

光谱法诊断大气压等离子体电子密度

冉俊霞¹ 张少朋² 李霞¹ 李红莲³ 董丽芳¹

(河北大学¹ 物理科学与技术学院, ² 体育教研部, ³ 质量技术监督学院, 河北 保定 071002)

摘要 采用发射光谱方法对大气压氩气介质阻挡放电(DBD)系统中的电子密度进行了诊断。通过考虑放电等离子体中的各种加宽机制,采用自编的非对称卷积程序对氩原子发射谱线的线型进行分析拟合,再通过反卷积的方法将各种加宽机制分离开来,最终将 Stark 展宽分离出来进行大气压氩气介质阻挡放电电子密度的计算。诊断结果表明,在大气压氩气介质阻挡放电中当有三个放电丝存在,电子温度为 10000 K 时,电子密度约为 $4.06 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$,诊断结果和模拟结果符合得很好。此方法不仅可以应用在大气压介质阻挡放电中,还可以用于其他含有非氢气体的大气压等离子体电子密度的测量。

关键词 光谱学;电子密度;Stark 加宽;大气压等离子体

中图分类号 O53 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS200828s2.0314

Measurement of Electron Density in Plasma at Atmospheric Pressure by Spectroscopy

Ran Junxia¹ Zhang Shaopeng² Li Xia¹ Li Honglian³ Dong Lifang¹

(¹ College of Physics Science and Technology, ² Department of Physical Education, ³ College of Quality and Technical Supervision, Hebei University, Baoding, Hebei, 071002, China)

Abstract The electron density of dielectric barrier discharge in micro-discharge at atmospheric pressure argon is measured by emission spectral method. Considering various broadening mechanisms of plasma, the unsymmetrical convolution procedure is compiled to fit the experimental spectral line profile, and the Stark broadening profile can be obtained by deconvolution procedure to measure the electron density of plasma. The results show that the electron density in three filamentary micro-discharge at atmospheric pressure argon is $4.06 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ if the electron temperature is 10000 K. The diagnosis result is in good agreement with the simulation. The method for measurement of electron density can be used not only in dielectric barrier discharge at atmospheric pressure, but also in other types of non-hydrogen plasma at atmospheric pressure.

Key words spectroscopy; electron density; Stark broadening; plasma at atmospheric pressure

1 引 言

介质阻挡放电(DBD)可以在大气压或更高气压条件下工作,并且其电子温度可以方便地调节,能量转换效率高,因此是产生大气压非平衡态等离子体的一种有效的方法,被广泛地应用于臭氧合成、表面处理、等离子体化学气相沉积、污染物控制、大功率准分子光源以及平面等离子体显示技术等领域^[1,2]。目前大部分的工业应用中,DBD 在流光模式下工作。在此模式下几乎所有的反应动力学过程都发生在微放电通道内,放电表现为十分复杂的时

空分布。为了能够有效地控制放电参数,提高产率和转换效率,需要对 DBD 的放电机制,特别是放电过程中的等离子体参数进行研究。等离子体参数诸如电子温度、电子密度对于研究等离子体内部的激发、离化机制、能量的消耗过程以及对于 DBD 等离子体模型的建立都极其重要。目前,由于缺乏有效的诊断手段,在大气压 DBD 等离子体机制研究方面,只能依靠理论分析和计算机模拟。

电子密度是大气压 DBD 等离子体的主要参量,对能量运输、粒子运输和放电动力学研究至关重要。

基金项目: 国家自然科学基金(10575027)、河北省自然科学基金(A2004000086, 2006000950)和河北大学青年基金(2006Q10)资助课题。

作者简介: 冉俊霞(1978—),女,硕士研究生,讲师,主要从事等离子体光学诊断方面的研究。E-mail: rjxhbu@hbu.cn

传统的测量电子密度的方法有探针法、激光 Thomson 散射法以及光谱法。其中最简单且对放电等离子体源无干扰的是发射光谱方法,即通过发射原子或离子的 Stark 展宽来测定电子密度^[3~8]。

本文采用波长为 696.54 nm($2P_2 \rightarrow 1S_5$) 的氩原子发射谱线进行诊断,实现了大气压氩气 DBD 微放电通道中的电子密度测量。由于在等离子体中导致谱线加宽的机制很多,为了得到 Stark 展宽,必须把 Stark 线型从整个光谱线型中分离出来。这就需要用卷积和反卷积的方法。为了更加接近等离子体中的真实情况,需要考虑到等离子体中的离子及等离子体中微场作用。但是考虑到上述问题后,计算其卷积和反卷积过程非常困难,为此编制了非对称的卷积和反卷积程序以便从整个光谱线型中得到 Stark 线型,进而诊断大气压 DBD 中的电子密度^[3]。

2 实验原理

一般说来,谱线的加宽主要有自然加宽,多普勒加宽,Stark 加宽,中性粒子引起的碰撞加宽以及用谱仪时由仪器引起的仪器加宽。在等离子体中,由于存在大量电子和离子,快速电子和慢速离子形成电场,使 Stark 加宽成为主要加宽机制之一。在高密度等离子体中,非氢原子主要是二次 Stark 效应,它导致的谱线展宽 $\Delta\lambda_L^{\text{Stark}}$ (nm) 是电子密度和电子温度的复杂函数,可由下式表示

$$\Delta\lambda_L^{\text{Stark}} = 2 \times [1 + 1.75 \times 10^{-4} N_e^{1/4} \alpha \times (1 - 0.068 N_e^{1/6} T_e^{-1/2})] \times 10^{-16} \omega N_e \quad (1)$$

式中 ω 为电子碰撞加宽参数, α 为离子加宽参数,都是电子温度的函数。在某个特定的电子温度下,电子密度是 Stark 加宽的线性函数,如图 1 所示。

在等离子体中电子与辐射原子和离子的碰撞是导致非氢原子谱线加宽和频移的一个主要因素,在高密度等离子体中除氢以外的孤立的原子谱线加宽主要是由电子碰撞引起的,电子碰撞加宽产生的谱线线型是对称的洛伦兹线型。此外由于谱线加宽,一部分来自于等离子体中的离子碰撞,它在本质上是非对称的,所以实质上 Stark 加宽是一种非对称光谱线型 $j(\lambda)$

$$j(\lambda) = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{W_R(\beta) d\beta}{1 + [(\lambda - \lambda_0 - d)/\omega - \alpha'\beta^2]^2} \quad (2)$$

式中 λ_0 是中心波长, $W_R(\beta)$ 是等离子体的微场分布函数,依赖于德拜壳和离子-离子相关的无维参数 R 。

不同实验条件下,放电等离子体中原子发射的

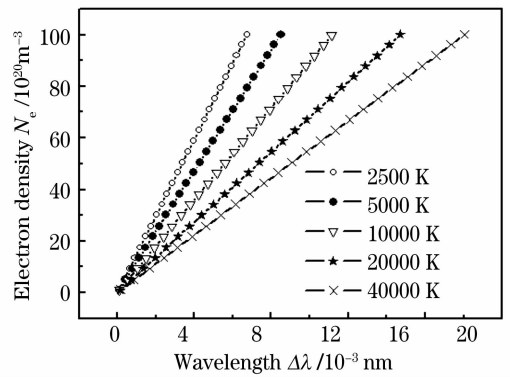


图 1 不同电子温度下电子密度随 Stark 半宽的变化
Fig. 1 Electron density with the Stark broadening by different electron temperatures

光谱线型和线宽是由几种不同的加宽机制所导致的,如自然展宽、多普勒展宽、仪器展宽和压力展宽,压力展宽又包括共振展宽, Van der Waals 和 Stark 展宽。在高压等离子体中,发射谱线的线型和线宽以及频移主要来自于气体的压强、带电粒子的热运动。因此自然展宽和共振加宽一般可以忽略,但必须要考虑压力展宽和多普勒展宽以及仪器展宽。所以,在本实验中,总的加宽机制应该是 Stark 加宽、碰撞加宽、仪器加宽、多普勒加宽的卷积。Stark 加宽是不对称的洛伦兹线型,碰撞加宽是对称的洛伦兹线型,仪器加宽和多普勒加宽是高斯线型。因此按照等离子体中 Stark 展宽的推理,即 Stark 展宽由对称的洛伦兹线型和不对称的洛伦兹线型两部分组成,因此总的压力展宽也应该是由对称的洛伦兹线型加上由 Stark 展宽中的离子引起的不对称部分而形成的不对称的洛伦兹线型,其形式应和(2)式一样,但是式中的参数取值不同

$$L'(\lambda) = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{W_R(\beta) d\beta}{1 + [(\lambda - \lambda_0 - d')/\omega' - \alpha'\beta^2]^2} \quad (3)$$

因此,总的光谱线型应该是高斯线型 $G(\lambda)$ 和不对称的洛伦兹线型 $L'(\lambda)$ 的卷积结果。可由下式表示

$$K(\lambda) = \int_{-\infty}^\infty G(\lambda - y) L'(y) dy \quad (4)$$

式中 λ_0 , ω' , d' 和 α' 是拟合参数。由于有其他的加宽机制,要估测电子密度就必须把 Stark 加宽部分分离出来,因此首先要把 $L'(\lambda)$ 部分分离出来。但是由于计算其卷积和反卷积过程是非常困难的,这给等离子体中电子密度的诊断又带来了一定的困难。为此编写了非对称的卷积和反卷积程序,与实验光谱线型进行拟合。再用反卷积的方法,分离出

高斯线型 $G(\lambda)$ 和不对称的洛伦兹线型 $L'(\lambda)$ 。从 $L'(\lambda)$ 展宽 $\Delta\lambda_L^{\text{Total}}$ 中扣除 Van der Waals 展宽 $\Delta\lambda_L^{\text{Van}}$, 得到 Stark 展宽 $\Delta\lambda_L^{\text{Stark}}$, 便可计算出等离子体的电子密度

$$\Delta\lambda_L^{\text{Total}} = \Delta\lambda_L^{\text{Van}} + \Delta\lambda_L^{\text{Stark}}. \quad (5)$$

众所周知, Van der Waals 展宽正比于中性粒子数的密度。经计算可知在本实验中 Van der Waals 展宽大约为 $0.003 \text{ nm}^{[9]}$ 。

3 实验结果

应用上述方法, 实验选取波长为 696.54 nm ($2P_2 \rightarrow 1S_5$) 的谱线对大气压氩气介质阻挡放电中当有三个放电丝时的电子密度进行了诊断。为了在实验中得到稳定的放电丝, 使用了清洗放电方法^[10], 在测量期间, 三个放电丝均保持稳定。图 2 给出了当有三个放电丝时的端面快照以及卷积和反卷积结果。可以看出, 当 Stark 加宽为 0.0045 nm 时, 相应的电子密度是 $4.06 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ 。一般认为介质阻挡放电中的电子密度是 $10^{20} \sim 10^{21} \text{ m}^{-3}$, 但是这些都是模拟结果, 这可能与在介质阻挡放电实验中, 稳定的放电丝不易获得以及缺乏有效的诊断方法有关。实验中使用清洗放电方法得到稳定的放电丝, 并且在放电丝稳定期间对其进行光谱诊断, 得到其光谱线型, 运用卷积和反卷积的方法得到了 Stark 加宽的线型和半峰全宽, 并根据 Stark 半峰全宽与电子密度的关系计算出电子密度, 实验测量的电子密度与模拟结果符合得很好。

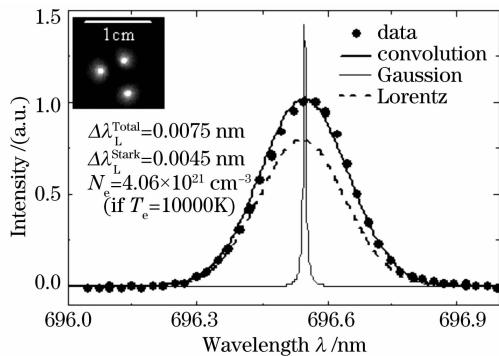


图 2 三个微放电的 Ar I 696.543 nm 谱线的反卷积结果

及其端面快照。曝光时间为 $1/15 \text{ s}$, 外加电压为 1840 V

Fig. 1 Snapshots and deconvolution result for Ar I 696.

543 nm of three filamentary micro-discharges.

Exposure time is $1/15 \text{ s}$, applied voltage is 1840 V

此外, 在估测电子密度时, 由于测量的误差、用卷积程序拟合时产生的误差以及 Van der Waals 展宽系数不确定性所引起的误差, 使得电子密度产生

的误差大约为 50% 。

4 结 论

利用发射光谱方法, 通过自编的非对称卷积程序对大气压氩气介质阻挡放电系统中的电子密度进行了诊断。通过分析放电等离子体中的各种加宽机制, 选取氩原子发射谱线的线型进行分析拟合, 通过反卷积的方法将 Stark 展宽分离出来进行电子密度的计算。诊断结果表明, 在大气压氩气介质阻挡放电中当有三个放电丝存在时, 电子温度为 10000 K 时, 电子密度约为 $4.06 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$, 该诊断结果和模拟结果符合得很好。本工作对大气压等离子体参数诊断及介质阻挡放电动力学为进一步研究具有重要意义, 此方法不仅可以应用在大气压介质阻挡放电中, 还可以用于其他含有非氢气体的大气压等离子体电子密度的测量。

参 考 文 献

- 1 Ulrich Kogelschatz. Dielectric-barrier discharges: Their history, discharge physics, and industrial applications [J]. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 2003, **23**(1):1~46
- 2 Baldur Eliasson, Ulrich Kogelschatz. Modeling and applications of silent discharge plasma[J]. *IEEE Trans. on Plasma Sci.*, 1991, **19**(2):309~323
- 3 V. Milosavljevic, S. Djenize. The He I 706.52 nm line shape characteristics in the plasma diagnostics[J]. *Eur. Phys. J. D.*, 2003, **23**(10):385~390
- 4 N Konjevic. On the use of non-hydrogenic spectral line profiles for plasma electron density diagnostics[J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2001, **10**(2):356~363
- 5 C. Stehlé, D. Gilles, A. V. Demura. Asymmetry of Stark profile-The microfield point of view[J]. *Eur. Phys. J. D.*, 2000, **12**:355~367
- 6 Lu Tongxing, Cui Zhifeng, ZhaoXianzhang. Measurement and calculation of Stark broadening of Mg spectral lines in laser plasma[J]. *Chinese J. Lasers*, 1994, **A21**(2): 114~120
陆同兴, 崔执凤, 赵献章. 激光等离子体镁光谱线 Stark 展宽的测量与计算[J]. *中国激光*, 1994, **A21**(2):114~120
- 7 Yang Baiqian, Zhang Jiyan, Han Shensheng *et al.*. Space-resolved diagnosis for the electron density of laser-produced aluminum plasma[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2005, **17**(5):703~706
杨柏谦, 张继彦, 韩申生 等. Al 激光等离子体电子密度的空间分辨诊断[J]. *强激光与粒子束*, 2005, **17**(5):703~706
- 8 C. Penache, M. Miclea, A. Bräuning-Demian *et al.*. Characterization of a high-pressure microdischarge using diode laser atomic absorption spectroscopy[J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2002, **11**(4):476~483
- 9 Lifang Dong, Junxia Ran, Zhiguo Mao. Direct measurement of electron density in microdischarge at atmospheric pressure by Stark broadening[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2005, **86**:161501
- 10 L. F. Dong, Z. Q. Yin, X. C. Li *et al.*. Spatio-temporal dynamics of discharge domains in a dielectric barrier discharge device[J]. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2003, **12**(3):380~388