

大气压射频介质阻挡放电辉光放电和丝状放电的 时空演化比较

李森¹, 潘杰¹, 王琳¹, 陈强², 刘忠伟²

(1.上海出版印刷高等专科学校, 上海 200093;

2.北京印刷学院等离子体物理及材料研究室, 北京 102600)

摘要: **目的** 为研究大气压射频(13.56 MHz)介质阻挡放电(rf-DBD)在辉光放电和丝状放电2种模式下的电离形式, 以及在一个放电周期(73.7 ns)内气体电离与时间和空间的关系。**方法** 实验使用氩气获得稳定的辉光放电, 使用氩气掺杂氮气获得丝状放电。实验中使用电流正向过零点的信号触发ICCD相机获得一个放电周期内不同时间点的36张照片, 得出放电间隙之间不同位置的发光强度在一个周期内随时间的变化关系。**结果** 在 α 模式下, 每半个周期所产生的一次电子雪崩在空间和时间上都是从阴极到阳极的过程。在 γ 模式下存在负辉现象, 并且在阴极电极的介质表面, 负辉强度峰值的时间比体电离强度峰值时间晚约13 ns。在丝状放电中, 等离子体的发光强度主要集中在阴极表面, 介质表面积累的电荷之间的互相作用力使得放电形成单独的细小通道。**结论** α 模式以体电离为主, 而 γ 模式下除了体电离, 还有离子撞击阴极表面产生的大量二次电子, 并且比体电离的产生更晚。在丝状放电中, 电极表面电荷作用明显, 阴极介质表面的电离为放电的主要形式。

关键词: 大气压; 介质阻挡放电; 放电模式

中图分类号: O539 文献标识码: A 文章编号: 1001-3563(2022)19-0128-06

DOI: 10.19554/j.cnki.1001-3563.2022.19.014

Comparison of Spatial-temporal Evolution of Glow Discharge and Filament Discharge in Radio Frequency Dielectric Barrier Discharge at Atmospheric Pressure

LI Sen¹, PAN Jie¹, WANG Lin¹, CHEN Qiang², LIU Zhong-wei²

(1. Shanghai Publishing and Printing College, Shanghai 200093, China; 2. Laboratory of Plasma Physics and Materials, Beijing Institute of Graphic Communication, Beijing 102600, China)

ABSTRACT: The work aims to study the ionization modes of glow discharge and filament discharge in radio frequency barrier discharge (rf-DBD) at atmospheric pressure (13.56 MHz) and explore the relationship between gas ionization and time and space during one period (73.7 ns). Argon was used to obtain stable glow discharge while filament discharge was obtained by argon doped with nitrogen. In the experiment, ICCD camera was triggered when current crossed zero forward to capture 36 photos at different time points during one period, and the relationship between intensity and time at different positions in the discharge gap during one period was obtained. In α mode, the generation of electron avalanche took place from cathode to anode both spatially and temporally every half period. In γ mode, there was negative glow, and on the dielectric surface of the cathode electrode, the peak time of the intensity of negative glow was about 13 ns later than that of volume ionization. In filament discharge, the luminescence intensity of plasma was mainly concentrated on

收稿日期: 2021-09-13

基金项目: 上海市教育委员会、上海市教育发展基金会“晨光计划”(16CGB10)

作者简介: 李森(1987—), 男, 硕士, 讲师, 主要研究方向为大气压等离子体

the cathode surface. The interaction force between the charges accumulated on the surface of the medium caused the generation of independent small channels. Therefore, in α mode, volume ionization is dominant, while in γ mode, in addition to volume ionization, abundant secondary electrons are generated by the impinging of ions on the cathode surface, occurring later than volume ionization. In filament discharge, the charge on the dielectric surface plays an important role, and the ionization on the surface of the cathode medium is the main form of discharge.

KEY WORDS: atmospheric pressure; dielectric barrier discharge; discharge mode

塑料包装材料应用广泛, 市场十分庞大, 但是由于其阻隔性普遍不高, 许多包装不得不使用成本更高的玻璃和金属包装, 例如啤酒。等离子体作为一种较新的技术手段, 在包装材料的改性方面得到越来越多的关注。在等离子体的应用中, 大气压条件下产生的等离子体由于无需抽真空, 设备和维护成本更低, 因此更适用于工业生产。目前, 对大气压等离子体在包装材料改性方面的研究较多的是使用等离子体枪聚合 SiO_x 薄膜和类金刚石 (DLC) 薄膜^[1-4], 而等离子体枪由于体积小, 很难对面积较大的材料改性提高效率, 因此理论上, 大面积的辉光放电是获得高效率、大面积材料改性的潜在方法。目前, 使用射频电源进行介质阻挡放电 (DBD) 是获得大体积辉光放电的最可行的方法^[5-11]。绝大部分的研究还在理论阶段, 人们对大气压射频介质阻挡放电 (rf-DBD) 的放电机理、模拟和斑图等进行了大量的研究^[12-23]。大量实验表明, rf-DBD 中存在 α 模式和 γ 模式^[6-9]。 α 模式放电的机理是电子雪崩引起的体电离。在每个射频放电周期中, 前半周期和后半周期存在 2 个方向相反的体电离的过程。当电场强度达到一定值, 在半个周期内足够使加速带正电的氩离子到达一定的速度破坏鞘层, 从而直接撞击到电介质表面, 产生大量的二次电子, 放电就进入了 γ 模式, 因此, 区分这 2 种放电模式的一个重要标志就是负辉。Kong 的团队较早就使用 ICCD 相机捕捉到放电周期 (电流) 的 1/4 周期和 3/4 周期的负辉光照片, 作为 rf-DBD 模式转变的证据^[6-11], 但是大气 rf-DBD 在一个射频周期内的时间特性, 如发生的时间点和持续时间等还鲜有报道。文中使用 ICCD 相机在一个射频周期内拍摄了 36 张照片, 根据在不同功率下, 不同等离子体位置在一个周期内发光强度的变化, 研究辉光放电和丝状放电的时间演化特征。

1 实验设备

实验使用的放电装置见图 1, 放电电极为 2 块面积为 $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$ 的铜电极, 并在放电中使用水循环进行冷却。电源采用的是最大功率为 2 kW、频率为 13.56 MHz 射频电源, 通过自动匹配器连接下电极, 上电极接地。整个实验过程中 2 个电极分别被 2 片石英片覆盖 ($140 \text{ mm} \times 140 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$), 石英片之间的距离, 即放电间隙固定为 4.4 mm。放电气体先

进入电极左边的混气室, 再通过筛板上的小孔均匀地进入放电间隙。实验中放电的电压以及电流数据由电压探头 (泰克 P6015A) 与电流探头 (泰克 6021AC) 获得, 使用示波器 (泰克 DPO 4104) 采集信号。实验中使用 ICCD 照相机 (Princeton Instruments-PI-MAX2) 对等离子体进行拍照, ICCD 照相机被放置在能够瞄准放电间隙中间的位置。另外, 光谱数据由发射光谱仪 Avantes Avaspec 2048 (分辨率为 0.12 nm) 获得。

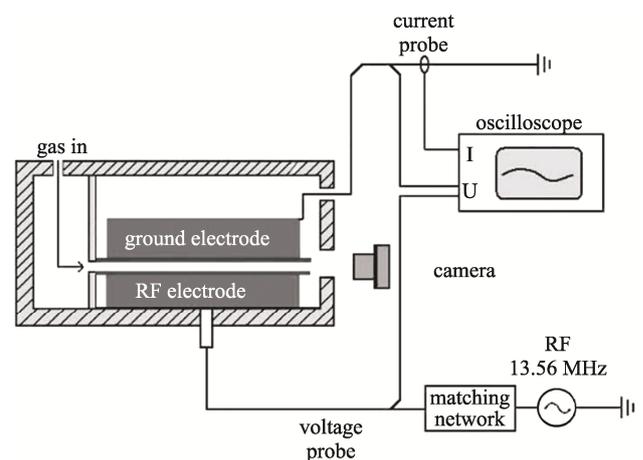


图 1 实验设备
Fig.1 Experimental set-up

2 数据与分析

2.1 氩气双介质辉光放电

放电间隙为 4.4 mm 的双介质氩气放电的电流-电压 ($I-V$) 曲线及电流-相位角 ($I-P$) 曲线见图 2。从图 2 中可以看出, 点 1 到点 2 电压几乎没有变化, 这对应等离子体充满放电间隙的过程, 随后电压随电流的增加而增大, 两者呈现线性关系。当电流、电压到达点 8 位置时, 继续增大功率, 发现电流发生了下降, 电压继续上升 (点 9)。从以往的实验可以推断出放电从 α 模式进入了 γ 模式, $I-V$ 曲线从点 9 之后表现为电压继续随电流的增加而增大。从相位角的变化也能看出, 等离子体在模式转变后发生明显变化。目前研究认为, α 模式下, 电离是由电子雪崩引起的, 每个周期内电场方向发生一次改变, 因此存在 2 个方

向相反的电离过程。在射频频率为 13.56 MHz 条件下, 氩气击穿后电子在放电间隙中被捕获, 电离在一个周期内是持续的。在 γ 模式下, 除了电子雪崩引起的体电离之外, 带正电的氩离子被加速, 获得足够的速度破坏了等离子体鞘层, 直接撞击介质表面, 产生大量二次电子, 从而出现负辉现象。众多实验通过 ICCD 照相机拍摄到 α 模式下等离子体强度的整体暗亮变化^[8-10], 以及 γ 模式下的负辉现象。 α 模式和 γ 模式下的等离子体照片分别见图 3a 和图 3b, 图 3a 和图 3b 分别对应图 2 中的点 1 和点 12。由图 3 可以看出, 在低功率的 α 模式下, 等离子体的强度在纵向上较为均匀, 而在高功率的 γ 模式下, 等离子体的发光强度集中在介质表面。为了进一步研究 2 种放电模式的机理, 实验使用 ICCD 进行了更为深入研究。

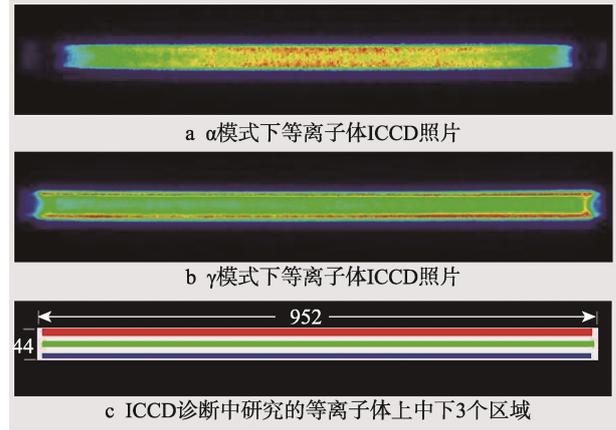


图3 等离子体 ICCD 照片及 ICCD 诊断示意图
Fig.3 ICCD photos of plasma and schematic diagram of ICCD diagnosis

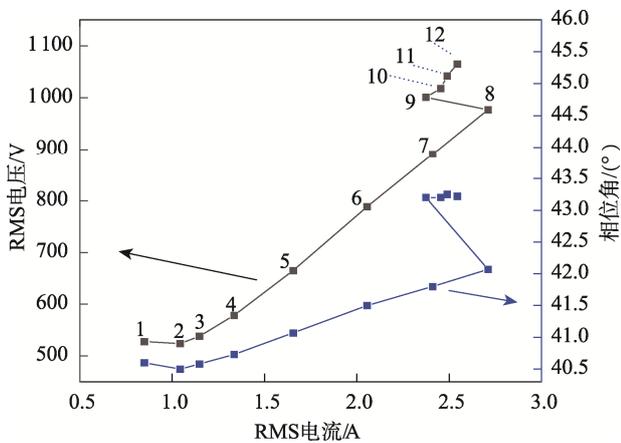


图2 双介质(放电间隙为 4.4 mm)氩气放电电流电压曲线及电流相位角曲线
Fig.2 Current-voltage curve and current phase angle curve of double dielectric (4.4 mm) argon discharge

实验使用电流正向过零点的信号触发 ICCD 照相机拍摄, 再计算线路以及拍摄距离引起的延迟, 即可获得电流正向过零点开始曝光的照片。然后再使用延迟拍摄功能, 即可得到 1 个周期 73.7 ns 内任意位置的一段曝光的照片。实验使用单次曝光时间为 2 ns 进行拍摄, 在一个周期内获得了 36 张 ICCD 照片。

如图 3 所示, 曝光时间均为 100 μ s。由于等离子体发光强度在纵向上存在差异, 即等离子体中央区域与介质表面不同, 所以把等离子体上电极介质表面、中间区域、下电极介质表面分开进行研究。ICCD 的照片为分辨率 1 024 \times 1 024 的灰度图, 其中等离子体的区域为 952 \times 44 (横向 \times 纵向)。实验将等离子体区域中最上方的 8 行像素、中间 8 行像素、下方 8 行像素的强度计算平均值, 如图 3c 所示, 得到了等离子体上中下 3 个部分发光强度的平均值在一个周期 (0~73.7 ns) 内随着功率和时间变化的三维图, 见图 4。

从图 4 可以看出, 3 个区域的强度在一个周期的任意时间点都是随着功率的增加而变强的。在 α 模式下, 3 个区域强度的曲线均为 2 个波, 这与电流在一个周期的 2 个波是对应的。从得到的结果发现, 3 个区域第 1 个波的波峰位置却不一样。在前半周期, 最早出现波峰的是上电极介质表面, 然后是中间、下电极介质表面, 时间分别约为 17.71、20.11、20.53 ns。下半周期则是刚好相反, 最早是下电极介质表面, 然后时候中间、上电极介质表面, 时间分别约为 54.51、56.8、57.25 ns。由于前半周期的上电极和下半周期的下电极都是阴极, 所以这 2 个过程的时间特性表现是一样的。从时间上看, 电子加速引起的电子雪崩是阴极向阳极的过程, 从 2 个介质表面强度的波峰位置看, 时间约为 2.8 ns。

当放电转变为 γ 模式后, 前半周期的上电极(阴极)介质表面(图 4a)和后半周期的下电极(阴极)介质表面(图 4c)在体电离的强度波峰之后, 出现了新的波峰, 并且这个新的峰随着功率增高迅速增高。可以判断, 新出现的峰是负辉现象。至于为什么它比体电离引起的第 1 个峰的时间要晚约 13 ns, 分析认为有 2 点原因: 离子质量要比电子大得多, 加速慢; 离子还需要撞击介质表面产生二次电子, 过程更长, 因此造成这个明显的时间差。

2.2 氩气+氮气双介质丝状放电

为了得到丝状放电, 实验使用氩气掺杂氮气作为放电气体, 氩气流速为 2 L/min, 氮气流速为 200 mL/min, 放电间隙仍然为 4.4 mm。在电压达到一定值后会转变为丝状放电^[24], 不同于辉光放电下的 α 和 γ 模式, 丝状模式的转变直接肉眼就能观察到。笔者所在实验室曾使用水电极观察到这些放电丝会形成六边形的自组织斑图^[25], 同时放电丝随着气流的方向, 从内向外不断地缓慢移动。文中重点研究在丝状放电的模式下, 等离子体在一个周期内的时空演化特点。

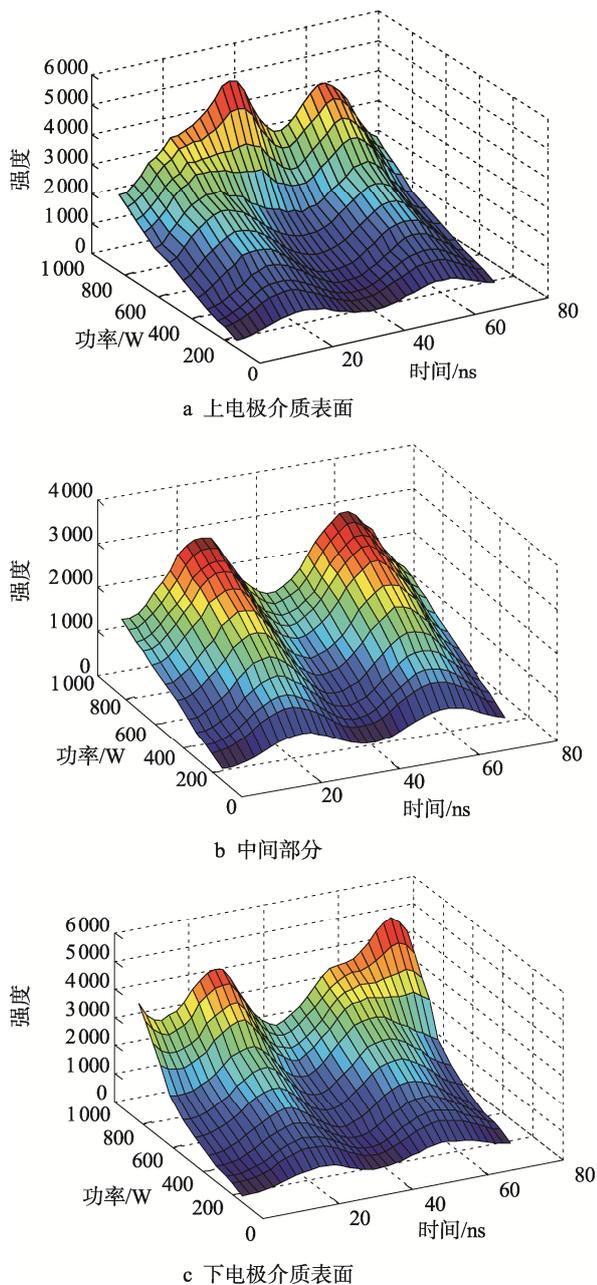


图 4 等离子体不同位置发光强度随功率在一个周期内的变化
 Fig.4 Change of luminescence intensity of plasma at different positions with time in one period

4.4 mm 双介质氩气掺杂氮气放电的照片见图 5, 电源功率为 620 W, 拍摄曝光时间为 100 μ s。由图 5 可以看出, 等离子体强度在放电间隙的分布是介质表面强, 中间弱, 因此, 使用与诊断辉光放电 γ 模式的同样方法, 对 2 个电介质表面以及中间 3 个区域的强度进行了研究, 结果见图 6。不同于中频 DBD 放电形成的脉冲形式, 实验中间隙之间的放电丝的各个区域在一个射频周期 (73.7 ns) 内是不熄灭的, 也就是整个放电丝的通道是一直处于电离状态。图 6 中代表放电丝中间区域的发光强度曲线在一个周期内的波动很小, 强度在 300 左右浮动。上下 2 个介质表面的等

离子体发光强度在一个周期内变化幅度很大, 从 350 到 1 000。上电极表面强度曲线最强的一个峰在 32.7 ns 左右, 前半周期上电极为阴极, 这是带正电离子轰击阴极的结果。在这个峰之后, 强度并没有逐渐下降, 而是在 53 ns 左右出现了第 2 次增强。分析认为, 53 ns 这个时间和 3/4 周期时间点非常接近, 第 2 次增强是介质表面残留电荷在电子加速轰击下的结果。在 32.7 ns 的第 1 个峰峰值位置已经快接近 1/2 周期的时间, 主要是离子质量大导致的滞后。这种丝状放电模式下, 介质表面电荷作用明显, 不同位置累积起来的电荷之间又产生排斥力, 最终呈现出一个个的放电丝。

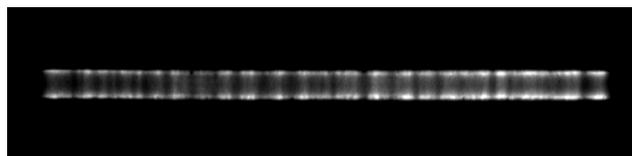


图 5 4.4 mm 双介质丝状放电照片
 Fig.5 Photo of 4.4 mm double dielectric filament discharge

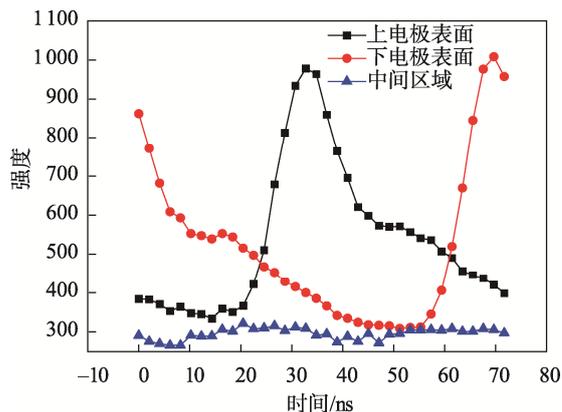


图 6 丝状放电上电极介质表面、中间以及下电极介质表面发光强度随时间的变化
 Fig.6 Change of luminescence intensity on top electrode dielectric surface, middle and bottom electrode dielectric surface of filament discharge with time

3 结语

基于 ICCD 诊断的研究表明, 大气压下, 放电间隙为 4.4 mm 的氩气双介质阻挡放电存在 2 种放电模式。在 α 模式下, 2 个电介质之间的电子雪崩为每半个周期发生一次。从等离子体强度看, 阴极表面的电子雪崩发生的最早也结束的最早, 其产生的过程越到阳极越晚。转为 γ 模式后, 出现了负辉光。在阴极介质表面, 负辉的产生与体电离在相同的半个周期内的发生有一定的间隔。阴极表面负辉最强的时间与体电离最强的时间约为 13 ns。在使用氩气加氮气得到的丝状放电模式下, 电离仅存在于细小的放电通道空间

内。同时,介质表面电荷作用明显,电离主要的形式为放电丝通道内正离子轰击阴极介质表面。氩气辉光放电的 γ 模式与丝状放电虽然都是离子轰击阴极介质表面,但前者的结果主要是均匀地产生大量二次电子,而后者是在放电丝通道存活的等离子体的作用和表面电荷排斥作用下,电离结果仅维持在放电丝通道内。

参考文献:

- [1] SE B, VJ T, PARK J, et al. Deposition of Silicon Dioxide Films with an Atmospheric-Pressure Plasma Jet[J]. *Plasma Sources Science & Technology*, 1998, 7(3): 286-288.
- [2] 韩尔立, 陈强, 张广秋, 等. 大气压聚合 SiO_x 薄膜用于新型印刷板材的研究[J]. *包装工程*, 2005(4): 1-3.
HAN Er-li, CHEN Qiang, ZHANG Guang-qiu, et al. The Research of SiO_x Film Polymerization with DBD Plasma Gun and Application in New Type of Printing Board Material[J]. *Packaging Engineering*, 2005(4): 1-3.
- [3] 付亚波, 桑立军, 常龙龙, 等. DBD 等离子体合成类金刚石薄膜及其性能表征[J]. *包装工程*, 2008, 29(12): 44-46.
FU Ya-bo, SANG Li-jun, CHANG Long-long, et al. Synthesis of Diamond-Like Carbon Films by Dielectric Barrier Discharge Plasma and Its Characterization[J]. *Packaging Engineering*, 2008, 29(12): 44-46.
- [4] FRACASSI F, D'AGOSTINO R, PALUMBO F, et al. Application of Plasma Deposited Organosilicon Thin Films for the Corrosion Protection of Metals[J]. *Surface & Coatings Technology*, 2003, 174: 107-111.
- [5] MUÑOZ J, CALZADA M D. Experimental Research on Surface Wave Ar-He Discharges at Atmospheric Pressure[J]. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2008, 41: 135203.
- [6] SHI J J, LIU D W, KONG M G. Effects of Dielectric Barriers in Radio-Frequency Atmospheric Glow Discharges[J]. *IEEE Trans. Plasma Sci.* 2007, 35: 137-142.
- [7] LI G, LI H P, SUN W T. Discharge Features of Radio-Frequency, Atmospheric-Pressure Cold Plasmas under an Intensified Local Electric Field[J]. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2008, 41: 202001.
- [8] SHI J J, KONG M G. Expansion of the Plasma Stability Range in Radio-Frequency Atmospheric-Pressure Glow Discharges[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 87(20): 201501.
- [9] WALSH J L, CAO Zhi, KONG M G. Atmospheric Dielectric-Barrier Discharges Scalable from 1 mm to 1 M[J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2008, 36(4 PART 1): 1314-1315.
- [10] SHI J J, KONG M G. Radio-Frequency Dielectric-Barrier Glow Discharges in Atmospheric Argon[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(11): 111502.
- [11] WALSH J L, IZA F, KONG M G. Atmospheric Glow Discharges from the High-Frequency to very High-Frequency Bands[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93(25): 251502.
- [12] MOISAN M, BARBEAU J, MOREAU S, et al. Low-Temperature Sterilization Using Gas Plasmas: A Review of the Experiments and an Analysis of the Inactivation Mechanisms[J]. *International Journal of Pharmaceutics*, 2001, 226(1/2): 1-21.
- [13] 高书涵, 王绪成, 张远涛. 脉冲调制条件下介质阻挡特高频放电特性的数值模拟[J]. *物理学报*, 2020, 69(11): 160-169.
GAO Shu-han, WANG Xu-cheng, ZHANG Yuan-tao. Numerical Study on Discharge Characteristics in Ultra-High Frequency Band Modulated by Pulses with Electrodes Covered by Barriers[J]. *Acta Physica Sinica*, 2020, 69(11): 160-169.
- [14] 万海容, 郝艳捧, 房强, 等. 大气压氦气介质阻挡放电单-多柱演化动力学[J]. *物理学报*, 2020, 69(14): 163-172.
WAN Hai-rong, HAO Yan-peng, FANG Qiang, et al. Evolutionary Dynamics of Single-Multiple Columns in Atmospheric Helium Dielectric Barrier Discharge[J]. *Acta Physica Sinica*, 2020, 69(14): 163-172.
- [15] 黄民双, 许友文, 程苗. 大气压大体积非平衡等离子体放电技术[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(5): 50-62.
HUANG Min-shuang, XU You-wen, CHENG Miao. Atmospheric Pressure and Large Volume Non - Equilibrium Plasma Discharge Technology[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021(5): 50-62.
- [16] 王学禹, 罗日成, 吴勤斌, 等. 大气压不同脉冲上升时间的介质阻挡放电仿真研究[J]. *真空科学与技术学报*, 2020, 40(12): 1137-1142.
WANG Xue-yu, LUO Ri-cheng, WU Qin-bin, et al. Rise-Time Effect on Atmospheric Pulsed Dielectric Barrier Discharge: A Simulation Study Time at Atmospheric Pressure[J]. *Chinese Journal of Vacuum Science and Technology*, 2020, 40(12): 1137-1142.
- [17] SAFDAR H, QAZI HAFIZ I A, MALIK A A, et al. Glow Modes in Radio Frequency Atmospheric Discharge Operating with and without Anodized Elec-

- trodes[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2014, 42(10): 2410-2411.
- [18] SHI J J, LIU D W, KONG M G. Mitigating Plasma Constriction Using Dielectric Barriers in Radio-Frequency Atmospheric Pressure Glow Discharges[J]. Applied Physics Letters, 2007, 90(3): 031505.
- [19] KUNHARDT E E. Generation of Large-Volume, Atmospheric-Pressure, Nonequilibrium Plasmas[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2000, 28(1): 189-200.
- [20] LI B, CHEN Q, LIU Z W. A Large Gap of Radio Frequency Dielectric Barrier Atmospheric Pressure Glow Discharge[J]. Applied Physics Letters, 2010, 96(4): 041502.
- [21] LI Xue-chen, LIU Rui, GONG Dan-dan, et al. Influence of External Parameters on Nonlinear Behaviors in a Helium Dielectric-Barrier Discharge Excited by a Modulated Voltage[J]. Physics of Plasmas, 2019, 26(2): 023514.
- [22] LUO Ling, WANG Qiao, DAI Dong, et al. A Practical Method for Controlling the Asymmetric Mode of Atmospheric Dielectric Barrier Discharges[J]. Applied Sciences, 2020, 10(4): 1341.
- [23] NISHIME T M C, WANNICKE N, HORN S, et al. A Coaxial Dielectric Barrier Discharge Reactor for Treatment of Winter Wheat Seeds[J]. Appl Sci, 2020, 10: 7133.
- [24] 李森, 潘杰, 陈辰, 等. 从I-V曲线判断大气压射频介质阻挡放电模式[J]. 真空科学与技术学报, 2019, 39(4): 326-331.
- LI Sen, PAN Jie, CHEN Chen, et al. Discharging Mode of Atmospheric RF Dielectric Barrier Discharge: An Experimental Study[J]. Chinese Journal of Vacuum Science and Technology, 2019, 39(4): 326-331.
- [25] LI S, LIU Z W, CAI H P, et al. The Hexagon Pattern Formed in Radio Frequency Dielectric Barrier Discharge at Atmospheric Pressure[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2011, 39(11): 2134-2135.

责任编辑: 曾钰婵