition conditions of the discharge.

I. INTRODUCTION

The initial fundamental studies conducted on electrical discharges (e.g. those of Townsend in the beginning of 1900 [3]) were performed in gases, and various discharge modes, such as corona, glow, spark, and arc, were reported. Considering that their operation modes are relatively well understood ([5],[44]), these discharges are integrated in many well-developed applications, including lighting, thin film deposition, etching, and liquid processing, among others [45]–[48].

Although discharges in dielectric liquids are less understood fundamentally, they constitute a longstanding research subject, with the first study conducted over a century ago [49],[50] in the context of electrotechnical applications. Discharges in liquid are integrated in many applications, particularly electrical discharge machining [51], liquid processing [48], and synthesis of nanoparticles [52], [53], and they can be sustained in different modes, including streamer [54], spark [55], and arc [56] modes. The streamer mode refers to the plasma channels that are connected to one electrode (usually it is the electrode where the electric field intensity is higher). Despite their importance, no single theory describes the ignition mechanisms of discharges in liquid; however, many experimental and theoretical investigations continue to address them [57]–[59]. When an electric field is applied for a long period (hundreds of nanoseconds), a streamer discharge may transit to a spark, which is characterized by a voltage drop and a current peak (tens of amperes) [60],[61]. Similarly, when the spark is sustained long enough, a transition to an arc, a discharge mode characterized by high current (tens to hundreds of amperes) and high temperature (few thousands of Kelvins) may occur [62].

Regardless of the discharge mode, the mechanisms of ignition in liquid are highly sensitive to experimental conditions, particularly the liquid properties (e.g. dielectric permittivity, electrical conductivity, molecular structure, etc.), electrode configuration (pin-to-pin, pin-to-plate, etc.), and interelectrode gap distance, among others ([58],[59],[63]). Unfortunately, these conditions are significantly modified by discharges, which limits the reproducibility of in-liquid discharges. Indeed, even if the initial conditions are finely set, e.g. liquid degassing, electrode polishing, etc., it is sufficient to have one single discharge to change

almost all experimental conditions [64]. This is mainly due to the micrometer scale impact produced at the surface of the electrode after interaction with the plasma ([65],[66]) and to the effect of this impact on the electric field configuration. The micrometric and millimetric bubbles produced by the discharge in the liquid medium may also influence the electric field configuration, thereby affecting the dynamics of upcoming discharges [64]. Finally, the discharge conditions may be modified upon the generation of eroded matter (nano- and micro-particles) and liquid decomposition residues [61].

Considering the everchanging experimental conditions, it is almost impossible to have reproducible discharges in liquid. Therefore, it is crucial to address the influence of the occurred discharges on the next ones. In the 1960s, this subject was first addressed by Gallagher and Lewis in the context of pulsed discharges in liquid argon [67] The authors show a strong correlation between electrode polarity and breakdown voltage, and they report the discharge delay (or time lag) of the occurred consecutive discharges. In a previous paper [63], our group has investigated the influence of liquid composition, voltage amplitude, pulse width, and electrode configuration on the electrical characteristics of each occurring discharge. Herein, we analyze the effects of interelectrode gap distance, electrode composition, and voltage polarity on discharge behavior by studying the evolution of electrical (and other) characteristics as a function of discharge occurrence.

II. EXPERIMENTAL SETUP AND DATA PROCESSING

A. Experimental setup

As shown in Fig. 23, the experimental setup is composed of two electrodes (2 mm diameter, 99.99% purity; Goodfellow) made of copper (Cu) or tungsten (W). The choice of electrodes is motivated by their different melting temperature: ~ 1084 and 3422 °C for Cu and W, respectively. The electrodes are vertically mounted on a micrometer positioning system, which allows for the fine (± 5 μm) adjustment of the initial interelectrode gap distance (d) between 50 and 500 μm . The zero-distance was determined using the short-circuits method. Briefly, a voltage of hundreds of volts was applied to the pin while approaching it to the plate

electrode until a contact is established. The electrodes are polished to fit the desired configuration and geometry (pin or plate). The pin electrode is polished to have an apex of $\sim 50\text{--}60^\circ$ (curvature radius of $\sim 20\text{--}30\ \mu\text{m}$) using an electrode sharpener grinder angle controller. The two electrodes are mounted in a cylindrical quartz cell that is filled with 15 mL deionized water (initial electrical conductivity of $\sim 3\ \mu\text{S}/\text{cm}$). The solution conductivity was measured using a conductivity meter (19101-10 Digital Conductivity Meter, Cole-Parker Instrument).

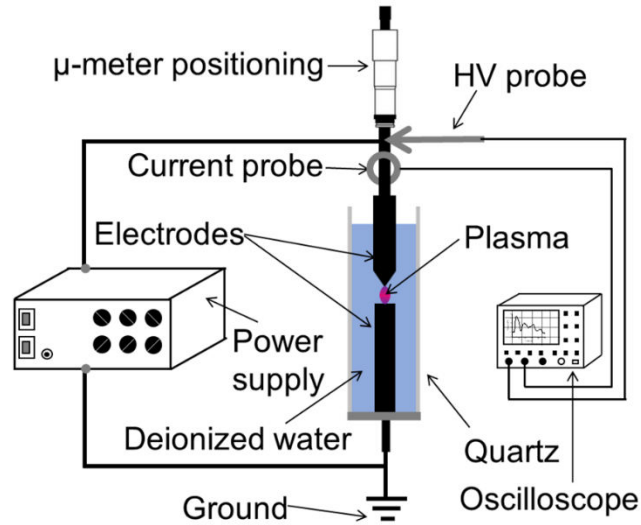


Figure 23. – Scheme of the experimental setup.

The upper electrode is connected to a pulsed positive (i.e. anode) or negative (i.e. cathode) polarity power source (NSP 120-20-P/N-500-TG-H; Eagle Harbor Technologies) that supplies a voltage with adjustable amplitude and pulse width. The discharges investigated in this study are generated using the pulse (repetition rate of 3 Hz) characterized by $\pm 20\ \text{kV}$ of magnitude, ~ 100 of rising period, $\sim 400\ \text{ns}$ of plateau, and $\sim 250\ \text{ns}$ of falling period. Considering 20 kV of amplitude and different gap distances, we used Comsol to simulate the distribution of the electric field (not shown here). As expected, we found that the highest field is at the pin head, and its value is $\sim 5 \times 10^8$, 2×10^8 , and $0.9 \times 10^8\ \text{V}/\text{m}$ for $d = 50, 200,$ and $500\ \mu\text{m}$, respectively.

We used an optical microscope (OMAX M83MPTR) to visualize the erosion patterns of the pin as well as to visualize the impacted area on the surface of the electrode plate. Assuming that the pin has initially a conical shape, we have estimated the eroded volume after discharges. Then, considering the density of Cu and W, an eroded weight is estimated.

B. Data acquisition and processing method

A high-voltage probe (P6015A, $\times 1000$; Tektronix) and a current monitor (6585, 0.5 V/A; Pearson) were used to measure the voltage and current waveforms of the discharge generated between the two electrodes, respectively. The voltage and current waveforms of each discharge were acquired using an oscilloscope (MSO54, 2 GHz, 6.25 GS/s; Tektronix). For each investigated condition, the discharges were run after pre-setting the parameters (electrodes, voltage, and distance), and the waveforms were acquired until the discharges ceased to occur.

Figure 24 shows typical voltage and current waveforms corresponding to occurred and failed discharges acquired using a pin-to-plate configuration under positive and negative polarity. When voltage polarity is positive, only one breakdown mode is observed, and it is characterized by a voltage drop within the pulse period (Figs. 24a and 24b). However, when the polarity is negative, two breakdown modes are observed. The first one is characterized by a voltage drop within the pulse period (Figs. 24c and 24d), similar to the positive polarity condition, whereas the second one is characterized by a voltage drop in the reflected positive pulse when a breakdown does not occur in the first pulse (Figs. 24e and 24f). Note that the reflected pulse has an amplitude of ~ 5 kV and lasts for few microseconds. Although the origin of this reflected pulse is not completely understood, we believe that it is related to the pulser circuit as well as to the length of the cables. The current waveforms depicted in Fig. 24 show the displacement current produced by the temporal variation of the voltage across a capacitance (before breakdown). This current is not accounted for in the calculation of injected charge and energy.

Table 1 summarizes the number of occurred discharges, the number of total high voltage pulses, and the percentage of successful discharges achieved at each investigated condition. Clearly, the number of occurred discharges varies depending on the experimental conditions. To obtain comparable profiles, the data are plotted as a function of normalized discharge number with respect to the maximal discharge number in each case.

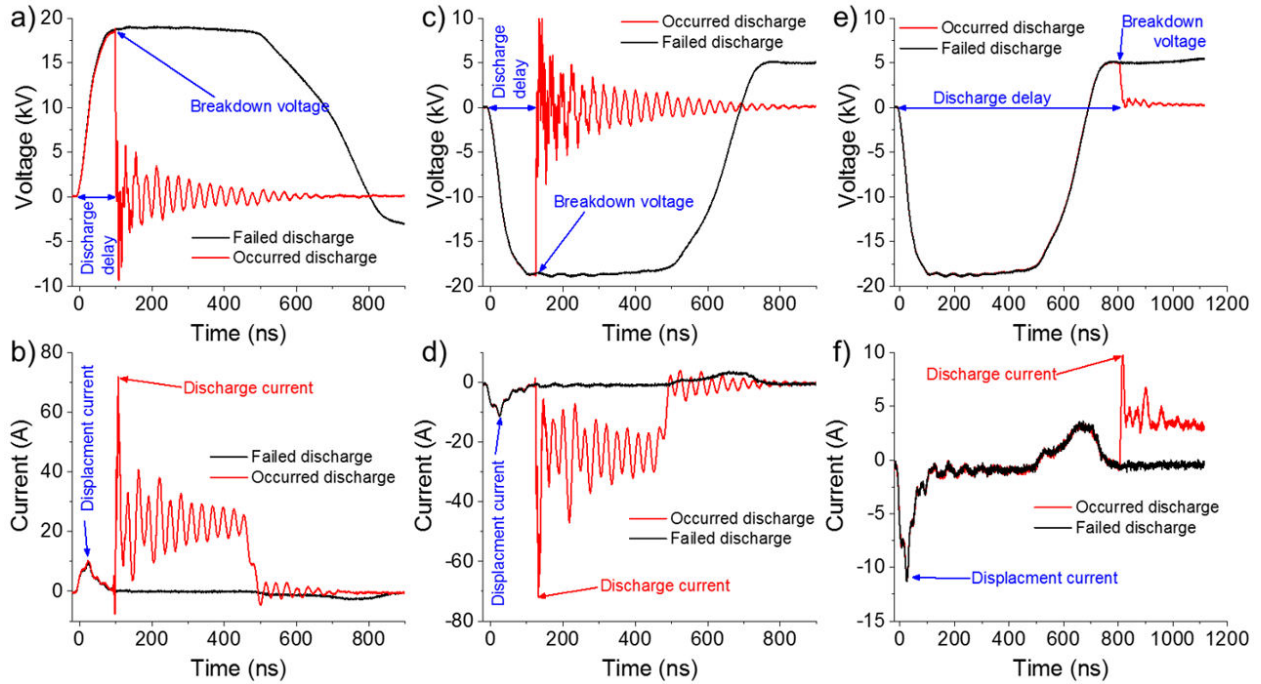


Figure 24. – Voltage and current waveforms of typical occurred and failed discharges in pin-to-plate electrode configuration under positive polarity voltage (a and b) and under negative polarity voltage during the first (c and d) and reflected (e and f) pulses.

Tableau 1. – Number of occurred discharges /total number of high voltage pulses under different experimental conditions ($d = 50 \mu\text{m}$).

Experimental configuration		Number of occurred discharges / total number of pulses ($d = 50 \mu\text{m}$)	Percentage of occurred discharges (%)
Pin-to-plate; positive polarity	Cu	16950 / 21796	77.8
	W	6905 / 12571	54.9
Pin-to-plate; negative polarity	Cu	17655 / 21732	81.8
	W	12975 / 13787	94.1
Plate-to-pin; positive polarity	Cu	12446 / 20308	61.3
	W	N/A	N/A

The recorded waveforms (thousands) were processed using a previously developed algorithm (a detailed description can be found in Ref. 23). For each discharge waveform, the algorithm categorizes the discharge as occurred or non-occurred. Then, it detects the breakdown moment in the occurred discharges and reports the ‘probability of discharge occurrence’, the ‘breakdown voltage’, the ‘discharge delay’, the ‘discharge current’ (maximum/minimum peak value depending on the polarity), the ‘injected charge’, and the ‘injected energy’; these latter were calculated by time integration (between the breakdown moment and the end of the pulse) of the current absolute value ($\int |V(t)I(t)|dt$) and power absolute value ($\int |V(t)I(t)|dt$), respectively. The variation of these parameters as a function of the normalized discharge number is presented and discussed in the next sections.

III. RESULTS

A. Probability of discharge occurrence and electrode erosion

Figure 25 shows the variation of discharge probability as a function of normalized discharge number for experiments conducted in pin-to-plate configuration with Cu (Fig. 25a) and W (Fig. 25b) electrodes, under positive and negative voltage polarity conditions. In all cases, the initial discharge probability is 1. When Cu electrodes are used, the discharge probability is 1 during a certain period that depends on d , but not on voltage polarity. For instance, the first half of discharges generated at $d = 50 \mu\text{m}$ have 100% probability of occurrence, and the probability of the subsequent discharges decreases quasi-linearly until it reaches 0. Meanwhile, at $d = 200 \mu\text{m}$, only ~30% of discharges have an occurrence probability of 100%. In general, the percentage of probability 1 occurring discharges decreases at longer gap distances. Although the discharge probability data exhibit significant dependence on the gap distance between electrodes, one can fairly assume that this parameter does not appreciably depend on voltage polarity in the case of Cu electrodes.

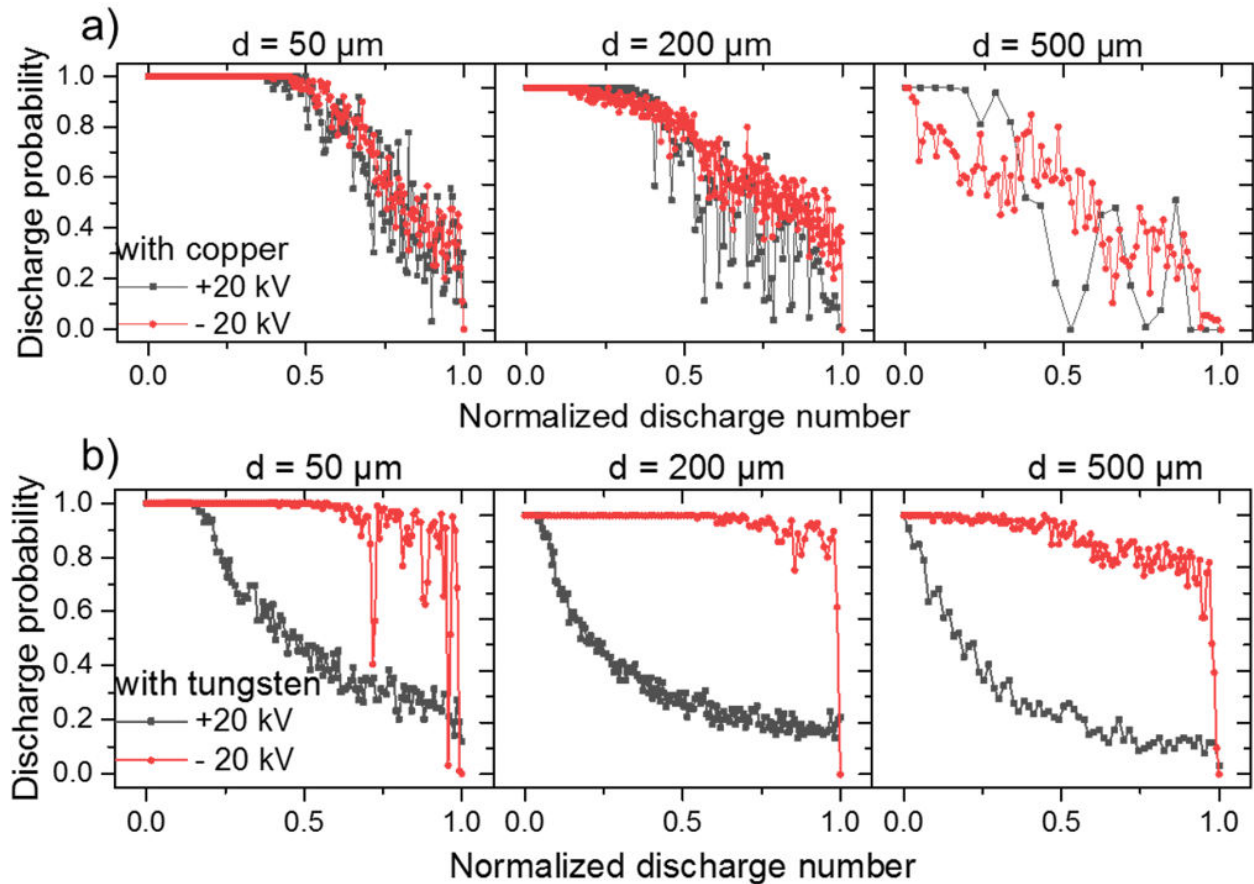


Figure 25. – Variation of the probability of discharge occurrence as a function of normalized discharge number with (a) Cu and (b) W electrodes at $d = 50, 200,$ and $500 \mu\text{m}$, for positive and negative polarity conditions.

The behavior of discharge probability with W electrodes (Fig. 25b) is very different from that with Cu electrodes. When W electrodes are used, a strong dependence on voltage polarity is observed. Under negative polarity conditions, the probability of discharge occurrence remains $\sim 100\%$ for a long period of time, then it rapidly transits to 0, irrespective of the gap distance. Meanwhile, under positive polarity conditions and at $d = 50 \mu\text{m}$, about 20% of discharges have an occurrence probability of 1. The remaining discharges exhibit a rapid quasi-exponential decay in probability. Similar behavior is observed at longer distances ($d = 200$ and $500 \mu\text{m}$); however, the period during which the discharge probability is 1 is shorter at longer d .

Based on our previous research, the main parameters that influence discharge probability are gap distance and discharge ignition mode, which are strongly related to electrode erosion and voltage polarity, respectively. Figure 26a compares the shapes of the Cu and W pin electrodes before and after discharges ($d = 50 \mu\text{m}$; +20 kV); the surfaces of the plate electrodes are also shown. Clearly, the Cu electrodes are more significantly eroded by discharges than the W counterparts. Based on the figure showing the variation of the diameter of the impacted area at the surface of the plate electrode as a function of d (Fig. 26b), the largest impact is produced using Cu electrodes and a negative polarity applied voltage, at $d = 50 \mu\text{m}$. Under positive polarity conditions, the impacted areas of the electrodes are relatively smaller when d is shorter than $300 \mu\text{m}$. At longer d , the diameter of the impacted area becomes independent of voltage polarity. In general, the diameter decreases quasi-linearly with increasing gap distance. When W electrodes are used, a strong dependence of impact diameter on d and on voltage polarity is observed, and the largest diameter is measured at short d and negative polarity. Again, a quasi-linear decrease of impact diameter with increasing d can be observed, but the rate of decrease (i.e. the slope) detected in the case of W electrodes is smaller than that achieved with Cu. Figure 4c shows the variation of eroded weight (calculated based on pin erosion) as a function of d , under different conditions. The highest value of eroded weight is $\sim 90 \mu\text{g}$, and it is measured at short d and positive polarity, using either Cu or W electrodes. Under negative polarity conditions, the eroded weight of Cu electrodes is $\sim 45 \mu\text{g}$, whereas that of W electrodes is $\sim 30 \mu\text{g}$. In all cases, the eroded weight decreases significantly with d . Unfortunately, it was not possible to estimate the eroded weight of the plate electrode.

At this stage, it is evident that the erosion of the electrodes significantly modifies both, the gap distance, and the electrode shapes. Therefore, as the initial condition of pin-to-plate configuration becomes inapplicable during discharges and that the instantaneous electrode's shape is not accessible, it is crucial to follow the electrical characteristics of the next discharges to address their behaviors.

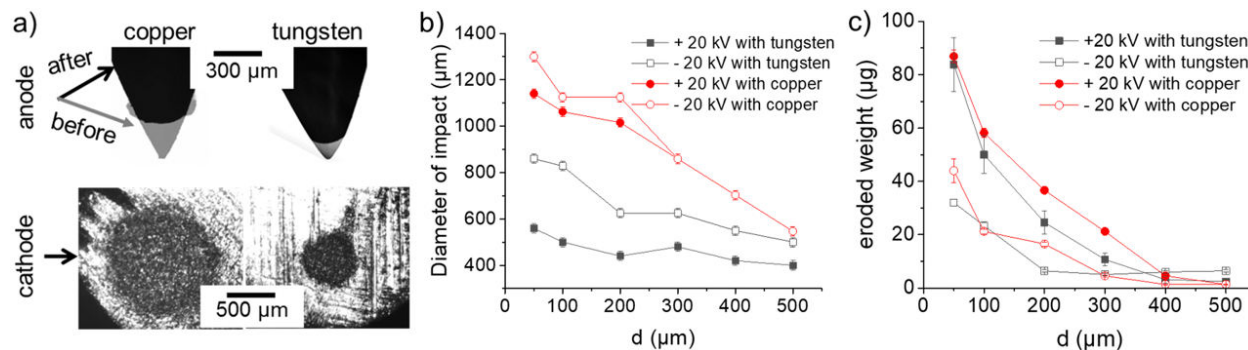


Figure 26. – (a) Superimposed images of Cu and W electrode tips showing their modification after discharge ($d = 50 \mu\text{m}$, +20 kV); the impacted area on the plate electrodes is also shown. (b) Variation of the diameter of the impacted area at the cathode surface as a function of d under various conditions. (c) Variation of the weight eroded from the pin electrode as a function of d under various conditions.

B. Electrical characteristics of the discharges

Figures 27 and 28 display the variation of the electrical characteristics (breakdown voltage, discharge current, discharge delay, injected charge, and energy) as a function of normalized discharge number for discharges generated between two Cu electrodes under positive and negative polarity conditions, respectively. Figure 27a shows that, at $d = 50 \mu\text{m}$, the breakdown voltage is initially low ($\sim 6 \text{ kV}$), then it increases to reach a plateau value. At this stage, it is worth noting that the initial data points are only slightly dispersed, but later discharges exhibit significant dispersion with breakdown voltages between 10 and 18 kV. A similar trend is observed at $d = 200 \mu\text{m}$; however, the initial breakdown voltages are around 12 kV, and the later ones are around 18 kV (i.e. plateau value; note that, as described later, the plateau value should be 20 kV, but because of the increase in water conductivity, it is 18 kV). Finally, at $d = 500 \mu\text{m}$, the occurred discharges exhibit breakdown voltages around 18 kV, with little dispersion of the data points.

The variation of discharge current as a function of normalized discharge number is shown in Fig. 27b. At $d = 50 \mu\text{m}$, the current values of the initial discharges are $\sim 40 \text{ A}$, and those of subsequent discharges increase to $\sim 60\text{--}70 \text{ A}$ then decrease to $\sim 50\text{--}60 \text{ A}$. The data points are relatively well dispersed, and variations between ~ 30 and 70 A are detected. At $d = 200 \mu\text{m}$, the

current distribution is relatively narrower ($\sim 50\text{--}70$ A), and there is no initial phase of increase. However, data points with values between ~ 30 and 50 A can be identified. The current behavior observed at $d = 500$ μm is similar to that detected at $d = 200$ μm , except that the data points are even more tightly distributed around 50–60 A, with only some of them having values lower than 50 A.

Figure 27c depicts the variation of discharge delay as a function of normalized discharge number, and it shows that at $d = 50$ μm , the initial discharges are characterized by delays < 100 ns, with a narrow distribution of data points. The subsequent discharges exhibit delays that vary between 100 and 600 ns, and their corresponding data points are homogeneously distributed in the area delimited by delays of 100 and 600 ns. At $d = 200$ and 500 μm , similar behaviors are observed; however, the initial data points are more widely dispersed compared to the case of $d = 50$ μm . The data points corresponding to later discharges are also well dispersed, with delay values between 100 and 600 ns.

Considering that the high voltage power supply provides pulses with a rising period of ~ 100 ns, a plateau of ~ 400 ns, and a falling period of ~ 250 ns, all discharges with delays shorter than 100 ns (and a breakdown voltage smaller than the plateau value) occur during the rising period. These discharges are clearly visible in the case of $d = 50$ μm ; however, at $d = 200$ and 500 μm , most discharges occur in the plateau period, and their delays statistically vary between 100 and 600 ns, without a clear trend.

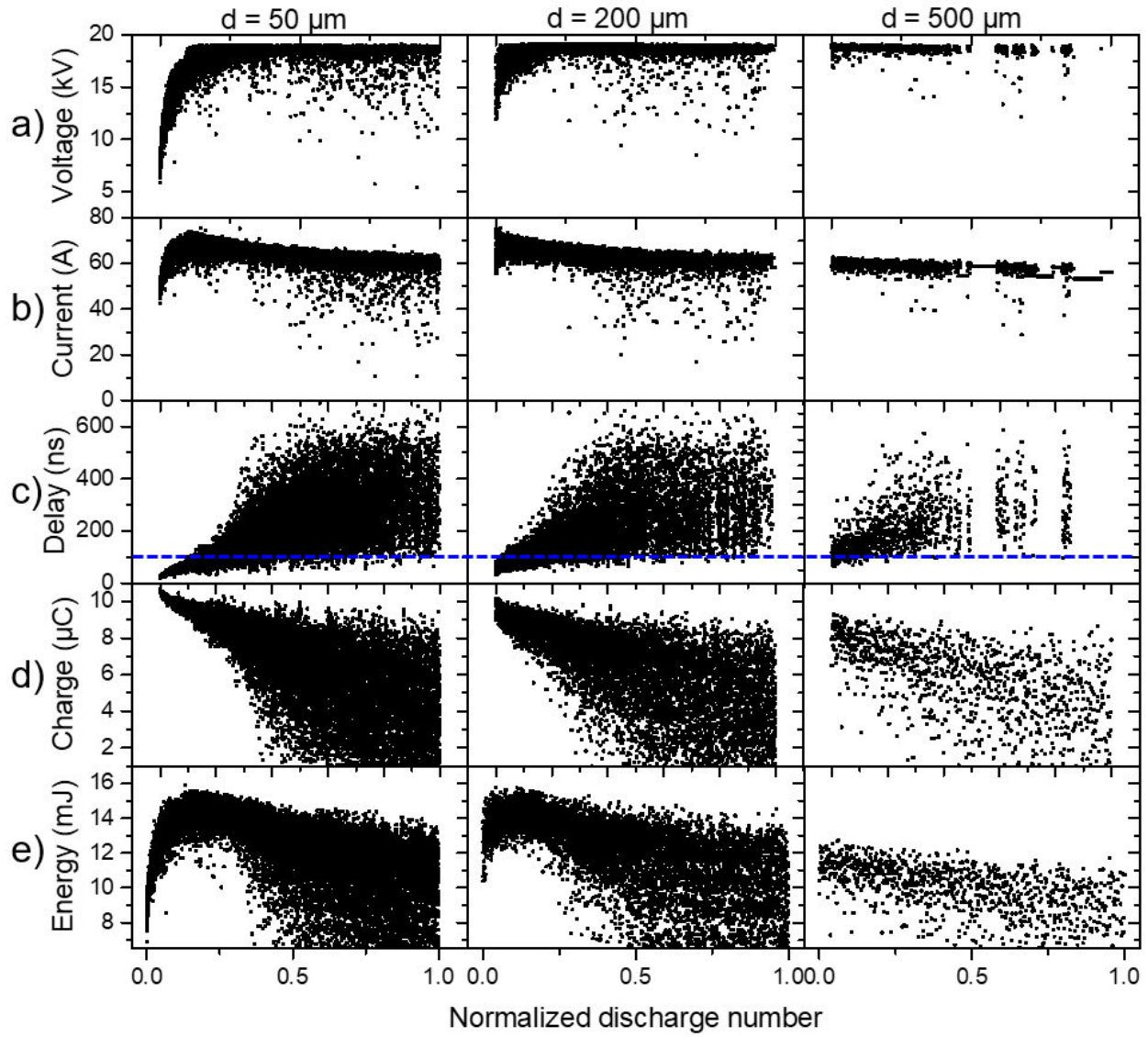


Figure 27. – Variation of (a) breakdown voltage, (b) discharge current (peak value), (c) discharge delay (the blue line at 100 ns indicates the end of the rising period), (d) injected charge, and (e) injected energy as a function of normalized discharge number for discharges generated in water between two Cu electrodes under positive polarity condition.

Injected charge was also calculated for each occurred discharge, and the results shown in Fig. 27d clearly demonstrate that the initial discharges at $d = 50 \mu\text{m}$ have the highest charge ($\sim 11 \mu\text{C}$) and are less dispersed. As for the subsequent discharges, their injected charge values become more and more dispersed, and they vary between 1 and $10 \mu\text{C}$. Similar trends are

observed at $d = 200$ and $500 \mu\text{m}$, except that the dispersion of data points appears at an earlier stage. Considering that injected charge is equivalent to the temporal integration of current, the charge behavior discussed above is expected. Indeed, although the discharge current varies significantly, the variation of injected charge is more sensitive to discharge delay. As this latter significantly varies within the plateau, it is expected to provide very different injected charges.

Finally, the variation of energy as a function of normalized discharge number exhibits interesting behavior (Fig. 27e). Indeed, at $d = 50 \mu\text{m}$, the initial discharges have relatively low energy (~ 8 mJ) that increases to reach a peak value of ~ 16 mJ. The subsequent discharges have lower energy values and are homogeneously distributed between 7 and 15 mJ. The behavior of occurred discharges at $d = 200 \mu\text{m}$ is very similar to that observed at $d = 50 \mu\text{m}$; however, at $d = 500 \mu\text{m}$, the discharges exhibit lower energy (data points dispersed between 7 and 12 mJ). Like injected charge, energy is the time integration of the power. Therefore, the instantaneous values of voltage and current, as well as discharge delay, play a major role in energy calculation, and the peak in energy data points is expected. This peak corresponds to discharges that occur at the beginning of the plateau (i.e. higher breakdown voltage, higher current, and shorter delay).

Figure 28 shows the results obtained at negative voltage polarity, using Cu electrodes in pin-to-plate configuration. Two data sets are obtained under these conditions, and they correspond to i) discharges occurring in the negative first pulse and ii) discharges occurring in the reflected positive pulse. In the figure, the data points obtained in the reflected pulse are highlighted in yellow. Notably, discharges in set (ii) can only be detected when discharges in the negative pulse are unsuccessful, i.e. it is not possible to have discharges during both pulses. It may also happen that discharges do not occur during either pulse.

Compared to the positive polarity counterpart, the breakdown voltage profile recorded under negative polarity conditions exhibits several differences (Fig. 28a). At $d = 50 \mu\text{m}$, the initial 40% of discharges show a narrow dispersion of breakdown voltage, and they all occur during the first pulse. The latter discharges are characterized by different breakdown voltages that vary between -4 and -18 kV. Interestingly, only during this period, discharges can occur in the

reflected positive pulse. The values of the breakdown voltage in the reflected pulse are comparable: $\sim 4\text{--}5$ kV. At $d = 200$ μm , the initial discharges are characterized by high voltage values (~ 18 kV), and the characteristics of the first $\sim 15\%$ of discharges are similar to those of the initial discharges achieved at $d = 50$ μm ; i.e. tight dispersion of data points and no discharge occurrence in the reflected pulse. The subsequent discharges exhibit breakdown voltages that significantly vary between ~ 4 and 18 kV, but those occurring in the reflected pulse vary within a much narrower range ($\sim 4\text{--}5$ kV). Finally, at $d = 500$ μm , the situation is enhanced as, from the very beginning of the experiment, discharges can occur in the first pulse (with breakdown voltages between ~ 4 and 18 kV) and in the reflected pulse as well (breakdown voltages of $\sim 4\text{--}5$ kV).

The variation of the discharge current as a function of normalized discharge number is shown in Fig. 28b. As expected, this variation is very similar to that of voltage, at a given gap distance. Indeed, when discharges occur during the first pulse only, the current values are tightly dispersed and have values between ~ 30 and 70 A. The currents of the subsequent discharges occurring during the first pulse vary between 10 and 60 A, whereas those of the discharges in the reflected pulse are around 10 A.

Figure 28c depicts the variation of discharge delay as a function of normalized discharge number, and it shows two distributions: one for the discharges occurring during the first pulse (delay < 750 ns) and another for the discharges occurring in the reflected pulse (delay > 750 ns). Compared to the positive polarity condition, the data acquired under negative polarity are less dispersed. For instance, at $d = 50$ μm , the delays measured under positive polarity vary between 100 and 600 ns towards the end of the experiment; however, the delays range from 500 to 600 ns (for the discharges occurred in the first pulse) under negative polarity conditions. The majority of discharges occurring in the second pulse have discharge delays between 750 and 1000 ns. Similar trends are observed at $d = 200$ and 500 μm .

The variation profiles of injected charge and energy are shown in Figs. 28d and 28e, respectively. Considering that these parameters are directly correlated with breakdown voltage, discharge current, and discharge delay, the obtained results are likely expected. These results

show that for all investigated gap distances (50, 200, and 500 μm), the injected charge decreases quasi linearly (in absolute value) from ~ -11 to ~ -1 μC for discharges occurring in the first pulse, while the discharges occurring in the reflected pulse have a positive injected charge of < 2 μC . As for the injected energy, it exhibits a clear rapid increase to a peak value of ~ 17 mJ at $d = 50$ μm . This peak is reached within the first 1% of discharges. During the subsequent 50% of discharges, the injected charge decreases linearly. Finally, the last 40% of discharges that occur in the first pulse exhibit an almost constant energy that varies between 3 and 6 mJ. The discharges occurring in the reflected pulse also have a constant energy of less than 3 mJ. At $d = 200$ μm , discharges start in the plateau period, and so, they exhibit the highest energy. This energy decreases linearly with increasing discharge number. The period of 'constant-energy' at 200 μm gap distance is therefore longer compared to that achieved at 50 μm . The energy trend observed at $d = 500$ μm is similar to that detected at $d = 200$ μm , but the energy values are lower, and the period of 'constant-energy' is longer, due to the fact that the discharges occur later in the plateau.

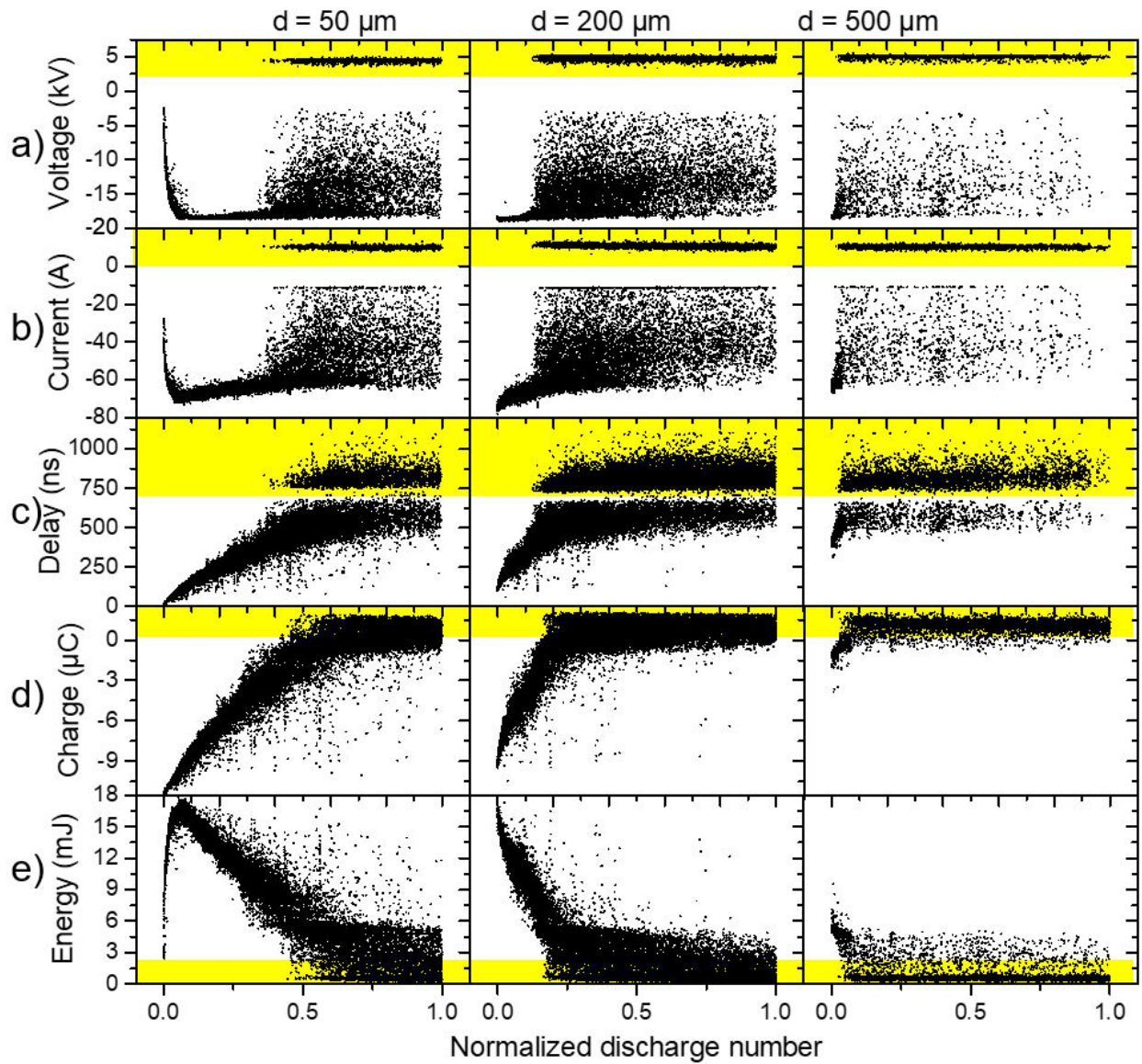


Figure 28. – Variation of (a) breakdown voltage, (b) discharge current (peak value), (c) discharge delay, (d) injected charge, and (e) energy as a function of normalized discharge number for discharges generated in water between two Cu electrodes under negative polarity condition. The yellow highlighted regions are representative of the discharges occurring in the reflected pulse.

Figure 29 compares the profiles of breakdown voltage and discharge delay recorded using Cu and W electrodes under positive polarity conditions, at $d = 50 \mu\text{m}$. As shown in Fig.

29a, the breakdown voltage of occurred discharges depends on the electrode composition. Initially, the discharges achieved with Cu and W exhibit similar voltage values; however, these values eventually increase to different plateaus: ~ 18 kV in the case of Cu vs. ~ 22 kV in the case of W. This difference is related to the modification of the electrical conductivity of the liquid after discharge, a phenomenon that occurs more quickly when using Cu electrodes than when using W electrodes. For instance, at $d = 50 \mu\text{m}$, water conductivity increases by $\sim 25 \mu\text{S/cm}$ after discharge between Cu electrodes, whereas it increases by only $\sim 11 \mu\text{S/cm}$ when the discharge is achieved between W electrodes (the variation of water conductivity under different discharge conditions is discussed later).

Figures 29b and 29c present the profiles of discharge delay obtained with Cu and W, respectively. In the case of Cu, a progressive increase in delay (from 0 to ~ 100 ns) is observed for the first $\sim 10\%$ of discharges, most of which occur during the rising period of the pulse. The distribution of data points corresponding to these discharges is relatively narrow. The discharges with numbers between 10 and 25% (i.e. discharges that mainly occur in the beginning of the plateau) exhibit delays between 100 and 200 ns, and they are relatively less dispersed than the initial discharges. Beyond 25%, the discharges mainly occur in the plateau and in the falling period, and their data points vary statistically between 100 and 600 ns.

The initial 5% of discharges generated with W electrodes are similar to the initial 10% of discharges achieved with Cu electrodes. However, the subsequent discharges (5–20%) with W are dispersed along two distributions, the first of which is characterized by delays < 200 ns, similar to those observed in the case of Cu electrodes. The second distribution exhibits a continuous increase in discharge delay from 100 to 500 ns. Notably, some data points fall between the two distributions. Finally, the discharges with numbers $> 20\%$ are homogeneously distributed between lower and higher limits of 100 and 500 ns, respectively.

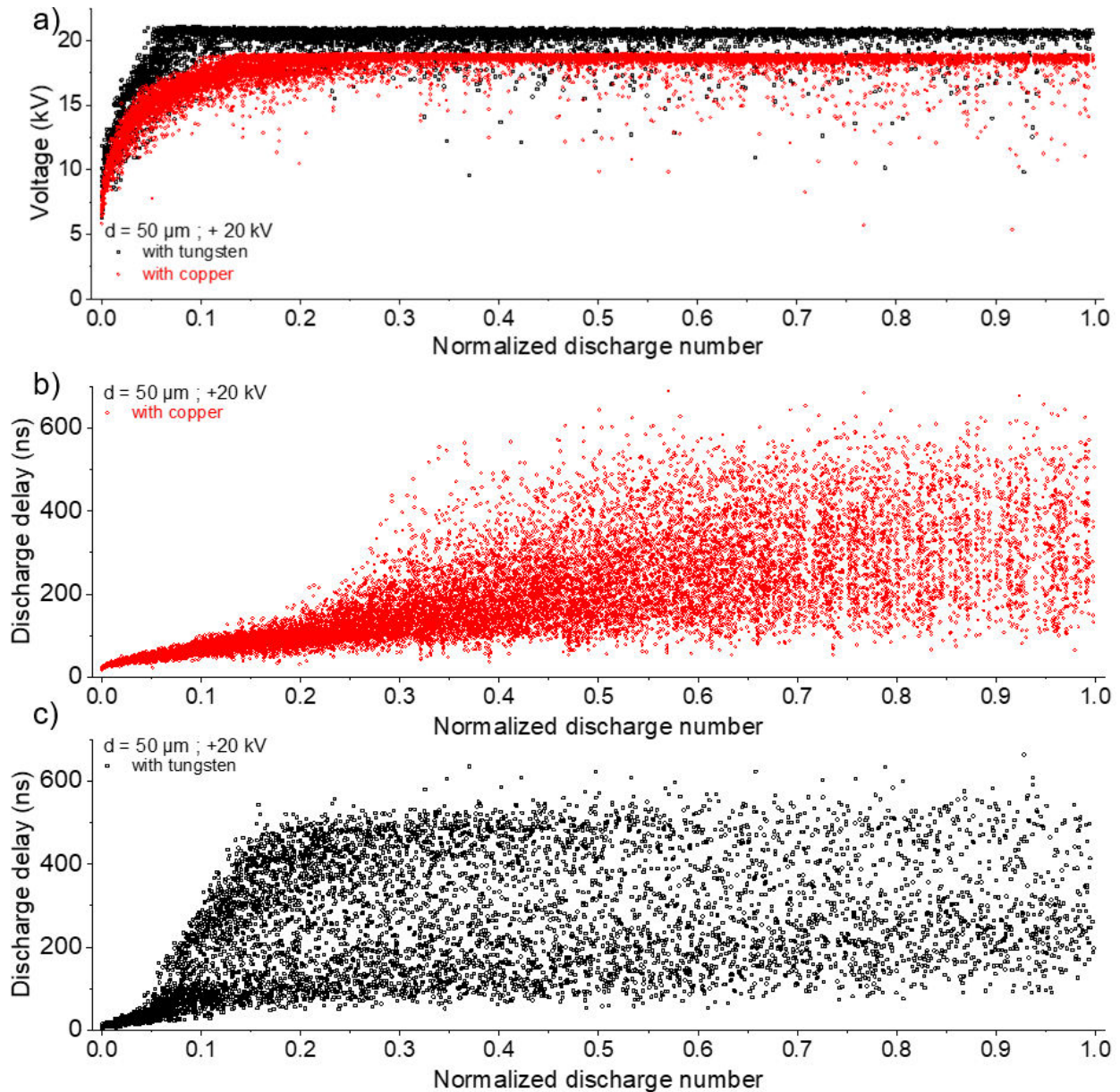


Figure 29. – (a) Breakdown voltage profiles of the discharges generated with Cu and W electrodes.

Discharge delay profiles of the discharges generated with (b) Cu and with (c) W electrodes.

The gap distance is $50 \mu\text{m}$ and the applied voltage is $+20 \text{ kV}$.

The results obtained under negative polarity conditions are depicted in Fig. 30 for both types of electrodes. As shown in Fig. 30a, the breakdown voltage profiles of discharges occurring in the first pulse are similar to that recorded under positive polarity conditions. The

voltage (absolute) values measured with Cu electrodes are smaller than those measured with W, and the difference is related to the increase in water conductivity. With Cu and W electrodes, the water conductivity increases by 40 and 23 $\mu\text{S}/\text{cm}$ after discharge, respectively (see Table 2). Considering that the number of discharges occurred under negative voltage polarity is higher than that achieved under positive polarity, even with W electrodes, the voltage plateau value detected under the former condition is relatively lower. For instance, when the polarity is negative and W electrodes are used, the breakdown voltage is -20 kV at 5% discharge number, and it decreases to ~ -18 kV towards the end of the experiment. In the reflected pulse (area highlighted in yellow), the discharge breakdown voltage seems to be independent of electrode composition, although the values measured with Cu electrodes are slightly lower.

The data points corresponding to discharge delay measured under negative polarity are less dispersed than those of the delays measured under positive polarity, as shown in Fig. 30b and 30c. Moreover, the delays of the first 5% and the last 75% of discharges generated under negative polarity using Cu and W electrodes are similar. However, between 5 and 25% (discharge delays between ~ 100 and 300 ns), the delay depends on electrode composition. Indeed, as compared with Cu electrodes, delay of discharges with W electrodes increases rapidly with increasing discharge number, and a clear slope change is observed at $\sim 8\%$ (discharge delay of 200–300 ns). The observed behaviors are addressed in the Discussion Section.

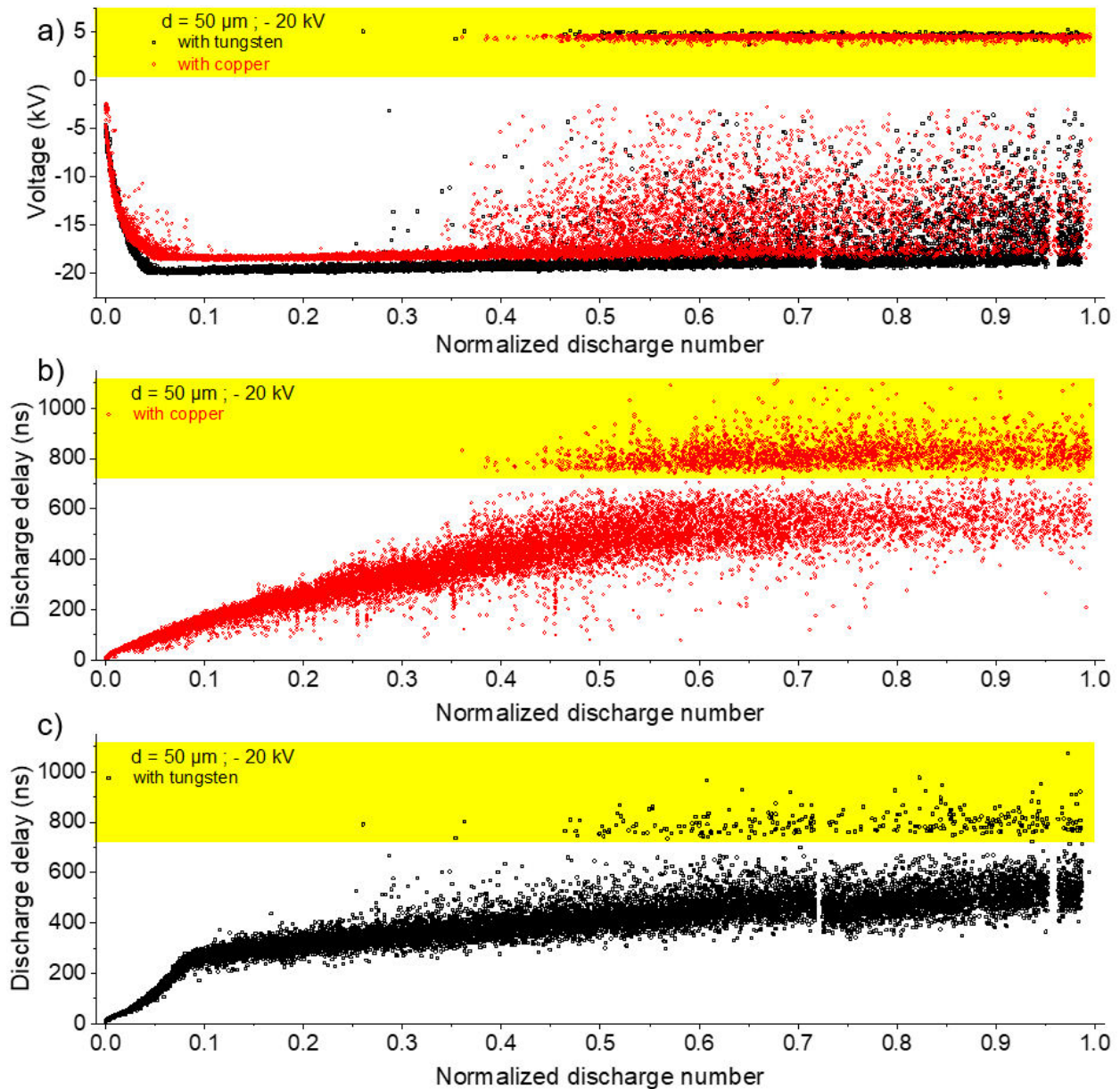


Figure 30. – (a) Breakdown voltage profiles of the discharges generated with Cu and W electrodes. Discharge delay profiles of the discharges generated with (b) Cu and with (c) W electrodes. The yellow highlighted regions are representative of the discharges occurring in the reflected pulse. The gap distance is 50 μm and the applied voltage is -20 kV .

To understand the origin of discharges occurring in the reflected positive pulse, one must consider that when a negative pulse is applied to the pin electrode, and a discharge is not generated, various phenomena may occur in water, such as the formation of low-density regions (due to the application of a strong electric field) and bubbles (due to charge injection

and Joule heating) near the sharp cathode. Under such conditions, the reflected positive pulse can induce discharges, despite its low amplitude (~ 5 kV). To further confirm this hypothesis, a positive polarity discharge was applied in plate-to-pin electrode configuration, where the plate is anode, and the pin is cathode (connected to the ground). The behavior of discharges generated under these conditions is similar to that of discharges produced using a negative polarity applied voltage and pin-to-plate configuration. This means that discharges can occur during the first positive pulse or during the reflected negative one. Figure 31 depicts typical voltage and current waveforms corresponding to a discharge occurring in the reflected negative pulse. In this figure, one reads a breakdown voltage of ~ 5 kV and a discharge current of ~ 7 A.

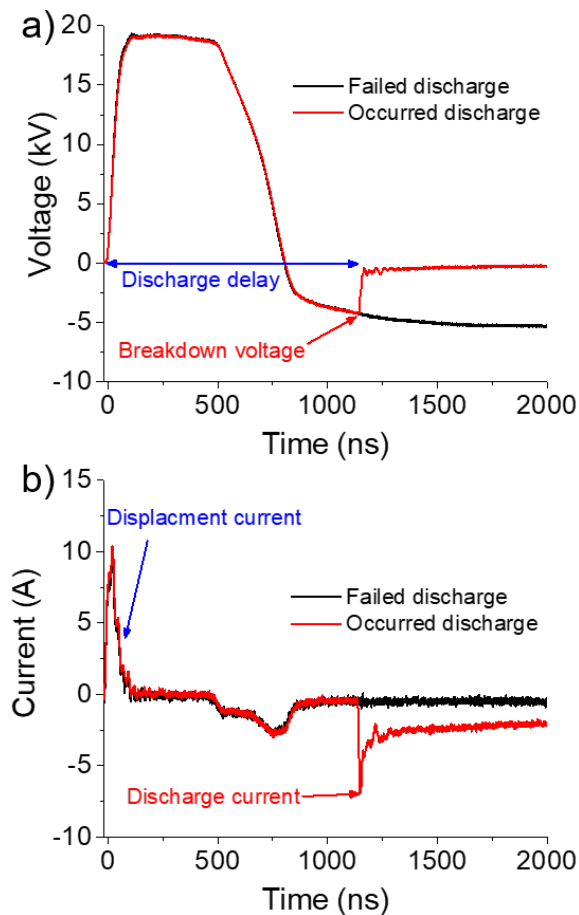


Figure 31. – (a) Voltage and (b) current waveforms of typical occurred and failed discharges in plate-to-pin electrode configuration under positive polarity condition during the first and reflected pulses, respectively.

Figure 32 compares the breakdown voltages recorded under three conditions: (a) pin-to-plate with positive polarity, (b) pin-to-plate with negative polarity, and (c) plate-to-pin with positive polarity. The voltage values measure under condition (c) are exactly the opposite of those measured under condition (b) (same magnitude, but opposite sign). This is true for discharges that occur during the first pulse, as well as during the reflected pulse. However, for condition (c), the discharges in the reflected pulse start to occur after $\sim 25\%$ discharge number, while for condition (b), they start after $\sim 35\%$. The similarity between the voltage profiles obtained under conditions (b) and (c) indicates that the breakdown mechanisms corresponding to these conditions are similar. These mechanisms are probably based on electron injection through the sharp cathode.

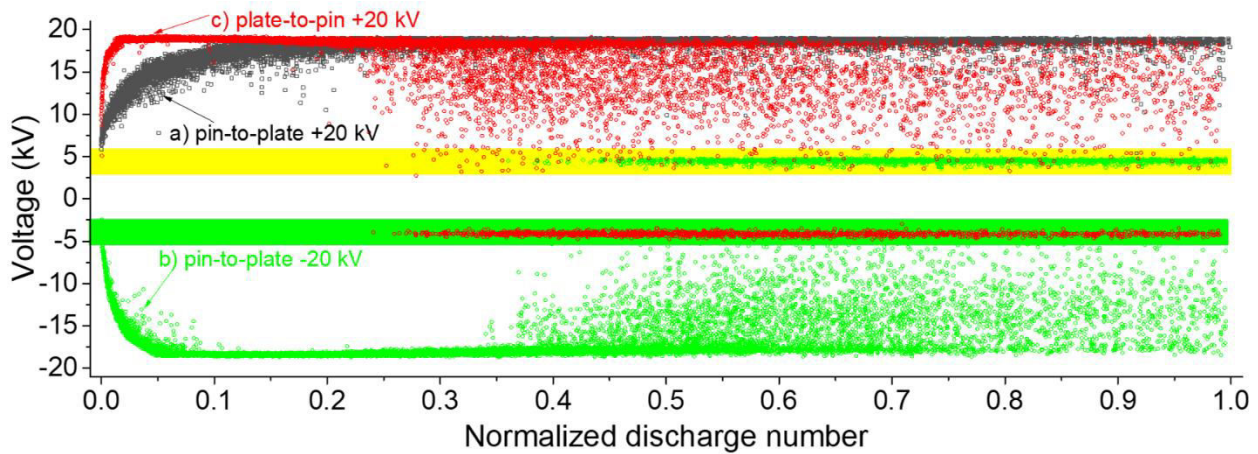


Figure 32. – Variation of breakdown voltage as a function of normalized discharge number for discharges generated using Cu electrodes, at $d = 50 \mu\text{m}$. Three configurations are investigated: (a) pin-to-plate, +20 kV; (b) pin-to-plate, -20 kV (discharges occurring in the reflected pulse are highlighted in yellow); and (c) plate-to-pin, +20 kV (discharges occurring in the reflected pulse are highlighted in green).

C. Voltage-current plot

As in Refs. [68] and [63], the voltage-current plots of discharges generated under different conditions are also analyzed herein. Figure 33 presents the plots corresponding to discharges generated using Cu electrodes, at $d = 50\text{--}500 \mu\text{m}$, and positive and negative polarities. Clearly, the data in the plots can be fitted by parallelogram-like curves, irrespective of

the particular conditions. At $d = 50 \mu\text{m}$, the first portion of initial (1) and the last discharges (2) can be surprisingly fitted by linear profiles that have the same slope (equivalent to a resistance) of $\sim 240 \Omega$, irrespective of the polarity of the applied voltage. The other portion of initial discharges (1) are also fitted linearly, but the slope is higher ($\sim 416 \Omega$). As for the discharges happening in the reflected pulse (3), their data points are distributed in the region of 3–6 kV and 8–15 A. These data points do not lie on the lines fitting the other data points in the plot, but they are close to the line with the lower slope ($\sim 240 \Omega$). Interestingly, voltage and current magnitudes of the last several discharges generated under negative polarity are similar to those of discharges in the reflected pulse, but the signs are opposite. This suggests that underlying breakdown mechanisms of these discharges are similar.

The progressive increase in gap distance to $300 \mu\text{m}$ induces a shift in the initial data points to higher values of voltage and current, but the linear plots remain valid with comparable slopes. At $d = 400$ and $500 \mu\text{m}$, the data points that are fitted by lines with higher slope are completely skipped, and only those that are fitted by the small slope line remain. Moreover, under positive polarity conditions, the slopes measured at 400 and $500 \mu\text{m}$ (~ 260 and $\sim 266 \Omega$, respectively) are higher than those measured at $d \leq 300 \mu\text{m}$ (240Ω). Under negative polarity conditions, the slopes corresponding to different gap distances are similar ($\sim 240 \Omega$). Finally, the discharges occurring in the reflected pulse and those occurring later in the negative pulse are similar to those generated at $d = 50 \mu\text{m}$.

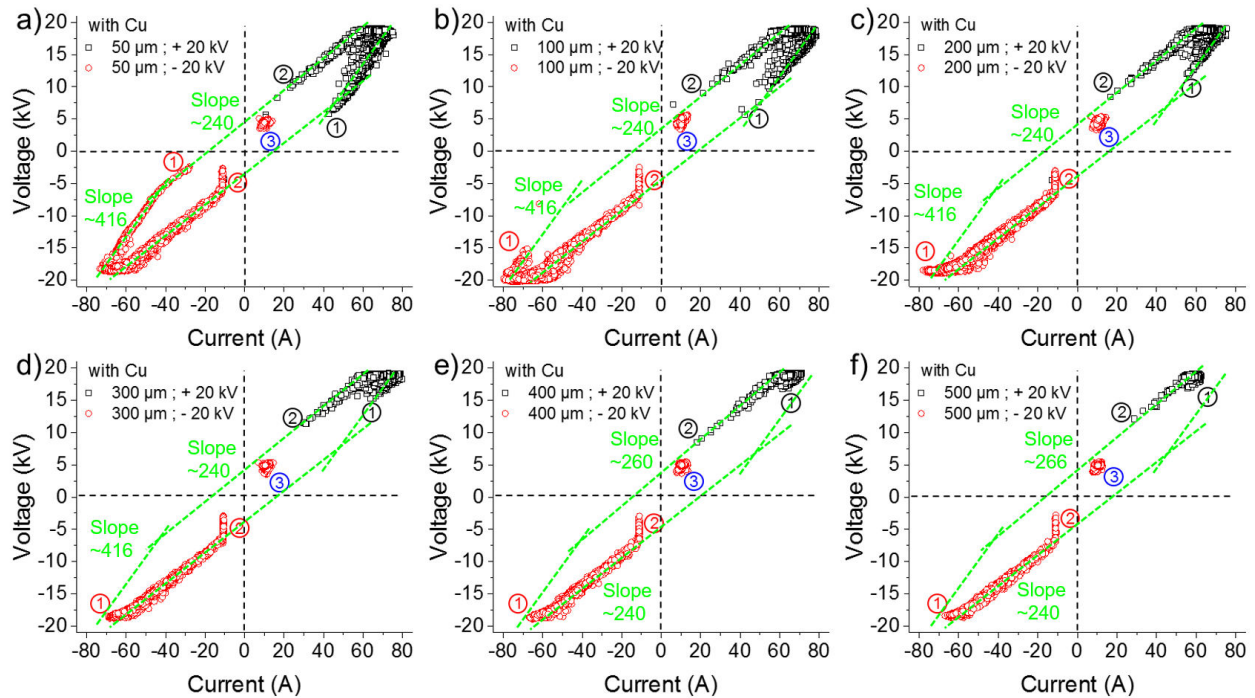


Figure 33. – Voltage-current plots of discharges sustained between Cu electrodes in pin-to-plate configuration, under positive and negative polarity conditions and at (a) $d = 50 \mu\text{m}$, (b) $d = 100 \mu\text{m}$, (c) $d = 200 \mu\text{m}$, (d) $d = 300 \mu\text{m}$, (e) $d = 400 \mu\text{m}$, and (f) $d = 500 \mu\text{m}$.

The discharges generated between W electrodes behave similarly to those produced with Cu. Figure 34 shows the voltage-current plots corresponding to $d = 50$ and $500 \mu\text{m}$. The data points in these plots are also fitted by parallelogram-like profiles, as in the case of Cu, but the measured slopes are slightly different. For instance, at $d = 50 \mu\text{m}$, the slopes are $\sim 250 \Omega$ and 442Ω , compared to 240 and 416Ω , respectively, with Cu. At $d = 500 \mu\text{m}$, the slopes are different from those measured in the case of Cu. Although the slopes under negative polarity are close (~ 240 with Cu vs. 250Ω with W), they are significantly different under positive polarity ($\sim 266 \Omega$ with Cu vs. $\sim 330 \Omega$ with W). Finally, the discharges that occur in the reflected pulse or at the end of the negative pulse seem to be independent of the electrode composition.

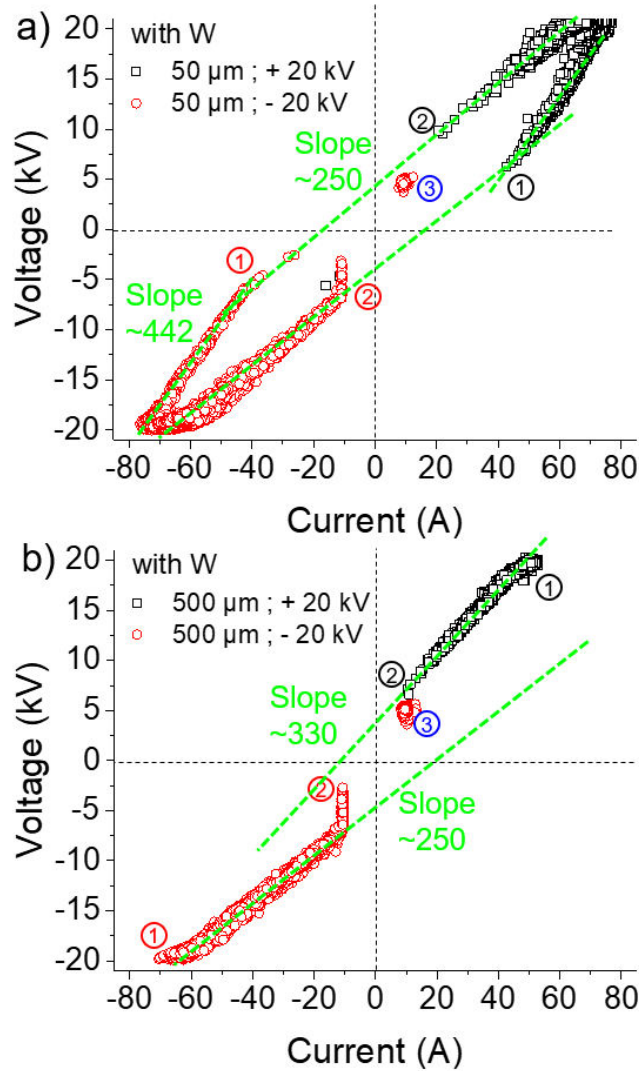


Figure 34. – Voltage-current plots of discharges sustained between W electrodes in pin-to-plate configuration, under positive and negative polarity conditions and at (a) $d = 50 \mu\text{m}$ and (b) $d = 500 \mu\text{m}$.

IV. DISCUSSION

The results presented above indicate that spark discharges in liquid are highly sensitive to voltage polarity, electrode geometry / configuration, and liquid properties. Herein, the effects of successive discharges on electrode geometry and water properties are highlighted. The former effect is related to the erosion of electrodes, whereas the latter is attributed to the generation of nanoparticles [69], as well as to the production of other species in water (e.g. OH,

H₂O₂, and H₃O⁺, among others [70]–[72]. The obtained results demonstrate that the electrical characteristics of discharges vary as a function of discharge number, i.e. they vary due to electrode erosion and the modification of water properties.

Table 2 summarizes the variations in water conductivity (i.e. differences between the values measured at the end of each experiment and the value corresponding to distilled water) measured under different experimental conditions. Based on these summarized values, the occurrence of discharges increases the conductivity of water more under negative polarity than under positive polarity. Moreover, the increase in conductivity is more pronounced when Cu electrodes are used instead of W electrodes. The effect of electrode composition can be related to the number of occurred discharge and to the erosion rate. Finally, the conductivity variation recorded at longer d is lower than that measured at shorter d.

Tableau 2. – Variations in water conductivity (i.e. differences between the values measured at the end of each experiment and the value corresponding to deionized water, i.e. 3 μS/cm) measured under different experimental conditions.

d (μm)	50	100	200	300	400	500
Increase of water conductivity (μS/cm)						
Cu; -20 kV	40	38	33	17	8	11
Cu; +20 kV	25	12	10	12	5	3
W; -20 kV	23	25	29	26	17	11
W; +20 kV	11	9.5	8	9	5	3

At this stage, it becomes clear that there exists a relationship between electrode erosion, water conductivity, and the variation of discharge electrical characteristics, on the one hand, and electrode composition and polarity, on the other hand. For instance, the dependence of the discharge delay on electrode composition is strongly related to the erosion rate, which means that it is related to both, interelectrode gap distance and electrode geometry. As shown in Fig.

35, the first discharges (referred to as (0) in the drawing) will always occur between the anode pin and the cathode surface underneath the pin, irrespective of the nature of the electrodes. This is mainly due to the high electric field. Therefore, these first discharges will rapidly erode the pin and induce an increase in the gap distance. The impact of the first discharges is distributed over a larger surface in the case of Cu than in the case of W, and the anode pin is much more eroded and modified. As such, the roughness of the Cu electrode is expected to be much higher than that of the W electrode, resulting in high electric field regions (pin effect) that promote discharge occurrence at different distances (referred to as (1), (2), and (3) in the Fig. 35). Such 'distance distribution' may explain the homogeneous distribution of discharge delays between 100 and 600 ns (Fig. 29b). Assuming that the initial discharges generated using W electrodes are developed between the sharp anode and the plate cathode, their behavior is expected to be similar to that of the initial discharges produced with Cu (Fig. 29c). However, the non-rough surface and low erosion rate associated with the W electrodes limits the occurrence of discharges at any moment in the pulse. In this case, the majority of discharges occur either at the beginning of the plateau or at longer delays. We believe that the former discharges are generated between the pin and the edge of the impacted region, whereas the latter ones are produced between the pin and the center of the impacted region. When the gap distance becomes relatively long, no more discharges can occur.

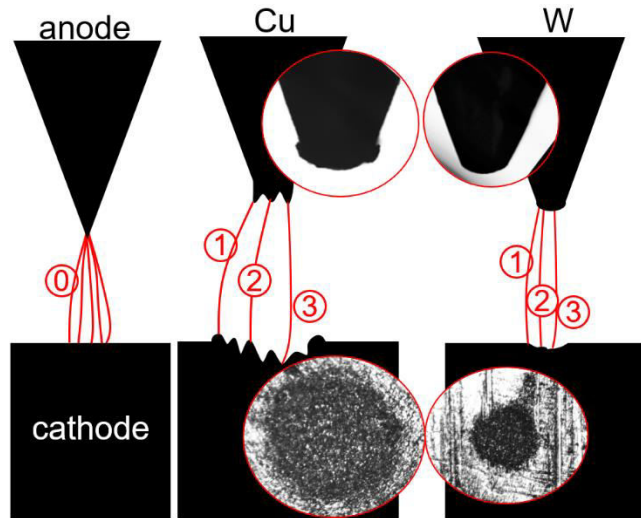


Figure 35. – Drawings showing the different discharges (red lines) that can be generated between unmodified and modified Cu and W electrodes: (0) Initial discharges that occur during the rising period (discharge delay < 100 ns), (1) Subsequent discharges that occur during the rising period (discharge delay < 100 ns), (2) Subsequent discharges that occur during the plateau period (100 ns < delay < 500 ns), (3) Subsequent discharges that occur during the falling period (discharge delay > 500 ns).

The influence of voltage polarity on discharge behavior is significant, and it is probably due to the mechanisms of discharge ignition. Although these mechanisms are not well understood yet, it is assumed that when the anode is pin, the electrons are generated in liquid/bubbles, and they move towards the anode. However, when the cathode is pin, the electrons are generated by charge injection and/or ionization of the liquid/bubbles, and they move towards the anode plate. Therefore, it is much easier and less stochastic to ignite discharges under negative polarity conditions than under positive polarity. This fact is further supported by the high discharge probabilities measured under negative polarity (Fig. 25), as well as by the high number of occurred discharges (Table 1). Therefore, for a given set of conditions, the variation of the discharge delay is strongly related to the erosion-induced increase in gap distance. The fact that the data points are not as dispersed as in the case of positive polarity is possibly related to the high probability of discharge occurrence, which in turn is associated with the progressive increase in gap distance. The transition of discharge probability from 1 to 0 in the case of Cu is not significantly dependent on polarity, and a progressive decrease is noticed.

However, in the case of W, the transition is sharp. This variation is probably due to the roughness of the Cu electrode surface (which can be related to the melting temperature of the electrode and to erosion) and to the pin effect that is expected to be much higher with Cu than with W. In this context, it is worth noting that discharges under different conditions (corona streamer in solution with high electrical conductivity $> 100 \mu\text{S/cm}$) have resulted in opposite behavior, i.e. high roughness for W electrode ([73], [74]). The slope change observed in the case of W (Fig. 30c) can thus be attributed to the transition from the initial discharge mode (noted (0) in Fig. 35) where discharges occur between the sharp pin and the plate underneath, to another mode where discharges occur between the pin and the edge of the impacted area. This hypothesis is further supported by the significant statistical variation in the delay of subsequent discharges (100–300 ns) compared to the first discharges (< 100 ns).

As discussed in Refs. [63] and [74], the slopes of the voltage-current plots represent the average resistance values of the medium filling the gap during the transient period leading to breakdown (several nanoseconds). Within this period, the gap resistance decreases significantly from around $1 \text{ M}\Omega$ (in distilled water) to a few ohms (when the breakdown occurs).³⁶ For both polarity conditions (Fig. 33), the data points in (1) have breakdown voltage magnitudes $< 20 \text{ kV}$, and they represent discharges that occur during the voltage rise period. Meanwhile, the data points in (2) represent discharges that occur during the voltage fall period. At $d = 50 \mu\text{m}$, the slopes of the linear fits of the first and last discharges are similar ($\sim 240 \Omega$ with Cu and $\sim 250 \Omega$ with W), and the discharges that occur in the rising period are characterized by resistance values of $\sim 416 \Omega$ with Cu and $\sim 442 \Omega$ with W. The dependence of resistance on electrode composition can be related to many factors, including the electrode erosion rate (which depends on melting temperature and Young's modulus [74]), work function of Cu ($\sim 5.2 \text{ eV}$), W ($\sim 4.9 \text{ eV}$), and their oxides ($\sim 5 \text{ eV}$ for Cu_2O and $\sim 4.7\text{-}5.5 \text{ eV}$ for CuO [75], and $\sim 7 \text{ eV}$ for WO_3 ([76], [77])), as well as the secondary electron emission of these materials [78]–[81].

For a given set of experimental conditions, the variation of resistance can be used as an indicator of discharge mode (e.g. direct ionization or bubble-assisted ionization), electrode erosion (i.e. progressive increase of the gap distance and modification of the electrode shape), and modification of liquid properties (e.g. increase in electrical conductivity). Considering that

all these parameters change at the same time, it is extremely difficult to draw a clear conclusion regarding the discharge mode. However, the different slopes may be qualitatively interpreted. Based on the recent results reported by Hoffer et al. [64], there will always be microbubbles in the liquid. Therefore, one can assume that the discharge mode will always be assisted by bubbles, and depending on the discharge occurrence moment, the bubble number and/or size may differ. For instance, the similarity of the slopes corresponding to the linear fits of the first and last discharges generated at $d = 50 \mu\text{m}$ (~ 240 and $\sim 250 \Omega$ for Cu and W, respectively) can be related to the presence of air microbubbles that are confined at the electrode surfaces (for the initial discharges) and to bubble development (for later discharges), e.g. by Joule heating and/or electrolysis-like processes, due to the long term (several hundreds of nanoseconds) application of an electric field. After ejection of the confined bubbles due to discharge and shock waves, the slopes corresponding to subsequent discharges increase (~ 416 and $\sim 442 \Omega$ for Cu and W, respectively) until the plateau period is reached.

The increase in breakdown voltage at higher gap distances induces a shift in the voltage-current plot. The first several discharges are directly aligned with the linear profile that has a higher slope (Figs. 33b and 33c). This is probably due to the fact that the diameters of the confined microbubbles at the electrode surface are significantly smaller than d . Therefore, only these discharges (with higher slope) may occur before reaching the plateau. As for the discharges occurring in the falling period, they are aligned with the linear profile that has a smaller slope. Such discharges are supposed to be assisted by bubble formation due to the long-term application of an electric field. Interestingly, the resistance values corresponding to discharges generated under negative polarity remain unchanged if d is increased. This demonstrates that the ignition of negative discharges is independent of d (within the tested range), unlike positive discharges. In general, the dependence of discharge ignition on d is influenced by the modification of water conductivity, which in turn is related to the number of occurred discharge (Tables 2).

V. SUMMARY AND CONCLUSIONS

This study investigates the electrical characteristics evolution of consecutive spark discharges generated in water between Cu or W electrodes, under varying conditions of voltage polarity (± 20 kV), interelectrode gap distance (50–500 μm), and electrode composition, using a pin-to-plate electrode configuration. The voltage and current waveforms of all occurring discharges are recorded until the discharges automatically stopped, and the recorded data are processed to determine several characteristics, including probability of discharge occurrence, breakdown voltage, discharge current, discharge delay, injected charge, and injected energy. The main findings are summarized below:

a) The probability of discharge occurrence depends on d and on electrode composition. The influence of voltage polarity in the case of W is more pronounced than in the case of Cu.

b) At short d , the discharges occur earlier in the pulse (during the rising period), then during the plateau, and finally in the falling period. The data points corresponding to discharges that occur in the rising period exhibit a narrow distribution; however, the subsequent ones are widely dispersed. The dispersion of data points depends on electrode composition, as well as on voltage polarity, and the ones obtained under negative polarity are less dispersed than those obtained under positive polarity.

c) Electrode erosion also depends on d , voltage polarity, and electrode composition. Specifically, the erosion rate of the pin electrode is greater at shorter d , positive polarity, and with Cu electrodes. However, the diameter of the impacted area on the plate electrode surface is larger when a negative voltage is applied.

d) Under negative polarity conditions, when discharges do not occur during the pulse, a reflected positive pulse (~ 5 kV) that induces discharge is observed. The induced discharges are all similar, and their occurrence is attributed to the formation of low-density regions (bubbles) due to the application of a strong electric field and / or electron injection at the cathode pin. The latter phenomenon is confirmed by the observation of similar discharges in the reflected negative pulse produced using a plate-to-pin electrode configuration and positive voltage polarity.

e) The breakdown voltage-discharge current plot also depends on discharge parameters. Interestingly, the data points of positive and negative discharges plotted on the same graph can be fitted by linear profiles. The slopes of these lines (i.e. resistances) are related to different ignition mechanisms. Under negative polarity conditions, the measured slopes are independent of d , but under positive polarity, the slopes depend on d as well as on the electrode composition. The slope values are also correlated with the discharge-induced modification of water electrical conductivity.

The findings reported herein are of interest for applications that make use of repetitive discharges that induce a change in electrode geometry / gap distance. These applications include electrical discharge machining and synthesis of nanoparticles by in-liquid discharges.

ACKNOWLEDGEMENTS

The research reported in this publication was financially supported by the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC), under award number RGPIN-2018-04869. The authors thank the Fonds de Recherche du Québec – Nature et Technologie (FRQ-NT) and the Canada Foundation for Innovation (CFI) for funding the research infrastructure.

AUTHOR DECLARATIONS

Conflict of Interest

The authors have no conflicts to disclose.

Chapitre 3 – Influence du champ magnétique sur des décharges Sparks dans un liquide diélectrique

Article publié dans Journal of Applied Physics

<https://doi.org/10.1063/5.0122129>

Ce chapitre présente les résultats d'études statistiques effectuées sur des décharges Sparks successives dans l'eau déionisée afin d'étudier l'influence d'un champ magnétique externe sur le comportement des décharges. Les décharges ont été effectuées en configuration pointe-plan et à faible fréquence (3Hz). Le champ magnétique a été généré à l'aide d'aimants permanents en NdFeB. Trois configurations d'aimants ont été étudiées pour dans un premier temps étudier l'effet de l'orientation du champ magnétique par rapport à l'axe des électrodes (équivalent à la direction du champ électrique). Les trois configurations sont les suivantes : l'aimant génère un champ magnétique parallèle à l'axe des électrodes ($B //$), l'aimant génère un champ magnétique perpendiculaire à l'axe des électrodes et une configuration référence sans aimant. Deux matériaux ont été choisis pour les électrodes pour leur comportement magnétique différent : le tungstène (paramagnétique, faible susceptibilité magnétique) et le nickel (ferromagnétique, forte susceptibilité magnétique).

Pour chaque configuration et matériaux étudiés, 5000 décharges sont effectuées ensuite les données courant-tension de chaque décharge et des photographies des électrodes sont relevées. Un diagnostic par Spectroscopie d'Émission Optique (OES) des décharges vient compléter les prises de mesure.

Les expériences, le traitement de données et l'analyse des résultats ont été réalisés par Korentin Géraud. Les co-auteurs ont participé à l'analyse des résultats, à la rédaction et à la révision de l'article.

Influence of B-field on the characteristics of pulsed spark discharges in water

Korentin Geraud¹, Flavien Valensi², and Ahmad Hamdan^{1,*}

¹ Groupe de physique des plasmas, Département de Physique, Université de Montréal, 1375 Avenue Thérèse-Lavoie-Roux, Montréal, H2V 0B3, Québec, Canada

² LAPLACE (Laboratoire Plasma et Conversion d'Énergie), Université de Toulouse, 118 route de Narbonne, F-31062 Toulouse Cedex 9, France

*corresponding author. Email: ahmad.hamdan@umontreal.ca

Keywords: discharge in water, magnetic field, plasma confinement, statistical analysis, electrical characteristics, electrode erosion.

ABSTRACT

Spark discharges in water have great potential for use in various technological fields, including pollutant degradation, precision micromachining, and nanomaterial production. However, the large-scale application of these discharges is limited by the complexity of the implicated physical and chemical phenomena, which cannot be easily controlled. In this study, we assess the effect of an external B-field on the electrical characteristics of multiple successive discharges, as well as on the erosion of the electrode. In addition to the $B = 0$ condition, two configurations of B-field are investigated: B-parallel and B-perpendicular to the electrode axis, both at the magnitude of 125 mT. The obtained results demonstrate that discharge electrical characteristics and electrode erosion are significantly affected by the B-field. Using a W electrode, the highest and lowest discharge currents are measured in the case of B-perpendicular and $B = 0$, respectively. Meanwhile, the highest erosion volume is obtained in the case of $B = 0$. To assess the influence of electrode nature and magnetic properties on the discharges, the results obtained using W (paramagnetic) electrodes were compared to those obtained with Ni (ferromagnetic). The comparison shows that the discharge electrical data are tightly distributed when Ni electrode is utilized, regardless the B-condition, whereas the data obtained with W electrode exhibits significant statistical variations in the presence of B-field. Overall, the data reported herein indicates that the electrical properties of a spark discharge may be varied and controlled by applying an external B-field.

1. INTRODUCTION

In-liquid discharges constitute a longstanding research subject, with the first study conducted over a century ago [50] in the context of electrotechnical applications. In-liquid discharges are currently applied in many fields, particularly electrical discharge machining (EDM) [51], [82], [83] and synthesis of nanomaterials [84], [85]. Notably, these discharges can be sustained in different modes, including streamer [54], spark [86], and arc [87]. The unique properties of in-liquid spark discharge, such as instantaneous high pressure (tens of bar) and high temperature (thousands of Kelvin), render it highly attractive for the above-mentioned applications. Indeed, these discharges have great potential for use in nanomaterial synthesis due to their simple setup configuration and high production rate (\sim mg/min) [88]. However, more research is needed to enable the control of underlying phenomena so that particles of a specific size distribution may be produced [89]. Currently, the particles synthesized by in-liquid spark discharges exhibit wide size distributions, which limits the development of large-scale applications. Spark discharges in liquid are also applied in the machining of many materials, including the hardest ones, with (sub-) micrometer precision [90]. In such applications, plasma-surface interactions play an extremely important role [22], especially considering the numerous physical and chemical phenomena occurring in a reduced space (\sim tens of μm^2) and within short time ($\sim\mu\text{s}$). Therefore, a fundamental understanding of these interactions is needed to further develop the discharge assisted EDM process on large scale.

To easily control plasma-surface interactions, several attempts have been proposed. For instance, one of these attempts aimed reducing the plasma size. Specifically, atomic force microscope was used to finely control the gap distance at the nanoscale (i.e. nano-EDM) [91]. The effect of electrical power supply (i.e. modulation of the voltage-current waveforms) on the discharge properties and interactions has also been assessed [92]. Recently, a new interesting approach has been proposed to control the discharge, and it is based on the application of an external magnetic B-field across the gap. Xing et al. [93], [94] have investigated the influence of transverse and parallel B-field on the formation of carbon nanomaterials by discharge in water, and they have shown that novel carbon nanostructures are synthesized when a parallel B-field is applied. Moreover, the application of B-field in parallel orientation improves the purity and

quality of the multi-walled carbon nanotubes deposited at the cathode. Conversely, the material synthesized in the presence of a transverse B-field is curled carbon nanotubes. These results clearly indicate that B-field application has a significant effect on the discharge mechanism and type of nanomaterial synthesized.

The effect of B-field on machining precision in EDM applications has also been examined. De Bruijn [95], Lin [96], and Gholipour et al. [97] have shown that the inter-electrode space is effectively cleaned from debris when a B-field is applied across the gap. Moreover, recent studies demonstrate that the application of B-field increases the material removal rate, while decreasing the surface roughness and number of surface cracks. In a study conducted by Govindan et al. [38], it was shown that B-field application reduces the diameter and increases the depth of the crater formed by a single spark discharge. The effects of B-field on plasma confinement, electron mean free path, and ionization degree of the medium (i.e. production of electrons) have been estimated using an analytical model developed by the authors. Finally, Zhang [39] and Shabgard et al. [41] show that the application of a B-field reduces the diameter of the plasma channel and increases the energy density.

This study investigates the influence of B-field on the electrical characteristics of single spark discharges in water. The discharges are produced by pulsed nanosecond high-voltage, whereas the B-field is applied using magnets. The magnitude of the B-field is 125 mT, and its orientation relative to the electrode axis is either parallel or perpendicular. The electrical characteristics corresponding to the case of $B = 0$ are also determined for comparison. Finally, the influence of electrode nature, particularly its magnetic properties, on the discharge is investigated by using sets of Ni (ferromagnetic) or W (paramagnetic) electrodes.

2. EXPERIMENTAL SETUP

As shown in Figure 36a, the experimental setup is composed of two tungsten (W) or two nickel (Ni) electrodes (2 mm diameter, 99.99% purity; Goodfellow) that are vertically mounted on a micrometer positioning system to allow for the fine adjustment of the initial interelectrode gap distance ($\pm 5 \mu\text{m}$). In this study, all experiments were performed at the constant initial distance of $100 \mu\text{m}$, and the electrodes were polished to fit the desired pin-to-plate configuration, with a

pin curvature radius of $\sim 45^\circ$, using an electrode sharpener grinder angle controller. The polished electrodes are placed in a cylindrical quartz cell (length = 4.5 cm, inner diameter = 4 mm, and outer diameter = 6 mm) that is filled with 2 mL of deionized water (initial electrical conductivity of $\sim 3 \mu\text{S}/\text{cm}$). The upper pin electrode is connected to a pulsed positive polarity power source (NSP 120-20-P-500-TG-H; Eagle Harbor Technologies) that supplies a voltage with adjustable amplitude and pulse width. The discharges investigated in this study were generated at the magnitude of 20 kV, pulse width of 500 ns, and pulse repetition rate of 3 Hz.

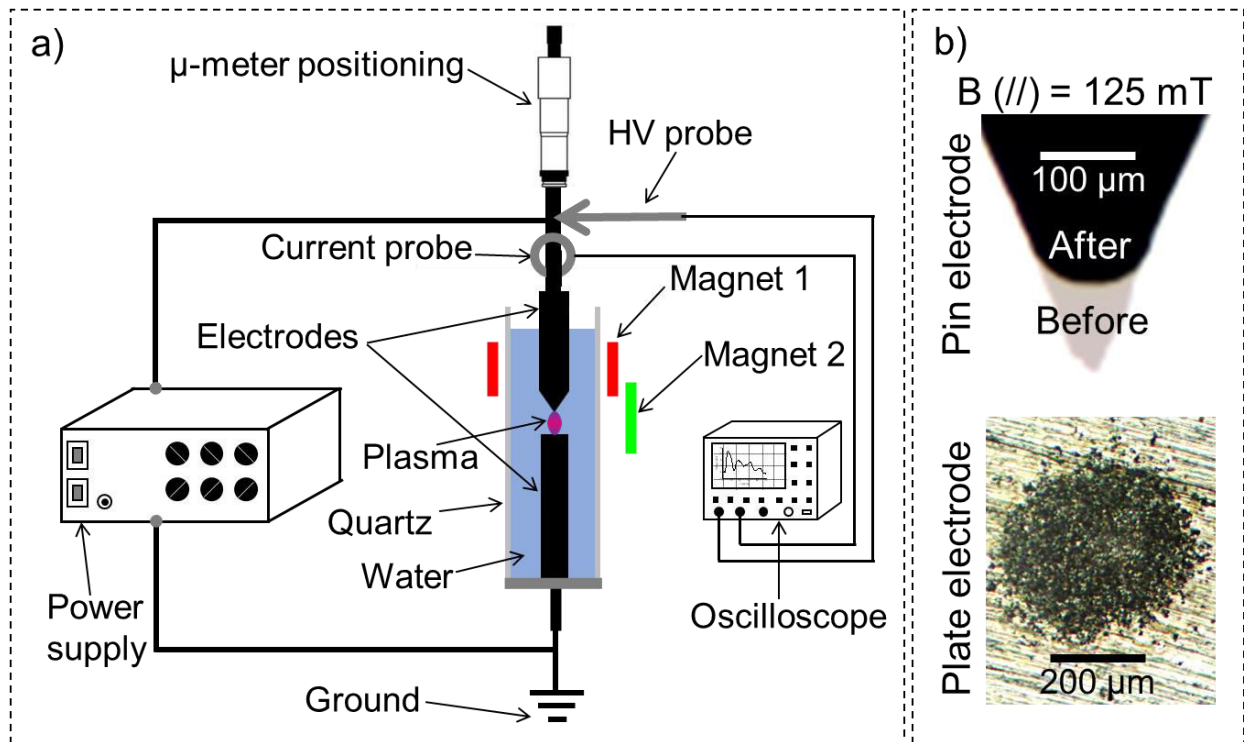


Figure 36. – a) Scheme of the experimental setup. b) Superimposed images of W electrode tips showing their modification after 5000 discharges; the impacted area on the plate electrode is also shown.

A high-voltage probe (P6015A, $\times 1000$; Tektronix) and a current monitor (6585, 0.5 V/A; Pearson) were used to measure the voltage and current waveforms of the discharge generated between the two electrodes, respectively. The voltage and current waveforms of each discharge were acquired using an oscilloscope (MSO54, 2 GHz, 6.25 GS/s; Tektronix). At each investigated condition, the discharges were run after pre-setting the parameters (electrodes, voltage, and distance), and the waveforms were acquired continuously for 5000 discharges.

The influence of the B-field on the behavior of discharges was assessed using two configurations of NdFeB magnets (K&J Magnetics): i) cylindrical magnet (inner diameter = 1/2 inch (1.27 cm), outer diameter = 1 inch (2.54 cm), height = 1 inch (2.54 cm)) positioned around the quartz cell and ii) rectangular cuboid magnet (1/2 inch (1.27 cm) × 1/4 inch (0.63 cm) × 1/8 inch (0.32 cm)) placed near the electrode. For both configurations, the B-field intensity in the inter-electrode space was determined by simulation using the FEMM (Finite Element Methods Magnetics) software developed by D. Meeker [98]. Maps of the B-fields generated by magnets 1 and 2 are shown in Figures 37a and 37b, respectively. The position of each magnet with respect to the electrodes was chosen such that a ~ 125 mT B-field is obtained at the pin anode. With magnet 1, the field lines are parallel ($B \parallel$) to the electrode axis, whereas with magnet 2, they are perpendicular ($B \perp$). The extracted line profiles of the B-field along the gap are plotted in Figure 37c. Although the value of the B-field at the pin electrode is similar (~ 125 mT) for both magnets, the B-field generated by magnet 2 is rather constant along the gap, while that generated by magnet 1 decreases linearly from ~ 125 mT at the pin electrode to ~ 90 mT at the plate electrode.

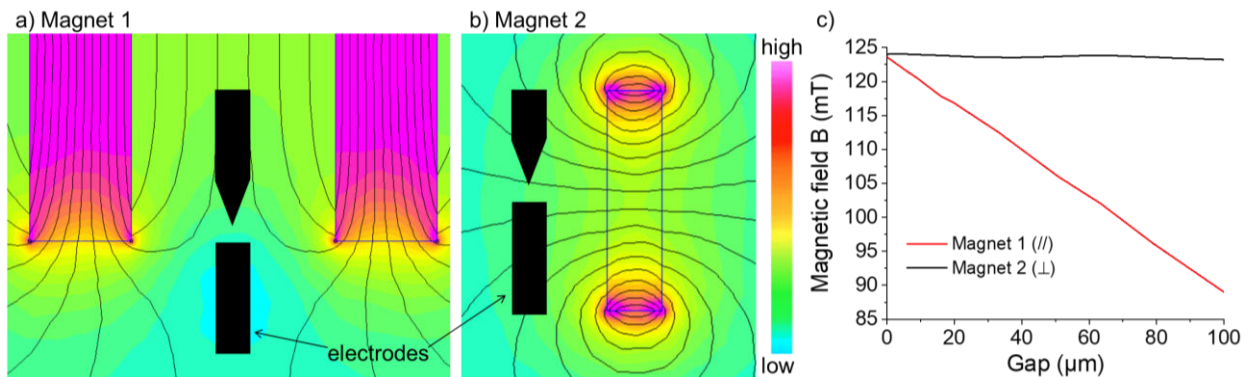


Figure 37. – FEMM (Finite Element Methods Magnetics) simulation of the B-field with a) magnet 1 and b) magnet 2. c) Line profiles of the B-field along the gap, as extracted from a) and b).

3. RESULTS

3.1. Influence of the B-field and its orientation

Figure 38 presents typical voltage and current waveforms corresponding to discharges with W electrode under $B = 0$, B-parallel, and B-perpendicular conditions; waveforms of non-occurred discharges are also added for comparison purpose. In general, the waveforms obtained under the three conditions are similar, as they all exhibit a voltage drop and current peaks at the moment corresponding to breakdown, followed by oscillations. Magnification of the pre-breakdown period ($t < 40\text{--}50$ ns) shows that the voltage values of an occurred discharge are slightly smaller than those of a non-occurred one, while the current values are slightly higher. Such difference is related to charge injection in the pre-breakdown phase. In the breakdown period, the voltage drops and the current peaks, then both parameters oscillate, with different oscillation observed under different B-field conditions. Considering that the breakdown period corresponds to the ignition and initial stage of discharge establishment, it seems that the B-field influences the discharge dynamics. In the post-breakdown period ($\sim 100\text{--}500$ ns), the amplitudes of voltage and current oscillations are slightly dependent on the B-field conditions (lowest with $B = 0$ and highest with B-perpendicular).

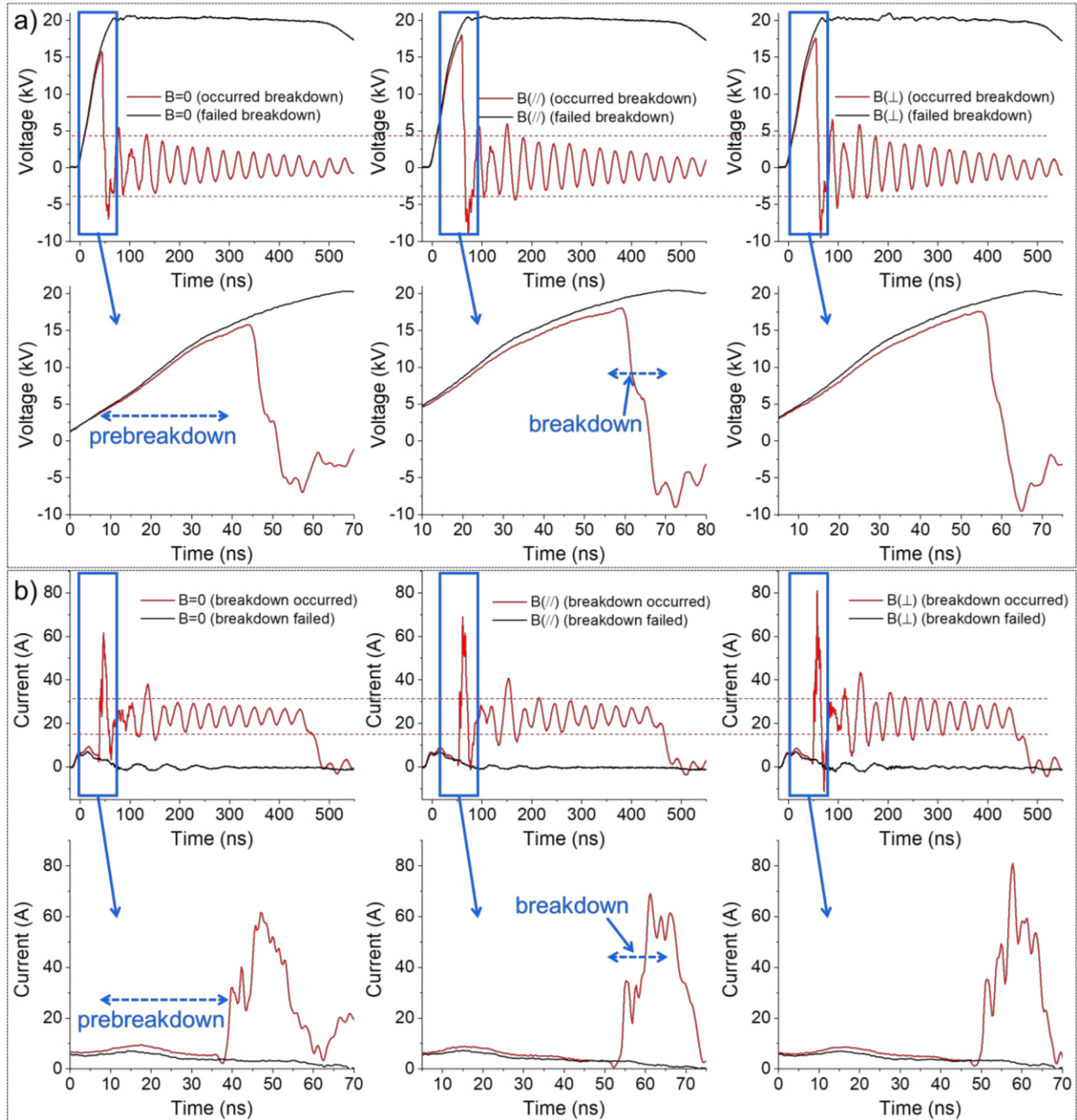


Figure 38. – . a) Voltage and b) current waveforms of typical occurred and failed discharges ignited between two W electrodes immersed in water under different conditions of B-field.

The recorded waveforms of the 5000 initial discharges were processed using a previously developed algorithm [63] that detects the breakdown moment and reports the breakdown voltage (V_{bd}), discharge delay, discharge current (peak value), and injected charge (time integration of the current) corresponding to each discharge. The variation profiles of these

parameters as a function of discharge number are presented in Figures 39–42 and discussed below.

Figure 39 shows the raw data of V_{bd} and discharge current (peak value) variation as a function of discharge number, as well as the averaged profiles of 10-successive discharges, at $B = 0$, B-parallel, and B-perpendicular conditions. Clearly, the first discharges occur at relatively low V_{bd} (< 10 kV), due to the short initial interelectrode distance ($100 \mu\text{m}$). As the discharges go on, V_{bd} increases to reach ~ 19 kV, which is slightly smaller than the plateau value of 20 kV. The increase in V_{bd} is attributed to the increase in gap distance during the process, as well as to the modification of the pin shape, both induced by erosion. Moreover, the rate of V_{bd} increase depends on the B-field condition, with the fastest increase observed for the B-parallel condition. Notably, a decrease in V_{bd} by a few kV is detected in the plateau period towards the end of processing. Such decrease is related to the augmentation of water conductivity due to productions of ionic species and (nano-) particles in solution [99].

The discharge current profiles shown in Figure 39b are similar to the voltage profiles; however, unlike voltage, the current (peak) values are highly dependent on the B-field condition. For instance, the highest current measured in the case of $B = 0$ is ~ 70 A, compared to ~ 75 and ~ 90 A with B-parallel and B-perpendicular, respectively.

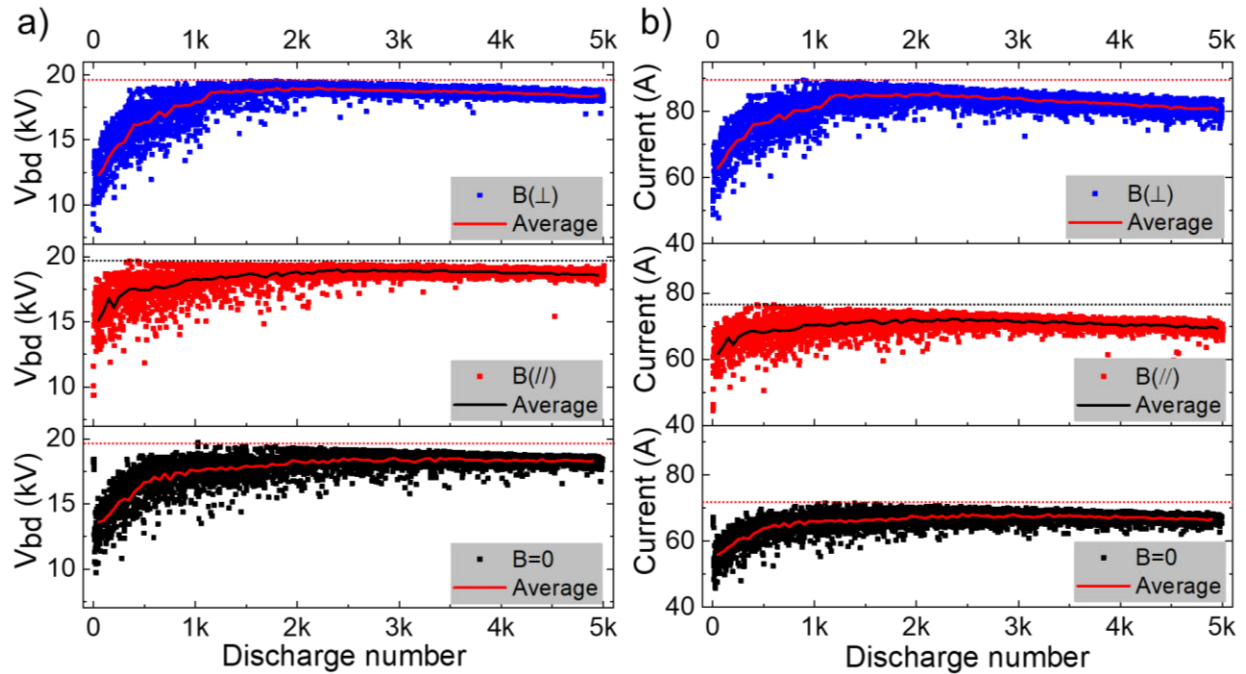


Figure 39. – Variation of (a) breakdown voltage and (b) discharge current (peak value) as a function of discharge number for discharges generated between two W electrodes immersed in water under different conditions of B-field.

As in references [63], [68], [99], the voltage-current plots of discharges generated under different conditions could be used as indicator of the discharge ignition mode. The plots constructed herein (Figure 40) reveal that the datapoints corresponding to initial and final discharges are aligned along two linear profiles that have different slopes. Moreover, the slope values, which are equivalent to resistance, vary depending on the B-field condition. In the case of $B = 0$, B-parallel, and B-perpendicular, the slopes of the lines fitting the initial/final datapoints are $\sim 385/180$, $\sim 350/85$, and $\sim 300/60 \Omega$, respectively. Considering that the resistance values (slope values) measured at the beginning and at the end of discharge processing period are different suggest that the ignition modes of these discharges are different. In addition, since the slope values depend on the application and orientation of the B-field, particularly the B-perpendicular field that yields the lowest resistance values ($\sim 300 \Omega$) among the investigated conditions, one deduces that B-field has a strong influence on the discharge ignition mode.

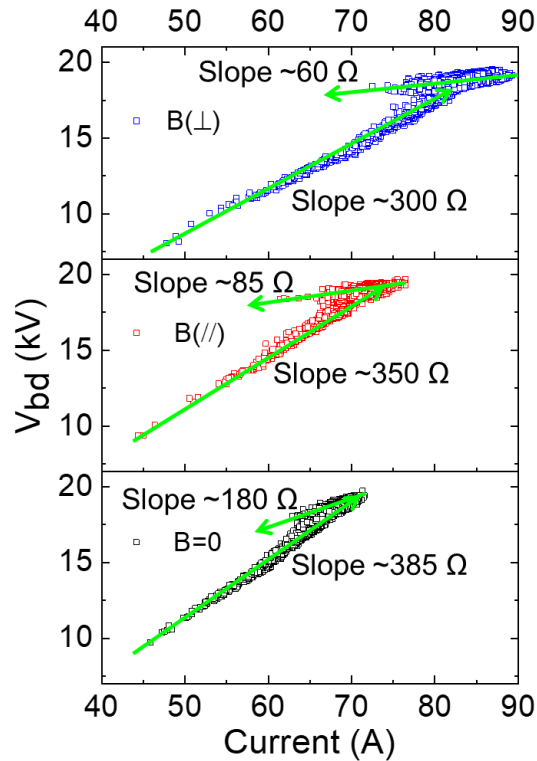


Figure 40. – Voltage-current plots of discharges sustained between W electrodes under different conditions of B-field.

As shown in Figure 41, the variation of discharge delay as a function of discharge number exhibits strong dependence on the B-field. In the absence of B-field, the first ~ 2000 discharges exhibit relatively short discharge delay (average < 100 ns), which indicates that these discharges occur early in the pulse (i.e. in the rising period). The delays of the subsequent discharges vary between ~ 50 and 350 ns, but the majority have delays less than 150 ns. In the presence of B-field, the measured delay times are highly dispersed. In the case of B-perpendicular, the first ~ 1000 discharges exhibit relatively short delay (< 100 ns), meaning that they occur in the rising period of the pulse. The subsequent discharges are characterized by delays that statistically vary between ~ 50 and 400 ns. Notably, under B-parallel condition, the delays of all discharges exhibit significant variation, with greater variation observed for the last discharges compared to the first ones.

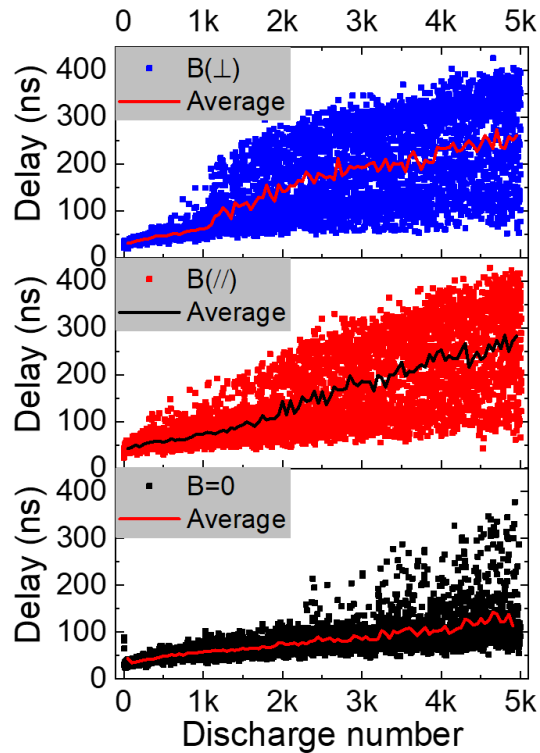


Figure 41. – Variation of discharge delay as a function of discharge number for discharges generated between two W electrodes immersed in water under different conditions of B-field.

Figure 42 depicts the plots of injected charge variation as a function of discharge number, and it shows that the initial discharges generated under different B-field conditions exhibit comparable injected charge values ($\sim 10\text{--}11 \mu\text{C}$). Moreover, the injected charge decreases with increasing number of discharges, irrespective of the B-field conditions. In the case of $B = 0$, the injected charge data corresponding to the first ~ 2000 discharges are less dispersed than those of subsequent discharges. A similar trend of dispersion is observed under B-parallel and B-perpendicular conditions; however, the data is more significantly dispersed in the presence of the B-field than in the absence of it. Considering that the current data corresponding to individual discharges are not highly dispersed, the dispersion of injected charge values must be attributed to the dispersion of discharge delay. This suggests that the injected charge and delay of the discharges generated herein are greatly correlated (See Figure 46 in Supplementary Material).

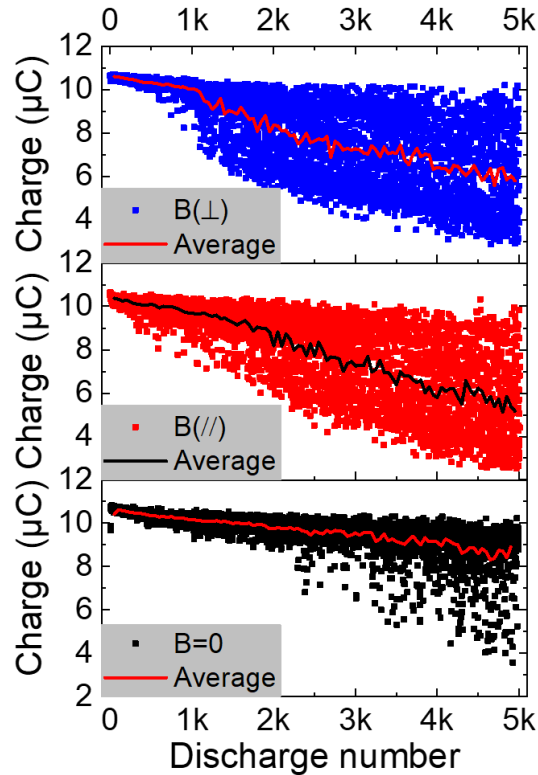


Figure 42. – Variation of injected charge as a function of discharge number for discharges generated between two W electrodes immersed in water under different conditions of B-field.

3.2. Influence of the electrode material: Ni vs. W

To assess the influence of electrode material on the electrical characteristics of discharges ignited in the presence or absence of B-field, the experiments detailed above were repeated with Ni electrode instead of W. As shown in Figure 43, the voltage and current waveforms obtained with Ni are quite different from those acquired with W, irrespective of the B-field condition, which indicates that the electrode nature has a significant effect on discharge characteristics. The V_{bd} values of the first ~ 3000 discharges achieved with Ni electrodes are lower than those of the same discharges ignited between W electrodes (Figure 43a). However, the subsequent discharges exhibit relatively similar V_{bd} . Notably, the dispersion of V_{bd} data obtained at $B = 0$ is similar to that obtained in the presence of B-perpendicular, but the distribution of datapoints under B-parallel condition is different. Indeed, with B-parallel, the initial values are relatively higher than those detected in other cases, and the statistical variations are wider. In terms of statistical variation, the trends of discharge current measured

under different B-field conditions are similar to those of V_{bd} . However, the values acquired with Ni electrodes are quite different from those acquired with W electrodes (Figure 43b). The discharge delay values measured with Ni electrodes are also different from those measured with W electrodes, regardless of the B-field condition (Figure 8c). When Ni electrodes are used, the delays remain relatively short (< 75 ns), with very tight distribution. Notably, in the case of $B = 0$, the delay data acquired with Ni are similar to those acquired with W.

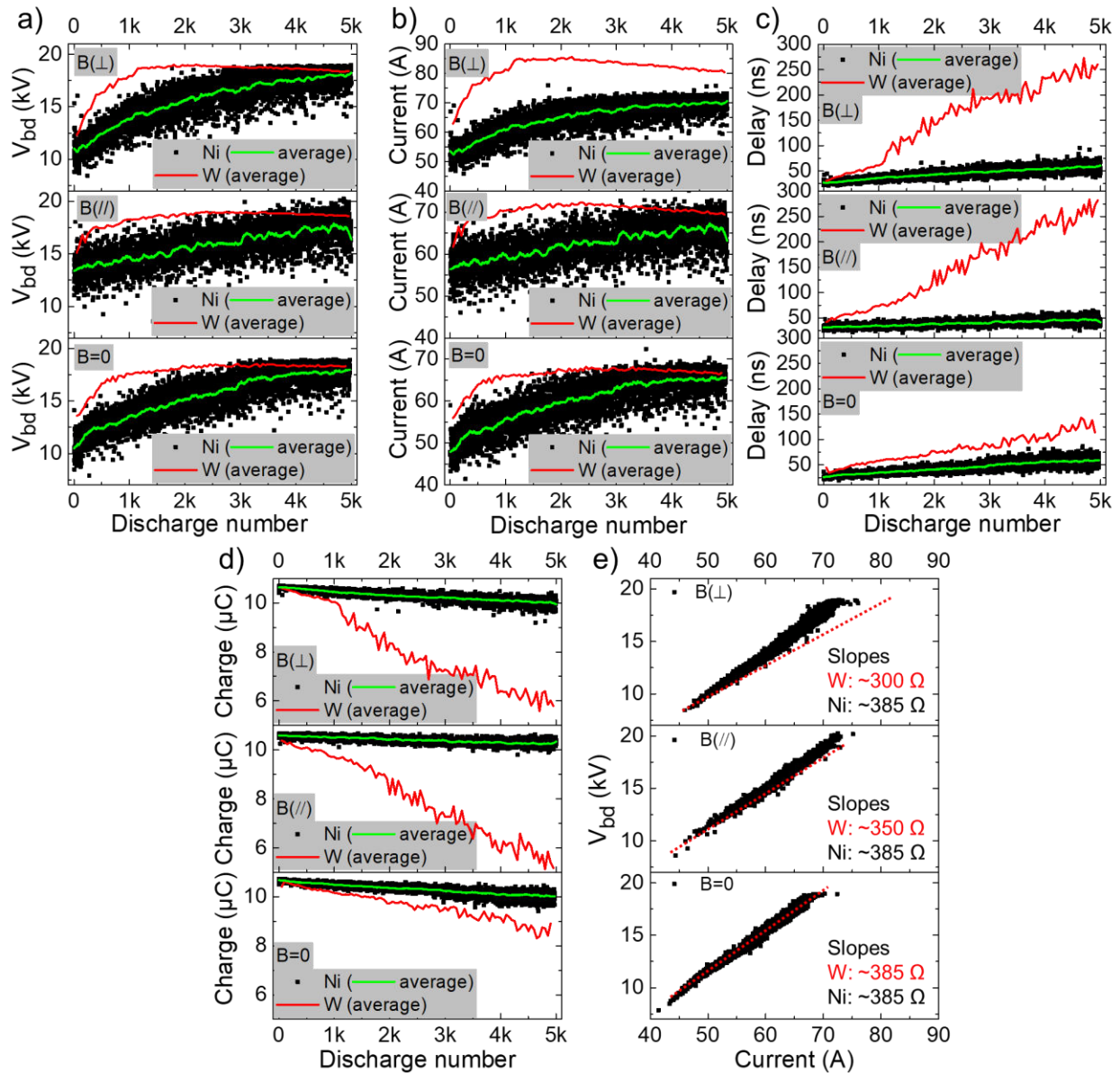


Figure 43. – Variation of a) breakdown voltage, b) discharge current (peak value), c) discharge delay, and d) injected charge as a function of discharge number for discharges generated in

between two W or two Ni electrodes immersed in water under different conditions of B-field. In the case of W electrodes, only average data are shown so as not to charge the figure. e) Voltage-current plots of discharges sustained between Ni electrodes under $B = 0$, B-parallel, and B-perpendicular conditions. The slopes obtained with the W electrodes are added to the figure for comparison.

As shown in Figure 43d, the initial values of injected charge obtained with Ni electrodes ($\sim 10.5 \mu\text{C}$) are similar to those acquired with W electrodes, irrespective of the B-field condition. However, unlike the case with W electrodes, the injected charge with Ni remains relatively high ($> 10 \mu\text{C}$) and insensitive to the B-field. This result is expected since the injected charge accounts for the discharge current and the discharge delay. Although the discharge current (peak value) varies during discharges, the delay remains short ($< 75 \text{ ns}$), resulting in no significant decrease in the injected charge throughout the experiment.

Finally, the voltage-current plots presented in Figure 43e demonstrate that under B-perpendicular condition, the slope of the linear fit of datapoints acquired with Ni electrodes is significantly different from that of the linear fit of data obtained with W electrodes (~ 385 vs. 300Ω).

4. DISCUSSION

In this section, we discuss the effects of the B-field orientation (comparison between $B = 0$, B-parallel, and B-perpendicular cases) and electrode chemical nature (Ni vs. W) on discharge characteristics. The major differences observed while processing the experimental data acquired under various experimental conditions are summarized in Table 3. The volume of the material eroded from the pin electrode and the diameter of the impacted area on the plate electrode are also reported in the table.

Tableau 3. – Summary of the major differences observed while processing the experimental data acquired with W or Ni electrodes under various experimental conditions of B-field.

	electrode	B = 0	B (//) = 125 mT	B (⊥) = 125 mT
(highest) Discharge current (A)	W	70	75	90
	Ni	70	75	75
Discharge delay	W	Short (< 200 ns) and data tightly distributed	Statistical variation between 50 and 400 ns	Statistical variation between 50 and 400 ns
	Ni	Short (< 75 ns) and data tightly distributed		
Eroded volume ($10^6 \mu\text{m}^3$)	W	~4.7	~3.1	~2.5
	Ni	~6.2	~3.3	~3.0
Impacted area diameter (μm)	W	~510	~430	~490
	Ni	~500	~440	~450

4.1. Influence of the B-field orientation: B = 0 vs. B-parallel vs. B-perpendicular

The scheme presented in Figure 44 facilitates the interpretation of data by showing the direction of the electric and Lorentz's forces close to the pin anode for all three -field conditions: B = 0, B-parallel, and B-perpendicular. In the absence of B-field (B = 0), the discharge is ignited under the action of the E-field only (Figure 44a). Although the ignition mechanism is

not well understood, one can presume that under the conditions investigated herein, ignition is facilitated by the formation of low-density regions (e.g. microbubbles created by previous discharges) close to the anode pin. The slopes in the voltage-current plots may provide insight into the ignition mechanisms. Indeed, as proposed in [63], the slope value represents the average resistance of the plasma channel during the breakdown period (few ns). When no B-field is applied, the resistance values of the initial and final discharges are ~ 385 and 180Ω , respectively. Regardless of the implication of these values, they may be considered as reference values for comparison with the data obtained with B-field to determine its role.

At comparable V_{bd} (e.g. 17.5 kV), the discharge current is lowest (~ 65 A) under $B = 0$ condition and highest (~ 80 A) under B-perpendicular condition. The increase in discharge current upon applying a B-field is certainly due to the ionization enhancement effect of this field. The Lorentz force induced by B-field is $q\vec{v} \times \vec{B}$, and it depends on the relative directions of \vec{B} and \vec{v} (Figures 44b and 44c). The direction of electrons close to the pin electrode is either on-axis or off-axis. In the case of B-perpendicular, on-axis and off-axis electrons (except for the perpendicular one) are both influenced by Lorentz's force, while in the case of B-parallel, only the off-axis electrons are affected by this force. Such difference may be attributed to the effect of the ionization process (e.g. electron impact) and thus, the number of the electrons produced. The production of electrons in the plasma may be assessed by measuring the discharge current (i.e. flux of the current density), which depends on the number and velocity of electrons. This means that an increase in discharge current may be related to an increase in electron energy or electron number (or both). Govindan et al. [38] have clearly shown that in dry EDM, the application of a B-field enhances ionization, thereby increasing the number of charge carriers (electrons).

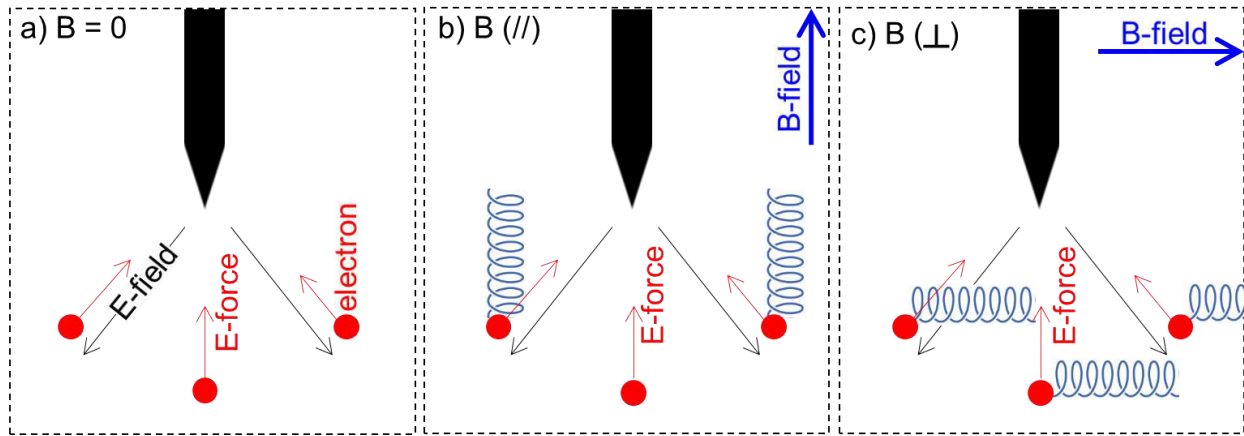


Figure 44. – Scheme showing the forces applied to charges close to the pin anode under different B-field conditions.

Based on the obtained results, the highest and lowest electrode erosion rate are measured under $B = 0$ and B-perpendicular conditions, respectively. Seemingly, these results are not consistent with the measurement of highest discharge current under B-perpendicular condition. However, the current trend discussed earlier corresponds to the instantaneous current (peak value) only, while erosion lasts throughout the discharge process. Moreover, since the current depends on charge number and/or velocity, it may be that the electrons (at least a fraction of them) produced during breakdown in the case of B-perpendicular are less energetic than those produced at $B=0$ or B-parallel, resulting in less erosion [38]. This also explains the ignition delay results, wherein the delays measured in the case of $B = 0$ are relatively short (i.e. discharges have occurred early in the pulse) and less dispersed compared to those measured in the presence of B-field. Therefore, discharge occurrence becomes more stochastic when B-field is applied, probably due to the perturbation of electrons by the Lorentz force. Indeed, instead of being directed towards the anode pin, as in the case of $B = 0$, the electrons produced under B-field undergo deviations before reaching the anode, which delays the breakdown, reduces the energy of the electrons, and disfavors erosion. Similarly, the application of B-field diminishes the impacted area at the cathode surface by reducing the erosion of the anode pin, which keeps the gap distance relatively short and thus, minimizes discharge divergence. Moreover, the B-field induces plasma confinement, i.e. reduces the diameter of the plasma, as observed in dry EDM [39], [41]. In general, researchers have reported that B-field application increases the impact

depth and reduces the impact diameter of discharges on metal electrodes. Herein, the depth of the impacted area has not been measured.

To further address the influence of B-field on the plasma kinetics, the emission spectra of the discharge were recorded under $B = 0$ and B-perpendicular conditions at 50 ns (Figure 45a) and 1 μ s (Figure 45b) exposure time. Considering that the acquisition (fiber position, ICCD parameters, etc.) and discharge conditions (only discharges with delays of 70 ± 20 ns were included in the average of 10 spectra) were controlled during the experiment, the emission intensity measured herein is a reliable parameter. As shown in Figure 45, the intensities of the emission spectra acquired in the presence of a perpendicularly oriented B-field are much higher than those of the spectra acquired in the absence of a B-field. Interestingly, the emission intensity is directly proportional to the atom density in the upper level. For instance, in the case of the H α line at 656.3 nm, which corresponds to the transition from $n = 3$ to $n = 2$, the emission intensity is proportional to the density of H($n = 3$) atoms. Despite the fact that this level can be populated through different schemes [100] (e.g. $e + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{OH} + \text{H}(n = 3) + e$; $e + \text{H} \rightarrow \text{H}(n = 3) + e$; $e + \text{H}(n = 2) \rightarrow \text{H}(n = 3) + e$; $\text{H}(n = 4) + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}(n = 3) + \text{H}_2\text{O}$), it may be assumed that the contributions of these schemes are not affected by the application of B-field. Therefore, the difference in the intensities of the emission spectra acquired with and without B indicates that the population of H($n=3$) atoms is increased when a B-field is applied. Since the difference is observed for the whole spectrum (350–900 nm), including the continuum, the relatively high intensity detected under B-perpendicular condition is attributed to an increase in collision rate and/or electron density. This latter was estimated using the profile of H α line, and very close broadenings were found, which means that the electron densities measured under different B-field conditions are similar (data not shown here).

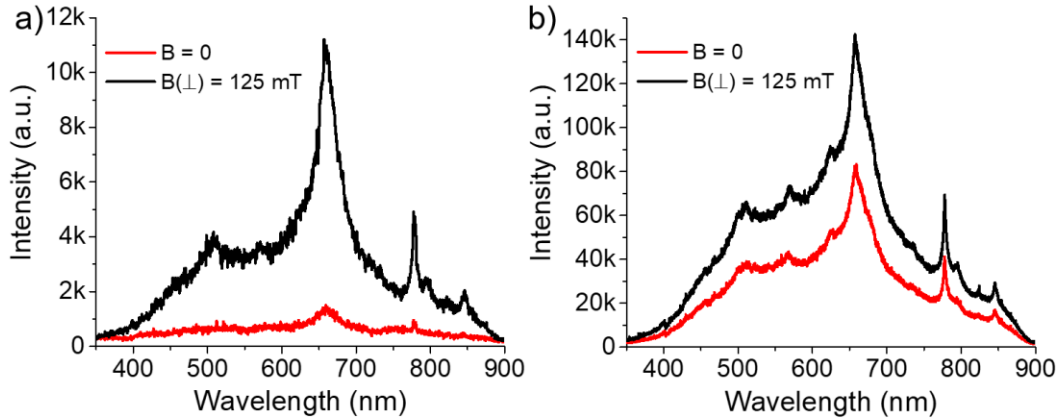


Figure 45. – Optical emission spectra acquired under $B = 0$ and B -perpendicular (125 mT) conditions at a) 50 ns and b) $1 \mu\text{s}$ ICCD exposure time.

Although further investigation is needed to assess the effect of B -field application on plasma kinetics for in-liquid discharges, the recent simulation performed by Starikovskiy et al. [101] provides important information on the influence of B -field on streamer propagation in gas medium. Despite the considerable differences between the investigated conditions (e.g. gas vs. liquid, low vs. atmospheric pressure, etc.), it has been observed that the application of a B -field parallel to the gap induces self-focusing of the streamer, i.e. a decrease in its radius and faster axial propagation. This phenomenon is related to the deceleration of the ionization wave in the radial direction (due to the change in the electron energy distribution function and to the decrease in the average electron energy, the rate of ionization, and the electron mobility). The authors also mentioned an increase in electron density by one order of magnitude when a B -field is applied. Unfortunately, the electron density has not been measured in B -parallel configuration to compare with Starikovskiy's results, but no major difference is detected between $B = 0$ and B -perpendicular. In fact, the problem is rather complex and, because there is not enough data (even for gas discharges at atmospheric pressure), we believe that it is too early to draw a precise conclusion on the influence of B -field on in-liquid discharges.

4.2. Influence of the electrode material: Ni vs. W

Ni and W electrodes were chosen based on their magnetic properties. As the former is ferromagnetic and the latter is paramagnetic, one expects different interaction between the

debris/nanoparticles and the B-field. The results obtained herein clearly indicate that the electrical characteristics of discharges are strongly dependent on the electrode nature. Measurements of the erosion of the pin electrode and the diameter of the impacted area at the plate electrode further confirm such dependence. For instance, at $B = 0$, the erosion volume of the Ni electrode is $\sim 6.2 \times 10^6 \mu\text{m}^3$, while that of the W electrode is $4.7 \times 10^6 \mu\text{m}^3$. When B-field is applied in parallel orientation, comparable erosion volumes of the Ni and W electrodes are recorded; however, when the field is perpendicular, the erosion of Ni electrode is slightly greater ($\sim 3.0 \times 10^6$ vs. $2.5 \times 10^6 \mu\text{m}^3$). It should be noted that the erosion measurements performed in this study do not aim to compare the erosion rates of W and Ni electrodes under similar conditions of discharge, as it depends on many other parameters such as melting temperature, Young's modulus, etc. [74], but rather to assess their behavior under different B-field conditions. Based on the obtained results, the application of a B-field reduces the erosion of both electrodes by a factor ~ 2 , which is consistent with the perturbation effect of the B-field on charges (the field increases the number of charges with less energy). At $B = 0$ and B-perpendicular conditions, the diameter of the impacted area on the W electrode is slightly higher than that on the Ni electrode (~ 510 vs. $500 \mu\text{m}$ and ~ 490 vs. $450 \mu\text{m}$, respectively). However, the impacted areas of the electrodes are comparable under B-parallel condition (~ 430 vs. $440 \mu\text{m}$). The relatively small diameter of impacted area measured in the presence of a B-field may be attributed to plasma confinement, as explained in [38], [39]. In addition to the electrical characteristics of the discharge and the erosion behavior of electrodes, the electrode nature has a significant effect on the discharge delay. Indeed, the delays measured with Ni electrodes are shorter than those measured with W electrodes, and the data distribution is tighter. This finding is of extreme importance, as it can be used to understand the influence of B-field on plasma-matter interactions. Indeed, the available research on B-field-assisted EDM demonstrates that when a B-field is applied, the debris in the discharge gap is flushed efficiently, more so than in the absence of a B-field. The debris-flushing effect of the B-field is expected to be stronger when the electrodes used are ferromagnetic (e.g. Ni) instead of paramagnetic (e.g. W). Debris-free inter-electrode gaps contribute to having consistent discharges that are characterized by less stochasticity and short discharge delays.

5. CONCLUSION

This study investigates the evolution of the electrical characteristics of consecutive spark discharges generated between W or Ni electrodes immersed in water under different conditions of B-field: $B = 0$, B-perpendicular, and B-parallel to the electrode axis (magnitude of 125 mT). The voltage and current waveforms of the discharges were recorded and processed to determine the breakdown voltage, discharge current, discharge delay, and injected charge. The eroded volume of the pin electrode and the diameter of the impacted area on the plate electrode were also determined. The main findings are summarized below:

1. The application of a B-field enhances the ionization in the discharge, which increases the peak value of the discharge current due to the effect of Lorentz's force in raising the collision rate. Since the majority of electrons are influenced by Lorentz's force in B-perpendicular orientation, this effect is more pronounced when the applied field is perpendicular rather than parallel.
2. The B-field reduces the rate of anode pin erosion by increasing the delay of discharges, which leads to less energetic electrons.
3. The B-field induces plasma confinement, which reduces the area of plasma-electrode interactions, resulting in a smaller diameter of the impacted area at the surface of the plate electrode (the cathode).
4. The magnetic properties of the electrodes have a significant effect on the electrical characteristics of the discharges, and more consistent discharge characteristics are obtained with ferromagnetic (Ni) electrodes than with paramagnetic (W) electrodes.
5. In all cases, the application of a B-field promotes the flushing of debris from the inter-electrode gap. The consistency of discharges obtained with Ni suggests that the debris flushing effect of the B-field is more efficient with ferromagnetic material.

The findings reported herein provide data regarding the fundamentals of spark discharges in liquid with and without B-field, and they can be used to promote the application of

these discharges in EDM and in the synthesis of nanoparticles. In the future, we shall investigate the influence of the B-field magnitude on the discharge.

ACKNOWLEDGEMENT

The research reported in this publication was financially supported by the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC), under award number RGPIN-2018-04869. The authors thank the Fonds de Recherche du Québec – Nature et Technologie (FRQ-NT) and the Canada Foundation for Innovation (CFI) for funding the research infrastructure. The

AUTHOR DECLARATIONS

The authors have no conflicts to disclose.

6. SUPPLEMENTARY MATERIAL

The variation of injected charge as a function of discharge delay for discharges occurring between two W electrodes immersed in water under different B-field is provided in supplementary material.

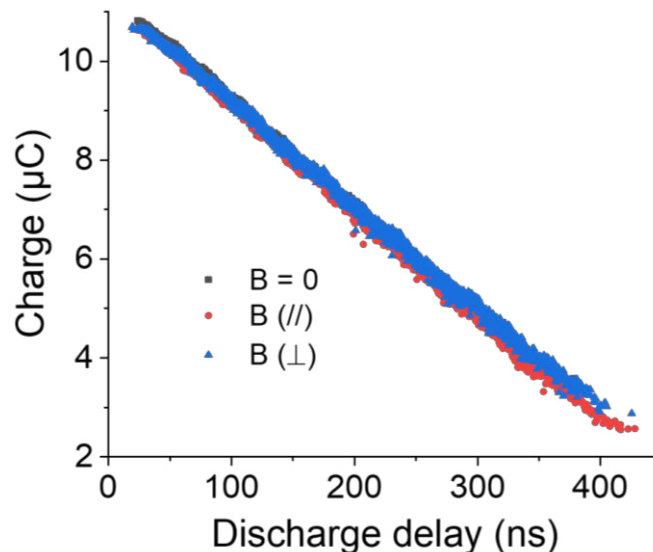


Figure 46. – Variation of injected charge as a function of discharge delay for discharges occurring in water with W electrode under different conditions: B = 0, B-parallel, and B-perpendicular.

Conclusion et Perspectives

Les décharges sparks dans les liquides diélectriques sont des phénomènes physiques complexes de par leur durée de vie courte, leur nature transitoire et leurs processus d'initiation et de propagation stochastique. Les applications industrielles de ces décharges comme l'usinage par électro-érosion ou la synthèse de nanoparticules nécessitent un nombre de décharges successives important. L'étude fondamentale de décharges successives est donc nécessaire pour déterminer l'évolution de leurs caractéristiques.

Une large étude paramétrique a été effectuée pour déterminer l'influence de la distance inter-électrode, du matériau des électrodes et de la polarité de la tension appliquée sur les caractéristiques électriques de la décharge (probabilité de claquage, tension de claquage, pic de courant, délai de claquage, charge et énergie injectée) et l'érosion des électrodes. Les principaux résultats trouvés sont les suivants :

- À une faible distance inter-électrode, les décharges surviennent dans un premier temps au début du pulse (durant la montée en tension du pulse). L'érosion des électrodes augmente ensuite la distance inter-électrode et les décharges surviennent dans le plateau et la phase de descente du pulse.
- L'érosion des électrodes dépend fortement du matériau qui les compose. Par exemple, le taux d'érosion de la pointe est plus important avec des électrodes en cuivre qu'en tungstène. Les caractéristiques thermiques (point de fusion et d'ébullition, conductivité thermique), électriques (travail de sortie) et de résistance à la pression (module d'Young) jouent sur l'érosion des électrodes.
- Avec une polarité négative, il est possible que des décharges ne surviennent pas lors du pulse de tension négative mais durant un pulse positif qui suit le pulse négatif (~5 kV). Ces décharges sont toutes similaires et leur formation est attribuée à la formation de régions de plus faible densité.
- Sur les figures où l'on affiche la tension de claquage en fonction du courant, les points pour les décharges de polarité positive et négative peuvent suivre des régressions linéaires. Les pentes

de ces droites (une résistance équivalente de la décharge) pourraient correspondre à différents mécanismes d'initiation des décharges.

L'influence d'un champ magnétique sur des décharges sparks dans l'eau déionisé a aussi été étudiée. L'orientation du champ magnétique par rapport à l'axe des électrodes, c'est-à-dire du courant, influe sur les caractéristiques électriques des décharges. En effet, l'application d'un champ magnétique de $B = 125 \text{ mT}$ perpendiculaire au courant augmente la valeur du pic de courant mais influe peu sur la tension de claquage.

Des suites et perspectives à ces travaux peuvent être envisagées. En effet, des expériences ont déjà commencé pour déterminer l'influence de la valeur d'intensité du champ magnétique appliqué. Dans le cadre d'application de synthèse de nanoparticules, l'imagerie par microscopie électronique à transmission (MET) des nanoparticules produites par les décharges permettrait de déterminer si le champ magnétique modifie la formation des nanoparticules, en particulier pour les électrodes en nickel qui sont ferromagnétique.

Références bibliographiques

- [1] M. Moisan et J. Pelletier, *Physics of Collisional Plasmas: Introduction to High-Frequency Discharges*. Springer Science & Business Media, 2012.
- [2] *Gas Discharge and Gas Insulation*. Consulté le: 8 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <https://link.springer.com/book/10.1007/978-3-662-48041-0>
- [3] S. J. Townsend, *The Theory of Ionization of Gases by Collision*. Constable, Limited, 1910.
- [4] F. Paschen, « Ueber die zum Funkenübergang in Luft, Wasserstoff und Kohlensäure bei verschiedenen Drucken erforderliche Potentialdifferenz », *Ann. Phys.*, vol. 273, n° 5, p. 69-96, 1889, doi: 10.1002/andp.18892730505.
- [5] Y. Raizer, *Gas discharge physics*. 1991.
- [6] L. B. Loeb, *Basic Processes of Gaseous Electronics*. University of California Press, 2020. doi: 10.1525/9780520348936.
- [7] J. M. Meek et J. D. Craggs, « Electrical breakdown of gases », janv. 1978, Consulté le: 15 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.osti.gov/biblio/6249937>
- [8] H. Haether, « The electron avalanche and its development », *Appl. Sci. Res. Sect. B*, vol. 5, n° 1, p. 23-33, déc. 1956, doi: 10.1007/BF02933256.
- [9] S. Nijdam, J. Teunissen, et U. Ebert, « The physics of streamer discharge phenomena », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 29, n° 10, p. 103001, nov. 2020, doi: 10.1088/1361-6595/abaa05.
- [10] M. Janda, Z. Machala, A. Niklová, et V. Martišovitéš, « The streamer-to-spark transition in a transient spark: a dc-driven nanosecond-pulsed discharge in atmospheric air », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 21, n° 4, p. 045006, juin 2012, doi: 10.1088/0963-0252/21/4/045006.
- [11] E. Marode, F. Bastien, et M. Bakker, « A model of the streamer-induced spark formation based on neutral dynamics », *J. Appl. Phys.*, vol. 50, n° 1, p. 140-146, janv. 1979, doi: 10.1063/1.325697.
- [12] H. Li, Y. Li, X. Wang, X. Zou, P. Wang, et H. Luo, « Investigation of the microsecond-pulse acoustic wave generated by a single nanosecond-pulse discharge », *Phys. Plasmas*, vol. 29, n° 5, p. 053508, mai 2022, doi: 10.1063/5.0085748.
- [13] F. Bastien et E. Marode, « Breakdown simulation of electronegative gases in non-uniform field », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 18, n° 3, p. 377-393, mars 1985, doi: 10.1088/0022-3727/18/3/007.
- [14] R. S. Sigmond, « The residual streamer channel: Return strokes and secondary streamers », *J. Appl. Phys.*, vol. 56, n° 5, p. 1355-1370, sept. 1984, doi: 10.1063/1.334126.
- [15] G. V. Naidis, « Simulation of streamer-to-spark transition in short non-uniform air gaps », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 32, n° 20, p. 2649-2654, oct. 1999, doi: 10.1088/0022-3727/32/20/311.
- [16] J. R. Dwyer et M. A. Uman, « The physics of lightning », *Phys. Rep.*, vol. 534, n° 4, p. 147-241, janv. 2014, doi: 10.1016/j.physrep.2013.09.004.
- [17] E. M. Bazelyan et Y. P. Raizer, *Spark Discharge*. New York: Routledge, 2017. doi: 10.1201/9780203739075.
- [18] M. A. Malik, A. Ghaffar, et S. A. Malik, « Water purification by electrical discharges », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 10, n° 1, p. 82-91, janv. 2001, doi: 10.1088/0963-0252/10/1/311.

- [19] V. S. Burakov, V. V. Kiris, A. A. Nevar, M. I. Nedelko, N. V. Tarasenko, et G. N. Churilov, « Synthesis of Nickel–Carbon Nanoparticles by Electrical Discharge in Liquid », *J. Appl. Spectrosc.*, vol. 84, n° 6, p. 1006-1013, janv. 2018, doi: 10.1007/s10812-018-0578-8.
- [20] N. Mohd Abbas, D. G. Solomon, et Md. Fuad Bahari, « A review on current research trends in electrical discharge machining (EDM) », *Int. J. Mach. Tools Manuf.*, vol. 47, n° 7, p. 1214-1228, juin 2007, doi: 10.1016/j.ijmachtools.2006.08.026.
- [21] J. F. Kolb, R. P. Joshi, S. Xiao, et K. H. Schoenbach, « Streamers in water and other dielectric liquids », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 41, n° 23, p. 234007, nov. 2008, doi: 10.1088/0022-3727/41/23/234007.
- [22] T. Belmonte, A. Hamdan, F. Kosior, C. Noël, et G. Henrion, « Interaction of discharges with electrode surfaces in dielectric liquids: application to nanoparticle synthesis », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 47, n° 22, p. 224016, mai 2014, doi: 10.1088/0022-3727/47/22/224016.
- [23] D. André, « Conduction and breakdown initiation in dielectric liquids », in *2011 IEEE International Conference on Dielectric Liquids*, juin 2011, p. 1-11. doi: 10.1109/ICDL.2011.6015495.
- [24] M. Haidara et A. Denat, « Electron multiplication in liquid cyclohexane and propane », *IEEE Trans. Electr. Insul.*, vol. 26, n° 4, p. 592-597, août 1991, doi: 10.1109/14.83676.
- [25] H. Fujita, S. Kanazawa, K. Ohtani, A. Komiyama, T. Kaneko, et T. Sato, « Initiation process and propagation mechanism of positive streamer discharge in water », *J. Appl. Phys.*, vol. 116, n° 21, p. 213301, déc. 2014, doi: 10.1063/1.4902862.
- [26] A. Hamdan, « Microdécharges dans l’heptane liquide: caractérisation et applications au traitement local des matériaux et à la synthèse de nanomatériaux », p. 285.
- [27] A. M. Saitta, F. Saija, et P. V. Giaquinta, « Ab Initio Molecular Dynamics Study of Dissociation of Water under an Electric Field », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, n° 20, p. 207801, mai 2012, doi: 10.1103/PhysRevLett.108.207801.
- [28] T. J. Lewis, « A new model for the primary process of electrical breakdown in liquids », *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, vol. 5, n° 3, p. 306-315, juin 1998, doi: 10.1109/94.689419.
- [29] N. Yu. Babaeva et M. J. Kushner, « Streamer Branching: The Role of Inhomogeneities and Bubbles », *IEEE Trans. Plasma Sci.*, vol. 36, n° 4, p. 892-893, août 2008, doi: 10.1109/TPS.2008.922434.
- [30] V. Y. Ushakov, V. F. Klimkin, et S. M. Korobeynikov, *Impulse Breakdown of Liquids*. Springer Science & Business Media, 2007.
- [31] O. Lesaint, « Phénomènes pré-disruptifs dans les liquides : ” modes ” de propagation et mécanismes », in *Plasmas Froids Systèmes et Procédés*, MRCT CNRS, 2012, p. 49-75. Consulté le: 29 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00821033>
- [32] N. Jeanvoine, « Plasma-material interaction and electrode degradation in high voltage ignition discharges », *Plasma-Material Wechselwirkung und Elektrodendegradation in Hochspannung-Zündentladungen*, 2009, doi: 10.22028/D291-22625.
- [33] F. L. Jones, « Electrode Erosion by Spark Discharges », *Br. J. Appl. Phys.*, vol. 1, n° 3, p. 60-65, mars 1950, doi: 10.1088/0508-3443/1/3/302.
- [34] T. Belmonte, « Synthèse ultrarapide de nanoparticules par claquage dans des liquides diélectriques », *Reflète Phys.*, n° 51, p. 22-27, déc. 2016, doi: 10.1051/refdp/201651022.
- [35] Lord Rayleigh, « VIII. On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity », *Lond. Edinb. Dublin Philos. Mag. J. Sci.*, vol. 34, n° 200, p. 94-98, août 1917, doi: 10.1080/14786440808635681.

- [36] K. Vokurka, « Comparison of Rayleigh's, Herring's, and Gilmore's Models of Gas Bubbles », *Acta Acust. United Acust.*, vol. 59, n° 3, p. 214-219, janv. 1986.
- [37] W. Soliman, T. Nakano, N. Takada, et K. Sasaki, « Modification of Rayleigh–Plesset Theory for Reproducing Dynamics of Cavitation Bubbles in Liquid-Phase Laser Ablation », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 49, n° 11R, p. 116202, nov. 2010, doi: 10.1143/JJAP.49.116202.
- [38] P. Govindan, A. Gupta, S. S. Joshi, A. Malshe, et K. P. Rajurkar, « Single-spark analysis of removal phenomenon in magnetic field assisted dry EDM », *J. Mater. Process. Technol.*, vol. 213, n° 7, p. 1048-1058, juill. 2013, doi: 10.1016/j.jmatprotec.2013.01.016.
- [39] Z. Zhang, Y. Zhang, W. Ming, Y. Zhang, C. Cao, et G. Zhang, « A review on magnetic field assisted electrical discharge machining », *J. Manuf. Process.*, vol. 64, p. 694-722, avr. 2021, doi: 10.1016/j.jmapro.2021.01.054.
- [40] A. Gupta et S. S. Joshi, « Modelling effect of magnetic field on material removal in dry electrical discharge machining », *Plasma Sci. Technol.*, vol. 19, n° 2, p. 025505, janv. 2017, doi: 10.1088/2058-6272/19/2/025505.
- [41] M. R. Shabgard, A. Gholipoor, et M. Mohammadpourfard, « Investigating the effects of external magnetic field on machining characteristics of electrical discharge machining process, numerically and experimentally », *Int. J. Adv. Manuf. Technol.*, vol. 102, n° 1, p. 55-65, mai 2019, doi: 10.1007/s00170-018-3167-3.
- [42] Y.-C. Lin et H.-S. Lee, « Machining characteristics of magnetic force-assisted EDM », *Int. J. Mach. Tools Manuf.*, vol. 48, n° 11, p. 1179-1186, sept. 2008, doi: 10.1016/j.ijmachtools.2008.04.004.
- [43] Y. Zhang, Z. Zhang, G. Zhang, et W. Li, « Reduction of Energy Consumption and Thermal Deformation in WEDM by Magnetic Field Assisted Technology », *Int. J. Precis. Eng. Manuf.-Green Technol.*, vol. 7, n° 2, p. 391-404, mars 2020, doi: 10.1007/s40684-019-00086-5.
- [44] J.-S. Chang, A. J. Kelly, et J. M. Crowley, *Handbook of Electrostatic Processes*. CRC Press, 1995.
- [45] A. Durocher-Jean, I. R. Durán, S. Asadollahi, G. Laroche, et L. Stafford, « Deposition of anti-fog coatings on glass substrates using the jet of an open-to-air microwave argon plasma at atmospheric pressure », *Plasma Process. Polym.*, vol. 17, n° 8, p. 1900229, 2020, doi: 10.1002/ppap.201900229.
- [46] M. Mitronika, J. Profili, A. Gouillet, L. Stafford, A. Granier, et M. Richard-Plouet, « Modification of the optical properties and nano-crystallinity of anatase TiO₂ nanoparticles thin film using low pressure O₂ plasma treatment », *Thin Solid Films*, vol. 709, p. 138212, sept. 2020, doi: 10.1016/j.tsf.2020.138212.
- [47] L. Zhao *et al.*, « Study on atmospheric air glow discharge plasma generation and surface modification of carbon fiber fabric », *Plasma Process. Polym.*, vol. 17, n° 4, p. 1900148, 2020, doi: 10.1002/ppap.201900148.
- [48] A. Hamdan, D. A. Ridani, J. Diamond, et R. Daghrir, « Pulsed nanosecond air discharge in contact with water: influence of voltage polarity, amplitude, pulse width, and gap distance », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 53, n° 35, 2020, doi: 10.1088/1361-6463/ab8fde.
- [49] G. J., « Electrolytische metallabscheidung an der freien oberfläche einer salzosung », *Ann Phys Chem N F*, vol. 32, p. 114-115, 1887.
- [50] H. Cavendish, « XXIII. Experiments on air. », *Philos. Trans. R. Soc. Lond.*, vol. 75, p. 372-384, janv. 1785, doi: 10.1098/rstl.1785.0023.

- [51] S. Kumar, R. Singh, T. P. Singh, et B. L. Sethi, « Surface modification by electrical discharge machining: A review », *J. Mater. Process. Technol.*, vol. 209, n° 8, p. 3675-3687, avr. 2009, doi: 10.1016/j.jmatprotec.2008.09.032.
- [52] A. Hamdan, D. E. Abiad, et M. S. Cha, « Synthesis of Silicon and Silicon Carbide Nanoparticles by Pulsed Electrical Discharges in Dielectric Liquids », *Plasma Chem. Plasma Process.*, vol. 41, n° 6, p. 1647-1660, nov. 2021, doi: 10.1007/s11090-021-10205-3.
- [53] T. Merciris, F. Valensi, et A. Hamdan, « Synthesis of nickel and cobalt oxide nanoparticles by pulsed underwater spark discharges », *J. Appl. Phys.*, vol. 129, n° 6, p. 063303, févr. 2021, doi: 10.1063/5.0040171.
- [54] I. Marinov, S. Starikovskaia, et A. Rousseau, « Dynamics of plasma evolution in a nanosecond underwater discharge », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 47, n° 22, p. 224017, mai 2014, doi: 10.1088/0022-3727/47/22/224017.
- [55] A. Hamdan, J. Gorry, T. Merciris, et J. Margot, « Electrical characterization of positive and negative pulsed nanosecond discharges in water coupled with time-resolved light detection », *J. Appl. Phys.*, vol. 128, n° 3, 2020, doi: 10.1063/5.0010387.
- [56] S. H. Jung *et al.*, « High-yield synthesis of multi-walled carbon nanotubes by arc discharge in liquid nitrogen », *Appl. Phys. Mater. Sci. Process.*, vol. 76, n° 2, p. 285-286, 2003, doi: 10.1007/s00339-002-1718-8.
- [57] A. Starikovskiy, Y. Yang, Y. I. Cho, et A. Fridman, « Non-equilibrium plasma in liquid water: dynamics of generation and quenching », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 20, n° 2, p. 024003, avr. 2011, doi: 10.1088/0963-0252/20/2/024003.
- [58] D. Dobrynin, Y. Seepersad, M. Pekker, M. Shneider, G. Friedman, et A. Fridman, « Non-equilibrium nanosecond-pulsed plasma generation in the liquid phase (water, PDMS) without bubbles: fast imaging, spectroscopy and leader-type model », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 46, n° 10, p. 105201, févr. 2013, doi: 10.1088/0022-3727/46/10/105201.
- [59] A. Starikovskiy, « Pulsed nanosecond discharge development in liquids with various dielectric permittivity constants », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 22, n° 1, p. 012001, janv. 2013, doi: 10.1088/0963-0252/22/1/012001.
- [60] A. Descoeur, C. Hollenstein, G. Wälder, R. Demellayer, et R. Perez, « Time- and spatially-resolved characterization of electrical discharge machining plasma », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 17, n° 2, 2008, doi: 10.1088/0963-0252/17/2/024008.
- [61] T. Belmonte, A. Hamdan, F. Kosior, C. Noël, et G. Henrion, « Interaction of discharges with electrode surfaces in dielectric liquids: Application to nanoparticle synthesis », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 47, n° 22, 2014, doi: 10.1088/0022-3727/47/22/224016.
- [62] M. V. Antisari, R. Marazzi, et R. Krsmanovic, « Synthesis of multiwall carbon nanotubes by electric arc discharge in liquid environments », *Carbon*, vol. 41, n° 12, p. 2393-2401, 2003, doi: 10.1016/S0008-6223(03)00297-5.
- [63] N. Bourbeau, A. Dorval, F. Valensi, et A. Hamdan, « Statistical analysis of pulsed discharges in dielectric liquid: effects of voltage amplitude, pulse width, electrode configuration, and liquid composition », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 54, n° 48, p. 485201, sept. 2021, doi: 10.1088/1361-6463/ac2066.
- [64] P. Hoffer, P. Bílek, V. Prukner, Z. Bonaventura, et M. Šimek, « Dynamics of macro- and micro-bubbles induced by nanosecond discharge in liquid water », *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2021, doi: 10.1088/1361-6595/ac3bd6 Manuscript.
- [65] A. Hamdan *et al.*, « Plasma-surface interaction in heptane », *J. Appl. Phys.*, vol. 113, n° 21, 2013, doi: 10.1063/1.4809766.

- [66] A. Hamdan, C. Noel, F. Kosior, G. Henrion, et T. Belmonte, « Impacts created on various materials by micro-discharges in heptane: Influence of the dissipated charge », *J. Appl. Phys.*, vol. 113, n° 4, 2013, doi: 10.1063/1.4780786.
- [67] T. J. Gallagher et T. J. Lewis, « Statistical effects in the breakdown of liquid argon under pulse voltages », *Br. J. Appl. Phys.*, vol. 15, n° 8, p. 929-934, août 1964, doi: 10.1088/0508-3443/15/8/307.
- [68] C. Rond, N. Fagnon, A. Vega, et X. Duten, « Statistical analysis of a micro-pulsed electrical discharge in water », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 53, n° 33, p. 335204, juin 2020, doi: 10.1088/1361-6463/ab8b03.
- [69] A. Hamdan, C. Noël, J. Ghanbaja, S. Migot-Choux, et T. Belmonte, « Synthesis of platinum embedded in amorphous carbon by micro-gap discharge in heptane », *Mater. Chem. Phys.*, vol. 142, n° 1, p. 199-206, oct. 2013, doi: 10.1016/j.matchemphys.2013.07.006.
- [70] Y. CAO, G. QU, T. LI, N. JIANG, et T. WANG, « Review on reactive species in water treatment using electrical discharge plasma: formation, measurement, mechanisms and mass transfer », *Plasma Sci. Technol.*, vol. 20, n° 10, p. 103001, août 2018, doi: 10.1088/2058-6272/aacff4.
- [71] Z. Machala, B. Tarabová, D. Sersenová, M. Janda, et K. Hensel, « Chemical and antibacterial effects of plasma activated water: correlation with gaseous and aqueous reactive oxygen and nitrogen species, plasma sources and air flow conditions », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 52, n° 3, p. 034002, nov. 2018, doi: 10.1088/1361-6463/aae807.
- [72] V. V. Kovačević, B. P. Dojčinović, M. Jović, G. M. Roglić, B. M. Obradović, et M. M. Kuraica, « Measurement of reactive species generated by dielectric barrier discharge in direct contact with water in different atmospheres », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 50, n° 15, p. 155205, mars 2017, doi: 10.1088/1361-6463/aa5fde.
- [73] P. Lukes, M. Clupek, V. Babicky, I. Sisrova, et V. Janda, « The catalytic role of tungsten electrode material in the plasmachemical activity of a pulsed corona discharge in water », *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 20, n° 3, p. 034011, avr. 2011, doi: 10.1088/0963-0252/20/3/034011.
- [74] A. Dorval, N. Bourbeau, K. Géraud, F. Valensi, et A. Hamdan, « Influence of electrodes nature on the electrical characteristics of spark discharges in water », in *2021 IEEE 16th Nanotechnology Materials and Devices Conference (NMDC)*, déc. 2021, p. 1-4. doi: 10.1109/NMDC50713.2021.9677532.
- [75] J. Deuermeier *et al.*, « Visualization of nanocrystalline CuO in the grain boundaries of Cu₂O thin films and effect on band bending and film resistivity », *APL Mater.*, vol. 6, n° 9, p. 096103, sept. 2018, doi: 10.1063/1.5042046.
- [76] F. Ise, « Alternative Contact Materials for Induced Junction Silicon Solar Cells », p. 26.
- [77] « Transition Metal Oxides for Organic Electronics: Energetics, Device Physics and Applications - Meyer - 2012 - Advanced Materials - Wiley Online Library ». https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/adma.201201630?casa_token=GinnkgsIcoIAAAA%3ARceELmZvRz7H0Hba1jSLOdekEF2LkYaLULr24t1pOHZD0IKO6V_8BM_grb-Sj4q9NCBluGGngEDT (consulté le 5 septembre 2022).
- [78] L. E. McAllister, « Secondary Electron Emission from Copper and Copper Oxide Surfaces », *Phys. Rev.*, vol. 21, n° 2, p. 122-130, févr. 1923, doi: 10.1103/PhysRev.21.122.
- [79] E. A. Coomes, « Total Secondary Electron Emission from Tungsten and Thorium-Coated Tungsten », *Phys. Rev.*, vol. 55, n° 6, p. 519-525, mars 1939, doi: 10.1103/PhysRev.55.519.

- [80] H.-Y. Chang, A. Alvarado, et J. Marian, « Calculation of secondary electron emission yields from low-energy electron deposition in tungsten surfaces », *Appl. Surf. Sci.*, vol. 450, p. 190-199, août 2018, doi: 10.1016/j.apsusc.2018.04.155.
- [81] N. Koshida et O. Tomita, « Ion-Beam Modification of Amorphous WO₃ Film and Its Properties as a High-Contrast Inorganic Ion Resist », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 24, n° 1R, p. 92, janv. 1985, doi: 10.1143/JJAP.24.92.
- [82] M. Wiessner, F. T. B. Macedo, C. P. Martendal, F. Kuster, et K. Wegener, « Fundamental Investigation of EDM Plasmas, Part I: A Comparison between Electric Discharges in Gaseous and Liquid Dielectric Media », *Procedia CIRP*, vol. 68, p. 330-335, janv. 2018, doi: 10.1016/j.procir.2017.12.073.
- [83] M. P. Jahan, M. Rahman, et Y. S. Wong, « A review on the conventional and micro-electrodischarge machining of tungsten carbide », *Int. J. Mach. Tools Manuf.*, vol. 51, n° 12, p. 837-858, déc. 2011, doi: 10.1016/j.ijmachtools.2011.08.016.
- [84] G. Saito et T. Akiyama, « Nanomaterial synthesis using plasma generation in liquid », *J. Nanomater.*, vol. 16, n° 1, p. 299:299, janv. 2016, doi: 10.1155/2015/123696.
- [85] Q. Chen, J. Li, et Y. Li, « A review of plasma–liquid interactions for nanomaterial synthesis », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 48, n° 42, p. 424005, sept. 2015, doi: 10.1088/0022-3727/48/42/424005.
- [86] H. Kabbara, J. Ghanbaja, C. Noël, et T. Belmonte, « Synthesis of Cu@ZnO core–shell nanoparticles by spark discharges in liquid nitrogen », *Nano-Struct. Nano-Objects*, vol. 10, p. 22-29, avr. 2017, doi: 10.1016/j.nanoso.2017.03.002.
- [87] S.-H. Jung *et al.*, « High-yield synthesis of multi-walled carbon nanotubes by arc discharge in liquid nitrogen », *Appl. Phys. A*, vol. 76, n° 2, p. 285-286, févr. 2003, doi: 10.1007/s00339-002-1718-8.
- [88] X. Glad, J. Profili, M. S. Cha, et A. Hamdan, « Synthesis of copper and copper oxide nanomaterials by electrical discharges in water with various electrical conductivities », *J. Appl. Phys.*, vol. 127, n° 2, p. 023302, janv. 2020, doi: 10.1063/1.5129647.
- [89] X. Glad, J. Gorry, M. S. Cha, et A. Hamdan, « Synthesis of core–shell copper–graphite submicronic particles and carbon nano-onions by spark discharges in liquid hydrocarbons », *Sci. Rep.*, vol. 11, n° 1, Art. n° 1, avr. 2021, doi: 10.1038/s41598-021-87222-x.
- [90] A. Muttamara, Y. Fukuzawa, N. Mohri, et T. Tani, « Probability of precision micro-machining of insulating Si₃N₄ ceramics by EDM », *J. Mater. Process. Technol.*, vol. 140, n° 1, p. 243-247, sept. 2003, doi: 10.1016/S0924-0136(03)00745-3.
- [91] D. Kumar, V. Bajpai, et N. K. Singh, « Nano electrical discharge machining – the outlook, challenges, and opportunities », *Mater. Manuf. Process.*, vol. 36, n° 10, p. 1099-1133, juill. 2021, doi: 10.1080/10426914.2021.1905832.
- [92] B. Sen, N. Kiyawat, P. K. Singh, S. Mitra, J. H. Ye, et P. Purkait, « Developments in electric power supply configurations for electrical-discharge-machining (EDM) », in *The Fifth International Conference on Power Electronics and Drive Systems, 2003. PEDS 2003.*, nov. 2003, vol. 1, p. 659-664 Vol.1. doi: 10.1109/PEDS.2003.1282955.
- [93] G. Xing, S. Jia, et Z. Shi, « Influence of transverse magnetic field on the formation of carbon nano-materials by arc discharge in liquid », *Carbon*, vol. 45, n° 13, p. 2584-2588, nov. 2007, doi: 10.1016/j.carbon.2007.08.008.
- [94] G. Xing, S. Jia, et Z. Shi, « Influence of magnetic field parallel to the arc on the formation of carbon nano-materials by arc discharge in water », *Carbon*, vol. 47, n° 8, p. 2131-2133, juill. 2009, doi: 10.1016/j.carbon.2009.03.067.

- [95] D. B. H. E, « Effect of a magnetic field on the gap cleaning in EDM », *Ann. CIRP*, vol. 27, n° 1, p. 93-95, 1978.
- [96] Y.-C. Lin, Y.-F. Chen, D.-A. Wang, et H.-S. Lee, « Optimization of machining parameters in magnetic force assisted EDM based on Taguchi method », *J. Mater. Process. Technol.*, vol. 209, n° 7, p. 3374-3383, avr. 2009, doi: 10.1016/j.jmatprotec.2008.07.052.
- [97] « Investigation of the effects of magnetic field on near-dry electrical discharge machining performance - Ahad Gholipoor, Hamid Baseri, Mohsen Shakeri, Mohammadreza Shabgard, 2016 ». <https://journals.sagepub.com/doi/full/10.1177/0954405414558737> (consulté le 6 juillet 2022).
- [98] « HomePage:Finite Element Method Magnetics ». <https://www.femm.info/wiki/HomePage> (consulté le 12 juillet 2022).
- [99] A. Dorval, K. Geraud, F. Valensi, et A. Hamdan, « Statistical analysis of pulsed spark discharges in water: Effects of gap distance, electrode material, and voltage polarity on discharge characteristics », *J. Vac. Sci. Technol. A*, vol. 40, n° 4, p. 043006, juill. 2022, doi: 10.1116/6.0001923.
- [100] W. Tian, K. Tachibana, et M. J. Kushner, « Plasmas sustained in bubbles in water: optical emission and excitation mechanisms », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 47, n° 5, p. 055202, déc. 2013, doi: 10.1088/0022-3727/47/5/055202.
- [101] A. Yu. Starikovskiy, N. L. Aleksandrov, et M. N. Shneider, « Streamer self-focusing in an external longitudinal magnetic field », *Phys Rev E*, vol. 103, n° 6, p. 063201, juin 2021, doi: 10.1103/PhysRevE.103.063201.

Annexes

Annexes I : Décharge Spark pulsée dans de l'eau déionisée – Mesures électriques et étude de la bulle de cavitation

Cette annexe expose les travaux réalisés durant la première année de maîtrise à Toulouse. Sur une alimentation électrique pulsée réalisée par Thomas Merciris, des décharges Sparks dans de l'eau déionisée ont été effectuées. L'influence du matériau et de la distance inter-électrode sur les caractéristiques électroniques et la bulle de cavitation a été étudiée. Les résultats sont présentés sous l'objet d'une publication scientifique dans le cadre de la conférence IEEE-NMDC de Vancouver en 2021. Les expériences ont été réalisées par Audren Dorval et Korentin Géraud. L'analyse des données et le premier jet de l'article a été fait par Korentin Géraud. Les co-auteurs ont participé à l'analyse des résultats et à la rédaction et à la révision de l'article.

Pulsed Spark Discharge in Deionized Water for Nanoparticle Synthesis: Electrical Measurement and Cavitation Bubble Study

A. Dorval
*Groupe de physique des
 plasmas, Département de
 Physique*
Université de Montréal
 Montréal, Canada
audren.dorval@umontreal.ca

K. Géraud
*LAPLACE (Laboratoire
 Plasma et Conversion
 d'Énergie)*
Université Paul Sabatier
 Toulouse, France
korentin.geraud@univ-tlse3.fr

A. Hamdan
*Groupe de physique des
 plasmas, Département de
 Physique*
Université de Montréal
 Montréal, Canada
ahmad.hamdan@umontreal.ca

F. Valensi
*LAPLACE (Laboratoire
 Plasma et Conversion
 d'Énergie)*
Université Paul Sabatier
 Toulouse, France
valensi@laplace.univ-tlse.fr

Abstract— Electrical discharges in dielectric liquids are considered as an efficient and eco-friendly technique for nanoparticle synthesis via controlled erosion of electrode. Understanding of mechanisms in the discharge and plasma-electrode interactions are needed to improve the efficiency of nanoparticles synthesis. In this study, we used a homemade pulsed power supply to produce spark discharges in deionized water with different electrodes, namely Cu, Al, and Steel. Voltage and current waveforms are acquired for discharges with various inter-electrode distances and applied voltages. The data is processed to report some characteristics of the discharges, such as breakdown voltage, discharge delay, injected charge, and energy. Also, we used a fast camera to visualize the dynamics of the post-discharge cavitation bubble. A relationship has been established between the discharge characteristics and the bubble dynamics; we found that higher is the injected energy larger is the bubble radius.

Keywords—Nanoparticle synthesis, Spark discharge, discharge in liquid, Cavitation bubble

I. INTRODUCTION

Electrical discharges in dielectric liquids are studied since multiple decades [2-4], but their understanding is far from complete. Pulsed discharges in liquids are a top-down technique of nanoparticles synthesis, *i.e.* the decomposition of macroscopic material at the nanoscale that is both efficient and eco-friendly [5-8]. This technique involves applying repetitive high voltage pulses between two metal electrodes immersed in a dielectric liquid. The resulting spark dissociates the liquid and locally heats the electrode surface, leading melting and evaporation of material in the plasma as well as the projection of molten droplets in liquid. Nanoparticles are formed when vaporized material condensate: this can happen in the liquid or in the cavitation bubble formed by the spark.

During the last decade, pulsed electrical spark discharges have been used to synthesize various types of nanomaterials including oxides [8], nanocomposites [5], and metals [6]. The unique plasma properties of spark discharges, such as high temperature, high pressure, and reduced lifetime, enhance the efficiency of nanomaterial synthesis, compared to other physical or chemical processes. Here, we address the influence of the electrode material (Cu, Al, and steel) and interelectrode gap distance on the discharge parameters.

Current and voltage are acquired and processed to report breakdown voltage, breakdown delay, injected charge, and energy. Investigating the dynamics of the cavitation bubble [9] can provide additional information on the discharge properties, since it is related to the initial pressure in the plasma channel at the breakdown moment. The characteristics of the produced nanoparticles are not addressed here.

II. EXPERIMENTAL PROCEDURE

A. Power Supply

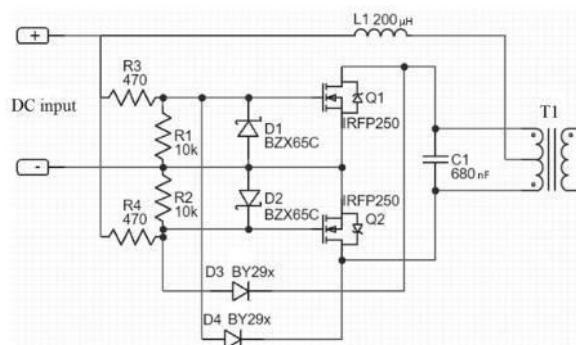


Fig. 1. Left, cavitation bubble in configuration pin-to-plate. Right, calculated volume of the bubble in the red delimitation.

High-voltage pulses are generated by using a high-voltage transformer with its primary coil driven by an oscillating circuit powered with DC voltage (Fig. 1); this electrical arrangement is detailed in a previous paper [10]. The working frequency of the oscillator must match that of the high-voltage transformer. To easily tune this frequency, a ZVS flyback was used [11]. It is based on two MOSFETs and an LC oscillating circuit. The inductance and the capacitance are set to $L1 = 200 \mu\text{H}$ and $C1 = 680 \text{ nF}$, respectively. We used a tunable DC power supply, from AIM & 64 Thurlby Thandar Instruments (model QPX600DP), to vary the DC input voltage U_{input} between 0 and 50 V. A commutation switch is used to power the oscillating circuit for the period needed to get only one discharge, typically 300 μs (Fig. 2). The

maximum number of occurred oscillations during this period is 9. Each oscillation cycle increases the voltage output of the power supply. Depending on the experimental conditions and the stochastic behavior of discharges in liquids, one or several oscillations cycles can be delivered before breaking down the medium. Higher U_{input} leads to higher voltage magnitude and shorter rising period.

B. Measurements

The experimental setup is schematically shown in Fig. 2. The dynamics of the cavitation bubble induced by the discharge was observed by shadowgraph method using a high-speed camera (Photron AX100) with an acquisition speed of 100 000 frame/s (128×96 pixels). The voltage $u(t)$ and current $i(t)$ waveforms for the discharges were measured using a high-voltage probe (×1000, TT HVP 2739, from Testec) and a current probe (1V/A, 4100, from Pearson), respectively. Data was recorded using a digital oscilloscope (200-MHz TDS 20242, from Tektronix) with the software Keysight BenchVue 3.7. We used a delay generator to synchronize the discharge with the high-speed camera. Cu, Al, and Steel electrodes, 6 mm diameter, were used. Experiments were run in a pin-to-plate configuration (tip angle: 60°). The interelectrode gap distance (d) was adjusted using micrometric displacement tables. Discharges are produced in a 200 mL of deionized water with an initial electrical conductivity of $\sim 1 \mu\text{S/cm}$.

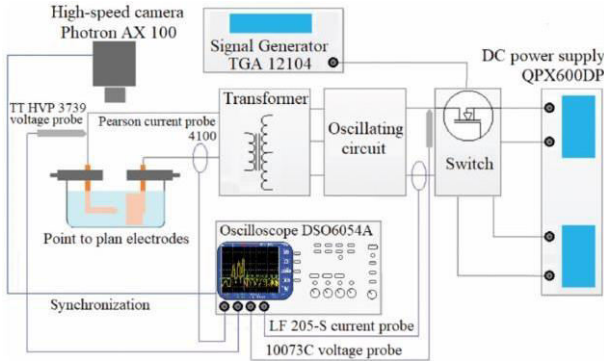


Fig. 2. Schematic of the global setup

The voltage-current waveforms were used to determine the breakdown voltage (V_{bd}) and the discharge delay (Δt). V_{bd} represents the value when the voltage drops, and Δt represents period separating the moment of powering the oscillating circuit from the breakdown moment. The injected charge (Q) and energy (E) in the discharge are calculated using the following equations:

$$Q = \int |i(t)| dt \quad (1)$$

$$E = \int |u(t) \cdot i(t)| dt \quad (2)$$

C. Cavitation Bubble

Spark discharges in liquid lead to the growth of a cavitation bubble due to heating by the plasma channel. The plasma channel and the cavitation bubble initially (hundreds of nanoseconds) grow at the same speed [9]. However, when the discharge stops, the bubble continues to grow due to the

high pressure. Once the bubble has reached a maximum radius, the pressure inside the bubble becomes less than that of the liquid. At this stage, the bubble will collapse, and the pressure inside will re-increase. Such a dynamics is repeated with a damping feature until the formation of a stationary spherical bubble in liquid.

In this context, the initial geometry of the bubble is not spherical (Fig. 3) due to the presence of the electrodes. The volume of the bubble is calculated according to its geometry, as outlined by the red mark in Fig. 3; in practice, the volume of the pin (a cone) is removed from the volume of a semi-sphere. Then, it becomes feasible to determine an equivalent radius of a spherical bubble.

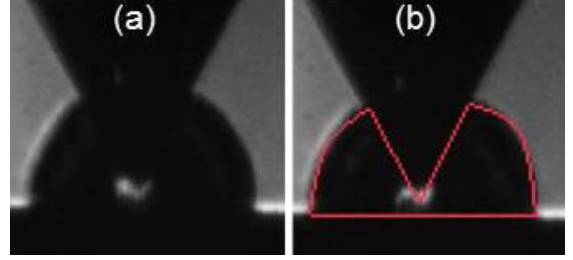


Fig. 3. Left, cavitation bubble in configuration pin-to-plate. Right, calculated volume of the bubble in the red delimitation.

III. EXPERIMENTAL RESULTS

The data presented hereafter is an average of several tests, and the vertical uncertainty bars are the standard deviation.

A. Electrical Measurement

Fig. 4 and Fig. 5 show the variation of V_{bd} as a function of d and U_{input} , respectively. We observe that V_{bd} increases with d , which is expected. In the range of 50-200 μm , the increase of V_{bd} can be fairly assumed as linear. V_{bd} also increases with U_{input} . This finding can be explained by the shorter delay and higher amplitude of the high voltage for higher U_{input} , as described earlier.

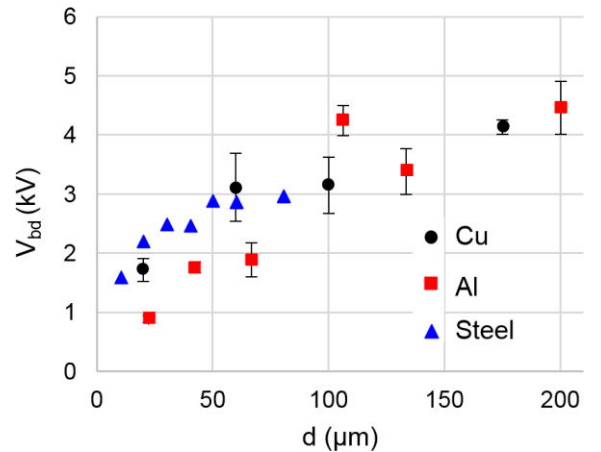


Fig. 4. V_{bd} as function of d for Cu and Al electrodes, $U_{\text{input}} = 50 \text{ V}$

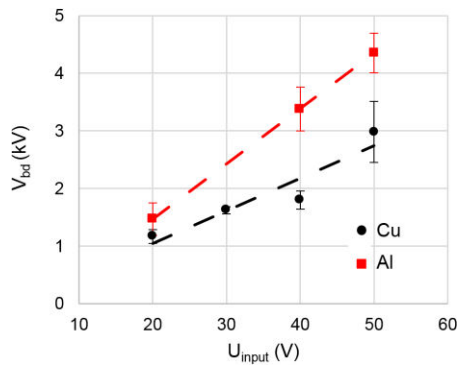


Fig. 5. V_{bd} as function of U_{input} for Cu and Al electrode, $d = 100 \mu m$

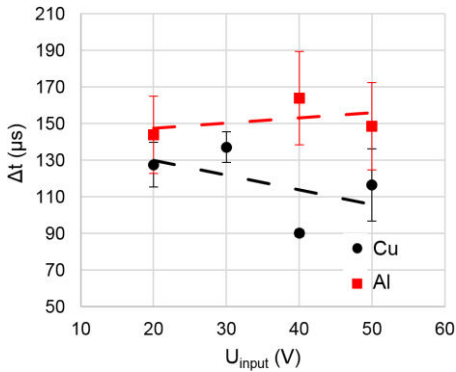


Fig. 6. Δt as function of U_{input} for Cu and Al electrode, $d = 100 \mu m$

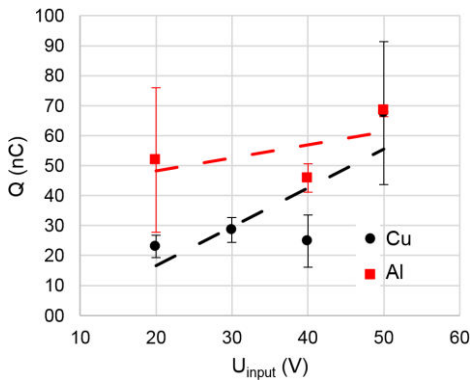


Fig. 7. Q as function of U_{input} for Cu and Al electrode, $d = 100 \mu m$

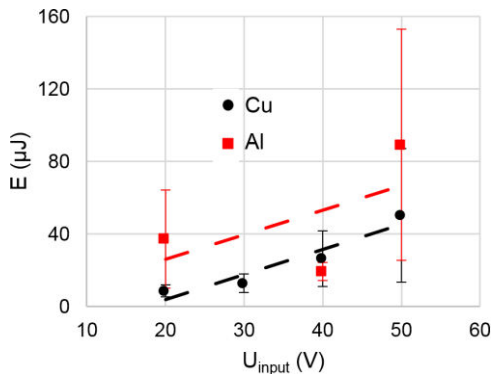


Fig. 8. E as function of U_{input} for Cu and Al electrode, $d = 100 \mu m$

While the influence of d is similar for all three materials, V_{bd} seems to increase faster with U_{input} when Al electrode was utilized (Figs. 4 and 5). The interpretation of this phenomenon may be the consequence of the different work functions of the two materials [1]. Since Al and Cu have work function of 4.2 and 4.5 eV, respectively, it is expected to eject more electron when the cathode is Al [12]. However, these electrons are not used to produce an avalanche; a priori they are simply transported in liquid by the electric field (the field is not enough to induce breakdown). This phenomenon is similar to the case when discharges are produced in conductive solutions [13]. Therefore, high voltage is needed to induce breakdown, which concurs with our measurements. This assumption is further supported by the measurement. For instance, when using Al, Δt is longer, Q is higher, and E is higher those measured with Cu (Figs. 6-8).

B. Bubble Study

Figs. 9 and 10 show the temporal evolution of bubble radius (one bounce) for different U_{input} and d , respectively. The maximal radius as well as the oscillation period of the bubble increase with increasing U_{input} and d . This is an expected finding because, as seen earlier, more energy is injected for high values of U_{input} . Therefore, plasma temperature is expected to be higher (for higher U_{input}) leading thus to higher initial pressure in the plasma channel. The maximum bubble radius is shown in Fig. 11 as a function of material work function. This figure shows that, for a given discharge conditions, the bubble generated by discharge with Al electrodes is larger than that generated by discharge with Cu or steel. Moreover, the bubble maximum radius decreases linearly with the increase of work function, although this latter varies ~ 1 eV for the tested electrodes.

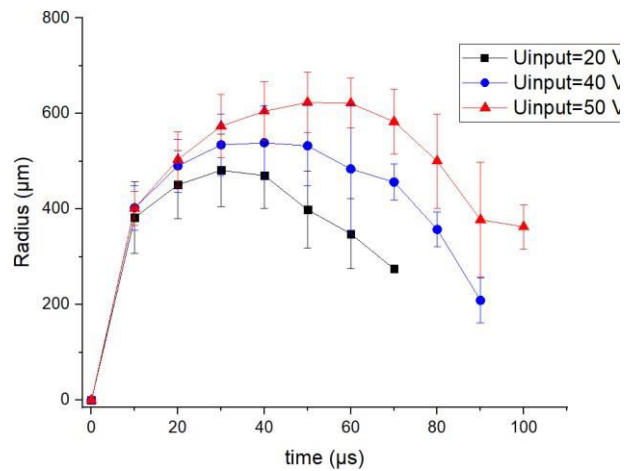


Fig. 9. Temporal evolution of the bubble radius for different U_{input} at $d = 20 \mu m$ with Cu electrodes

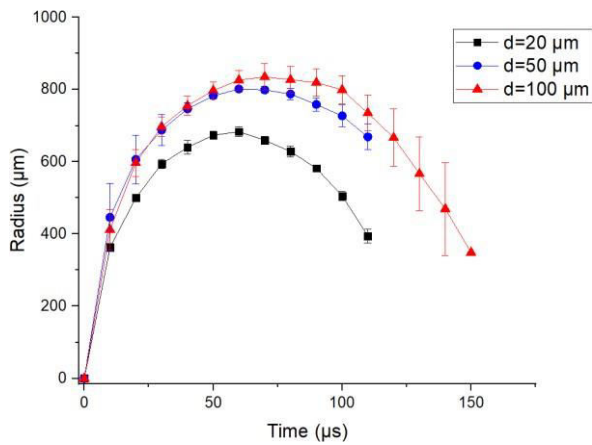


Fig. 10. Temporal evolution of the bubble radius for different d at $U_{input} = 50$ V with Cu electrodes

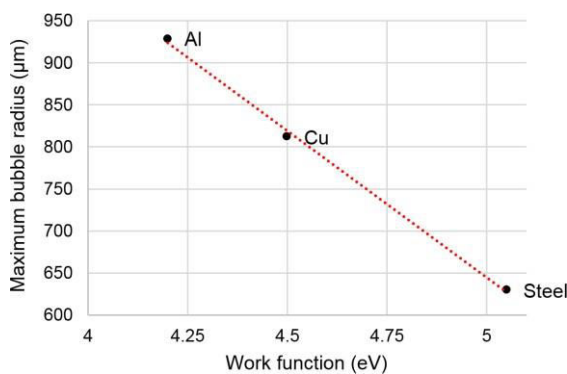


Fig. 11. Maximum bubble radius as function of the material work function

IV. CONCLUSION AND PERSPECTIVES

Spark discharge in liquid is an efficient method to produce nanoparticles. Here, we addressed the influence of electrode composition (namely, Al, Cu, and Steel) on the discharge characteristics. Although we have not addressed the produced particles, it has been extensively reported in literature for comparable discharge conditions, such as Cu- and Al-based nanoparticles (5-10 nm diameter) when Cu and Al electrodes were used [7, 14].

We observed that the electrode material significantly influences the discharge characteristics through its work function. The results showed that under similar conditions, lower is the work function (the case of Al electrode), higher is V_{bd} , longer is Δt , higher is Q , and higher is E (and vice-versa). Therefore, the bubble produced by discharge with Al electrode has a radius and lifetime much greater than those measured for a bubble produced by discharge with Cu or

Steel electrode; a linear relationship between maximum bubble radius and work function was established.

As for the influence of d and U_{input} , we observed that both, longer d or higher U_{input} , lead to higher V_{bd} , longer Δt , higher Q , and higher E . Therefore, it is expected to obtain the largest bubble when discharge has occurred at longer d and higher U_{input} .

V. REFERENCES

- [1] D. Wetz, J. Mankowski, D. McCauley, J. Dickens, and M. Kristiansen, "The Impact of water conductivity, electrode material, and electrode surface roughness on the pulsed breakdown strength of water", in Conference Record of the 2006 Twenty-Seventh International Power Modulator Symposium, May 2006, p. 104-107.
- [2] J. F. Kolb, R. P. Joshi, S. Xiao, and K. H. Schoenbach, "Streamers in water and other dielectric liquids", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 41, n° 23, p. 234007, November 2008.
- [3] A. Beroual, M. Zahn, A. Badent, K. Kist, A.J. Schwabe, H. Yamashita *et al.*, "Propagation and structure of streamers in liquid dielectrics", *IEEE Electrical Insulation Magazine*, vol. 14, n° 2, p. 6-17, March 1998.
- [4] O. Lesaint, P. Gournay, and R. Tobazeon, "Investigations on transient currents associated with streamer propagation in dielectric liquids", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. 26, n° 4, p. 699-707, August 1991.
- [5] A. Hamdan and M. S. Cha, "Carbon-based nanomaterial synthesis using nanosecond electrical discharges in immiscible layered liquids: n-heptane and water", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 51, n° 24, p. 244003, May 2018.
- [6] H. Kabbara, J. Ghanbaja, C. Noël, and T. Belmonte, "Nano-objects synthesized from Cu, Ag and Cu₂₈Ag₇₂ electrodes by submerged discharges in liquid nitrogen", *Materials Chemistry and Physics*, vol. 217, p. 371-378, September 2018.
- [7] X. Glad, J. Profili, M. S. Cha, and A. Hamdan, "Synthesis of copper and copper oxide nanomaterials by electrical discharges in water with various electrical conductivities", *Journal of Applied Physics*, vol. 127, n° 2, p. 023302, January 2020.
- [8] T. Merciris, F. Valensi, and A. Hamdan, "Synthesis of nickel and cobalt oxide nanoparticles by pulsed underwater spark discharges", *Journal of Applied Physics*, vol. 129, n° 6, p. 063303, February 2021.
- [9] R. Venger, T. Tmenova, F. Valensi, A. Veklich, Y. Cressault, and V. Boretskij, "Detailed investigation of the electric discharge plasma between copper electrodes immersed into water", *Atoms*, vol. 5, n° 4, Art. n° 4, December 2017.
- [10] T. Merciris, A. Hamdan, A. Dorval, and F. Valensi, "Simplified spark pulser for nanoparticles generation", *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 48, n° 10, p. 3656-3662, October 2020.
- [11] D. A. Hapidin, I. Saleh, M. M. Munir, and Khairurrijal, "Design and development of a series-configuration Mazzilli zero voltage switching flyback converter as a high-voltage power supply for needleless electrospinning", *Procedia Engineering*, vol. 170, p. 509-515, January 2017.
- [12] A. Kahn, "Fermi level, work function and vacuum level", *Mater. Horiz.*, vol. 3, n° 1, p. 7-10, 2016.
- [13] A. Hamdan, K. Čerņevičs, and M. S. Cha, "The effect of electrical conductivity on nanosecond discharges in distilled water and in methanol with argon bubbles". *Journal of Physics D: Applied Physics*, 50(18), 185207, 2017.
- [14] A. Hamdan, C. Noël, J. Ghanbaja, et T. Belmonte, « Comparison of Aluminium Nanostructures Created by Discharge in Various Dielectrics Liquids », *Plasma Chem Plasma Process*, vol. 34, n° 5, p. 1101-1114, sept. 2014