

大气压氩气/空气针-环式介质阻挡放电发射光谱诊断

李政楷¹, 陈雷^{1*}, 王美琪¹, 宋鹏^{2,3}, 杨昆¹, 曾文¹

1. 沈阳航空航天大学航空发动机学院, 辽宁 沈阳 110136

2. 大连理工大学能源与动力学院, 辽宁 大连 116024

3. 大连民族大学机电工程学院, 辽宁 大连 116600

摘要 为了更加深入地了解氩气/空气等离子体射流内的电子输运过程及化学反应过程, 通过针-环式介质阻挡等离子体发生器在放电频率 10 kHz, 一个大气压条件下对氩气/空气混合气进行电离并产生了稳定的等离子体射流。通过发射光谱法对不同峰值电压下氩气/空气等离子体射流的活性粒子种类、电子激发温度及振动温度进行了诊断。结果表明, 射流中的主要活性粒子为 N_2 的第二正带系、Ar I 原子以及少量的氧原子, 其中 N_2 的第二正带系的相对光谱强度最强、最清晰, 在本试验的发射光谱中没有发现 N_2^+ 的第一负带系谱线, 这说明在氩气/空气等离子体射流中几乎没有电子能量高于 18.76 eV 的自由电子。利用 Ar I 原子激发能差较大的 5 条谱线做最小二乘线性拟合对等离子体射流的电子激发温度进行了计算, 得到大气压氩气/空气等离子体射流的电子激发温度在 7 000~11 000 K 之间。随峰值电压的增大, 电子激发温度表现出先增大后减小的变化趋势, 这说明电子激发温度并不总是随峰值电压的增长单调变化的。通过 N_2 的第二正带系对等离子体振动温度进行了诊断, 发现大气压氩气/空气等离子体射流振动温度在 3 000~4 500 K 之间, 其随峰值电压的增大而减小, 这意味着虽然峰值电压的提高可有效提高自由电子的动能, 但当电子动能较大时自由电子与氮分子之间的相互作用时间将会缩短, 进而二者之间的碰撞能量转移截面将会减小, 从而导致等离子体振动温度的降低。

关键词 介质阻挡放电; 发射光谱法; 电子激发温度; 振动温度

中图分类号: O433.1 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2021)10-3307-04

引言

通过介质阻挡放电在大气压下产生等离子体射流具有发生装置简单、放电过程易控制以及操作安全等诸多优势, 其在材料表面处理^[1]、生物医学^[2]、点火助燃^[3]等领域均具有极高的应用价值。为提高大气压 DBD 放电等离子体射流在不同应用领域的应用效率, 有必要对其放电动力学过程进行深入的探讨。一般针对大气压等离子体的诊断方法有探针法^[4]、发射光谱法^[5]以及质谱法^[6]。其中发射光谱法作为一种可对等离子体射流进行高精度在线原位测量的诊断技术, 科研人员利用其对等离子体射流进行了大量的诊断研究。张维^[7]等利用 Ar I 原子发射光谱探究了大气压氩气等离子体射流电子激发温度、电子密度随不同峰值电压的变化规律; 李亚茹^[8]等通过发射光谱法对大气压氩气等离子体羽转、振动

温度进行了研究, 结果发现大气压氩气等离子体羽的转动温度在 520~700 K 之间, 振动温度在 3 000 K 左右。

在众多等离子体参数中, 电子激发温度及等离子体振动温度在等离子体射流中的电子输运过程及化学反应过程中发挥着重要作用。本文通过针-环式介质阻挡放电装置在大气压条件下对氩气/空气混合气放电并产生了稳定的等离子体射流。通过发射光谱法对氩气/空气等离子体射流电子激发温度、振动温度及活性粒子种类进行了诊断。

1 实验部分

试验装置图如图 1 所示, 针-环式介质阻挡放电装置由中心电极、石英介质层以及环状紫铜电极组成。中心电极为直径 4 mm 的针状紫铜电极, 其与等离子体电源的高压接线端相连。石英介质层直径为 12 mm, 厚度为 2 mm。在中心电

收稿日期: 2020-07-13, 修订日期: 2020-11-28

基金项目: 中国航空动力基金项目(6141B090540), 国家自然科学基金项目(51509035, 51676132)资助

作者简介: 李政楷, 1995 年生, 沈阳航空航天大学航空发动机学院硕士研究生 e-mail: 1612880863@qq.com

* 通讯作者 e-mail: chenleisau@126.com

极与石英介质层之间为 3 mm 的放电间隙。环状紫铜电极的宽度为 5 mm, 其作为接地电极与等离子体电源的接地端相连。试验中采用 CTP-2000K 微秒脉冲等离子体电源为针-环式 DBD 放电装置供电。峰值电压及放电频率的大小显示并被记录保存在 Tronix-TDS1002 数字型示波器上。空气及氮气的纯度均为 99.99%, 由气瓶分别供应。等离子体射流的发射光谱信息由海洋光学 MX2500+7 七通道光纤式光谱仪采集, 其光纤探头固定在离射流向 10 mm 的位置。采集到的光谱信息由数据线传输并保存在计算机中。

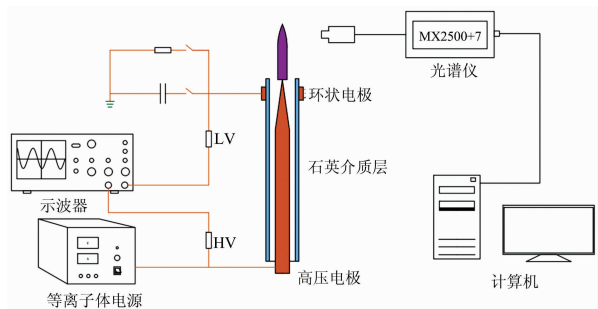


图 1 试验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the test device

发射光谱信息在等离子体射流电子激发温度的计算中发挥着重要的作用^[9]。玻尔兹曼斜率法利用最小二乘线性拟合对试验数据进行拟合计算具有较高的模型精度, 是目前使用较为广泛的电子激发温度诊断方法。在 LTE 条件下, 电子激发温度与谱线参数之间的关系可表达为

$$\ln \frac{I\lambda}{gA} = -\frac{E_k}{kT_e} + \ln \left(\frac{hcN}{4\pi Z} \right) \quad (1)$$

式(1)中, I 为相对光谱强度、 λ 为谱线波长、 g 为统计权重、 A 为原子跃迁概率、 E_k 为上能级能量、 k 为玻尔兹曼常数、 $\ln(hcN/4\pi Z)$ 是常数项。可以看出 $\ln(I\lambda/gA)$ 与 E_k 之间表现出线性函数关系, 通过拟合线的斜率即可计算出电子激发温度。

N_2 的第二正带系是计算等离子体振动温度的主要工具^[10-11]。对双原子分子带系而言, 其振动温度与发射光谱参数之间的关系可表达为

$$\ln \left(\frac{I_{\nu'} \lambda_{\nu' \nu''}}{A_{\nu' \nu''}} \right) = C + \frac{-E_{\nu'}}{kT_{\text{vib}}} \quad (2)$$

$$E_{\nu'} = hc\omega_e \left(\nu' + \frac{1}{2} \right) - hc\omega_e x_e \left(\nu' + \frac{1}{2} \right)^2 + hc\omega_e y_e \left(\nu' + \frac{1}{2} \right)^3 + \dots \quad (3)$$

式(3)中, ω_e , $\omega_e x_e$ 和 $\omega_e y_e$ 是与双原子分子对应的常数, 由于从第三项开始即为高阶小项, 因此计算时只考虑前两项即可。此时, 只要做出以 $\ln(I_{\nu'} \lambda_{\nu' \nu''} / A_{\nu' \nu''})$ 为纵坐标, $E_{\nu'}$ 为横坐标的拟合线, 该拟合线的负斜率即为振动温度的倒数。

2 结果与讨论

2.1 特征谱线分析

试验过程中控制氩气体积流量 $7 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, 空气体流

量 $2 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ 恒定, 空气在混合气中占比 22%。选取放电峰值电压 17 kV、放电频率 10 kHz 的氩气/空气等离子体射流发射光谱如图 2 所示。可以看出大气压氩气/空气等离子体射流中的主要活性粒子为 N_2 的第二正带系, Ar I 原子及 O 原子。其中 N_2 的第二正带系主要集中在 300~430 nm 之间, Ar I 原子分布在 680~850 nm 之间, O 原子则出现在 844 nm。本次试验中并没有发现 N_2^+ 的第一负带系谱线(电离激发能 18.76 eV), 这说明本次试验产生的等离子体射流中自由电子能量几乎没有高于 18.76 eV 的。

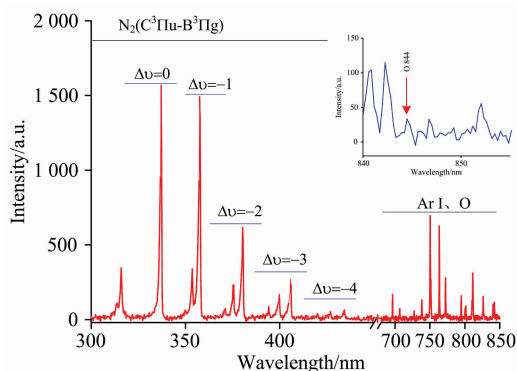


图 2 大气压氩气/空气等离子体射流发射光谱

Fig. 2 The emission spectrum of atmospheric pressure argon/air plasma jet

2.2 电子激发温度分析

通过 Boltzmann 法对电子激发温度进行测算, 为保证电子激发温度的计算精度, 选取最大、最小能级的谱线激发能分别为 13.15 和 13.47 eV。中间能级的谱线激发能分别为 13.17, 13.30 和 13.32 eV 共五条谱线。电子激发温度的拟合直线如图 3 所示, 可以看到, 试验数据点均匀的分布在最小二乘拟合线的两边, 拟合精度较高。

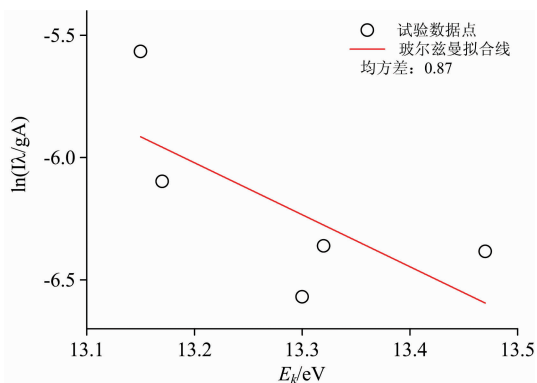


图 3 电子激发温度玻尔兹曼拟合线

Fig. 3 The Boltzmann fitting line of electronic excitation temperature

大气压下固定放电频率 10 kHz, 峰值电压由 12 kV 增大到 17 kV(间隔为 1 kV)共 6 个档次, 通过电子激发温度玻尔兹曼拟合线计算得到不同峰值电压下的电子激发温度变化曲线如图 4 所示。可以清晰的看出, 随峰值电压的增大电子激发温度呈现先增大后减小的变化趋势。在介质阻挡放电过程

中,非弹性碰撞是使基态原子跃迁到激发态的主要原因,电子激发温度的高低与电子平均能量的变化息息相关。当峰值电压在 12~15 kV 这一区间内时,电子激发温度呈上升的变化趋势,这是因为随峰值电压的升高,微放电通道内的电场强度随之增大,自由电子在电场的作用下被加速到更高的速度。自由电子从外电场中获得了更多的能量,因此在这一区间电子激发温度会表现出上升的趋势。当峰值电压在 15~17 kV 之间时,电子激发温度随峰值电压的增大呈现出降低的趋势。这是因为此时在电场作用下石英介质层上积累过多的电子,在等离子体放电区内将形成内部反向电场进而削弱外部场强,最终将导致电子平均能量损耗,电子激发温度降低。综上所述可以看出电子激发温度并不是总随外加峰值电压的增大而增大的。

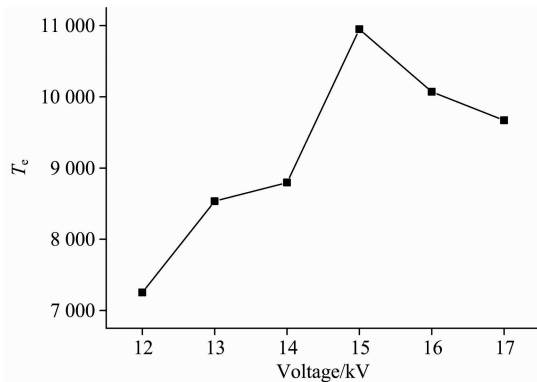


图 4 不同峰值电压下电子激发温度

Fig. 4 The electron excitation temperature under different peak voltages

2.3 等离子体振动温度分析

分子的振动激发过程伴随着能量的吸收,其有助于等离子体射流中化学反应的发生。在 300~430 nm 之间选取 N_2 第二正带系的 5 个顺序带谱共计 9 条谱线对大气压氩气/空气等离子体射流振动温度进行拟合,以试验数据点为基础的最小二乘玻尔兹曼拟合线如图 5 所示。

图 6 为不同峰值电压下的等离子体射流振动温度,可以直观的看到等离子体射流振动温度随峰值的增大表现出降低的趋势。氮分子的 w 激发主要是由自由电子与基态氮分子之间的非弹性碰撞导致的,因此等离子体振动温度也受到电子平均能量的影响。随峰值电压的增大,等离子体放电区的电压亦随之增大,自由电子平均动能随之上升。当电子动能较大时自由电子与氮分子之间的相互作用时间将会缩短,进而二者之间的碰撞能量转移截面将会减小,因此大气压氩气/空气等离子体射流会出现振动温度随峰值电压增大反而降低变化趋势。

References

- [1] Pandiyaraj K N, Vasu D, Padmanabhan P V A, et al. Surface & Coatings Technology, 2020, 389; 125642.
- [2] Yan Keping, Jin Qikang, Zheng Chao, et al. Plasma Science and Technology, 2018, 20(4); 44005.
- [3] Wang Sibao, Yu Jinlu, Ye Jingfeng, et al. Chinese Physics B, 2019, 28(11); 114702.
- [4] WANG Jin-feng, YAN Wei, LU Zhi-yao, et al(汪金凤,严威,陆知遥,等). Journal of Donghua University(东华大学学报), 2015, 41

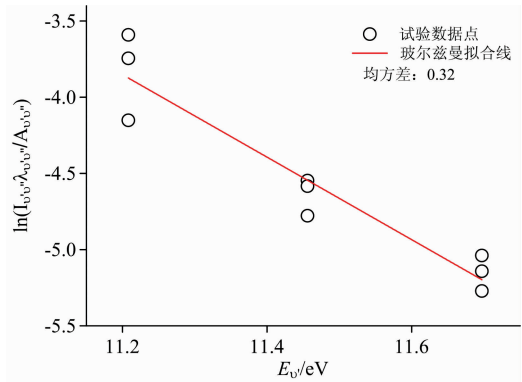


图 5 等离子体振动温度玻尔兹曼拟合线

Fig. 5 The Boltzmann fitting line of Plasma vibration temperature

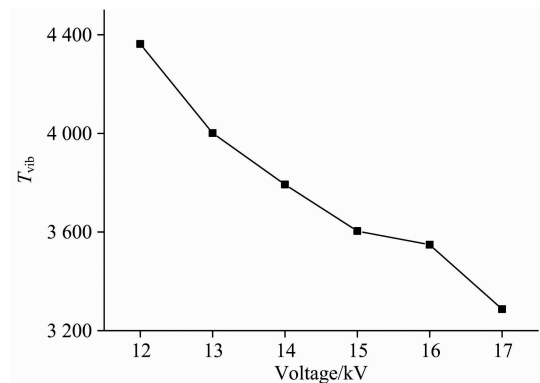


图 6 不同峰值电压下等离子体振动温度

Fig. 6 The plasma vibration temperature under different peak voltages

3 结论

利用针-环式等离子体放电装置对氩气/空气混合气进行了电离并产生了稳定的等离子体射流,通过发射光谱法对其活性粒子种类、电子激发温度、振动温度等参数进行了测量,结果如下:

- (1)氩气/空气内的主要活性粒子为 N_2 的第二正带系、Ar I 原子以及少量的氧原子。电子激发温度在 7 000~11 000 K 之间。
- (2)其电子激发温度并不是随着峰值电压的增加而单调变化的,而是呈现出了先增大后减小的变化趋势;
- (3)等离子体振动温度随峰值电压增大而减小,其变化范围在 3 200~4 500 K 之间。

- (1): 125.
- [5] LI Lei, CHEN Xiao-dong, YUAN Cheng-xun, et al(李磊, 陈晓东, 袁承勋, 等). Chinese Journal of Luminescence(发光学报), 2019, 40(8): 1049.
- [6] CHAO Jing-bo, WANG Jing-ru, ZHANG Jing-qi(巢静波, 王静如, 张靖其). Chinese Journal of Analytical Chemistry(分析化学), 2020, 48(7): 946.
- [7] ZHANG Wei, CHEN Lei, SONG Peng, et al(张维, 陈雷, 宋鹏, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2018, 38(12): 3678.
- [8] LI Ya-ru, LI Xue-chen, JIA Peng-ying, et al(李亚茹, 李雪辰, 贾鹏英, 等). Acta Optica Sinica(光学学报), 2017, 37(4): 0430002.
- [9] ZHANG Zhi-fan, GAO Jun, LEI Peng, et al(张秩凡, 高俊, 雷鹏, 等). Acta Physica Sinica(物理学报), 2018, 67(14): 145202.
- [10] HAO Ling-yan, LI Qing-quan, SI Wen, et al(郝玲艳, 李清泉, 司雯, 等). Proceedings of the CSEE(中国电机工程学报), 2016, 36(8): 2296.
- [11] HE Li-ming, ZHANG Da, CHEN Yi, et al(何立明, 张达, 陈一, 等). Journal of Air Force Engineering University(空军工程大学学报), 2017, 18(4): 1.

Diagnosis of Atmospheric Pressure Argon/Air Needle-Ring Dielectric Barrier Discharge Emission Spectrum

LI Zheng-kai¹, CHEN Lei^{1*}, WANG Mei-qi¹, SONG Peng^{2, 3}, YANG Kun¹, ZENG Wen¹

1. Aerospace Engineering Institute, Shenyang Aerospace University, Shenyang 110136, China

2. Institute of Internal Combustion Engine, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China

3. College of Mechanical and Electronic Engineering, Dalian Minzu University, Dalian 116600, China

Abstract To gain a deeper understanding of the electron transport process and chemical reaction process in the plasma jet. A needle-ring plasma generator generated a stable plasma jet at a discharge frequency of 10 kHz and an atmospheric pressure. The types of active particles, electron excitation temperature and plasma vibration temperature of atmospheric pressure argon/air plasma jet under different applied peak voltages were diagnosed by emission spectroscopy. The results show that the main active particles in the atmospheric pressure argon/air plasma jet are the second positive band system of N_2 , Ar I atoms and a small number of oxygen atoms, and the relative spectral intensity of the second positive band system of N_2 is the strongest and the most clear. The first negative band line of N_2^+ was not found in the emission spectrum of this experiment, which shows that there are almost no free electrons with electron energy higher than 18.76 eV in the argon/air plasma jet. Plasma electron excitation temperature was calculated using 5 spectral lines with a large difference in excitation energy of Ar I atoms. The electron excitation temperature was between 7 000 and 11 000 K. With the increase of the applied peak voltage, the electron excitation temperature showed a trend of increasing first and then decreasing. The plasma vibration temperature was diagnosed by the second positive band system of N_2 , and it was found that the vibration temperature of the atmospheric pressure argon/air plasma jet was between 3 000 and 4 500 K, which decreased with the increase of the applied peak voltage. This means that although the increase in peak voltage can effectively increase the kinetic energy of free electrons, when the electron kinetic energy is large, the interaction time between free electrons and nitrogen molecules will be shortened, and the collision energy transfer cross section between the two will be reduced. So the plasma vibration temperature shows a downward trend.

Keywords Dielectric barrier discharge; Emission spectrometry; Electronic excitation temperature; Vibration temperature

(Received Jul. 13, 2020; accepted Nov. 28, 2020)

* Corresponding author