

大气压氩氦混合气体介质阻挡放电电学和光谱特性研究

李 雪, 林靖松, 郭伊彤, 霍伟刚*, 王玉新, 夏 洋

辽宁师范大学物理与电子技术学院, 辽宁 大连 116029

摘 要 以聚对苯二甲酸乙二醇酯作为介质,在大气压下产生氩氦混合气体放电等离子体。利用电压电流探头、数字示波器和数码相机研究了聚对苯二甲酸乙二醇酯介质阻挡氩氦混合气体放电的电学特性和发光特性。发现随氩气含量增加,每半个电压周期出现一个或多个电流脉冲,放电由均匀放电转变为斑图放电。利用衍射光栅和 CCD 探测器组成的光谱系统测量了氩原子谱线(696.54, 763.13, 772.09, 811.17 和 911.81 nm)光谱强度。研究了氩气含量、峰值电压对氩原子谱线光谱强度的影响。实验结果表明:在峰值电压较低时,上述五条氩原子谱线光谱强度随氩气含量的增加均呈现先增强—后减弱—再增强的变化规律;在峰值电压较高时,波长为 696.54, 763.13 和 772.09 nm 三条谱线光谱强度增强,波长为 811.17 和 911.81 nm 谱线光谱强度减弱。上述情况表明:在低峰值电压下,上述五条氩原子谱线光谱强度的变化规律是由于在放电过程中放电模式发生了变化;而在高峰值电压下,五条谱线强度变化与气体激发机制有关。在氩气含量低于 30% 或高于 80% 时,氩原子谱线光谱强度随峰值电压的增加先保持不变,再增强到稳定值;在氩气含量介于 30%~80% 之间时,氩原子谱线光谱强度随峰值电压的增加也呈现先增强—后减弱—再增强的变化规律;利用玻尔兹曼图形法计算了氩原子放电的电子激发温度,得到了不同峰值电压下电子激发温度随氩气/氦气比例变化的规律:高峰值电压下电子激发温度明显高于低峰值电压下电子激发温度;电子激发温度随氩气含量增加而减小。出现上述变化规律的原因主要是由于电子与氩原子碰撞截面小,电子与氩原子碰撞截面大,而氦气扩散系数大于氩气扩散系数。

关键词 介质阻挡放电;氩气含量;光谱强度;电子激发温度

中图分类号: O536 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2021)11-3602-05

引 言

大气压介质阻挡放电(dielectric barrier discharge, DBD)不需要在真空条件下运行,设备成本及运行成本较低,在生物医学、纺织品改性、纳米粉末制备等多个领域有着广泛的应用^[1-3]。在实际应用中,放电均匀性是重要的影响因素,与放电模式密切相关。近年来,国内外学者对放电模式进行了大量的研究^[4-8]。Dong 等^[4]观察到各种放电斑图。Bruggeman 等^[5]研究了丝状放电模式。Kogelschatz^[6]讨论了丝状放电产生机制。Trunec 等^[7]和 Brandenburg 等^[8]研究了气体种类、电源频率等对模式转化的影响。已报道的放电模式研究所用介质主要是石英玻璃、陶瓷、聚四氟等,而聚对苯二甲酸乙二醇酯(polyethylene terephthalate, PET)对 DBD 模式

影响的研究相对较少。

发射光谱(optical emission spectroscopy, OES)法是等离子体的重要诊断技术,具有非侵入、设备简单等优点^[9-10],常用于大气压 DBD 特性的研究。Bruggeman 等^[11]利用 OES 确定等离子体气体温度。Zhang 等^[12]发现脉冲 DBD 的氮气分子转动温度随峰值电压增加而升高。Laux 等^[13]利用 OES 研究了光谱谱线的斯塔克展宽,得到等离子体的电子密度。Nie 等^[14]报道了峰值电压、脉冲频率对脉冲线板 DBD 的 OH 发射光谱的影响。Kanazawa 等^[15]利用 OES 确定了活性物种的种类。但目前 OES 很少用于 PET DBD 特性的研究。

本文在 PET 介质间隙产生了大气压氩氦混合气体放电等离子体。利用电学诊断和 OES 技术研究了氩气含量对 PET DBD 模式、氩原子谱线强度和电子激发温度的影响,并给出相应的物理解释。

收稿日期: 2020-10-29, 修订日期: 2021-03-07

基金项目: 国家自然科学基金项目(11905094), 教育部大学生创新创业项目(202010165007), 辽宁省教育厅项目(LJ2020008)资助

作者简介: 李 雪, 1996 年生, 辽宁师范大学物理与电子技术学院硕士研究生 e-mail: 983664223@qq.com

* 通讯作者 e-mail: huowg.wg@tom.com

1 实验部分

大气压 DBD 实验装置如图 1 所示。放电发生在两个圆形紫铜平板电极(直径: 40 mm)之间, 每个电极都覆盖一个圆形 PET 介质(直径: 50 mm, 厚度: 0.35 mm, 相对介电常数: 3.2)。上电极与高压(0~40 kV)交流(10~40 kHz)电源输出端相连, 下电极接地。放电电极密封在有机玻璃箱(400 mm×300 mm×200 mm)中。在有机玻璃箱的一个侧壁安装气体混合器, 高纯氩气和氮气分别经气体减压阀, 质量流量控制器进入气体混合器混合后通入有机玻璃箱中。有机玻璃箱的另一侧壁安装了出气口。利用电压探头(Tektronix P6015A, 1 : 1 000)和电流探头(Pearson5101, 0.5 Volts/Amp)测量峰值电压(定义为 V_p)和放电电流(定义为 I_{dis}), 电压、电流信号用数字示波器(Tektronix DPO4054B, 带宽: 500 MHz)记录。光学信号由凸透镜聚焦经光纤被光谱仪(Avaspec-ULS2048, 光栅刻划线: 1 200 lines · mm⁻¹, 200~1 070 nm)测量, 光谱数据由计算机记录和和处理。利用数码相机(Nikon D90)拍摄 PET DBD 放电图像。在下面的实验中, 电源频率、介质间隙、光谱仪积分时间和相机曝光时间分别固定为 18.84 kHz, 1.5 mm, 30 ms 和 10 ms。

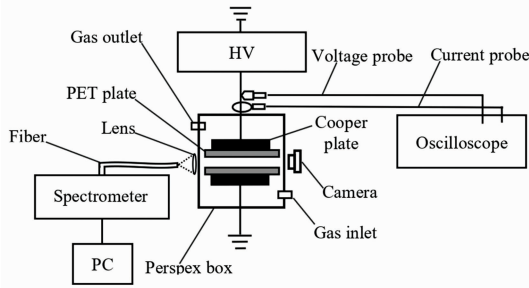


图 1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental setup

2 结果与讨论

2.1 PET 阻挡氩气/氦气放电电学特性和发光特性

图 2 给出了当峰值电压为 1.75 kV 时, 不同氩气含量下 V_p 和 I_{dis} 及对应的放电图像。从图 2 可以看出: 在不同氩气含量下, 每半个电压周期仅出现一个或多个电流脉冲; 随着氩气含量的增加, 电流脉冲幅值和脉冲个数减少。证实了 PET 阻挡放电是辉光放电^[16]。从对应图像也可看出: 在氩气含量较低时, DBD 均匀地分布在电极间隙, 呈现明显的辉光放电特性^[16]。随着氩气含量增加, DBD 由均匀放电逐渐过渡到孤立斑图放电^[17], 即 PET DBD 经历了均匀放电到孤立斑图放电的转换过程。

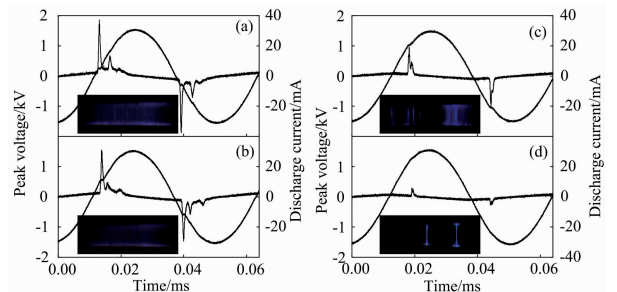


图 2 不同氩气含量下 V_p , I_{dis} 波形和放电图像

氩气含量分别为 10% (a), 30% (b), 60% (c) 和 80% (d); V_p 固定为 1.75 kV

Fig. 2 V_p , I_{dis} and discharge images under different argon content

The argon content is 10% (a), 30% (b), 60% (c) and 80% (d), respectively; V_p is fixed at 1.75 kV

2.2 氩气含量对氩原子谱线强度的影响

选用具有相同下能级的五条氩原子谱线(696.54, 763.13, 772.09, 811.17 和 911.81 nm)分析。五条氩原子谱线强度随氩气含量的变化关系如图 3 所示。从图 3 可以看

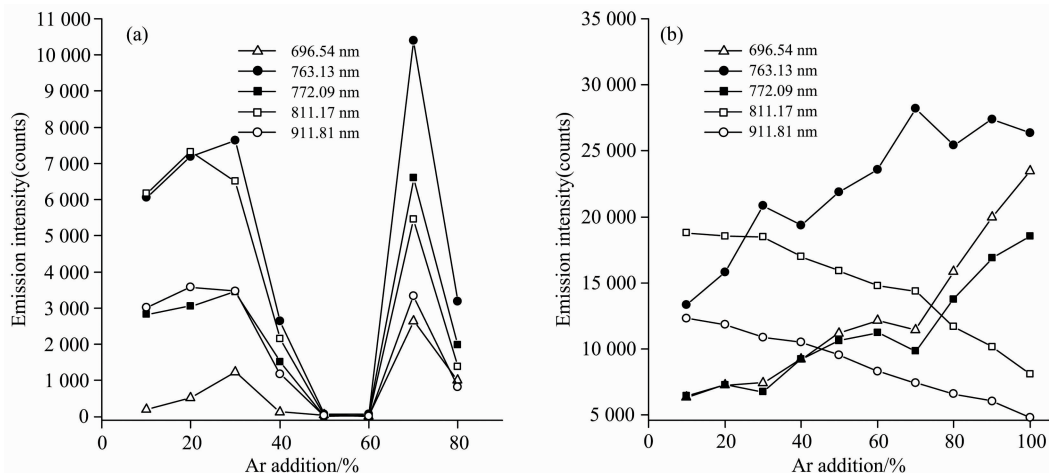


图 3 氩原子谱线强度随氩气含量变化

V_p 分别为 1.75 kV (a) 和 3 kV (b)

Fig. 3 Argon spectral line intensity vs. argon content

V_p is 1.75 kV (a) and 3 kV (b), respectively

出: (1) 当 V_p 固定为 1.75 kV 时, 五条氩原子谱线强度均呈现增强—减弱—增强的变化规律[见图 3(a)]; (2) 当 V_p 为 3 kV 时, 波长为 696.54, 763.13 和 772.09 nm 的谱线强度增强, 波长为 811.17 和 911.81 nm 的谱线强度减弱[见图 3(b)]。

在大气压 PET 阻挡氩氦混合气体放电中, 存在高能量的激发态氩原子, 氩原子的第一激发和第二激发能级与基态能级差分别为 19.77 和 20.55 eV, 大于氩原子第一电离能 (15.84 eV)。处于激发态的氩原子与氩原子碰撞从而使氩原子激发, 即放电中除发生电子直接激发外还存在潘宁激发。另一方面, 放电存在均匀放电和孤立斑图放电模式(参见图 2)。这两种放电模式与 V_p 和氩气含量密切相关。在 V_p 为 1.75 kV 时, 随氩气含量增加放电经历了均匀放电到孤立斑图放电的转变, 这导致谱线强度按增强—减弱—增强规律变化; 在 V_p 为 3 kV 时, 放电一直运行在均匀放电模式。随着氩气含量减小(氦气含量增加), 处于激发态的氩原子密度逐渐增加, 潘宁效应开始起作用。分析波长为 696.54, 763.13, 772.09, 811.17 和 911.81 nm 的光谱参数发现: 波长为 811.17 和 911.81 nm 的谱线对应的上下能级差大于另外三

个谱线对应的上下能级差(参见表 1), 意味着 811.17 和 911.81 nm 谱线对应的激发态氩原子密度(潘宁效应起主要作用)更高; 随氩气含量减少, 电子-氩原子碰撞几率减小, 导致 696.54, 763.13 和 772.09 nm 对应的激发态氩原子(电子-氩原子碰撞起主要作用)密度减小。

2.3 峰值电压对氩原子谱线强度的影响

由 2.2 节可知, 氩原子谱线强度不仅受氩气含量的影响, 也与峰值电压有关。这一节主要聚焦于峰值电压对氩原子谱线强度的影响。

图 4 是在不同氩气含量下, 谱线强度随 V_p 变化曲线。从图 4 可以看出: (1) 当氩气含量较低时, 随着峰值电压的增加, 谱线强度先几乎保持不变, 再缓慢增强到稳定值[参见图 4(a,b)]; 在中等氩气含量下, 谱线强度随 V_p 呈增强—减弱—增强变化, [参见图 4(c-e)]; 在高氩气含量下, 谱线强度先几乎保持不变状态, 然后快速增强最后趋于平稳[参见图 4(f-h)]。在不同氩气含量下谱线强度呈现不同变化主要是 PET DBD 模式造成的。(2) 最小维持电压随氩气含量的增加而增加。因为激发态氩原子数密度减小导致最小维持电压增加。

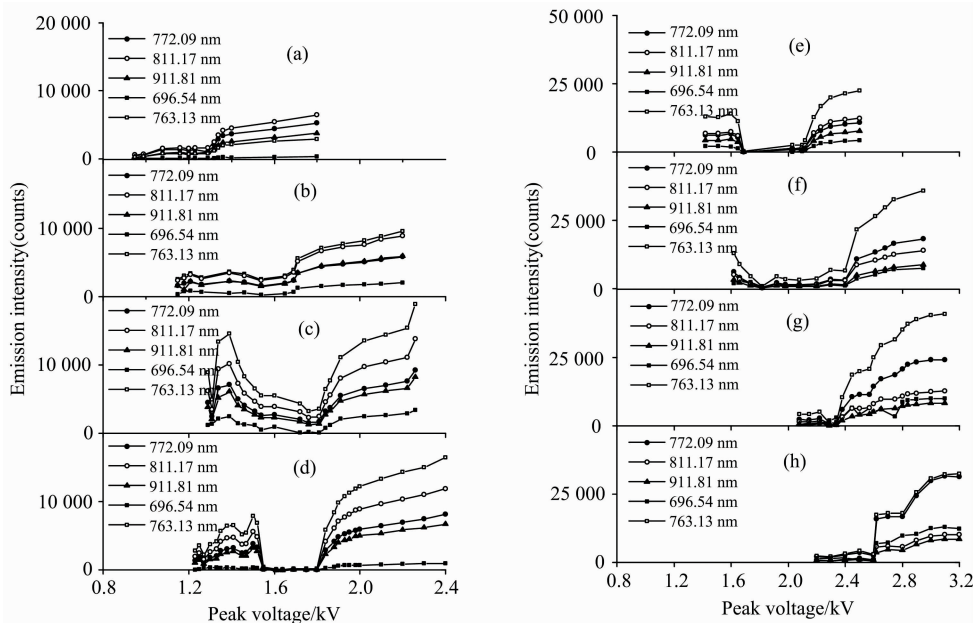


图 4 不同氩气含量下, 氩原子谱线强度随 V_p 的变化

氩气含量分别为 10% (a), 30% (b), 40% (c), 50% (d), 60% (e), 80% (f), 90% (g) 和 100% (h)

Fig. 4 Argon spectra intensity vs. V_p

Argon content is 10% (a), 30% (b), 40% (c), 50% (d), 60% (e), 80% (f), 90% (g) and 100% (h), respectively

2.4 电子激发温度

在原子或分子中束缚电子的激发温度通常与自由电子的动力学温度密切相关, 因为控制激发态分布的激发过程主要是由自由电子引起的^[18]。测量电子激发温度对理解放电起到非常重要的作用。

本文采用 Boltzmann 图形法计算电子电子激发温度, 计算公式如式(1)^[18]

$$\ln\left(\frac{I_{jk}\lambda}{A_{jk}g_j}\right) = 1.4388 \times \frac{E_j [\text{cm}^{-1}]}{T_{\text{exc}} [\text{K}]} + \text{常数} \quad (1)$$

式(1)中, I_{jk} 是从 j 能级跃迁到 k 能级的原子发射强度, λ 是相应跃迁的波长, A_{jk} 为 j 能级跃迁到 k 能级跃迁几率, g_j 为 j 能级统计权重, E_j 是能级差。基于上述公式得到 I_{jk} 自然对数随能级差 E_j 的变化曲线。电子激发温度由该曲线斜率的倒数计算。由测量的氩原子谱线强度计算电子激发温度。上述五条氩原子谱线的光谱参数取自 NIST 的原子数据库(参见表 1)。

图 5 是峰值电压分别为 1.75 和 3 kV 时电子激发温度随

表 1 氩原子光谱数据

Table 1 The spectral constant of Ar atom

λ/nm	$\epsilon_F/\text{cm}^{-1}$	$\epsilon_{\text{上}}/\text{cm}^{-1}$	$\epsilon_{\text{差}}/\text{cm}^{-1}$	A/s^{-1}	g
696.54	93 143.76	107 496.42	14 352.66	6.4×10^6	3
763.13	93 143.76	106 237.55	13 093.79	2.45×10^7	5
772.09	93 143.76	106 087.26	12 943.50	5.2×10^6	3
811.17	93 143.76	105 462.76	12 319.00	3.3×10^7	7
911.81	93 143.76	104 102.10	10 958.34	1.89×10^7	3

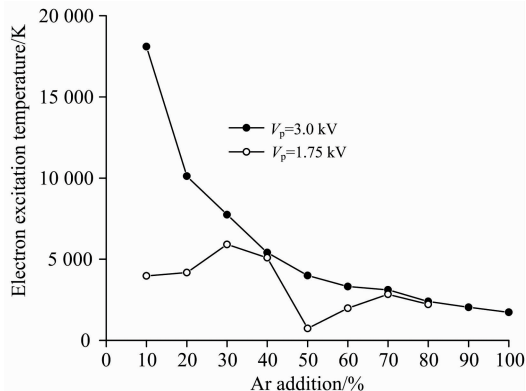


图 5 不同峰值电压下电子激发温度随氩气含量的变化

Fig. 5 T_{exc} vs. argon content under different V_p s

氩气含量的变化。从图 5 可以看出，峰值电压较高时的电子激发温度普遍高于峰值电压较低时的电子激发温度；在同样峰值电压下，电子激发温度随氩气含量的增加而减小。

利用粘度系数公式

$$\eta = \frac{2}{3\sigma} \sqrt{\frac{km}{\pi}} T^{\frac{1}{2}} = \frac{2}{3\sigma} \sqrt{\frac{k\mu}{N_A \pi}} T^{\frac{1}{2}} \quad (2)$$

式(2)中， η 为黏度， m 为分子的质量， σ 为碰撞截面， k 为玻尔兹曼常数， μ 是摩尔质量， N_A 是阿伏伽德罗常数，估算电子-氩原子碰撞截面约为电子-氩原子碰撞截面的 0.32 倍，而氩气扩散系数约为氩气扩散系数的 8.44 倍(标准状态)，意味着氩原子电离率大于氩原子电离率，而氩离子损失率小于氩离子的损失率。为了维持电离过程和离子逃逸损失的平衡，电子激发温度随着氩气含量减小而增加。

3 结 论

采用 PET 介质在大气压下产生氩气/氩气混合气体放电。研究了氩气含量对 PET DBD 放电模式、氩原子谱线强度、电子激发温度的影响。发现随氩气含量的增加，PET DBD 由均匀放电转变为孤立斑图放电。在低峰值电压下，受放电模式的影响，光谱强度呈现增强—减弱—增强的变化规律；在高峰值电压下，受不同碰撞激发机制影响，波长为 811.17 和 911.81 nm 谱线强度减弱，而 696.54, 763.13 和 772.09 nm 谱线强度增强。

References

- [1] Shirai H, Kobayashi T, Hasegawa Y. Appl. Phys. Lett., 2005, 87(14): 143112.
- [2] Kim S J, Chung T H, Bae S H, et al. Appl. Phys. Lett., 2009, 94(14): 141502.
- [3] Penache C, Gessner C, Betker T, et al. IEEE Proceedings Nanobiotechnology, 2004, 151(4): 139.
- [4] Dong L, Li B, Shen Z, et al. Physical Review E, 2012, 86(5): 056217.
- [5] Bruggeman P, Guns P, Degroote J, et al. Plasma Sources Sci. Technol., 2008, 17: 045014.
- [6] Kogelschatz U. IEEE Trans. Plasma. Sci., 2002, 30(4): 1400.
- [7] Trunec D, Brabec A, Buchta J. J. Phys. D-Appl. Phys., 2001, 34: 1697.
- [8] Brandenburg R, Navrátil Z, Jánský J, et al. J. Phys. D-Appl. Phys., 2009, 42(8): 085208.
- [9] Ono R. J. Phys. D-Appl. Phys., 2016, 49: 083001.
- [10] ZHAO Zi-lu, YANG De-zheng, WANG Wen-chun, et al(赵紫璐, 杨德正, 王文春, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2019, 39(4): 1236.
- [11] Bruggeman P, Sadeghi N, Schram D, et al. Plasma Sources Sci. Technol., 2014, 23: 023001.
- [12] Zhang S, Wang W, Jia L, et al. IEEE Transactions on Plasma Science, 2013, 41: 350.
- [13] Laux C O, Spence T G, Kruger C H, et al. Plasma Sources Sci. Technol., 2003, 12: 125.
- [14] Nie D X, Wang W C, Yang D Z, et al. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 2011, 79: 1896.
- [15] Kanazawa S, Kogoma M, Moriwaki T, et al. J. Phys. D-Appl. Phys., 1988, 21(5): 838.
- [16] Massines F, Rabehi A, Deoops P, et al. J. Appl. Phys., 1998, 83(6): 2950.
- [17] Huo W G, Zhu Y T, Liu C S, et al. Phys. Plasmas, 2018, 25: 093507.
- [18] Park H, Choe W. Current Applied Physics, 2010, 10: 1456.

Studies on the Electrical and Spectrum Characteristics in Atmospheric Dielectric Barrier Discharge in Helium-Argon Mixture

LI Xue, LIN Jing-song, GUO Yi-tong, HUO Wei-gang*, WANG Yu-xin, XIA Yang

School of Physics and Electronic Technology, Liaoning Normal University, Dalian 116029, China

Abstract The polyethylene terephthalate (PET) was used for dielectric to produce the atmospheric pressure helium-argon mixture discharge plasma. The electrical and luminescence properties of PET dielectric barrier discharge were studied using a voltage probe, a current probe, a digital oscilloscope and a digital camera. It found that one or more current pulses appear in every half voltage cycle, and the discharge transits from uniform to pattern discharge with the increase of argon content. Argon atomic spectra intensities (696.54, 763.13, 772.09, 811.17 and 911.81 nm) were measured using a spectral system composed of the diffraction grating and a CCD detector. The influences of argon content and peak voltage (V_p) on the spectra intensity were researched. The results show that: at lower V_p , the above five argon spectra intensities enhance slowly, then weaken sharply, and enhance rapidly again with the increase of argon content; at higher V_p , the intensities of spectral line 696.54, 763.13 and 772.09 nm enhance and the intensities of argon spectral line 811.17 and 911.81 nm weaken. The discharge mode plays an important role in the spectra intensity variation at lower V_p , but the ionization mechanism makes a dominant contribution to the spectra intensity at higher V_p . At argon content $\leq 30\%$ or $\geq 80\%$, the above argon spectra intensities almost remain unchanged, then increase to the stable value with the increasing V_p ; at $30\% \leq \text{argon content} \leq 80\%$, the above five argon spectra intensities enhance slowly, then weaken sharply, and enhance rapidly again. The electron excitation temperature (T_{exc}) was calculated using the Boltzmann graph method, and the variation of T_{exc} with the ratio of helium to argon was obtained under different V_p . The results show that: the T_{exc} at high V_p is higher than that at low V_p , and the T_{exc} decreases with the increasing argon content. The reason is to maintain the balance between the ionization process and ion escape loss because the electron-helium collision section is much smaller than the electron-argon collision section, but helium has a larger diffusion coefficient than argon.

Keywords Dielectric barrier discharge; Argon content; Spectra intensity; Electron excitation temperature

(Received Oct. 29, 2020; accepted Mar. 7, 2021)

* Corresponding author