



高斯电压驱动大气压氩气介质阻挡放电的特性研究

徐永刚^{①②}, 朱莎^②, 汤洁^{②*}, 姜炜曼^②, 王屹山^②, 李永放^①, 赵卫^②, 段忆翔^{②③}

① 陕西师范大学物理学与信息技术学院, 西安 710119;

② 中国科学院西安光学精密机械研究所, 瞬态光学与光子技术重点实验室, 西安 710119;

③ 四川大学生命科学学院, 分析仪器研究中心, 成都 610064

*联系人, E-mail: tangjie1979@opt.ac.cn

收稿日期: 2016-04-24; 接受日期: 2016-06-27; 网络出版日期: 2016-08-09

国家重大科学仪器设备开发专项资金(编号: 2011YQ030113)、陕西省自然科学基金(编号: 2015JM1019)和中国科学院“西部之光”项目(编号: XAB2015A08)资助

摘要 本文采用一维自洽流体模型理论研究了高斯电压驱动下大气压氩气介质阻挡放电的放电特性. 在特定的频率、振幅和气隙间隔条件下, 得到了气隙电压和放电电流随时间的变化关系, 以及放电气隙中电子、离子和电场的空间分布特征. 模拟结果表明, 高斯电压驱动下的大气压氩气介质阻挡放电是一个多电流脉冲放电, 存在两种放电模式: 汤森模式和辉光模式. 在每半个放电周期内, 放电经历一个在汤森模式与辉光模式之间的转变过程, 气隙空间电荷和介质表面电荷是造成放电模式转变的主要因素. 此外, 下降沿残余电流峰的出现, 是源于上升沿放电残留了大量的空间电荷. 上述仿真结果为等离子体在材料表面处理、污染治理, 以及生物医学等领域中电压激励源的设计提供了新的思路.

关键词 介质阻挡放电, 高斯电压, 多电流脉冲, 模式转变

PACS: 52.50.Dg, 52.80.Tn, 52.80.Hc, 51.50.+v

1 引言

近年来, 大气压非平衡等离子体由于其特有的潜在优势和广阔的应用前景越来越受到人们的关注. 介质阻挡放电(Dielectric-Barrier Discharge, DBD)是大气压条件下广泛应用于材料表面处理、薄膜沉积、生物消菌、纤维改性和化学合成等领域中的等离子体源之一^[1-9]. 它是一种由电介质覆盖在两个足够大面积电

极之间的狭窄间隙中产生的低频交流放电. 通常情况下, DBD可应用各种不同结构的电极构成, 其中平板电极结构是最简单的结构之一. 早在1857年, DBD被实验^[10]提出以后, 这种类型的放电已经在氦气^[11]、氮气^[12]、氩气^[13]、氟气^[14]和氙气^[15,16]等稀有气体中被深入研究. 目前, 大气压辉光放电(Atmospheric-Pressure Glow Discharge, APGD)是等离子体研究领域中最快的一种放电模式, 由于其要求的实验操作条件简

引用格式: 徐永刚, 朱莎, 汤洁, 等. 高斯电压驱动大气压氩气介质阻挡放电的特性研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2016, 46: 115201
Xu Y G, Zhu S, Tang J, et al. Characterization and mechanism studies of argon dielectric barrier discharge excited by a Gaussian voltage at atmospheric pressure (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2016, 46: 115201, doi: [10.1360/SSPMA2016-00218](https://doi.org/10.1360/SSPMA2016-00218)

单, 实际投资成本较低, 并能提供丰富的活性化学成分、高浓度的等离子体以及比较稳定的均匀性, 多适用于对不同材料器件表面进行加工处理, 这些优势使APGD受到国内外相关研究人员的广泛关注^[17-21].

通常情况下, 大气压均匀DBD辉光放电是单电流脉冲放电^[22], 即在外加电压的每半个周期中仅产生一个电流脉冲, 放电区域中具有阴极位降区、负辉区和正柱区等辉光放电的典型特征. 此外, 均匀大气压DBD放电中关于多电流脉冲也有各种研究报道^[23-29]. 相关研究发现, 在合适的放电条件下, 外加电压的每半个周期内也可以形成多个电流脉冲. 2009年, 清华大学Lu等人^[23]在大气压氦气介质阻挡均匀辉光放电研究中发现了多电流脉冲, 并分析得到气隙电压随外加电压的增大而增大, 若外加电压振幅足够高, 就会产生第二次击穿, 导致放电出现第二个电流脉冲. Mangolini等人^[24]认为多电流脉冲放电是由于放电在径向不均匀分布所致, 随后出现的电流脉冲峰是在径向不同位置处发生的击穿. 同时, Golubovskii等人^[25]却将多电流脉冲效应归因于阳极附近离子的产生与共振原子之间的时间延迟, 以及阴极处光电辐射、离子-电子辐射的作用. 与此同时, 大气压DBD中也经常出现放电模式的转变, 常见的情形是汤森模式与辉光放电模式之间的转换^[27,30-34]. 2012年, Ha等人^[30]研究了大气压介质阻挡辉光放电中出现的非对称电流脉冲现象, 表明在较大气隙空间中辉光模式和汤森模式可以共存, 这是因为残余空间电荷起着瞬时阳极的作用从而减少了气隙宽度, 最终导致汤森放电的形成. 也有相关研究^[31]报道了在大气压氦气DBD模型中利用曝光时间20 ns的快速ICCD (Intensified Charge Coupled Device) 照相机观测到了从汤森放电到亚辉光放电的转变过程. 此外, 大连理工大学Wang等人^[32]研究了外加电压驱动频率影响大气压氦气DBD中放电模式之间的转变, 其结果表明存在3种放电模式: 当外加驱动频率较低(1-7 kHz)时放电表现出汤森模式; 频率在区间7-65 kHz时呈现均匀辉光模式; 频率大于65 kHz时转变为局部辉光模式.

然而, 以上提到的各种放电现象都是在正弦电压激发下产生的. 但是也有一些放电是在其他外加非正弦激励源^[33-39]条件下实现的, 例如: 脉冲调制的射频电压^[33]、亚微秒脉冲型电压^[34-36]、锯齿电压^[37]、光滑梯形电压^[38]和射频脉冲与梯形脉冲结合电压^[39]等, 这

些研究结果都表明了它们的放电特性完全不同于正弦电压激发放电的特性. 在利用锯齿型电压^[37]激发大气压DBD放电中, 模拟研究发现每半个外加电压周期中出现一个阶梯型放电, 并分析了占空比对放电的影响. 而在利用光滑梯形电压^[38]的方式驱动大气压DBD中, 研究发现每个电压脉冲阶段产生的两个放电具有不同的径向分布, 这个放电是由放电之前空间电子密度分布决定的, 分析得到了等离子体密度的增强机制是由外加短脉冲诱导的空间局部强电场产生的.

由此可见, 研究非正弦电压激励产生的大气压DBD放电特性有很大意义. 到目前为止, 关于利用周期性高斯电压激发大气压氦气DBD放电的相关研究报道很少. 本文中, 基于一维自洽流体动力学模型, 在特定的高斯电压频率、振幅和气隙间隔条件下, 数值模拟研究了大气压氦气DBD放电过程中汤森模式和辉光模式之间不断转变的放电过程, 并对其产生的新物理现象给出了较为详细的解释: 放电模式转变的发生主要是由气隙空间电荷和介质表面电荷引起的. 介质表面积累的电荷对于放电过程的开启和熄灭起着至关重要的作用. 模拟过程中还发现, 在每半个外加高斯电压周期中形成了多电流脉冲现象, 并且在电压下降沿观测到了一个微小的电流残余峰, 并对其形成的物理机理进行了分析和探讨.

2 理论模型

本文的模型是由两个平行且覆盖厚度均为 $d_0=1$ mm电介质的极板组成的, 如图1所示. 其中, 左电极接外加周期性高斯电源, 右电极接地. 电介质材料均为氧化铝陶瓷, 其介电常数为7.5. 两电极之间的气隙间隔是 $d_g=2$ mm. 工作气体是纯氦气, 气体温度设为300 K, 工作大气压为760 Torr (10^5 Pa). 模拟中, 考虑的活性粒子有: 电子(e)、氦离子(Ar^+)、亚稳态氦原子(Ar^*)和氦原子(Ar); 另外, 放电空间中包含的物理化学反应有: 激发、直接电离、分步电离、退激发、辐射和电子-离子复合反应^[40-44].

将频率为 $f=2$ kHz的周期性高斯电压加在两个电极板上, 其中一个周期的高斯电压表达式为

$$V = V_0 \exp\left[-\frac{(t-t_1)^2}{t_0^2}\right] - V_0 \exp\left[-\frac{(t-t_2)^2}{t_0^2}\right], \quad (1)$$

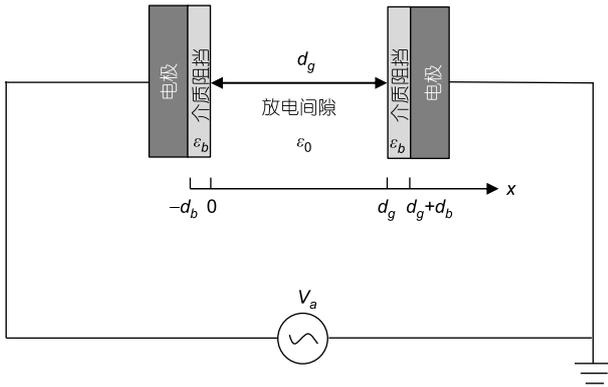


图1 DBD反应器的原理示意图
Figure 1 Schematic diagram of the DBD reactor.

式中, V_0 是高斯电压振幅, 其值取为 $V_0=1.8$ kV, t_1 和 t_2 分别是外加电压的正、负半周期的峰值所在时刻点, 高斯电压的周期大小为 $T=|t_1|+|t_2|$, t_0 是高斯脉冲宽度, 文中取 $t_0=0.1$ T, 其波形如图2中实线所示.

从图2中高斯电压与正弦电压的比较可以看到, 在高斯电压波形中, 从正半周期峰向负半周期峰过渡的过程中明显存在一个可调制的时间延迟, 而正弦电压在这个过程中是没有变化的. 更重要的是, 周期性高斯电压在放电过程中可以实现电压峰处陡峭演化和接近零点电压局部区域的平缓演化, 这完全不同于一般的正弦电压特性. 作为一般的驱动放电电压源, 周期性高斯电压是一个和正弦电压一样可人为调制(如频率、振幅等参量)的电压激励源, 它是一个具有正负半周期的双极性电压, 每半个周期又包含可调制的上

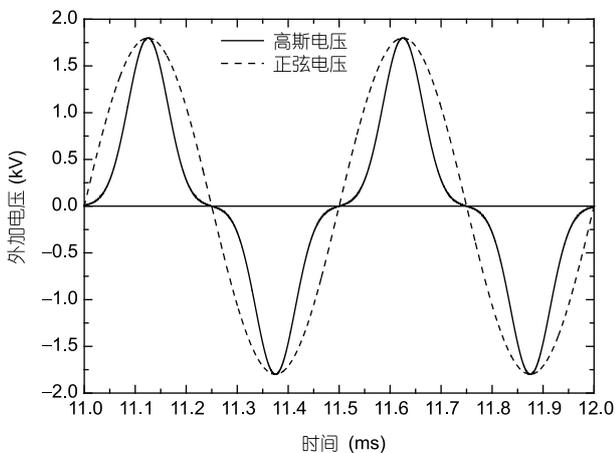


图2 高斯型电压与正弦型电压波形的比较
Figure 2 Comparison of Gaussian with sinusoidal voltages.

升沿和下降沿, 并且其几何波形是中心对称的. 除此之外, 周期性高斯电压在人为调制方面更加灵活, 还可产生关于正负半周期非对称的周期性电压等波形.

本文中, 所有粒子密度可由连续性方程描述

$$\frac{\partial n_k(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial j_k(x,t)}{\partial t} = S_k(x,t), \quad (2)$$

式中, n_k , j_k 和 S_k 分别表示第 k 类粒子的密度、通量和源项. 通量 j_k 可由动量方程得到

$$j_k(x,t) = \mu_k E(x,t) n_k(x,t) - D_k \frac{\partial n_k(x,t)}{\partial x}, \quad (3)$$

式中, E 是电场, μ_k 和 D_k 分别是迁移系数和扩散系数^[45]. 在源项 S_k 中, 考虑了上文提到的物理化学反应. 电场可以从电流守恒方程得到

$$\varepsilon_0 \varepsilon(x) \frac{\partial E(x,t)}{\partial t} + i_c(x,t) = i_{\text{Tot}}(x,t), \quad (4)$$

式中, ε_0 是真空介电常数, $\varepsilon(x)$ 是介质(气隙)层的相对介电常数, 其大小取决于放电间隙位置 x . i_{Tot} 是总电流, 那么传导电流密度 i_c 为

$$i_c(x,t) = q_e [j_p(x,t) - j_e(x,t)], \quad (5)$$

式中, $j_p(x,t)$ 和 $j_e(x,t)$ 分别是离子和电子的通量, q_e 是电子的电荷量. 放电过程中, 考虑了离子碰撞介质层产生的二次电子发射, $j_e(x,t) = \gamma j_p(x,t)$, 其中, γ 是二次电子发射系数, 文中取 $\gamma = 0.01$. 放电电流密度可对方程(4)从左电极 $x = -d_b$ 到右电极 $x = d_g + d_b$ (如图1所示) 的距离进行积分得到

$$i_{\text{Tot}}(t) = \left(\frac{2d_b}{\varepsilon_0 \varepsilon_b} + \frac{d_g}{\varepsilon_0} \right)^{-1} \left[\int_{-d_b}^{d_g+d_b} \frac{i_c(x,t)}{\varepsilon(x)} dx - \frac{\partial V_a(t)}{\partial t} \right], \quad (6)$$

式中, $V_a(t)$ 是外加高斯电压. 在介质中 $\varepsilon(x) = \varepsilon_b$, 而在气体中 $\varepsilon(x) = \varepsilon_0$. 利用半隐式 Scharfetter-Gummel 方法^[46] 对以上非线性方程(2)–(6)进行数值求解. 在求解空间^[27,47]中, 网格划分采取两端密中间疏的方式, 划分出约400个非均匀网格; 计算中采用足够小且合理的初始步长 10^{-13} s, 并利用自适应向后差分方法进行数值求解, 这样既保证了计算精度, 又提高了计算效率. 本文中讨论的所有模拟结果都是在放电完全稳定后得到的.

3 结果与讨论

放电电流密度、外加高斯电压和气隙电压以及介质表面电荷密度随时间变化的波形如图3所示. 图3(a)中, 在外加高斯电压的正半周期中, 利用数字1, 2, 3, 4, 5, 6, 7和8分别表示上升沿和下降沿的不同放电时刻. 从图中可以看出, 这个放电在上升沿和下降沿分别以不同振幅大小极性相反放电电流脉冲为主要特征. 其中, 在上升沿阶段, 出现了第一个正电流脉冲(标记为2), 随后产生了第二个正电流脉冲(标记为4); 而在下降沿阶段, 首先出现了一个微小的负电流峰(标记为6), 然后出现了另一个幅值较大的负电流脉冲峰(标记为7). 除了这些放电电流脉冲峰之外, 还标记了在第一正电流脉冲的上升沿的某个时刻(标记为1)、正电流脉冲之间的电流谷(标记为3)、零点电流时刻(标记为5)以及第二负电流脉冲的下降沿的某个时刻(标记

为8). 图3(b)是高压和接地电极介质表面上电荷密度的时域分布演化图. 由于外加高斯电压正、负半周期中的放电情况刚好对称, 负半周期的放电情况不再赘述. 下文主要研究和讨论以上标记的正半周期中的8个不同时刻对应的放电特性情况.

图4是外加高斯电压正半周期上升沿的4个不同时刻和1个零点电流时刻分别对应的电子、离子密度和电场强度随气隙空间变化的分布图. 可以发现, 在第一个正电流峰的上升沿时刻 $t_1=11.017$ ms时(如图4(a)中标记数字1所示), 其对应的电子密度在整个放电气隙中小于离子密度, 且在阳极附近的最大值约为 1.5×10^8 cm^{-3} , 小于 10^9 cm^{-3} 数量级. 此外, 在整个放电空间中由于外加电场强度较弱, 产生的带电粒子数目较少, 故不存在正柱区. 由于放电气隙空间中电荷对外加电场的影响不大, 从而不能扰动气隙空间电场的

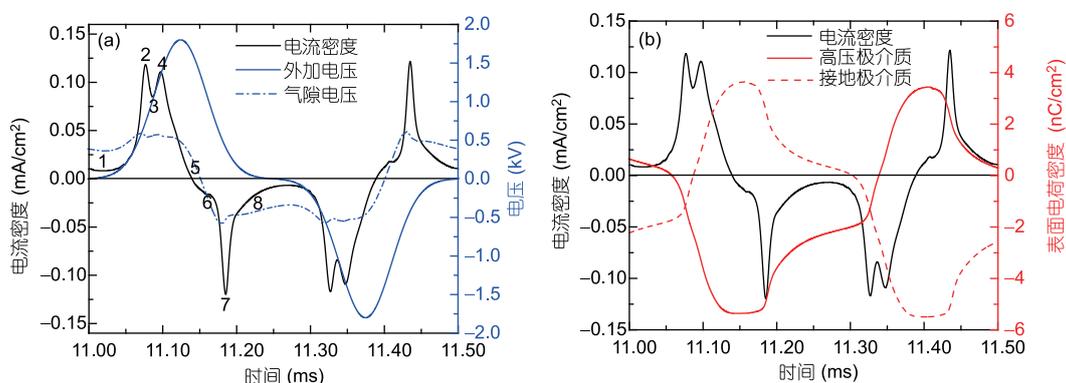


图3 (网络版彩图)(a) 放电电流、外加高斯电压和气隙电压的时域演化分布; (b) 介质表面电荷的时域演化分布

Figure 3 (Color online) (a) Temporal distributions of the current density, gas voltage, and applied Gaussian voltage; (b) temporal distributions of surface charges density.

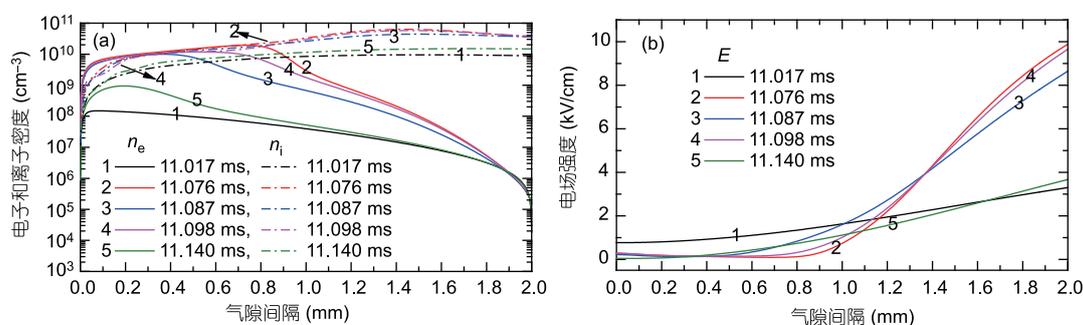


图4 (网络版彩图)(a) 正向脉冲击穿电流对应不同时刻的电子和离子密度空间演化分布; (b) 相应的电场强度空间演化分布

Figure 4 (Color online) (a) Spatial distributions of electron and ion densities; (b) spatial distributions of electron and ion densities electric fields corresponding to different moments with positive currents.

分布, 导致电场强度从阳极到阴极近似线性地递增, 如图4(b)中所示. 以上这些特征都是汤森放电所特有的.

随着外加高斯电压的持续增加, 外加电场不断地增强, 放电电流也在继续增大, 并在 $t_2=11.076$ ms时刻达到了最大值, 其值为 0.118 mA/cm², 即第一正电流脉冲, 这表明气隙中发生了击穿放电. 在此时刻对应的电荷密度空间分布图4标记数字2可以看出, 存在3个明显不同的区域, 从阴极到阳极依次为: 阴极位降区、负辉区和正柱区. 在阴极位降区中, 离子密度比电子密度大几个数量级, 电场在某种程度上受到空间电荷的扰动并不是一直单调线性地增加, 而是非线性递增, 并在阴极处达到了最大值 9.88 kV/cm. 在阴极区域, 绝大多数电子被排斥而无法到达阴极表面, 实际上这里的放电是由高能离子和其与阴极碰撞产生的二次电子维持的, 故电子密度比离子密度小几个数量级. 在负辉区中, 电子和离子分别以指数方式增长和减少, 且在该区域具有剧烈的电离和激发过程, 电子密度在距阳极 $x=0.739$ mm处达到了最大值 1.938×10^{10} cm⁻³, 在该区域的末端电场迅速减少, 开始过渡到正柱区. 在正柱区中, 电场强度较小且近似保持常数, 电子密度等于离子密度. 以上分析说明此刻 t_2 对应的放电是辉光模式, 这不同于时刻 t_1 对应的汤森模式放电特征. 注意到, 这个时刻的放电电流密度在数量级上与Liu等人^[17]模拟研究放电的 10 kHz情形是一致的, 都具有 10^{-1} mA/cm²的数量级. 从另一个方面^[43]来看, 在外加高斯电压极性改变为正向之前(即 t_1 时刻之前的负半周期, 图中未画出), 由于受到前负半周期在介质表面积聚电荷所产生的与外加高斯电场同方向电场的作用, 降低了此时气体间隙产生放电(t_2 时刻)所需的开启电压, 因此, 放电电流脉冲的峰值并没有出现在外加高斯电压的峰值时刻处, 而是比高斯电压峰值时刻提前, 如图3(a)所示. 通过以上详细分析表明, 在第一正电流脉冲的上升沿过程中, 存在一个从汤森模式向辉光模式转变放电过程.

当气隙空间发生击穿放电时, 介质表面电荷密度快速增加, 放电随之熄灭, 就像电容的充电过程, 这说明介质阻挡层对放电具有抑制作用, 从而避免了弧光放电的发生. 在第一个正电流脉冲之后, 外加高斯电压并不是很高, 前半周期积累在介质表面的电荷粒子与来自放电空间中的电荷发生中和, 导致气隙电压下降, 如图3(a)中点虚线所示. 因此, 气隙中的电场降低, 出

现了一个较低的放电电流, 即正电流谷($t_3=11.087$ ms). 从图4中对应的带电粒子和电场的空间分布情况可看出, 此时刻对应的电流谷仍表现出辉光模式特征. 接下来, 随着外加高斯电压的快速上升, 气隙电压并没有持续下降而是增大. 放电空间电荷相互碰撞电离概率增大, 使带电粒子密度升高. 当气隙空间电场强度大于气体击穿场强时, 产生了第二个正电流脉冲($t_4=11.098$ ms), 其峰值为 0.1108 mA/cm². 然而, 我们发现这个电流脉冲幅值比第一个脉冲较弱, 这类似于正弦多电流脉冲放电的情形^[22,23,26,27,29]. 由于气隙中电荷在电场作用下的转移以及空间电荷效应, 导致气隙中阳极附近的带电粒子数目有所下降. 但是从图4的空间电荷分布来看, 这个电流脉冲仍保持着辉光放电模式. 从以上分析可以看出, 在外加高斯电压正半周期上升沿放电过程中, 随着外加电压的增大, 外加电场增强, 这不仅使气隙空间中带电粒子数目快速增加, 而且加快了带电粒子向介质阻挡表面移动并积累下来. 这些积累的表面电荷产生了一个与外加电场方向相反的感应电场, 随着电荷积累数量的不断增加, 感应电场的作用也随之增强, 放电气隙中合电场强度下降. 当气隙中的场强无法维持放电时, 放电就会熄灭. 第一个正电流脉冲之后, 外加电压继续增大, 当合电场足够强时, 就产生了下一个气隙击穿放电, 即这就是多电流脉冲效应产生的机理.

如果在外加高斯电压上升沿的放电次数很多的话, 就会积累大量的介质表面电荷, 如图3(b). 当介质表面上累积电荷量足够大, 在高斯电压到达峰值后开始减小时, 气体间隙中的电场强度将会逐渐减小至零, 而后变成负值. 当气隙中的电场强度的绝对值达到击穿场强时, 将再一次形成放电, 但此次放电的电流脉冲与高斯电压上升沿的电流脉冲方向相反, 形成了反向放电, 即负放电电流脉冲, 如图3(a)中数字6和7标记所示. 在第二个正电流脉冲峰之后, 气隙电压开始下降. 在零点电流处($t_5=11.140$ ms), 电子密度最大值为 9.95×10^8 cm⁻³, 小于 10^9 cm⁻³数量级, 表明放电已经熄灭.

图5是外加高斯电压正半周期下降沿的3个不同时刻分别对应的电子、离子密度和电场强度随气隙空间变化的分布图. 注意到, 当电场的极性发生反转时, 上升沿放电期间残留在放电空间中的电子(密度最大值为 9.95×10^8 cm⁻³) 在反向电场不是很大的作用下开始移动, 诱导出了第一个负电流脉冲($t_6=11.159$ ms), 如

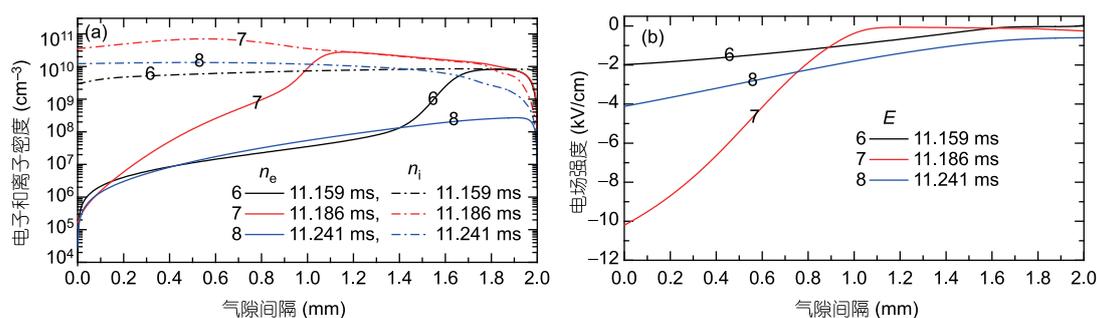


图5 (网络版彩图)(a) 负向脉冲击穿电流对应不同时刻的电子和离子密度空间演化分布; (b) 相应的电场强度空间演化分布
Figure 5 (Color online) (a) Spatial distributions of electron and ion densities; (b) spatial distributions of electric fields corresponding to different moments with negative currents.

图3(a)中所示. 由于这个电流脉冲峰值微小, 也被称为残余电流峰^[11]. 但从图5中所对应的粒子密度及其电场的空间演化分析可知, 这个残余放电具有正柱区、负辉区以及阴极位降区的特点, 因此属于辉光放电模式. 在这个残余峰(t_6)处, 离子密度约为 $9.85 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, 电子密度也高达 $8.95 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, 但是阴极电场强度只有约 1.976 kV/cm , 最终导致产生了这个低电流脉冲. 在Lee等人^[48]的研究工作中也产生了类似的残余电流峰现象. 众所周知, 作为时间函数的介质电压波形间接地反映介质表面上储存电荷面密度的时域演化, 如图3(b)所示. 在此时刻(t_6)处, 介质表面已积累了相当多的表面电荷, 在外加电压下降阶段, 这些表面电荷在放电气隙中产生了一个较高的诱导电场, 其与外加电场的合电场同向, 并且介质表面电荷在此时放电空间中占主导作用, 使得气隙电压反向增强. 因此, 在放电气隙中产生了第二个负电流脉冲($t_7=11.186 \text{ ms}$), 其峰的绝对值为 0.1197 mA/cm^2 , 如图3(a)所示. 从此时刻对应的图5中空间电荷密度及电场的空间分布来看, 这个电流脉冲放电属于辉光模式. 在第二个负电流脉冲以后, 由于来自气隙空间电荷粒子的中和效应, 介质表面的电荷密度急剧下降, 导致气隙空间电场强度减少. 在外加高斯电压极性改变之前, 也伴随着气隙电压的下降. 在 $t_8=11.241 \text{ ms}$ 时刻, 气隙空间中剩余的电子相对较少, 电子密度最大值 $2.695 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, 小于 10^9 cm^{-3} 数量级, 意味着半个周期的放电逐渐熄灭.

在放电过程中, 空间电荷和介质表面电荷在整个高斯电压驱动氩气DBD放电过程中起着非常重要的作用. 在外加电压正半周期的上升沿即正电流脉冲序列中, 产生的空间电荷粒子在逐渐增强的外加电场作

用下向介质表面移动, 在这个过程中, 由于碰撞电离的作用也伴随产生了大量带电粒子. 其中大量的电子向阳极表面运动, 到达介质表面后发生中和. 之后, 阳极表面积聚了很多负电荷, 使得阳极板表面电荷密度为负值, 如图3(b)中红色实线所示. 介质表面不断积聚的电荷产生一个与外加电场方向相反的感应电场, 气隙中的合电场下降. 当气隙中的场强降低到无法维持放电时, 放电就会熄灭. 然而, 在第一个正放电电流脉冲结束之后, 外加高斯电压持续升高, 气隙场强不断增大, 产生了第二个正放电电流脉冲. 由于随着放电次数的增多(图3(a)中标记数字2和4), 电场强度降低. 当气隙中的电场强度减小到不能再次引起气体击穿时, 正脉冲序列结束. 在下降沿, 即负电流脉冲序列过程中, 随着外加高斯电压的降低, 气隙电压也逐渐减少, 降为零点之后反向逐渐增大. 之后产生的电流脉冲残余峰(图3(a)中标记数字6)正是由正向放电期间残留在气隙空间的电荷作为种子电子产生的. 从能量的角度^[49,50]来说, 开启正向放电的电源功率被消耗的同时其中的一小部分被存储起来, 在外加电压衰减过程中点燃了反向放电, 从而出现了负电流脉冲. 残余放电之后, 外加电压持续快速下降. 这时, 介质表面积累的电荷很充足, 在此时放电空间中起着主导作用, 最终产生了幅值较强的负电流脉冲. 从文中研究的半个电压周期放电情况来看, 先后出现了4个幅值大小不同、极性相反的电流脉冲峰, 人们将这种放电现象称为多电流脉冲效应^[23-29]. 综上所述, 一定条件下, 在外加高斯电压每半个周期中出现了极性相反的多个不同幅值的放电电流脉冲, 其中, 在上升沿, 不同的电流脉冲幅值随着外加电压的增大而减少; 而在下降沿,

电流脉冲幅值随着外加电压的减小而增大.

图6是放电过程中电子密度的时空分布演化图, 图中水平y轴表示对应外加高斯电压峰的时域演化, 同时竖直x轴代表放电间隙中电子密度的空域演化. 图6(a)展示了模拟整个放电过程中电子密度的所有周期的时空分布, 其中代表电子密度较大的明亮区域是由在气隙中电子与气体分子发生碰撞产生更多电子数目引起的. 在放电初始过程中, 由于外加高斯电压不稳定和计算结果振荡等因素导致开始放电时出现无规则的放电电流(在图3(a)中未画出但在图6(a)中电子密度时空演化有所呈现, 如在0到 π 区间中). 从图中可以看到, 随着时间的推移, 放电规律逐渐趋于稳定, 电子密度呈现出周期性的时空分布规律, 这也正是文中为何选择利用其中某个稳定周期放电过程来分析研究DBD放电动力学行为的原因. 图6(b)选取了图6(a)中的一个稳定放电周期作为放大图. 从图中可以看出, 电子密度的时域分布刚好对应于图3(a)中黑色实线所示的电流密度波形分布演化. 在接近阳极附近, 也就是外加电压上升沿阶段(在水平区间 4π 到 5π), 图中出现了电子密度很高的两个峰分布, 也就是对应于图3(a)中的两个正电流脉冲峰, 表明这些时刻放电空间中电子密度很高. 紧接着转向外加电压下降沿阶段, 出现了一个绝对峰值更大的负电流脉冲, 这对应于图6(b)

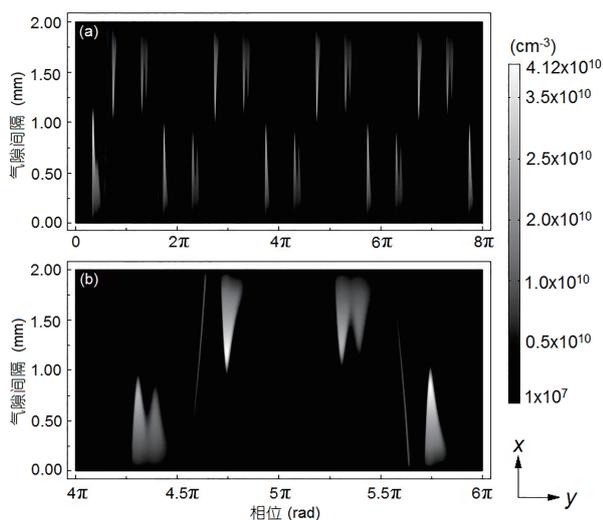


图6 电子密度的时空分布演化. (a) 放电全周期的电子密度分布; (b) 1个稳定周期放电中电子密度分布放大图
Figure 6 Spatio-temporal evolutions of the electron density. (a) All the cycles of discharge; (b) an enlarged stable cycle of discharge.

中区间为 4.5π 到 5π 的电子密度分布峰. 而在图6(b)中的 5π 到 6π 区间中, 电子密度时空演化分布对应的恰好是外加高斯电压负半周期中的放电情形, 如图3(a)所示, 这与电压正半周期的放电情况刚好相反. 同时图6(b)也表明了由于之前放电周期产生的许多电子中有一部分被残留在放电空间中. 当电场极性发生反转时, 这些电子就作为下一个放电的种子电子开始移动, 这就更容易较早地产生下一个新的残余放电. 在外加高斯电压不断下降的情况下, 在残余放电之后仅消耗了介质表面上的少量电荷, 而绝大部分的介质表面电荷在此时放电空间占主导地位, 导致反向气隙电压持续增大, 从而产生了一个在残余峰之后强度很高的负电流脉冲. 以上这些结果与电流密度随时间变化图3(a)中不同时刻放电发生的情形是一一对应的.

4 结论

本文基于一维自洽流体模型, 通过数值模拟分析了外加周期性高斯电压作为驱动源时大气压氩气DBD的放电动力学特性. 根据文中研究得出的外加高斯驱动电压、气隙电压、放电电流密度和介质表面电荷的时域分布, 描述了放电过程中出现的一些新现象, 分析并讨论了产生这些现象的深刻物理机理. 结果表明, 在文中给定的放电条件下, 放电过程中介质表面电荷和气隙空间电荷对放电模式转变起着关键性的作用. 在外加高斯电压的半个周期中, 出现了极性相反、幅值不同的多电流脉冲现象; 在上升沿, 随着外加电压的增加, 先后出现了幅值依次降低的两个正电流脉冲; 在下降沿, 随着外加电压的持续减小, 先产生了一个微小残余电流脉冲峰, 然后出现了幅值较大的负放电电流脉冲. 通过对放电过程中带电粒子和电场强度的空间演化过程的研究分析表明: 半个外加高斯电压周期的放电经历一个在汤森模式与辉光模式之间的转变过程; 高斯电压的变化是多电流脉冲效应的主要因素. 周期性高斯电压激励源的提出不仅丰富了驱动大气压DBD放电的外加激励电源的种类, 而且也为进一步探究大气压DBD放电产生的新物理现象积累了更多理论基础. 下一步将开展关于外加周期性高斯电压驱动频率、振幅以及气隙间隔等其他放电因素的变化对大气压氩气DBD放电动力学特性影响的探究工作.

参考文献

- 1 Stoffels E, Flikweert A J, Stoffels W W, et al. Plasma needle: A non-destructive atmospheric plasma source for fine surface treatment of (bio) materials. *Plasma Sources Sci Tech*, 2002, 11: 383–388
- 2 Fang Z, Qiu Y, Luo Y. Surface modification of polytetrafluoroethylene film using the atmospheric pressure glow discharge in air. *J Phys D-Appl Phys*, 2003, 36: 2980–2985
- 3 Jiang W, Tang J, Wang Y, et al. A low-power magnetic-field-assisted plasma jet generated by dielectric-barrier discharge enhanced direct-current glow discharge at atmospheric pressure. *Appl Phys Lett*, 2014, 104: 013505
- 4 Moon S Y, Choe W, Kang B K. A uniform glow discharge plasma source at atmospheric pressure. *Appl Phys Lett*, 2004, 84: 188–190
- 5 Roth J R, Rahel J, Dai X, et al. The physics and phenomenology of One Atmosphere Uniform Glow Discharge Plasma (OAUGDPTM) reactors for surface treatment applications. *J Phys D-Appl Phys*, 2005, 38: 555–567
- 6 Deng X T, Shi J J, Shama G, et al. Effects of microbial loading and sporulation temperature on atmospheric plasma inactivation of *Bacillus subtilis* spores. *Appl Phys Lett*, 2005, 87: 153901
- 7 Takao Y, Ono K. A miniature electrothermal thruster using microwave-excited plasmas: A numerical design consideration. *Plasma Sources Sci Tech*, 2006, 15: 211–227
- 8 Kogelschatz U. Dielectric-barrier discharges: Their history, discharge physics, and industrial applications. *Plasma Chem Plasma Process*, 2003, 23: 1–46
- 9 Andrews T, Tait P G. On the volumetric relations of ozone, and the action of the electrical discharge on oxygen and other gases. *Phil Trans Roy Soc London*, 1860, 150: 113–131
- 10 Siemens W. Ueber die elektrostatische induction und die verzögerung des stroms in flaschendrähnen. *Ann Phys Chem*, 1857, 178: 66–122
- 11 Massines F, Rabehi A, Decomps P, et al. Experimental and theoretical study of a glow discharge at atmospheric pressure controlled by dielectric barrier. *J Appl Phys*, 1998, 83: 2950–2957
- 12 Liu Z, Yang L, Wang Z, et al. Atmospheric pressure radio frequency dielectric barrier discharges in nitrogen/argon. *Plasma Sci Tech*, 2013, 15: 871–874
- 13 Shao X J, Ma Y, Li Y X, et al. One-dimensional of low pressure xenon dielectric barrier discharge (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2010, 59: 8747–8754 [邵先军, 马跃, 李娅西, 等. 低气压氙气介质阻挡放电的一维仿真研究. 物理学报, 2010, 59: 8747–8754]
- 14 Trunec D, Brablec A, Buchta J. Atmospheric pressure glow discharge in neon. *J Phys D-Appl Phys*, 2001, 34: 1697–1699
- 15 Li X C, Li J Y, Zhang C Y. Discharge characteristics of a brush-shaped argon plasma plume driven by a direct-current voltage (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2015, 45: 095201 [李雪辰, 李霁媛, 张春艳. 直流驱动氩气等离子体刷的放电特性研究. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2015, 45: 095201]
- 16 Jiang W, Tang J, Wang Y, et al. Characterization of argon direct-current glow discharge with a longitudinal electric field applied at ambient air. *Sci Rep*, 2014, 4: 6323
- 17 Liu F C, He Y F, Wang X F. Mode transition in homogenous dielectric barrier discharge in argon at atmospheric pressure. *Chin Phys B*, 2014, 23: 075209
- 18 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 [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]
- 19 Becker M M, Hoder T, Brandenburg R, et al. Analysis of microdischarges in asymmetric dielectric barrier discharges in argon. *J Phys D-Appl Phys*, 2013, 46: 355203
- 20 Nie Q Y, Zhang X F, Li H P, et al. Advances of atmospheric-pressure dielectric-barrier-discharge plasma jets (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2014, 44: 1157–1169 [聂秋月, 张晓菲, 李和平, 等. 大气压介质阻挡放电等离子体射流源研究进展. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2014, 44: 1157–1169]
- 21 Zhu S, Jiang W, Tang J, et al. Influence of longitudinal argon flow on DC glow discharge at atmospheric pressure. *Jpn J Appl Phys*, 2016, 55: 056202
- 22 Zhang Z H, Shao X J, Zhang G J, et al. One-dimensional simulation of dielectric barrier glow discharge in atmospheric pressure Ar (in Chinese). *Acta Phys Sin*, 2012, 61: 045205 [张增辉, 邵先军, 张冠军, 等. 大气压氩气介质阻挡放电的一维仿真研究. 物理学报, 2012, 61: 045205]
- 23 Lü B, Wang X X, Luo H Y, et al. Characterizing uniform discharge in atmospheric helium by numerical modelling. *Chin Phys B*, 2009, 18: 646–651
- 24 Mangolini L, Orlov K, Kortshagen U, et al. Radial structure of a low-frequency atmospheric-pressure glow discharge in helium. *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 1722–1724
- 25 Golubovskii Y B, Maiorov V A, Behnke J, et al. Modelling of the homogeneous barrier discharge in helium at atmospheric pressure. *J Phys D-Appl*

- [Phys](#), 2003, 36: 39–49
- 26 Hao Y P, Yang L, Tu E L, et al. Experimental study on mode and mechanism of multi-pulse atmospheric-pressure glow discharges (in Chinese). [Acta Phys Sin](#), 2010, 59: 2610–2615 [郝艳捧, 阳林, 涂恩来, 等. 实验研究大气压多脉冲辉光放电的模式和机理. 物理学报, 2010, 59: 2610–2615]
- 27 Jiang W, Tang J, Wang Y, et al. Influence of driving frequency on discharge modes in a dielectric-barrier discharge with multiple current pulses. [Phys Plasmas](#), 2013, 20: 073509
- 28 Radu I, Bartnikas R, Czeremuszkin G, et al. Diagnostics of dielectric barrier discharges in noble gases: Atmospheric pressure glow and pseudoglow discharges and spatio-temporal patterns. [IEEE Trans Plasma Sci](#), 2003, 31: 411–421
- 29 Wang Y H, Wang D Z. Study on homogeneous multiple-pulse barrier discharge at atmospheric pressure (in Chinese). [Acta Phys Sin](#), 2005, 54: 1295–1300 [王艳辉, 王德真. 大气压下多脉冲均匀介质阻挡放电的研究. 物理学报, 2005, 54: 1295–1300]
- 30 Ha Y, Wang H, Wang X. Modeling of asymmetric pulsed phenomena in dielectric-barrier atmospheric-pressure glow discharges. [Phys Plasmas](#), 2012, 19: 012308
- 31 Luo H, Liang Z, Lv B, et al. Observation of the transition from a Townsend discharge to a glow discharge in helium at atmospheric pressure. [Appl Phys Lett](#), 2007, 91: 221504
- 32 Wang Q, Sun J, Wang D. Numerical investigation on operation mode influenced by external frequency in atmospheric pressure barrier discharge. [Phys Plasmas](#), 2011, 18: 103504
- 33 Shi J J, Zhang J, Qiu G, et al. Modes in a pulse-modulated radio-frequency dielectric-barrier glow discharge. [Appl Phys Lett](#), 2008, 93: 041502
- 34 Walsh J L, Shi J J, Kong M G. Submicrosecond pulsed atmospheric glow discharges sustained without dielectric barriers at kilohertz frequencies. [Appl Phys Lett](#), 2006, 89: 161505
- 35 Lu X P, Laroussi M. Temporal and spatial emission behaviour of homogeneous dielectric barrier discharge driven by unipolar sub-microsecond square pulses. [J Phys D-Appl Phys](#), 2006, 39: 1127–1131
- 36 Huang X, Sun L, Liu X, et al. Discharge dynamics and characteristics of atmospheric glow discharge excited by sub-microsecond high voltage pulses. [Thin Solid Films](#), 2011, 519: 7036–7041
- 37 Li X, Niu D, Yin Z, et al. Numerical simulation of operation modes in atmospheric pressure uniform barrier discharge excited by a saw-tooth voltage. [Phys Plasmas](#), 2012, 19: 083505
- 38 Zhang D, Wang Y, Wang D. Radial behavior of the pulsed dielectric-barrier discharge in atmospheric helium. [Phys Plasmas](#), 2012, 19: 123511
- 39 Wang Q, Sun J, Zhang J, et al. Numerical simulation of atmospheric-pressure helium discharge driven by combined radio frequency and trapezoidal pulse sources. [Phys Plasmas](#), 2010, 17: 053506
- 40 Rafatov I, Bogdanov E A, Kudryavtsev A A. Account of nonlocal ionization by fast electrons in the fluid models of a direct current glow discharge. [Phys Plasmas](#), 2012, 19: 093503
- 41 Hagelaar G J M, Pitchford L C. Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models. [Plasma Sources Sci Tech](#), 2005, 14: 722–733
- 42 Dyatko N A, Ionikh Y Z, Kochetov I V, et al. Experimental and theoretical study of the transition between diffuse and contracted forms of the glow discharge in argon. [J Phys D-Appl Phys](#), 2008, 41: 055204
- 43 Shao X, Zhang G, Kawada M, et al. Simulation study on multi-pulse phenomena of atmospheric pressure argon dielectric barrier discharge. [Plasma Sci Tech](#), 2011, 13: 708–713
- 44 Shao X J, Ma Y, Li Y X, et al. Simulation analysis on dielectric barrier glow discharge in short Ar gap under atmospheric pressure (in Chinese). [High Voltage Eng](#), 2010, 36: 2047–2052 [邵先军, 马跃, 李娅西, 等. 大气压短间隙Ar介质阻挡辉光放电的模拟分析. 高压电技术, 2010, 36: 2047–2052]
- 45 Richards A D, Thompson B E, Sawin H H. Continuum modeling of argon radio frequency glow discharges. [Appl Phys Lett](#), 1987, 50: 492–494
- 46 Scharfetter D L, Gummel H K. Large-signal analysis of a silicon Read diode oscillator. [IEEE Trans Electron Devices](#), 1969, 16: 64–77
- 47 Jiang W, Li J, Tang J, et al. Prediction of nested complementary pattern in argon dielectric-barrier discharge at atmospheric pressure. [Sci Rep](#), 2015, 5: 16391
- 48 Lee D, Park J M, Hong S H, et al. Numerical simulation on mode transition of atmospheric dielectric barrier discharge in helium-oxygen mixture. [IEEE Trans Plasma Sci](#), 2005, 33: 949–957
- 49 Tang J, Jiang W, Li J, et al. Observation and interpretation of energy efficient, diffuse direct current glow discharge at atmospheric pressure. [Appl Phys Lett](#), 2015, 107: 083505
- 50 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

Characterization and mechanism studies of argon dielectric barrier discharge excited by a Gaussian voltage at atmospheric pressure

XU YongGang^{1,2}, ZHU Sha², TANG Jie^{2*}, JIANG WeiMan², WANG YiShan²,
LI YongFang¹, ZHAO Wei² & DUAN YiXiang^{2,3}

¹ School of Physics and Information Technology, Shanxi Normal University, Xi'an 710119, China;

² State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics of Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710119, China;

³ Research Center of Analytical Instrumentation, College of Life Science, Sichuan University, Chengdu 610064, China

A one-dimensional self-consistent fluid model is employed to investigate the atmospheric-pressure argon dielectric-barrier discharge (DBD) excited by periodic Gaussian voltage. With the driving frequency, voltage amplitude, and gas gap set at certain values, the temporal evolutions of discharge current density and gas voltage are obtained, together with the spatial distributions of electron and ion densities and electric field. Simulation results indicate that there are two discharge modes: Townsend and glow modes in the multi-current pulse discharge. A mutual transition between the Townsend mode and glow one occurs during each half cycle of the applied Gaussian voltage. The space charges in the gas gap and the surface charges on the dielectrics play a key role in the transition between the two discharge modes. Additionally, a residual current peak is observed during the falling phase of each half cycle. This is resulted from the fact that amounts of space charges are trapped in the gas gap during the rising phase of the applied Gaussian voltage. These findings contribute much to the design of plasma excitation source in applications, such as materials processing, pollution control, and biomedical sterilization.

dielectric barrier discharge, Gaussian voltage, multi-current pulse, mode transition

PACS: 52.50.Dg, 52.80.Tn, 52.80.Hc, 51.50.+v

doi: [10.1360/SSPMA2016-00218](https://doi.org/10.1360/SSPMA2016-00218)