

光学方法研究介质阻挡放电上行区的放电特性

李雪辰 常媛媛* 许龙飞

(河北大学物理科学与技术学院河北省光电信息材料重点实验室, 河北 保定 071002)

摘要 利用同轴介质阻挡放电装置,在大气压流动气体(氩气和痕量的空气)中放电从而在气流上行区产生了稳定的长达几十厘米的等离子体。利用光学方法研究发现该上行区等离子体以发光子弹模式传播,其传播运行速度约为 0.8×10^5 m/s,表明介质阻挡放电上行区的放电机制为流光放电。利用斯塔克展宽计算上行区等离子体电子密度为 10^{15} cm⁻³量级。利用玻尔兹曼斜线方法计算了上行区的电子激发温度,发现上行区电子激发温度随外加电压峰值的增加而增加。

关键词 大气光学;介质阻挡放电;上行区;发射光谱;电子激发温度

中图分类号 O433.4 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201333.0730001

Optical Investigation on the Discharge Characteristics of the Upstream Region in Dielectric Barrier Discharge

Li Xuechen Chang Yuanyuan Xu Longfei

(Key Laboratory of Photo-Electronics Information Materials of Hebei Province, College of Physics Science and Technology, Hebei University, Baoding, Hebei 071002, China)

Abstract A plasma column with length of several decimeters is generated in the upstream region of flowing gas (argon and trace air) at atmospheric pressure by using dielectric barrier discharge device in coaxial configurations. The discharge mechanism of the plasma column is investigated by optical method. The result indicates that a moving layer of light emission propagates in the upstream region, which behaves like a plasma bullet with a velocity of about 0.8×10^5 m/s. It indicates that streamer breakdown mechanism is involved in the upstream discharge. Electron density in the order of 10^{15} cm⁻³ is also obtained by Stark broadening. Electron excited temperature can be calculated by Boltzmann plot. The results show that the excited electron temperature in the upstream region increases with the increasing of the peak value of the applied voltage.

Key words atmospheric optics; dielectric barrier discharge; upstream; emission spectrum; excited electron temperature

OCIS codes 300.2140; 300.6170; 300.6190

1 引 言

大气压非平衡低温等离子体已经被广泛地应用到多个领域,如等离子体材料处理^[1](薄膜制备、刻蚀和改性等)、等离子体照明^[2](紫外及真空紫外大

面积光源、平板显示器等)、环保^[3](脱硫脱氮、臭氧产生和处理废水废气等)及飞行器隐身^[4]等领域。大气压产生低温等离子体的方式有多种,主要有电晕放电、电弧放电和介质阻挡放电(DBD)。与这些

收稿日期: 2013-01-22; **收到修改稿日期**: 2013-03-25

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10805013,51077035)、教育部科技研究重点项目(210014)、河北省杰出青年基金项目(J201200167)、河北省自然科学基金资助项目(A2011201132, A2009000149)、河北省教育厅优秀青年项目(Y2011120)、河北大学杰出青年基金(2010-J02)

作者简介: 李雪辰(1976—),男,博士,教授,主要从事气体放电低温等离子体源的研制和光学诊断等方面的研究。

E-mail: xcli@hbu.cn

* **通信联系人**。E-mail: plasmalab@126.com

本文电子版彩色效果请详见中国光学期刊网 www.opticsjournal.net

方式相比, DBD 由于许多独特优势而成为产生大气压等离子体的常用手段。

DBD 是有绝缘介质插入放电空间的一种气体放电。因为不会产生巨大的击穿响声, 也称为无声放电。通常 DBD 仅能够在放电电极间宽度(气隙宽度)较小的情况下产生低温等离子体, 待处理材料的尺寸必然受到限制, 因此限制了其应用。近年来利用介质阻挡放电制作了多种结构的等离子体喷枪。喷枪可以实现等离子体应用区和产生区的分离, 所以摆脱了小气隙宽度对待处理样品的限制, 具有更加广阔的应用前景。

虽然 DBD 等离子体喷枪有很多种结构, 但同轴 DBD 喷枪由于结构简单, 放电稳定而得到了广泛的研究^[5]。目前, 很多课题组已经对同轴 DBD 喷枪的下行区放电特性进行了研究, 发现 DBD 喷枪下行区放电行为类似于发光子弹^[6-7], 即 DBD 气流下行区由流光放电机制决定, 导致放电以发光光层从喷嘴向远处传播^[8-9]。王德真等^[10]利用斯塔克展宽测量了下行区等离子体的电子密度。但关于同轴介质阻挡放电喷枪上行区的放电机制和等离子体参数等问题仍不清楚。

本文利用水电极同轴 DBD 喷枪研究了上行区的放电特性和等离子体参数。通过分析放电波形, 研究了上行区等离子体的传播速度。利用发射光谱法研究了电子激发温度随外加电压峰值的变化关系。

2 实验装置

实验装置由钨针和外围的水电极组成, 如图 1 所示。钨针作为放电电极与电源的高压输出端相连接, 长 14 cm, 直径 1 mm。外围的水电极介于两层玻璃管间。外玻璃管与内玻璃管之间充满水作为接地水电极接地, 内层玻璃管兼做放电的介质层。其中外玻璃管长 12.8 cm, 内径 20 mm; 内玻璃管长 90 cm, 内径 7 mm, 两个玻璃管的厚度均为 1 mm。电源的电压为 0~10 kV 范围内连续调节, 频率固定为 40 kHz。体积分数为 99.98% 的氩气和 0.02% 的空气混合气体作为工作气体从内玻璃管进入放电空间。外加电压利用高压探头(Tektronix P6015A)来测量, 用数字示波器(Agilent DSO6054A)来记录电压波形并储存, 用光电倍增管 [PMT (ET, 9085SB)] 来测量放电的发光信号, 并用示波器储存。发光信号通过焦距 10 cm 的凸透镜聚焦, 由光纤导入光谱仪(ACTON SP-2758), 光谱仪的入射狭缝为 50 μm , 电荷耦合器件 (CCD) 的曝光时间为

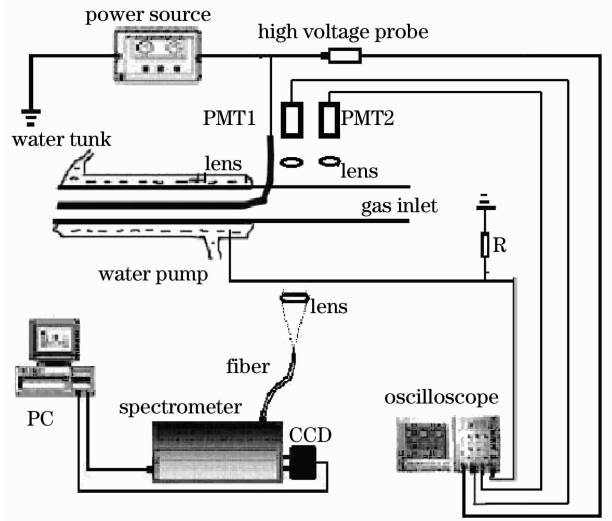


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup
50 ms, 最后用计算机进行存储和处理。

3 实验结果和讨论

当电压足够大时, 电极间的气体就会被击穿产生 DBD 放电, 同时在上行区形成了几十厘米长的等离子体。对于两个电极间的放电已经有较多研究, 发现气体击穿后, 介质表面会积累一些壁电荷, 壁电荷具有双重作用。对于本半周期的放电, 壁电荷的电场与外加电场方向相反, 这样就减弱了放电电场从而抑制了本半周期的放电, 使得放电熄灭。对于下半周期的放电, 外加电场反向, 因此壁电荷电场与外加电场同向, 从而促进下半周期的放电。壁电荷的这种作用, 使得放电为脉冲形式。为了对等离子体上行区放电机理进行研究, 利用 PMT 采集了上行区光信号的波形, 如图 2 所示。通过图 2 说明, 上行区放电与 DBD 放电都为脉冲形式, 上行区放电正

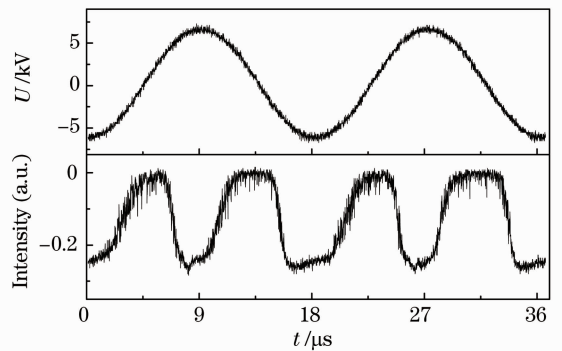


图 2 上行区放电的外加电压信号和光信号

Fig. 2 Waveforms of the applied voltage and light emission signal from upstream discharge

半周期和负半周期的放电脉冲形状虽然相似,但可以看出正半周期的放电脉冲比负半周期放电脉冲小。正半周期放电脉冲约是 $6.5 \mu\text{s}$,而负半周期放电脉冲是 $7.1 \mu\text{s}$ 。

对于上行区放电,在测量前利用两个 PMT 对其时间关系进行了校准,即利用两个 PMT 对相同发光区域进行采集,比较其信号关系。研究发现由于两个 PMT 的型号相同,所加电压相同,因此两个 PMT 对于同一个放电脉冲具有很好的时间对应关系。在测量速度过程中,两个 PMT 逐步拉开的过程发现信号延迟时间逐步增大,验证了两个 PMT 拉开到最大距离的(PMT 分别测量上行区两端)情况下,时间延迟也不会超过电压半周期,所以不存在两个 PMT 测量的为不同周期光信号的可能。事实上,由于总发光信号没有超出电压的半个周期(图 2 所示),而每个 PMT 测量的信号(部分光信号)应包含在总光信号中,所以可以保证两个 PMT 观察的一定是同一个周期里的放电信号。利用两个 PMT 同时测量上行区两个不同位置的光信号,如图 3 所示。其中红色为 PMT1 测量的光信号,蓝色为 PMT2 测量的光信号。PMT1 测量上行区靠近 DBD 的区域,而 PMT2 测量距离 PMT1 约 32 cm 处上行区的光信号。为了排除放电其他区域的影响,利用光学准直系统对以上区域进行了选择性测量,这样保证了两个 PMT 测量上行区放电的待测区域直径均为 3 mm。从图 3 中可知两个光信号形状相似,但放电存在约 $4 \mu\text{s}$ 的延迟,即 PMT1 测量位置先放电然后逐渐熄灭,再此过程中放电逐渐向着 PMT2 测量位置传播,经过约 $4 \mu\text{s}$ 到达 PMT2

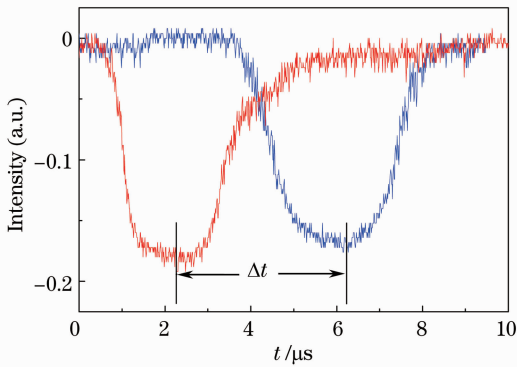


图 3 在电场方向上相距 32 cm 的两个光信号,
 $U_p = 7 \text{ kV}$, 孔径为 3 mm

Fig. 3 Light emission signals from two slits with distance of 32 cm along the electric field direction, $U_p = 7 \text{ kV}$, slit width is 3 mm

测量位置。因此图 3 表明放电上行区以发光光层的形式从靠近 DBD 区向着远处传播。可见该上行区放电是逆着气流发展的,因此说明上行区等离子体产生是源于一种电现象而不是由于气体流动造成的。这与下行区的放电特性不一样^[11]。

通过 PMT1 与 PMT2 测量区域的距离除以两个信号的时间延迟就可以计算上行区放电的发展速度。带入数值得到上行区放电发展速度约为 $0.8 \times 10^5 \text{ m/s}$ 。这一速度比空气中流光发展速度略小,但与氦气下行区流光发展速度一致。因此该结果说明该上行区放电是流光击穿机制。

利用光栅光谱仪(光栅为 2400 line/mm,曝光时间为 1 ms)采集的上行区放电的发射光谱,如图 4 所示($U_p = 7.1 \text{ kV}$)。上行区放电发光经透镜会聚后,由光纤导入光谱仪。实验发现在 300~600 nm 范围内几乎没有谱线,因此图 4 仅给出了 680~790 nm 的光谱。由图 4 可以看出上行区放电发射光谱中存在多条氩原子谱线,这表明上行区等离子体中存在有高能电子,在这些电子碰撞下将氩原子激发到了多种高激发态。激发态原子退激发过程发射特定的原子谱线。

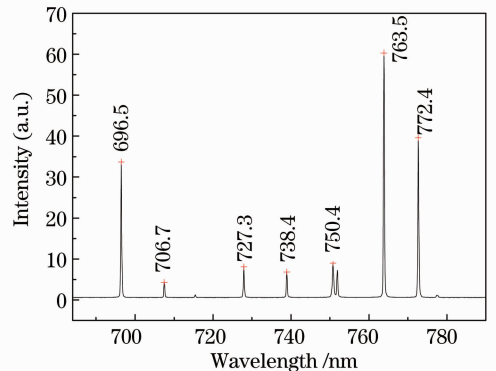


图 4 放电上行区的发射光谱

Fig. 4 Emitting spectra from the upstream discharge

在气体放电产生的等离子体中,由于等离子体中大量的快速电子和慢速离子所形成的电场的作用,而导致的斯塔克加宽成为谱线的主要加宽机制,因此可以用原子谱线的斯塔克加宽来计算放电的电子密度。对于氩谱线展宽 ω_i 和电子密度 N_e 之间的表达式为^[12]

$$\omega_i = 2 \times [1 + 1.75 \times 10^{-4} N_e^{1/4} \alpha \times (1 - 0.068 N_e^{1/6} T_e^{-1/2})] \times 10^{-16} \omega_e N_e, \quad (1)$$

式中 ω_i 是斯塔克展宽, α 是离子碰撞加宽参数, ω_e 是电子碰撞加宽参数。显然,利用谱线的斯塔克展宽计算电子密度就需要从谱线的总展宽中分离出斯

塔克展宽。利用反卷积程序^[13],可以得到高斯展宽和洛仑兹展宽。

对于 Ar I (696.54 nm)发射光谱反卷积结果如图 5 所示,其中高斯展宽为 0.009749 nm,洛仑兹展宽为 0.0335757 nm,范德瓦尔斯展宽为 0.0165067 nm。利用洛仑兹展宽减去范德瓦尔斯展宽即可得到斯塔克展宽为 0.017069 nm。由(1)式计算得上行区的电子密度为 $5.6 \times 10^{15} / \text{cm}^3$ 。此结果比氩气喷枪下行区电子密度高一个量级^[10],但和流光机制的氩气等离子体喷枪电子密度一致^[8]。

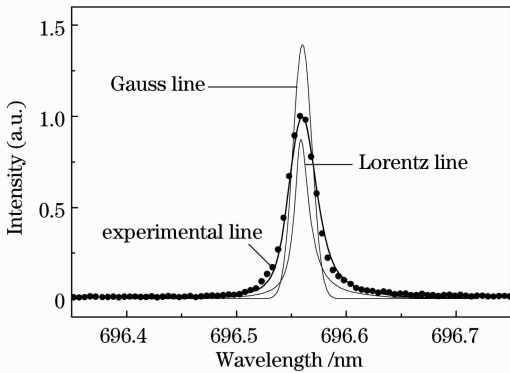


图 5 上行区 ArI 696.54 nm 反卷积的高斯展宽和洛仑兹展宽

Fig. 5 Gauss and Lorentz broadening by de-convolution process of ArI 696.54 nm from the upstream region

在等离子体上行区放电中即使不能满足完全的热力学平衡条件,但是由于存在非常高的碰撞率而可以假设局域热平衡(LTE)能够满足。对于 LTE 等离子体,若德拜球内的粒子数足够大,则可以利用玻尔兹曼斜线法计算电子激发温度,这需要 LTE 等离子体满足^[14]:

$$N_e \geq 1.4 \times 10^{14} T^{1/2} (\Delta E_{mn})^3 \text{ cm}^{-3}, \quad (2)$$

其中 T 是温度, ΔE_{mn} 是相应谱线的能量差。将电子激发温度 8000 K 代入(2)式,对于氩气放电的谱线(696.5、706.7、727.3、738.4、750.4、763.5、772.4 nm),满足上式的电子密度上限为 $1.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$,小于实验测得的电子密度 $5.6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$,说明上行区的等离子体满足 LTE 条件。

对于满足 LTE 的等离子体,选取氩原子的谱线(696.5、706.7、727.3、738.4、750.4、763.5、772.4 nm)通过玻尔兹曼斜线法计算了电子激发温度。图 6 给出了电子激发温度随 U_p 的变化关系,可见在其他条件不变时电子激发温度随着 U_p 的增加而增大。电子激发温度的变化反映了电子能量的变化^[15],因此说明上行区放电的电子能量随着 U_p 的增加而增大。

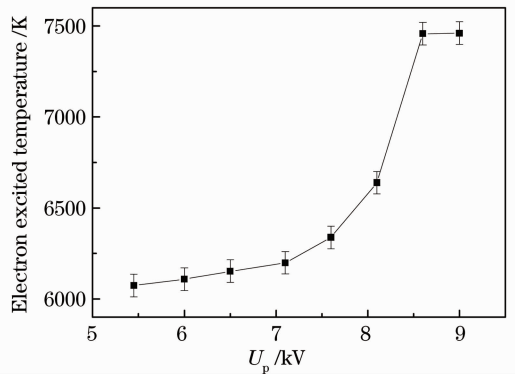


图 6 电子激发温度随外加电压的变化关系

Fig. 6 Electron excited temperature as a function of the peak value of the applied voltage

4 结 论

利用同轴介质阻挡放电装置,采用大气压流动气体(氩气和痕量的空气)作为工作气体,在气流上行区产生了长达几十厘米的稳定等离子体。利用 PMT 采集了上行区的光信号,发现放电为脉冲形式,且正半周期放电发光脉冲比负半周期小。利用光学方法研究上行区不同区域的发光信号,发现上行区是以发光子弹模式向远处传播的,其传播速度约为 $0.8 \times 10^5 \text{ m/s}$ 。该结果与流光放电模式的发展速度一致,说明该介质阻挡放电上行区等离子体的放电机制为流光放电。利用 Ar I(696.54 nm)的发射谱线的线型,用反卷积程序计算出上行区等离子体的电子密度,约为 $5.6 \times 10^{15} / \text{cm}^3$ 。计算表明上行区等离子体满足局部热平衡条件,利用玻尔兹曼斜线法方法计算了电子激发温度。发现介质阻挡放电上行区电子激发温度随 U_p 增加而增加。

参 考 文 献

- 1 I Stefanovic, N K Bibinov, A A Deryugin, *et al.*. Kinetics of ozone and nitric oxides in dielectric barrier discharges in O_2/NO_x and $\text{N}_2/\text{O}_2/\text{NO}_x$ mixtures [J]. *Plasma Sources Sci Technol*, 2001, 10 (3): 406–416.
- 2 H S Uhm, E H Choi, J Y. Lim, *et al.*. Secondary electron emission in a mixed gas for application to the plasma display panel [J]. *Appl Phys Lett*, 2002, 80(5): 737–739.
- 3 Jia Pengying, Li Xuechen, Yuan Ning. Comparative study on the gas temperature of a plasma jet at atmospheric pressure [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2011, 31(8): 2032–2035. 贾鹏英, 李雪辰, 袁宁. 大气压冷等离子体喷枪气体温度的比较研究 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2011, 31(8): 2032–2035.
- 4 Li Xuechen, Chang Yuanyuan, Xu Longfei. Spectral investigation on atmospheric pressure plasma column [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2012, 32(7): 1758–1761. 李雪辰, 常媛媛, 许龙飞. 大气压放电等离子体柱的光谱研究 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2012, 32(7): 1758–1761.
- 5 Li Xuechen, Jia Pengying, Yuan Ning, *et al.*. Aspects of

- upstream region in a plasma jet with dielectric barrier discharge configurations[J]. *Chinese Physica B*, 2012, 21(4): 045204.
- 李雪辰, 贾鹏英, 袁宁, 等. 介质阻挡放电喷枪上行区的研究[J]. *中国物理 B*, 2012, 21(4): 045204.
- 6 J. K Sun, T H Chung, S H Bae, *et al.*. Striation and plasma bullet propagation in an atmospheric pressure plasma jet [J]. *Phys Plasmas*, 2010, 17(5): 053504.
- 7 J J Shi, F C Zhong, J Zhang, *et al.*. A hypersonic plasma bullet train traveling in an atmospheric dielectric-barrier discharge jet [J]. *Phys Plasmas*, 2008, 15(1): 013504.
- 8 A Shashurin, M N Shneider, A Dogariu, *et al.*. Temporal behavior of cold atmospheric plasma jet[J]. *Appl Phys Lett*, 2009, 94(23): 231504.
- 9 Raizer Y. *Gas Discharge Physics*[M]. Berlin: Springer-Verlog, 1991.
- 10 M Y Qian, C S Ren, Z Z Wang, *et al.*. Stark broadening measurement of the electron density in an atmospheric pressure argon plasma jet with double-power electrodes [J]. *J Appl Phys*, 2010, 107(6): 063303.
- 11 Y B Xian, X P Lu, S Q Wu, *et al.*. Are all atmospheric pressure cold plasma jets electrically driven? [J]. *Appl Phys Lett*, 2012, 100(12): 123702
- 12 Yin Zengqian, Chai Zhifang, Dong Lifang, *et al.*. Pattern formation in the dielectric barrier discharge in argon at atmospheric pressure [J]. *Acta Physica Sinica*, 2003, 52(4): 925-928.
- 尹增谦, 柴志方, 董丽芳, 等. 大气压氩气介质阻挡放电的斑图模式 [J]. *物理学报*, 2003, 52(4): 925-928.
- 13 L F Dong, J X Ran, Z G Mao, *et al.*. Direct measurement of electron density in micro-discharge at atmospheric pressure by stark broadening[J]. *Appl Phys Lett*, 2005, 86(16): 161501.
- 14 B Y Man. Particle velocity, electron temperature, and density profiles of pulsed laser-induced plasmas in air at different ambient pressures[J]. *Appl Phys B*, 1998, 67(2): 241-245.
- 15 J H Choi, T Lee, I Han, *et al.*. Investigation of the transition between glow and streamer discharges in atmospheric air [J]. *Plasma Sources Sci Technol*, 2006, 15(3): 416-420.

栏目编辑：李文喆