

激光与光电子学进展

大气压大体积非平衡等离子体放电技术

黄民双*, 许友文, 程苗

北京石油化工学院光机电装备技术北京市重点实验室, 北京 102617

摘要 大气压大体积非平衡等离子体技术对燃烧和激光等领域的发展起到了良好的推动作用。本文以解决大气压下放电不稳定性问题为主线,介绍了阵列式针状阴极放电、毛细管介质阻挡放电、等离子体阴极放电、微空心阴极放电以及微空心阴极辉光放电发生器的结构特点和设计思想,分析了不同放电装置的优势与不足,总结了目前实际应用中大气压大体积非平衡等离子体特性提升所面临的挑战。

关键词 等离子体; 辉光-弧光转换; 高压放电; 高压辉光; 准分子辐射源

中图分类号 O461.2+1

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP202158.0500007

Atmospheric Pressure and Large Volume Non-Equilibrium Plasma Discharge Technology

Huang Minshuang*, Xu Youwen, Cheng Miao

Beijing Key Laboratory of Opto-Mechatronic Equipment Technology,

Beijing Institute of Petrochemical Technology, Beijing 102617

Abstract Atmospheric pressure and large volume non-equilibrium plasma technology has played a good role in promoting the development of combustion and laser fields. This article focuses on solving the problem of discharge instability at atmospheric pressure, and introduces the structural characteristics and design of array needle cathode discharge, capillary dielectric barrier discharge, plasma cathode discharge, micro hollow cathode discharge, and micro hollow cathode glow discharge generator. The advantages and disadvantages of different discharge devices has been analyzed, and the challenges facing the improvement of the characteristics of atmospheric pressure and large volume non-equilibrium plasmas in practical applications has been summarized in the article.

Key words plasmas; glow-to-arc transition; high-pressure discharges; high-pressure glows; excimer radiation source

OCIS codes 350.5400; 140.2180; 140.4130

1 引言

大气压或高压大体积非平衡等离子体有非常重要的应用前景,特别是在气体燃烧^[1]和激光^[2]等领域的应用有独特的优势,例如通过使用电场来控制其燃烧火焰特性,通过高压大体积放电

获得更高激光功率。但是辉光放电的不稳定性,即辉光向弧光放电的转变成为了制约其应用的关键因素。

空间分布均匀的非平衡大气压等离子体放电被称为大气压辉光放电,描述这种放电主要依据低压真空中辉光放电的两个技术指标。其一是在低

收稿日期: 2020-07-06; 修回日期: 2020-07-19; 录用日期: 2020-08-03

基金项目: 北京市自然科学基金(3172012)

*E-mail: huangminshuang@bipt.edu.cn

气压下气体放电的伏安特性曲线上,辉光放电电流处于汤生放电和弧光放电之间,并且放电电流在较宽的范围内所对应的电压基本不变,这就意味着阴极热效应等因素的影响不容易使其转换到汤生或弧光放电,即低压辉光放电在时间上是稳定的;其二辉光放电的正柱区中带电粒子在空间上分布均匀稳定,且有较长的等离子体空间区域,为满足各种应用提供了可能^[3-7]。

气体激光器^[8-9]属于弱电离气体放电,即激光的产生依赖于非平衡碰撞等离子体来实现粒子数反转。低功率激光器通常是由正常辉光放电产生等离子体,由于激光器功率是放电电流和气压的函数,放电电流越大输出激光功率越高,在放电电流较小时,保持电流密度在辉光放电区域,能够获得稳定的激光输出。激发态粒子数上限随气压的增大而增加,这就意味着可以通过提高放电气压来提高激光功率。但是对于给定电流和等离子体的横截面较小的情况,放电电流密度的提高会导致放电不稳定,因此如何获得最大的放电体积和激发态粒子数成为了气体激光器设计中需要解决的一个关键技术问题。

本文对大气压大体积非平衡等离子体放电的研究现状进行综述,重点以解决大气压下放电不稳定性问题为主线,介绍各种大气压大体积放电发生器的结构特点、设计思想及应用。

2 高压大体积放电面临的问题与挑战

图 1 为气体放电产生非平衡状态等离子体的基本结构,由 2 个电极组成放电空间,电极采用金属或石墨等固体材料,但也可以采用其他物体的表面,如气体-液体表面、固体-液体表面等。采用直流、交流或脉冲电源建立电极间的电场 E ,当电场强度的大小提高至击穿场强时将引发放电。非平衡低温等离子体放电过程中存在基本粒子包括:光子 N_p 、电子 n_e 、基态原子(或分子) N 、激发态原子(或分子) N^* ,以及正离子 N_i 和负离子 N^- ,电极与等离子体过渡区域的电流密度用传导电流 J 表示。

在强电场作用下,初始自由电子将在气体中加速并得到能量,加速的电子与重粒子(离子或气体分子)碰撞引发电离产生带电粒子(电子和离子),即产生所谓的气体放电。带电粒子密度随激发态

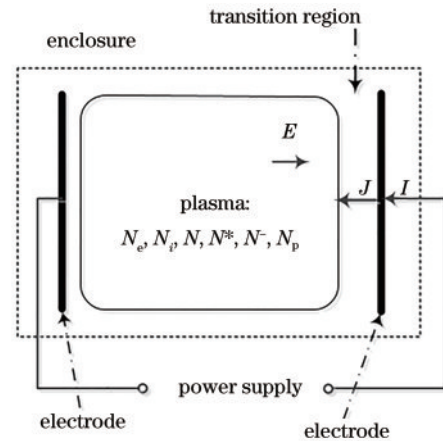


图 1 气体放电产生非平衡态等离子体的原理图

Fig. 1 Schematic of gas discharge generating non-equilibrium plasma

粒子、负离子和光子的密度增加而增加。若忽略漂移和扩散的影响,则稳态下电子密度 n_e 的连续方程可简化为^[10]

$$\alpha n_e + \Gamma = \beta n_e, \quad (1)$$

式中: α 和 β 分别为电子的有效生成率和消失率; Γ 为由外加辐射源产生的电子。(1)式表明稳态下电子的产生与消失是平衡的,其有效产生率是放电时粒子密度的函数^[10]

$$\alpha = f(n_e, N_i, N^-, N^*, N_p, E/N), \quad (2)$$

式中: E/N 为约化电场。通过函数(2)式可以计算出粒子密度,但必须知道粒子密度分布函数,因此通常采用近似方法计算。

阴极与等离子体过渡区域的电流密度 J 对于放电的稳定性起着关键的作用。根据低压辉光放电的伏安特性曲线,在外加电场、电极横截面、压强等参数确定的条件下,如果电流密度 J 不依赖于回路电流,则称为正常辉光放电,即:

$$J \sim \text{constant}. \quad (3)$$

(3)式说明电极横截面积正比于放电电流,这意味着可以通过提高电极横截面尺寸,在电极上通过足够的电流来产生大横截面(大体积)的等离子体。在电流为常数的条件下,辉光放电的电流密度与压强的平方成正比^[7],即:

$$J \sim p^2. \quad (4)$$

这说明在大气压或高压下,电流密度将显著增大,容易导致辉光过渡到弧光,造成放电的不稳定性。此外研究结果还表明,电流密度的增大还会造成其他影响,在电流密度增大到一定程度时,等离子体横截面将产生收缩效应,导致放电更不

稳定。特别是,在阴极与等离子体过渡区域的电场最强,这意味着该区域有更高的电流密度,造成气体温度升高,气压增大,叠加上等离子体横截面的收缩效应,形成一个雪崩式的正反馈,最终由于热效应导致辉光向不稳定的弧光转换。因此,如何避免或消除放电不稳定性影响是目前大气压或高压放电等离子体研究中面临的关键科学和技术问题之一。

大气压条件下产生大体积或大面积均匀稳定的等离子体是目前实际应用中面临的一大挑战,现阶段主要有两条技术途径,一是利用单一放电单元自身的体积扩展来实现,例如通过扩大电极横截面来扩展等离子体横向截面,但是在进行纵向扩展时,往往会造成击穿电压升高、活性粒子浓度下降、放电稳定性和均匀性变差等问题,很显然,单一放电单元的体积扩展是有限的,因而也限制了它的实际应用。另一条途径是以某种小体积大气压放电为基本单元,利用大量放电单元的并行运行来形成大体积或大面积均匀等离子体阵列,其优势在于可以通过调整放电单元排列结构,来满足各种应用中对大体积等离子体的不同需求,例如对不同材质或形貌复杂材料表面的处理。

但是,大气压大体积等离子体阵列在实际应用中也存在一些亟待解决的问题,其中一个关键问题是进行阵列几何排列时,各基本放电单元之间需要一定的间隙,以避免各单元之间放电的相互干扰,这个间隙的存在,使得放电产生的等离子体呈点状密集排布,而无法覆盖整个阵列区,造成了放电有效面积的减少、等离子体分布不均匀等问题。就目前的技术而言,要想突破现有随着间隙减小带来的放电稳定性这一技术瓶颈依然有较大的难度。

3 限制电流密度的高压大体积放电技术

放电不稳定性源于阴极与等离子体过渡区域电子密度的自由增长,因此不少文献提出了通过限制电子密度的增长来获得稳定放电的方法,这些方法主要有带有稳定电阻的阵列式针状阴极放电、介质阻挡放电(DBD)、毛细管等离子体放电等。

带有镇流电阻的阵列式针状阴极放电装置如

图 2(a)所示,它是多针-板电极结构的直流激励大气压辉光放电,由 Akishev 等^[11]首次提出,采用快速气流在负电晕电极上获得均匀辉光放电。其阴极针相互之间距离为毫米量级,镇流电阻的一个主要作用是限制电流密度,以防产生电弧,另一个作用是在放电过程中若电流增大,则电阻上的电压也增大,使得阴极附近区域中形成的本征电场与外加电场方向相反,起到镇流作用。图 2(a)中的照片是在放电电流密度为 1.5 mA/cm^2 、电极间隙为 12 mm 、等离子体速度为 55 m/s 的条件下拍摄的^[12]。

这种方法也称为横向放电(TD),因为放电轴横切于光轴,它是把多个独立的针板放电融合在一起,形成一个连续的放电空间。从原理上看,放电横截面积可以扩展至任意大小,可以在大气压下获得大面积的均匀辉光放电。但由于放电工作在直流击穿电场(30 kV/cm)附近,为防止产生电弧,电流密度被限制在 10 mA/cm^2 ,对应的电子密度为 10^{10} cm^{-3} ,因此电极间距只能达到厘米量级,限制了放电有效面积的提高。

多针-板电极结构的直流激励大气压辉光放电可用于挥发性有机化合物的去除,如去除二氧化硫和氮氧化物烟气^[11],在用于三氯乙烯的去除时,当能量密度为 35 J/cm 时,可获得高达 47% 的去除率^[13-14],尤其重要的是,三氯乙烯加入量的增加提高了放电阻抗,从而提高了在气流方向上电流的分布均匀性。

大气压介质阻挡放电(APDBD)是开放环境下产生大体积非平衡等离子体的重要方式之一,图 2(b)为介质阻挡放电等离子体射流源结构和放电图像^[15]。它是将绝缘介质插入两电极之间^[3-4,6],以限制放电电流的自由增长,这个介质相当于图 2(a)中镇流电阻的限流作用,由于放电电流非常小,介质不会热化,从而不需要在装置上附加水冷系统,使得装置结构简单,便于阵列化来扩大放电体积。大气压介质阻挡放电具有许多独特的优势:1)当气体被击穿建立导电通道后,空间电荷累积到介质上,介质表面电荷建立的本征电场与外电场方向相反,将削弱原有电场,使放电电流保持稳定,避免火花放电或弧光放电的形成,因此介质又起到了上述镇流电阻的镇流作用;2)在电极上施加足够高的正弦交流电压时,将在放电空间中形成大量平行的丝状通道,在快

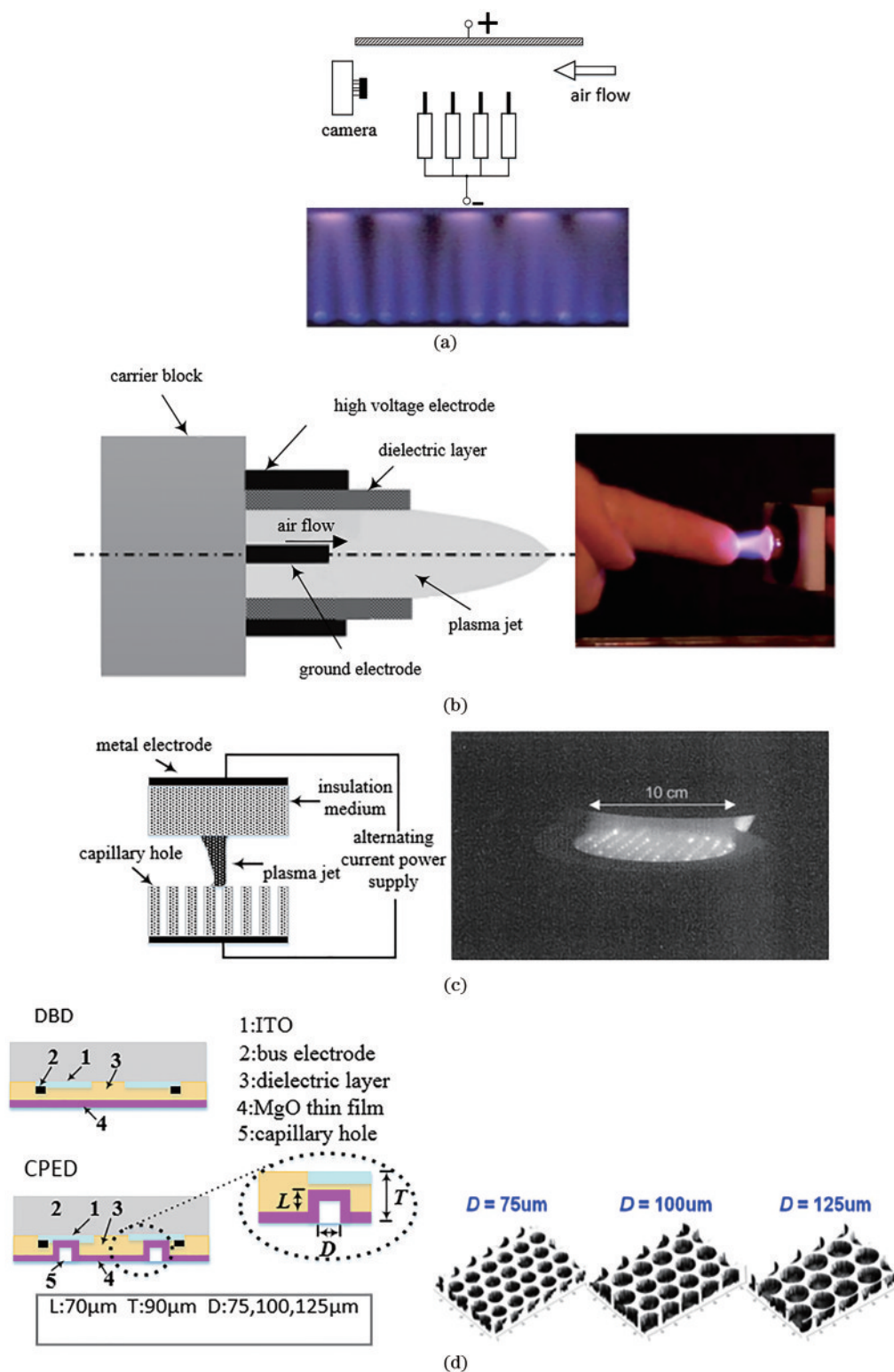


图 2 限制电流密度的高压大体积放电。(a)带有镇流电阻的阵列式针状阴极放电^[12]；(b)介质阻挡放电等离子体射流源结构和放电图像^[15]；(c)毛细管等离子体电极放电^[16]；(d)基于介质阻挡放电的等离子体显示器前基板改造成毛细管等离子体电极放电结构和介质表面毛细管的激光显微图像^[17]

Fig. 2 High-voltage large-volume discharge with limited current density. (a) Array needle cathode discharge with ballast resistance^[12]; (b) dielectric barrier discharge plasma jet source structure and discharge image^[15]; (c) capillary plasma pelectrode^[16]; (d) laser microscopic image of DBD-based plasma display front substrate transformed into CPED structure and laser micrograph of the capillary on the surface of the medium^[17]

速流动的气流作用下,可形成均匀稳定的大气压辉光放电;3)外加电压主要加在介质上而不是阴极附近,电极间距可以达到几个厘米以上,这一特点使之与其他采用裸露金属电极结构的等离子体发生器有显著区别,因此利用介质阻挡放电的大气压大体积非平衡等离子体得到了广泛的研究。

大气压介质阻挡放电依赖于微通道的放电结构,等离子体电子密度为 10^{10} cm^{-3} 数量级^[4],然而低电子密度限制了这种放电在许多领域的应用,为了解决这一问题,Kunhardt^[16]提出了毛细管等离子体电极放电(CPED),如图 2(c)所示。CPED 和传统介质阻挡放电的区别在于:阻挡介质上有许多穿透的小孔,这种放电除丝状和辉光放电外,还存在着细管喷射模式,因此可以提高电离率。其喷射的临界频率依赖于毛细管几何尺寸的比率 L/D ,其中 L 为毛细管长度, D 为毛细管的直径,通常在 kHz 数量级,当电源频率小于临界频率时产生弥散放电;当电源频率大于临界频率时,等离子体将从毛细管中喷射出来。当介质上毛细孔足够多并形成阵列时,各个毛细管射流交迭形成均匀等离子体,即产生大体积辉光放电等离子体。在空气-水蒸气等不同气体中,采用毛细管放电结构的放电体积可以达到 50 cm^3 数量级,电子密度达到 10^{12} cm^{-3} 数量级^[16],比传统大气压介质阻挡放电大两个数量级。将传统的基于 DBD 的等离子体显示器前基板改造成 CPED 结构^[17],如图 2(d)所示,图中还给出了介质表面毛细管的激光显微图像。这种毛细管等离子体电极放电是通过稳定电弧来抑制阴极放电的下降区域电弧跃迁的不稳定性,可以在大气压下获得高电子密度的稳定辉光放电。

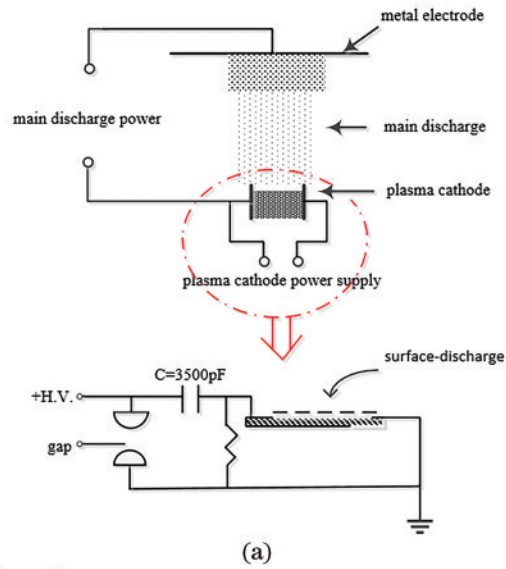
大气压介质阻挡放电还有许多应用,例如汽车工业中催化剂颗粒物质的去除、材料表面改性等^[3-4,6]。随着相关应用领域的不断拓展,其对大气压大体积非平衡等离子体理论研究及技术发展不断提出新的挑战。例如,为了提高处理效果,如何提高阵列等离子体的有效面积和均匀性;为了适应不同条件,如何对等离子体中化学活性粒子种类和浓度进行选择或控制;为了提高处理效率,如何结合被处理材料的特性来设计电极结构等。

4 等离子体阴极放电技术

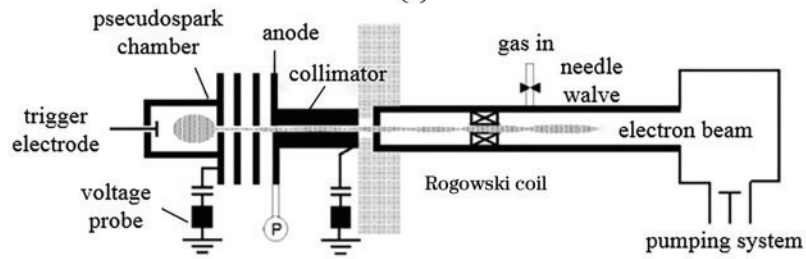
为了避免阴极区放电热不稳定,导致金属阴极的表面电子热发射产生电弧,一种最基本设计思想就是放弃使用金属阴极。1979 年德国的 Christiansen 等^[18]提出了一种空心阴极电极结构,主要用于产生电子束源,放电发生在低气压下(5~80 Pa)的一种特殊几何电极结构中,电极由带中心孔的阴极和带孔阳极组成,是一种孔中心对称、自持的瞬态气体放电。这种装置被称为伪火花放电(PS),实际上,它是利用在阴极空心中产生的等离子体来取代金属阴极,因此也称为等离子体阴极放电。图 3 为采用等离子体阴极的放电装置^[19-23],这些装置的关键技术是空心阴极结构的设计,例如在图 3(a)中采用表面放电结构形成等离子体阴极,它是在 1.2 mm 厚的玻璃纤维-环氧树脂上镀金属,放电表面积为 $6 \times 30 \text{ cm}^2$,表面放电等离子体阴极为辅助放电回路,等离子体阴极和金属阳极构成主放电回路,主放电和辅助放电都使用小于 $1 \mu\text{s}$ 的脉冲电源激励。空心阴极中的等离子体也可由触发电极来产生,如图 3(b)、(d)所示。等离子体阴极由于与主放电回路紧密连接,可以消除阴极位降。但是,在辅助放电和主放电回路之间可能形成双鞘层结构,会导致新的放电不稳定。

等离子体阴极放电过程非常复杂,它取决于空心阴极的几何形状、材料、工作气体、气压以及电极厚度、电极间距等参数^[19-23],在脉冲和直流电压激励下,等离子体阴极放电将产生高亮度 [$10^{12} \text{ A}/(\text{m}^2 \cdot \text{rad}^2)$]、低发射率 ($15 \text{ mm} \cdot \text{mrad}$) 和高能电子光束^[24],在击穿过程中产生高电流密度 ($10^4 \text{ A}/\text{cm}^2$) 和高功率密度 ($10^9 \text{ W}/\text{cm}^2$)^[25],是位于 Paschen 曲线左边的气体低气压放电,其约化电场 (E/N) 为 $10^{11} \text{ V} \cdot \text{cm}^2$ 。等离子体阴极放电具有非常重要的潜在应用,例如快速高功率等离子开关、电子束光刻、等离子加工、极紫外线源、强 X 射线源、微波辐射源等^[26-27]。

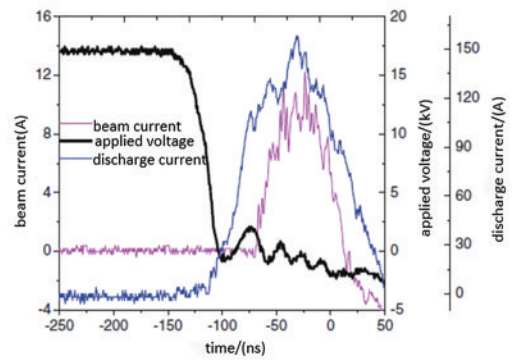
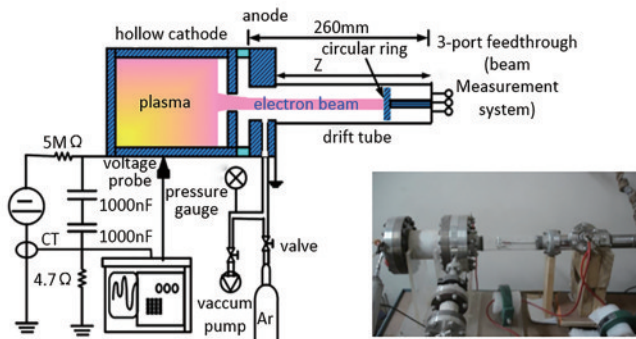
虽然等离子体阴极放电技术能够产生高电流密度、高功率密度和高能电子束,与其他放电技术相比优势非常明显,但是它要求在低气压下的密闭空间中产生,且需要消耗大量的氩气等工作气体,如何将该装置产生的电子束源用于大气压环境下,或者在大气压下实现等离子体阴极放电,是今后的一个重要研究课题。



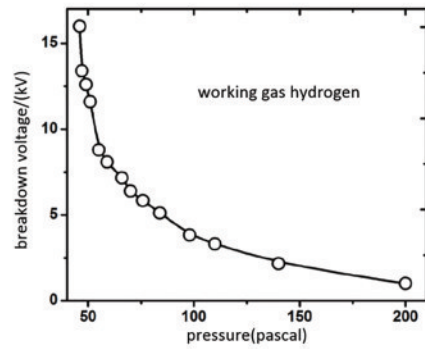
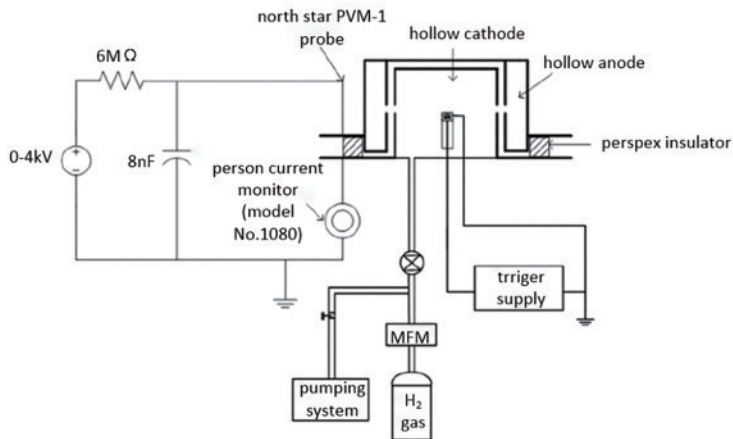
(a)



(b)



(c)



(d)

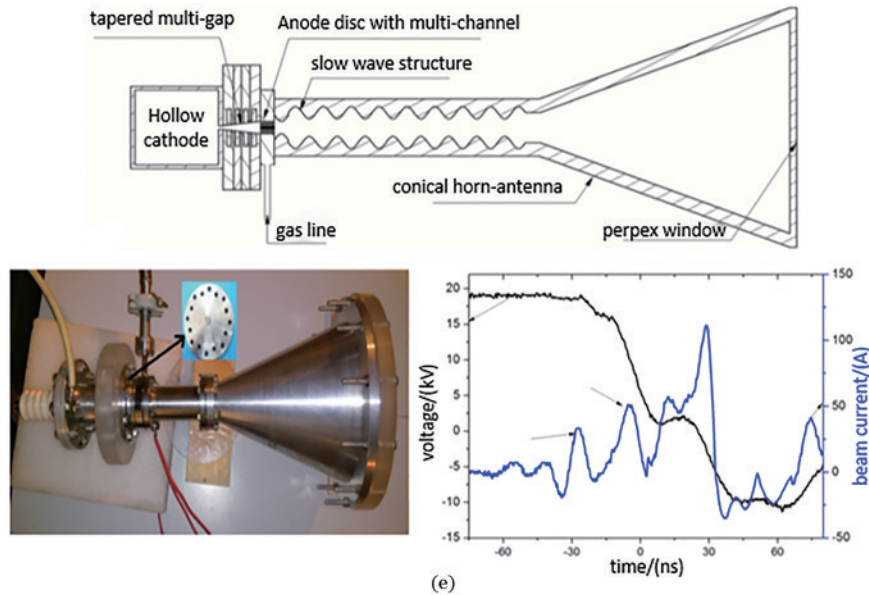


图 3 等离子体阴极的放电装置图。(a)采用等离子体的激光放电装置原理图,其中电极的体积放电相对于表面放电时间是可控的^[19]; (b)等离子体阴极放电光束偏转后加速实验装置^[20]; (c)基于自击穿的单间隙等离子体阴极电子枪^[21]; (d)大电流线性孔径辐射多通道伪火花开关^[22]; (e)基于 X 波段慢波振荡器的锥形多间隙多孔径 PS 信号源电子枪^[23]

Fig. 3 Schematic diagram of the discharge device of the plasma cathode. (a) Schematic of the laser discharge device using a plasma electrode in which the relative timing of the volume discharge and the surface discharge can be controlled^[19]; (b) schematic for the post-acceleration experiment of the plasma cathode discharge electron beam^[20]; (c) self-breakdown-based single-gap plasma cathode electron gun^[21]; (d) high current linear aperture radial multichannel pseudospark switch^[22]; (e) a tapered multi-gap multi-aperture pseudospark-sourced electron gun based X-band slow wave oscillator^[23]

5 微空心电极放电技术

5.1 微空心阴极放电效应

微空心阴极放电(MHCD)效应具有许多独特的性能,能够产生高能电子,因而可广泛应用于光谱分析、表面处理、真空镀膜以及气体激光器等领域。其基本结构如图 4 所示,阴极和阳极采用不易溅射的金属钨材料,在阴极用激光或超声波打孔的方法,制作

几十微米到几百微米的微孔,中间绝缘体采用云母或陶瓷片,厚度在几百微米左右。电源可采用直流、交流或脉冲电源。空心阴极放电效应的机理是电子摆动,即电子在电场的加速下,将在空心阴极小孔中来回摆动,这样将大大增加电子与重粒子的碰撞几率,因而能够产生比普通电极放电更多的高能电子数。

空心阴极放电效应的产生依赖于气压 p 与阴极孔径 d 的乘积,最低的气压 p 需要满足下式,

$$pd = \frac{\ln \eta^{-1}}{\sigma n_0}, \quad (5)$$

式中: n_0 为 1 Torr (1 Torr=133.322 Pa) 下气体的密度; η 为损耗系数; σ 为平均碰撞截面,氙的平均截面测量值为 $5.5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$, 约为孔中心处电离面积 ($3.2 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$) 的 2 倍。由 (5) 式可以看出,要提高工作气压,就需要减小阴极孔径,当阴极孔径减小到亚毫米量级时,就会在大气压下产生空心阴极放电效应。

微空心阴极放电的伏安特性^[7]类似于低压真空中气体放电特性,在低电流时为汤生放电模式。当电流增加到一定值时,放电进入空心阴极放电模式,放电电流具有稳定的正常辉光放电特征,当电

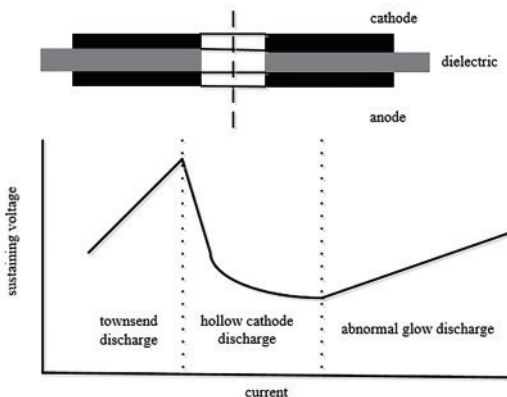


图 4 微空心电极结构及伏安特性曲线^[7]

Fig. 4 Micro-hollow electrode structure and volt-ampere characteristic curve^[7]

流进一步增加时,放电进入反常辉光放电模式。

微空心阴极放电很适合作为高气压辉光放电,能够满足准分子激光辐射需要的高能电子数目多、高气压等基本条件,因此MHCD一个重要的发展方向是用于制作微型准分子激光器和激光器阵列,同时利用微空心阴极放电阵列亦可形成平板准分子

光源和应用于等离子体显示等^[28-39]。

5.2 代表性的微空心阴极放电结构设计思想

MHCD微空心阴极结构主要有平面结构与毛细管结构,最常用的是微空心阴极放电平面结构,这种结构已经得到广泛的实验研究。

图 5(a)为亚毫米圆柱形空心阴极放电电极结

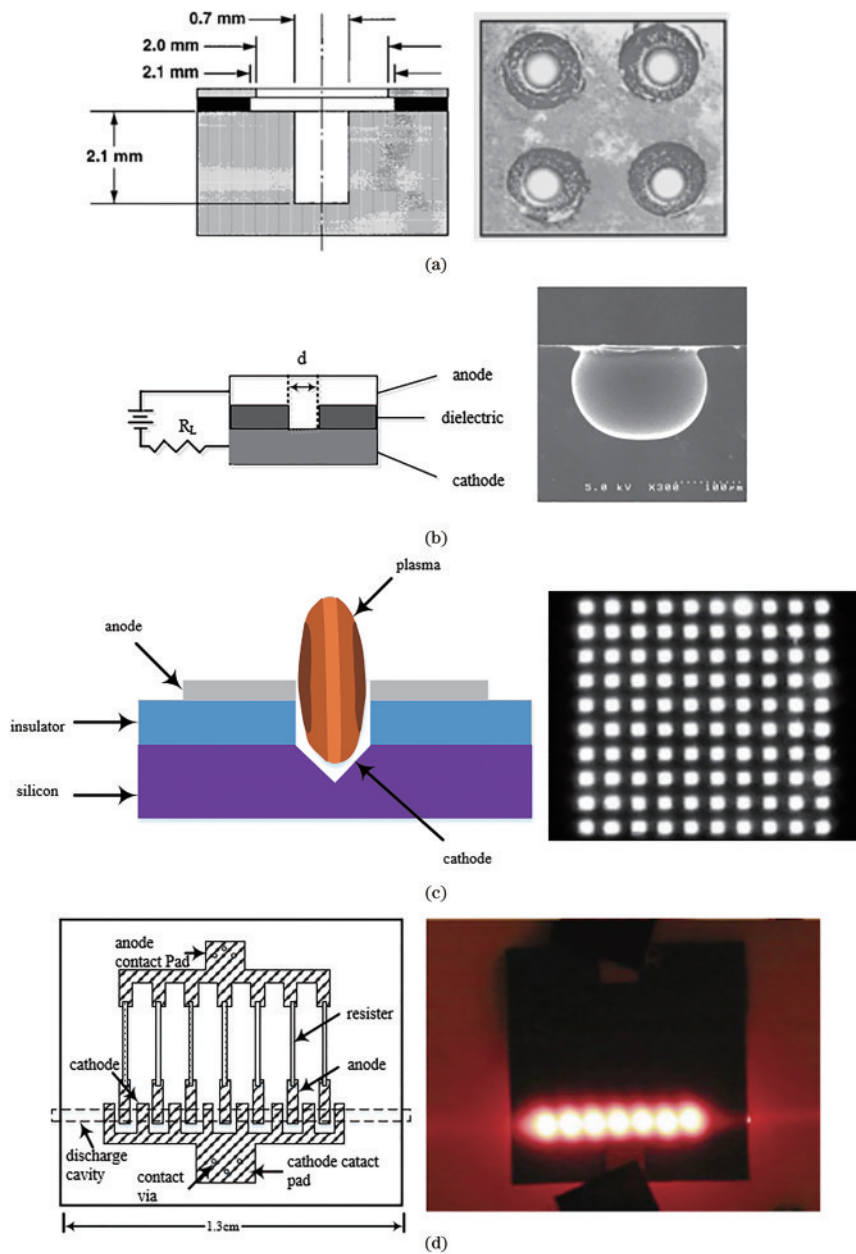


图 5 几种代表性的微空心阴极放电结构^[29-33]。(a) 微空心放电电极结构及 2×2 阵列空心阴极放电照片;(b)微空心放电刻蚀硅基片装置及刻蚀的硅孔 SEM 照片;(c)倒锥体微孔的微空心阴极结构及 10×10 阵列放电照片;(d)微空心阴极放电单元构成的线性阵列放电装置

Fig. 5 Several representative micro hollow cathode discharge structures^[29-33].(a) Micro hollow discharge electrode structure and 2×2 array hollow cathode discharge photos;(b) micro hollow discharge etching silicon substrate device and etched silicon hole SEM photo;(c) micro hollow cathode structure of inverted pyramid and 10×10 array discharge photos;(d) linear array discharge device composed of micro hollow cathode discharge unit

构及 2×2 阵列微孔阴极放电的 CCD 照片^[29], 其阴极和阳极采用金属钼材料, 在其上开了一个直径为 0.7 mm、深度为 2.1 mm 的圆柱形孔, 阴极与阳极之间用一个厚为 0.25 mm、直径为 2 mm 的环状云母垫片隔开。采用 600 V 直流电压上叠加峰值为 800 V、脉宽为 1 ms 的脉冲电压激励。空心电极放电的电离密度要超过普通放电模式, 这是空心阴极腔中两相对阴极位降区之间的“钟摆电子”所致。

利用微放电技术进行硅刻蚀的装置和刻蚀的硅孔扫描电子显微镜 (SEM) 照片^[30], 如图 5(b) 所示, 其中阳极采用金属铜, 阴极为被加工硅基片, 中间绝缘体用聚酰亚胺, 在铜片上开微孔, 孔径为 $200 \mu\text{m}$ 、孔深为 10 mm, 工作气体为 CF_4/Ar 混合气, 气压为 20 Torr, 放电电流为 3 mA。该装置利用了等离子体在微孔中的摆动效应, 即微空心阴极放电效应, 使得离子与硅基体充分作用, 可获得最佳的腐蚀效果。利用微放电技术实现刻蚀和沉积薄膜有独到优势, 其速率可达到 $10 \mu\text{m}/\text{min}$, 刻蚀线宽可达到亚微米级, 且气体温度低不会损伤热敏基板。

图 5(c) 为一种倒锥体 (倒金字塔) 阴极的微空心阴极结构^[31-32], 阴极为硅基片, 中间绝缘体用 0.9 μm 厚的 SiO_2 、0.5 μm 厚的 Si_3N_4 和 8 μm 厚的聚酰亚胺叠加而成, 在硅表面上开 10×10 阵列微孔, 其面积为 $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$, 电极材料为 150 nm 的金属镍, 气压为 1200 Torr、放电电流为 20 mA。其特点是在气压为 400 Torr 甚至高于大气压下, 产生空心阴极效应的放电, 并且产生一个冲击能量分布, 能获得比图 5(b) 电极结构效率更高、质量更好的加工效果。

微空心阴极放电产生的等离子体密度随气压的增加而增加, 然而这种作用会受到辉光-弧光转换

阈值的限制。微放电阵列以单个微空心阴极放电作为基本单元, 利用多个单元并行运行产生大面积均匀等离子体。图 5(d) 为由 7 个微空心阴极放电单元构成的线性阵列放电装置^[33], 每个孔径为 $80 \mu\text{m} \times 380 \mu\text{m}$ 、长度为 1 cm, 由 7 层陶瓷制造而成, 电极采用铂金, 气压为 600 Torr。该装置采用电子碰撞或光致发射来泵浦气体或蒸汽, 适合于作为微型激光器的激励源。

微空心阴极阵列放电在实际应用中需要解决两个关键问题, 一是提高放电的有效面积, 由于介质层的存在以及放电单元之间的相互作用, 临近单元之间需要有一定的间隙以避免相互干扰或影响, 二是各放电单元需要一个几十千欧以上的镇流电阻^[34], 这对于单片集成芯片的设计是一个重大的挑战。

5.3 毛细管微空心阴极放电

毛细管微空心阴极放电的电极部分由金属毛细管、金属电极组成, 两电极之间形成微空心阴极放电区。图 6 为一种典型的结构^[35]。其中阴极为不锈钢毛细管, 孔径 d 为 $178 \sim 508 \mu\text{m}$ 、长为 5 cm, 阳极为金属网格, 激励电源采用 0~5 kV 的负直流高压, 限流电阻 $R_{\text{CL}} = 25 \text{ k}\Omega$, 当阴极和阳极的间距 $L = 2 \text{ mm}$ 、气压为 760 Torr、工作气体为氩气时, 在没有外加气流的条件下, 通过高压微空心阴极放电效应在金属管中形成稳定的氩准分子 (氩激发态) 发射。在气压为 400~1000 Torr 之间, 准分子辐射功率随气压的增加而线性增加, 在这种结构中, 由放电电流引起气体加热导致的饱和或辐射强度下降, 可通过氩气冷却来解决。因此准分子辐射强度将同时随气压和电流增大而增大, 这说明利用毛细管微空心阴极放电可以获得高强度的准分子辐射功率。

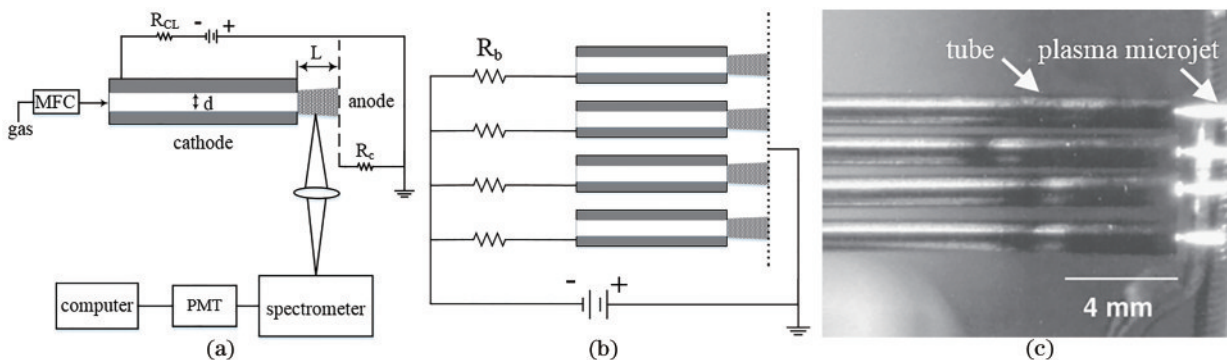


图 6 毛细管微空心阴极放电^[35]。(a) 空心阴极等离子体微型射流发生器与光学测试原理图; (b) 采用单电源带镇流电阻的四管电路; (c) 电极间距 2 mm 时氩等离子体微射流放电照片

Fig. 6 Capillary micro hollow cathode discharge^[35]. (a) Schematic diagram of hollow cathode plasma mini-jet generator and optical test; (b) four-tube circuit with single power supply and ballast resistance; (c) photograph of argon plasma micro-jet discharge when the distance between electrodes is 2 mm

微空心阴极放电由于具有电子密度高、气压高等特点,已成为准分子激光技术中的一个重要的发展方向。除 Ar 外^[35-36],在 Xe、Ne 和 He 等气体^[37-39]中也实现了微空心阴极放电等离子体的准分子辐射。

5.4 微空心阴极放电维持的辉光放电

微空心阴极放电维持的辉光放电(MCSD)装置及放电图片如图 7 所示^[7],它由微空心阴极放电等离子体作为阴极,即左边两个电极组成微空心阴极放电电极结构,其阴极孔径为 100 μm,右边第三个电极作为阳极,三个电极的材料均采用金属钼,阴极和阳极之间的间距 d 在 0~10 mm 之间可调。MCSD 结构中多采用双电源,分别对 MHCD 和阳极供电,但也有采用单电源结构^[40]来简化放电装置的结构。该结构可在大气压空气中产生厘米量级的稳定直流辉光放电等离子体,电子密度在 $10^{11} \sim 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ 范围^[7]。MCSD 与真空三极管结构类似,可将多个 MCSD 放电单元组成阵列,产生更大体积的均匀高压放电等离子体,若采用 Ar、Xe 等工作气体,放电产生的等离子体可以用来作为激光器的增益介质,这使得直流准分子激光器的制造成为可能。MCSD 特别适合在大气压下产生大体积空气辉光放电,这种装置可广泛用于许多工业或科研领域,且可以减少气体放电对环境的污染,具有重要的实用价值。

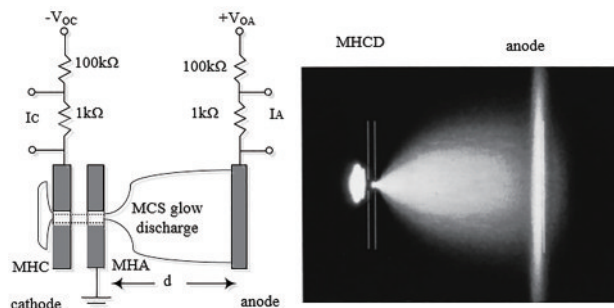


图 7 微空心阴极放电维持的辉光放电^[7]

Fig. 7 Glow discharge maintained by micro hollow cathode discharge^[7]

大气压大体积等离子体为许多新应用提供了可能,但关键问题是如何提高大气压放电的稳定性。

5.5 微空心阴极激励介质阻挡放电

在微空心阴极放电的应用中,往往需要将多个微放电单元组成阵列,例如在等离子体面板上就需要集成很多微放电单元,但是每个空心阴极放电单元需要一个数十欧姆以上的大电阻,这在大规模集

成电路中是无法实现的。为了解决这一问题,Wang 等^[41]提出了将微空心阴极放电与介质阻挡相结合的技术方案。称为同轴空心微介质阻挡放电(CM-DBD)。电极结构如图 8(a)所示,由两块带排孔的金属电极组成同轴电极结构,整个金属表面覆盖了 150 μm 厚的氧化铝介质,孔的形状为矩形锥孔,有效开口面积为 $200 \mu\text{m} \times 1650 \mu\text{m}$,脉冲电源加在孔内表面的绝缘介质上,其结构与共面的等离子体显示器(PDP)类似。在高压或大气压下放电被局限在微孔中,但是当增大电流或减小气压时,放电会延伸至孔外。与传统的大气压辉光放电装置相比工作电压要低很多,且具有很好的稳定性。文献^[42]提出了用另一种形式的微空心阴极激励介质阻挡放电(MHCD-DBD)电极结构,如图 8(b)所示,该结构可显著降低放电阈值电压,可用于表面处理、化学、污水处理^[43-46]等方面。

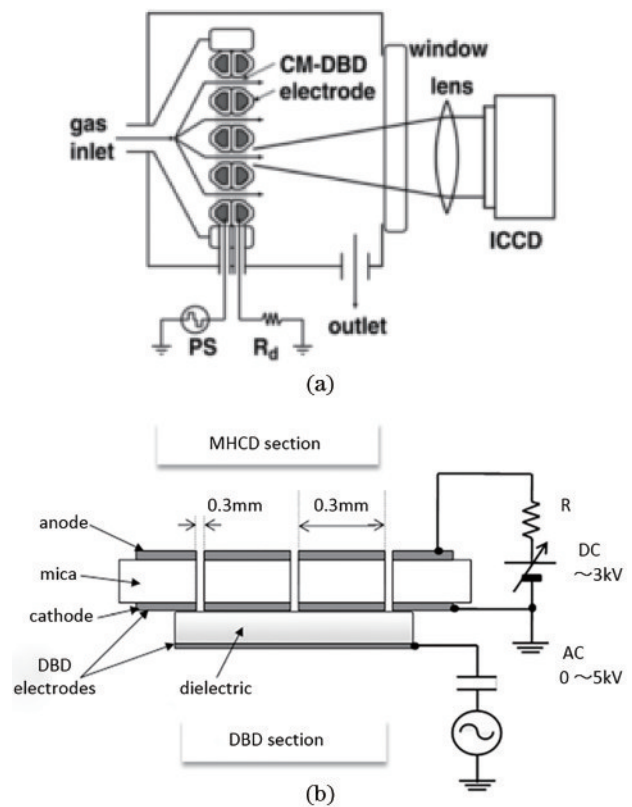


图 8 微空心阴极激励介质阻挡放电电极结构^[41-42]。(a)同轴空心微介质阻挡放电实验的原理图;(b)微空心阴极放电和介质阻挡放电结合的电极系统的示意图

Fig. 8 Micro hollow cathode excited dielectric barrier discharge electrode structure^[41-42]. (a) Schematic diagram of CM-DBD experiments; (b) schematic drawing of the combined MHCD-DBD electrode system

6 结 论

大气压大体积非平衡等离子体技术的发展开辟了诸多应用的可能性,如污染气体的消毒、紫外准分子光源、薄膜沉积、材料表面改性、紫外准分子激光器等领域。目前虽然提出了各种大气压大体积辉光放电技术,但等离子体的长度仅为几个毫米,不能满足许多生产实际的需要,因此如何实现不同气压下稳定的大体积放电是面临的一大挑战,研究克服或消除大气压下辉光放电的不稳定因素的新方法、新机理,在混合气体放电中获得高电子密度和降低激励功率仍然是今后的主要研究方向。

参 考 文 献

- [1] Yu J L, He L M, Ding W, et al. Design of plasma igniter and research on discharge characteristics [J]. *Journal of Nanjing University of Aeronautics & Astronautics*, 2016, 48(3): 396-401.
于锦禄, 何立明, 丁未, 等. 等离子体点火器设计及其放电特性研究 [J]. *南京航空航天大学学报*, 2016, 48(3): 396-401.
- [2] Huang C, Huang K, Yi A P, et al. 200 W mid-infrared HF chemical laser with repetition rate [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(8): 0801005.
黄超, 黄珂, 易爱平, 等. 200 W 重复频率中红外氟化氢化学激光器 [J]. *中国激光*, 2019, 46(8): 0801005.
- [3] Pekárek S, Mikeš J, Krýsa J. Comparative study of TiO_2 and ZnO photocatalysts for the enhancement of ozone generation by surface dielectric barrier discharge in air [J]. *Applied Catalysis A: General*, 2015, 502: 122-128.
- [4] Du Y J, Nayak G, Oinuma G, et al. Effect of water vapor on plasma morphology, OH and H_2O_2 production in He and Ar atmospheric pressure dielectric barrier discharges [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2017, 50(14): 145201.
- [5] Pardeshi H, Patil P P, Bange J. Development of atmospheric pressure glow discharge plasma assisted CVD system for the deposition of SiO_x coatings [J]. *Journal of Instrumentation*, 2019, 14(6): P06026.
- [6] Zeniou A, Puač N, Škoro N, et al. Electrical and optical characterization of an atmospheric pressure, uniform, large-area processing, dielectric barrier discharge [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2017, 50(13): 135204.
- [7] Stark R H, Schoenbach K H. Direct current high-pressure glow discharges [J]. *Journal of Applied Physics*, 1999, 85(4): 2075-2080.
- [8] Zhou Z Y, Li H, Cui Y L, et al. Optically pumped 4 μm CW HBr gas laser based on hollow-core fiber [J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(16): 1614001.
周智越, 李昊, 崔宇龙, 等. 基于空芯光纤的光泵浦 4 μm 连续波 HBr 气体激光器 [J]. *光学学报*, 2020, 40(16): 1614001.
- [9] Feng S J, Dong L Q, Ma D N, et al. Terahertz waves generated through plasma under linear electrodes [J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(10): 1030001.
冯世嘉, 董立泉, 马丹妮, 等. 线状电极作用下等离子体产生太赫兹波的研究 [J]. *光学学报*, 2020, 40(10): 1030001.
- [10] Morrow R, Lowke J J. Streamer propagation in air [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1997, 30(4): 614-627.
- [11] Akishev Y S, Deryugin A A, Kochetov I V, et al. DC glow discharge in air flow at atmospheric pressure in connection with waste gases treatment [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1999, 26(10): 1630-1637.
- [12] Akishev Y, Grushin M, Kochetov I, et al. Negative corona, glow and spark discharges in ambient air and transitions between them [J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2005, 14(2): S18-S25.
- [13] Vertriest R, Morent R, Dewulf J, et al. Multi-pin-to-plate atmospheric glow discharge for the removal of volatile organic compounds in waste air [J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2003, 12(3): 412-416.
- [14] Vandenbroucke A M, Mora M, Jiménez-Sanchidrián C, et al. TCE abatement with a plasma-catalytic combined system using MnO_2 as catalyst [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2014, 156/157: 94-100.
- [15] Förster S, Mohr C, Viöl W. Investigations of an atmospheric pressure plasma jet by optical emission spectroscopy [J]. *Surface and Coatings Technology*, 2005, 200(1/2/3/4): 827-830.
- [16] Kunhardt E E. Generation of large-volume, atmospheric-pressure, nonequilibrium plasmas [J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2000, 28(1): 189-200.
- [17] Park S H, Cho T S, Becker K H, et al. Capillary plasma electrode discharge as an intense and efficient source of vacuum ultraviolet radiation for plasma

- display[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2009, 37(8): 1611-1614.
- [18] Christiansen J, Schultheiss C. Production of high current particle beams by low pressure spark discharges[J]. Zeitschrift Für Physik A Atoms and Nuclei, 1979, 290(1): 35-41.
- [19] Nakamura K, Yukawa N, Mochizuki T, et al. Optimization of the discharge characteristics of a laser device employing a plasma electrode [J]. Applied Physics Letters, 1986, 49(22): 1493-1495.
- [20] Yin H, Cross A W, He W, et al. Pseudospark experiments: cherenkov interaction and electron beam post-acceleration [J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2004, 32(1): 233-239.
- [21] Kumar N, Pareek N, Pal U N, et al. Performance evaluation of self-breakdown-based single-gap plasma cathode electron gun [J]. Pramana, 2014, 82(6): 1075-1084.
- [22] Lamba R P, Pathania V, Meena B L, et al. Investigations of a high current linear aperture radial multichannel pseudospark switch[J]. The Review of Scientific Instruments, 2015, 86(10): 103508.
- [23] Kumar N, Lamba R P, Hossain A M, et al. A tapered multi-gap multi-aperture pseudospark-sourced electron gun based X-band slow wave oscillator [J]. Applied Physics Letters, 2017, 111(21): 213502.
- [24] Sugawara M, Murata K, Ohshima T, et al. A hollow-cathode discharge as a cold uniform plasma source [J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 1981, 14(9): L137-L140.
- [25] Zhang J, Zhao J P, Zhang Q G. The breakdown characteristics of multigap pseudospark under nanosecond pulsed voltages [J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2014, 42(12): 3886-3890.
- [26] Cross A W, Yin H, He W, et al. Generation and application of pseudospark-sourced electron beams [J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2007, 40(7): 1953.
- [27] Jiang C Q, Kuthi A, Gundersen M A, et al. Pseudospark electron beam as an excitation source for extreme ultraviolet generation [J]. Applied Physics Letters, 2005, 87(13): 131501.
- [28] Taylan O, Berberoglu H. Dissociation of carbon dioxide using a microhollow cathode discharge plasma reactor: effects of applied voltage, flow rate and concentration [J]. Plasma Sources Science and Technology, 2015, 24(1): 015006.
- [29] Schoenbach K H, Verhappen R, Tessnow T, et al. Micro hollow cathode discharges [J]. Applied Physics Letters, 1996, 68(1): 13-15.
- [30] Sankaran R M, Giapis K P. High-pressure microdischarges in etching and deposition applications [J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2003, 36(23): 2914-2921.
- [31] Chen J, Park S J, Fan Z F, et al. Development and characterization of micromachined hollow cathode plasma display devices [J]. Journal of Microelectromechanical Systems, 2002, 11(5): 536-543.
- [32] Park S J, Chen J, Wagner C J, et al. Microdischarge arrays: a new family of photonic devices [J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2002, 8(1): 139-147.
- [33] Allmen P V, Sadler D J, Jensen C, et al. Linear, segmented microdischarge array with an active length of ~ 1 cm: CW and pulsed operation in the rare gases and evidence of gain on the 460.30 nm transition of Xe^+ [J]. Applied Physics Letters, 2003, 82(25): 4447-4449.
- [34] Allmen P V, McCain S T, Ostrom N P, et al. Ceramic microdischarge arrays with individually ballasted pixels [J]. Applied Physics Letters, 2003, 82(16): 2562-2564.
- [35] Sankaran R M, Giapis K P. Hollow cathode sustained plasma microjets: characterization and application to diamond deposition [J]. Journal of Applied Physics, 2002, 92(5): 2406-2411.
- [36] El-Habachi A, Schoenbach K H. Emission of excimer radiation from direct current, high-pressure hollow cathode discharges [J]. Applied Physics Letters, 1998, 72(1): 22-24.
- [37] El-Habachi A, Schoenbach K H. Generation of intense excimer radiation from high-pressure hollow cathode discharges [J]. Applied Physics Letters, 1998, 73(7): 885-887.
- [38] Moselhy M, Shi W, Stark R H, et al. Xenon excimer emission from pulsed microhollow cathode discharges [J]. Applied Physics Letters, 2001, 79(9): 1240-1242.
- [39] Kurunczi P, Lopez J, Shah H, et al. Excimer formation in high-pressure microhollow cathode discharge plasmas in helium initiated by low-energy electron collisions [J]. International Journal of Mass Spectrometry, 2001, 205(1/2/3): 277-283.
- [40] Park H I, Lee T I, Park K W, et al. Formation of

- large-volume, high-pressure plasmas in microhollow cathode discharges [J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 82(19): 3191-3193.
- [41] Wang X P, Huang Q L, Ding S G, et al. Micro hollow cathode excited dielectric barrier discharge (DBD) plasma bubble and the application in organic wastewater treatment[J]. *Separation and Purification Technology*, 2020, 240:116659.
- [42] Watanabe J, Ogino A, Nagatsu M. Characteristics of direct current microhollow cathode discharges combined with dielectric barrier discharges as preionizer [J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(22): 221507.
- [43] Homola T, Krumpolec R, Zemánek M, et al. An array of micro-hollow surface dielectric barrier discharges for large-area atmospheric-pressure surface treatments [J]. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 2017, 37(4): 1149-1163.
- [44] Tachibana K, Nakamura T, Motomura H. Monolithic structure of integrated coaxial microhollow dielectric barrier discharges: characterization for environmental and biomedical applications [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2016, 55(7S2): 07LB01.
- [45] Heming R, Michels A, Olenici S B, et al. Electrical generators driving microhollow and dielectric barrier discharges applied for analytical chemistry[J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2009, 395(3): 611-618.
- [46] Taylan O, Berberoglu H. Dissociation of carbon dioxide using a microhollow cathode discharge plasma reactor: effects of applied voltage, flow rate and concentration [J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2015, 24(1): 015006.