

文章编号: 1000-7032(2014)11-1388-06

大气压氩气针-板介质阻挡放电的光电诊断

尹增谦*, 沈崇丰, 王永杰, 王慧娟

(华北电力大学 数理学院, 河北 保定 071003)

摘要: 利用针-板介质阻挡放电装置,在4 mm长的气隙中产生了大气压氩气射流等离子体。利用电学方法实现了对放电电流和电荷量的同时测量,并且对放电脉冲数和放电功率进行了研究;利用发射光谱法对放电等离子体进行了空间分辨测量,并根据 Ar I 696.54 nm 的 Stark 展宽计算了等离子体的电子密度。结果发现:随着外加电压的增加,每个周期内的放电脉冲数增加,放电功率也增加。随着针头距离的增加,电子密度由 $2.94 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 逐渐减小到 $2.28 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 。实验结果表明:电场强度对放电脉冲数和电子密度的空间分布起重要作用。

关键词: 放电功率; 发射光谱; 电子密度; 介质阻挡放电

中图分类号: O461.2; O433.4

文献标识码: A

DOI: 10.3788/fgxb20143511.1388

Electrical and Optical Diagnostics of Plasma Jet Generated by Needle-plate Dielectric Barrier Discharge at Atmospheric Argon

YIN Zeng-qian*, SHEN Chong-feng, WANG Yong-jie, WANG Hui-juan

(Department of Mathematics and Physics, North China Electric Power University, Baoding 071003, China)

* Corresponding Author, E-mail: yinzq_1964@sina.com

Abstract: An atmospheric argon plasma jet was obtained with a needle-plate dielectric barrier discharge system. The discharge gap was kept at 4 mm and the argon gas flow rate was 0.5 L/min. A test capacitor and a test resistance were connected in series in the circuit, and the discharge current and the transport charge were measured simultaneously. The average discharge power in a period of the applied voltage was calculated by Lissajous figure. The plasma jet was investigated spatially by optical emission spectroscopy, and the electron density was estimated by Stark broadening of Ar I 696.54 nm. It is found that the discharge is asymmetric at different discharge phases, and more discharge current pulses are generated during the positive half cycle of the applied voltage. In addition, with the increasing of the applied voltage, the pulse number and the discharge power increase. Moreover, the plasma density is in an order of 10^{15} cm^{-3} . With the increasing of the distance from the needle tip, the electron density of the plasma jet decreases from $2.94 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ to $2.28 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. The results show that the electric field plays an important role in the discharge current number and the spatial distribution of the electron density.

Key words: discharge power; optical emission spectroscopy; electron density; dielectric barrier discharge

收稿日期: 2014-08-17; 修订日期: 2014-09-10

基金项目: 中央高校基本科研业务费(2014MS166)资助项目

1 引 言

近年来,由于低温等离子体在臭氧产生、材料表面改性和杀菌等方面具有巨大的应用前景而受到了人们的广泛关注。大气压针-板介质阻挡放电是产生低温等离子体的一种重要方法,具有不需要昂贵的真空设备并且容易操作的优点^[1-8]。在对大气压针-板介质阻挡放电等离子体的诊断中,放电功率和电子密度是两个重要的放电参数,它们直接影响着活性自由基的产生效率。对于放电功率,一般是将串联在放电回路中的测试电阻换成测试电容,通过测量测试电容两端电压并采用李萨如图形对放电功率进行计算。这种方法存在不能同时测量放电电流和放电功率的不足。大气压针-板介质阻挡放电是一种复杂的非平衡态气体放电。为了探索其放电机理,非常有必要对放电电流和放电功率进行同步测量。然而,到目前为止,还未见到对放电电流和放电功率进行同步测量的相关报道。对于等离子体密度,主要采用无干扰的发射光谱法进行在线测量。卢新培^[8]在大气压等离子体射流方面进行了大量的研究工作,对等离子体射流产生机理进行了深入研究,并对等离子体射流在生物医学领域的应用进行了探索。李森等^[9]以氮气添加少量氩气为工作气体,测量了射频电源驱动的平板介质阻挡放电中 Ar I 696.54 nm 发射光谱,从光谱线型中分析出 Stark 展宽,并以此为依据,计算了电子密度沿放电通道的分布以及电子密度随输入功率的变化。董丽芳等^[10]以大气压氩气为工作气体,采用 40 kHz 交流电源驱动,在针-板介质阻挡放电装置中产生了射流等离子体。由于开放的大气环境中含有一定量的水蒸气,氩气放电使得这些水蒸气电离而产生 H α 谱线。作者利用 H α 发射谱线的 Stark 展宽计算电子密度,另外,还研究了电子温度对电子密度的影响。然而,到目前为止,对针-板介质阻挡放电中电子密度空间分布的研究还未见报道。

本文利用针-板介质阻挡放电装置,在大气压氩气中产生了 4 mm 长的射流等离子体柱。采用电学方法同时测量了放电电流和放电功率。利用发射光谱法对放电等离子体柱进行了空间分辨测量,并根据 Ar I 696.54 nm 的 Stark 展宽计算了等离子体柱的电子密度。

2 实 验

实验装置如图 1 所示。用不锈钢空心针头(外直径 2 mm,内直径 1.6 mm)作为电极并与高压电源相连。另一电极为铝块(直径 50 mm、高 30 mm 圆柱置于长 180 mm、宽 100 mm、高 20 mm 底座上),与 4.7 nF 测试电容和 50 Ω 测试电阻串联并接地,其表面覆盖一块厚度为 1.5 mm 的玻璃板。通过测量电容和电阻两端的电压来计算放电功率和放电电流。空心针头与玻璃板的间距为 4 mm,工作气体氩气从空心针导入,气体流量为 0.5 L/min。等离子体低温电源(CTP-2000K)的输出电压范围为 0 ~ 30 kV,输出频率为 5 ~ 20 kHz。放电等离子体所发出的光信号由光电倍增管(PMT)进行探测。高压探头(Tektronix P6015A, 1 000 \times)测量电源输出的电压。将电压信号输入至示波器(Tektronix DPO4054) A 通道,测试电阻两端的电压输入 B 通道,测试电容上的电压输入 C 通道,C 通道电压减去 B 通道电压即为电容两端电压,由此可以求出电荷量,进而可以求出放电功率。放电所发出的光经透镜成像后会聚到光纤光谱仪(Acton SP2750),并由计算机对发射光谱进行采集和存储。通过改变光纤探头的高度来实现对放电等离子体的空间分辨测量。该装置与文献[5]所使用装置的不同之处在于电容与电阻串联,这样可以实现同时测量放电电流和电荷量。而文献[5]所用装置为电阻与电容并联,用一个单刀双掷开关将两者与介质阻挡板下面的电极相连,示波器不能同时测量电阻或电容上的电压信号。分别测量时,即便高压探头上达到相同电压,放电装置所分电压也未必与之前相同。由于电荷量和放电电流是在不同状态下的,由此计算所得功率不易反映放电的真实情况。

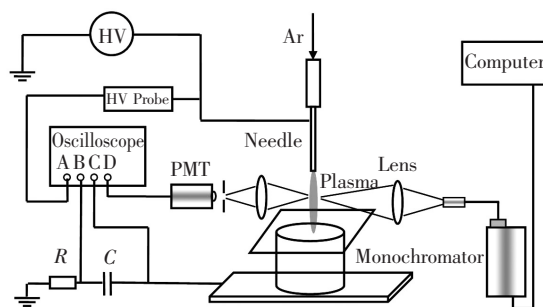


图 1 实验装置图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup

3 结果与讨论

3.1 电流脉冲数与电压的关系

实验测量了不同电压下放电时的波形图,如图 2 所示。当外加电压幅值分别为 3.24, 4.04, 4.44, 5.16, 5.68, 7.68 kV 时,在电压正半周期内的放电电流的脉冲数目分别为 1, 2, 3, 4, 5 和 9 个,而在电压负半周期内的电流脉冲数目分别为 1, 1, 1, 2, 3 和 4 个。该结果表明,随着电压幅值的升高,放电电流的脉冲数目增多,这与 Lv 等^[11]在 He 中的理论模拟结果一致。当电压大于气体

的击穿阈值时,气体被电离而形成放电通道;带电粒子在外加电场的作用下向两极运动并聚集在介质板上,形成壁电荷;壁电荷产生的内建电场与外加电场反向,从而合电场急剧减小;当合场强小于维持放电的场强时,放电熄灭,从而抑制放电向电弧放电进行。当电源的峰值电压为 3.24 kV 和 4.44 kV 时,电流脉冲宽度为几百个纳秒,表明放电方式为丝状放电;而当峰值电压为 5.68 kV 和 6.58 kV 时,电流脉冲宽度为微秒或十几微秒,表明这些放电为均匀放电模式^[12]。另外,在相同半电压周期内,放电电流脉冲数与 PMT 光脉冲的信

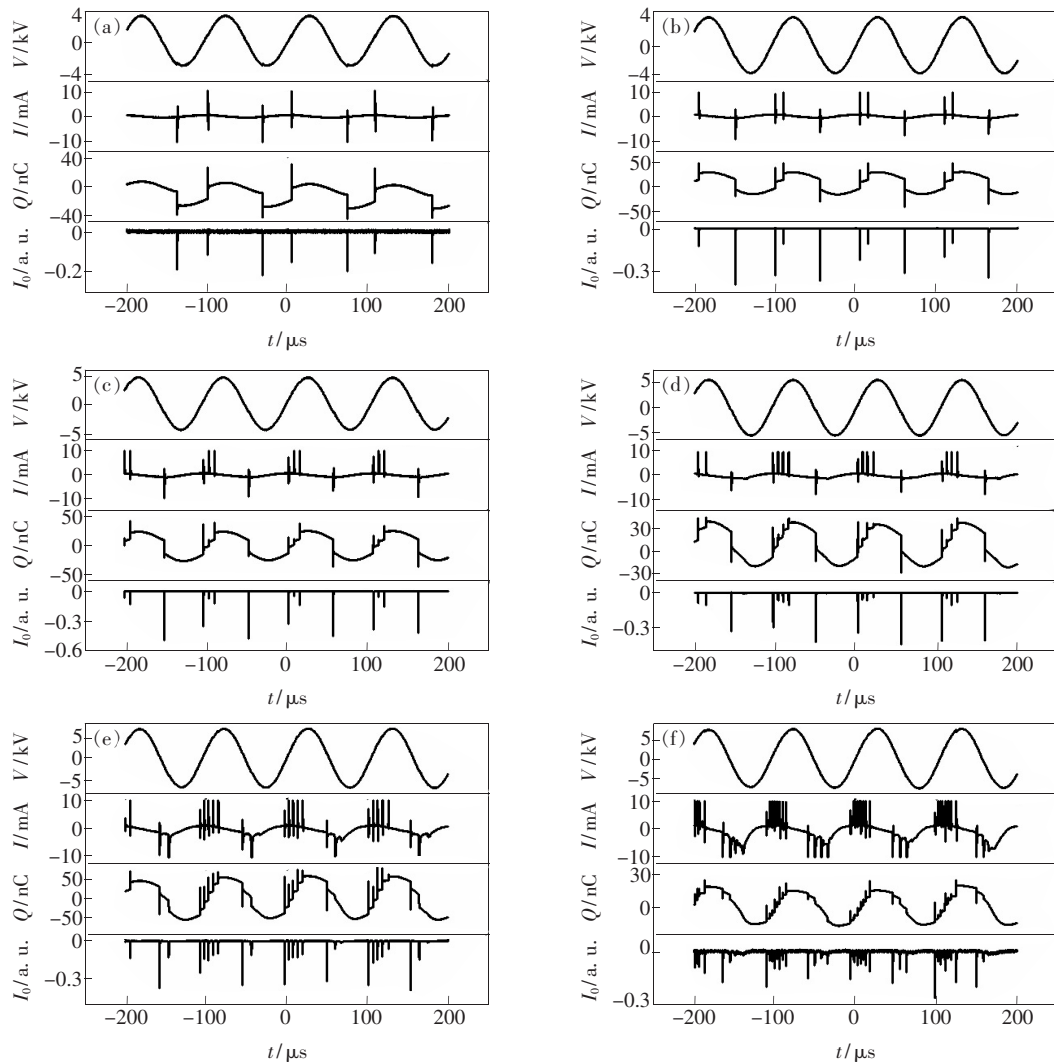


图 2 不同电压下的波形图。(a) $V=3.24$ kV; (b) $V=4.04$ kV; (c) $V=4.44$ kV; (d) $V=5.16$ kV; (e) $V=5.68$ kV; (f) $V=7.68$ kV。电源频率 $f=9.58$ kHz。在每幅图中,从上到下的波形分别为外加电压、总放电电流、传输电荷和光电倍增管信号。

Fig. 2 Waveforms as a function of the applied voltage. (a) $V=3.24$ kV. (b) $V=4.04$ kV. (c) $V=4.44$ kV. (d) $V=5.16$ kV. (e) $V=5.68$ kV. (f) $V=7.68$ kV. The frequency of the applied voltage is 9.58 kHz. In each figure, the waveforms from top to bottom are the applied voltage, the total discharge current, the transferred charges and the light signal from PMT, respectively.

号数相同,并且光脉冲信号产生的时刻与电流脉冲的产生时刻一一对应。放电电流的脉冲数目随电压变化曲线如图 3 所示,随着电压的增大,正、负半周电流脉冲数逐渐增多。在负半周的电流脉冲数增加的慢一些。另外,在相同的电压条件下,负半周脉冲数不大于正半周的脉冲数。

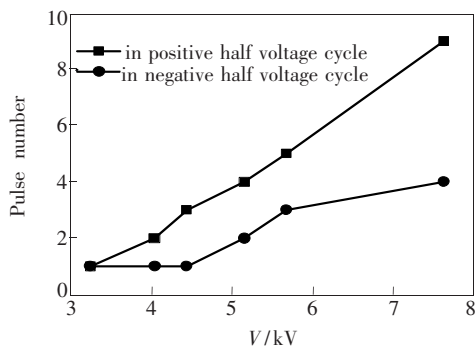


图 3 电流脉冲数随电压的变化关系

Fig. 3 Pulse number as a function of the applied voltage

在电压正半周期,针管为阳极,其附近的气体被电离后,产生的电子向针管运动并被针电极吸收。由于质量较大而运动缓慢,正电荷滞留在附近空间,形成空间正电荷,进而形成附加电场。从针尖到空间正电荷区域,附加电场与外加电场的方向相反,使得针尖附近的电场被削弱;从空间正电荷到下极板,附加电场与外加电场的方向相同,所以远离针尖区域的电场被增强。当外加电压进一步升高时,会产生多次放电,因此在放电正半周有多个电流脉冲。在电压负半周,针管为阴极,气体被电离后,电子远离针管向下极板运动,正电荷由于质量较大而形成空间正电荷。在远离针尖到下极板区域,由于外加电场与空间正电荷的附加电场方向相反,该区域的合场强被削弱。在相同条件下,其放电电流脉冲数小于正半周的放电电流脉冲数。可见,空间电荷形成的附加电场是导致电流正负半周脉冲数不相等的原因。另外,在图 2(e)和 2(f)中,由于外加电压较高,所以熄灭本次放电所需要的反向附加电场较强。当附加电场大于气体的击穿阈值时,会在电压下降到电压零点附近时达到气体的击穿阈值,从而使气体电离,形成以附加电场为主导的电压下降沿放电。所以,大于气体击穿阈值的空间电荷场是形成电压下降沿放电的原因。

3.2 针-板 DBD 放电功率

已知放电电压与极板电荷量,利用李萨如图

形法,根据公式 $p = fA$ 可以得到放电功率,其中 f 为外加电压的频率, A 为李萨如图形的面积。由此得到放电功率随着电压以及电流脉冲数的变化关系,如图 4 所示。从图中可以看出,随着脉冲数和电压的增加,放电功率逐渐增大。

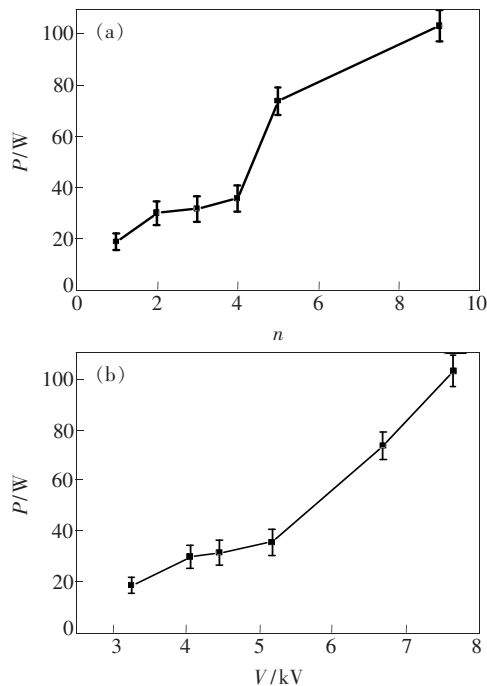


图 4 放电功率随电流脉冲数 (a) 以及电压 (b) 的变化关系

Fig. 4 Discharge power as a function of the pulse number (a) and the applied voltage (b)

3.3 电子密度的空间分布

实际谱线线型为 Voigt 综合线型,该线型为洛伦兹线型与高斯线型卷积所得。其中,洛伦兹线型包括自然展宽、共振展宽、范德瓦尔斯展宽以及 Stark 展宽,高斯线型则包括多普勒展宽和仪器展宽。在大气压条件下,自然展宽和共振展宽可以忽略不计,范德瓦尔斯展宽的值 $0.003 \text{ nm}^{[13]}$ 。对于洛伦兹线型,综合展宽为各部分展宽之和^[14],所以得到洛伦兹展宽就可以求得 Stark 展宽。

图 5 为放电所产生的射流等离子体的照片。从图中可以看出:在针头处,等离子体柱呈白色,亮度较高;在远离针头的区域,其亮度逐渐减弱;当其到达玻璃板时,呈漏斗状分布,亮度进一步降低,颜色呈淡紫色。射流等离子体亮度的不同说明不同位置处的等离子体参数不同。为了研究放电等离子体柱中的电子密度,我们对不同空间位置处的发射光谱进行了测量。实验测量了等离子

体射流不同位置处的 Ar 696.54 nm 光谱,根据所测光谱利用 Stark 展宽可以计算不同位置的电子密度。图中 A、B、C、D 各点相距 1 mm,以 D 点所测光谱为例,求出该点电子密度。

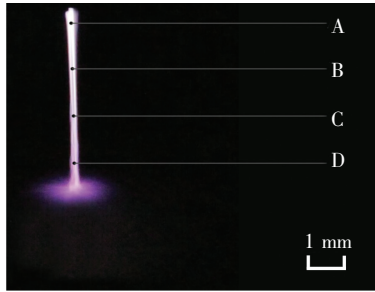


图 5 外加电压 4.44 kV 时的等离子体射流照片,曝光时间 1 ms。

Fig. 5 Image of the plasma jet at the applied voltage of 4.44 kV. Exposure time is 1 ms.

实际所测光谱为能量按波长的分布函数,将其进行归一化,如图 6 所示。根据文献[15],将其变成能量按频率的分布函数,进而对其进行 Voigt 拟合,得到如图 7 所示的拟合曲线,由此可得洛伦兹展宽 ν_L ,按照公式

$$\Delta\lambda_L = \frac{c}{\nu_1} - \frac{c}{\nu_2} = \frac{c(\nu_2 - \nu_1)}{\nu_1\nu_2} = \frac{c\Delta\nu}{\nu^2}, \quad (1)$$

对其进行变换,得到洛伦兹展宽。进而可得 Stark 展宽,根据文献[16]:

$$\Delta\lambda_{\text{stark}} = 2 \times 10^{-16} \omega N_e + 3.5\alpha \times (1 - 0.068 N_e^{1/6} T_e^{-1/2}) 10^{-20} \omega N_e^{5/4}, \quad (2)$$

可以得到电子密度。其中, α 和 ω 分别是离子碰撞参数和电子碰撞展宽系数。根据文献[13]可知:在大气压条件下,电子温度 T_e 为 1 eV, α 和 ω 分别为 0.032 和 0.005 37 nm/(10^{16}cm^{-3})。其中含有 α 的部分是离子碰撞的影响,属于离子碰撞对展宽的修正,其远小于电子碰撞的影响,因此计算中可以忽略。则上式可简化为 $\Delta\lambda_{\text{stark}} = 2 \times 10^{-16} \omega N_e$, 这样谱线的 Stark 展宽就与电子密度变为简单的线型关系。将实验所测数据代入,可得 D 点电子密度为 $2.28 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ 。用同样的方法可以求得 A、B、C 3 点的电子密度分别为 2.94×10^{15} , 2.87×10^{15} , $2.59 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$, 进而可得电子密度随针头距离的变化图像,如图 8 所示。距离针头越近,电子密度越大。

众所周知,在大气压射流情况下,电子能量 T_e 与电场强度 E , 总碰撞截面,总粒子数关系为

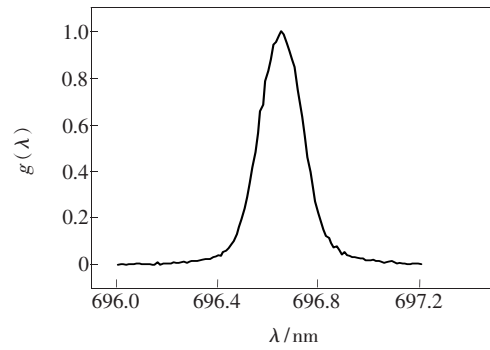


图 6 实验所测光谱图

Fig. 6 Profile of Ar 696.54 nm as a function of wavelength

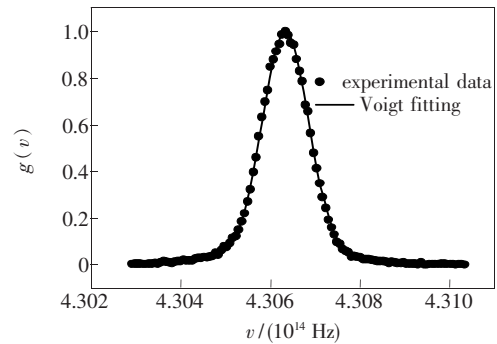


图 7 实验数据与拟合曲线

Fig. 7 Voigt fitting of Ar line

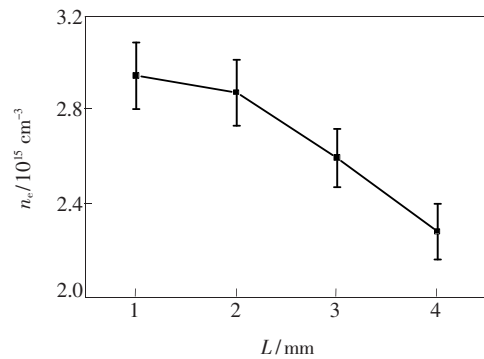


图 8 电子密度随针头距离的变化关系

Fig. 8 Electron density as a function of the distance from the needle

$T_e \propto \frac{E}{\sigma n_0}$ [17]。靠近针头处的电场强度较大,所以电子能量 T_e 较大,从而使得更多的中性粒子被电离,导致放电通道内的电子密度增加。而远离针头部分的电场强度较小,所以电子密度随之减小。

4 结 论

利用空心针-板介质阻挡放电装置,在大气压氩气中产生了 4 mm 长的射流等离子体柱。利用电化学方法同时对放电脉冲数和放电功率进行了研

究, 结果发现, 随着外加电压的增加, 每个周期内的放电脉冲数增加, 放电功率也增加。利用发射光谱法对放电等离子体柱进行了在线空间分辨测

量, 并根据 Ar I 696.54 nm 的 Stark 展宽计算了等离子体柱的电子密度。结果表明, 电子密度在 10^{15} cm^{-3} 量级, 并且离针头越远, 电子密度越小。

参 考 文 献:

- [1] Yu Z, Zhang Z T, Yu Q X, *et al.* Atmospheric pressure streamer and glow-discharge generated alternately by pin-to-plane dielectric barrier discharge in air [J]. *Acta Phys. Sinica* (物理学报), 2012, 61(19):195202-1-5 (in Chinese).
- [2] Dong L F, Li Y H. Propagation velocity in hollow needle to plate discharge [J]. *Chin. J. Lumin.* (发光学报), 2014, 35(4):476-480 (in Chinese).
- [3] Wang H, Xia X P, Zhou R D. Machining and functional testing of microplasma reactors [J]. *Opt. Precision Eng.* (光学精密工程), 2012, (4):811-817 (in Chinese).
- [4] Wang R R, Wang W. X-ray line profile measurements in laser produced plasma [J]. *Opt. Precision Eng.* (光学精密工程), 2014, 22(7):1737-1742 (in Chinese).
- [5] Hao Y P, Liu Y G, Zheng B. Analysis on lissajous figures of dielectric barrier glow discharge in atmospheric-pressure helium [J]. *High Voltage Eng.* (高电压技术), 2012, 38(5):1025-1032 (in Chinese).
- [6] Li H, Wei C Y, Zeng D C, *et al.* Discharge properties of integrated system of ambient ion source and micro air pump based on needle-to-cylinder structure [J]. *Opt. Precision Eng.* (光学精密工程), 2014, 22(6):1531-1537 (in Chinese).
- [7] Wang E W, Yu W X, Wang C, *et al.* Nanogap measurement by using surface plasmon resonance [J]. *Chin. Opt.* (中国光学), 2013, 6(2):259-266 (in Chinese).
- [8] Lu X P. Plasma jets and their biomedical application [J]. *High Voltage Eng.* (高电压技术), 2011, 37(6):1416-1424 (in Chinese).
- [9] Li S, Liu Z W, Chen Q, *et al.* Determination of electron density in atmospheric pressure radio frequency dielectric barrier discharges by stark broadening [J]. *Spectrosc. Spect. Anal.* (光谱学与光谱分析), 2012, 32(1):33-36 (in Chinese).
- [10] Dong L F, Ji Y F, Liu W Y, *et al.* Diagnostics and application of an atmospheric pressure plasma generated with a hollow needle-plate dielectric barrier discharge [J]. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 2012, 40(6):1701-1706.
- [11] Lv B, Wang X X, Luo H Y, *et al.* Characterizing uniform discharge in atmospheric helium by numerical modeling [J]. *Chin. Phys. B*, 2009, 18(2):1674-1056.
- [12] Zhang Y, Gu B, Wang W C, *et al.* Current voltage relationship for homogeneous dielectric barrier discharge in helium and nitrogen at atmospheric pressure [J]. *Acta Phys. Sinica* (物理学报), 2009, 58(8):5532-5538 (in Chinese).
- [13] Dong L F, Ran J X, Mao Z G. Direct measurement of electron density in microdischarge at atmospheric pressure by Stark broadening [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, 86(16):161501-1-3.
- [14] Gao Z H, An Y Y. Complete contour function of the line in various broadening effects [J]. *Chin. J. Quant. Electron.* (量子电子学报), 1988, 5(3):267-273 (in Chinese).
- [15] Yin Z Q, Wu C, Wang Y J, *et al.* Four styles of spectral line shape function and their transformation relation [J]. *Spectrosc. Spect. Anal.* (光谱学与光谱分析), 2012, 32(5):1189-1193 (in Chinese).
- [16] Griem H R. *Plasma Spectroscopy* [M]. New York: McGraw-Hill, 1964:492.
- [17] Li S Z, Qi W, Zhang J L, *et al.* Discharge characteristics of a radio-frequency capacitively coupled Ar/O₂ glow discharge at atmospheric pressure [J]. *Thin Solid Films*, 2011, 519:6990-6993.



尹增谦(1964 -), 男, 河北定州人, 教授, 2004 年于河北大学获得博士学位, 主要从事等离子体物理领域的基础理论及实验研究。

E-mail: yinzq_1964@sina.com