

一种新型大气压毛细管介质阻挡放电冷等离子体射流技术

孙 姣 张家良 王德真 马腾才

(大连理工大学三束材料改性国家重点实验室,大连 116023)

(2005 年 4 月 13 日收到,2005 年 5 月 17 日收到修改稿)

介绍一种结构设计简单、操作运行方便的新型毫米量级大气压冷等离子体射流发生技术.这种射流可以在大气压条件下,利用多种工作气体(如 Ar, He, N₂)通过毛细管介质阻挡放电(DBD)的方式实现.使用频率为 33kHz,峰值电压为 1—12kV 的双向脉冲电源,利用 Ar, He, N₂ 等工作气体,在毛细管内形成了稳定的冷等离子体射流.放电区域的光辐射空间分布利用商用 CCD 摄像机记录,从中研究放电形态和空间分布,观察到了在 DBD 区域的流动气体放电和在毛细管出口处形成的等离子体射流.在 DBD 区域,气体静止时发生的是丝状放电,随气流速度的增加逐步转为类辉光放电.在毛细管出口处的等离子体射流区,等离子体的发光强度随气体种类和流速的不同而明显改变.实验中,利用焓探针测量气体的流速,得到了在不同气体中形成的等离子体射流的临界流速是 3—8m/s.射流的射程随气体流速的增加而增加,不同气体产生的射流射程差别很大,当 He 流速为 20m/s 时,其射流最长达到 44mm 左右.但当 He 流速超过 20m/s 时,He 等离子体射流就变得不稳定,出现涡流,而且射程变短.He 射流的发射光谱结果显示,其激发温度在 2000—3000K 之间,远低于大气压电弧射流的激发温度.由此显示,这是一种冷等离子体射流.

关键词:冷等离子体射流,毛细管介质阻挡放电,射流射程,射流激发温度

PACC:5275, 5225, 5280

1. 引言

大气压放电,特别是电弧放电等离子炬和电晕放电,已经广泛应用于材料的处理和去污方面.然而大多数此类应用技术是用高温等离子炬集中进行大面积的材料处理,包括表面喷涂、焊接和表面刻蚀等,而电晕放电应用于污染物的去除过程.近年来,研究发现,大气压微型冷等离子体射流表现出许多低气压辉光放电的优点^[1],如体积小,温度低,电成本低,以及电子密度高于 10^{13} cm^{-3} 等^[2],所以在科学和工程领域都引起了较大的关注.微型等离子体射流技术揭示了一种与 Schottky 放电理论相反的、新型等离子体产生机理^[3].这类微型等离子体射流及其阵列化结构适用于多种材料处理工艺,例如,利用微小尺寸这一优势,可以进行表面图案的直接刻蚀加工成型^[4].这种新型等离子体技术还可应用于诸多领域,如类金刚石膜、碳化物膜、硅化物膜的化学气相沉积(CVD)制备^[5];硅表面纳米结构图案的刻蚀^[6];大批量的等同样品的同时快速制备^[7]以及毛

细管色谱输出信号的检测^[8]等.

目前,已经提出了几种产生微型等离子体及其射流的技术.大气压微型冷等离子体及其阵列化等离子体源可以通过直流微空心阴极阵列三极放电技术实现^[9,10],也可通过在小电极间隙平行板间的射频或高频功率源容性耦合放电得到^[11].而冷等离子体射流通常是由石英介质阻挡毛细管射频容性耦合^[12]或感性耦合放电产生的^[2].可是,在这些已经提出的技术中也存在一些缺点.一方面,一般来说,在利用直流微空心阴极阵列产生微型等离子体的放电中,经常会发生阴极溅射^[6],从而导致电极结构被损坏,影响等离子体发生装置的寿命.另一方面,在介质阻挡毛细管射频放电中,当射频功率输入超出某一范围时,产生的射频等离子体射流容易转化为不稳定的电弧而热化^[13].另外,在小的腔体内,在器壁上会损失更多电子,所以等离子体难于维持,尤其是由射频驱动的等离子体,由于无法产生足够有效的“空心阴极”效应,射频放电需要有高于 10^3 V 的射频电压才能维持^[14,15].

基于上述对微型等离子体及其射流技术的优缺

点的认识,已经证实,射频激励微型等离子体射流放电,辅助以一个脉冲高压点火电极的话,会更易于触发和维持^[6]。由此设想:若辅助以一个交流高压电极,用于发生 DBD 放电,其产生的等离子体产生种子带电粒子,能够更易于实现射频放电而产生等离子体射流。本文将介绍一种设计简单、运行有效的新型石英毛细管介质阻挡放电装置,它能够在石英毛细管内的流动气体中产生毫米量级的大气压冷等离子体射流。这种射流可以在多种工作气体(如 Ar, N₂, He 及它们的混合物)中、并在大气压条件下实现,石英毛细管介质阻挡放电由重复频率为 33kHz、峰值电压为 12kV 的电源实现。放电的光辐射利用商用 CCD 摄像机记录,利用放电的光学亮度图像可以研究放电的形态和空间分布,观察在 DBD 区间的流动气体放电和在毛细管出口处形成的等离子体射流。在 DBD 区域,气体静止时发生的是丝状放电,随气流速度的增加逐步转为均匀放电。在毛细管出口处的等离子体射流区,等离子体发光强度随气体种类和流速的不同而明显改变。我们利用自行设计的焓探针测量气体的流速,研究了气体流速与 DBD 放电和在毛细管出口处形成的等离子体射流形态的关系。

2. 射流实验装置的设计

图 1 所示为石英毛细管 DBD 等离子体射流发生装置示意图。装置的主体部分是一个接有工作气体进气口的毛细石英管,接地的线圈紧紧的绕在石英管的外壁,一根极细的钨棒作为驱动电极,居于毛细管的轴心,钨电极表面首先在 KOH 溶液中进行电化学处理,去除表面氧化物层。钨电极的一端在焊接到毛细管内之前首先被电化学腐蚀成锥尖形,尖端插入毛细管内,处理后钨电极的直径是 0.45mm,石英毛细管一端被封闭,另一端开放作为等离子体射流出口,毛细管长度是 100mm,外径是 7mm,内径是 4mm。发生装置的放电电源是自制的高压电源,可提供固定频率 33kHz 及 1—12kV 的可调电压。因为线路的原理类似于电视机使用的行扫描电路,所以电源的输出波形是不对称的梯形波。电源的功率输出端连接在钨电极上,接地端可靠地连接地线及发生装置的接地电极。一只 TEK P6015A 型高压探头用来检测电源输出的电压波形。虽然也曾尝试用一只 TCP202 型电流探头探测放电电流波形,但没有记录

到可靠的放电电流,因为电流振幅太低,而由放电引起的电噪声太强。

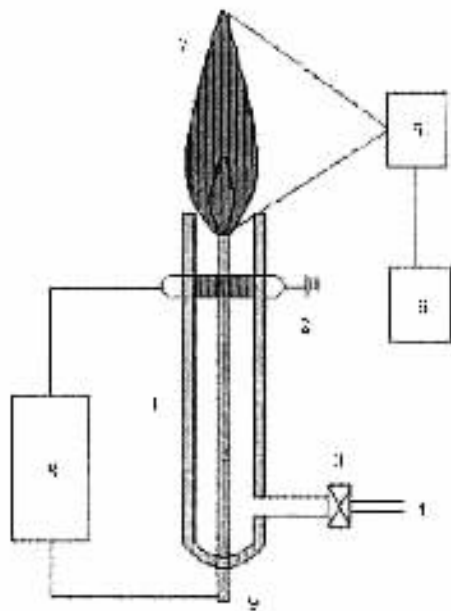


图 1 石英毛细管 DBD 等离子体射流发生装置和成像系统示意图 1. 石英毛细管(φ7mm) 2. 接地线圈 3. 流速控制阀 4. 气体入口 5. CCD 摄像机 6. 计算机 7. 等离子体射流 8. HV 功率源 9. 钨电极

选择 Ar, He, N₂ 作为产生等离子体射流的工作气体是因为这三种气体在开放的环境中工作时,对大气环境和人员不会造成伤害。气体流速用自制的、基于伯努利原理的焓探针测量。图 2 即为焓探针的示意图,其中 U 形压强计是用玻璃制成的,其中填充了由若丹明染料和酒精混合而成的浅红色溶液。利用此焓探针可以测量气流压强与其静止压强差,从中可以得到等离子体射流的流速。

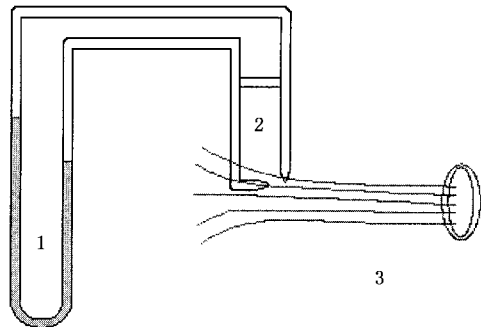


图 2 焓探针示意图 1. 填充了染料和酒精溶液的 U 形管 2. 交叉设置的测速毛细管 3. 等离子体射流区域

按照伯努利原理,对于层流系统,沿任何流线,

有如下等式成立：

$$P + \rho v^2/2 + h = \text{constant}, \quad (1)$$

其中 P 是流动介质的压力, ρ 是介质的质量密度, v 是流动速率, h 是体积比焓. 由于冷等离子体射流能够被看成是等温的, 所以可以认为它的比焓 h 在流场范围内各处都是不变的, 则方程(1)可简化为

$$P + \rho v^2/2 = P_0, \quad (2)$$

其中 P_0 是流体的静止压强, 由方程(2)流体的流速可表示为

$$v = [\chi(P_0 - P)/\rho]^{1/2} = (2\Delta P/\rho)^{1/2}, \quad (3)$$

其中 ΔP 为焓探针测量到的压强差.

一台与人眼的光谱响应曲线相似的 CCD 相机, 能够记录任意时刻等离子体射流的图像. 根据所得到的图像, 可以分析等离子体射流的光强度及其射程. 研究等离子体射流的密度分布特性, 可以通过对利用相机获得的图像的亮度进行定量比较实现. 从射流在不同放电条件下图像光亮度的变化, 可以研究等离子体射流密度的变化趋势与放电条件的关系, 例如流速和放电气体种类.

3. 射流运行特性分析

虽然产生等离子体射流的装置的放电间隙只有 1—2mm 大小, 却有二种不同的放电模式发生, 一种是在钨电极和接地线圈之间发生的 DBD 放电; 另一种放电是在钨电极的尖端附近首先发生的, 然后在毛细管出口处被气流扩展为射流等离子体. DBD 放电充当射流等离子体放电的预放电而实现点火, 它为形成射流提供种子电子, 离子等带电粒子和其他载能粒子被气流载到等离子体射流区. 由于气体流场和一定密度的种子带电粒子的存在, 在毛细管开口处产生的等离子体射流是不同于尖端电晕放电的、放电性质空间均匀的射流等离子体. 图 3 所示为氦等离子体射流的一个典型 CCD 图片. 放电工作条件为, 电压 5kV, 气体流速 20m/s.

3.1. 在氩气、氦气和氮气中产生的等离子体射流

尽管 Ar, He, N₂ 在大气压下发生 DBD 放电的点火电压不同, 但在如下所述的放电条件下用这三种气体都能够发生 DBD 放电产生等离子体射流: 放电间隙 1mm, 电源频率 33kHz, 峰值电压 5kV, 特别是放电气体要以一定的流速流动. 图 4 所示为相同放电条件下产生的 Ar, He, N₂ 等离子体射流的图片,

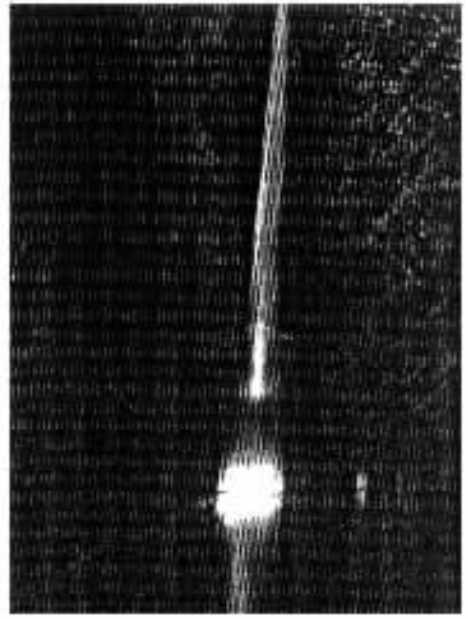


图 3 氦等离子体射流的典型图片(放电条件: 电压 5kV, 气体流速 20m/s)

放电条件为: 电压 5kV, 气体流速 15m/s. 三种等离子体射流呈现的锥形分布与燃烧火焰几乎相同, 在核心区域的亮度比外围的高, 但是它们的射程有很大不同. 另外, 三种射流图像的整体亮度也是截然不同的, 这说明等离子体中的放电激发强度由于三种气体的不同性质会有很大区别. 可以想象, 射流等离子体的锥形空间分布主要是由气体层流场的速度场分布形式决定的, 同时, 靠近钨电极尖顶端的电场强度分布形式也会对最后的射流分布产生一些影响, 因为电场空间分布因等离子体的形成而改变, 不再是极射线状分布.

3.2. 等离子体射流的射程和气体流速的关系

对任何气体形成的等离子体射流, 气体流速都是一个关键要素. 图 5 所示为流速不同的 He 气流在钨电极顶端产生系列等离子体射流的照片. 如果氦气是静止的, 则没有射流出现在毛细管之外, 只有包围钨电极顶端的一个小范围的电晕产生. 当氦气以超过某种临界值的速度流动时, 等离子体射流就会形成并且流速越大射程也越大直到流场变成湍流. 根据我们的实验结果, 可以证实: 不同的气体形成等离子体射流的临界速度是不同的. Ar, He 和 N₂ 的临界速度分别是 5m/s, 3m/s 和 8m/s. 图 6 则显示了氦气流速达到 22m/s 和 25m/s 时等离子体射流是湍流状态因而不稳定, 相应的射程比在流速为 20m/s 时

产生的等离子体射程要短一些. 虽然 Ar 和 N₂ 的湍流临界速度在实验中没有准确地测定出来,但可以

想象, He 应该有最高的湍流临界速度, 因为 Ar, He 和 N₂ 中, 同样流速时氦气的马赫数最小.

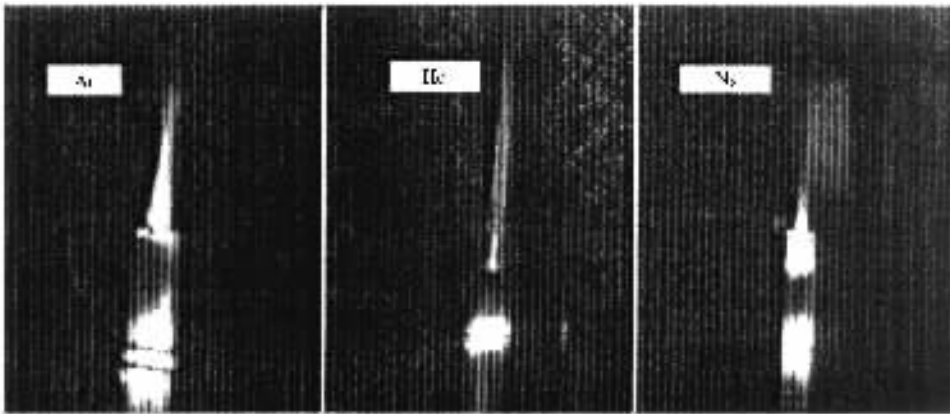


图 4 相同放电条件下产生的 Ar, He, N₂ 等离子体射流(放电条件: 电压 5kV, 气体流速 15m/s)

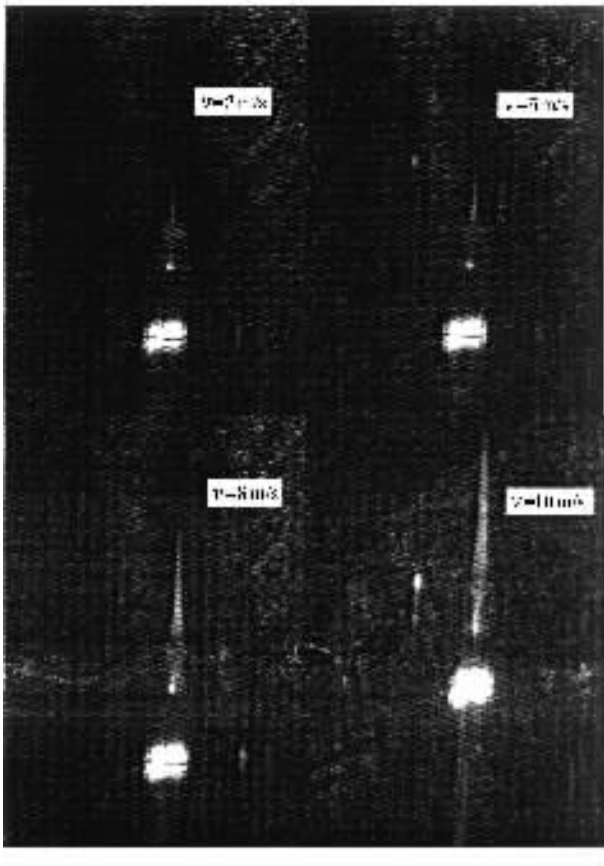


图 5 放电电压 5kV 时流速不同的 He 气流产生的系列等离子体射流

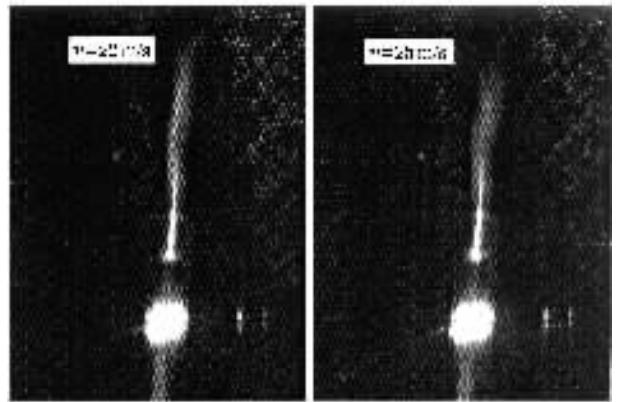


图 6 氦气等离子体射流流速达到 22m/s (a)和 25m/s (b)时产生湍流

图 7 给出了氦等离子体的射程和气体流速之间的关系. 气体流速通过焓探针提供的压强差由方程 (3) 得到, 而射程是通过 CCD 图像中的毛细管和射流的尺寸比较得到的. 显然, 在湍流临界速度以内,

He 和 Ar 的等离子体射流射程随气体流速的增加几乎是线性的. 射流射程与气体流速之间的线性关系, 是由射流放电区域形成的亚稳态粒子和载能电子的有效飞行距离决定的, 亚稳态粒子和载能电子是能够有效产生具有发光活性的激发态粒子的两种成分. 在射流区域内它们的密度分布决定了射流等离子体各处的发光强度分布. 因为存在碰撞淬灭过程, 这两种活性成分的使用寿命是有限的, 其有效飞行距离与其流速有关. 因此随着气体流速的增加, 亚稳态粒子和载能电子的飞行距离会增加, 射流等离子体射程随之增加. 即随着气体流速的增加, 等离子体射流射程几乎呈线性递增趋势.

3.3. 等离子体射流的激发温度

等离子体的激发温度用来表征其中离子、分子

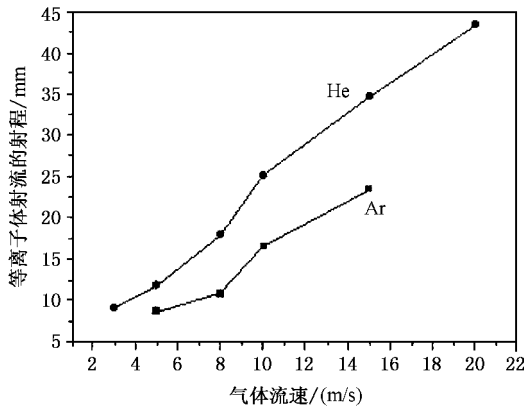


图 7 氦和氩等离子体射流射程和气体流速之间的关系(放电电压 5kV)

和原子的激发过程的发生强度. 如果激发过程主要是由电子碰撞过程实现的, 那么激发温度的变化反映了等离子体中电子能量的变化, 即电子温度的高低. 当处于一定激发能量范围内的激发态能级上的粒子布居数与此能量范围的电子达到碰撞激发平衡时, 处于第 q 能级的粒子数密度 n_q 由 Boltzmann 分布给出

$$n_q = \frac{n}{Z} g_q \exp\left(-\frac{E_q}{kT_{\text{exc}}}\right), \quad (4)$$

式中 $Z = \sum_q g_q \exp\left(-\frac{E_q}{T_{\text{exc}}}\right)$ 为配分函数, g_q 为统计权重, E_q 是 q 能级的能量, T_{exc} 为激发温度. 从能级 q 向 p 跃迁的光谱线强度

$$I_{qp} = (hc/4\pi\lambda_{qp}) g_q A_{qp} (n/Z) \exp(-E_q/kT_{\text{exc}}). \quad (5)$$

对于由相同电离价态的粒子辐射产生的谱线, $nhc/4\pi Z$ 是一个常数, 所以, 以 $\ln(I_{qp}\lambda_{qp}/g_q A_{qp})$ 对 E_q 作图会得到一条直线, 斜率是 $-1/kT_{\text{exc}}$. 由此可确定等离子体的激发温度. 选用氦气为工作气体, 用单色仪采集氦等离子体的发射光谱. 放电毛细管尺寸为内径 4mm, 外径 7mm, 毛细管长度 100mm. 放电电压变化范围为 6.5—8.5kV, 气体流速变化范围为 8—17m/s. 用上述 Boltzmann 斜率法计算得到的温度在 2000—3000K 之间. 此激发温度远低于典型的大气压电弧等离子体的激发温度(10000K), 这说明射流中电子温度较低. 然而在射流中激发温度其实并不代表等离子体的气体动力学温度, 射流中的主要电离机理不是热电离, 而是亚稳态为基础的电子碰撞电离. 图 8 为激发温度随电压变化的曲线图, 气体流速为 9m/s. 图 9 为激发温度随气体流速变化的曲线

图 8 电压为 7000V.

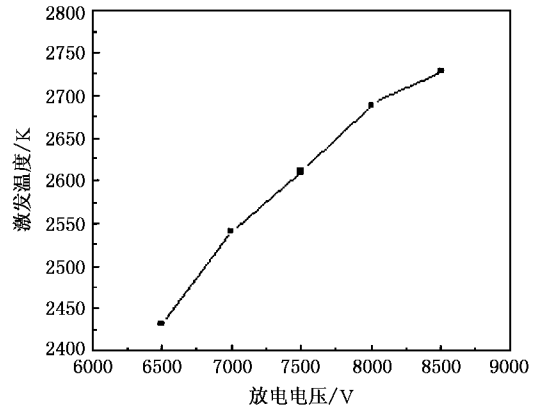


图 8 激发温度随电压变化的曲线图

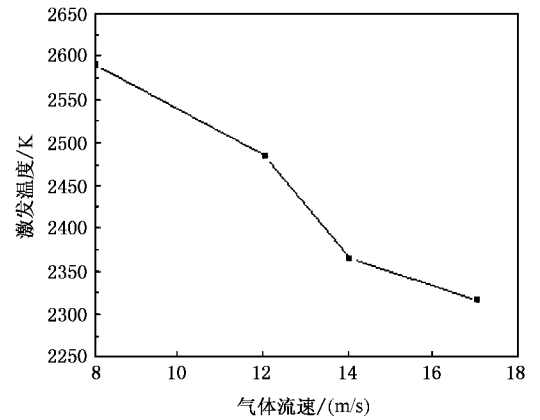


图 9 激发温度随气体流速变化的曲线图

4. 讨论与结论

等离子体射流的 DBD 区域是产生等离子体射流的一个关键因素, 因为无论使用何种气体, 射流区域的初始种子载能粒子都必须由 DBD 等离子体提供. 如果没有此 DBD 区域提供初始种子载能粒子, 射流将不能形成. 虽然可以做如下推测: 当 DBD 区域越靠近射流等离子体区域时, 从 DBD 区域进入射流区域的种子带电粒子密度就应该越高, 因而产生的射流密度应该越大. 但是如图 10 所示, 氦等离子体射流的图像亮度或是密度和射程几乎与 DBD 区域和射流等离子体区域之间的距离无关. 目前对于这两个区域的这种无关性尚无可靠合理的解释.

如上所述, 本文介绍了一种新型的大气压冷等离子体射流发生技术, 用 Ar, He 和 N_2 气流得到了毫米量级的等离子体射流. 对于不同的工作气体, 等

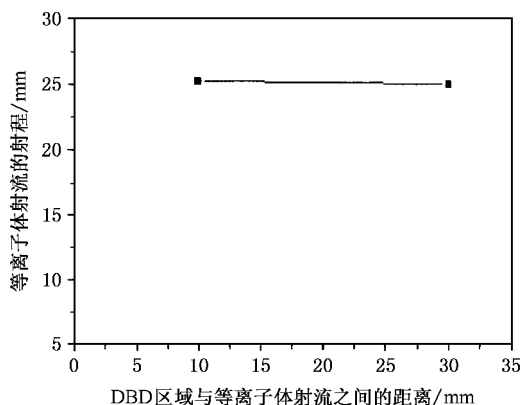


图 10 DBD 区域对氦等离子体射流射程的影响 (气体流速 10m/s)

离子体射流的射程有所不同,在相同的放电条件下,氦气形成的射流射程是这三种工作气体中最长的。

各种工作气体的临界流速决定了等离子体射流能否形成。Ar、He 和 N_2 形成等离子体射流的临界速度分别是 5m/s、3m/s 和 8m/s。He 和 Ar 等离子体射流的射程随气体流速的增加而线性递增。在放电电压变化范围为 6.5—8.5kV, 气体流速变化范围为 8—17m/s 时,氦等离子体的激发温度在 2000—3000K(即 0.25eV 左右)之间,气体流速一定时,随着放电电压的增大,氦等离子体激发温度上升,即电子温度上升,放电电压一定时,随着气体流速的增加,氦等离子体激发温度下降,即电子温度相应下降,这是因为气流方向上的电子平均自由程减小所致。

本文研究工作是在大连理工大学青年教师培养基金的支持下完成的。另外,李德军先生在工作中协助完成了大量实验工作。在此,作者一并表示诚挚的感谢。

[1] Wang Y H, Wang D Z 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1694 (in Chinese)
[王艳辉、王德真 2003 物理学报 **52** 1694]

[2] Kikuchi T, Hasegawa Y, Shirai H 2004 *J. Phys., D: Appl. Phys.* **37** 1537

[3] Mohan Sankaran R, Konstantimos Giapis P 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 593

[4] Wang S, Schulz-von der Gathen V, Doebele H F 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 3272

[5] Rocca J J, Cotazar O D, Tomasel F G, Szapiro B T 1993 *Phys. Rev. E* **48** 2378

[6] Ito T, Izaki T, Terashema K 2001 *Thin Solid Film.* **386** 300

[7] Ito T, Izaki T, Terashema K 2000 *Surf. Coat. Technol.* **133-134** 497

[8] Brede C, Pedersen-Bjergaard S, Lundanes E, Greibrokk T 1998 *Anal. Chem.* **70** 513

[9] Schoenbach K H, Verhappen R, Tessnow T, Peterkin F E 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 13

[10] Sankaran R M, Giapis K P 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 2406

[11] Barankova H, Bardos L 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 285

[12] Koinuma H, Ohkubo H, Hashimoto T 1992 *Appl. Phys. Lett.* **60** 816

[13] Guo Y B, Hong F C 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 887

[14] Dan-Anghel S 2002 *IEEE Trans. on Plasma* **30** 660

[15] Cada M, Hubicka Z, Sicha M, Churpita A, Jastrabik L, Soukup L, Tichy M 2003 *Surf. Coat. Technol.* **174-175** 530

[16] Ito T and Terashima K 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 2648

A novel cold plasma jet generated by capillary atmospheric dielectric barrier discharge

Sun Jiao Zhang Jia-Liang Wang De-Zhen Ma Teng-Cai

(*State Key Laboratory for Material Modification, Dalian University of Technology, Dalian 116023, China*)

(Received 13 April 2005; revised manuscript received 17 May 2005)

Abstract

An easy-operated and effective scheme is presented to generate a novel kind of atmospheric cold plasma millimeter jet. The jet operates with many kinds of working gas at atmosphere pressure, such as Ar, He and N₂, in a capillary quartz dielectric barrier discharge (DBD) system powered by a pulsed power source with a frequency of 33kHz and variable voltage of 1—12kV. Via an CCD imager, the initial discharge filaments in the DBD gap are found to be transformed into diffusion discharge or glow-like discharge by the flowing gas through the DBD gap, and a plasma jet formed in the outlet of the capillary is viewed simultaneously. The critical velocity of the gas flow for the plasma jet formation is determined to be 3—8m/s for different working gases by a well-designed enthalpy probe. The jet range for a special gas can be changed by the increase of the gas flow velocity while the jet range for different gases varies a lot and the helium jet takes the longest range of about 44mm when the helium flows at a velocity of about 20m/s. Beyond the velocity limit of 20m/s for laminar helium flow, the jet of helium plasma becomes torrent and unstable and its range turns shorter. Based on the OES analysis of He plasma jets, it is determined that the excitation temperature of He jets lay in the range 2000K—3000K, which is much lower than the excitation temperature of a normal arc plasma torch and hints that the jet is cold especially when compared to the arc plasma torch.

Keywords : cold plasma jet, capillary dielectric barrier discharge, plasma jet range, plasma jet excitation temperature

PACC : 5275, 5225, 5280