较大体积的大气压空气介质阻挡放电特性研究*

李雪辰* 常媛媛 刘润甫 赵欢欢 狄聪

(河北大学物理科学与技术学院,河北省光电信息材料重点实验室,保定 071002)(2012年12月14日收到;2013年4月19日收到修改稿)

利用三电极介质阻挡放电装置,在主放电区产生了较大体积的大气压空气均匀放电.利用光学与电学方法,对 主放电特性进行了研究,发现随驱动功率的不同,主放电存在等离子体羽和等离子体柱两种模式,等离子体羽的击 穿电压随外加电压峰值的增加而减小.利用光电倍增管对两种放电模式进行了空间分辨测量,发现等离子体羽是以 发光光层的形式传播,而等离子体柱是连续放电.通过采集两种放电的发射光谱,对其振动温度和转动温度进行了 测量.发现两种放电模式的振转温度均随着 *U*p 的增大而降低.

关键词:介质阻挡放电,等离子体羽,等离子体柱,发射光谱 PACS: 52.80.Tn, 52.80.Mg DOI: 10.7498/aps.62.165205

1 引 言

介质阻挡放电 (dielectric barrier discharge, DBD) 是一种典型的非平衡态的交流气体放电, 又称为无声放电.由于不需要昂贵的真空装置,在 大气压下就可以产生稳定的低温等离子体,DBD 已经广泛应用于各种领域,例如材料表面改性^[1]、 纳米材料制备^[2]、臭氧产生^[3]、伤口愈合^[4]、杀 菌^[5]、刻蚀^[6]、等离子体隐身^[7]等.

由于 DBD 有如此广泛的应用, 人们对其进行 了大量的研究. 目前已经在大气压氦气、氩气等惰 性气体中产生了稳定的放电. 但如何在空气中产生 DBD 无疑具有重要价值. 大气压空气的击穿电场很 高, 所以产生空气 DBD 的气隙间距一般很小 (一般 是毫米量级), 因此待处理的材料尺度必然受到限 制. 如何在大气压较大空气隙中产生 DBD 成为等 离子体研究的热点问题. 如果不能降低气隙间的击 穿电场而拉大电极间的气隙间距, 则要求电源的输 出电压要足够大, 同时对电介质的耐压值提出了更 高的要求. 显然, 如何降低放电的击穿电场对大间 隙 DBD 产生具有重要意义.

研究者对降低气隙击穿电场进行了很多尝试. Fang 等^[8] 将一层金属丝网插入电极和电介质间, 从而在 1—4 mm 大气压空气隙中产生了视觉均匀 的 DBD. 分析认为金属丝网可以为放电提供种子 电子,这些种子电子能显著降低放电的击穿电场. Park 和 Dhali^[9] 采用双室放电装置在 5 mm 空气隙 中产生了大气压空气 DBD, 研究发现低压室放电 产生紫外线,紫外线通过石英介质进入大气压空气 放电室进行光电离,从而降低空气的击穿电场. Qi 等^[10]利用火花放电预电离空气,从而在4mm大气 压空气隙中产生了视觉均匀的 DBD. 以上两种预电 离增强的 DBD 放电, 虽然能在较大气隙产生空气 DBD,但由于紫外线都要穿过石英介质,因此预电 离效率低,大气压空气 DBD 的气隙宽度在毫米量 级. Kiriu 等^[11] 研究了 DBD 增强的氯气微等离子 体喷枪,发现其比传统喷枪产生的等离子体长度更 大. Tang 等^[12]研究了 DBD 增强的氯气辉光放电 喷枪, DBD 增强的氩气喷枪虽然可以在较大气隙 (厘米量级)产生均匀等离子体,但需要两个电源供 电,一个电源用于驱动 DBD, 另一个用于驱动喷枪.

针对上述,本文设计了一种三电极 DBD 装置. 该装置仅需要一个电源驱动,可以在大气压空气中

http://wulixb.iphy.ac.cn

^{*}国家自然科学基金(批准号:10805013,51077035)、教育部科学技术研究计划重点项目(批准号:210014)、河北省杰出青年基金(批准号: A2012201045)、河北省自然科学基金(批准号:A2011201132)和河北省教育厅优秀青年项目(批准号:Y2011120)资助的课题.

[†]通讯作者. E-mail: plasmalab@126.com

^{© 2013} 中国物理学会 Chinese Physical Society

产生较大体积的均匀等离子体.利用电学和光学方 法对其放电特性和等离子体参数进行了研究.

2 实验装置

实验装置如图 1 所示. 三电极 DBD 装置由钨 针电极、悬浮电极和接地水电极组成. 钨针电极 长 16 cm, 直径 1 mm. 与钨针电极同轴放置两个 玻璃管(管壁厚度均为1mm),两个玻璃管间充满 水作为悬浮电极.内玻璃管的内径为 1.3 cm,外玻 璃管的外径为 1.6 cm. 流量为 10 L·min⁻¹ 的空气 沿着内玻璃管在钨针电极和内玻璃管的空隙中流 动. 电源的高压输出端 (输出 40 kHz 的正弦信号) 与钨针电极相连接,钨针电极和悬浮水电极构成 了同轴 DBD. 接地水电极 (直径 6.2 cm) 放置在内 玻璃管出气口端 (喷嘴) 距离出气口 2 cm 处. 接地 水电极两侧由厚度为 1.5 mm 的玻璃板覆盖. 喷嘴 到水电极之间的区域即为主放电区.利用两个高 压探头 (Tektronix P6015A) 分别测量钨针电极与接 地电极上的电压和悬浮电极对地的电压.放电的发 光信号由光电倍增管 (PMT) (ET 9085SB) 在可见光 谱范围内探测. 电压信号和发光信号均由数字示 波器 (Tektronix DPO4054) 来显示和储存. 利用数 码相机 (Canon 7D) 拍摄放电的照片, 曝光时间为 8 ms. 放电的发光信号由透镜汇聚进入光栅光谱仪

(ACTON SP-2750 2400 线/mm)的狭缝,并由与电脑 相连的 CCD (1340 × 400 pixels) 记录, CCD 的曝光 时间为 1 ms.



图1 放电装置示意图

3 实验结果与讨论

图 2(a) 为喷嘴距离接地水电极 2 cm 时主放电 区域未放电的照片.缓慢增大外加电压峰值 (*U*_p), 当 *U*_p 增加到 13.3 kV 时,直径为毫米量级的等离子



图 2 三电极放电装置的主放电区照片 (a) 未放电时; (b), (c) 等离子体羽; (d) 等离子体柱; Up 依次为 0, 13.8, 15.8 和 11.9 kV

体会出现在主放电区,该等离子体羽与单针喷枪产 生的等离子体羽类似^[13]. 随着 Up 的进一步增大 (达到 13.8 kV 时), 在钨针电极和悬浮水电极间会 产生同轴 DBD. 伴随该同轴 DBD 出现, 主放电区 的放电直径显著增大,如图 2(b) 所示. 这种情况下 放电没有连接喷嘴和接地水电极,为等离子体羽模 式. 对比图 2(b) 和 2(c) 可以看出, 随着 Un 增加, 等 离子体羽颜色变亮, 且长度和截面积 (最大直径) 均 增加. 当 Up 为 15.8 kV 时, 等离子体羽几乎连接了 喷嘴和接地水电极. 在此基础上, 进一步增加电源 的输出功率,放电会连接两个电极,如图 2(d) 所示. 此时,放电呈现柱状,该等离子体柱随远离喷嘴距 离的增大,截面积也增大,并且在接地水电极附近 形成喇叭状. 等离子体柱放电的 Up 小于等离子体 羽起始放电数值(13.3 kV),等离子体柱的电压值在 11.5—13.1 kV 之间. 当电压峰值低于 11.5 kV, 等离 子体柱放电会熄灭. 受电源输出功率的限制, 等离 子体柱模式下电源电压峰值只能达到 13.1 kV.



图 3 放电等离子体的长度 (a) 和截面积 (b) 随 Up 的变化关系

放电等离子体长度和截面积随 U_p 的变化关系 如图 3 所示. 由图可见,等离子羽的长度随着 U_p 的增加而增加,直到放电连接两个电极后过渡到 等离子体柱模式. 在等离子体柱模式, U_p 低于等 离子体羽的数值,且等离子体柱长度恒等于 2 cm. 从图 3(b) 可以看出, 当 U_p 低于 13.8 kV 时, 由于没 有同轴 DBD, 等离子体羽截面积很小, 当 U_p 高于 13.8 kV, 随着 U_p 增大, 等离子体羽截面积也增大. 当过渡到等离子体柱模式后, 等离子体柱比等离子 体羽截面积大很多, 且随着 U_p 的增加, 等离子体柱 截面积几乎不变.

图 4 给出了外加电压 (a)、悬浮电压 (b)、同轴 DBD 的发光信号 (c) 和等离子体羽的发光信号 (d) 的波形.此时,两个 PMT 分别记录的是同轴 DBD 和等离子体羽的发光信号.由图可见,对于等离子 体羽放电模式,主放电区外加电压正半周期内有一 个放电脉冲,脉宽约为 80 ns.而同轴 DBD 的发光 信号在正负半周期内有多个无规则的脉冲,脉宽为 几十纳秒.从发光信号波形可以推断该同轴 DBD 为随机放电丝模式.此条件下悬浮电压峰值与外加 电压峰值 Up 之比约为 0.29.



图 4 外加电压 (a), 悬浮电压 (b), 同轴 DBD 的发光信号 (c) 和等离子体羽的发光信号 (d) 的波形



图 5 外加电压 (a), 悬浮电压 (b), 同轴 DBD 的发光信号 (c) 和等离子体柱的发光信号 (d) 的波形

图 5 所示为等离子体柱放电模式的外加电压、 悬浮电压、同轴 DBD 和主放电区的发光信号波形. 两个 PMT 分别测量同轴 DBD 和等离子体柱的发 光信号.由图可以看出,同轴 DBD 的发光信号仍然 为半周期内多个无规则的放电脉冲,但脉冲宽度比 图 4(b) 大很多,这说明主放电对同轴 DBD 也有影 响. 主放电区的发光信号为外加电压正负半周期内 均有一个放电脉冲,脉冲宽度约为 4.1 μs. 由于放 电连接喷嘴和接地水电极,所以此时的主放电也是 DBD. 由于外加电压半周期有一个持续时间为微秒 量级的放电脉冲,所以这种情况下主放电的击穿机 制为大气压辉光放电^[14]. 从图 5 可以得到悬浮电 压峰值与外加电压峰值之比为 0.25,比图 4 中的悬 浮电压峰值与外加电压峰值之比小,这可能是由于 两种放电模式中主放电等离子体阻抗不同导致的.

如前所述,当没有同轴 DBD 时主放电区等离 子体直径很小,而电压升高产生同轴 DBD 后主放 电区等离子体羽的直径明显增大.显然,同轴 DBD 对等离子体羽的直径有很大影响,因此有必要对其 机制进行研究. 通过图 4 可以获得等离子体羽模式 下主放电区击穿时起始电压 (Uin) 的大小. 图 6 给 出了 Uin 随 Up 的变化关系,可见 Uin 随 Up 的增加 而减小. 由于放电持续时间很短, 且放电尚未连接 两个电极 (接地水电极上的壁电荷可以忽略), 可以 近似认为气体击穿电场由 Uin 决定. 因此图 6 说明 主放电区击穿电场随着 Up 的增加而减小,这种现 象是由于同轴 DBD 的影响造成的. 众所周知, 同轴 DBD 会随着 Up 的增大而增强,即随着 Up 的增大, 同轴 DBD 会在主放电区产生更多的紫外光. 通过 紫外光电离,主放电区会有更多的种子电子,这些 种子电子能显著降低主放电区的击穿电场,因此随 着 Up 的增大击穿电场减小.



图 6 等离子体的击穿电压随 Up 的变化关系

利用凸透镜对等离子体羽成等大的像,在像平 面放置孔径为1mm的光阑,光阑后放置PMT用 于接收通过光阑的光信号.采用两个PMT分5次 来测量不同位置的光信号.在进行测量前我们已经 对两个PMT的时间关系进行了校准,即利用两个 PMT 对相同发光区域进行采集,比较其信号关系. 由于两个 PMT 的型号相同, 所加电压相同, 两个 PMT 对于相同信号具有很好的时间对应关系,在进 行测量总光信号和不同位置的部分光信号时,将总 光信号设置为触发信号,5次分别测量的不同位置 的部分光信号和总光信号.由于总光信号作为基准, 它的位置是确定的.这样就可以把不同位置的光信 号时间关联在一起进行比较. 通过该方法, 可以探 测和比较等离子体羽不同位置的发光信号,结果如 图 7 所示. 顶端的曲线是总发光信号, 位置 A 对应 于喷嘴处的发光信号, B, C, D和E分别对应于距 离喷嘴 5,10,15 和 20 mm 位置的发光信号. 通过图 7可以看出,不同位置的放电脉冲起始时刻不同,越 靠近喷嘴越先放电. 这表明放电是以发光光层的形 式从喷嘴向着接地水电极传播,这和氦气喷枪中的 等离子体子弹行为类似^[15].通过图7还可以发现, 不同位置放电发光的脉宽不同,即不同位置放电的 持续时间是不同的,越靠近接地水电极放电持续时 间越长.



图 7 等离子体羽发光信号的空间分辨测量

图 8 给出了等离子体柱空间分辨测量的结果, 其中 A 是喷嘴处的光信号,位置 B, C, D 分别对应 距离喷嘴处 5, 10 和 15 mm. 通过图 8 可以看出,等 离子体柱不同位置的发光几乎是同时出现且同时 消失的.由于发光信号反映了放电信号,即只要有 放电,电子碰撞电离产生放电的同时必然会碰撞激 发而发光,因此导致放电过程总伴随发光,通过发 光信号就可以反映放电的情况.如图 8 所示,由于 不同位置的发光信号几乎同步,因此说明等离子体 柱不同位置的放电也是同步的,即同时产生同时熄 灭.因此,辉光等离子体柱的放电行为与喷枪等离 子体羽的连续模式^[16] 类似.

由于等离子体羽放电是以等离子体子弹传播 的,利用两个 PMT 间的距离除以信号延迟时间可 以得到等离子体子弹的传播速度.图9给出了等离子体子弹速度的空间分布 (a)和子弹平均速度随 U_p 的变化关系 (b).图 9(a)对应于 $U_p = 15$ kV 的等离子体羽,从图中可以看出,等离子体子弹速度的量级为 10⁵ m/s,且随远离喷嘴而减小,该速度和氦气喷枪中的子弹速度量级一致^[17].通过图 9(b)可知,等离子体子弹速度随着 U_p 的增加而增大.



图 8 等离子体柱发光信号的空间分辨测量

对于外加电压正半周期,喷嘴和接地水电极之 间的电场方向从喷嘴指向接地水电极. 电子雪崩向 着瞬时阳极发展,进入喷嘴后会和同轴 DBD 等离 子体作用而消失,而离子迁移速度远小于电子,所 以会使得喷嘴前方有空间正电荷层. 空间正电荷层 产生附加电场,在电荷层前方,附加电场与外加电 场同向,电场加强.放电发射的紫外光电离空间电 荷层前方的气体产生种子电子. 这些种子电子会向 着空间电荷层移动,产生新的电子雪崩. 当电子进 入空间电荷层后,会在其运动路径上留下新的正电 荷,即形成新的空间正电荷层.显然,虽然电子从瞬 时阴极 (接地水电极) 向着瞬时阳极 (喷嘴) 运动, 但 产生的效果为空间正电荷层从喷嘴向着接地水电 极移动. 根据上面的分析, 空间正电荷层前方必有 一个发光光层(新电子雪崩向着空间电荷层运动产 生的激发辐射).因此,发光光层(等离子体子弹)总 是从喷嘴向着接地水电极运动.显然,等离子体子 弹的形成与流光的形成类似,由流注理论决定.紫 外光电离对流光传播具有重要作用,只有在空间正 电荷层前方产生足够多的种子电子,流注才能形成 和传播. 对于传统的流光, 放电自身产生的紫外光 电离前方的气体产生种子电子. 对于三电极 DBD 系统而言,除了主放电的紫外光对自身放电的影响 外,同轴 DBD 放电产生的紫外光也会对主放电产 生重要作用. 如果同轴 DBD 产生更多的紫外光, 在 主放电区必能光电离产生更多种子电子,因此在空 间正电荷层向接地水电极传播过程中,新的电子雪崩更容易形成并向空间正电荷层汇聚.紫外光电离越强,新电子雪崩产生时间越短,则发光光层(等离子体子弹)传播速度越大.显然,随 Up 增大,同轴 DBD 放电增强,发射紫外光增多,等离子体子弹速度增大,这和图 9(b) 所示结果一致.同样,同轴 DBD 紫外光电离产生种子电子的密度与距离喷嘴的距离有关,距离喷嘴越远,紫外光电离产生种子电子的密度越小.因此,等离子体子弹速度随着远离喷嘴而减小,这与图 9(a) 所示结果一致.



图 9 $U_p = 15 \text{ kV}$ 时等离子体羽发展速度的空间分布 (a) 和其 发展速度随 U_p 的变化关系 (b)

利用光栅光谱仪同时采集了主放电和同轴 DBD 的发射光谱,如图 10 所示,采集波长范围为 300—480 nm. 从图中可以看出,等离子体羽的发射 光谱除 OH 自由基外,与同轴 DBD 的发射光谱类 似,都包含 N₂ 的第二正带系和 N⁺₂ 的第一负带系 组成.用 N₂ 的第二正带系拟合可以得到氮分子的 振动温度. N⁺₂ 第一负带系转动谱线可以用来计算 分子的转动温度.主放电分子振动温度 (*T*_v)和转动 温度 (*T*_r)随着 *U*_p 的变化关系如图 11 所示. 从图中 可以看出,随着 *U*_p 的增加等,离子体的振动温度和 转动温度均减小.如前所述,等离子体羽击穿电压



图 10 等离子体羽和同轴 DBD 在 300—480 nm 之间的发射 光谱 (U_p = 13.8 kV)



图 11 主放电的振动温度 (a) 和转动温度 (b) 随 U_p 的变化关系

随着 U_p 增大而减小,说明击穿时外加电场随着 U_p 增大而减小.而流光放电附加电场与外加电场相差 不多,即随着 U_p 增大,放电的总电场减小.因此随 着 U_p 增大,电子能量减小.电子能量越小,碰撞过 程中传递给气体分子的能量也减小,即振动温度和 转动温度均随 U_p 增大而减小.对于等离子体柱,由 于是 DBD 放电, Up 越大则放电越剧烈, 放电产生 的带电粒子越多且壁电荷越多,所以放电的γ系数 (平均每个正离子轰击阴极产生的电子数) 增大,且 每次放电剩余的活性粒子增多,这些因素都会造成 气体的击穿电场减小.即 Up 增大,等离子体柱的放 电电场减小,电子温度减小. 故随着 Up 的增大,等 离子体柱的振动温度和转动温度也减小. 从图 11 还可以看出,等离子体柱的振动温度和转动温度分 别高于等离子羽的振动温度和转动温度,这可能是 由于不同的放电机制造成的. 在等离子体羽模式中 放电属于流注机制,整个放电过程仅为几十纳秒, 在如此短的时间内,电子不能充分将能量传递给气 体分子,所以表现为较低的分子振动温度和转动温 度. 对于等离子体柱模式, 放电持续时间为几个微 秒,电子与中性粒子充分碰撞,将能量传递给气体 分子,所以表现为较高的分子振动温度和转动温度.

4 结论

采用三电极 DBD 装置, 在大气压空气中分别 产生了较大体积的等离子体羽和等离子体柱两种 模式的放电.利用光学和电学方法,对两种模式的 放电特性进行了研究.结果发现等离子体羽模式的 长度和截面积都是随着 Up 的增加而增大,等离子 体羽起始电压随着 Up 的增加减小,说明同轴 DBD 的紫外预电离对于主放电具有重要作用. 当电源的 输出功率增大到一定值时,放电过渡到等离子体柱 模式.利用光电倍增管对等离子体羽和等离子体 柱进行了空间分辨测量,发现等离子体羽是以发光 光层的形式传播的,其等离子体子弹的传播速度为 10⁵ m/s 量级. 等离子体柱各个位置几乎同时放电. 通过采集等离子体羽和等离子体柱的发射光谱,对 其振动温度和转动温度进行了测量,发现其振动温 度和转动温度均随着 Up 的增大而降低. 通过分析 两种放电模式的放电机制,对以上实验现象进行了 定性解释.

- Nicolas G, Steve M, Francoise M 2000 J. Phys. D: Appl. Phys. 33 L104
- [2] Richmonds C, Sankaran R M 2008 Appl. Phys. Lett. 93 131501
- [3] Eliason B, Kogelschatz U 1991 IEEE Trans. Plasma Sci. 19 309
- [4] Fridman G, Friedman G, Gutsol A, Shekhter A B, Vasilets V N, Fridman A 2008 Plasma Process. Polym. 5 503
- [5] Kong M G, Kroesen G, Morfill G, Nosenko T, Shimizu T, van Di jk J, Zimmermann J L 2009 New J. Phys. 11 115012
- [6] Iza F, Kim G J, Lee S M, Lee J K, Walsh J L, Zhang Y T, Kong M G 2008 Plasma Proc. Polym. 5 322
- [7] Roth J R 1997 Phys. Rev. E 55 6731
- [8] Fang Z, Qiu Y, Zhang C, Kuffel E 2007 J. Phys. D: Appl. Phys. 40

1401

- [9] Park H D, Dhali S K 2000 Appl. Phys. Lett. 77 14
- [10] Qi B, Ren C S, Wang D Z, Li S Z, Wang K 2006 Appl. Phys. Lett. 89 131503
- [11] Kiriu S, Miyazoe H, Takamine F, Sai M, Choi J H, Tomai T, Terashima K 2009 Appl. Phys. Lett. 94 191502
- [12] Tang J, Li S, Zhao W, Wang Y S, Duan Y X 2012 Appl. Phys. Lett. 100 253505
- [13] Li X C, Yuan N, Jia P Y, Chang Y Y, Ji Y F 2011 Acta Phys. Sin. 60

125204 (in Chinese) [李雪辰, 袁宁, 贾鹏英, 常媛媛, 稽亚飞 2011 物 理学报 60 125204]

- [14] Kogelschatz U 2002 IEEE Trans. Plasma Sci. 30 1400
- [15] Shi J J, Zhong F C, Zhang J, Liu D W, Kong M G 2008 Phys. Plasmas 15 013504
- [16] Walsh J L, Iza F, Janson N B, Law V J, Kong M G 2009 J. Phys. D: Appl. Phys. 43 075201
- [17] Qian M Y, Ren C S, Wang D Z, Zhang J L, Wei G D 2010 J. Appl. Phys. 107 063303

Investigation on the characteristics of dielectric barrier discharge with fairly large volume generated in air at atmospheric pressure^{*}

Li Xue-Chen[†] Chang Yuan-Yuan Liu Run-Fu Zhao Huan-Huan Di Cong

(Key Laboratory of Photo-Electronics Information Materials of Hebei Province, College of Physics Science and Technology,

Hebei University, Baoding 071002, China)

(Received 14 December 2012; revised manuscript received 19 April 2013)

Abstract

By using a tri-electrode dielectric barrier discharge device, a uniform discharge with fairly large volume is realized in the main discharge region in atmospheric pressure air. The characteristics of the main discharge are investigated by optical and electrical methods. Results show that the main discharge includes two discharge modes with changing the input power of the source, which are a plasma plume discharge and a plasma column discharge. The inception voltage decreases with the increase of the peak value of the applied voltage for plume discharge. It can be deduced that the pre-ionization of air in the main discharge region is important for the main discharge, which results from the UV emitted from the coaxial dielectric barrier discharge. Spatially resolved measurements are conducted on the plasma plume and the plasma column with photomultiplier tubes. It is found that the plasma plume behaves like a plasma bullet that corresponds to a fast moving layer of light emission zone. Comparatively, the discharges at different positions of the plasma column almost volley, which means that the plasma column is of continuous discharge. Through analyzing the optical spectrum emitted from the main discharge, the vibrational temperature and rotational temperature are calculated. Results indicate that both the vibrational temperature and the rotational temperature decrease with the increase of peak value of the applied voltage. These results are of significance for the industrial applications of dielectric barrier discharge.

Keywords: dielectric barrier discharge, plasma plume, plasma column, emission spectrum

PACS: 52.80.Tn, 52.80.Mg

DOI: 10.7498/aps.62.165205

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10805013, 51077035), the Key Project of Chinese Ministry of Education (Grant No. 210014), the Fund for Distinguished Young Scientists of Hebei Province, China (Grant No. A2012201045), the Natural Science Foundation of Hebei Province, China (Grant No. A2011201132), and the Outstanding Young Scientist Fund of Department of Education of Hebei Province, China (Grant No. Y2011120).

[†] Corresponding author. E-mail: plasmalab@126.com