

# 直流激励等离子体喷枪的发光特性研究

李雪辰 楚婧娣 鲍文婷 张 琦 贾鹏英

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** 利用针-板喷枪装置,在直流电压激励下产生了大气压非平衡态低温等离子体羽。采用光学方法,研究发现等离子体羽的放电模式为脉冲放电。通过比较放电的总发光信号、337.1 nm 谱线的发光信号与电流信号,发现电流信号脉冲宽度最大,337.1 nm 谱线的信号脉冲宽度最小。通过对发光信号频率随电压的变化关系进行研究,发现放电脉冲频率随电压的增大而增大。利用光谱仪测量了337.1 nm 的谱线强度,发现它随气流增大减小,随电压增大表现为先增大后减小。利用气体放电理论,对以上物理现象进行了定性解释。这些研究结果对于大气压非平衡态低温等离子体羽的产生和应用都具有重要意义。

**关键词** 物理光学; 等离子体喷枪; 等离子体羽; 谱线强度; 脉冲宽度

中图分类号 O432.1 O461.2+1

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201535.0704001

## Study on Discharge Characteristics of a Direct Current-Voltage Excited Plasma Jet

Li Xuechen Chu Jingdi Bao Wenting Zhang Qi Jia Pengying

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

**Abstract** A needle-copper plate device excited by a direct current (DC) voltage is used to produce a non-equilibrium low temperature plasma plume at atmospheric pressure. Through optical method, it is found that the plasma plume discharge is pulsed. The total light emission signal is compared with the emission signal of 337.1 nm spectral line and the discharge current signal, it is found that the pulse duration is the largest for the current signal, and it is the smallest for the emission signal of 337.1 nm spectral line. Furthermore, the discharge frequency is studied, and results show that the discharge frequency increases with increasing the applied voltage. By using a spectrometer, the intensity of 337.1 nm spectral line decreases with increasing gas flow rate. It increases firstly and then decreases with the increasing the voltage. All of these physical phenomena mentioned above are analyzed qualitatively by gas discharge mechanism. These findings are of great importance for the generation and applications of non-equilibrium low temperature plasma plume generated at atmospheric pressure.

**Key words** physical optics; optical method; plasma jet; plasma plume; spectral intensity; pulse duration

**OCIS codes** 040.5250; 350.5400; 300.6170

## 1 引 言

现今,利用气体放电产生的非平衡态低温等离子体在各个领域中都有非常广泛的应用。例如在生活领域中的各类等离子体光源<sup>[1]</sup>和显示<sup>[2]</sup>;在工业领域中利用等离子体进行表面改性<sup>[3]</sup>、共振传感器<sup>[4-6]</sup>和化学气相沉积薄膜<sup>[7]</sup>等;在军事方面可以利用等离子体与电磁波之间的相互作用来减少雷达散射截面以实现飞行器

收稿日期: 2015-01-19; 收到修改稿日期: 2015-03-20

**基金项目:** 国家自然科学基金项目(10805013,51077035)、教育部科技研究重点项(210014)、河北省杰出青年基金(A2012201045)、河北省自然科学基金项目(A2011201132)、河北省教育厅优秀青年项目(T2011120)、河北大学青年基金(2011Q14)、中西部高校综合实力提升工程(10805013)

**作者简介:** 李雪辰(1976-),男,博士,教授,主要从事气体放电光学诊断等方面的研究。E-mail:plasmalab@126.com

隐身<sup>[8]</sup>,也可以用于航天器推进等。

大气压放电产生的等离子体由于不需要昂贵的真空装置且操作简单在近些年倍受瞩目。然而,在传统的大气压装置中需要较高的击穿电压,这样产生的放电并不是十分稳定,易过渡到丝状放电。为了降低大气压放电的击穿电压,一般放电的间隙较小,大约为几个毫米或更小,这样小的间隙限制了待处理材料的尺度,使等离子体的应用范围有所局限。针对于此,等离子体喷枪可以实现等离子体应用区与产生区分离,进而能对复杂的三维材料进行处理<sup>[9]</sup>。显然,等离子体喷枪具有更为广泛的应用领域,成为低温等离子体研究的热点问题。研究者对不同激励方式的喷枪进行了研究。例如,Kurihara等<sup>[10]</sup>利用直流激励等离子体喷枪产生了弧光放电等离子体,由于气体温度很高,衬底需要用水来冷却。更为普遍的情况是喷枪用几十千赫兹的正弦电压激励。研究发现,在正弦激励下喷枪等离子体一般为子弹模式传播,且等离子体子弹的速度比气体流动速度要快的多<sup>[11-13]</sup>。通过比较低频激励喷枪与射频激励的喷枪,发现低频喷枪产生的等离子体羽具有较低的气体温度<sup>[14]</sup>。分析认为,在大气压非平衡态等离子体中,电子与原子(或分子)相比具有较高的能量和化学活性。在放电过程中电子会通过非弹性碰撞将能量转移给这些粒子,因此会导致气体温度的增加。但是气体温度过高可能会损伤待处理的材料。降低气体温度对材料处理和等离子体生物处理具有重要意义。显然,减小放电频率,则气体有足够的时间冷却,从而有利于降低等离子体的气体温度。研究还发现,脉冲模式放电产生的等离子体羽气体温度也较低<sup>[15]</sup>。这是由于脉冲放电中电子没有足够的时间将能量传递给原子(或分子)。为了产生脉冲放电等离子体羽,通常采用亚微秒高压脉冲<sup>[16-17]</sup>甚至纳秒脉冲激励<sup>[18-20]</sup>。显然,与直流电源相比,脉冲电源较难获得。所以,若采用直流电压激发脉冲放电,将具有重要意义。Bussiahn等<sup>[21]</sup>和Li等<sup>[22]</sup>分别利用直流电源激励,采用空心针-板装置产生了直径为亚毫米量级的脉冲放电,但由于等离子体羽直径太小,限制了其应用范围。

本文采用直流激励针-板喷枪放电装置,产生了直径几毫米的脉冲放电等离子体羽。通过对放电过程中的电压波形、电流波形和发光信号进行比较,对放电机制进行了分析,并对放电的发射光谱和放电频率进行了研究。

## 2 实验装置

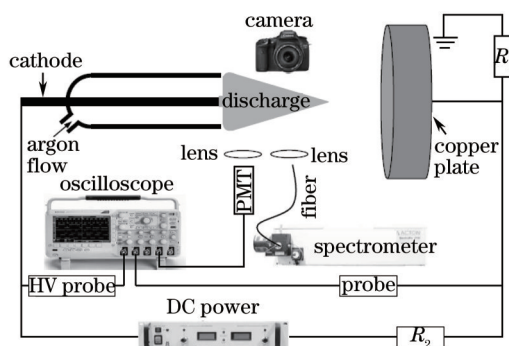


图1 实验装置示意图

Fig.1 Schematic diagram of the experimental setup

实验装置如图1所示(DC power:直流电源, HV:高压),钨针电极(直径为1.5 mm,尖端直径约为800  $\mu\text{m}$ )位于内径为7 mm的玻璃管的轴心处,玻璃管中通入纯度为99.99%的氩气。钨针电极的尖端与玻璃管的出口平齐,在气流的下游区距离出口4.5 cm处放置有铜板电极(直径为8 cm),整个放电装置呈轴对称结构。钨针电极通过镇流电阻( $R_2 = 900 \text{ k}\Omega$ )与高压直流电源(Glassman EK15R40)的负高压相连,铜板接地。利用带有微距镜头的数码相机(Canon EOS7D)对放电进行拍照,曝光时间为400 ms。采用高压探头(Tektronix P6015A)对钨针与铜板间的放电电压进行测量。通过阳极与地之间串联小电阻( $R_1 = 500 \Omega$ )上的分压,来测量放电电流。利用焦距为12.5 cm的透镜将放电发出的光进行汇聚,并通过光电倍增管(PMT)(ET 9085SB)对放电的发光信号进行探测,这样得到的发光信号为总光信号。示波器(Tektronix DPO4104)可以实现对放电电压、放电电流与发光信号的显示和存储。放电发光经过滤光片(Semrock FF01-335/7-25)后进入PMT,从而

实现对 337.1 nm 谱线的光信号探测。测量前,对测量总光信号和 337.1 nm 谱线的两个 PMT 进行了校准<sup>[23]</sup>。对于光谱探测,放电发光通过透镜汇聚入射到光纤中,光纤与光谱仪(ACTON SP2758, 配备有 CCD: 1340 pixel×400 pixel, 光栅为 300 line/mm)的入射狭缝相连,从而可以利用光谱仪对放电发射光谱(300~800 nm)进行采集,并且通过采得的光谱图可以得到对应谱线的谱线强度。

### 3 实验结果与分析

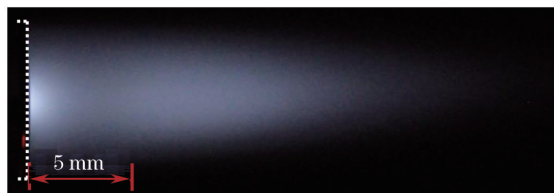


图2 等离子体羽放电照片(虚线为喷口位置)。电压 15 kV, 氩气流量 10 L/min, 曝光时间 0.4 s  
Fig.2 Discharge image of the plasma plume with a voltage of 15 kV (the dash line represents the nozzle),  
a flow rate of 10 L/min and an exposure time of 0.4 s

当外加电压增加到一定程度时,气体击穿放电,这时在喷口外侧会产生明亮的等离子体羽,如图 2 所示,并且随着电压的增大放电等离子体羽的长度增加。从图 2 可以看出,等离子体羽呈圆锥形,随着离钨针电极(位于图中左侧)距离增大,放电的直径逐渐减小。就发光强度而言,放电在针尖处发光最强,随着离针尖处距离的增大(沿着气流方向),放电发光出现一个较暗的区域。进一步增大距离,亮度先增大后逐渐减弱。研究还发现,在某些实验条件下(针-板间距较小,电压较高),钨针与铜板间会出现火花放电。主要研究等离子体羽的放电和发光特性。

放电的电压、电流及总的光信号如图 3 所示。从图中可以看出,电压为直流(在误差允许的范围内为恒定值),而电流信号和总光信号却表现为脉冲形式,其中电流信号脉冲峰值约为 22 mA。由此可见,虽然激励源为直流电源,但产生的放电为周期性的脉冲形式,且电流脉冲和光信号的脉冲几乎同时出现。脉冲放电的周期约为 240  $\mu$ s。此外,从图 3 还可以看出电流信号的脉冲宽度比光信号的脉冲宽度稍大。

放电发光是由于电子碰撞原子(或分子),使原子(或分子)激发,受激粒子从激发态返回基态时将获得的能量以光辐射的形式释放出来。当两电极的外加电压达到气体的击穿电压时,氩气击穿放电产生等离子体。气体击穿时,会使电子倍增导致电流迅速增加。由于放电在大气压空气氛围下进行,放电过程中会有氧分子扩散到放电气体中。氧分子呈电负性,易与电子结合形成  $O_2^-$ 。 $O_2^-$  的迁移速度比电子的迁移速度慢得多,因此  $O_2^-$  会在等离子体羽的末端堆积形成空间电荷。这些空间电荷会产生附加电场,该附加电场在等离子体羽处与外加电场方向相反,使得总电场减小。随着放电的进行,空间电荷不断增多,当总电场低于一定数值,放电会熄灭。因此,放电呈现脉冲形式。当放电结束后,空间电荷会在外加电场作用下继续向接地电极移动,到达地电极后消失。空间电荷的消失会使放电空间的总电场增加,当再次增加到气体击穿的临界值时,气体再次击穿放电,从而形成周期性的脉冲放电(图 3 所示)。由于空间电荷移动较为缓慢,因此放电结束后会有较长时间的放电间歇。

对 337.1 nm 谱线的光信号、总发光信号以及放电电流信号进行了测量,结果如图 4 所示。由图可以看出,337.1 nm 谱线的光信号、总光信号与电流信号的下降时间几乎相同。然而,337.1 nm 谱线的上升时间最短,其次为总光信号,而电流信号的上升时间最长。产生这种现象的原因可以分析如下。如前所述,放电发光源于受激粒子向较低激发态的跃迁。一般而言,受激粒子从激发态向低能态跃迁时所需的时间是很短的,所以一旦电场达到击穿阈值,337.1 nm 谱线、总光信号和放电电流几乎同时出现。但随着空间电荷的积累,放电脉冲结束,众多受激粒子很快跃迁回基态,因此随着放电的结束,337.1 nm 谱线最先结束。但放电中也存在跃迁到亚稳态的粒子,由于亚稳态的能级寿命较长,远大于普通激发态的寿命<sup>[24-25]</sup>,这些亚稳态粒子需要弛豫到较低的能级才能向基态跃迁,所以当放电结束后,总光信号具有较长的上升时间。即 337.1 nm 谱线的脉冲宽度比总光信号脉冲宽度窄。而对于电流信号来说,如前所述,当前一个周期的放电结束后,会有空间电荷残留在放电空间,它们会在电场的作用下缓慢向板电极移动形成电流。由于离子能量很低,它

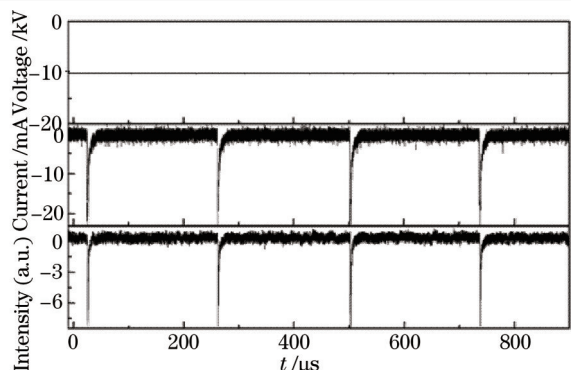


图3 放电的电压、电流和总光信号波形，其中氩气流量为 5 L/min

Fig.3 Waveforms of the voltage, the discharge current and the total light signal, the gas flow rate is 5 L/min

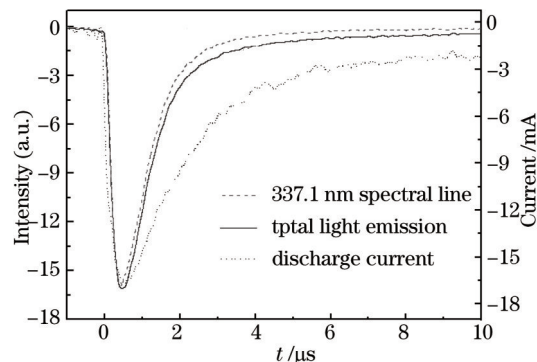


图4 337.1 nm 谱线的光信号、总光信号以及电流信号的时间演化,其中电压为 10 kV,氩气流量为 5 L/min

Fig.4 Temporal evolution of the 337.1 nm spectral line, total light emission and discharge current with a voltage of 10 kV and a flow rate of 5 L/min

移动过程中几乎不会激发中性粒子发光,因此电流的上升时间要远大于发光信号的上升时间。最终导致电流信号的脉冲宽度比总光信号和 337.1 nm 谱线的光信号都宽。

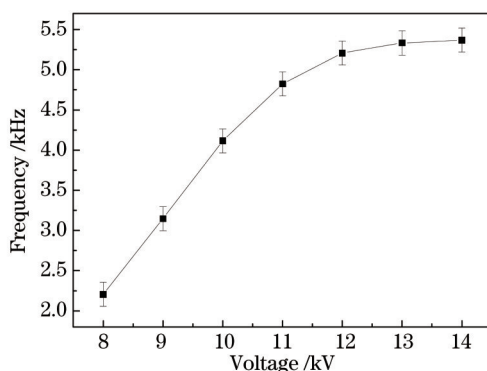


图5 放电频率随电压的变化关系,其中氩气流量为 5 L/min

Fig.5 Discharge frequency as a function of the voltage, the gas flow rate is 5 L/min

如前所述,发光脉冲具有周期性,从而可以计算放电频率。利用这种办法,得到了放电频率随电压的变化关系,如图5所示。可见,随电压的增大放电频率增大,放电频率的最大值约为 5.4 kHz。对放电频率随电压的变化关系可以解释如下。当针-板间距固定时,电压的增加会导致电场强度增大。由于电荷的迁移速度与电场成正比,因此,当放电结束后离子的迁移速度会随着电压的增大而增大。这意味着空间电荷消失到接地电极所需要的时间更短,这样放电间歇时间也就随之减少,即放电频率会随着外加电压的增大而增大。

图6给出了 300 nm 到 800 nm 的放电发射光谱。从图中可以看出,放电发射光谱中存在多条跃迁谱线,这表明在放电过程中电子碰撞将气体原子(和分子)激发到多种高激发态,激发态粒子退激发时发射出多条特定谱线。其中 300 nm 到 410 nm 的谱线主要为  $N_2$  的第二正带系( $C^3\Pi_u-B^3\Pi_g$ )和羟基( $A^2\Sigma^+-X^2\Pi$ )的谱线<sup>[26]</sup>。羟基除了 308.8 nm 谱线外,还有 616.0 nm 发射光谱<sup>[27]</sup>。众所周知,气体放电发射光谱中氩原子发射光谱包含红线和蓝线<sup>[28]</sup>。在图6中,可以观察到 690 nm 到 800 nm 之间的多条谱线,它们与红线对应,例如 696.5、763.5、772.4 nm 等谱线,这些红线在氩气辉光放电中表现为粉红光<sup>[29]</sup>。此外,410 nm 到 440 nm 之间应该为氩原子的蓝线区域,在这个区域只发现了 Ar I(433.8 nm)的谱线。

从图6可以得到不同谱线的强度,因此可以研究谱线强度随实验参数的变化关系。图7给出了 337.1 nm 谱线强度在不同气流下随电压变化的曲线。从图7可以看出,气流越大 337.1 nm 的谱线强度越小,且 337.1 nm 的谱线强度随电压的增大先增大后减小。显然,图7所示的光谱强度由单次放电的强度与放电频率共同决定的。放电频率越大,谱线强度越大;单次放电的强度越大,谱线强度也越大。从图4中可以看出电压较低时,随电压的增加放电频率增大。因此谱线强度会随着放电电压的增大而增大。另一方面,单次放电的放电强度受



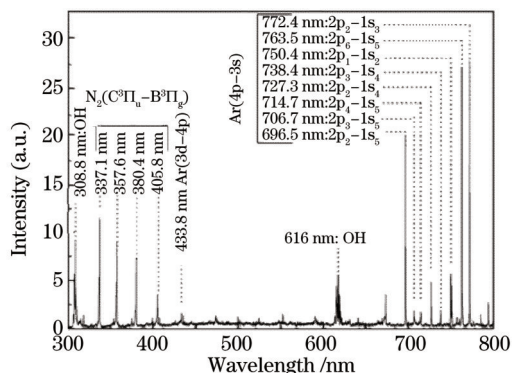


图 6 300–800 nm 的放电发射光谱,其中电压为 10 kV, 氩气流量为 5 L/min

Fig.6 Optical spectrum emitted from the plasma plume scanning from 300 nm to 800 nm. the voltage is 10 kV and argon flow rate is 5 L/min

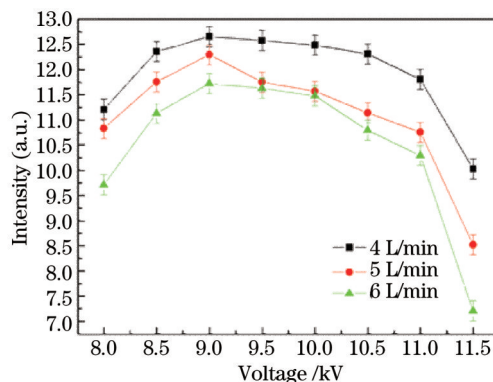


图 7 不同氩气流量下 337.1 nm 谱线强度随电压的变化关系

Fig.7 Spectral line intensity of 337.1 nm as a function of the voltage under different argon flow rates

击穿电场的影响,放电频率随电压增大意味着相应的放电周期会越来越短,故放电脉冲开始前遗留在放电空间的活性粒子数就会随着外加电压增大而增多。活性粒子数目的增多会使击穿电场减小,因此单次放电的放电强度也会随着电压的增大而减小。这个因素使得发射光谱强度会随着外加电压增大而减小,因此当电压增加到一定的程度之后,337.1 nm 谱线强度会随着电压继续增大而减小。

## 4 结 论

利用针-板放电装置在大气压条件下产生了非平衡态等离子体羽,并用光学方法对其发光和光谱特性进行了研究。结果表明,采用直流电源激励可产生脉冲模式的放电发光。通过比较 337.1 nm 的发光信号、总的发光信号和电流信号的脉冲宽度,发现 337.1 nm 的发光脉冲最窄,其次为总的发光信号,放电电流脉冲宽度最宽。利用发光信号可以获得放电频率,研究发现放电频率随电压的增大而增大。此外,放电发射光谱(从 300 nm 到 800 nm)包含氩原子跃迁谱线、N<sub>2</sub> 的第二正带系和羟基的谱线带系。利用光谱仪测 337.1 nm 谱线强度,发现 337.1 nm 谱线的强度随气流的增大而减小,随电压的增加先增大后减小。

## 参 考 文 献

- 1 Luo Haiyun, Zhou Liang, Bo Lv, *et al.*. Observation of the transition from a Townsend discharge to a glow discharge in helium at atmospheric pressure[J]. Appl Phys Lett, 2007, 91(22): 221504.
- 2 Han S Uhm, Eun H Choi, Jae Y Lim. Secondary electron emission in a mixed gas for application to the plasma display panel[J]. Appl Phys Lett, 2002, 80(5): 737-739.
- 3 Nicolas G, Steve M, Francoise M. A new approach to SiO<sub>2</sub> deposit using a N<sub>2</sub>-SiH<sub>4</sub>-N<sub>2</sub>O glow dielectric barrier-controlled discharge at atmospheric pressure[J]. J Phys D: Appl Phys, 2000, 33(19): L104-L108.
- 4 Jiang Yongxiang, Liu Binghong, Zhu Xiaosong, *et al.*. Study of silver coated hollow-core fiber surface plasmon resonance sensor[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(2): 0223004.  
蒋永翔, 刘炳红, 朱晓松, 等. 镀银空芯光纤表面等离子体共振传感器的研究[J]. 光学学报, 2014, 34(2), 0223004.
- 5 Qi Pan, Ma Xiao, Zhong Jingang, *et al.*. Application of portable surface plasmon resonance biosensor in the quantitative detection of low concentration solution[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2014, 51(7): 072802.  
秦攀, 马骁, 钟金刚, 等. 便携式表面等离子体共振生物传感器在低浓度溶液定量检测中的应用[J]. 激光与光电子学进展, 2014, 51(7): 072802.
- 6 Zhang Pengcheng, Lv Min, Chen Xiao, *et al.*. Study and fabrication of surface-resonance fiber optic sensor with tapered probe [J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(3): 0305005.  
张鹏程, 吕敏, 陈笑, 等. 光纤表面等离子体共振传感器锥形探头的研制[J]. 中国激光, 2013, 40(3): 0305005.
- 7 Joosung Kim, Dongjin Byun, Jin-sang Kim, *et al.*. Low-temperature growth of GaN by atomic nitrogen based on a dielectric barrier discharge[J]. Journal of Crystal Growth, 2000, 210(4): 478-486.

- 8 Takaki K, Hosokawa M, Sasaki T, *et al.*. Production of atmospheric-pressure glow discharge in nitrogen using needle-array electrode [J]. Appl Phys Lett, 2005, 86(15): 151501.
- 9 Ni T L, Ding F, Zhu X D, *et al.*. Cold microplasma plume produced by a compact and flexible generator at atmospheric pressure[J]. Appl Phys Lett, 2008, 92(24): 241503.
- 10 Kurihara K, Sasaki K, Kawarada M, *et al.*. High rate synthesis of diamond by dc plasma jet chemical vapor deposition[J]. Appl Phys Lett, 1988, 52(6): 437.
- 11 Ye Rubin, Zheng Wei. Temporal-spatial-resolved spectroscopic study on the formation of an atmospheric pressure microplasma jet[J]. Appl Phys Lett, 2008, 93(7): 071502.
- 12 Lu Xin Pei, Laroussi Mounir, Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses[J]. J Appl Phys, 2006, 100(6): 063302.
- 13 Walsh J L, Iza F, Janson N B, *et al.*. Three distinct modes in a cold atmospheric pressure plasma jet[J]. J Phys D: Appl Phys, 2010, 43(7): 075201.
- 14 Kim Dan Bee, Rhee J K, Gweon B, *et al.*. Comparative study of atmospheric pressure low and radio frequency microjet plasmas produced in a single electrode configuration[J]. Appl Phys Lett, 2007, 91(15): 151502.
- 15 Liu J H, Liu X Y, Hu K, *et al.*. Plasma plume propagation characteristics of pulsed radio frequency plasma jet[J]. Appl Phys Lett, 2011, 98(15): 151502.
- 16 Walsh J L, Kong M G, Room-temperature atmospheric argon plasma jet sustained with submicrosecond high-voltage pulses[J]. Appl Phys Lett, 2007, 91(22): 221502.
- 17 Lu XinPei, Laroussi Mounir. Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses[J]. J Appl Phys, 2006, 100(6): 063302.
- 18 Walsh J L, Kong M G. Portable nanosecond pulsed air plasma jet[J]. Appl Phys Lett, 2011, 99(8): 081501.
- 19 Machala Z, Jedlovsky I, Martisovits V. DC discharges in atmospheric air and their transitions[J]. IEEE Trans Plasma Sci, 2008, 36(4): 918-919.
- 20 Janda Mario, Martisovits Viktor, Machala Zdenko. Transient spark: a dc-driven repetitively pulsed discharge and its control by electric circuit parameters[J]. Plasma Sources Sci Technol, 2011, 20(3): 035015.
- 21 Bussiahn R, Brandenburg R, Gerling T, *et al.*. The hairline plasma: an intermittent negative dc-corona discharge at atmospheric pressure for plasma medical applications[J]. Appl Phys Lett, 2010, 96(14): 143701.
- 22 Li Xuechen, Di Cong, Jia Pengying, *et al.*. Characteristics of an atmospheric-pressure argon plasma jet excited by a dc voltage[J]. Plasma Sources Sci Technol, 2013, 22(4): 045007.
- 23 Li Xuechen, Chang Yuanyuan, Xu Longfei. Optical investigation on the discharge characteristics of the upstream region in dielectric barrier discharge[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(7): 0730001.  
李雪辰, 常媛媛, 许龙飞. 光学方法研究介质阻挡放电上行区的放电特性[J]. 光学学报, 2013, 33(7): 0730001.
- 24 Ilija Stefanovic', Thomas Kuschel, Sandra Schröter, *et al.*. Argon metastable dynamics and lifetimes in a direct current microdischarge[J]. J Appl Phys, 2014, 116(11): 113302.
- 25 Lu XinPei, Mounir Laroussi. Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses[J]. J Appl Phys, 2006, 100(6): 063302.
- 26 Li Yonghui, Dong Lifang. Spatial distribution of atmospheric plasma jet temperature[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(4): 0430003.  
李永辉, 董丽芳. 大气压射流等离子体温度空间分布[J]. 光学学报, 2013, 33(4): 0430003.
- 27 Walsh J L, Kong M G. Room-temperature atmospheric argon plasma jet sustained with submicrosecond high-voltage pulses[J]. Appl Phys Lett, 2007, 91(22): 221502.
- 28 Annemie Bogaerts, Renaat Gijbels, Jaroslav Vlcek. Modeling of glow discharge optical emission spectrometry: calculation of the argon atomic optical emission spectrum[J]. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 1998, 53(11): 1517-1526.
- 29 Li Xuemei, Tang Jie, Zhan Xuefang, *et al.*. A dielectric-barrier discharge enhanced plasma brush array at atmospheric pressure [J]. Appl Phys Lett, 2013, 103(3): 033519.

栏目编辑: 刘丰瑞