



·等离子体及应用技术·

不同电极结构下大气压 Ar 等离子体射流的流体模拟研究^{*}

蒋园园, 王艳辉, 高彩慧, 王德真

(大连理工大学 三束材料改性教育部重点实验室, 辽宁 大连 116024)

摘 要: 采用二维轴对称流体模型对比研究了 3 种不同电极结构下大气压 Ar 等离子体射流的基本特性。第一种是带绝缘介质的针电极结构(电场方向和气体流方向平行), 第二种是在第一种电极结构的介质管外增加一个垂直气流方向的接地环电极, 第三种是不带绝缘介质的裸针电极结构。研究结果表明, 接地环电极的引入对介质管内外的射流传播影响不同。在介质管内, 接地环电极使管内表面附近的径向电场增加, 电子密度升高, 射流传播速度加快, 但对中心轴附近的电场和电子密度影响很小; 然而在介质管外, 接地环电极的引入导致轴向和径向电场均减小, 从而引起射流的传播长度减小, 射流通道径向收缩。通过带绝缘介质的针电极和裸针电极结构的对比研究发现, 保持其他条件不变, 去掉包裹在针电极上的介质后, 由于等离子体电势升高, 电场增加, 射流的传播长度几乎增加一倍, 峰值电子密度增加近一个数量级, 而且在整个射流通道内电子密度都保持相对高的值。此外, 对 3 种电极结构下的主要活性粒子的产生和输运进行了比较研究。

关键词: 大气压 Ar 等离子体射流; 电极结构; 二维模拟; 活性粒子

中图分类号: O531

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202133.210148

Numerical study of atmospheric pressure Ar plasma jets under different electrode structures

Jiang Yuanyuan, Wang Yanhui, Gao Caihui, Wang Dezhen

(Key Laboratory of Materials Modification by Laser, Ion and Electron Beams (Ministry of Education),

School of Physics, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China)

Abstract: In this paper, the basic properties of the atmospheric pressure Ar plasma jet with three different electrode structures are comparatively studied using a two-dimensional axisymmetric fluid model. The results show that the introduction of the grounded ring electrode affects the jet propagation both inside and outside the dielectric tube. Inside the dielectric tube, the grounded ring electrode increases the radial electric field near the inner surface of the tube, leading to the increase of the electron density and jet propagation length. However, it has a slight effect on the electric field and electron density near the central axis. Outside the dielectric tube, the introduction of the grounded ring electrode results in the reduction of the electric field both in axial and radial directions. This inevitably causes the decrease of the jet propagation length and a contraction of the jet channel radius. For the bare needle electrode structure, the removal of the medium wrapped around the needle electrode increases the electric field due to the elevated plasma potential. This makes the increase of the jet propagation length. The peak electron density in the jet channel increases about one order of magnitude. Meanwhile, the electron density in the whole channel is relatively higher in the bare needle electrode structure. In addition, the production and transport of the main active particles under the three electrode structures are comparatively studied.

Key words: atmospheric pressure Ar plasma jet; electrode structure; 2D simulation; reactive particle

* 收稿日期: 2021-04-16; 修订日期: 2021-05-25

基金项目: 国家自然科学基金项目(11775043, 11675095, 11505020)

作者简介: 蒋园园(1991—), 女, 博士研究生, 主要从事大气压等离子体射流的数值模拟研究。

由于大气压等离子体射流(APPJs)在表面改性^[1]和生物医学^[2-3]等诸多领域有巨大的应用潜力,因此在近十年来受到了广泛关注。众所周知,APPJs通常由惰性气体(Ar或He)或惰性气体和分子气体(N₂, O₂等)混合物在介质管中经过放电产生,然后传播到环境空气中,形成长达几mm到十几cm的等离子体羽^[4]。当射流与环境气体接触时,可以产生丰富的活性粒子,并能将这些活性物质输运到需要处理的物体表面而不引起温度的明显增加^[5]。因此,它们在实际应用中具有独特的优势。

研究显示,产生射流的装置不同,射流的物理和化学性质也明显不同^[6-16]。根据电场方向和气体流方向的关系,可以将射流装置分为平行场射流装置(电场方向平行于气体流方向)和垂直场射流装置(电场方向和气体流方向垂直)^[6]。英国拉夫堡大学的Walsh等^[12]研究了两类装置产生的大气压氩等离子体射流处理高分子材料的刻蚀效率,结果表明,平行场装置可以将电子更加有效地输运到下游的应用区域,从而促进应用区附近更加活跃的等离子体化学反应的发生。法国图卢兹大学的Judée等^[14]采用平行场装置分析了单一介质阻挡(S-DBD)和多介质阻挡(D-DBD)电极下大气压氩射流的基本性质,结果表明,单一电极下射流传播得更快。比利时安特卫普大学的Gaens等^[15]利用零维动力学模型模拟研究了平行场和垂直场两种电极结构下大气压氩等离子羽流中的NO和O的产生机制。西安交通大学的徐晗等^[16]对比研究了平行场射流和垂直场射流对水中活性种类的影响,研究发现,在相同的放电功率下两种类型的射流产生的气态活性物质大致相同,但是平行场射流可以更加有效地将这些活性物质输运到下游的水中,从而导致更多的液相活性种类在水中产生。尽管氩射流的放电特性已被很好地理解,但是有关氩射流的模拟研究相对较少,尤其是不同电极结构对氩射流的影响还相对缺乏。

基于以上的实验和模拟研究,为了进一步理解不同电极结构对放电的影响,本研究通过数值模拟,对比研究了带绝缘介质的针电极结构(电场方向平行于气体流方向)和带绝缘介质的针—环电极结构(在垂直气流方向增加接地环电极)下Ar等离子体射流的传播性质及活性粒子的输运。此外,还比较研究了当针电极不被绝缘介质包裹时,Ar等离子体射流的性质。

1 模型描述

模拟中采用的带绝缘介质的针电极结构和带绝缘介质的针—环电极结构与文献^[15-16]中的相似,其简化示意图如图1(a)和图1(b)所示。图中针尖半径为0.2 mm,长度为1.2 mm,针电极被密封在内半径为0.2 mm,外半径为0.4 mm,介电常数为2的细管中(灰色区域)。外层介质管(灰色区域)内半径为1 mm,外半径为5 mm,长度为5 mm,介电常数为2。接地金属电极位于距离管口20 mm的垂直位置。图1(b)中,一长度为1 mm的环电极包裹在介质管外侧并接地,为了计算方便,将其简化为线电极。上升沿10 ns的脉冲电压加在针电极上,脉冲电压峰值为10 kV,脉宽为50 ns。在一个大气压、接近室温的条件下,由于中性气体输运过程的特征时间远比等离子体放电过程中的特征时间慢得多,因此假设等离子体放电过程中中性气体流动处于稳态,即在模拟过程中,中性气体动力学模块和等

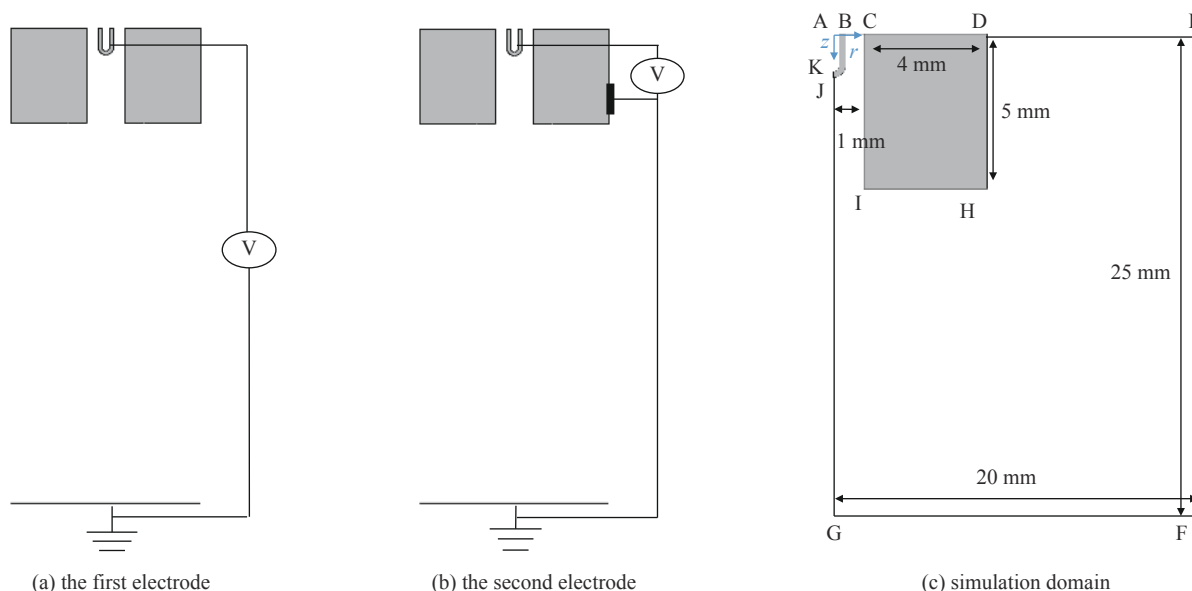


Fig. 1 Discharge device and simulation domain used in our calculation

图1 计算中采用的装置示意图和模拟域

离子体流体模块独立求解。这种简化模型广泛应用于射流模拟中^[4-5, 13]。

1.1 中性气体流体力学模型

图 1(c) 给出了计算过程中用的模拟域, 因为计算使用的是二维轴对称模型, 因此只给出了右半部分。工作气体氩气从针尖和介质管之间的区域流入介质管(入口 BC), 然后进入环境空气中。在本研究的模拟中环境气体(简化为 80% 的 N₂ 和 20% 的 O₂) 以 0.15 m/s 的平均速度由入口 DE 流入。而在介质管中氩的平均速度为 1.5 m/s, 雷诺数为 236, 这意味着气体处于层流状态。层流状态下的控制方程包括质量连续性方程, 动量守恒方程 (Navier-Stokes) 和物质输运方程, 分别表示为

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (1)$$

$$\rho(\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\nabla p + \nabla \cdot [\mu(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)] + \mathbf{F} \quad (2)$$

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{u} w_i) + \nabla \cdot \mathbf{J}_i = 0 \quad (3)$$

式中: ρ 是物质密度 (氩为 1.7837 kg/m³, 空气为 1.293 kg/m³); \mathbf{u} 为速度矢量; p 是压力; μ 为动力粘度 (氩为 2.27 × 10⁻⁵ Pa·s, 空气为 1.82 × 10⁻⁵ Pa·s); \mathbf{F} 为体积力; w_i 和 \mathbf{J}_i 分别为物质 i 的质量分数和扩散通量, 对于层流, $\mathbf{J}_i = -\rho D_i \nabla w_i$, 其中 D 为扩散系数。所采用的边界条件列在表 1 中。

表 1 中性气流计算边界条件

Table 1 Boundary conditions for the neutral gas flow model

| boundary | velocity condition | background species condition |
|--------------------|--------------------------|---|
| BC | $u_z = u_0, u_r = 0$ | $w_{\text{Ar}} = 0.999, w_{\text{air}} = 0.001$ |
| BJ, CI, IH, HD, GF | $u_z = 0, u_r = 0$ | $\mathbf{n} \cdot \mathbf{J}_i = 0$ |
| DE | $u_z = 0.03u_0, u_r = 0$ | $w_{\text{air}} = 1$ |
| KG | $u_r = 0$ | $\frac{\partial w_i}{\partial r} = 0$ |
| EF | 0.1 MPa | $\mathbf{n} \cdot \mathbf{J}_i = \rho w_i u_r$ |

Note: u_r and u_z are the velocity in the axial and radial directions, respectively. \mathbf{n} is the unit vector pointing toward the boundary.

1.2 等离子体动力学模型

等离子模型的控制方程为连续性方程 (式(4)), 其中粒子流密度由漂移扩散近似表示 (式(5)), 泊松方程 (式(6)) 和电子能守恒方程 (式(7))。

$$\frac{\partial n_{e,i,m}}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_{e,i,m} = S_{e,i,m} \quad (4)$$

$$\Gamma_{e,i,m} = \text{sgn}(q_{e,i,m}) n_{e,i,m} \mu_{e,i,m} \mathbf{E} - D_{e,i,m} \nabla n_{e,i,m} \quad (5)$$

$$-\varepsilon_0 \nabla \cdot (\varepsilon_r \nabla \Phi) = \varepsilon_0 \nabla \cdot (\varepsilon_r \mathbf{E}) = \sum_j q_j n_j \quad (6)$$

$$\frac{\partial (n_e)}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\frac{5}{3} \mu_e \mathbf{E} n_e - \frac{5}{3} D_e \nabla n_e \right) = -e \Gamma_e \cdot \mathbf{E} - \sum_j \Delta E_j K_{\text{inel},j} - 3 \frac{m_e}{M} k_B n_e \nu_{en} (T_e - T_g) \quad (7)$$

式中: 下角标 e, i 和 m 分别代表电子、离子和亚稳态物质; $n_{e,i,m}$ 为物质数密度; $\Gamma_{e,i,m}$ 为粒子流密度; $S_{e,i,m}$ 为源项; q 为电荷; $\mu_{e,i,m}$ 是粒子迁移率; \mathbf{E} 代表电场; $D_{e,i,m}$ 是粒子扩散系数; ε_0 和 ε_r 分别代表真空介电常数和介质的相对介电常数; Φ 为电势; n_e 是电子能密度; $\Delta E, K_{\text{inel}}, m_e$ 和 M 分别为非弹性碰撞的能量损失, 非弹性碰撞的速率系数, 电子质量和原子质量; k_B 为玻耳兹曼常数; ν_{en} 为电子和中性原子间的碰撞频率; T_e 和 T_g 为电子和中性气体温度。此外, APPJ 满足非局部热平衡, 因此 $T_i = T_g = 300$ K。

电子、正离子和中性粒子流密度在固体壁上的边界条件由以下方程表示

$$\mathbf{n} \cdot \Gamma_e = \frac{1}{2} n_e \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} - \alpha_s \sum_j \gamma_j (\Gamma_j \cdot \mathbf{n}) + \alpha'_s \mu_e n_e \mathbf{E} \quad (8)$$

$$\mathbf{n} \cdot \Gamma_i = \frac{1}{4} n_i \sqrt{\frac{8k_B T_i}{\pi m_i}} + \alpha'_s \mu_i n_i \mathbf{E} \quad (9)$$

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{\Gamma}_m = \frac{\gamma_m}{1 - \gamma_m/2} \frac{1}{4} n_m \sqrt{\frac{8k_B T_g}{\pi m_m}} \quad (10)$$

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{\Gamma}_e = \frac{5}{6} n_e \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} - \sum_j \gamma_j \varepsilon_j (\mathbf{\Gamma}_j \cdot \mathbf{n}) \quad (11)$$

式中: m_i 和 m_m 分别为离子和中性粒子质量; \mathbf{n} 为单位法向矢量; γ_i 为正离子撞击固体表面引起的二次电子发射系数; γ_m 为中性物质的粘附系数; $\mathbf{\Gamma}_e$, $\mathbf{\Gamma}_i$, $\mathbf{\Gamma}_m$ 和 $\mathbf{\Gamma}_e$ 分别为电子、离子、亚稳态和电子能通量; $\mathbf{\Gamma}_j$ 为第 j 个离子的通量; ε_j 为二次发射电子平均能量。 α_s 和 α'_s 为交换函数, 它们依赖于 \mathbf{n} 和 \mathbf{E} 的点乘

$$\alpha_s = \begin{cases} 1, & (\mathbf{E} \cdot \mathbf{n} \geq 0) \\ 0, & (\mathbf{E} \cdot \mathbf{n} < 0) \end{cases}, \quad \alpha'_s = \begin{cases} 0, & (\mathbf{E} \cdot \mathbf{n} \geq 0) \\ 1, & (\mathbf{E} \cdot \mathbf{n} < 0) \end{cases} \quad (12)$$

在介质表面上的自洽电势由高斯定理求解

$$(D_2 - D_1) \times n = \sigma_s, \quad \frac{d\sigma_s}{dt} = \mathbf{J}_i \cdot \mathbf{n} + \mathbf{J}_e \cdot \mathbf{n} \quad (13)$$

式中: D_1 和 D_2 为在介质表面两侧的电位移场; σ_s 为表面电荷密度; \mathbf{J}_i 和 \mathbf{J}_e 分别为离子电流密度和电子电流密度。详细的边界条件总结在表2中。

计算过程中考虑的粒子种类包括背景气体(Ar, N₂和O₂)、电子(e)、正离子(Ar⁺, N₂⁺和O₂⁺)、负离子(O₂⁻)、激发态粒子(Ar*和N₂(C³π))和原子(O和N)。共有13个反应, 12种粒子, 如表3所示。氩和空气相关的反应由文献[17]获得。其中电子撞击电离速率、速率系数由玻耳兹曼求解器BOLSIG+[18]计算获得。计算中采用的截面数据通过网址[19]获得。离子输运系数由文献[20]获得。同时也考虑了在固体壁上的表面反应, 其中正离子转化为各自基态的概率为1。与此同时, 离子撞击表面时的二次电子发射系数取为0.1[13]。原子和激发态在壁上的粘附系数为1。尽管光电离可以加速流注的传播, 但是对于流注的产生是不必要的[21], 因此本研究使用了均匀的背景电离代替了光电离, 与其他文献一致[22-25]。

2 结果和讨论

2.1 带绝缘介质的针电极和针-环电极结构下射流的性质

首先求解的是中性气体模块, 稳态下气体流动的模拟结果显示如图2所示。由图2(a)可以看出, 介质管中氩

表 2 等 离 子 体 模 块 边 界 条 件

Table 2 Boundary conditions for the plasma model

| boundary | electrostatic condition | species condition |
|----------|--|---|
| BC | $\frac{\partial \Phi}{\partial z} = 0$ | $\frac{\partial n_e}{\partial z} = \frac{\partial n_\varepsilon}{\partial z} = 0, \frac{\partial n_m}{\partial z} = 0, \frac{\partial n_i}{\partial z} = 0$ |
| BJ, CIHD | Eq.(13) | Eq.(8), (9), (10), (11) |
| KG | $\frac{\partial \Phi}{\partial r} = 0$ | $\frac{\partial n_e}{\partial r} = \frac{\partial n_\varepsilon}{\partial r} = 0, \frac{\partial n_m}{\partial r} = 0, \frac{\partial n_i}{\partial r} = 0$ |
| AK | V | ... |
| GF | 0 | — |
| EF | 0 | $\frac{\partial n_e}{\partial r} = \frac{\partial n_\varepsilon}{\partial r} = 0, \frac{\partial n_m}{\partial r} = 0, \frac{\partial n_i}{\partial r} = 0$ |
| ring | 0 | — |

Note: "ring" is the high voltage electrode.

表 3 模 拟 中 采 用 的 化 学 反 应

Table 3 Chemistry reactions used in the simulation

| index | reaction | rate coefficients | threshold energy/eV | reference |
|-------|---|---|---------------------|-----------|
| 1 | e+Ar→e+Ar | BOLSIG+ | / | [17] |
| 2 | e+Ar→e+Ar* | BOLSIG+ | 11.5 | [17] |
| 3 | e+Ar→2e+Ar ⁺ | BOLSIG+ | 15.8 | [17] |
| 4 | e+N ₂ →2e+N ₂ ⁺ | BOLSIG+ | 15.58 | [17] |
| 5 | e+N ₂ →e+2N | BOLSIG+ | 13 | [17] |
| 6 | e+N ₂ →e+N ₂ (C ³ π) | BOLSIG+ | 11.03 | [17] |
| 7 | e+O ₂ →2e+O ₂ ⁺ | BOLSIG+ | 12.06 | [17] |
| 8 | e+O ₂ →e+2O | BOLSIG+ | 5.58 | [17] |
| 9 | e+O ₂ →O ₂ ⁻ | BOLSIG+ | / | [17] |
| 10 | Ar*+Ar*→e+Ar+Ar ⁺ | 6.4×10 ⁻¹⁶ (m ⁻³ /s) | / | [17] |
| 11 | Ar*+Ar→Ar+Ar | 2.09×10 ⁻²¹ (m ⁻³ /s) | / | [17] |
| 12 | Ar*+N ₂ →Ar+2N | 3.6×10 ⁻¹⁷ (m ⁻³ /s) | / | [17] |
| 13 | Ar*+O ₂ →Ar+2O | 2.1×10 ⁻¹⁶ (m ⁻³ /s) | / | [17] |

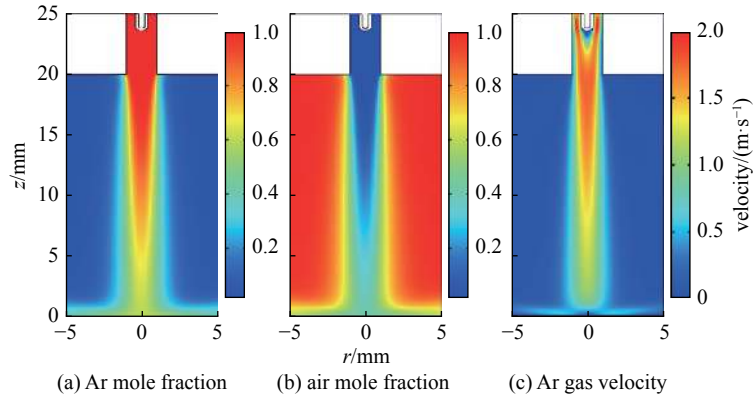


Fig. 2 Calculation results of the neutral gas flow

图 2 中性气体流计算结果

的摩尔分数几乎为 1, 而当氩气体流离开介质管并在环境空气中传播时, 由于对流扩散, 形成氩与空气混合层(见图 2(a)、图 2(b)), 氩通道半径逐渐收缩并且氩的摩尔分数沿轴向和径向方向减小。尤其是在较大的径向和轴向位置, 扩散更为明显。如在 $z=2.5$ mm 处, 中心轴处氩的摩尔分数已下降到约 0.65。当氩射流到达金属接地电极附近时, 由于接地电极的阻挡, 氩流沿径向流动(见图 2(c))。在传播过程中, 氩气流速沿径向和轴向快速减小, 但在接地金属板表面, 氩流的径向流速除边界附近几乎不变。

图 3 给出了两种结构下电子密度的时空演化。对于带绝缘介质的针电极结构, 所加电场与气流方向平行(简称第一种结构)(见图 3(a)), 大约 5 ns 时, 放电首先从针尖电极附近产生, 这是由针电极附近较高的电场引起的^[12]。随后, 电离波沿着介质管内表面进一步传播, 并在 10 ns 时传播到管口附近。当电离波在介质管中传播时, 注意到电离波峰值电子密度位于表面附近, 这是因为在气体和介质管内表面接触处介电常数的不连续性产生了强电场, 因此在接触处附近电子密度高, 这与文献 [21-22] 一致。当电离波离开介质管后, 电子密度沿轴向和径向都明显减小。在 50 ns 时, 射流已经传播到距离管口大约 15 mm 的位置。当在介质管外加上一个接地的环电极(简称第二种结构), 相当于在垂直于气流方向增加了一个径向场, 导致介质管内电子密度升高, 射流传播速度加快, 这一点由 $t=10$ ns 时的图中可以看出。当电离波传出管外后, 射流传播速度低于第一种结构产生的射流速度, 随着时间的发展差异更加明显。到 50 ns 时, 射流仅传播了大约 11 mm。这与氩射流在两种电极结构下的发展是一致的^[16]。

为了进一步了解电子密度随时间的变化, 图 4(a) 给出了两种电极结构下电离波在介质管中传播时电离头处径向电子密度的变化。可以看出, 管内表面附近的峰值电子密度随电离波的传播而快速增加, 从 5 ns 到 8 ns 峰值电

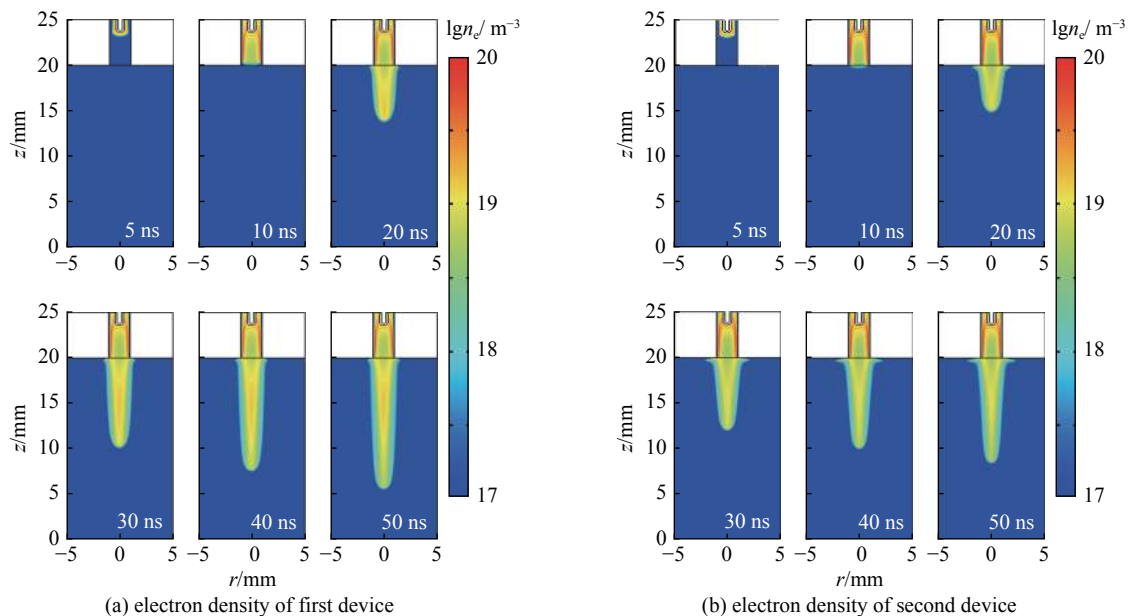
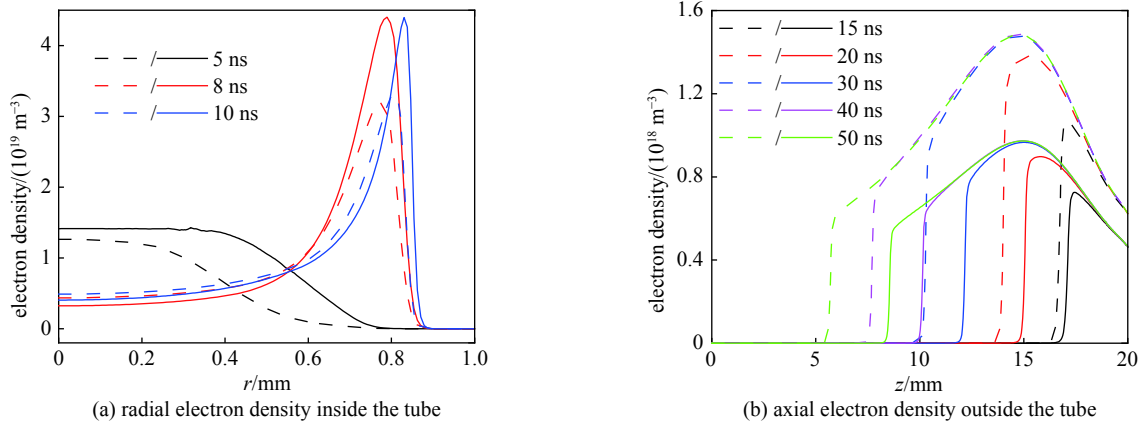


Fig. 3 Temporal and spatial evolution of electron density for the first and the second electrode device

图 3 第一种和第二种电极装置下电子密度的时空演化



Note: dashed line: the first electrode device; solid line: the second electrode device.

Fig. 4 Radial and axial electron density evolutions for different electrode device

图 4 不同电极结构下径向和轴向电子密度时间演化

子密度增加接近 4 倍, 随后电子密度几乎保持不变。但中心轴附近的电子密度随电离波的传播而减小, 从 5 ns 到 8 ns 几乎下降 1/2。接地环电极的引入使介质管内表面附近的峰值电子密度明显增加, 但对中心轴周围的电子密度影响较小。射流离开介质管后不同时刻电离头部的轴向电子密度分布显示如图 4(b) 所示, 电子密度均随射流的传播呈现出先增加随后减小的趋势。与管中的情况不同, 引入接地环电极后, 电子密度明显降低, 第二种结构的峰值电子密度约为第一种结构的 80%。

因为射流的产生和传播是由电场驱动的, 电子密度的分布与电场密切相关, 所以在图 5 和图 6 中分别给出了两种电极结构下射流在介质管中和介质管外传播时的轴向电场和径向电场的分布。从图 5(a) 中可以看出, 介质中的轴向电场随时间的增加逐渐减小。注意到第二种电极结构的电场峰值在电离波传播过程中一般距离略大于第一种情况, 因此介质管中第二种电极结构下射流的传播长度略大于第一种电极结构。由图 5(b) 可以看出, 峰值电场出现在介质管内表面附近, 且第二种结构的峰值电场高于第一种结构, 但在中心轴附近两种结构电场基本相同, 因此在图 4 中, 接地环电极引入后内表面附近电子密度升高, 但对中心轴附近的电子密度影响很小。当射流在管外环境气体中传播时, 两种结构的轴向电场都随时间先增加后逐渐减小(见图 6(a)), 因而电子密度呈现出先增加后减小的趋势。注意到第二种结构的电场明显低于第一种的, 而且电场峰值到管口的距离也明显小于第一种结构的, 因此接地环电极的加入会导致电子密度降低, 射流传播长度减小。此外, 图 6(b) 还显示, 第二种电极结构下的电离波头部的径向电场也低于第一种电极结构的, 而且电场峰值位置到中心轴的距离小于第一种结构的, 这一点表明, 虽然接地环电极可以导致介质管内的径向电场增加, 同时它也导致介质管外射流通道的径向电场减低, 径向电离减弱, 使得射流通道的半径减小, 因此, 在图 3 中我们看到第二种结构的电子密度通道与第一种结构的相比出现一定的径向收缩。

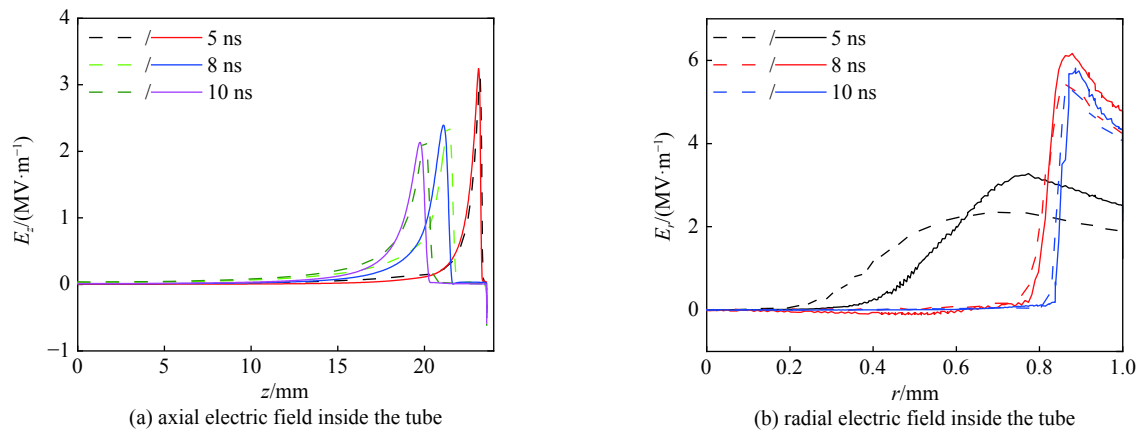


Fig. 5 Evolution of the axial and radial electric field in the ionization head when the ionization wave propagates inside the tube for different electrode device

图 5 电离波在介质管中传播时不同电极结构下电离头处轴向电场和径向电场演化

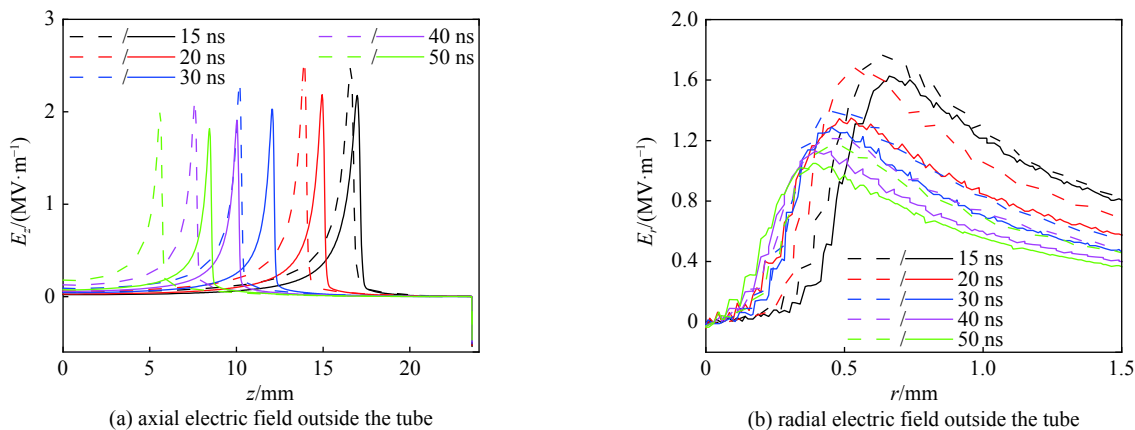


Fig. 6 Evolution of the axial and radial electric field in the ionization head when the ionization wave propagates outside the tube for different electrode device

图 6 电离波在介质管外传播时不同电极结构下电离头处轴向电场和径向电场演化

放电性质的差异也会对其中的活性粒子产生一定影响。图 7 和图 8 分别给出了两种电极结构下 Ar^+ , Ar^* , N 和 O 四种粒子在 50 ns 时的空间分布和在放电过程中轴向粒子密度随时间的变化。由图 7 可以看出, 在两种电极结构下各粒子分布相似, 只是第一种电极结构下粒子通道半径较大且可以延伸至距离管口更远的位置, 这主要是由第一种射流径向扩展较大、传播距离较远导致的。此外, 介质管中 Ar^+ 和 Ar^* 的数密度明显高于介质管外, 这是由介质管中较高的 Ar 摩尔分数引起的。在模拟中, 电子与 Ar 的直接碰撞电离是产生 Ar^+ 的唯一路径, 因此 Ar^+ 的数密度分布与电子相似。对于 Ar^* , 尽管电子碰撞激发是其主要的产生路径, 但是 Ar^* 与 O_2 间的解离反应在较大程度上消耗了 Ar^* , 因此当电离波在介质管外传播时, Ar^* 粒子数密度分布呈现出一个较细的通道。由图 8(a)、图 8(b) 可以看出, 在射流传播过程中, Ar^+ 和 Ar^* 数密度在介质管中逐渐减小, 而在管外它们的数密度先增加后减小, 这是因为电场在射流的传播过程中先增加后减小, 导致相应的电子碰撞速率也呈现出相应的变化趋势。还注意到在介质管中第二种电极结构产生的 Ar^+ 和 Ar^* 的数密度相对较高, 而在管外则相反。这是由第二种电极结构下介质管中较强的电场导致的。此外, 因为 Ar 的激发能 (11.5 eV) 小于其电离能 (15.8 eV), 因此 Ar^* 的数密度明显高于 Ar^+ 的。N 和 O 原子主要在介质管外产生, 并且它们的轴向数密度 (图 8(c) 和图 8(d)) 随着时间的增加而增加, 因为在距离管口距离越远, 通道内空气的摩尔分数越高 (见图 2)。尽管环境空气中 O_2 的摩尔分数低于 N_2 , 但是 Ar^* 与 O_2 的反应系数很高, 几乎比 Ar^* 与 N_2 的反应系数高一个数量级, 因此 O 原子数密度较高明显高于 N 原子密度。

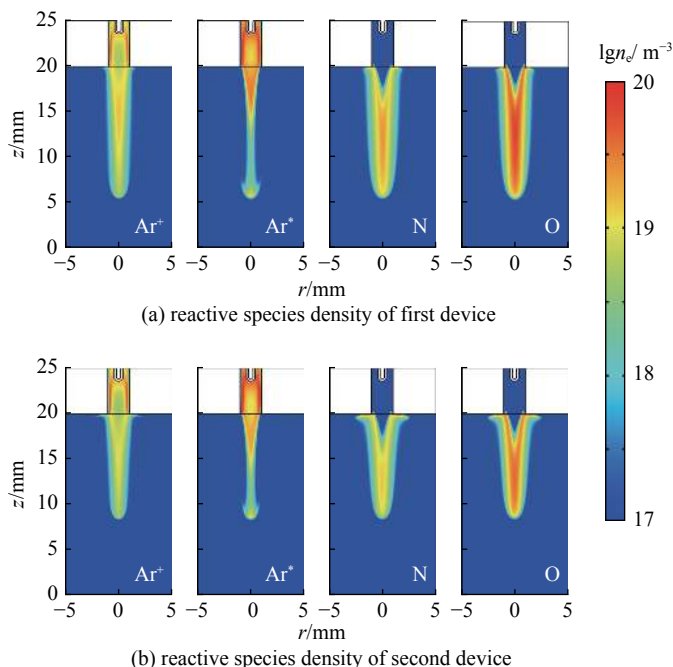


Fig. 7 Spatial distribution of reactive species density at 50 ns for two electrode devices

图 7 不同电极结构下 50 ns 时活性粒子的空间分布

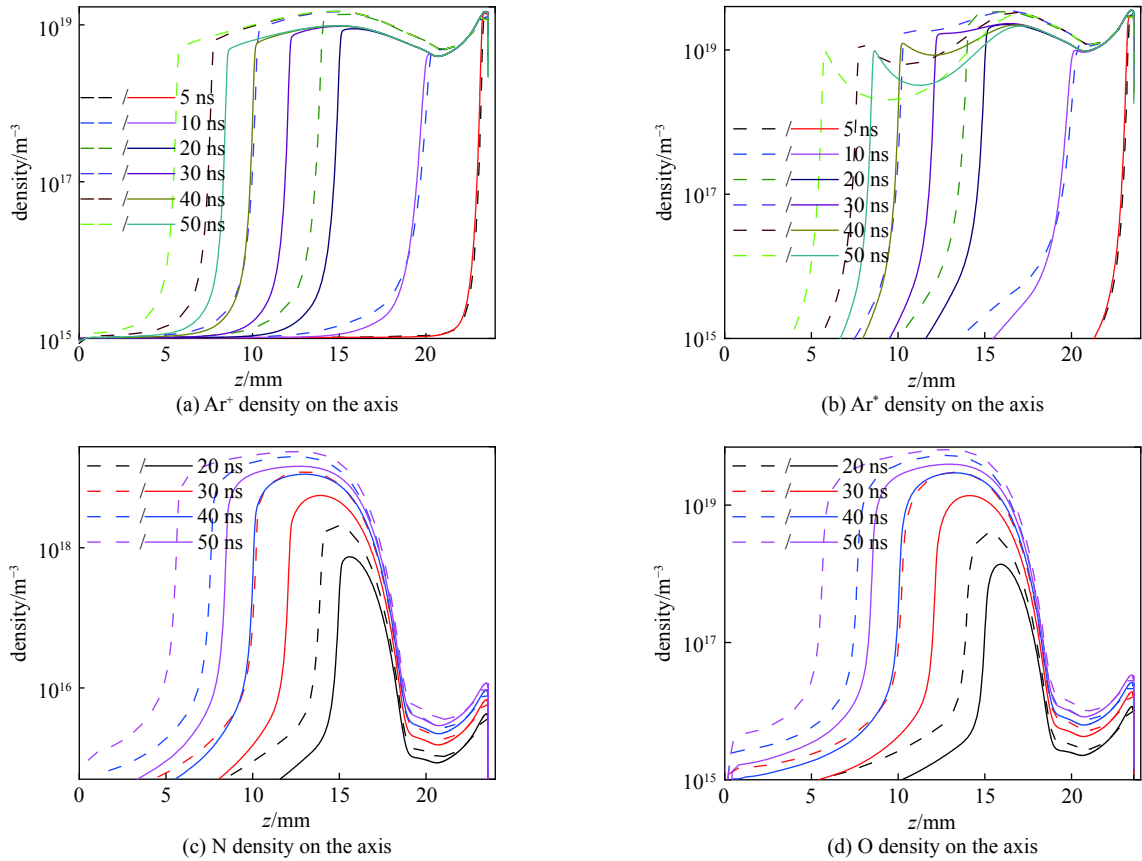


Fig. 8 Evolution reactive species density on the axis for two electrode devices

图 8 两种电极装置(分别用虚线和实线表示)下活性粒子轴线数密度演化

2.2 裸针电极结构下氩射流的基本性质

前面研究的两种电极结构中,针电极均被绝缘介质覆盖,即都属于介质阻挡放电射流。一些研究已经显示,电极上覆盖的绝缘介质也会影响射流的传播性质。为了研究针电极包裹的绝缘介质对射流的影响,本节研究了裸针电极结构下氩射流的性质。在保持图 1(a)中其他放电条件不变,只去掉针尖外部的细介质管的情况下,重新进行了模拟计算,包括 Ar 的稳态摩尔分数分布的计算。图 9 和图 10 分别给出了裸针电极结构下电子密度的时空演化及射流传播过程中轴向电子密度随时间的变化情况。从图 9 中可以看出,约 4 ns 时放电首先从针电极附近产生,此时最大电子密度位于针尖前端,呈现出典型的电晕放电模式^[25]。这与带介质的针电极结构不同,针电极被介质覆盖时,针尖附近电子密度分布变得相对均匀(见图 3(a))。随后电离波沿介质管内表面发展,8 ns 时电离波已传出管口,在 10 ns 时射流已传播到距离管口大约 4 mm 的间隙中,与图 3(a)比较,去掉包裹针电极的介质后,射流传播速度显著增加,10 ns 时裸针电极结构的射流长度几乎是介质包裹时的一倍。此外,我们还可以看到,与第一种结构下电子密度随射流的传播迅速减小不同,裸针电极时的电子密度在射流传播过程中仍然保持相对较高的值,并且电离头处轴向电子密度随着射流的传播变化较为缓慢。随着射流的进一步传播,我们看到裸针电极情况下的

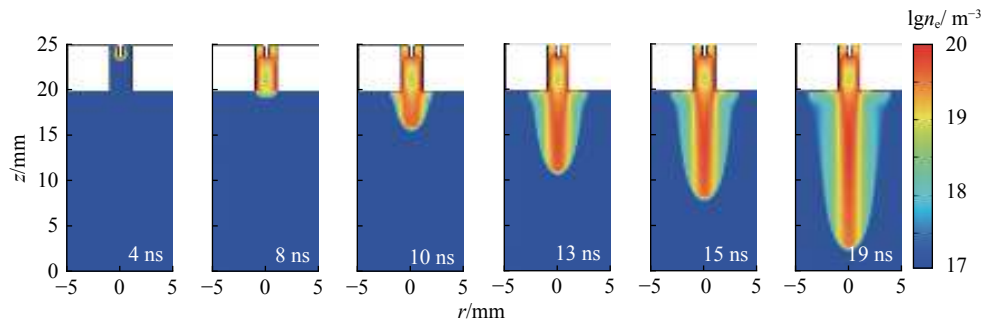


Fig. 9 Temporal-spatial evolution of electron density for bare needle electrode device

图 9 裸针电极装置下电子密度的时空演化

射流不仅传播速度快,而且半径也明显较大。

为了进一步理解上述现象,我们在图 11 中给出了射流传播过程中电离头处的轴向电场和径向电场分布。由图 11(a)可以看出,裸针电极轴向电场的峰值明显大于第一种电极的情况(图 5(a)和图 6(a)),因为在外加电压不变的情况下,针电极上介质层的分压作用会使降落在放电间隙上的电压减小,因而导致电场减小。为了确认这一点,图 12 比较了裸针电极和包裹介质的针电极结构下轴向等离子体电势分布。从图中可以清晰地看出,15 ns 时,带介质的针电极结构下射流头部的电势大约只有 4 kV(外加电压 10 kV),而裸针电极在 10 ns 时外加电压几乎全部降在电离头部。随着电离波的传播,尽管裸针电极下等离子体电势下降较快,但当电离头在 19 ns 接近接地板时,电离头部的电势仍然很高(约 6.5 kV),大约是第一种电极下 50 ns 时电离头部电势(2.5 kV)的 3 倍。由此可以看出,针电极外包装的绝缘介质消耗了大部分外加电压,使得等离子体上的电压降减小,电场减弱,因此射流传播长度减小。此外,由图 11(a)还可以看出,随着射流的传播电场变化相对较小,因此图 10 中的轴向电子密度随时间变化不明显。对比图 11(b)和图 6(b)发现,裸针电极情况下径向电场也明显高于第一种电极结构下的情况,因此裸针电极的射流半径也较大。

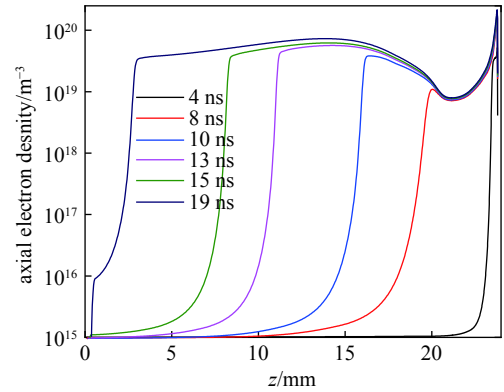
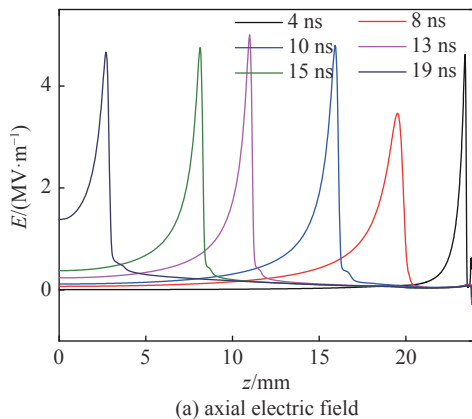


Fig. 10 Axial electron density evolution for the bare needle electrode device

图 10 裸针电极装置下轴向电子密度演化

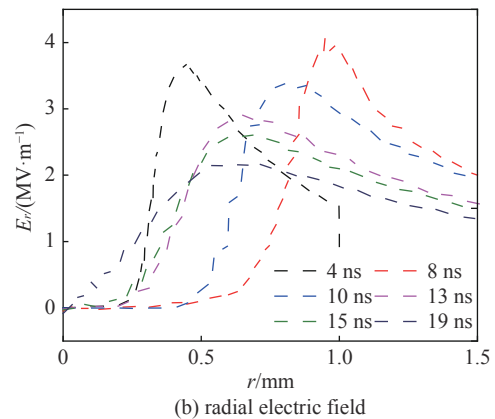


Fig. 11 Evolution of the electric field during the propagation of the ionization wave under the bare needle electrode device

图 11 裸针电极装置下电离波传播过程中电离头处轴向电场和径向电场的演化

3 结论

本文采用二维流体模型,模拟研究了带绝缘介质的针电极结构(电场方向平行于气体流方向)、带绝缘介质的针—环电极结构(在垂直气流方向增加接地环电极)以及裸针电极结构下氩等离子体射流的传播性质及活性粒子的输运。研究结果显示,在介质管内,接地环电极的引入使介质管内表面附近的径向电场增加,电子密度升高,射流传播速度加快,但对中心轴附近的电场和电子密度影响很小;在介质管外,接地环电极导致轴向和径向电场均减小,从而引起射流的传播距离减小,射流通道径向收缩。同时,环电极也使管内 Ar^+ 和 Ar^* 数密度增大,而使介质管外各种活性粒子密度降低,输运距离减小。带绝缘介质的针电极和裸针电极结构的对比研究发现,保持其他条件不变,去掉包裹在针电极上的介质后,由于等离子体电势显著升高,电场增加,因而使射流

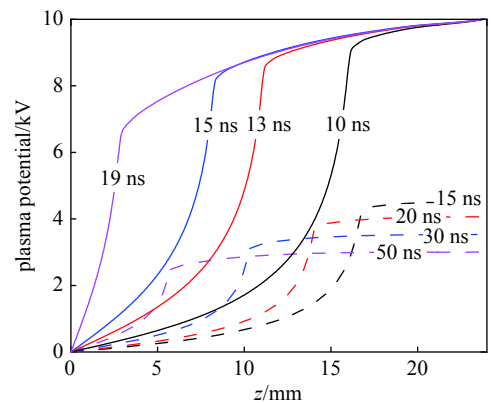


Fig. 12 Axial plasma potential distribution at different moments for the bare needle electrode (solid line) and needle electrode with insulation dielectric (dashed line)

图 12 裸针电极(实线)和带绝缘介质针电极(虚线)结构下轴向等离子体电势分布

的传播长度几乎增加一倍, 峰值电子密度增加近一个数量级, 而且在整个射流通道内电子密度都保持相对高的值。裸针电极下产生的活性粒子密度也远高于介质阻挡电极结构, 而且输运距离较远。综上可见, 不同的电极结构下产生的射流性质明显不同, 深入了解电极结构对射流传播的影响, 以便在实际应用中可以根据需求来选择或设计相应的放电装置。

参考文献:

- [1] Belmonte T, Pintassilgo C D, Czerwicz T, et al. Oxygen plasma surface interaction in treatments of polyolefines[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2005, 200(1/4): 26-30.
- [2] Baik K Y, Kang H L, Kim J, et al. Non-thermal plasma jet without electrical shock for biomedical applications[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103: 164101.
- [3] Kim K, Ahn H J, Lee J H, et al. Cellular membrane collapse by atmospheric-pressure plasma jet[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104: 013701.
- [4] Naidis G V. Modelling of streamer propagation in atmospheric-pressure helium plasma jets[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2010, 43: 402001.
- [5] Yan Wen, Economou D J. Simulation of a non-equilibrium helium plasma bullet emerging into oxygen at high pressure (250–760 Torr) and interacting with a substrate[J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 120: 123304.
- [6] Lu Xinpei, Naidis G V, Laroussi M, et al. Reactive species in non-equilibrium atmospheric-pressure plasmas: generation, transport, and biological effects[J]. *Physics Reports*, 2016, 630: 1-84.
- [7] 张冠军, 詹江杨, 邵先军, 等. 大气压氩气等离子体射流长度的影响因素[J]. 高电压技术, 2011, 37(6): 1432-1438. (Zhang Guanjun, Zhan Jiangyang, Shao Xianjun, et al. Influence factor analysis on jet length of atmospheric pressure argon plasma jets[J]. *High Voltage Engineering*, 2011, 37(6): 1432-1438)
- [8] Zhang Bo, Zhu Ying, Liu Feng, et al. The influence of grounded electrode positions on the evolution and characteristics of an atmospheric pressure argon plasma jet[J]. *Plasma Science and Technology*, 2017, 19: 064001.
- [9] Yue Yuanfu, Pei Xuekai, Lu Xinpei. Comparison on the absolute concentrations of hydroxyl and atomic oxygen generated by five different nonequilibrium atmospheric-pressure plasma jets[J]. *IEEE Transactions on Radiation and Plasma Medical Sciences*, 2017, 1(6): 541-549.
- [10] Xiong Zhongmin, Kushner M J. Atmospheric pressure ionization waves propagating through a flexible high aspect ratio capillary channel and impinging upon a target[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2012, 21: 034001.
- [11] Maletić D, Puač N, Selaković N, et al. Time-resolved optical emission imaging of an atmospheric plasma jet for different electrode positions with a constant electrode gap[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2015, 24: 025006.
- [12] Walsh J L, Kong M G. Contrasting characteristics of linear-field and cross-field atmospheric plasma jets[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93: 111501.
- [13] Yan Wen, Liu Fucheng, Sang Chaofeng, et al. Two-dimensional numerical study of an atmospheric pressure helium plasma jet with dual-power electrode[J]. *Chinese Physics B*, 2015, 24: 065203.
- [14] Judée F, Merbahi N, Wattieaux G, et al. Analysis of Ar plasma jets induced by single and double dielectric barrier discharges at atmospheric pressure[J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 120: 114901.
- [15] Van Gaens W, Bruggeman P J, Bogaerts A. Numerical analysis of the NO and O generation mechanism in a needle-type plasma jet[J]. *New Journal of Physics*, 2014, 16: 063054.
- [16] Xu Han, Chen Chen, Liu Dingxin, et al. Contrasting characteristics of aqueous reactive species induced by cross-field and linear-field plasma jets[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2017, 50: 245201.
- [17] Van Gaens W V, Bogaerts A. Corrigendum: kinetic modelling for an atmospheric pressure argon plasma jet in humid air (2013 J. Phys. D: Appl. Phys. 46 275201)[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2014, 47: 079502.
- [18] Hagelaar G J M, Pitchford L C. Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2005, 14(4): 722-733.
- [19] https://us.lxcat.net/data/set/data/set_type.php.
- [20] Ellis H W, Pai R Y, McDaniel E W, et al. Transport properties of gaseous ions over a wide energy range[J]. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 1976, 17(3): 177-210.
- [21] Breden D, Miki K, Raja L L. Computational study of cold atmospheric nanosecond pulsed helium plasma jet in air[J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 99: 111501.
- [22] Breden D, Raja L L. Computational study of the interaction of cold atmospheric helium plasma jets with surfaces[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2014, 23: 065020.
- [23] Wang Lijun, Zheng Yashuang, Jia Shenli. Numerical study of the interaction of a helium atmospheric pressure plasma jet with a dielectric material[J]. *Physics of Plasmas*, 2016, 23: 103504.
- [24] Yan Wen, Economou D J. Gas flow rate dependence of the discharge characteristics of a helium atmospheric pressure plasma jet interacting with a substrate[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2017, 50: 415205.
- [25] Jánský J, Le Delliou P, Tholin F, et al. Experimental and numerical study of the propagation of a discharge in a capillary tube in air at atmospheric pressure[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2011, 44: 335201.