大气压氩气周期性突起的放电特性及其产生机制研究

许慧敏^{1*}, 张文良¹, 贾鹏英^{2,3}, 陈俊宇^{2,3}, 李雪辰^{2,3}

1. 河北金融学院基础教学部, 保定 071051;

2. 河北大学物理科学与技术学院, 保定 071002;

3. 河北省光电信息材料重点实验室, 保定 071002

*联系人, E-mail: xuhuimin@126.com

收稿日期: 2019-07-09; 接受日期: 2019-09-18; 网络出版日期: 2019-11-07

国家自然科学基金(编号: 11875121, 11575050)、河北省自然科学基金(编号: A2015201092, A2015201199, A2016101042)和河北省研究生创新项目(编号: CXZZBS2019023)资助

摘要 大气压等离子体射流可以在空气环境中产生等离子体羽. 与通常产生的锥状等离子体羽不同, 利用低频偏置正弦电压激励大气压氩气等离子体射流, 等离子体羽呈现周期性突起. 利用电学、光学及光谱学手段对突起状等离子体羽的放电特性及其形成机制进行了研究. 结果表明, 等离子体羽长度随着气体流量增大而增大. 放电的波形表明每一个电压周期存在一次放电, 且它出现在电压的负半周期. 通过高速影像发现, 突起状等离子体羽对应沿着气流传播的负流光. 射流喷口附近存在周期性的强放电, 它为下游提供了空间规律性分布的活性粒子. 该活性粒子能增强流光的传播, 表现为等离子体子弹的直径增大, 因此形成空间周期性的突起. 利用光学发射谱, 测量了电子激发温度的空间分布及平均电子激发温度随着气体流量的变化关系, 并对这种变化趋势进行了定性解释.

关键词 等离子体流, 发射光谱, 活性粒子, 偏置电压

PACS: 52.80.Tn, 52.50.Dg, 52.70.Kz

1 引言

大气压下的低温等离子体射流可以在空气环境中产生等离子体羽, 实现放电区和应用区分离, 且等离子体羽具有丰富的活性粒子^[1,2]. 因此, 等离子体射流在表面改性^[3,4]、水处理^[5,6]、癌症治疗^[7,8]等众多领域具

有广泛的应用潜力.

通常人眼观察到的等离子体羽是连续的一个圆柱(或者说一条亮线)^[9]. 通过高速影像, 连续的等离子体实际上对应着离散发光体(也称为等离子体子弹)的快速运动过程^[10]. 等离子体子弹的传播速度为 $10^3\text{--}10^5\text{ m/s}$ ^[2,9]. 在等离子体子弹的后面, 有一个弱的

引用格式: 许慧敏, 张文良, 贾鹏英, 等. 大气压氩气周期性突起的放电特性及其产生机制研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2019, 49: 125201
Xu H M, Zhang W L, Jia P Y, et al. Characteristics and mechanism of moniliform plasma plume in atmospheric argon jet (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2019, 49: 125201, doi: 10.1360/SSPMA-2019-0249

电离区(发光暗区)连接着等离子体子弹和电极区^[11]. 在电极区, 等离子体通常紧贴壁面, 而在两个电极之间, 等离子体会出现在轴线上^[12]. 等离子体羽在射流管中沿壁传播^[11], 会呈现稳定的螺旋结构. 螺旋状等离子体羽的形状会随电压脉冲的重复频率和气体流速的变化而变化^[13]. 为了解释等离子体子弹的形成, Lu 和 Laroussi^[14]提出了一种低电场条件下的流光传播机制.

对于开放环境下的等离子体羽, 由于空气扩散进入到惰性工作气体中^[2], 正弦电压激励下等离子体羽通常呈锥形, 即随着与射流喷嘴距离的增大, 羽直径逐渐减小^[15,16]. 除了锥形结构外, 高电压幅值激励的氦等离子体羽中还观察到了辉光放电结构^[17]. 在高流速氦等离子体羽中也观察到了条纹状结构^[18]. 对于直流(DC)电压激励的氦等离子体羽, 在水面上方形成了一个圆柱形的喇叭, 当改变电压极性时, 圆柱形喇叭会转变为矩形喇叭^[19]. 在脉冲DC电压激励下, 氦气流下游形成了一个长圆柱形羽^[20]. 相同激励下的氦等离子体羽, 一些绒毛状放电会出现在圆柱形羽周围, 从而形成了类似于鸟的羽毛状结构^[20]. 当利用氦气作为工作气体入射到氦气环境中也观察到了类似的羽毛状结构, 分析认为该结构的形成与上次放电遗留的电子或光电离产生的种子电子有关^[21]. 当等离子体射流入射一个密闭空间, 在喷嘴附近出现了一个大的突起, 突起前边有一个锥形羽^[22]. 突起和锥状部分分别对应电压上升沿和下降沿的放电. 对于开放空间运行的氦气射流, 当气体流量与脉冲电压的频率匹配时, 会形成更多的突起^[13]. 对于脉冲激励的氦气射流, 也观察到了具有周期性突起的等离子体羽^[23], 并认为周期性突起源于气体的湍流.

总之, 突起状等离子体羽是一个非常有趣的现象. 本文利用偏置正弦电压激励氦气等离子体射流, 对周期性突起状等离子体羽的放电特性及其形成机理进行了研究.

2 实验装置

图1为实验装置示意图. 将直径为1.7 mm, 长10 cm 的钨棒固定在内径为6.0 mm的玻璃管轴心. 其中玻璃管外径为7.0 mm. 单电极等离子体射流沿水平放置. 氦气(99.999%)经过流量计后, 沿着等离子体射流的玻

图1 (网络版彩图)实验装置图

Figure 1 (Color online) Schematic diagram of the experimental setup.

璃管流动, 经过射流喷口后最终入射到环境空气中. 钨棒的自由端倒角半径约为500 μm , 它与电源(TREK, 20/20C-HS)的高压端连接. 电源提供具有偏置电压(V_b)的正弦信号, 其电压幅值(V_a)范围为20 kV, 频率(f)小于5.0 kHz. 如果没有特别说明, 则 V_a 为4.5 kV, V_b 为6.0 kV, f 为400 Hz. 所施加的电压由高压探头(Tektronix P6015A)探测. 等离子体羽的发光经凸透镜成像后, 并通过光电倍增管(ET 9130/100B)收集. 利用示波器(Tektronix DPO4054)对电压和总光信号的波形进行监测和记录. 射流的侧视图由数码相机(佳能EOS7D)拍摄, 曝光时间(t_{exp})为0.1 s. 利用一个配有佳能镜头(EF-S, 60 mm F-2.8)的增强型电荷耦合设备(ICCD)(Andor DH334T)可以研究放电的时间演化, 其曝光时间 t_{exp} 为200 ns. 采用配备CCD (PI PIXIS 400B)的AC-TON SP2750光谱仪, 利用2400刻线的光栅采集放电的发射光谱. 采用透镜成像, 在像平面移动连接光谱仪的光纤, 实现对不同位置等离子体羽发射光谱的测量.

3 结果与分析

如第1节所述, 周期性突起被认为是气体的湍流造成的^[23]. 为了说明本文的周期性突起的形成机制与之不同, 将气流流速设置得非常低. 即使考虑到等离子体羽与气流的相互作用^[23], 对于流量0.7 L/min的情况, 流动状态远没有达到湍流^[24,25]. 因此, 可以认为该小气流情况下是处于层流状态的. 在层流状态, 也观察到了具有两个突起的等离子体羽, 如图2(a)所示. 通过图2

图 2 (网络版彩图)不同气体流量下激励频率为400 Hz的放电图像. (a) 0.7 L/min; (b) 1.5 L/min; (c) 3.0 L/min; (d) 4.2 L/min

Figure 2 (Color online) Images of the discharge excited with a driving frequency of 400 Hz. (a) Gas flow rate is 0.7 L/min; (b) gas flow rate is 1.5 L/min; (c) gas flow rate is 3.0 L/min; (d) gas flow rate is 4.2 L/min.

还可以发现, 突起的数量随着气流的增大而增加. 对于某一个等离子体羽, 突起部分的直径会随着远离喷口

而减小.

图3为周期性突起状等离子体羽长度随着气体流量的变化曲线. 通过**图3**可以发现, 随着氩气流速的增大, 羽的长度也在线性增大. 羽的长度随着气体流速的增加而增加, 这也是层流模式的一个特征. 因此, **图2**中的突起状等离子体羽不是由气体湍流引起的.

图4为不同氩气流量下的外加电压和总发光信号

图 3 (网络版彩图)羽长度与气体流量的关系

Figure 3 (Color online) Length of the regularly swelled plume as a function of gas flow rate.

图 4 (网络版彩图)外加电压与总发光信号的波形, (a)–(d)分别对应**图2**(a)–(d)

Figure 4 (Color online) Waveforms of applied voltage and light emission signal for the regularly swelled plume. (a)–(d) correspond to **Figure 2**(a)–(d), respectively.

的波形. 通过图4(a)可以看出, 每一个电压周期只出现一个放电脉冲, 并且放电出现在电压的负半周期. 我们将放电对应的外加电压值称为起始电压, 则通过对比图4(a)–(d)可以发现随着氩气流速的增大, 起始电压的绝对值也增加.

为了探索周期性突起等离子体羽的形成机制, 利用高速影像研究了等离子体羽的时空演化, 如图5所示. 等离子体羽的突起位置用虚线标出, 为了使图像更清晰我们调整了图像的对比度. 通过图5可以发现, 在0 μs 放电最先在钨棒电极的尖端开始出现. 类似于负电晕放电, 正离子将向电极加速, 碰撞电极后产生二次电子发射.

图5 (网络版彩图)周期性突起等离子体羽的照片(曝光时间为0.1 s)及其时间演化, 其中ICCD曝光时间为200 ns, V_a 为4.5 kV, V_b 为-6.0 kV, 频率为600 Hz, 氩气流速为4.2 L/min

Figure 5 (Color online) A temporally-integrated image of the regularly swelled plume captured with t_{exp} of 0.1 s and its temporal evolution captured with t_{exp} of 200 ns. Other parameters: V_a is 4.5 kV, V_b is -6.0 kV, and frequency is 600 Hz, flow rate is 4.2 L/min.

这些电子将向着远离喷口运动, 在运动过程中引发电子雪崩. 因此, 喷嘴附近的放电体积增加, 在3 μs 时可以观察到一个球状放电. 随着喷嘴附近放电体积的增大, 产生了更多的二次电子, 放电强度也不断增大. 当放电足够强(正负电荷分离形成空间电场足以与外加电场相比), 放电从雪崩放电转变为流光放电, 如图5的6 μs 所示. 此后, 流光表现为一个沿着气流传播的发光光层流光(即等离子体子弹), 9–15 μs 所示. 值得注意的是, 在负流光传播过程中, 每到虚线位置, 放电体积就会变大. 正是由于等离子体子弹直径在空间的周期性变化才导致了周期性突起状等离子体羽的形成.

通过图5可以发现, 喷嘴附近有强放电, 强放电会产生大量的活性粒子. 某些长寿命活性粒子, 诸如电子^[26]、正离子以及氩原子、氮和氧分子的亚稳态粒子($\text{Ar}(4s)$, $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+)$, $\text{N}_2(\text{a}^1\Sigma_u^-)$ 和 $\text{O}_2(\text{b}^1\Sigma_g^+)$)^[10,26,27], 它们会随着气流向着下游移动, 从而分布在气流下游区域. 由于放电是周期性的(图4), 所以活性粒子在喷嘴周期性产生, 这样导致下游的活性粒子分布也是呈现空间周期性的分布. 因此, 对于一次流光传播过程而言, 流光会周期性地经历活性粒子区域. 活性粒子对放电有增强作用. 这种增强作用表现为放电在此区域会更强烈, 即具有更高的电子密度和更大的电场强度. 考虑到电子的扩散, 电子密度越高, 则放电区域的直径越大, 所以导致增强区具有更大的直径. 因此, 由于活性粒子的周期性分布, 导致了等离子体羽呈现空间周期性突起.

图6(a)为扫描范围为200–900 nm的发射光谱. 不同的氩线对应4p→4s的跃迁. 由于大气压放电中粒子间的碰撞频繁, 通常认为等离子体羽是局部热动态平衡(pLTE)^[28]的. 在pLTE条件下, 利用这些Ar I谱线, 通过玻尔兹曼图的方法可以估算出电子激发温度^[2]. 由于电子激发温度与电场正相关, 因此, 利用玻尔兹曼拟合得到的电子激发温度(T_{exc})可以反映电场的变化. 图6(b)给出了一个玻尔兹曼拟合图, 图中直线的斜率为 $1/T_{\text{exc}}$, 其中 I_{ki} 是谱线强度, λ_{ki} 是谱线波长, g_k 是较高能级的统计重量, A_{ki} 是从 k 级跃迁到 i 级能级的概率, E_k 是较高能级的能量. 玻尔兹曼图中Ar I用于估算 T_{exc} 的光谱参数如表1所示. 通过拟合不同空间位置发射光谱的玻尔兹曼图, 可以获得 T_{exc} 沿着氩气流的空间分布, 如图6(c)所示. 可见, 随着距离的增加, T_{exc} 在极大值和

图 6 (网络版彩图) (a) 200–800 nm 的发射光谱; (b) 玻尔兹曼图, 计算激发态电子温度; (c) 激发态电子温度与空间位置的函数关系; (d) 激发态电子温度与气体流量的函数关系

Figure 6 (Color online) (a) Light emission spectral form 200 to 800 nm. (b) Boltzmann plot to calculate the excited electron temperature. (c) The excited electron temperature as functions of the space position. (d) The excited electron temperature as functions of the gas flow rate.

表 1 玻尔兹曼图中 Ar I 用于估算 T_{exc} 的光谱参数

Table 1 Spectral parameters of Ar I used in Boltzmann plot to estimate T_{exc}

λ (nm)	Transition	$A_{ki} (\times 10^6 \text{ s}^{-1})$	g_k	$E^2 (\text{cm}^{-1})$
425.93	5p'→4s'	3.98	1	118871
426.63	5p→4s	0.312	5	117184
427.22	5p→4s	0.797	3	117151
706.72	4p→4s	3.8	5	107290
727.29	4p→4s	1.83	3	107496
738.40	4p→4s	8.47	5	107290
750.39	4p'→4s'	44.5	1	108723
763.51	4p→4s*	24.5	5	106238

极小值之间周期性的变化. 其中突起位置对应着电子激发温度极大值位置. 这充分表明了活性粒子对放电的增强作用, 即与前边的分析结果一致. 此外, 还对等离子体羽的平均电子激发温度随气流的变化进行了研

究, 结果如图 6(d) 所示. 可见随着气流的增大, T_{exc} 单调减小. 关于这种变化关系可以解释如下. 随着气流增大, 活性粒子在两次放电之间会移动更长的距离, 这表明活性粒子与氩原子碰撞损失能量的几率会随着氩气流量的增大而增大. 因此, 当某次流光传播过程中, 上次放电残余的活性粒子数量会随着气体流量的增加而减少. 这会导致活性粒子对放电的增强作用减弱, 因此导致电子激发温度降低. 此外, 由于活性粒子可以降低放电的击穿电场, 所以当气流增大导致活性粒子减少, 则放电的击穿电场必随着气流增大而增大, 这也导致了图 4 中起始电压绝对值随着氩气流量增大而增大.

4 结论

本文利用单电极氩气等离子体射流在偏置正弦电压激励下产生了周期性突起的等离子体羽. 研究发现,

随着气流增大, 突起的数量也增加, 且等离子体羽变长. 对于某一特定的等离子体羽, 随着与喷口距离的增加, 突起的直径减小. 通过测量放电的电压和发光信号波形, 发现每一个电压周期放电一次, 且放电出现在电压的负半周期. 研究发现, 随着气流增大, 放电的起始电压绝对值也增加. 这是由于放电开始前的残余活性粒子随着气体流量增加而减少造成的. 利用

ICCD研究了周期性突起状等离子体羽的时空演化, 发现它对应沿气流传播的负流光过程. 负流光在传播过程中会经历上次放电残余的周期性分布的活性粒子区. 活性粒子会增强放电, 从而导致等离子体羽呈现周期性的突起. 为了证明活性粒子的这种作用, 我们还对 T_{exc} 的空间分布及其随着气体流量的变化关系进行了研究.

参考文献

- Oh J S, Strudwick X, Short R D, et al. How plasma induced oxidation, oxygenation, and de-oxygenation influences viability of skin cells. *Appl Phys Lett*, 2016, 109: 203701
- Lu X, Naidis G V, Laroussi M, et al. Guided ionization waves: Theory and experiments. *Phys Rep*, 2014, 540: 123–166
- Shaw D, West A, Bredin J, et al. Mechanisms behind surface modification of polypropylene film using an atmospheric-pressure plasma jet. *Plasma Sources Sci Technol*, 2016, 25: 065018
- Jofre-Reche J A, Pulpytel J, Fakhouri H, et al. Surface treatment of Polydimethylsiloxane (PDMS) with atmospheric pressure rotating plasma jet: Modeling and optimization of the surface treatment conditions. *Plasma Process Polym*, 2016, 13: 459–469
- Liu C T, Kumakura T, Ishikawa K, et al. Effects of assisted magnetic field to an atmospheric-pressure plasma jet on radical generation at the plasma-surface interface and bactericidal function. *Plasma Sources Sci Technol*, 2016, 25: 065005
- Mance D, Geilmann H, Brand W A, et al. Changes of ^2H and ^{18}O abundances in water treated with non-thermal atmospheric pressure plasma jet. *Plasma Process Polym*, 2017, 14: 1600239
- Chen Z, Cui Q, Chen C, et al. Inactivation of myeloma cancer cells by helium and argon plasma jets: The effect comparison and the key reactive species. *Phys Plasmas*, 2018, 25: 023508
- Soloviev V R, Krivtsov V M, Shcherbanev S A, et al. Evolution of nanosecond surface dielectric barrier discharge for negative polarity of a voltage pulse. *Plasma Sources Sci Technol*, 2017, 26: 014001
- Maletić D, Puač N, Malović G, et al. The influence of electrode configuration on light emission profiles and electrical characteristics of an atmospheric-pressure plasma jet. *J Phys D-Appl Phys*, 2017, 50: 145202
- Gherardi M, Puač N, Marić D, et al. Practical and theoretical considerations on the use of ICCD imaging for the characterization of non-equilibrium plasmas. *Plasma Sources Sci Technol*, 2015, 24: 064004
- Robert E, Sarron V, Riès D, et al. Characterization of pulsed atmospheric-pressure plasma streams (PAPS) generated by a plasma gun. *Plasma Sources Sci Technol*, 2012, 21: 034017
- Puač N, Maletić D, Lazović S, et al. Time resolved optical emission images of an atmospheric pressure plasma jet with transparent electrodes. *Appl Phys Lett*, 2012, 101: 024103
- Darny T, Robert E, Dozias S, et al. Helical plasma propagation of microsecond plasma gun discharges. *IEEE Trans Plasma Sci*, 2014, 42: 2506–2507
- Lu X P, Laroussi M. Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses. *J Appl Phys*, 2006, 100: 063302
- Gazeli K, Svarnas P, Held B, et al. Possibility of controlling the chemical pattern of He and Ar “guided streamers” by means of N_2 or O_2 additives. *J Appl Phys*, 2015, 117: 093302
- Li J, Xu Y G, Zhang T, et al. A diffuse plasma jet generated from the preexisting discharge filament at atmospheric pressure. *J Appl Phys*, 2017, 122: 013301
- Walsh J L, Iza F, Janson N B, et al. Three distinct modes in a cold atmospheric pressure plasma jet. *J Phys D-Appl Phys*, 2010, 43: 075201
- Hong Y C, Uhm H S, Yi W J. Atmospheric pressure nitrogen plasma jet: Observation of striated multilayer discharge patterns. *Appl Phys Lett*, 2008, 93: 051504
- Xu S F, Zhong X X. Self-deformation in a direct current driven helium jet micro discharge. *Phys Plasmas*, 2016, 23: 010701, arXiv: 1601.00074

- 20 Colombo V, Fabiani D, Focarete M L, et al. Atmospheric pressure non-equilibrium plasma treatment to improve the electrospinnability of poly (L-lactic acid) polymeric solution. *Plasma Process Polym*, 2014, 11: 247–255
- 21 Xian Y B, Zou D D, Lu X P, et al. Feather-like He plasma plumes in surrounding N₂ gas. *Appl Phys Lett*, 2013, 103: 094103
- 22 Xian Y, Lu X, Liu J, et al. Multiple plasma bullet behavior of an atmospheric-pressure plasma plume driven by a pulsed dc voltage. *Plasma Sources Sci Technol*, 2012, 21: 034013
- 23 Wang R, Sun H, Zhu W, et al. Uniformity optimization and dynamic studies of plasma jet array interaction in argon. *Phys Plasmas*, 2017, 24: 093507
- 24 Fang Z, Ruan C, Shao T, et al. Two discharge modes in an atmospheric pressure plasma jet array in argon. *Plasma Sources Sci Technol*, 2016, 25: 01LT01
- 25 Lietz A M, Johnsen E, Kushner M J. Plasma-induced flow instabilities in atmospheric pressure plasma jets. *Appl Phys Lett*, 2017, 111: 114101
- 26 Tang J, Jiang W, Zhao W, et al. Development of a diffuse air-argon plasma source using a dielectric-barrier discharge at atmospheric pressure. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 033503
- 27 Raizer Y P. Gas Discharge Physics. Berlin, New York: Springer, 1997
- 28 Hnilica J, Kudrle V. Time-resolved study of amplitude modulation effects in surface-wave atmospheric pressure argon plasma jet. *J Phys D-Appl Phys*, 2014, 47: 085204

Characteristics and mechanism of moniliform plasma plume in atmospheric argon jet

XU HuiMin^{1*}, ZHANG WenLiang¹, JIA PengYing^{2,3}, CHEN JunYu^{2,3} & LI XueChen^{2,3}

¹ Department of Fundamental Science, Hebei Finance University, Baoding 071051, China;

² College of Physics Science and Technology, Hebei University, Baoding 071002, China;

³ Key Laboratory of Photo-Electronics Information Materials of Hebei Province, Baoding 071002, China

Atmospheric pressure plasma jet can produce a kind of remote plasma plume in open air atmosphere. Different from the usual conical plasma plume found in the literature, a spatially periodical swelling plasma plume is generated in an atmospheric pressure argon plasma jet excited with a low-frequency biased sinusoidal voltage. By optical and electrical methods as well as optical emission spectroscopy, discharge characteristics and formation mechanism of the plasma plume with spatially periodical swells are studied. Experimental results show that length of the plasma plume increases with the increase of flow rate. Moreover, the plume initiates once in each negative half voltage cycle and it does not initiate in positive half voltage cycle. Through high-speed imaging, a negative streamer is found to propagate along argon flow for the swelling plasma plume. There is a strong discharge near the nozzle of the plasma jet, which initiates once per voltage half cycle and provides welling positions downstream with active species. These active species can significantly enhance the discharge and induce the formation of a swell. Furthermore, optical emission spectrum is used to investigate spatial distribution of excited electron temperature and averaged excited electron temperature as a function of gas flow rate. Finally, a qualitative explanation is given for the experimental results discussed above.

plasma jet, emission spectrum, active species, bias voltage

PACS: 52.80.Tn, 52.50.Dg, 52.70.Kz

doi: 10.1360/SSPMA-2019-0249