

约化场强对氮-氧混合气放电等离子体演化特性的影响*

杜宏亮[†] 何立明 兰宇丹 王峰

(空军工程大学工程学院飞行器与动力工程系, 西安 710038)

(2010年11月2日收到; 2011年2月22日收到修改稿)

采用零维等离子体动力学模型, 计算了不同约化场强条件下 N_2/O_2 放电等离子体的演化特性. 结果表明, 平均电子能量与约化场强有着近似的线性关系, 在约化场强为 100 Td 时, 平均电子能量约为 2.6 eV、最大电子能量达 35 eV; 约化场强是影响电子能量函数分布的主要因素. 气体放电过程结束后, 振动激发态氮分子的粒子数浓度不再变化, 电子激发态的氮分子、原子和氧原子的粒子数浓度达到一峰值后开始降低; 放电结束后的氧原子通过复合反应生成臭氧. 约化场强升高, 由于低能电子减少的影响, 振动激发态氮分子的粒子数浓度降低, 当约化场强由 50 Td 增加 75 Td, 100 Td 时, 粒子数浓度由 $3.83 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 降至 $1.98 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 和 $1.77 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, 其他粒子浓度则相应增大.

关键词: 等离子体, 约化场强, 粒子演化, 数值模拟

PACS: 52.25.Jm, 52.25.Dg, 52.65.-y, 34.50.Ez

1. 引言

带电粒子在电磁场中除了激发、离解、电离, 并随之生成各种化学活性物种外, 其中的带电粒子碰撞还能引起复合、电荷转移和电子吸附^[1,2]. 空气放电过程中具有的物理、化学性质, 使其在刻蚀、镀膜、燃烧及实验室等离子体环境中具有广泛的应用价值^[3]. 放电过程中等离子体的动力学行为的分析研究对于气体放电机理及其应用开发起着重要的作用.

Niessen 等^[4] 提出了一个包含 N_2, O_2, H_2O 以及 NO, NO_2 和 C_2H_4 的混合气体介质阻挡放电等离子体化学过程的时间演化模型, 并将计算结果与实验结果进行了对比. Mintusov 等^[5] 研究了高压纳秒重复脉冲放电的强化燃烧效应和动力学计算模型. 对影响介质阻挡放电的因素—约化场强 (R_{EF} , reduced electric field, 电场强度与放电区域粒子数浓度之比 $E/[N]$) 的研究方面, Mruthunjaya^[6] 考察了重复放电中的化学反应速率, Shibkov 等^[7] 研究了空气放电非平衡等离子体条件下的氢氧混合物的点火温度

上升时间, Flitti 等^[8] 计算了约化场强对空气高频放电中气体加热效率的影响.

在介质阻挡放电中, 由于影响电场的因素较多, 约化场强也较为复杂, 并且等离子体的种类不同, 受约化场强的影响并不相同^[6]. 为了更为准确地分析空气放电等离子体演化过程, 本文首先简要推导了介质阻挡放电约化场强的物理、数学意义, 然后采用 Boltzmann 方程解得不同约化场强条件下的电子能量分布函数, 并研究了空气放电粒子数浓度随约化场强的演化规律, 计算结果对于研究等离子体点火助燃时机、参数控制等具有借鉴意义.

2. 理论方法

2.1. 约化场强的物理意义及大小

根据介质阻挡放电特点, 等离子体产生的影响因素可以归纳为 5 类: 第一为几何参数, 如放电间隙距离、介质层厚度等; 第二为材料参数, 如放电间隙气体的介电常数、介质层的介电常数等; 第三为环

* 国家自然科学基金(批准号: 50776100)资助的课题.

[†] E-mail: duhongliang1984@163.com

境参数,如放电间隙的压力、温度、混合气流速等;第四为驱动电源参数,如电源输出电压幅值、频率等;第五为电极参数,如电极结构形式、电极面积等。

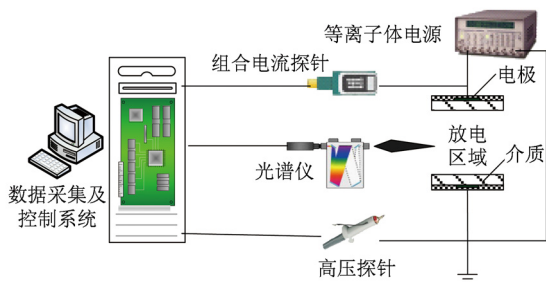


图1 介质阻挡放电实验结构图

如图1所示的介质阻挡放电结构,在激励电压为 U 的条件下, $U = E_g d_g + 2E_d d_d$, 由电场的基本性质可知,介质层内和放电区域的电场强度分别为

$$E_d = \frac{U \epsilon_g}{2d_d \epsilon_g + d_g \epsilon_d}, \quad (1)$$

$$E_g = \frac{U \epsilon_d}{2d_d \epsilon_g + d_g \epsilon_d}. \quad (2)$$

对于第一、第二、第三、第四类中的影响因素,可以统一到约化场强,根据其定义可得

$$R_{EF} = \frac{E_g}{[N]} = \frac{U \epsilon_d}{2d_d \epsilon_g + d_g \epsilon_d} \cdot \frac{1}{[N]}. \quad (3)$$

其单位为^[9]

$$\frac{v/cm}{1/cm^3} = v \cdot cm^2 \approx 10^{17} Td.$$

在通常大气条件下,空气的物质密度为 43 mol/m^3 ,其粒子数密度约为 $2.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.若实验室等离子体激励电压 $U = 30 \text{ kV}$,对图1中的放电实验结构,设介质层厚度 $d_d = 0.1 \text{ cm}$ 、放电气体间隙 $d_g = 1 \text{ cm}$,介质板的相对介电常数 $\epsilon_d = 2$,空气的介电常数为 $\epsilon_g = 1$,将数值代入(3)式可得 $R_{EF} = 55 \text{ Td}$.本文在计算中设 $[N_2] = 2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, $[O_2] = 0.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$,取三组约化场强进行对比:50 Td,75 Td,100 Td.

2.2. 放电的物理模型及计算流程

本文的气体放电模型采用零维模型,计算 N_2/O_2 混合气经过连续介质阻挡放电的过程.在等离子体的演化过程中,各种粒子、电子发生复杂的物理化学反应,各粒子通过反应产生和消耗,最终趋于平衡状态.粒子成分考虑了混合物振动激发、电子激发等49种反应物(见表1),包括中性粒子、

带正电粒子、带负电粒子、电子,共计445个反应式^[6,10,11].

表1 反应物组分

组分类型	表示方法	数目
氮系粒子	$N, N_2, N_2(v1), N_2(v2), N_2(v3), N_2(v4), N_2(v5), N_2(v6), N_2(v7), N_2(v8), N_2(A3), N_2(B3), N_2(a1), N_2(C3), N(2D), N(2P), N^+, N_2^+, N_3^+, N_4^+$	20种
氧系粒子	$O_2, O_2(v1), O_2(v2), O_2(v3), O_2(v4), O_2(a1), O_2(b1), O_2(4.5eV), O, O(1D), O(1S), O_3, O^+, O_2^+, O_4^+, O^-, O_2^-, O_3^-, O_4^-$	19种
化合粒子	$NO, NO^+, NO^-, NO_2, N_2O, NO_3, N_2O_4, N_2O_5, O_2N_2^+$	9种
电子	e	1种

控制方程为

$$\frac{d[N_i]}{dt} = \sum_{j=1}^{j_{max}} Q_{ij}(t), \quad (4)$$

$$aA + bB[+ \delta\epsilon] \rightarrow a'A + cC[+ \delta\epsilon], \quad (5)$$

$$R_j = k_j [A]^a [B]^b, \quad (6)$$

$$Q_A = (a' - a)R, Q_B = -bR, Q_c = cR. \quad (7)$$

$$\frac{N}{\gamma - 1} \cdot \frac{dT}{dt} = \sum_{j=1}^{j_{max}} \pm \delta\epsilon_j \cdot R_j + P_{elast} \cdot [N_e]. \quad (8)$$

上式中, N 为粒子数浓度, Q 为物质的变化率, $a/a', b, c$ 为反应物 A, B, C 的化学配比, $\delta\epsilon$ 为化学反应放热, k 为反应速率常数, R 为反应速率, γ 为气体绝热指数, T 为气体温度, P 为电子碰撞能量, N_e 为电子浓度. 计算步骤如图2所示.

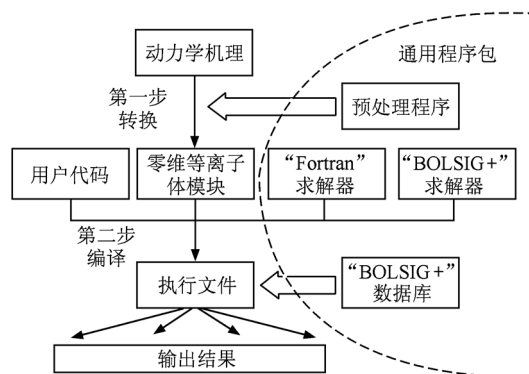


图2 计算流程示意图

3. 计算结果和讨论

3.1. 约化场强对电子能量分布的影响

电子能量分布函数(EEDF)表示在归一化条件

下,各能态电子在总电子数中所占的比例,对电子的激发作用有着直接的影响,是研究分子碰撞和分子动力学的基础. 放电开始后在外加电场作用下等离子体中高能电子平均动能与约化场强间关系复杂. 根据波尔兹曼输运方程求解器软件 BOLSIG +^[12]求得不同约化场强条件下平均电子能量变化及分布函数如图 3、图 4 所示.

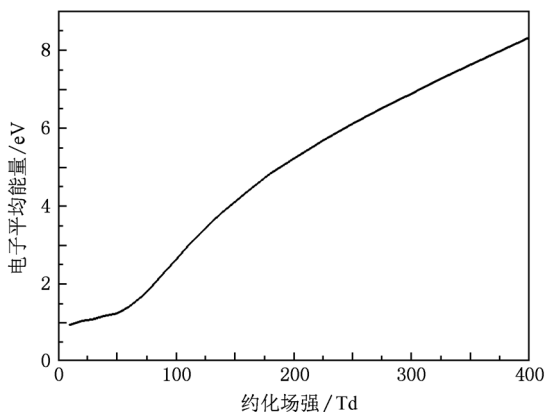


图 3 电子能量随约化场强的变化

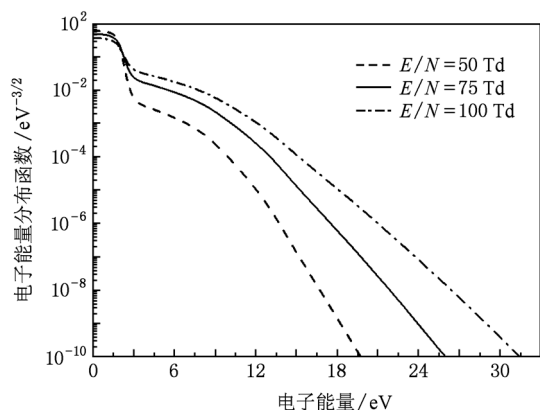


图 4 不同约化场强下的电子能量分布函数

由图 3 可见,在空气介质阻挡放电中,电子能量随着约化场强的增大几乎呈线性增大,当约化场强为 50 Td,75 Td 和 100 Td 时,电子平均能量分别为 1.232 eV,1.783 eV 和 2.612 eV,当约化场强为 50—130 Td 时电子平均能量增长较快.

由图 4 可知,电子主要集中在低能量区域,且随着约化场强的增大,低能电子数量减少,分布向高能电子区扩展. 在三种约化场强下,95%的电子集中区域分别为 0—2 eV,0—3.5 eV 和 0—3.7 eV;99%的电子集中区域分别为 0—11 eV,0—15 eV 和 0—18 eV. 可以看出不同约化场强条件下的电子能量分

布函数及平均能量相差比较明显. 另外,通过计算也发现,电子浓度与环境温度对空气放电等离子体中的电子能量分布函数几乎没有影响. 由此可以推断,空气放电等离子体中的电子能量分布函数主要受约化场强的控制.

3.2. 约化场强对粒子数浓度演化的影响

介质阻挡放电低温等离子体产生的高能电子和气体分子间的碰撞激发、离解过程产生了大量的活性粒子,其化学效应是等离子体动力学的作用机理之一. 在不同的约化场强下,对气体放电等离子体中各粒子数浓度的演化规律的数值计算结果如图 5—图 10 所示.

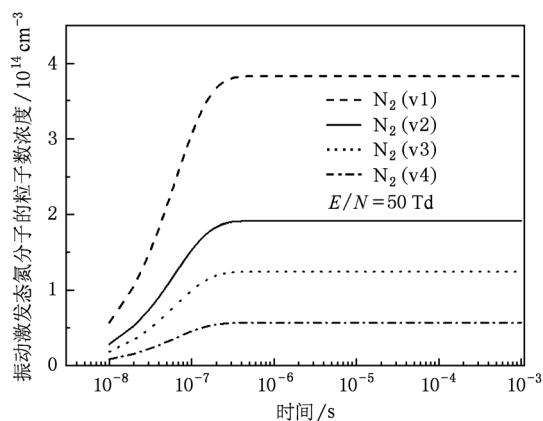


图 5 振动激发态的氮分子粒子数浓度

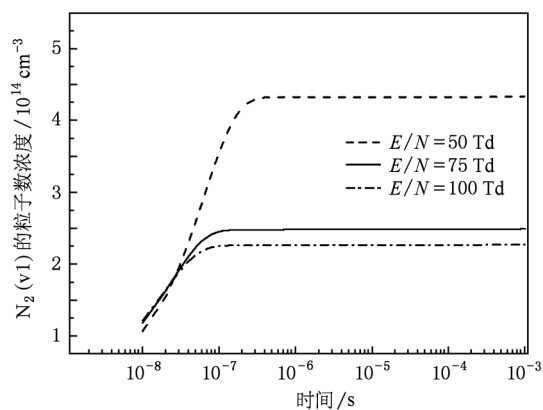


图 6 $N_2(v1)$ 的粒子数浓度随时间的演化

图 5、图 6 是氮分子的振动激发态 $N_2(v1)$ — $N_2(v4)$ 以及 $N_2(v1)$ 在不同约化场强下的粒子数浓度随时间的演化规律,可以看出,振动激发态氮分子在约 0.1 μs 内快速增加,然后基本保持不变. 氮分子的电子激发态粒子数浓度与此不同,则是在

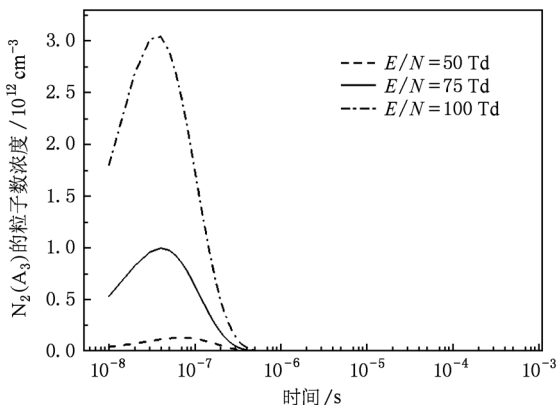


图7 电子激发态的氮分子粒子数浓度随时间的演化

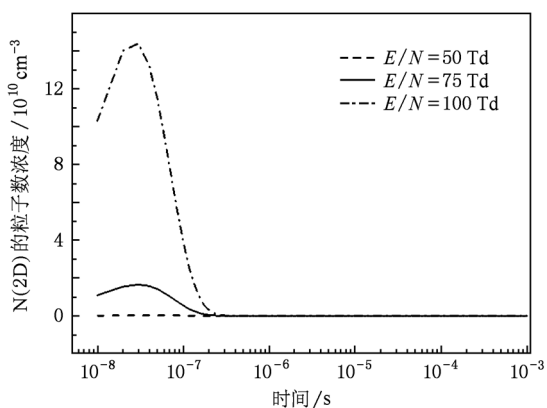


图8 电子激发态的氮原子粒子数浓度随时间的演化

0.1 μs内快速增加,而后随即降低。

从图6中可以看出,氮分子振动激发态粒子数浓度随着约化场强的增加而降低,当约化场强由50 Td增加75 Td,100 Td时,粒子数浓度由 $3.83 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 降至 1.98 cm^{-3} 和 1.77 cm^{-3} 。由3.1分析知,电子从外部电场获得的能量增加,从而改变电子能量分布函数,低能量的电子数量降低;而分子的振动激发态主要是由低能量的电子碰撞激发的,所以振动激发态的氮分子粒子数浓度降低。

从图7知,约化场强增加,氮分子激发态的粒子数浓度到达峰值的时间提前,分别 $7 \times 10^{-8} \text{ s}$, $5 \times 10^{-8} \text{ s}$, $4 \times 10^{-8} \text{ s}$ 。氮原子激发态的粒子数浓度与其分子数浓度演化规律相似,也随着约化场强的增加而增大,如图8所示。

振动激发态氮分子主要是电子直接碰撞产生的,其粒子数浓度要比电子激发态的粒子数浓度高出两个数量级,但由于氮分子振动激发态的激发能很低,在等离子体动力学的化学反应过程中不起重要作用,主要发生振动-振动、振动-平动等能量交

换,并通过这些过程将获得的电子能量释放出来,用于提高气体温度。

图9、图10是激发态氧原子和臭氧分子的粒子数浓度在气体放电过程的演化曲线。

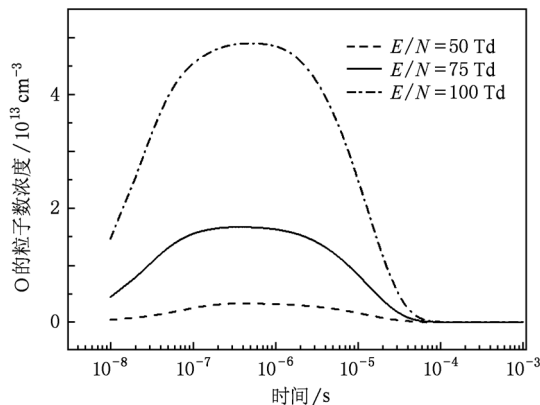


图9 电子激发态的氧原子粒子数浓度随时间的演化

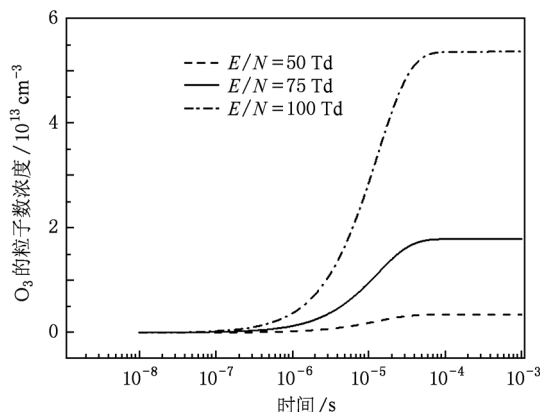


图10 臭氧的粒子数浓度随时间的演化

原子O的粒子数浓度在放电结束时($1 \times 10^{-6} \text{ s}$)浓度达到最大值,然后开始衰减。浓度随约化场强的增加而增加,在约化场强为50 Td时,粒子数浓度最大值约为 $3.27 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$,而当约化场强增加到75 Td和110 Td时,其值相应地增加到约 $1.67 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ 和 $4.89 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ 。在放电区压力、温度、初始粒子浓度不变的情况下,约化场强的提高,即放电区电场强度的提高,意味着注入到放电区的能量增加了,电子平均能量增加,所以电子碰撞反应速率系数提高,产生活性粒子碰撞过程的反应速率提高,获得的活性粒子浓度增加。

放电结束后,O原子粒子数浓度开始降低,且O原子粒子数浓度的衰减时间为0.1 ms。O原子粒子数浓度的衰减时间与臭氧分子粒子数浓度的增加时间一致(如图11所示),这说明O原子主要通过

反应($O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M$)而衰减,所以随着 O 的增加, O_3 分子的粒子数浓度也随着约化场强的增加而提高.

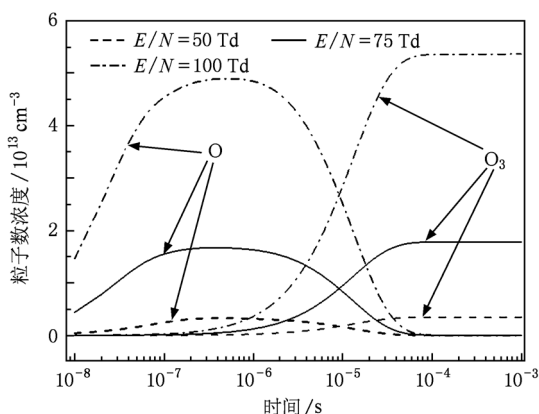


图 11 氧原子与臭氧分子的粒子数浓度随时间的演化

4. 结 论

本文采用耦合了组分浓度方程、能量传递方程

以及波尔兹曼方程的等离子体动力学(ZDPK)模型,通过导入空气碰撞、电离、复合等机理,编写了气体放电的计算程序,并通过对动力学模型的求解,得到了不同约化场强条件下,各类等离子体浓度随时间的演化,以及放电过程中的能量分布情况.计算结果表明:1)电子主要集中在低能区,电子平均能量随约化场强的增加而增加,几乎成线性关系,在约化场强为100 Td时,电子平均能量约为2.6 eV、最大电子能量达35 eV,约化场强是影响电子能量分布的主要因素.2)气体放电结束后,氮分子振动激发态的粒子数浓度不再变化;由于它是受低能电子的作用,所以约化场强越高,其值越低,当约化场强由50 Td增加到75 Td,100 Td时,粒子数浓度由 $3.83 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 降至 $1.98 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 和 $1.77 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$.3)电子激发态的氮分子、原子、氧原子的粒子数浓度达到一峰值后开始降低,最大值随着约化场强的增加而增加,到达峰值的时间略有提前;放电结束后氧原子通过复合反应生成臭氧分子.

- [1] Lan Y D, He L M, Ding W, Wang F 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 2617 (in Chinese) [兰宇丹、何立明、丁伟、王峰 2010 物理学报 **59** 2617]
- [2] Yu Y, Chen X M, Cao Z R, Wu W D 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3892 (in Chinese) [吕瑛、陈熙萌、曹柱荣、吴卫东 2010 物理学报 **59** 3892]
- [3] Ding W, He L M, Song Z X 2010 *High Volt. Engin.* **36** 745 (in Chinese) [丁伟、何立明、宋振兴 2010 高电压技术 **36** 745]
- [4] Niessen W, Wolf O, Schruft R 1998 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **31** 542
- [5] Mintusov E, Serdyuchenko A, Choi I, Lempert W R, Adamovich I V 2008 *46th Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, 7–10 January 2008, Reno, NV. AIAA 2008-1106
- [6] Mruthunjaya U 2008 *Doctor Dissertation*, Ohio State University USA
- [7] Shibkov V M, Konstantinovskij R S 2005 *43rd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, 10–13 January 2005, Reno, Nevada. AIAA 2005-987
- [8] Flitti A, Pancheshnyi S 2009 *The Euro. Phys. J. Appl. Phys.* **45** 21001
- [9] Bozhenkov S A, Starikovskaia S M, Starikovskii A Y 2003 *Combust. and Flame* **133** 133
- [10] Pancheshnyi S, Eismann B, Hagelaar G J M, Pitchford L C 2008 *University of Toulouse, LAPLACE CNRS-UPS-INP, Toulouse, France*
- [11] Ding W 2010 *Ph. D. Dissertation* (Xi'an: Air Force Engineering University) (in Chinese) [丁伟 2010 博士学位论文 (西安:空军工程大学)]
- [12] Hagelaar G J M, Pitchford L C. BOLSIG+ [OL] [M]. <http://www.laplace.univ-tlse.fr/groupe-de-recherche/groupe-de-energetique/projets-en-cours/bolig-resolution-de-l-equation-de/?Lang=en>. [2009-11]

Influence of reduced electric field on the evolvement characteristics of plasma under conditions of N_2/O_2 discharge *

Du Hong-Liang[†] He Li-Ming Lan Yu-Dan Wang Feng

(Department of Aircraft and Propulsion, Engineering Institute of Air Force Engineering University, Xi'an 710038, China)

(Received 2 November 2010; revised manuscript received 22 February 2011)

Abstract

Adopting the plasma kinetic model, we perform a numerical calculation of evolution characteristics in N_2/O_2 plasma with various reduced electric fields. The results show that there is an approximate linear relation between electron average energy and reduced electric field, the electron average energy is 2.6 eV and its maximum is 35 eV when reduced electric field is 100 Td, and reduced electric field has a strong influence on electron energy distributing function. The number densities of nitrogen molecules and atoms, oxygen atoms in electronic excited state reach their peaks when discharge is over, then drop off; but the number density of nitrogen molecules in vibrational excitation remains unchanged after discharge; oxygen atoms recombine into ozone molecules. With the increase of reduced electric field, the number density of vibration excited nitrogen molecules reduces because of the decrease of the number of electrons with low energy, but other particles are increasing. The number densities of vibrational excited nitrogen molecules are $3.83 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $1.98 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ and $1.77 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ when reduced electric fields are set to be 50 Td, 75 Td and 100 Td respectively.

Keywords: plasma, reduced electric field, particle evolution, numerical simulation

PACS: 52.25.Jm, 52.25.Dg, 52.65.-y, 34.50.Ez

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50776100).

[†] E-mail: duhongliang1984@163.com