

大气压直流滑动弧等离子体工作特性研究*

倪明江¹⁾ 余量¹⁾ 李晓东¹⁾ 屠昕²⁾ 汪宇¹⁾ 严建华^{1)†}

1) (浙江大学能源清洁利用国家重点实验室, 杭州 310027)

2) (The University of Manchester, Manchester, M13 9PL, UK)

(2010年3月1日收到; 2010年3月24日收到修改稿)

对大气压直流滑动弧等离子体的电参数和发射光谱进行了测量, 比较研究了不同气体种类下滑动弧等离子体电压的特性. 以氮气滑动弧为例, 分析了其在一个周期内电弧电压、电流、电阻和功率的变化特性. 通过对电弧电压信号进行快速傅里叶变换频谱分析, 研究了气体种类、气体流量和外部电阻值对滑动弧等离子体脉动特性的影响. 结果表明随着气流量或外部电阻值的增加, 其主要脉动频率变高, 电弧周期变小. 利用光谱法检测了氮气、氧气和空气滑动弧等离子体的主要自由基种类, 并研究了外部电阻值对发射光谱强度的影响和沿电极中轴线在 337.1 nm ($N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$, $\Delta v=0$) 处发射光谱强度的变化. 结果表明发射光谱强度随外部电阻值增加而变小, 沿电极中轴线先增加后减小, 在等离子体区域外急剧减小.

关键词: 滑动弧等离子体, 非平衡等离子体, 脉动特性, 发射光谱

PACS: 51.50.+v, 51.70.+f, 52.25.Gj

1. 引言

由于非平衡等离子体具有大量的高能电子, 活性基团和较大的温度调节范围, 它在环境治理, 能源转化, 材料处理和生物医学等方面有广泛的应用前景^[1-5]. 滑动弧放电是一种气体放电等离子体发生方式, 可以在常压下产生一种周期性的非平衡等离子体^[6]. 该技术的基本原理是在一对或者多个电极间加上电压并通过气流, 在电极之间的最窄处气体被击穿形成电弧, 电弧被气流吹动并向下游移动, 同时电弧长度随着电极间距的增大而增大; 当电弧长度达到临界长度时电弧熄灭, 同时在电极最窄处形成新的电弧并重复上述放电过程.

由于滑动弧等离子体发生装置简单, 近年来这种等离子体得到了各国研究人员的青睐. 20世纪90年代, Czernichowski 率先将滑动弧等离子体应用于 CH_4 与 CO_2 反应制取合成气和 H_2S 降解的工艺中^[7]. 随后, Benstaali 等人利用潮湿的空气产生滑动弧等离子体并利用其处理污水^[8]. Krawczyk 等人联合利用滑动弧等离子体和催化技术实现 NO_x 的转化^[9]. Lin, Xia 等人对滑动弧的非平衡特

性和磁驱动滑动弧的电弧尺寸及运动速度进行了研究^[10,11]. Yan 等人在开展了在环境治理方面滑动弧等离子体技术的应用研究: 分别利用气体放电对挥发性有机物和利用气液两相放电处理高浓度有机废水^[12-15].

但是由于滑动弧放电是一种周期性振动非平衡等离子体, 等离子体发生电路, 载气种类和流量都会对该等离子体的特性有较明显的影响. 而在对于这些影响的研究显得不足, 由此带来的在应用过程中滑动弧等离子体效率较低, 不稳定, 性能不可靠等负面效应. 本文测量了在不同载气种类和流量, 不同外部电阻情况下的滑动弧电参数和发射光谱, 通过对电弧电压信号进行时域和频域分析, 研究了这些参数对滑动弧等离子体脉动特性的影响, 利用发射光谱法分析在不同条件下滑动弧发射光谱特性.

2. 实验装置

实验所用的滑动弧等离子体发生装置如图1所示. 实验装置由供气系统, 电源系统, 滑动弧反应器和测量系统组成. 供气系统可提供空气, 氧气, 氮气

* 国家自然科学基金(批准号 50976099)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: yanjh@zju.edu.cn

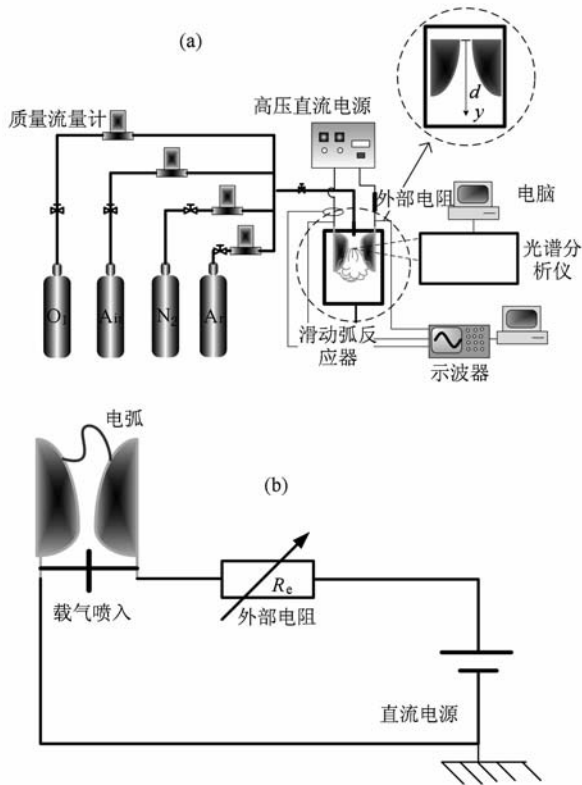


图1 (a)滑动弧等离子体测量实验布局图;(b)滑动弧等离子体发生电路图

和氩气,并由质量流量计控制流量.电源系统由高压直流电源(0—6 kV,0—900 W)和电阻(50—93 kΩ)组成.反应器由方形石英玻璃罩(长宽高分别是30 mm×50 mm×130 mm),两片刀型电极,带有喷嘴的聚四氟乙烯底座组成.刀型电极的最窄处距离为2 mm.实验过程中使用示波器(Tektronix TDS2024)及配套高压探头(Tektronix, P6015A)和电流探头(Tektronix, TCP303)对电弧电压和电流进行测量.滑动电弧的光信号透过双凸透镜聚焦进入光纤,然后导入单色仪(SP300,光栅1200 g/mm,闪耀波长350 nm,狭缝为250 μm,分辨率为1 nm,检测设备为CR131型光电倍增管),信号通过数据采集卡输入计算机,经过软件处理得到发射光谱图.

图1(b)给出了直流滑动弧发生电路的示意图.直流电源电压为 U_0 ,外部电阻阻值为 R_e ,电弧电压为 U_{arc} ,电流为 I .电极为铁材料制作,其电阻为 R_d .因此,根据欧姆定律电源电压与外部电阻,电流和电弧电压的关系如下:

$$U_0 = IR_e + U_{arc} + IR_d. \quad (1)$$

3. 实验结果与分析

3.1. 电弧电参数特性

图2所示为以氮气、空气、氧气和氩气为载气的滑动弧等离子体电弧电压波形图,等离子体工作条件为外部电阻70 kΩ,载气流量为7.5 L/min.从图中可以看出,氮气、空气和氧气滑动弧电弧电压的波形图相似:电弧电压具有周期性;在两电极间气体被击穿形成电弧瞬间,电弧电压最低;电弧形成后在一个周期内,电弧电压随时间不断增加;在电弧熄灭前,电弧电压达到最大值.研究表明,电弧电压信号反映了电弧弧长的变化与电弧运动规律^[16].从图2中可以看出,氮气、空气和氧气滑动弧等离子体电弧电压波形图中都存在一些突变点(图2中圆圈标记),这是因为滑动弧在运动过程中存在一些电弧跳跃现象,并引起电弧长度的突变.氩气滑动弧的电弧电压波形图与其他三种气体放电的不同,电弧电压周期性不明显,也不存在明显的电压最小值和最大值,具有明显的无规律波动.这主要是因为氩气容易被击穿,在较小的反应器内充满氩气的情况下,氩气滑动弧不易被气流吹断.在试验中发现,在这种情况下氩气滑动弧等离子体一直在反应器内跳动,没有形成稳定的等离子体区域.

图3表示氮气滑动弧等离子体在两个周期内的电弧电压、电流、电阻和电功率波形图,等离子体工作条件为外部电阻70 kΩ,载气流量为7.5 L/min.电弧电压和电流通过示波器测得,电弧电阻和电功率由以上两组值计算得到.从图中可以看出,电弧电流与电弧电压的变化趋势相反:在一个放电周期内,电弧电流随时间变小.在电弧形成时刻,电流具有最大值;在电弧熄灭之前,电流逐步减小至最小值.另外,在一个放电周期内,电弧功率和电阻可以分为两个变化阶段.在第一阶段,电弧功率随时间(随着电弧向下的运动和电弧的增长)逐渐变大,电弧电阻随时间(随电弧向下的运动和电弧的增长)缓慢变大.在第二阶段,电弧功率随时间(随着电弧向下的运动和电弧的增长)缓慢变小,这是因为电源所提供的功率不能再维持增长的电弧自身功率和对流换热的功耗;电弧电阻随时间(随电弧向下的运动和电弧的增长)急剧变大.这些现象说明滑动弧在每个周期内都存在一个电弧功率变化和电

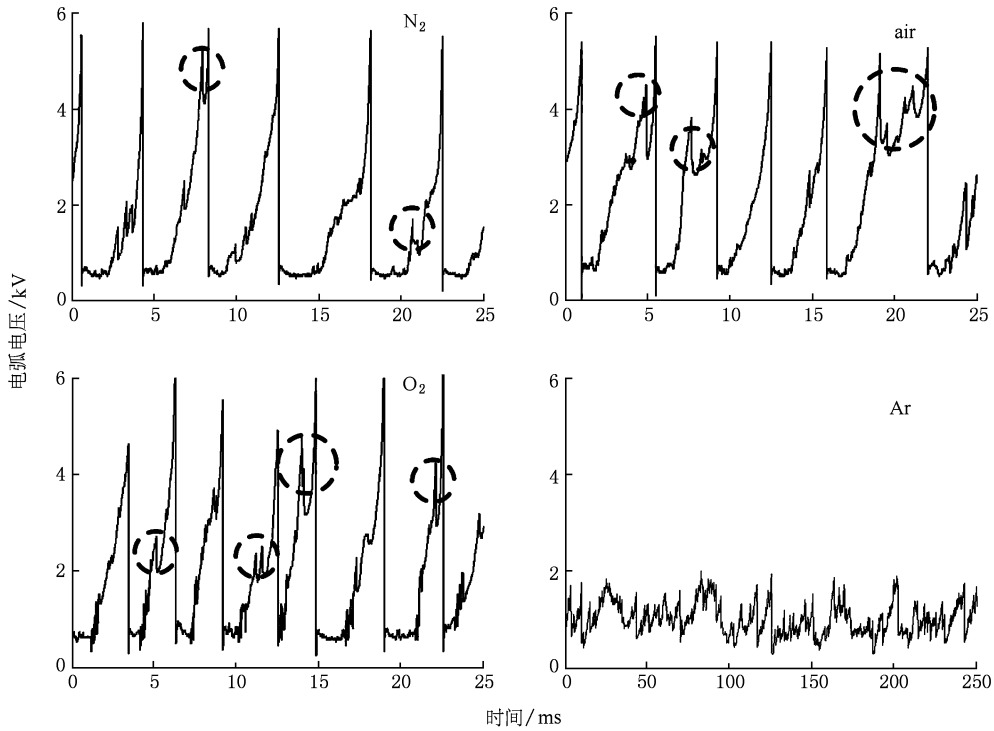


图2 滑动弧等离子体电弧电压波形图(外部电阻 70 k Ω ,载气流量为 7.5 L/min)

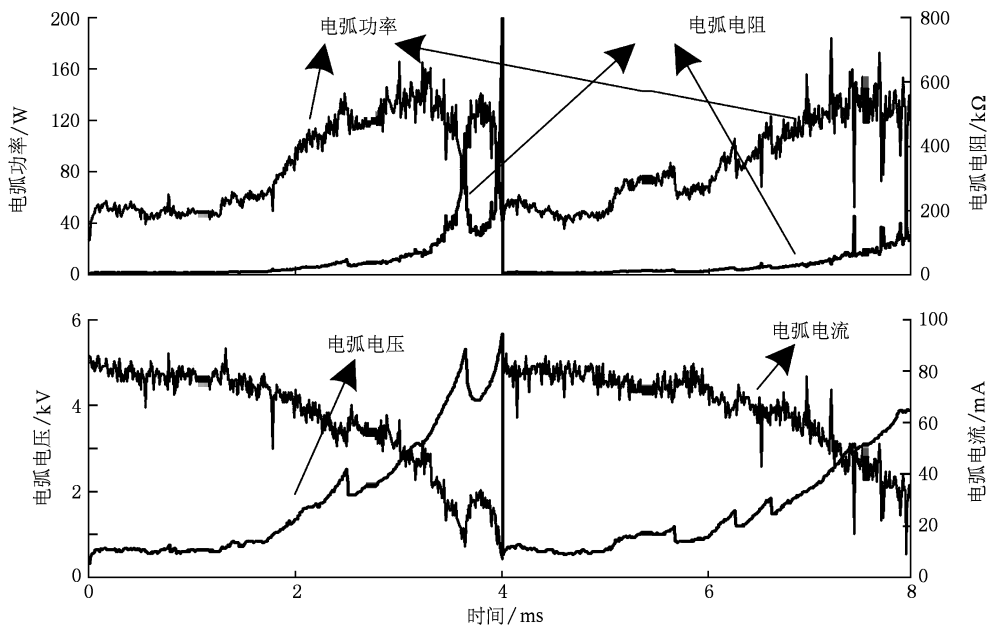


图3 氮气等离子体的电弧电压,电流,电阻和功率波形图(外部电阻 70 k Ω ,氮气流量为 7.5 L/min)

阻变化的转折点.

表 1 给出了在不同的外部电阻和气体流量工况下氮气滑动弧电弧的平均电压,平均电流,平均功率和平均放电周期.从表中可以看出,在固定的气流量下,随着外部电阻值的变大,电弧的平均电流

减小而平均电压升高.这主要是由于电弧电流的减小能促进滑动弧从近似平衡态向非平衡态的转化,使滑动弧等离子体演化过程内非平衡态的时间比例变大,从而使电弧的平均电压升高^[16].另外,随着电阻阻值的增加,电弧平均电流的减小幅度

(20%—30%) 大于平均电压增长的幅度 (5%—9%), 这导致电弧功率随着外部电阻值增加而减小. 在一定的外部电阻条件下, 随着气流量的增加, 电弧的平均电压升高, 平均电流变化不大, 电弧功

率变大. 气流量的变大加强了气流与电弧的传热, 提高了电弧能量的消耗. 同时, 气流的增大降低了重粒子的温度, 加快了滑动弧从近似平衡状态向非平衡状态的过度, 提高了滑动弧的非平衡度.

表1 氮气滑动弧等离子体在不同条件下的电参数

气流量/(L/min)	5			7.5			10			12.5			
	电阻/kΩ	50	70	93	50	70	93	50	70	93	50	70	93
平均电压/V		1617	1657	1751	1623	1841	1927	1679	2027	2284	1724	2256	2470
平均电流/mA		92.9	72.8	57.7	91.6	70.2	57.8	90.2	67.5	47.6	90.4	65.2	44.8
平均功率/W		150.2	120.6	101.1	148.7	129.2	113.1	151.4	136.8	108.7	155.8	147.1	110.7
平均放电周期/ms		8.9	8.3	6.1	4.8	4.2	3.2	3.4	3.0	2.0	2.5	2.0	1.6

3.2. 滑动弧脉动特性

滑动弧等离子体的脉动最直接的反映是其电弧电压的脉动. 通过对电弧电压信号进行快速傅里叶变换频谱分析, 可以得到电弧电压的主要振动频率, 即滑动弧的放电频率. 图4给出了当外部电阻为70 kΩ, 气流量为7.5 L/min 时, 以氮气、空气、氧气和氩气为载气的滑动弧电弧电压信号的频谱图. 从图中可以看出, 氮气、空气和氧气滑动弧的主要放电频率相似, 在200—350 Hz 之间, 而氩气滑动弧的主要放电频率较低, 在30 Hz 左右. 这主要是因为氩气较容易被电离形成电弧, 在气流吹动下形成较长

的电弧, 不易被气体吹灭. 另外, 从氧气滑动弧等离子体电压频谱图中可以看出, 其具有两个明显的特征频率200 Hz 和320 Hz, 这说明氧气滑动弧放电相对不稳定, 电弧周期存在较大的波动. 除主要放电频率外, 四种气体下的滑动弧电压信号中都存在小于2 kHz 的次要成分, 这说明电弧运动过程中存在一些高频振动. 结合电弧电压图可以得知, 这些电弧电压高频振动可能主要由于电弧弧根在电极上的跳跃等一些电弧不规则运动, 以及高速气流的卷吸引起电弧长度的突变. 这些电弧长度的突变使电弧电压信号变得不稳定.

图5和图6分别给出了在不同的载气流量和外

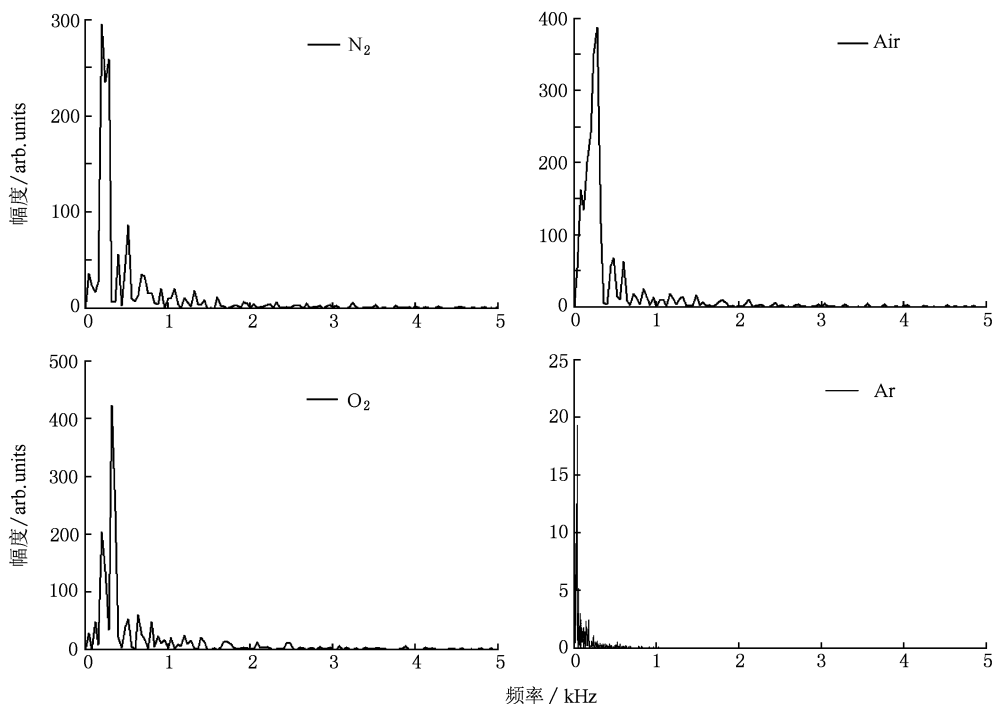


图4 氮气、空气、氧气和氩气滑动弧等离子体的电弧电压信号频谱图(外部电阻为70 kΩ, 气流量为7.5 L/min)

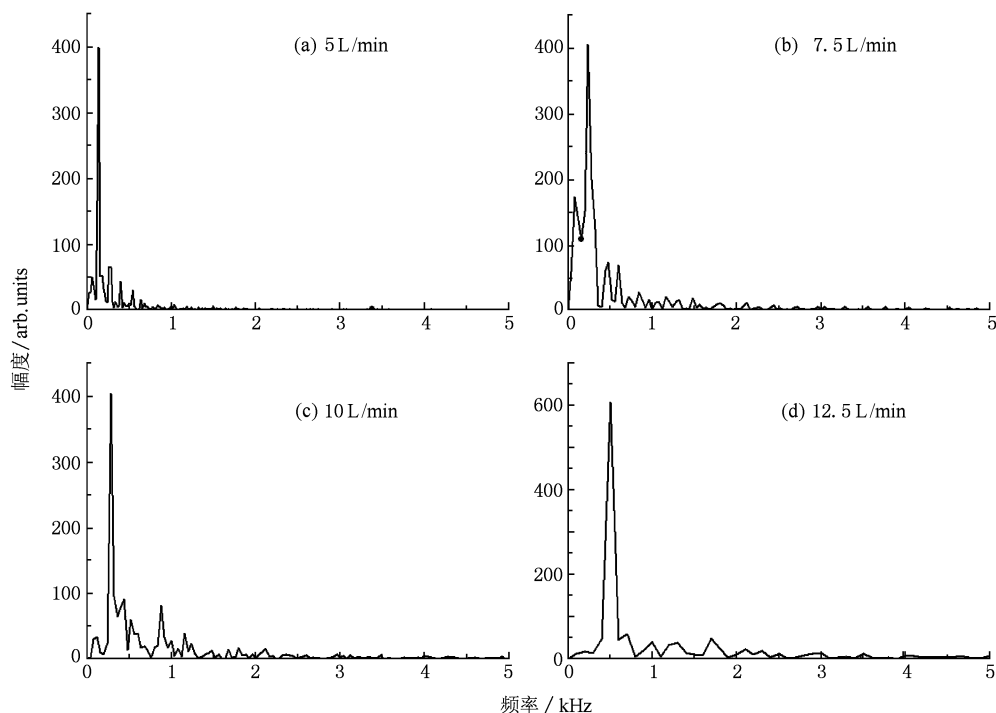


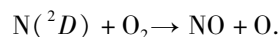
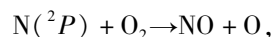
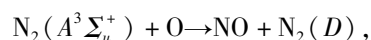
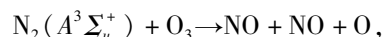
图5 不同载气流量情况下氮气滑动弧等离子体的电弧电压信号频谱图(外部电阻为 70 k Ω) (a) 气流量 5 L/min; (b) 气流量 7.5 L/min; (c) 气流量 10 L/min; (d) 气流量 12.5 L/min

部电阻情况下,空气滑动弧等离子体电压信号的频谱图.从图5中可以看出,随着气流量从 5 L/min 增加到 12.5 L/min,滑动弧电压信号的主要振动频率从 140 Hz 逐渐增加至 500 Hz.这主要是由于气流量的增加,增大了气体与电弧之间的传热,促进了电弧从近似平衡态向非平衡态的过度,缩短了电弧的周期.另外,从图5中也可以发现,随着气流量的增加,2 kHz 以内的频率成分幅度越来越大.这表明,气流量的增加使电弧变得不稳定.同样地,图6也表明随着外部从 50 k Ω 增加到 93 k Ω ,滑动弧等离子体的放电频率逐渐变大,从 200 Hz 逐渐增加到 320 Hz.且 2 kHz 以内的频率幅度随外部电阻值变大而增强.由于外部电阻的增加,滑动弧发生电路中的电流减小,电弧的电子密度也变小,导致电弧更容易熄灭.在试验中可以观察到,随着外部电阻的增加,滑动弧等离子体区域变小,这说明在高的外部电阻情况下,滑动弧运动距离变短.

3.3. 滑动弧等离子体的发射光谱特性

氮气、氧气和空气滑动弧等离子体发射光谱图如图7所示.在氮气滑动弧等离子体发射光谱中,300—450 nm 范围出现的是 $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$ 的多个振动态谱线($\Delta v = 0, -1, -2$).另外,在 391.4 nm

处也发现了 $N_2^+(B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+)$ 的振动态谱线($\Delta v = 0$).这说明氮气滑动弧等离子体中存在大量的氮气分子自由基以及部分的 N_2^+ 自由基,这些自由基对促进化学反应的发生起着重要的作用. Delair 等人在滑动弧等离子体电弧产生处也发现了 N^+ 的发射谱线^[17],但是在本试验中,没有发现清晰的 N^+ 和 N 原子谱线.从氧气滑动弧等离子体的发射光谱图中可以看出,在 240—290 nm 范围内,谱线较为杂乱.该范围内可能主要是氧原子的谱线.另外,在 777.4 nm 处出现了明显的氧原子谱线.在 310.4 nm, 332.3 nm 和 337 nm 处可以明显的观察到氧分子的谱线.空气滑动弧等离子体的发射光谱相对滑动弧在氧气和氮气中的较为复杂,主要是由于氧气与氮气发生反应,生成了更多的活性基团.氮的激发态可通过与 O_2 , O 和 O_3 发生如下反应生成 NO:



在 200—300 nm 波段范围内,可以观察到大量的 $NO(B^2\Pi - X^2\Pi)\beta$ 带和 $NO(A^2\Sigma^+ - X^2\Pi)\gamma$ 带.这说明当氮气与氧气的混合气体作为载气产生滑

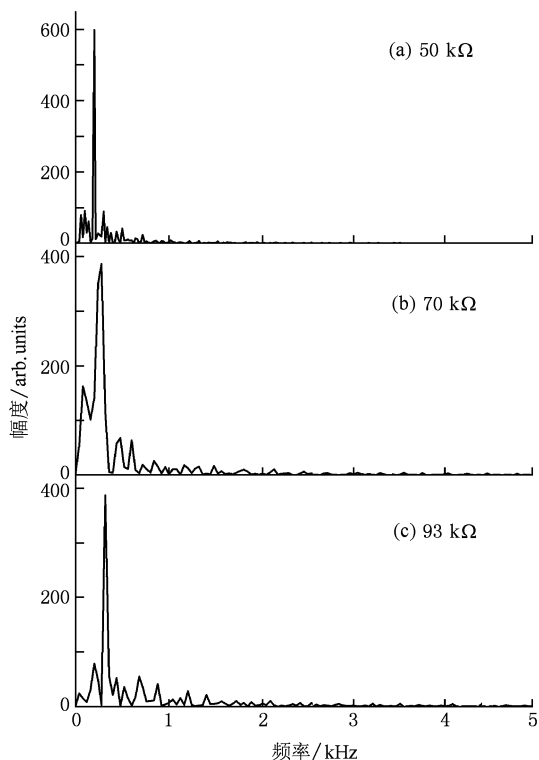


图6 不同外部电阻值情况下氮气滑动弧等离子体的电弧电压信号频谱图(气流量为 7.5 L/min) (a) 外部电阻 50 kΩ; (b) 外部电阻 70 kΩ; (c) 外部电阻 93 kΩ

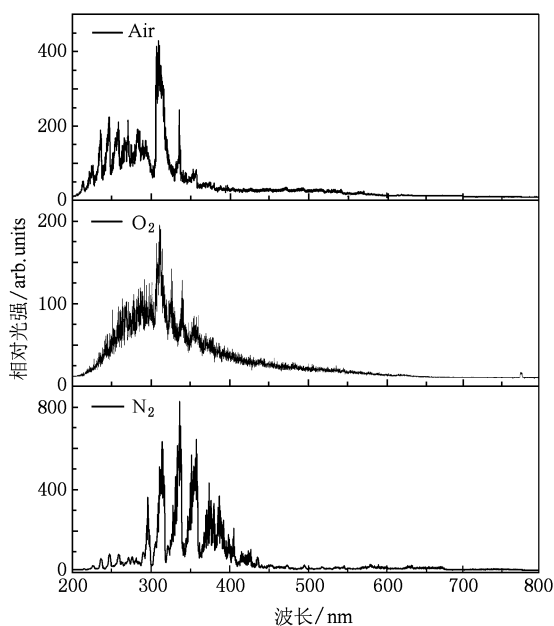


图7 空气、氧气和氮气滑动弧等离子体发射光谱图(外部电阻为 93 kΩ, 气流量为 7.5 L/min)

动弧等离子体的时候,会产生大量的 NO. 这一点在以前的试验中得到了证实^[13]. 另外,在 306—312 nm

之间出现的峰为 OH($A^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Pi$) 分子谱带,这是因为空气中含有少量的水蒸气在放电过程中生成了 OH 自由基. 在 330—360 nm 波段范围可以观察到 $N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$ 第二正带系.

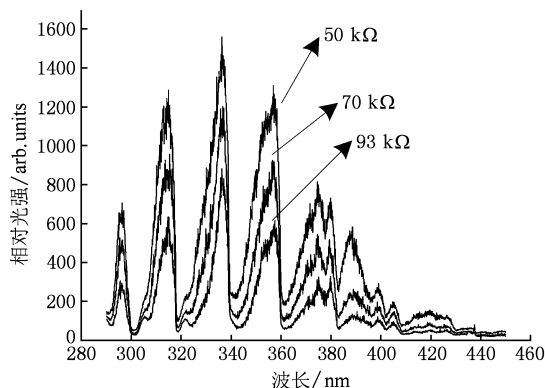


图8 在不同外部电阻情况下氮气滑动弧等离子体发射光谱图(气流量为 7.5 L/min)

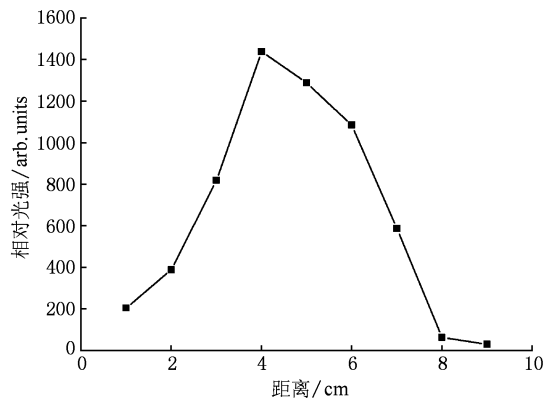


图9 氮气滑动弧等离子体在 337.1 nm 处发射光谱强度沿电极中轴的变化(外部电阻为 70 kΩ, 气流量为 7.5 L/min)

图8 给出了不同外部电阻值情况下,氮气滑动弧等离子体的发射光谱图. 从图中可以看出,随着外部电阻值的增加,其发射光谱强度明显下降. 从 3.1 节的分析可以得知,滑动弧等离子体产生电路的外部电阻对电弧电流和电弧功率影响显著. 随着外部电阻值的增加,电弧电流逐渐减小,功率也随之减小. 这样会减少氮气滑动弧等离子体中各种自由基的产生,从而导致其发生光谱强度明显下降. Bo 等人^[18]通过附加垂直于电弧面(电极面)进气的方法提高滑动弧等离子体处理挥发性有机物的功效. 在此工艺中,垂直于电弧面进气口的位置很重要. 因此,我们对滑动弧等离子体中沿电极中轴线

方向(图1中所示Y轴方向)自由基强度的分布进行检测研究. 试验中以氮气滑动弧等离子体为对象,选取337.1 nm处的峰值($N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$, $\Delta v = 0$)作为检测对象,沿电极中轴线方向进行测试. 得到此波长发射光谱强度的分布曲线如图9所示. 从图中可以看出,在337.1 nm处的光谱强度沿两电极中轴线方向先增加后减小,当 $d \geq 8$ 时,光谱强度突然变小. 结合图3以及滑动弧等离子体的运动形态可知,气体被击穿形成电弧后电弧较短,电弧功率相对较小,此时产生的自由基相对较少. 随着电弧的移动,电弧逐渐变长且在临界点前电弧功率仍然变大. 这导致在此阶段中,自由基产量增加,发射光谱强度增加. 当电弧长度超过临界点时,虽然电弧仍然在变长,但是电弧功率变小,所以导致在此阶段中自由基的产量逐渐变小. 另外,从图中还可以看出 $d = 4$ 处的光谱强度最大,且 $d > 4$ 部分的光谱强度明显大于 $d < 4$ 时对称点的强度. 这是因为电弧经过临界点后,虽然其功率逐渐变小(如图3),但由于电弧弧长较长,电弧功率仍然大于电弧初始阶段的功率,滑动弧的发射光谱强度相对于初始阶段较大. 当 $d \geq 8$ 时,测试点距滑动弧等离子体区域外边缘约0.5 cm. 这表明,在等离子体区域外,自由基的数量将急剧减少.

4. 结 论

本文测量了大气压直流滑动弧等离子体的各种电特性参数和发射光谱,对该等离子体的电参数

特性、脉动特性和发射光谱特性进行了分析,得到如下结论:

1. 滑动弧等离子体的电弧电压,电流和电功率具有周期性. 在一个周期内,随着电弧的增长,电弧电压逐渐变大,电流变小,电弧电功率先增大后变小. 在本研究中,由于反应器容积较小,氩气滑动弧等离子体的电参数与其他三种气体产生的滑动弧的电参数截然不同,且具有明显的无规则波动. 另外,随着外部电阻值的增加,电弧电流变小,电弧电压增大,电弧电功率变小. 且外部电阻值对电弧电流影响较大. 载气流量的增加加强了气流与电弧的传热,提高了电弧能量的消耗.

2. 本研究中,在载气流量为7.5 L/min和外部电阻为70 k Ω 时,直流滑动弧等离子体的主要脉动频率为200—350 Hz. 该等离子体的脉动特性主要受气体流量和外部电阻影响,且前者影响较大. 通过频谱分析,发现除主要振动频率外,还存在小于2 kHz的次要振动成分,这主要与电弧在运动过程中出现电弧跳动等不规则运动有关. 随着载气流量的增加或者外部电阻值的增加,电弧的主要脉动频率变大,高频振动成分的幅度也变大.

3. 在氮气、氧气和空气滑动弧等离子体的发射光谱中,发现各种气氛下的主要自由基跃迁谱线. 在氧气等离子体的发射光谱中发现了氧原子的跃迁谱线. 在电极中轴线上,发射光谱强度先增加后减小,在等离子体区域外,迅速变小. 该等离子体的发射光谱强度也受外部电阻的影响,随着外部电阻值的增加,发射光谱强度变小.

- [1] Fridman A, Chirokov A, Gutsol A 2005 *J. Phys. D-Appl. Phys.* **38** R1
- [2] Zhang X H, Huang J, Lu X D, Peng L, Sun Y, Chen W, Feng K C, Yang S Z 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1595 (in Chinese) [张先徽、黄 骏、刘筱娣、彭 磊、孙 岳、陈 维、冯克成、杨思泽 2009 物理学报 **58** 1595]
- [3] Zhang Y C, Zhu H Y, Wu H Y, Qiu Y P 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** S298 (in Chinese) [张迎晨、朱海燕、吴红艳、邱夷平 2009 物理学报 **58** S298]
- [4] Sun J, Zhang J L, Wang D Z, Ma T C 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 344 (in Chinese) [孙 姣、张家良、王德真、马腾才 2006 物理学报 **55** 344]
- [5] Liu Y H, Zhang J L, Wang W G, Jian L, Liu D P, Ma T C 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1458 (in Chinese) [刘艳红、张家良、王卫国、李 建、刘东平、马腾才 2006 物理学报 **54** 1458]
- [6] Fridman A, Nester S, Kennedy L A, Saveliev A, Mutaf-Yardimci O 1999 *Prog. Energy Combust. Sci.* **25** 211
- [7] Czernichowski A 1994 *Pure Appl. Chem.* **66** 1301
- [8] Benstaali B, Moussa D, Addou A, Brisset J L 1998 *Eur. Phys. J.-Appl. Phys.* **4** 171
- [9] Krawczyk K 2006 *Przem. Chem.* **85** 1035
- [10] Lin L, Wu B, Yang C, Wu C K 2006 *Plasma Sci. Technol.* **8** 653
- [11] Zhao Y H, Ma Q, Xia W D 2008 *Plasma Sci. Technol.* **10** 65
- [12] Yu L, Yan J H, Tu X, Li X D, Lu S Y, Cen K F 2008 *EPL (Europhysics Letters)* **83** 45001
- [13] Yu L, Li X D, Tu X, Wang Y, Lu S Y, Yan J H 2010 *J. Phys. Chem. A* **114** 360
- [14] Tu X, Yu L, Yan J H, Cen K F, Cheron B G 2009 *Phys. Plasmas* **16** 113506

- [15] Yan J H, Bo Z, Li X D, Du C M, Cen K F, Cheron B G 2007 *Plasma Chem. Plasma Process.* **27** 115
- [16] Kuznetsova I V, Kalashnikov N Y, Gutsol A F, Fridman A A, Kennedy L A 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 4231
- [17] Delair L, Brisset J L, Cheron B G 2001 *High Temp. Mater. Process* **5** 381
- [18] Bo Z, Yan J H, Li X D, Chi Y, Cen K F 2008 *J. Hazard. Mater.* **155** 494

Characterization of atmospheric pressure dc gliding arc plasma *

Ni Ming-Jiang¹⁾ Yu Liang¹⁾ Li Xiao-Dong¹⁾ Tu Xin²⁾ Wang Yu¹⁾ Yan Jian-Hua^{1)†}

1) (State Key Laboratory of Clean Energy Utilization, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China)

2) (The University of Manchester, Manchester, M13 9PL, UK)

(Received 1 March 2010; revised manuscript received 24 March 2010)

Abstract

The atmospheric pressure dc gliding arc plasma was investigated through its electrical and optical signals. The arc voltages of various gas discharges were compared. The arc voltage, current, power and resistance of a nitrogen gliding arc in one period were studied. Influences of gas type, gas flow rate and external resistor on the gliding arc fluctuation behaviour were studied using FFT spectrum analysis. Increased main oscillation frequency was observed as gas flow rate or external resistance value increased. Furthermore, major radical species in nitrogen, oxygen and air discharges were determined by means of optical emission spectroscopy. Additionally, the effect of external resistor on the relative intensity of radical emission and axial distribution of relative intensity at 337.1 nm ($N_2(C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g)$, $\Delta v = 0$) were studied. Experimental results showed that radical emission relative intensity decreases with the increasing of external resistance value. The axial distribution of relative intensity exhibits the tendencies of increasing first and then decreasing. The radical emission relative intensity decreases dramatically out of the plasma area.

Keywords: gliding arc plasma, non-thermal plasma, fluctuation, optical emission spectroscopy

PACS: 51.50.+v, 51.70.+f, 52.25.Gj

* Project supported by National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50976099).

† Corresponding author. E-mail: yanjh@zju.edu.cn