



大气压脉冲放电等离子体的研究现状与展望

卢新培^{①*}, 严萍^②, 任春生^③, 邵涛^②

① 华中科技大学电气学院, 武汉 430074;

② 中国科学院电工研究所, 北京 100190;

③ 大连理工大学物理与光电工程学院, 大连 116024

*Email: luxinpei@hotmail.com

收稿日期: 2010-12-13; 接受日期: 2011-03-10; 在线出版日期: 2011-05-03

国家自然科学基金(批准号: 875048, 51077063, 50707032, 10775027)和教育部长江学者奖励计划资助项目

摘要 近年来, 大气压脉冲放电等离子体研究受到了人们的格外关注. 研究表明与交流驱动相比, 脉冲放电产生大气压等离子体具有许多优势, 如它的 VUV、氧原子、及臭氧的产生效率高; 峰值电流密度、电子密度、及电子产生效率也更高; 在对介质表面处理时能达到更好的处理效果和更高的效率; 还更易产生均匀的大面积等离子体; 所产生等离子体的非平衡性更高; 灭菌效果也更好等优点. 但是, 对于脉冲放电的放电机理, 放电模式, 及脉冲参数(上升沿和下降沿、重复频率、脉冲宽度等)对放电效果的影响, 现在的研究还非常有限, 且很零散. 这一方面是由于大气压放电诊断本身就很困难, 另一方面, 由于脉冲放电快速的时空演化过程进一步加大了对其诊断的难度. 再者, 对其研究还受到脉冲电源参数的限制. 本文对国际上大气压脉冲放电等离子体最新研究的代表性研究成果做了一个综述, 并对今后的研究方向提出了几点建议.

关键词 大气压等离子体, 脉冲放电等离子体, 非平衡等离子体, 介质阻挡放电

PACS: 52.80.-s, 52.80.Hc, 52.80.Mg, 52.80.Tn, 52.50.Dg

1 引言

近年来, 大气压非平衡等离子体由于其特有的优势及其巨大的应用前景受到了人们格外的关注. 一方面, 大气压非平衡等离子体去除了昂贵且极其繁琐的真空系统, 使得它的应用成本大大降低, 例如材料的表面改性, 医疗仪器设备的杀菌消毒等^[1~11]. 另一方面, 由于它是在周围的大气中进行放电, 这使得原来无法实现的一些应用也变为现实, 其中一个非常重要的应用是等离子体医学方面的应用. 由于等离子体医学是利用等离子体对动物或人体直接进

行处理, 因此它在低气压下是无法进行的.

但另一方面, 与低气压放电相比, 由于大气压放电的气体压力高, 从非平衡等离子体很容易向热平衡等离子体转换, 它的转化时间非常短. 为了产生大尺度非平衡大气压等离子体, 通常采用两种方法, 一种方法是采用微放电阵列来增加表面-体积比, 从而使放电远离热动力学平衡; 另一种方法是采用脉冲激发, 使放电的时间比不稳定性发展所需要的时间还短, 从而避免不稳定的发展. 采用脉冲激发又可以由多种不同方式来实现, 一种是直接采用脉冲高压来放电产生等离子体, 这通常要求脉冲电压的宽度

引用格式: 卢新培, 严萍, 任春生, 等. 大气压脉冲放电等离子体的研究现状与展望. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2011, 41: 801-815
Lu X P, Yan P, Ren C S, et al. Review on atmospheric pressure pulsed DC discharge (in Chinese). Sci Sin Phys Mech Astron, 2011, 41: 801-815,
doi: 10.1360/132010-1226

在亚微秒到纳秒量级. 另一种方法是, 虽然施加在电极两端的电压是连续的, 如交流, 甚至是直流, 但在电极表面覆盖一层电介质, 或者在放电回路中串联一大电阻, 从而使得放电的电流呈现出脉冲放电的特点. 此外, 还可以采用上述两种方法的混合, 其中一个典型的例子即为脉冲高压驱动电介质阻挡放电.

研究表明, 即使是采用脉冲激发的方式, 大气压放电仍然容易出现不稳定性. 如大气压 DBD (Dielectric Barrier Discharge: 介质阻挡放电) 最常见的是丝状放电模式. 这种放电通常由许多很窄的放电通道、即直径在 10~100 μm 量级的放电丝组成^[12,13]. 这些放电丝有可能在空间任意分布, 也有可能按一定的规则模式分布, 如六角形或四边形分布^[14]. 这种丝状放电是通过等离子体通道头部本身产生的强电场, 带电通道头部前方的气体将连续地被电离, 结果使得这个很细的等离子体通道能够穿过气隙不断向前传播. 这种放电的非均匀性对许多应用, 如表面改性等是不利的, 因为它不能对整个表面达到均匀的处理目的. 此外, 我们后面会提到, 对于紫外线的产生效率、活性 O 原子的产生效率等, 这种丝状放电比均匀放电要低许多倍.

幸运的是, 大气压放电也可以在放电间隙形成均匀的放电. 此时的放电可以是汤逊放电模式, 辉光放电模式或者是介于这两种模式的一种中间模式^[15~18]. 对于汤逊放电, 其等离子体中电流密度和电荷密度如此之低, 以至于对外加电场没有实质上的影响. 由于电离度非常低, 放电时几乎没有光发射出来, 仅在阳极附近有较弱的光辐射. 在汤逊放电模式下, 我们可以观察到从阴极向阳极电子密度呈指数函数形式增加, 致使实际上整个空间几乎充满了正离子. 而对于辉光放电, 它的空间电荷场起到了十分重要的作用. 在阴极附近会形成一个高场强的正空间电荷区, 即阴极降区. 一个准中性等离子体的正柱贯穿整个放电间隙将阳极和阴极连通.

但是在大气压下产生均匀的非平衡等离子体所需具备的条件往往是很苛刻的. 通常在惰性气体中相对容易产生. 另外, 它往往要求放电间隙在毫米量级. 当放电条件稍有变化则容易向非均匀放电转化. 这些缺点又使得大气压非平衡等离子体的应用受到了极大的限制. 值得庆幸的是, 最新的研究表明, 当采用脉冲电压驱动代替传统的交流驱动时, 它使得人们能够在更大的参数范围内获得均匀的非平衡等

离子体.

当采用脉冲电压驱动时, 脉冲电压参数对放电效果具有重要的影响. 这些参数包括脉冲电压的上升沿和下降沿、脉冲宽度、幅值、脉冲重复频率等. 采用脉冲电压驱动产生大气压或高压等离子体是当今国际上的一个热点研究课题. 脉冲驱动不仅更有利于产生大体积的均匀大气压等离子体, 国际和国内的许多研究还表明脉冲驱动与传统的交流驱动相比具有更高的活性氧原子、臭氧等的产生效率, 所产生等离子体的电子密度更高、等离子体的平均电子能量增大, 更高的 VUV 产生效率, 及更高的能量效率等优点. 但由于脉冲驱动产生大气压非平衡等离子体是最近几年兴起的一个热点研究课题, 人们在这方面的研究还是比较分散. 没有一个课题组对脉冲电压参数与放电效果之间的关系进行过系统的研究. 此外, 不同课题组的研究结果还存在着差异.

2 脉冲驱动放电的基础研究

2.1 电子能量损失机制

对于传统的放电, 其约化电场较低($<20 \text{ Td}$), 电子能量损失是通过电子-中性粒子的弹性碰撞, 电子分子碰撞导致的振动、转动激发, 以及转动-平动过程来实现的. 大家所熟悉的一种分子气体加热机制是振动激发分子的弛豫过程, 振动激发分子相当于把放电等离子体的能量存储起来. 这个弛豫过程是较长的(在大气压下 $\gg 1 \mu\text{s}$). 但是当采用脉冲电压驱动, 约化电场可以达到非常高的值, Aleksandrov 等人^[19]对空气等离子体的研究表明, 当约化电场为 10^3 Td , 电子能量转化为热能所需的时间非常短, 在大气压下, 大约 100 ns 时间内有 50% 的能量转化为热能. 这比在较低或中等强度电场情况下快许多. 他们认为此时的电子加热气体是通过: (1) 电子碰撞分解 O_2 和激发 N_2 较低激发态, 随后碰撞而湮灭; (2) 电子碰撞激发 N_2 高能激发态, 并伴随着分解和碰撞湮灭过程; (3) 电子离子复合过程来实现的.

2.2 电子的逃逸

当脉冲放电间隙间施加的电场进一步升高时, 就会出现一种特殊情况. 因为电子碰撞(弹性、激发、电离等)的总截面在某一特定的电子能量处会有极大值. 当电场足够高时, 必定会导致电子在两次碰撞过

程之间得到的能量大于其与背景气体碰撞所损失的能量. 这就使电子因持续加速而处于逃逸状态. Babich 和 Stankevich 粗略估算了从流注机制过渡到电子持续加速时所需要的电场值, 约为稳态击穿场强的 3 倍^[20]. 在实验室中, 为了在大气压空气中达到电子逃逸条件, 需要使用脉冲上升时间以及脉冲持续时间都在亚皮秒量级的高压脉冲^[21,22].

2.3 光电离机制

光电离机制在流注放电, 大气压等离子体射流推进中扮演着重要的角色^[23-27]. Ito 等人^[28]研究了重频纳秒脉冲大气压放电机理(脉宽 5 ns, 频率 10 kHz, 间隙 1.15 mm, 电压 -2 kV). 他们的研究表明, 大气压放电与低气压的平板间放电不同, 在高气压中的放电几乎是完全由电子运动来驱动, 离子和中性粒子在整个过程中几乎是不动的. 他们发现电离前沿的推进速度高于 10^6 m/s, 这比此时的电子漂移速度 3.5×10^5 m/s 还高. 因此光电离可能在此起重要的作用.

2.4 脉冲放电模式

Pai 等人^[29]研究了在空气被预加热到 1000 K 时的大气压空气放电, 他们采用脉冲电压的脉宽 10 ns, 频率 30 kHz 的纳秒重频脉冲, 研究发现此时有三种放电模式, 除了大家熟知的电晕和火花模式外, 还有类辉光放电模式. 此处所产生的电子密度约 10^{13} cm⁻³, 所消耗的能量约 1~10 μ J, 气体温度只上升 200 K. Lu 等人^[30]发现在脉冲电介质阻挡放电中, 当放电间

隙施加 500 ns 的脉冲直流高压时, 主放电在整个间隙同时变亮, 这与通常的辉光或 Townsend 放电都不一样. 另外, 在电压的下降沿出现的二次放电与 Townsend 放电类似, 靠近阳极区有一个很亮的区域. 不过它在靠近阴极处有一弱发光区, 这与 Townsend 放电又稍有不同. 此外, 他们还发现二次放电比主放电更加均匀. 他们认为这主要是由于二次放电时在间隙中的剩余电子密度以及一些寿命在微秒量级的激发态粒子引起的. 它们在二次放电时仍有很高的浓度. 但在主放电时, 由于脉冲之间的时间间隔(毫秒量级)远大于二次放电与主放电的时间间隔(亚微秒量级), 因此电子及这些激发态粒子的密度非常低. 这就导致了二次放电比主放电更加均匀.

2.5 电子密度和温度的测量

Laroussi 和 Lu^[31]在 2004 年首次采用亚微秒脉冲驱动在大气压下产生均匀等离子体. 并采用 105 GHz 毫米波干涉仪对所产生的等离子体的密度和温度进行了同时测量^[32]. 测量结果如图 1 所示. 从图中可以看出所测得的峰值电子密度达 8×10^{12} cm⁻³, 这远远高于交流驱动 DBD 等离子体的峰值电子密度. 峰值电子温度则高达 8.7 eV. 这也比通常交流驱动 DBD 等离子体的电子温度高几倍.

3 脉冲电压驱动 DBD

3.1 脉冲电压驱动与传统交流驱动 DBD 的对比

Liu 等人研究了用脉冲电压驱动氦准分子灯^[33].

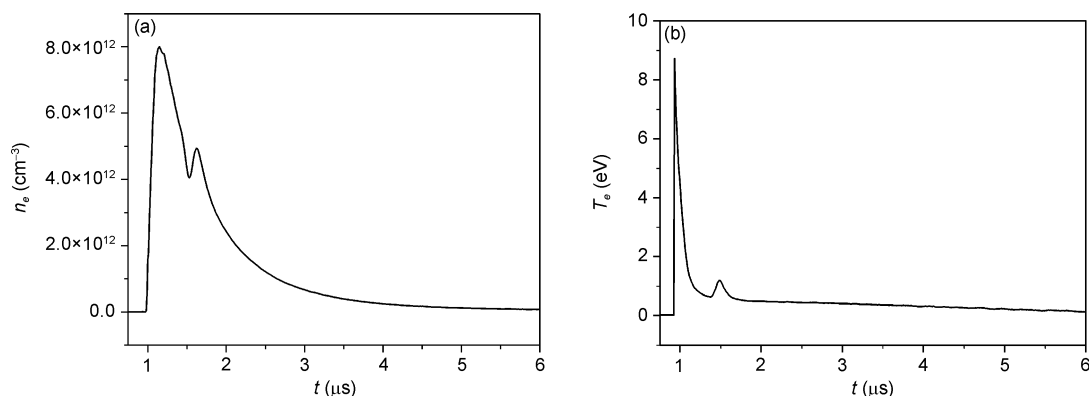


图 1 采用 105 GHz 测量的(a)电子密度和(b)电子温度随时间的演化过程

脉冲宽度 500 ns, 峰值电压 9 kV, 脉冲重复频率为 1 kHz, 放电间隙为 5 mm, 工作气体为一个大气压的 He^[32]

Figure 1 Temporal behavior of (a) electron density and (b) electron temperature measured by 105 GHz millimeter wave interferometer. Pulsed width: 500 ns, applied voltage: 9 kV, repetition frequency: 1 kHz, gap distance: 5 mm, working gas: He [32].

他们发现二次放电比主放电更加均匀, 且二次放电所发射的 VUV 氙准分子辐射比主放电还强. 从能量效率来说, 用正弦波驱动时电能转化为 VUV 的能量效率约为 24%, 但用脉冲驱动时达到约 32%~44%(低电压时达到 44%). 有趣的是这两种情况下输出的 VUV 光谱的形状相同, 且与注入的电功率无关.

Mildren 等人^[34]研究了采用 150 ns 的脉冲电压驱动介质阻挡放电产生 VUV 光的效率等问题. 与传统的交流驱动相比, 他们获得的 VUV 最大输出增大 2.6 倍, 最大能效增大 3.2 倍. 峰值强度提高达 6 倍. 他们的结果也表明光谱的形状与交流驱动类似. 值得强调的是, 他们发现即使在高气压下 (600 Torr (1 Torr=133 Pa)), 脉冲放电也是均匀的, 而传统的交流放电则是丝状放电. 至于为什么交流放电产生 VUV 的效率低, 他们认为这可能是由于交流放电是丝状放电, 在放电丝通道内电子的密度很高, 高的电子密度导致氙亚稳态通过快速碰撞激发到更高的能级, 这可以从氙的辐射看出来. 此外, 他们还将脉冲放电更易于产生均匀等离子体归结于电压的快速上升沿. 电压的快速上升导致电子被同时加热直至整个体积击穿. 而采用交流时, 由于电压上升的较慢, 空间电荷分布的扰动会导致丝状放电.

Walsh 等人^[35]对脉冲和正弦驱动的冷等离子体射流进行了对比研究, 结果表明在消耗同样的电能的情况下, 脉冲驱动所产生的氧原子是正弦驱动的 12 倍(脉冲驱动的上升沿为 30 μs , 下降沿为 100 ns). 不过值得注意的是, 他们所采用的脉冲电压的上升沿与交流电压的上升沿相比没有显著的缩短, 这也就导致此时主放电的电流与交流比较没有显著的增大.

Martens 等人^[36]研究了脉冲电压的形状对大气压介电阻挡放电的影响. 他们对 10 kHz 交流(a)和 10 kHz 脉冲直流(b)的电子产生率和消耗功率等进行了对比研究. 模拟的工作气体为 He 混合有 100 ppm 的 N_2 . 模拟所得的电流密度和电压波形如图 2 所示. 对于脉冲直流, 脉冲的上升沿为 50 ns. 结果表明脉冲直流的电子产生效率是交流的大约 4 倍. 这是由于脉冲直流的电压上升沿约为 50 ns, 峰值电压为 4 kV 时, 其电压增长率为 $8 \times 10^{10} \text{ V s}^{-1}$. 而对于 10 kHz 交流, 它的电压增长率为 $2.5 \times 10^8 \text{ V s}^{-1}$. 两者相差 300 多倍. 在大气压下, 当电压的增长率足够大时, 就会导致放电间隙的过电压, 高的过电压引起放电间隙

高的约化电场, 高的约化电场进一步导致相对较高的电子有效温度. 而电子温度越高, 电离效率也就越高. 这就最终导致高的电子产生效率.

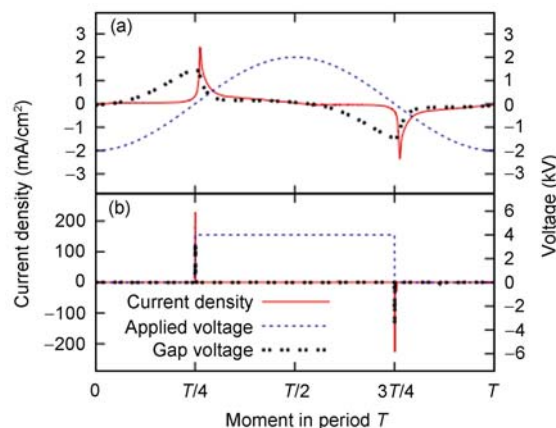


图 2 电流密度, 间隙电压和外加电压曲线

频率均为 10 kHz. (a) 交流; (b) 脉冲直流^[36]

Figure 2 Temporal behavior of current density, gap voltage and applied voltage for (a) ac and (b) pulsed dc discharge. Repetition frequency: 10 kHz [36].

Williamson 等人^[37]对脉冲直流和正弦交流驱动大气压空气 DBD 表面放电进行了对比研究. 结果表明短脉冲所产生的等离子体更加均匀, 不像交流驱动在阴极出现许多明显的亮斑. 此外, 当采用交流驱动时, 臭氧的数密度没有随输入功率的增加而出现显著的增大, 但当采用脉冲时则明显增加. 对于脉冲输入功率为 20 W 时, 其所产生的臭氧密度为 $8.5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$, 它是相同功率下交流驱动的四倍. Williamson 等人的研究还表明, 当采用高压短脉冲驱动时, 脉冲电流峰值远远大于交流驱动时丝状放电的电流. 此外, 当采用交流驱动时, 间隙的击穿电压与静态击穿电压相近. 但采用脉冲驱动时, 由于其快速的上升沿, 此时的击穿电压可以明显地高于静态击穿电压, 因此击穿时的约化电场 E/n 比交流时更高. 我们所熟悉的等离子体化学过程, 诸如原子/分子的激发、分解、电离等过程会随着 E/n 的增大而迅速地加强, 因此使得等离子体的化学活性更高.

Ayan 等人^[38]研究了脉冲电介质阻挡空气放电. 其放电的电极结构如图 3 所示. 当采用纳秒脉冲时, 放电产生均匀的等离子体, 但当采用几个 μs 的脉冲 (上升沿也在几个微秒的量级), 则放电是非均匀的. 从图中可以看出, 此时的放电间隙显然是非等间距

的,但仍能产生均匀的等离子体.也就是说它不需要放电间距相等,表面平滑,这对于实际应用是非常重要的.

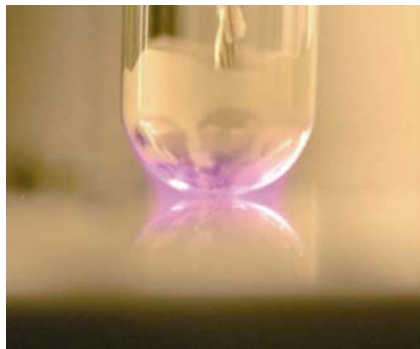


图 3 纳秒脉冲驱动空气放电等离子体

频率 100~250 Hz, 电压为 1 kV/mm, 脉宽约为 20 ns. 上电极由玻璃覆盖, 下电极金属电极^[38]

Figure 3 Photograph of nanosecond pulsed dc air discharge plasma. Repetition frequency: 100~250 Hz, applied voltage: 1 kV/mm, pulse width: 20 ns. Top electrode is covered by glass and bottom electrode is metal [38].

Zhang 等人^[39]采用纳秒脉冲放电来改善聚乙烯对苯二酸盐(PET)薄膜的表面亲水性. 当他们采用 2 mm 厚的玻璃作为电介质, 空气间隙为 6 mm, 频率为 250 Hz 时, 放电为丝状的. 但当采用 3 mm 厚的玻璃作为电介质, 空气间隙减小为 2 mm 时, 放电变为均匀的. 实验结果表明均匀放电模式的处理效果更好, 处理后其接触角更小, 具有更多的含氧功能团. 此外, 与传统的 DBD 处理相比, 纳秒脉冲放电在获得相同处理效果时所需的功率密度更低.

Walsh 等人^[40]采用脉宽为 65 ns, 重复频率为 5 kHz 的脉冲电源驱动电介质空气阻挡放电, 产生均匀等离子体. 根据此时的电子漂移速度(592 cm²/Vs), 他们估算得电子密度约为 10¹³ cm⁻³. 他们认为这是由于采用快速上升沿的短脉冲, 使施加电压大于最小的击穿电压, 导致电子能量分布函数向高能端偏移, 从而产生更多的高能电子, 提高了电离率. 此外, 短脉冲限制了等离子体不稳定性的发展. 因而能够产生均匀等离子体. Walsh 等人^[41]还对 4 kHz 的交流和脉宽为 500 ns 的脉冲直流驱动 Ar 放电等离子体进行了对比. 脉冲电压为 11.4 kV, 交流的峰峰值电压为 20 kV, 结果表明 Ar 的 696.5, 763.5 和 811.5 nm 线的辐射强度, 采用脉冲驱动和采用正弦驱动所得的比

值为 1.85, 1.74 和 3.33. 此外 O 原子的 777 nm 线, 脉冲驱动对交流驱动的比值为 3.3. 这也表明脉冲比交流效率高. 此外, 根据峰值电流和电子迁移率, 脉冲放电的最高电子密度达 2.6×10¹³ cm⁻³. 而交流为 6.8×10¹² cm⁻³. 脉冲高 3.9 倍.

Xiong 等人^[42]对脉冲和交流驱动 DBD 等离子体射流特性进行了对比研究. 他们发现: (1) 脉冲驱动的等离子体射流长度是交流驱动的两倍; (2) 脉冲驱动等离子体的放电电流比交流驱动约大两个量级, 这也意味着脉冲驱动产生更多的电子, 等离子体的活性相应地会更高; (3) 光谱测量结果表明脉冲驱动时各种活性粒子的辐射强度明显高于交流驱动时的辐射强度; (4) 当采用脉冲驱动时, 等离子体射流的气体温度都为常温. 但交流驱动时等离子体射流的气体温度升高了约 25℃, 这也表明脉冲驱动产生等离子体射流更适合于等离子体医学应用; (5) 他们的杀菌实验也表明脉冲驱动的等离子体射流的杀菌效果明显优于交流驱动的等离子体射流的杀菌效果.

3.2 脉冲上升沿和下降沿

通常认为, 与交流驱动相比, 脉冲驱动之所以具有上述的各种优点, 主要是由于它的快速上升沿决定的. 对于通常交流驱动产生的非平衡等离子体, 电子的等效温度约在 1~3 eV 范围. 只有很少数电子的能量在 10~15 eV. 只有这样的高能电子才能够有效地电离. 而电子能量在 1~3 eV 的电子会很快地将其能量转化为分子的振动态. 通过采用快速上升沿的短脉冲, 他使施加电压大于最小的击穿电压, 也即此时具有较高的过电压. 这就有可能使电子能量分布函数向高能端偏移, 从而产生更多的高能电子, 这些能量相对较高的电子就能够有效地分解和电离气体分子, 而不至于把能量消耗在激发分子的振动态上.

Iza 等人^[43]对脉冲上升沿与电子平均能量进行了数值模拟研究. 模拟结果如图 4 所示. 从图中可以看出, 最大电子能量是产生在施加脉冲的初始阶段, 约在 10 ns 左右. 更有趣的是, 他们发现脉冲上升沿为 40 ns 时, 所得到的电子平均动能最大. 至于为什么 1 ns 上升沿的超快脉冲的电子平均动能并不是最大的, 他们认为这是由于在施加电压一旦超过零界电压(对于 1 mm 的 He 气体, 它约 2 kV), 他就迅速形成准中性等离子体. 当等离子体一旦形成, 其中的电子就感受不到外加电场, 尽管在电离波前沿的头部有高能

电子, 但对所有电子的平均电子能量却比较低. 这也意味着可以通过调节脉冲的上升沿来获得所期望的电子平均能量的等离子体.

Panousis 等人^[44]对具有快速上升沿和下降沿(上升沿和下降沿在 30 ns 到几百个 ns 范围)的单级脉冲(脉冲周期 300~500 μ s)和双极脉冲(上升沿和下降沿都在几个微秒量级)直流驱动大气压电介质阻挡放电进行了实验研究. 对于单级脉冲模式, 每个电压脉冲测到两次放电, 而对于双极脉冲每个电压脉冲只测到一次放电. 他们认为这是由于双极脉冲的下降沿时间太长造成的. 因此得出的结论是快速的下降沿是产生二次放电的关键因素.

但是 Chiper 等人^[45]对在 He 中混有少量其它气体时采用脉冲电介质放电的二次放电现象进行了研究. 他们的结果表明, 在较慢的电压下降沿(下降时间约 5~15 μ s)也出现了二次放电, 因此他们认为为了获得二次放电, 快速的电压下降沿不是必须的条件. 不过 Chiper 等人^[46]研究脉冲电介质阻挡放电对聚合物表面改性的效果时发现, 具有快速脉冲电压下降沿的等离子体处理效果(接触角的减小)优于慢下降沿的等离子体. 且所需的能量密度也低.

Leiweke 等人^[47]对短和长脉冲上升沿放电进行了比较. 他们发现采用上升沿相对长的 150 ns 的单级脉冲放电时, E/n 比短上升沿脉冲(10 ns)略小. 但是由于短上升沿脉冲注入的能量高一些, 从能量效率来说, Ar 亚稳态的产生效率对于这两种情况是非常接近的. 这也就是说他们认为上升沿为 150 ns 的脉冲和上升沿为 10 ns 的脉冲所产生的等离子体没有明显区别.

由此可以看出, 对于脉冲上升沿和下降沿所起的作用, 人们的结论还存在分歧. 但是只要仔细比较 Panousis 和 Chiper 的结果就会发现, 由于 Panousis 所采用的脉冲下降沿快, 因此其在下降沿所出现的二次放电电流的峰值与主放电电流峰值很接近, 都约为 3 A. 但 Chiper 在脉冲下降沿长达 5 μ s 左右, 所观测到的下降沿二次放电电流峰值仅为主放电电流的五分之一左右. 也就是说此时的二次放电已经不是非常明显. 因此, 我们仍认为脉冲下降沿对二次放电仍是非常重要的.

3.3 脉冲重复频率

Kirpichnikov 等人^[48]采用 12 ns 脉冲对空气中不

同重复频率的放电均匀性进行了研究. 其脉冲上升沿为 1.5 ns, 电压最大幅值为 7 kV, 放电间隙为 30 mm, 气体压力为 10 Torr, 当频率从 3 Hz 逐渐增加到 30 kHz 时, 放电逐渐变为均匀的(3 kHz 时基本均匀). 他们认为这是由于当频率很低时, 脉冲间隔很长, 等离子体快速复合, 初始电子密度降到非常低以至于不能够产生均匀放电. 应该强调的是, 他们所使用的的气体压力为 10 Torr, 当气体压力为一个标准大气压时, 等离子体中电子的复合会更快. 此时在什么样的频率下更有利于产生均匀放电等离子体仍有待于进一步研究.

3.4 脉冲宽度

Lu 等人^[49]对脉冲宽度对大气压脉冲驱动 DBD 的影响进行了研究. 他们采用的气体是 Ar. 放电所测得的电流电压波形如图 5 所示. 图中的 V_{on} 和 V_{off} 分别为有放电(间隙充满 Ar 气)和没有放电(间隙为空气)时的外加电压. I_{on} 和 I_{off} 分别为有放电和没有放电时的总电流(I_{off} 仅为位移电流). I_{dis} 为减去位移电流时的放电电流. 其中(a)~(c)给出的是单个完整脉冲, 而(d)~(f)给出的是前一个脉冲的下降沿和后一个脉冲的上升沿. 从图中可以看出, 当脉冲宽度从 200 ns 增加到接近一个毫秒时都能产生均匀的放电. 但是当脉冲宽度小于 600 ns 或者相邻两个脉冲之间的间隔小于 600 ns 时, 脉冲宽度对放电电流产生显著的影响. 因此对于有些应用希望放电电流的持续时间长些, 以便产生更多的自由基, 对于 1 kHz 的脉冲, 放电脉冲宽度应该大于 600 ns 但小于 999.4 μ s. 当脉冲重复频率不同时, 很显然, 这个脉冲宽度也应该有所不同. 但到底应该是多少, 也是一个值得研究的课题. 这里再强调一点, 此处讨论的是脉冲 DBD. 对于脉冲电压直接驱动, 很显然, 即使是 200 ns 的脉冲也可能导致放电不稳定性, 最终引起电弧放电的发生, 更别提长脉冲了.

4 脉冲电压直接驱动

大气压辉光放电(APGDs)去除了昂贵且极其麻烦的真空系统使得它的应用范围大大拓展. 但通常大气压辉光放电都采用介质阻挡放电的形式, 即在一端或两端电极表面覆盖一电介质. 从应用的角度来说, 有时更希望在不用绝缘电介质的情况下来产

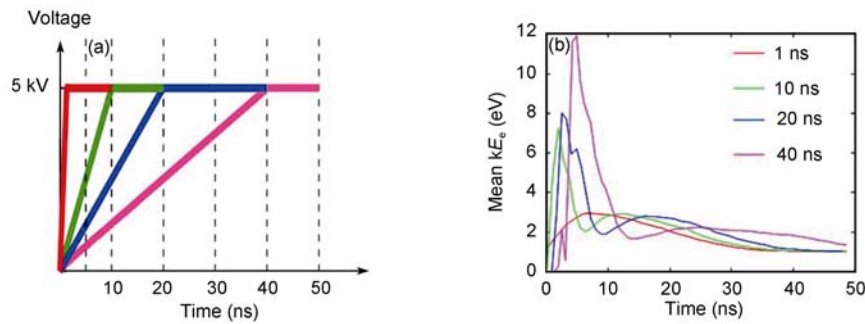


图 4 对于不同上升沿的纳秒脉冲的(a)电压和(b)平均电子能量随时间的演化过程^[43]

Figure 4 Temporal behavior of (a) applied voltage and (b) mean electron energy for various rising time of nanosecond pulses [43].

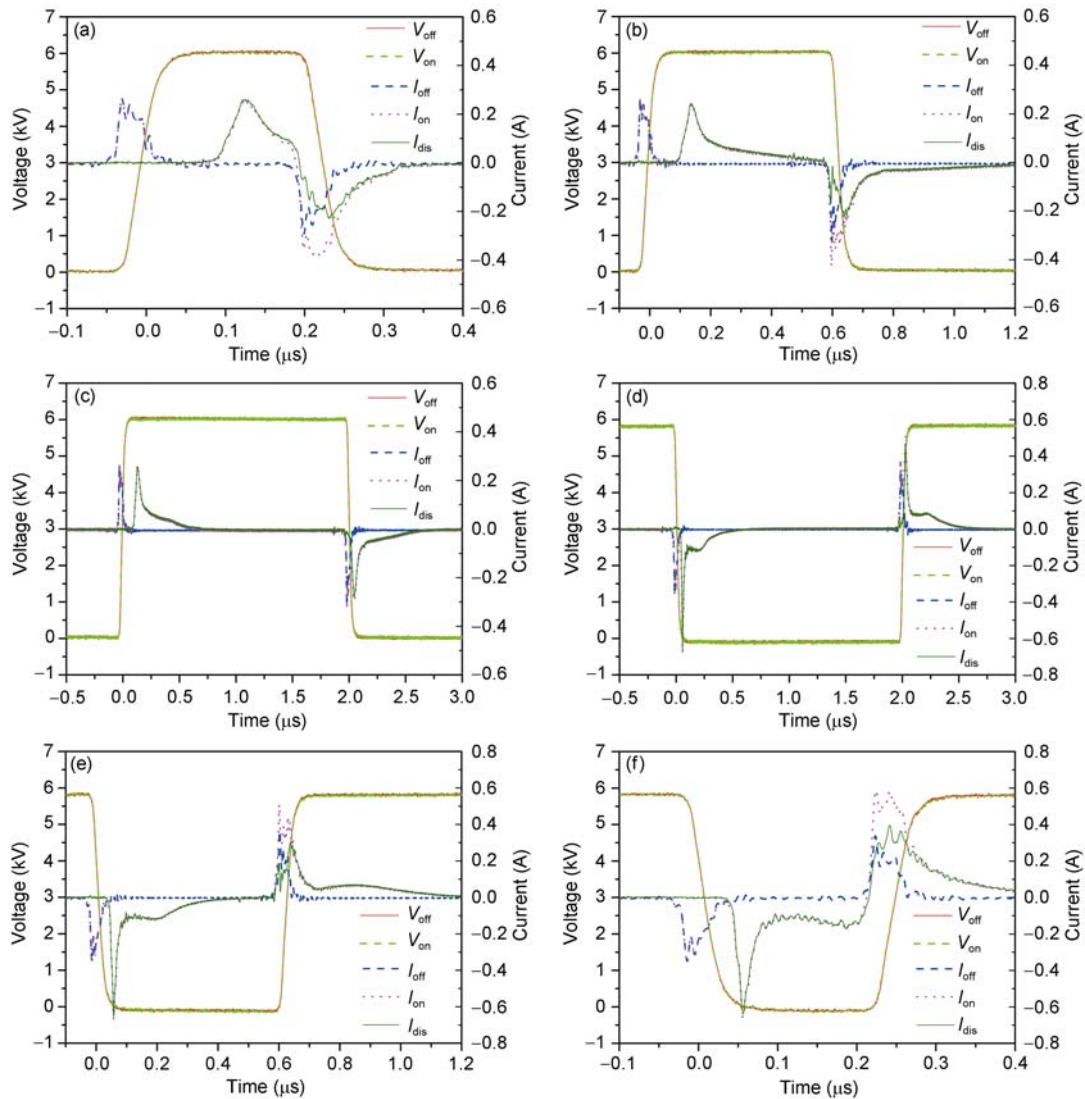


图 5 对于不同脉冲宽度时的电流电压特性

脉冲重复频率为 1 kHz; (a) 200 ns, (b) 600 ns, (c) 2 μ s, (d) 998 μ s, (e) 999.4 μ s, (f) 999.8 μ s. 其中(a)~(c)给出的是单个完整脉冲, 而(d)~(f)给出的是前一个脉冲的下降沿和后一个脉冲的上升沿^[49]

Figure 5 Current-voltage characteristics for different pulse width. Repetition frequency: 1 kHz. (a) 200 ns, (b) 600 ns, (c) 2 μ s, (d) 998 μ s, (e) 999.4 μ s, (f) 999.8 μ s. (a)~(c) are a complete single pulse. (d)~(f) are the falling edge of previous pulse and rising edge of the following pulse [49].

生 APGDs.

当去除电介质时, 为了避免辉光向电弧放电的转化, 一种方法是采用短脉冲放电, 使脉冲电压的持续时间小于辉光向电弧放电转化时间(在大气压下通常认为它在 10 ns 左右), 通过这样的脉冲放电可以产生大气压非平衡等离子体, 这种等离子体的电子温度较高, 但气体温度却保持在较低的水平. 它使电子能量分别函数向高能端偏移, 从而导致更大的电离率, 最终导致电子密度的上升. Stark 等人^[50]研究了大气压空气等离子体脉冲放电, 他们采用的是 10 ns 脉冲高压, 当脉冲电场从 10 kV/cm 增加到 40 kV/cm 时, 他们根据光辐射测量结果得知等离子体的衰减时间从几十个纳秒增加到几个微秒量级. 根据他们的实验和模拟结果, 为了获得同样密度的等离子体, 采用 10 ns 脉冲放电所需的功率仅占直流放电的百分之几. 他们认为, 如果把脉冲宽度进一步减小到 3.5 ns, 为了产生电子密度为 10^{13} cm^{-3} 的等离子体所需的功率可以再次减少一半, 使从直流放电所需的 5 kW/cm^{-3} 减少到 16 W/cm^{-3} . 降低幅度达 300 倍.

Pai 等人^[51]研究了脉冲频率对空气放电等离子体的影响^[51]. 他们采用的脉冲宽度为 10 ns. 通过 $\text{N}_2(\text{C-B})$ 的辐射来判断由辉光-火花放电的转化, 放电间隙为 5 mm, 气体的初始温度为 1000 K. 他们的实验结果如图 6 所示, 频率较高时, 放电模式的转化就在电压较低时发生, 当频率较低时, 只有当电压较高时才出现辉光-火花放电的转化, 当频率为 1 kHz 时, 没有出现突变过程.

他们还研究了气体初始温度与放电模式的关系, 结果如图 7 所示, 当气体温度为 300 K~(700±50) K 时, 只有电晕放电和火花放电两种模式. 辉光放电只出现在气体温度高于(700±50) K 时, 因此他们认为高温有利于产生辉光放电.

Pai 等人^[51]还对电极间隙与放电模式之间的关系进行了研究, 结果如图 8 所示. 从图中可以看出, 当间隙小于 3 mm 时, 只有火花放电. 此外, 当间隙大于 9 mm 时, 也不会出现辉光放电模式. 从该图还可以看出, 辉光放电在很小的一个线性区间出现, 它的斜率约为 10 kV/cm. 这个值相当于在一个大气压下气体温度为 1000 K 时空气的击穿场强. 对于辉光放电, 正柱的平均电场 E_{pc} 等于 $(V_p - V_{cf})/d$, 其中 V_{cf} 为阴极电压降. 正柱的长度近似等于间隙宽度(因为在大气压空气中, 阳极和阴极降区都在微米尺度范围).

从该图可得 $V_{cf}=2 \text{ kV}$.

总之, 他们的实验结果表明, 电晕放电和火花放电很容易获得, 而辉光放电只在非常有限的参数范围下才会出现. 在他们的实验条件下, 只有当气体温度在 750~100 K 范围内时才能产生纳秒辉光放电等离子体. 当放电间隙固定时, 辉光放电只在温度高于最小气体温度时出现. 当气体温度固定时, 辉光放电只在一定的间隙范围内产生. 其中最大的间隙距离

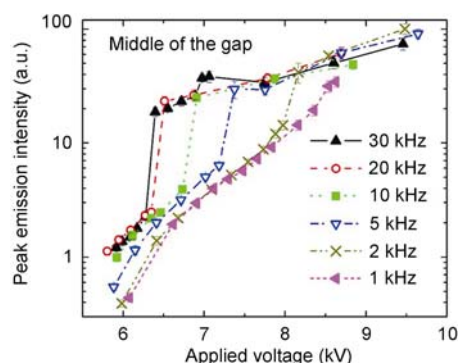


图 6 当脉冲重复频率为 1~30 kHz, 脉宽为 10 ns, 空气初始温度为 1000 K, 间隙为 5 mm 时, 位于间隙中间点处的 $\text{N}_2(\text{C-B})(0,0)$ 辐射强度与电极上施加电压的关系^[51]

Figure 6 The relationship between the $\text{N}_2(\text{C-B})(0,0)$ emission intensity from the gap center and applied voltage for repetition frequency 1~30 kHz, pulse width 10 ns, air temperature 1000 K and gap distance 5 mm [51].

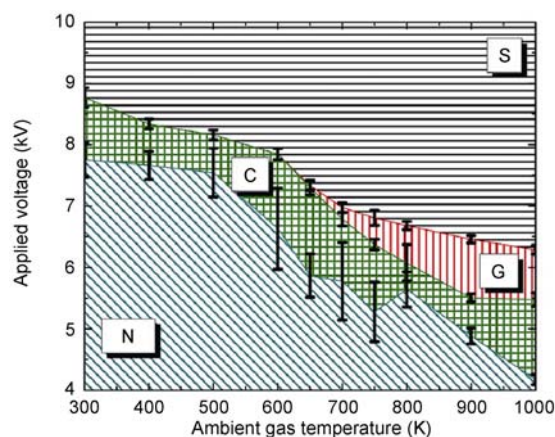


图 7 当脉冲重复频率为 30 kHz, 脉宽为 10 ns, 间隙为 5 mm 时, 放电模式与施加电压以及空气初始温度的关系

S: 火花放电, G: 辉光放电, C: 电晕放电, N: 无放电^[51]

Figure 7 The relationship among discharge mode, applied voltage, and gas temperature. Repetition frequency: 30 kHz, pulse width 10 ns, gap distance 5 mm. S: spark, G: glow, C: corona, and N: no discharge [51].

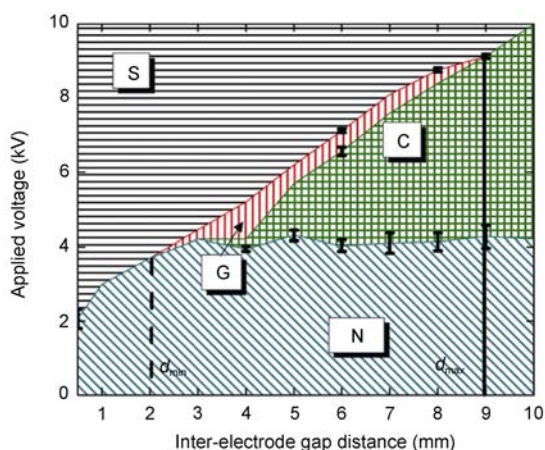


图 8 当脉冲重复频率为 30 kHz, 脉宽为 10 ns, 气体初始温度为 1000 K 时, 放电模式与施加电压以及放电间隙的关系

S: 火花放电, G: 辉光放电, C: 电晕放电, N: 无放电^[51]

Figure 8 The relationship among discharge mode, applied voltage, and gap distance. Repetition frequency: 30 kHz, pulse width 10 ns, gas temperature 1000 K. S: spark, G: glow, C: corona, and N: no discharge [51].

由初始流注在施加脉冲期间所能通过的间隙距离决定。此外他们还发现, 辉光放电单脉冲所注入的能量在 1~10 μJ 之间, 而火花放电在 100~1000 μJ 之间。更有意思的是, 他们发现, 无论气体温度多少, 在辉光即将向火花放电转化时辉光放电注入的能量都接近 10 μJ 。

Tardiveau 等人^[52]研究了在高气压气体中的纳秒放电过程。他们对气体压力从一标准大气压到 10 bars 压力的空气放电过程进行了研究。放电采用的是 45 kV 正高压, 高压脉宽约 10 ns, 上升沿约 5 ns。采用的是针-板电极结构。针尖半径约 100 μm , 放电间隙 15 mm。在一个标准大气压下, 当电压为 45 kV 时, 总是均匀的弥散放电。但当气体压力增加到大约 1.5 bars 时, 放电变为经典的流注放电。进一步增大压力导致放电通道变细。当压力增大到 4 bars 以上时, 放电丝不再能够到达对面的平板电极。

Walsh 等人^[53]则采用纳秒脉冲驱动取代传统的正弦交流驱动对平板电极结构, 电极间隙为 0.5~1.5 cm, 工作气体为 He/O₂(He: 5 SLM, O₂: 5 SCCM) 的混合气体进行了放电研究。所采用的电压脉冲的上升沿为 100 ns, 下降沿为 200 ns。脉宽为 360 ns。占空比为 0.05%。频率 1 kHz。实验所测得的电流脉宽为 120 ns, 峰值电流达 4.8 A (0.81 A/cm²)。其放电电流电压

波形如图 9 所示。当采用 8 kHz 的正弦交流时, 峰值电流约为 15 mA (2.6 mA/cm²)。因此脉冲驱动远大于传统交流驱动的 DBD 电流。此外时间平均的注入能量密度也不相同, 对于 DBD, 它为 328 mW/cm³, 而采用脉冲无电介质的 APGD, 它为 38 mW/cm³。这主要是由于脉冲模式的占空比非常小造成的。此外, 当电压为 2.5 kV, 采用脉冲放电所测得的原子氧的 777 nm 辐射强度是交流 DBD 的 10 倍左右。

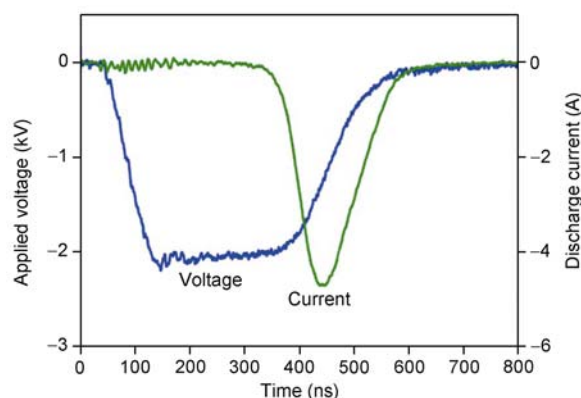


图 9 直接驱动放电时的典型电流电压波形

频率为 1 kHz^[53]

Figure 9 Typical current-voltage waveform for direct driven atmospheric pressure plasma. Repetition frequency: 1 kHz [53].

由此可以看出, 对于脉冲电压直接驱动, 迄今为止, 人们所采用的最短脉冲为 10 ns, 在这样的脉冲情况下, 仍会出现辉光向电弧放电的转化。当然, 当工作气体为惰性气体为主时, 大气压辉光放电的条件变得不那么苛刻。即使是几百个纳秒的脉冲也能产生均匀的辉光放电。因此, 对于大气压空气脉冲电压直接驱动, 用多短的脉冲、及怎样的上升沿和下降沿特性才能产生稳定的辉光放电等离子体是一个具有重大理论和应用价值的课题。

5 直流驱动自脉冲

当针电极上施加一负直流高压, 如果它所处的气体是电负气体, 如空气等, 则放电电流呈现出脉冲的形式。当电压逐渐增大到刚刚出现这种放电模式时, 脉冲电流是随机出现的。如果继续增大电压, 则脉冲电流变得越来越规则。Trichel, Loeb, Akishev, Soria-Hoyo 等对这种负脉冲电晕放电做了大量的研

究^[54-58]. 他们发现只有当施加的电压和电极间隙在一定的范围内时才会出现这种自脉冲现象. 否则要么出现稳恒的直流放电, 要么出现电弧放电.

当针电极上施加正直流高压时, Machala 等人在这方面做了大量的工作, 他们使用空气作为工作气体, 观测到流注-电晕(SC)放电, 辉光放电(GD)和瞬态火花(TS)这三种放电模式^[59,60]. 且当电极间隙减小时总会出现瞬态火花放电模式. SC 和 TS 放电电流也呈现脉冲的形式, 但是脉冲总是不规则的.

Wu 等人^[61]通过在放电针电极和正直流高压电源之间串联一大电阻(>100 M Ω)来进行放电. 所用的工作气体为周围空气. 他们发现此时只出现 SC 放电模式, 避免了 TS 放电模式的出现. 图 10 给出了该装置的 IV 特性, 从图中可以看出电流脉冲的重复性非常好. 此外, 图 11 为该等离子体与人体直接接触的照片, 此时人体没有任何热感或电击感. 因此该装置在等离子体医学方面的应用具有独特的优势.

6 脉冲电源技术

采用脉冲放电方式激励等离子体, 脉冲功率电源是核心技术之一^[62-72]. 目前脉冲功率源主要有电容储能和电感储能两种方式. 根据储能的方式的不同, 相应选择的开关也有所不同. 开关是决定脉冲电源输出电压、频率、脉宽等参数的重要器件. 目前最为成熟的开关有气体火花开关, 相对通流能力也较大, 但缺点是重复频率不高、电压调节困难, 选择性较小, 伪火花开关也是国外研制脉冲电源较为常用的一种开关器件^[73], 并且在等离子体射流中获得较好的应用. 目前在脉冲电源领域, 最为成熟的是采用半导体开关, 如 IGBT, MOSFET 等器件的串并联形成的开关电源, 目前国外已有相关市场化的产品^[74,75], 但必须指出的是由于 IGBT 等常用半导体器件单管的耐压基本在 1 kV 左右, 要达到 10 kV 以上的输出电压需要器件的串并联, 因此目前较为成熟的半导体

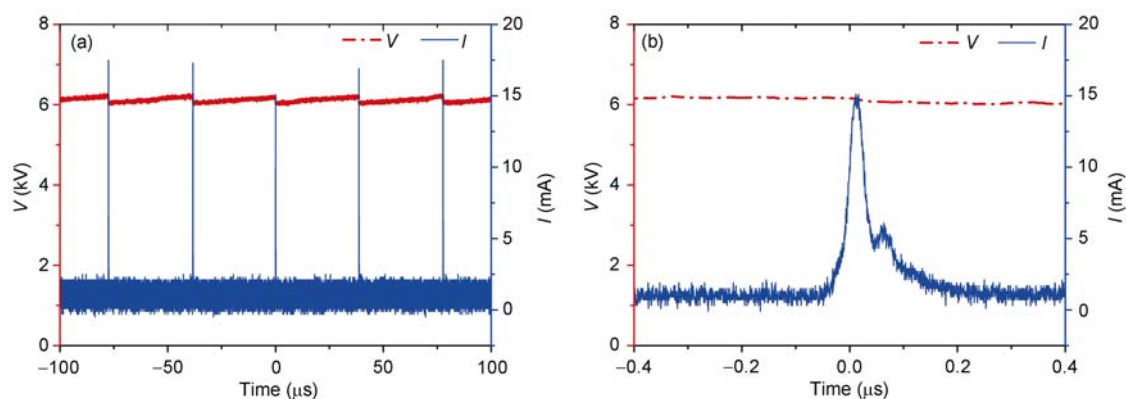


图 10 (a) 典型的 I - V 特征曲线; (b) 单个脉冲的 I - V 特性^[61]

Figure 10 (a) Typical I - V waveform and (b) I - V waveform of a single discharge pulse [61].

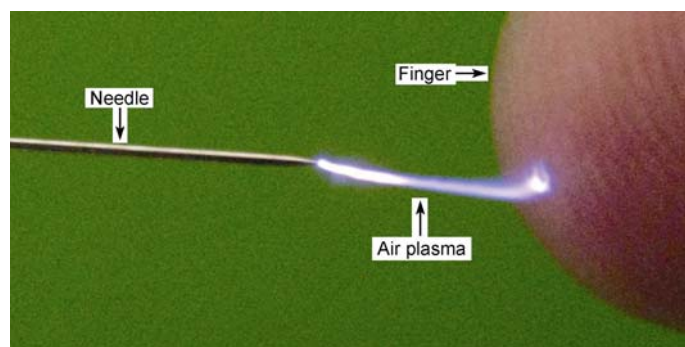


图 11 该装置放电产生等离子体于人的手指接触的照片^[61]

Figure 11 Photograph of the air plasma touched by a human finger [61].

器件电源输出电压一般在 10 kV 以下. 另一种重要的开关是磁开关, 由于无需复位的磁芯技术的发展, 磁开关形式的脉冲电源重新获得了大量研究. 根据单级和多级磁压缩电源, 可以输出不同脉冲和电压的高压, 但输出频率一般在 2 kHz 以下, 由于磁开关电源是负载决定输出, 因此负载的形式等都会影响脉冲电压输出, 所以在应用中, 一般会将放电回路并联一定阻值的纯电阻负载. 目前电工所研制了上升沿 40 ns, 半高宽 70 ns 的 30 kV 脉冲磁压缩电源, 和上升沿 25 ns, 半高宽 40 ns 的 50 kV 脉冲磁压缩电源, 重复频率都能达到 1 kHz 以上^[66].

7 总结与展望

本文对国内外脉冲放电大气压等离子体的相关研究做了一个综述. 由此可以看出, 在脉冲放电相关的基础物理问题的研究方面, 人们所做的工作还非常有限. 在放电机制和放电模式方面人们的认识还不是非常清楚. 在放电等离子体参数的测量, 诸如各种活性自由基、亚稳态、以及带电粒子的密度测量方面的研究还非常少. 这些都有待于今后的进一步研究.

关于脉冲电压驱动 DBD, 人们在它与传统交流驱动 DBD 的对比方面做了相对多的一些工作. 如这两种驱动模式在 VUV、氧原子、及臭氧的产生效率方面的研究结果表明脉冲驱动明显好于交流驱动. 此外脉冲驱动的峰值电流密度和电子密度比交流驱动高几个量级; 脉冲驱动的电子产生效率也更高, 各种活性粒子的辐射强度也更强; 脉冲驱动在对介质表面处理时能达到更好的处理效果和更高的效率; 脉冲驱动还更易产生均匀的大面积等离子体; 脉冲驱动所产生的等离子体射流的长度更长, 非平衡性更高(气体温度保持在常温), 灭菌效果也更好. 至于为什么脉冲驱动具有上述这些优点, 通常人们认为, 当采用交流驱动时, 间隙的击穿电压与静态击穿电压相近. 当采用脉冲驱动时, 由于其快速的上升沿, 此时的击穿电压可以明显地高于静态击穿电压, 因此击穿时的约化电场比交流时更高. 而原子/分子的激发、分解、电离等过程会随着约化电场的增大而迅

速地加强, 因此使得等离子体的化学活性更高. 但对于各种工作气体, 脉冲上升沿的时间、击穿时的约化电场强度、及等离子体的化学活性这三者之间的关系仍缺乏深入的认识, 这是一个具有非常重要理论和应用价值的课题.

在脉冲参数与放电等离子体特性研究方面, 人们所做的工作也非常有限. 如 Iza 的模拟结果表明脉冲上升沿小于 40 ns 时, 所得到的平均电子动能会随着脉冲上升沿的缩短而减小. 对于脉冲上升沿长于 40 ns 时又会是怎样的结果呢? 他没有对此进行模拟分析. 此外, 该模拟结果也有待于进一步实验的验证. Leiweke 等人^[47]则通过实验比较了上升沿为 10 ns 和上升沿为 150 ns 的脉冲放电, 它们的结果则表明这两种情况下所产生的 Ar 亚稳态效率很接近, 没有明显区别. 因此脉冲上升沿应该是多少最有利于产生高活性的非平衡等离子体仍有待于进一步研究. 至于脉冲重复频率和脉冲宽度, 目前国际上只有一些零星的工作, 也有待于进一步的深入研究.

对于脉冲电压直接驱动放电产生等离子体, 目前国际上主要采用的是脉宽为 10 ns 的脉冲电源. 实验结果表明, 即使采用这么短的脉冲电压, 放电仍会向电弧放电转化. 此外, 实验结果还表明, 能否在大气压空气中产生辉光放电, 还与气体的温度、脉冲的重复频率、以及电极间隙等有关. 因此为了在大气压空气中产生稳定的辉光放电, 是否应该采用更短的脉冲电压驱动, 这仍是一个值得研究的课题.

在直流自脉冲放电产生等离子体方面, Wu 等人^[61]通过在放电针电极和正直流高压电源之间串联一大电阻在空气中放电产生等离子体. 在他们所有测试过的不同间距、不同的电压幅值都只出现 SC 放电模式, 完全避免了 TS 放电模式的出现. 这对于许多应用来说是至关重要的. 但是对这种放电的物理机制现在还不是很清楚, 需要进一步的理论和实验研究.

在脉冲电源方面, 总体而言, 比起高频高压等激励模式, 脉冲功率电源技术还远不成熟. 小型化、重频化、长寿命和高性价比等是脉冲电源技术发展方向, 但储能和开关技术是制约民用脉冲功率源发展的瓶颈, 开关固态化、电容器储能和功率高密度化都是需要研究的问题.

参考文献

- 1 Laroussi M. Low temperature plasma for medicine? IEEE Trans Plasma Sci, 2009, 37(6): 714–725
- 2 Fridman G, Friedman G, Gutsol A, et al. Applied plasma medicine. Plasma Process Polym, 2008, 5(6): 503–533
- 3 Stoffels E, Kieft I E, Sladek R E J, et al. Plasma needle for in vivo medical treatment: Recent developments and perspectives. Plasma Sources Sci Technol, 2006, 15(4): S169–S180
- 4 Kim G C, Kim G J, Park S R, et al. Air plasma coupled with antibody-conjugated nanoparticles: A new weapon against cancer. J Phys D-Appl Phys, 2009, 42(3): 032005
- 5 Lu X, Ye T, Cao Y, et al. The roles of the various plasma agents in the inactivation of bacteria. J Appl Phys, 2008, 104(5): 053309
- 6 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. Plasma Sources Sci Technol, 2006, 15: 603–608
- 7 Shi X M, Yuan Y K, Sun Y Z, et al. Experimental research of inactivation effect of low-temperature plasma on bacteria. Plasma Sci Technol, 2006, 8: 569–572
- 8 Jin Y, Ren C S, Xiu Z L, et al. Comparison of yeast inactivation treated in He, Air and N₂ DBD plasma. Plasma Sci Technol, 2006, 8: 720–723
- 9 Li G, Li H, Wang L, et al. Genetic effects of radio-frequency, atmospheric-pressure glow discharges with helium. Appl Phys Lett, 2008, 92: 221504
- 10 Yan X, Zou F, Lu X, et al. Effect of the atmospheric pressure nonequilibrium plasmas on the conformational changes of plasmid DNA. Appl Phys Lett, 2009, 95: 083702
- 11 Ma Y, Zhang G J, Shi X M, et al. Bacteria inactivation mechanisms by dielectric barrier discharge (in Chinese). High Voltage Eng, 2008, 34: 363–367 [马跃, 张冠军, 石兴民, 等. 介质阻挡放电用于细菌灭活的机理研究. 高电压技术, 2008, 34: 363–367]
- 12 Wang X X. Dielectric barrier discharge and its applications (in Chinese). High Voltage Eng, 2009, 35: 1–11 [王新新. 介质阻挡放电及其应用. 高电压技术, 2009, 35: 1–11]
- 13 Zhang Y T, Wang D Z, Wang Y H. Numerical simulation of filamentary discharge controlled by dielectric barrier at atmospheric pressure (in Chinese). Acta Phys Sin, 2005, 54: 4808–4815 [张远涛, 王德真, 王艳辉. 大气压介质阻挡丝状放电时空演化数值模拟. 物理学报, 2005, 54: 4808–4815]
- 14 Dong L F, Xie W X, Zhao H T, et al. Experimental study on self-organized hexagonal superlattice pattern in dielectric barrier discharge in argon/air (in Chinese). Acta Phys Sin, 2009, 58: 4806–4811 [董丽芳, 谢伟霞, 赵海涛, 等. 氩气/空气介质阻挡放电自组织超六边形斑图实验研究. 物理学报, 2009, 58: 4806–4811]
- 15 Levatter J, Lin S. Necessary conditions for the homogeneous formation of pulsed avalanche discharges at high gas pressure. J Appl Phys, 1980, 51: 210–222
- 16 Massines F, Gherardi N, Fornelli A, et al. Atmospheric pressure plasma deposition of thin films by Townsend dielectric barrier discharge. Surf Coatings Technol, 2005, 200: 1855–1861
- 17 Kogelschatz U. Filamentary, patterned, and diffuse barrier discharges. IEEE Trans Plasma Sci, 2002, 30: 1400–1408
- 18 Wang Q, Sun J, Wang D. Numerical analysis of two homogeneous discharge modes at atmospheric pressure with a self-consistent model. Phys Plasmas, 2009, 16: 043503
- 19 Aleksandrov N, Kindysheva S, Nudnova M, et al. Mechanism of ultra-fast heating in a non-equilibrium weakly ionized air discharge plasma in high electric fields. J Phys D, 2010, 43: 255201
- 20 Babich L P, Stankevich Y. Criterion of a transition from the streamer mechanism of gas discharge to the continuous electron acceleration. Sov Phys-Tech Phys, 1973, 12: 1333–1336
- 21 Alekseev S B, Orlovskii V M, Tarasenko V F. Electron beams formed in a diode filled with air or nitrogen at atmospheric pressure. Tech Phys Lett, 2003, 29: 411–413
- 22 Tarasenko V F, Yakovlenko S I, Orlovskii V M, et al. Production of powerful electron beams in dense gases. JETP Lett, 2003, 77(11): 611–615
- 23 Lu X, Laroussi M. Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses. J Appl Phys, 2006, 100: 063302
- 24 Dawson G A, Winn W P. A model for streamer propagation. Z Phys, 1965, 183: 159–171
- 25 Naidis G V. On photoionization produced by discharge in air. Plasma Sources Sci Technol, 2006, 15: 253–255

- 26 Kulikovskiy A A. The role of photoionization in positive streamer dynamics. *J Phys D*, 2000, 33: 1514–1524
- 27 Pancheshnyi S V, Starikovskaia S M, Starikovskii A Y. Role of photoionization processes in propagation of cathode-directed streamer. *J Phys D*, 2001, 34: 105–115
- 28 Ito T, Kobayashi K, Czarnetzki U, et al. Rapid formation of electric field profiles in repetitively pulsed high-voltage high-pressure nanosecond discharges. *J Phys D*, 2010, 43: 062001
- 29 Pai D, Stancu G, Lacoste D, et al. Nanosecond repetitively pulsed discharges in air at atmospheric pressure—the glow regime. *Plasma Sources Sci Technol*, 2009, 18: 045030
- 30 Lu X, Laroussi M. Temporal and spatial emission behavior of homogeneous dielectric barrier discharge driven by unipolar sub-microsecond square pulses. *J Phys D*, 2006, 39: 1127–1131
- 31 Laroussi M, Lu X, Kolobov V, et al. Power consideration in the pulsed dielectric barrier discharge at atmospheric pressure. *J Appl Phys*, 2004, 96: 3028–3030
- 32 Lu X, Laroussi M. Electron density and temperature measurement of an atmospheric pressure plasma by millimeter wave interferometer. *Appl Phys Lett*, 2008, 92: 051501
- 33 Liu S, Neiger M. Double discharges in unipolar-pulsed dielectric barrier discharge xenon excimer lamps. *J Phys D*, 2003, 36: 1565–1572
- 34 Mildren R, Carman R. Enhanced performance of a dielectric barrier discharge lamp using short-pulsed excitation. *J Phys D*, 2001, 34: L1–L6
- 35 Walsh J, Shi J, Kong M. Contrasting characteristics of pulsed and sinusoidal cold atmospheric plasma jets. *Appl Phys Lett*, 2006, 88: 171501
- 36 Martens T, Bogaerts A, Dijk J. Pulse shape influence on the atmospheric barrier discharge. *Appl Phys Lett*, 2010, 96: 131503
- 37 Williamson J, Trump D, Bletzinger P, et al. Comparison of high-voltage ac and pulsed operation of a surface dielectric barrier discharge. *J Phys D*, 2006, 39: 4400–4406
- 38 Ayan H, Fridman G, Gutsol A, et al. Nanosecond-pulsed uniform dielectric-barrier discharge. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2008, 36: 504–508
- 39 Zhang C, Shao T, Long K, et al. Surface treatment of polyethylene terephthalate films using dbd excited by repetitive unipolar nanosecond pulses in air at atmospheric pressure. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2010, 38: 1517–1526
- 40 Walsh J, Kong M. 10 ns pulsed atmospheric air plasma for uniform treatment of polymeric surfaces. *Appl Phys Lett*, 2007, 91: 251504
- 41 Walsh J, Kong M. Room-temperature atmospheric argon plasma jet sustained with submicrosecond high-voltage pulses. *Appl Phys Lett*, 2007, 91: 221502
- 42 Xiong Q, Lu X, Ostrikov K, et al. Pulsed dc- and sine-wave-excited cold atmospheric plasma plume: A comparative analysis. *Phys Plasmas*, 2010, 17: 043506
- 43 Iza F, Walsh J, Kong M. From submicrosecond- to nanosecond-pulsed atmospheric-pressure plasmas. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2009, 37: 1289–1296
- 44 Panousis E, Merbahi N, Clement F, et al. Analysis of dielectric barrier discharges under unipolar and bipolar pulsed excitation. *IEEE Trans Dielectr Electr Insul*, 2009, 16: 734–741
- 45 Chiper A, Cazan R, Popa G. On the secondary discharge of an atmospheric pressure pulsed DBD in He with impurities. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2008, 36: 2824–2830
- 46 Chiper A, Nastuta A, Rusu G, et al. On surface elementary processes and polymer surface modifications induced by double pulsed dielectric barrier discharge. *Nucl Instruments Methods Phys Res B*, 2009, 267: 313–316
- 47 Leiweke R, Ganguly B. Effects of pulsed-excitation applied voltage rise time on argon metastable production efficiency in a high pressure dielectric barrier discharge. *Appl Phys Lett*, 2007, 90: 241501
- 48 Kirpichnikov A, Starikovskii A. Nanosecond pulsed discharge—always uniform. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2008, 36: 898–899
- 49 Lu X, Xiong Q, Xiong Z, et al. Effect of nano- to millisecond pulse on dielectric barrier discharges. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2009, 37: 647–652
- 50 Stark R, Schoenbach K. Electron heating in atmospheric pressure glow discharges. *J Appl Phys*, 2001, 89: 3568–3572
- 51 Pai D, Lacoste D, Laux C. Transitions between corona, glow and spark regimes of nanosecond repetitively pulsed discharges in air at atmospheric pressure. *J Appl Phys*, 2010, 107: 093303
- 52 Tardiveau P, Moreau N, Jorand F, et al. Nanosecond scale discharge dynamics in high pressure air. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2008, 36: 894–895
- 53 Walsh J, Shi J, Kong M. Submicrosecond pulsed atmospheric glow discharges sustained without dielectric barriers at kilohertz frequencies. *Appl Phys Lett*, 2006, 89: 161505

- 54 Trichel G W. The mechanism of the negative point to plane corona near onset. *Phys Rev*, 1938, 54 : 1078–1084
- 55 Loeb L B, Kip A F, Hudson G G, et al. Pulses in negative point-to-plane corona. *Phys Rev*, 1941, 60: 714–722
- 56 Loeb L B, Meek J M. The mechanism of spark discharge in air at atmospheric pressure. II. *J Appl Phys*, 1940, 11: 459–474
- 57 Akishev Y, Grushin M, Kochetov I, et al. Negative corona, glow and spark discharges in ambient air and transitions between them. *Plasma Sources Sci Technol*, 2005, 14: S18–S25
- 58 Soria-Hoyo C, Pontiga F, Castellanos A. Particle-in-cell simulation of trichel pulses in pure oxygen. *J Phys D*, 2007, 40: 4552–4560
- 59 Machala Z, Jedlovsky I, Martisovits V. DC discharges in atmospheric air and their transitions. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2008, 36: 918–919
- 60 Machala Z, Jedlovsky I, Chladekova L, et al. DC discharges in atmospheric air for bio-decontamination–spectroscopic methods for mechanism identification. *Eur Phys J D*, 2009, 54: 195–204
- 61 Wu S, Lu X, Xiong Z, et al. A touchable pulsed air plasma plume driven by dc power supply. *IEEE Trans Plasma Sci*, DOI: 10.1109/TPS.2010.2082571
- 62 Mankowski J, Kristiansen M. A review of short pulse generator technology. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2000, 28(1): 102–108
- 63 Jiang W H, Yatsui K, Takayama K, et al. Compact solid-state switched pulsed power and its applications. *Proc IEEE*, 2004, 92(7): 1180–1196
- 64 Ayan H, Fridman G, Gutsol A F, et al. Nanosecond-pulsed uniform dielectric-barrier discharge. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2008, 36(2): 504–508
- 65 Zhang S C, Yan P, Wang Y, et al. Development situation and trends of pulsed power sources for civil applications (in Chinese). *High Voltage Eng*, 2009, 35(3): 618–631 [张适昌, 严萍, 王珏, 等. 民用脉冲功率源的进展与展望. *高电压技术*, 2009, 35(3): 618–631]
- 66 Shao T, Zhang D, Yu Y, et al. A compact repetitive unipolar nanosecond-pulse generator for dielectric barrier discharge application. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2010, 38(7): 1651–1655
- 67 Zhang D, Yan P, Sun Y, et al. Characteristics of magnetic core in magnetic pulse compression system. *Acta Phys Pol A*, 2009, 115(6): 1001–1003
- 68 Shao T, Yu Y, Zhang C, et al. Excitation of atmospheric pressure uniform dielectric barrier discharge using repetitive unipolar nanosecond-pulse generator. *IEEE Trans Dielectr Electr Insul*, 2010, 17(6): 1830–1837
- 69 Zhang C, Shao T, Long K, et al. Surface treatment of polyethylene terephthalate films using DBD excited by repetitive unipolar nanosecond-pulses in air at atmospheric pressure. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2010, 38(6): 1517–1526
- 70 Shao T, Zhang C, Long K, et al. Surface modification of polyimide films using unipolar nanosecond-pulse DBD in atmospheric air. *Appl Surf Sci*, 2010, 256(12): 3888–3894
- 71 Shao T, Long K, Zhang C, et al. Electrical characterization of dielectric barrier discharge driven by repetitive nanosecond pulses in atmospheric air. *J Electrostat*, 2009, 67(2-3): 215–221
- 72 Shao T, Long K, Zhang C, et al. Experimental study on repetitive unipolar nanosecond-pulse dielectric barrier discharge in air at atmospheric pressure. *J Phys D-Appl Phys*, 2008, 41: 215203
- 73 Jiang C, Chen M T, Gundersen M A. Polarity-induced asymmetric effects of nanosecond pulsed plasma jets. *J Phys D-Appl Phys*, 2009, 42: 232002
- 74 Chaney A, Sundararajan R. Simple MOSFET-based high-voltage nanosecond pulse circuit. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2004, 32(5): 1919–1924
- 75 Efanov V M, Efanov M V, Kricklenko A V, et al. Nanosecond all-solid-state pulse generators on basis of FID technology for plasma chemistry applications. In: 28th ICPIG. Prague: Czech Republic, 2007. 1515–1517

Review on atmospheric pressure pulsed DC discharge

LU XinPei^{1*}, YAN Pin², REN ChunSheng³ & SHAO Tao²

¹ *Advanced Electromagnetic Engineering and Technology Lab, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China;*

² *Institute of Electrical Engineering, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;*

³ *School of Physics and Optoelectronic Engineering, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China*

Recently, atmospheric pressure pulsed discharge has attracted lots of attentions. Research shows that there are lots of advantages by using pulsed discharge rather than by using traditional AC discharge, such as high VUV, O, and O₃ generation efficiency, high peak current, high electron density and high electron generation efficiency, better treatment effect, easy obtaining homogeneous discharge, extreme non-equilibrium characteristic and high bacteria killing efficiency. However, researchers know only little about the mechanism and mode of the pulsed discharge, and how pulsed parameters (rising and falling time, repetition frequency, pulse width) affecting the discharge. There are mainly due to two reasons. First, it is a difficult task to diagnostics atmospheric pressure discharge plasma. Second, pulsed discharge is a fast behavior, which makes it even more difficult. On the other hand, research on pulsed discharge is also restricted due to lack of pulsed power supply of various parameters. In this paper, recent progresses on pulsed discharge plasma are reviewed and some suggestions on this research topic are also presented.

atmospheric pressure plasma, pulsed discharge, non-equilibrium plasma, dielectric barrier discharge

PACS: 52.80.-s, 52.80.Hc, 52.80.Mg, 52.80.Tn, 52.50.Dg

doi: 10.1360/132010-1226