

# 介质阻挡放电羽的等离子体参数光学诊断

李亚茹<sup>1</sup>, 李雪辰<sup>1,2</sup>, 贾鹏英<sup>1,2\*</sup>, 张盼盼<sup>1</sup>, 耿金伶<sup>1</sup>

<sup>1</sup>河北大学物理科学与技术学院, 河北 保定 071002;

<sup>2</sup>河北省光电信息材料重点实验室, 河北 保定 071002

**摘要** 利用介质阻挡放电装置在大气压下产生了稳定的氩等离子体羽, 利用示波器对等离子体羽的外加电压、电流和发光信号进行了记录。光学诊断结果表明, 等离子体羽由高速运动的等离子体子弹组成。基于碰撞辐射模型, 利用 300~800 nm 范围的光学发射谱诊断了等离子体羽的电子密度。结果表明, 电子密度随外加电压和气体流量的增大而增大, 随驱动频率的增大而减小。利用光谱法对等离子体羽的振动温度和转动温度进行了研究, 发现其振动温度和转动温度均随外加电压和气体流量的增大而升高, 随驱动频率的增大而降低。通过分析放电电场, 对以上现象进行了定性解释。

**关键词** 光谱学; 介质阻挡放电; 等离子体喷枪; 等离子体子弹; 发射光谱; 电子密度

**中图分类号** O433.1; O433.4 **文献标识码** A

**doi:** 10.3788/AOS201737.0430002

## Optical Diagnosis on Plasma Parameters of a Plasma Plume Generated by Dielectric Barrier Discharge

Li Yaru<sup>1</sup>, Li Xuechen<sup>1,2</sup>, Jia Pengying<sup>1,2</sup>, Zhang Panpan<sup>1</sup>, Geng Jinling<sup>1</sup>

<sup>1</sup>College of Physics Science and Technology, Hebei University, Baoding, Hebei 071002, China;

<sup>2</sup>Key Laboratory of Photo-Electronics Information Materials of Hebei Province, Baoding, Hebei 071002, China

**Abstract** A stable argon plasma plume is generated at atmospheric pressure by a plasma jet in dielectric barrier discharge configurations. The applied voltage, the current and the light emission signal are simultaneously recorded by an oscilloscope. Results indicate that the plasma plume is composed of successive fast-moving plasma bullets. Based on collisional-radiative model, the electron density of the plasma plume is investigated by optical emission spectrum in the range from 300 nm to 800 nm. Optical diagnosis shows that the electron density increases with the increasing applied voltage or gas flow rate. However, it decreases with the increasing driving frequency. The vibrational temperature and the rotational temperature of the plasma plume are also studied by optical emission spectroscopy. It is found that both of them increase with the increasing applied voltage or gas flow rate, and decrease with the increasing driving frequency. The aforementioned phenomena are qualitatively explained by analyzing the electric field of discharge.

**Key words** spectroscopy; dielectric barrier discharge; plasma jet; plasma bullet; optical emission spectrum; electron density

**OCIS codes** 300.6170; 300.6190; 300.2140

## 1 引 言

等离子体喷枪具有装置简单、操作方便, 能耗低等优点, 且产生的等离子体温度低、化学物种活性高, 因此受到广泛的关注。等离子体喷枪在工业领域可用于气相沉积<sup>[1-2]</sup>、表面改性<sup>[3]</sup>; 在生物医疗领域可用于杀

收稿日期: 2016-11-21; 收到修改稿日期: 2016-12-20

基金项目: 国家自然科学基金(11575050, 10805013)、河北省自然科学基金(A2015201092, A2015201199)、河北省教育厅科研基金(LJRC011)

作者简介: 李亚茹(1992—), 女, 硕士研究生, 主要从事等离子体物理方面的研究。E-mail: liyaru@126.com

导师简介: 李雪辰(1976—), 男, 博士, 教授, 主要从事等离子体物理方面的研究。E-mail: xcli@hbu.edu.cn

\* 通信联系人。E-mail: 18730288690@163.com

菌消毒<sup>[4]</sup>、血液凝固<sup>[5-6]</sup>；军事上可用于等离子体飞行器隐身<sup>[7]</sup>等。

等离子体喷枪可以采用不同的激励方式,如直流激励、正弦激励、脉冲激励和射频激励<sup>[8]</sup>。根据气流与电场相对方向的不同,喷枪可分为平行场喷枪与交叉场喷枪<sup>[9]</sup>。平行场喷枪的气流方向与电场方向平行,交叉场喷枪的气流方向与电场方向垂直。根据电极结构的不同,喷枪可分为针-板型喷枪<sup>[10]</sup>、棒-环型喷枪<sup>[11]</sup>、介质阻挡放电(DBD)喷枪<sup>[12]</sup>等,其中DBD喷枪最为常见。Nie等<sup>[13]</sup>利用DBD喷枪,发现通过改变实验条件喷枪存在三种放电模式:弥散模式、自组织模式和不稳定模式。Li等<sup>[14]</sup>采用三电极装置(DBD喷枪与接地水电极),在大气压空气中分别产生了较大体积的等离子体羽和等离子体柱两种模式的放电。通过对氦气DBD喷枪进行研究,Jiang等<sup>[15]</sup>发现其机制是流光电晕放电。Lu等<sup>[16]</sup>利用DBD喷枪产生等离子体羽,并发现等离子体羽是由高速运动的等离子体子弹(速度大于 $10\text{ km}\cdot\text{s}^{-1}$ )形成的。Sands等<sup>[17]</sup>研究了DBD喷枪的放电特性和动力学,利用流光机制成功解释了等离子体子弹的传播过程。Jarrige等<sup>[18]</sup>利用氦气DBD喷枪,发现等离子体子弹的速度和直径均随外加电压峰值的增大而增大。Hong等<sup>[19]</sup>利用螺旋环形电极的DBD喷枪产生了氩气等离子体羽,发现等离子体羽的振动温度、转动温度、电子密度等参数均随外加电压的增大而呈线性增加。电子密度是研究气体放电的重要参数之一,其诊断方法主要有Stark展宽、Thomson散射等,对于电子密度较低的情况很难用以上方法计算得到。Zhu等<sup>[20]</sup>基于碰撞辐射模型(CRM),利用发射光谱的谱线强度比,计算了大气压气体放电的电子密度。

为了更深入地探究介质阻挡放电喷枪的放电特性,本文对喷枪产生的等离子体羽的特性参数进行了详细的诊断,包括放电演化过程、电子密度、振动温度和气体温度。

## 2 实验装置

实验装置如图1所示。DBD装置由钨针电极和水电极组成。直径为 $1.0\text{ mm}$ ,长度为 $15.0\text{ cm}$ 的钨针(针尖曲率半径约为 $200\text{ }\mu\text{m}$ )作为接地电极,长度为 $13.5\text{ cm}$ ,厚度为 $1.0\text{ mm}$ 的两个不同内径的玻璃管与钨针电极同轴放置(外玻璃管内径为 $18.0\text{ mm}$ ,内玻璃管内径为 $6.0\text{ mm}$ )。两个玻璃管之间充满水作为水电极,与电源高压输出端相连(输出 $46\text{ kHz}$ 的正弦信号)。纯度为 $99.999\%$ 、流量为 $3\text{ L/min}$ 的氩气从钨针与内玻璃管的空隙间流入并从喷口流出(喷口直径约为 $2.5\text{ mm}$ )。利用高压探头(Tektronix P6015A)来测量水电极与地电极之间的电压,并利用电流探头(Tektronix TCPA300)来测量两电极之间的电流。放电的发光信号由光电倍增管(PMT, ET 9085SB)进行探测。将采集到的外加电压、电流和发光信号在示波器(Tektronix DPO4104)上进行显示和储存。利用数码相机(Canon EOS7D)和ICCD(Andor DH334)对放电现象进行拍照和储存,曝光时间分别为 $0.1\text{ s}$ 和 $10\text{ ns}$ 。采用光栅光谱仪(ACTON SP2758)对放电等离子体羽的发光光谱进行采集。

## 3 结果与分析

图2为等离子体羽的外加电压、电流和放电发光信号的波形。从图2可以看出,峰值电压为 $3.5\text{ kV}$ ,电

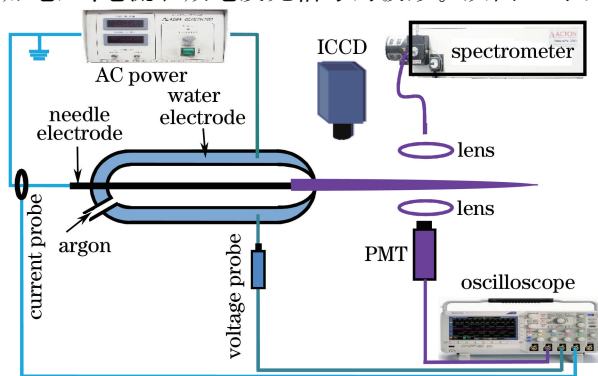


图1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic of the experimental setup

压在正半周期的下降沿出现畸变。电流包含位移电流和放电电流<sup>[21]</sup>,其中放电电流表现为较大的尖峰,而位移电流为正弦形式。光脉冲相对于放电电流脉冲有一定的时间滞后,表明同轴 DBD 放电和等离子体羽产生于不同时刻。关于同轴 DBD,在电压的正半周期,钨针电极为阴极,水电极为阳极。气体击穿后在水电极介质表面积累大量的壁电荷(负电荷),这些壁电荷具有双重作用。对本半周期的放电,壁电荷产生的电场与外加电场方向相反,抑制了放电的进行。对于下半周期,由于外加电场反向,因此壁电荷产生的电场与外加电场方向相同,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。

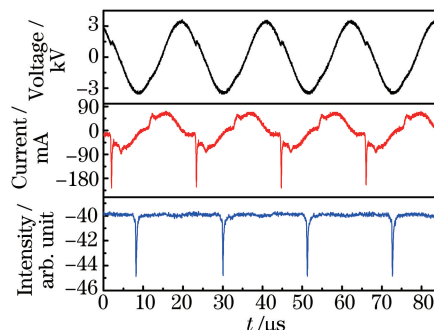


图 2 外加电压、电流和发光信号的实验波形(峰值电压:3.5 kV,驱动频率:46 kHz,气体流量:3 L/min)

Fig. 2 Experimental waveforms of the applied voltage, current and light emission signal

(peak voltage: 3.5 kV, driving frequency: 46 kHz, gas flow rate: 3 L/min)

为了研究等离子体羽的放电机理,利用 ICCD 对等离子体羽的时间演化进行了拍摄。作为对比,图 3 最上方给出了一张曝光时间 0.1 s 的等离子体羽照片。从此照片可以看到等离子体羽在喷口处为白色,远离喷口处为蓝色,且蓝色区域较白色区域亮度有所减弱。从图 3 的 ICCD 照片可以看出,肉眼观察到的等离子体羽实际是由快速运动的子弹形成的<sup>[22-23]</sup>,通过图 3 可以计算等离子体子弹的平均速度约为  $1.04 \times 10^4$  m/s。

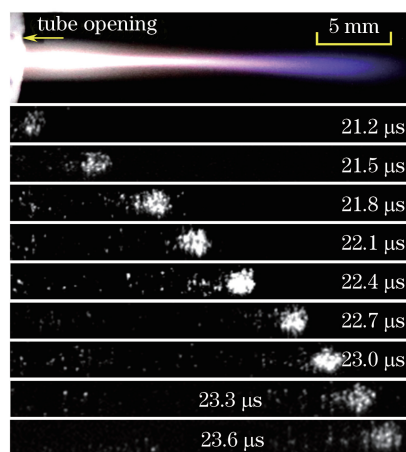


图 3 等离子体羽的时间演化过程(最上方照片曝光时间为 0.1 s,其余为 10 ns),实验参数与图 2 放电参数一致

Fig. 3 Temporal evolution of the plasma plume. The exposure time is 0.1 s for the top image and 10 ns for others, experimental parameters correspond to those in Fig. 2

由于等离子体羽是在外加电压的负半周期产生的(图 2 所示),且在负半周期钨针电极为阳极,雪崩产生的电子快速运动到钨针电极,因此在钨针电极前方(沿着气流方向)遗留正电荷。光致电离产生的种子电子引发新的电子雪崩,这些电子在向钨针电极运动的过程中中和原有的残余正电荷,同时会在流光传播前方遗留新的空间正电荷。此过程不断重复,使得流光沿着气流方向传播。

图 4 为等离子体羽 300~800 nm 的发射光谱。在 300~450 nm 的光谱范围内,可以观察到 OH (308 nm)和  $N_2$  第二正带系( $C^3 \Pi_u - B^3 \Pi_g$ )的较弱的谱线<sup>[24]</sup>。在长波段主要是氩原子的谱线,此外还有 O 原子(777.4 nm)的谱线。这些谱线可以归因于空气扩散进入等离子体羽,其中的水分子和氮分子与等离子体羽中的高能电子或亚稳态粒子发生激发碰撞,进而发射出 OH 和  $N_2$  的谱线。由于工作气体是氩气,所以

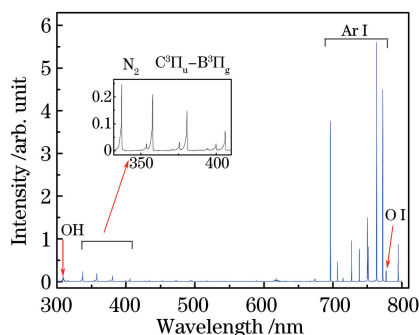


图 4 300~800 nm 范围等离子体羽的发射光谱

Fig. 4 Optical emission spectrum of the plasma plume in the range from 300 nm to 800 nm

在 690~800 nm 之间可以观察到较强的 Ar 谱线。

采用碰撞辐射模型,利用氩气发射光谱中两条不同谱线强度的比值( $I_{750.4}/I_{738.4}$  或  $I_{738.4}/I_{763.5}$ )对等离子体羽的电子密度进行了诊断。发射光谱的谱线强度比可表示为

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{A_1 n_1}{A_2 n_2}, \quad (1)$$

式中  $I_1, I_2$  是 2p 能级的电子向 1s 能级跃迁辐射时的谱线强度,  $A_1, A_2$  是爱因斯坦系数,  $n_1, n_2$  是两个不同 2p 能级的密度。在计算等离子体羽电子密度的过程中,通常采用来自主量子数  $n=1$  能级的三条谱线 ( $2p_1 \rightarrow 1s_2, 750.4 \text{ nm}; 2p_3 \rightarrow 1s_4, 738.4 \text{ nm}; 2p_6 \rightarrow 1s_5, 763.5 \text{ nm}$ ), 通过谱线的不同能级  $2p_1, 2p_3$  和  $2p_6$  的强度比  $R_{13} (n_{2p_1}/n_{2p_3})$  和  $R_{36} (n_{2p_3}/n_{2p_6})$  来得到电子密度  $n_e$ 。通常,氩气等离子体喷枪的电子密度在  $10^{11} \sim 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  范围内<sup>[25]</sup>, 所以选择  $R_{13} (n_{2p_1}/n_{2p_3})$  测量电子密度。

图 5 为电子密度随各种实验参数的变化。显然,电子密度随外加电压或气体流量的增大而增大,随驱动频率的增大而减小。造成这种现象的原因如下。随着外加电压的增大,外加电场的增长率变大,导致流光传播过程中感受到的电场更强。因此随着外加电压的增大,流光头具有更高的电子密度。气体流动会稀释上次放电残余的活性粒子(亚稳态粒子、电荷等)<sup>[26]</sup>,使放电的击穿电场增大。所以气体流量越大,放电的击穿电场越大。即气体流量越大,流光传播的电场越大,其电子密度也越大。当增大放电频率,上次放电残留的活性粒子的衰减时间减小,即放电前会有更高的活性粒子密度。因此放电的击穿电场会随着频率的增大而减小,等离子体羽的电子密度也随之减小。

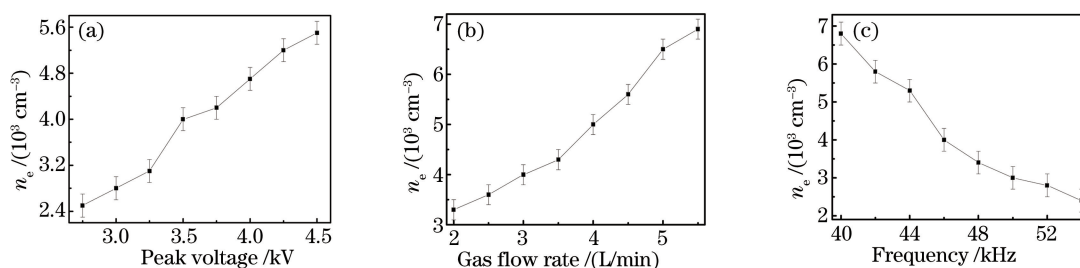


图 5 等离子体羽的电子密度随(a)外加电压、(b)气体流量和(c)驱动频率的变化。

实验参数:(a) 46 kHz, 3.0 L/min; (b) 3.5 kV, 46 kHz; (c) 3.5 kV, 3.0 L/min

Fig. 5 Electron density of the plasma plume as functions of (a) applied voltage, (b) gas flow rate and (c) driving frequency. Experimental parameters: (a) 46 kHz, 3.0 L/min; (b) 3.5 kV, 46 kHz; (c) 3.5 kV, 3.0 L/min

振动温度  $T_V$  和转动温度  $T_R$  在等离子体形成过程中起着重要作用,粒子的振动激发能够吸收能量,有助于等离子体发生化学反应。转动激发对等离子体温度的高低有较大影响<sup>[27]</sup>。在大气压放电等离子体中,一般可以认为气体温度近似等于分子转动温度<sup>[28]</sup>。利用  $N_2$  的第二正带系算出了分子振动温度<sup>[29]</sup>,通过 LIFBASE 软件对测得的 OH 实验光谱与模拟光谱进行对比得到了相应的转动温度<sup>[30]</sup>。图 6 分别为振动温度和转动温度随各种实验参数的变化。可以看出,振动温度和转动温度随外加电压或气体流量的增大而增大,随驱动频率的增大而减小。对于此现象可作定性解释如下。由于电子平均能量与电子所处的电场强度

成正比,随着外加电压的增加,放电的总电场强度增大。电子平均能量增大,故碰撞过程中传递给气体分子的能量也增大,导致振动温度和转动温度升高,即振动温度和转动温度随外加电压的增大而升高。气体流动会猝灭一些上次放电残余的活性粒子,导致放电的击穿电场增大。所以气体流量越大,放电的击穿电场越大,导致等离子体中电子平均能量越高,表现为分子的振动温度和转动温度随着气体流量的增大而升高。随着驱动频率的增大,放电残余活性粒子的衰减时间缩短。因此,在下次放电前会有更多的活性粒子。这样会降低放电的击穿电场,导致电子平均能量降低,碰撞过程中传递给气体分子的能量随之减少,所以分子的振动温度和转动温度也随之降低。

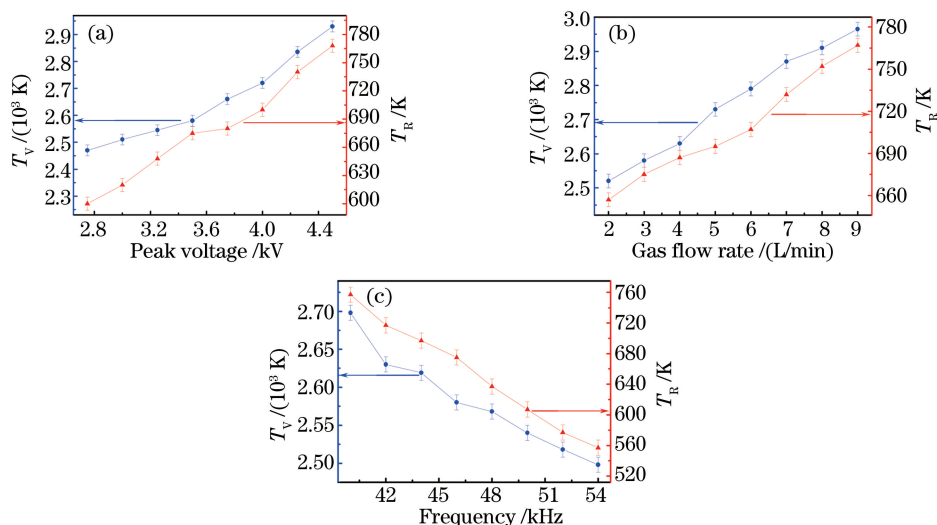


图 6 等离子体羽的振动温度和转动温度随(a)外加电压、(b)气体流量和(c)驱动频率的变化。

实验参数: (a) 46 kHz, 3.0 L/min; (b) 3.5 kV, 46 kHz; (c) 3.5 kV, 3.0 L/min

Fig. 6 Vibration temperature and rotation temperature as functions of (a) applied voltage, (b) gas flow rate and (c) driving frequency. Experimental parameters:

(a) 46 kHz, 3.0 L/min; (b) 3.5 kV, 46 kHz; (c) 3.5 kV, 3.0 L/min

## 4 结 论

利用介质阻挡放电装置在大气压下产生了稳定的氩气等离子体羽,并通过 ICCD 快照发现等离子体羽是由等离子体子弹的高速运动形成,等离子体子弹的传播速度为  $10^4$  m/s 量级。利用光栅光谱仪采集了等离子体羽发光全谱。利用 CRM 对等离子体羽电子密度进行研究,发现等离子体羽电子密度随外加电压和气体流量的增加而增大,随驱动频率的增加而减小,且电子密度的大小均为  $10^{13}$  量级。利用  $N_2$  的第二正带系和 OH 的谱线对等离子体羽的振动温度和转动温度进行诊断,结果发现其振动温度和转动温度均随外加电压或气体流量的增加而升高,随驱动频率的增加而降低。

## 参 考 文 献

- [1] Wang Jinjun, Wang Xiaoliang, Zhang Jingwen, *et al.* Boron-doped diamond thin films homoepitaxial growth and preparation of Schottky barrier diode[J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(7): 0716001.  
王进军, 王晓亮, 张景文, 等. 硼掺杂金刚石薄膜同质外延生长及肖特基势垒二极管制备[J]. *光学学报*, 2016, 36(7): 0716001.
- [2] Li Guowei, Cao Wei, Wu Jianpeng, *et al.* Influence of methane volume fraction on the radical distribution in MPCVD plasma[J]. *Acta Optica Sinica*, 2013, 33(4): 0430005.  
李国伟, 曹 为, 吴建鹏, 等. MPCVD 等离子体中甲烷体积分对基团分布的影响[J]. *光学学报*, 2013, 33(4): 0430005.
- [3] Chen G L, Chen S H, Zhou M Y, *et al.* The preliminary discharging characterization of a novel APGD plume and its application in organic contaminant degradation[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2006, 15(4): 603-608.

- [4] Mastanaiah N, Banerjee P, Johnson J A, *et al.* Examining the role of ozone in surface plasma sterilization using dielectric barrier discharge (DBD) plasma[J]. *Plasma Processes and Polymers*, 2013, 10(12): 1120-1133.
- [5] Stoffels E, Keift I E, Sladek R E J, *et al.* Plasma needle for *in vivo* medical treatment: recent developments and perspectives[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2006, 15(4): S169-S180.
- [6] Fridman G, Peddinghaus M, Balasubramanian M, *et al.* Blood coagulation and living tissue sterilization by floating-electrode dielectric barrier discharge in air[J]. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 2006, 26(4): 425-442.
- [7] Ammelt E, Astrov Y A, Purwins H G. Stripe Turing structures in a two-dimensional gas discharge system[J]. *Physical Review E*, 1997, 55(6): 6731-6740.
- [8] Spiekermeier S, Schröder D, Schulz-von der Gathen V, *et al.* Helium metastable density evolution in a self-pulsing mu-APPJ[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2015, 48(3): 035203.
- [9] Walsh J L, Kong M G. Contrasting characteristics of linear-field and cross-field atmospheric plasma jets[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93(11): 111501.
- [10] Li X C, Di C, Jia P Y, *et al.* Characteristics of a direct current-driven plasma jet operated in open air[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(14): 144107.
- [11] Li X C, Zhang P P, Jia P Y, *et al.* Dynamics of atmospheric pressure plasma plumes in the downstream and upstream regions[J]. *Plasma Processes and Polymers*, 2016, 13(4): 480-487.
- [12] Kiriu S, Miyazoe H, Takamine F, *et al.* Development of a dielectric-barrier discharge enhanced microplasma jet[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94(19): 191502.
- [13] Nie Q Y, Ren C S, Wang D Z, *et al.* Self-organized pattern formation of an atmospheric pressure plasma jet in a dielectric barrier discharge configuration[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(22): 221504.
- [14] Li X C, Chang Y Y, Jia P Y, *et al.* Development of a dielectric barrier discharge enhanced plasma jet in atmospheric pressure air[J]. *Physics of Plasmas*, 2012, 19(9): 093504.
- [15] Jiang N, Ji A L, Cao Z X. Atmospheric pressure plasma jet: effect of electrode configuration, discharge behavior, and its formation mechanism[J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 106(1): 013308.
- [16] Lu X P, Laroussi M, Puech V. On atmospheric-pressure non-equilibrium plasma jets and plasma bullets[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2012, 21(3): 034005.
- [17] Sands B L, Ganguly B N, Tachibana K. A streamer-like atmospheric pressure plasma jet[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(15): 151503.
- [18] Jarrige J, Laroussi M, Karakas E. Formation and dynamics of plasma bullets in a non-thermal plasma jet: influence of the high-voltage parameters on the plume characteristics[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2010, 19(6): 065005.
- [19] Hong Y, Lu N, Pan J, *et al.* Discharge characteristics of an atmospheric pressure argon plasma jet generated with screw ring-ring electrodes in surface dielectric barrier discharge[J]. *Plasma Science and Technology*, 2013, 15(8): 780-786.
- [20] Zhu X M, Pu Y K, Balcon N, *et al.* Measurement of the electron density in atmospheric-pressure low-temperature argon discharges by line-ratio method of optical emission spectroscopy[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2009, 42(14): 142003.
- [21] Li Q, Li J T, Zhu W C, *et al.* Effects of gas flow rate on the length of atmospheric pressure nonequilibrium plasma jets[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(14): 141502.
- [22] Boeuf J P, Yang L L, Pitchford L C. Dynamics of a guided streamer ('plasma bullet') in a helium jet in air at atmospheric pressure[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2012, 46(1): 015201.
- [23] Schmidt-Bleker A, Norberg S A, Winter J, *et al.* Propagation mechanisms of guided streamers in plasma jets: the influence of electronegativity of the surrounding gas[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2015, 24(3): 035022.
- [24] Li Xuechen, Chu Jingdi, Bao Wenting, *et al.* Study on discharge characteristics of a direct current-voltage excited plasma jet[J]. *Acta Optica Sinica*, 2015, 35(7): 0704001.  
李雪辰, 楚婧娣, 鲍文婷, 等. 直流激励等离子体喷枪的发光特性研究[J]. *光学学报*, 2015, 35(7): 0704001.
- [25] Lu X P, Naidis G V, Laroussi M, *et al.* Guided ionization waves: theory and experiments[J]. *Physics Reports*, 2014, 540(3): 123-166.
- [26] Wu S, Lu X. The role of residual charges in the repeatability of the dynamics of atmospheric pressure room temperature plasma plume[J]. *Physics of Plasmas*, 2014, 21(12): 123509.

- 
- [27] Song M A, Lee Y W, Chung T H. Characterization of an inductively coupled nitrogen-argon plasma by Langmuir probe combined with optical emission spectroscopy[J]. *Physics of Plasmas*, 2011, 18(2): 023504.
- [28] Williamson J M, Bletzinger P, Ganguly B N. Gas temperature determination in a  $N_2/Ar$  dielectric barrier discharge by diode-laser absorption spectroscopy and resolved plasma emission[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2004, 37(12): 1658-1663.
- [29] Song M A, Lee Y W, Chung T H. Characterization of an inductively coupled nitrogen-argon plasma by Langmuir probe combined with optical emission spectroscopy[J]. *Physics of Plasmas*, 2011, 18(2): 023504.
- [30] Thiagarajan M, Sarani A, Nicula C. Optical emission spectroscopic diagnostics of a non-thermal atmospheric pressure helium-oxygen plasma jet for biomedical applications[J]. *Journal of Applied Physics*, 2013, 113(23): 233302.