

单侧阵列电极介质阻挡放电时空不对称超点阵斑图研究*

赵正彬¹⁾ 皮文涛²⁾ 李骋¹⁾ 高伟民¹⁾ 孙仕伟¹⁾

刘畅^{3)†} 潘宇扬^{2)†} 董丽芳^{1)†}

1) (河北大学物理科学与技术学院, 保定 071002)

2) (河北大学质量技术监督学院, 零碳能源建筑与计量技术教育部工程研究中心, 保定 071002)

3) (河北大学公共卫生学院, 保定 071002)

摘要

本工作设计了单侧四边形阵列电极介质阻挡放电装置, 首次发现了两种具有时空不对称性的超点阵斑图, 并对其形成机制进行了实验和理论研究. 求解拉普拉斯方程, 发现阵列电极和平板电极表面附近的电场具有不同的空间分布. 在氩气和空气的混合气体放电中, 观察到两种新型的四边形超点阵斑图. 采用高速照相机和光电倍增管对其中一种斑图进行了时空动力学测量, 结果发现其正负半周期的放电结构不同, 表现出时空不对称性. 采用光谱仪诊断各个子结构的等离子体参数. 理论上, 采用 COMSOL 求解泊松方程, 不仅解释了斑图放电的时空顺序, 还发现正半周期子结构的再次放电是由于横向电场较强导致的壁电荷输运, 给出了时空不对称斑图的形成机制. 本工作为非对称电场介质阻挡放电斑图动力学研究开辟了新方向.

关键词: 介质阻挡放电, 斑图, 时空不对称性, 阵列电极

PACS: 52.50.Dg, 52.35.Mw, 47.54.-r, 52.80.Tn

基金: 河北省中央引导地方科技发展资金项目(项目号: 246Z7607G)、国家自然科学基金(编号:12075075)、河北大学校长科研基金项目(XZJJ202317)、河北大学优秀青年科研创新团队资助的课题(QNTD202402).

† 通信作者.E-mail: liuch8989@163.com, pyy1616@163.com, donglfhbu@163.com

第一作者.E-mail: 2806018283@qq.com

1 引言

近年来, 介质阻挡放电斑图以其基础研究价值和应用前景, 已成为低温等离子体物理与非线性科学的重要研究方向^[1-8]. 斑图^[9]是一种在空间或时间上呈现规律分布的结构, 属于非线性自组织现象, 广泛存在于自然界(如动物体表花纹^[10]、天空中的云图^[11]和螺旋星系^[12]等)以及实验系统中(如法拉第系统^[13,14]、化学反应扩散系统^[15,16]、对流系统^[17,18]和介质阻挡放电系统^[19-23]等). 介质阻挡放电(Dielectric Barrier Discharge, DBD)是一种在两电极之间插入介质的交流气体放电^[24], 其能够高效地产生低温等离子体, 因此在臭氧制备^[25]、材料表面改性^[26]、污染物降解^[27]以及等离子体医学^[28]等领域具有广泛应用. 随着对非线性科学研究的深入, DBD 系统因其参数可控性强, 实验装置相对简单以及斑图形态丰富等特点, 所以在研究非线性自组织斑图方面备受关注. 在 DBD 系统中, 壁电荷对斑图的形成具有重要作用. 壁电荷是指在放电中沉积在介质表面的电荷, 其产生的电场会对后续放电产生重要影响. 早期用于斑图研究的 DBD 装置是平行平板 DBD 装置, 其能够产生近似均匀的电场. 在此条件下发现了丰富的斑图类型, 例如四边形斑图^[29]、六边形斑图^[30]和超点阵斑图^[31-35]等. 在这种近似均匀外场的背景下, 壁电荷的活化和禁阻机制成为斑图形成的决定性因素. 例如在平行平板电极 DBD 中观测到的 ABBA 放电^[36], 在具有两套子结构的四边形或六边形斑图中, 其子结构在一个电压周期内放电顺序为 ABBA, 其中 A 与 B 分别代表两个子结构, 两个子结构在电压的某半周期内的放电顺序为 AB, 在下一个半周期内则为 BA. 该现象是由壁电荷决定的, 这是因为本半周期先放电的子结构放电时会对周围区域产生禁阻作用, 使得其周围的子结构后放电, 而后放电的子结构积累的壁电荷较多从而在下半周期先放电. 由上可以看出, 壁电荷在平行平板 DBD 斑

1 图的形成过程对其时空动力学有着重要作用. 在平行平板电极中电场沿着 z 方向,
2 横向电场分量极弱, 难以驱动壁电荷沿介质表面输运, 因此壁电荷横向输运对斑
3 图形成的影响无从研究.

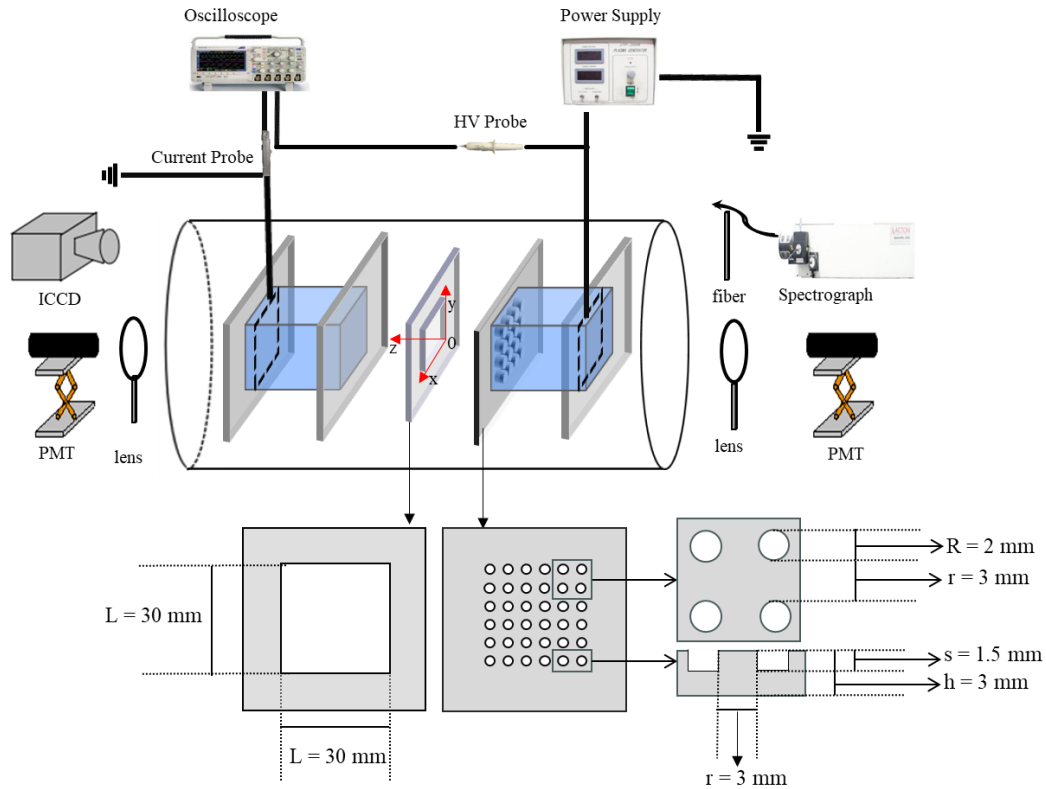
4 近年来, 人们通过设计新的电极结构使得气隙中产生非均匀电场, 通过非均
5 匀电场观测到很多新的斑图, 拓展了 DBD 斑图的研究. 例如: Sinclair 等^[37]采用
6 针网电极引入非均匀二维晶格电场, 不仅产生了三种新型二维方形晶格斑图, 还
7 通过提出“放电丝粒子化”模型, 探究了晶格填充状态对斑图结构的影响; 在此
8 基础上, Wang 等^[38]通过在电极内侧贴附四边形排列的圆孔点阵板获得四边形超
9 点阵斑图, 探究了人工晶格与自组织晶格耦合的可调谐特性及光子带隙规律;
10 Chu 等^[39]利用条纹介质板构建方形阵列电场, 实现两种新型四边形超点阵斑图
11 的同时, 聚焦三维连续演化的非均匀电场, 解析了放电丝弯曲效应及瞬时阴阳极
12 对放电分布的调控机制; Li 等^[40]采用加工有完全条纹的电极产生条纹状电场, 观
13 测到多种具有 D_{2h} 对称性的条纹斑图, 揭示了蜂窝框架的随机放电丝叠加本质
14 及条纹阵列电场与放电自组织的耦合机制. 这些工作表明, 通过电极结构创新所
15 产生的非均匀电场是发现新型斑图的有效途径. 但现有研究多聚焦于轴向电场
16 对斑图时空结构和演化规律的影响, 却缺乏对非均匀电场中横向电场作用的探
17 究, 尤其在壁电荷横向输运时对斑图时空对称性的影响. 为此, 本工作设计了单
18 侧四边形阵列电极 DBD 装置, 发现了两种具有时空不对称性的四边形超点阵斑
19 图, 并由此发现了涉及壁电荷表面输运的斑图形成机制, 对推进 DBD 斑图形成
20 机制的研究具有重要意义.

21 本工作设计了一种单侧四边形阵列电极的 DBD 装置, 通过求解拉普拉斯方
22 程计算了外加电场分布. 在空气和氩气的混合气体中, 获得两种新型的四边形超

1 点阵斑图. 为探究斑图的形成机制, 对其中的一种斑图进行研究, 实验上, 采用
2 高速照相机与光电倍增管, 对斑图子结构进行时空分辨测量; 使用光谱仪采集了
3 氩原子和氮分子的发射谱线, 计算得到了斑图不同子结构的等离子体参量. 通过
4 COMSOL 软件求解泊松方程, 模拟了斑图不同时刻的电场分布. 本工作结果不
5 仅促进了非均匀电场斑图动力学及调制电极 DBD 放电装置的研究, 也为等离子
6 体光子晶体等应用提供了新的设计思路.

7 2 实验装置

8 实验装置如图 1 所示. 实验装置由放电装置和测量装置两部分组成, 前者置
9 于气压可调的密闭容器内, 后者位于容器外部. 在密闭容器内, 是我们设计的阵
10 列电极 DBD 装置. 左侧为普通平板水电极: 将有机玻璃长方形容器(内径 70 mm,
11 外径 80 mm)内嵌入铜环, 两端用 1.5 mm 厚的玻璃板密封并装满水. 右侧为四边
12 形阵列水电极: 采用一块厚 3 mm 的玻璃基板, 其上加工有四边形排布的圆孔凹
13 槽(直径 2 mm、深 1.5 mm、孔间距 3 mm), 凹槽面朝向容器并密封, 容器另一端
14 用 1.5 mm 厚玻璃板密封后装满水. 将阵列电极面与另一个水电极的平板面平行
15 相对放置, 中间放置 1.6 mm 厚, 30 mm 宽的方形玻璃气隙, 铜环连接频率为 50
16 kHz 的正弦交流高压电源. 在密闭容器周围是测量装置, 包括高速照相机(ICCD,
17 HSFC Pro. 120PH0047)、光电倍增管(PMT, RCA7625)和光谱仪(Acton Advanced SP
18 2750a). 通过 ICCD 拍摄瞬时放电图像, 以解析放电丝的空间分布序列; 同时, 利
19 用透镜使斑图成放大的像, 采用 PMT 测量放电光信号, 通过其高时间分辨率测
20 量子结构的放电时序; 借助光纤探头提取特定子结构放电丝的发射信号, 通过光
21 谱仪收集不同子结构的发射光谱进行处理, 以获取相关等离子体参数.



1

2 **图 1** 实验装置示意图. 放电区域: $L = 30$ mm, 厚度 $d = 1.6$ mm. 调制电极: 基板厚度 $h = 3$
 3 mm, 圆孔直径 $R = 2$ mm, 圆孔深度 $s = 1.5$ mm, 圆孔间距 $r = 3$ mm. 如图所示建立坐标系

4 **Figure 1.** Schematic diagram of the experimental setup. Discharge region: $L = 30$ mm, gas gap d
 5 = 1.6 mm. Modulating electrode: substrate thickness $h = 3$ mm, hole diameter $R = 2$ mm, hole
 6 depth $s = 1.5$ mm, hole spacing $r = 3$ mm. The coordinate system is established as shown.

7 为了得到上述装置中气隙内的电场分布, 我们采用 COMSOL 软件数值求解

8 拉普拉斯方程. 如图 1 所示建立三维坐标系, 以气隙中阵列电极表面为坐标原点

9 ($z = 0$), z 轴正方向指向对侧平板电极. 在设置外加电压为 2.2 kV 的条件下, 模拟

10 获得了气隙内不同位置横截面上的电场分布. 图 2 给出了单侧四边形阵列电极

11 DBD 装置中靠近阵列电极处($z = 0.02$ mm)和靠近平板电极处($z = 1.58$ mm)电场分

12 布图. 图 2 (a)和图 2(b)分别为靠近平板电极和阵列电极处横截面上总电场强度

13 ($\sqrt{Ex^2 + Ey^2 + Ez^2}$)分布. 图 2(c)和图 2(d)分别为上述位置相应的横截面上横向电

14 场 ($\sqrt{Ex^2 + Ey^2}$)分布. 在总电场中可以观察到其电场呈四边形排列的周期性分

1 布, 水柱位置处电场最强且沿着四周向外衰减, 其中靠近阵列电极位置处衰减更
2 为明显. 由于总电场在两电极表面附近的分布是非均匀的, 为了研究电荷在电极
3 表面附近运输的差异, 也给出了横向电场分布情况. 可以看出在靠近阵列电极这
4 一侧, 水柱周围具有较强的横向电场, 从水柱边缘指向两水柱中点连线方向上的
5 横向电场较强. 靠近平板电极那一侧横向电场很小. 综上所述, 阵列电极产生的
6 电场具有周期性分布的特点, 这样的周期性电场分布在不同 z 位置处的分布是不
7 同的. 特别是在阵列电极表面附近, 具有较强的横向电场, 这种横向电场的分布
8 对带电粒子(如电子)的径向运动具有重要影响, 可能导致壁电荷的横向运输, 从
9 而影响斑图的形成.

10

11

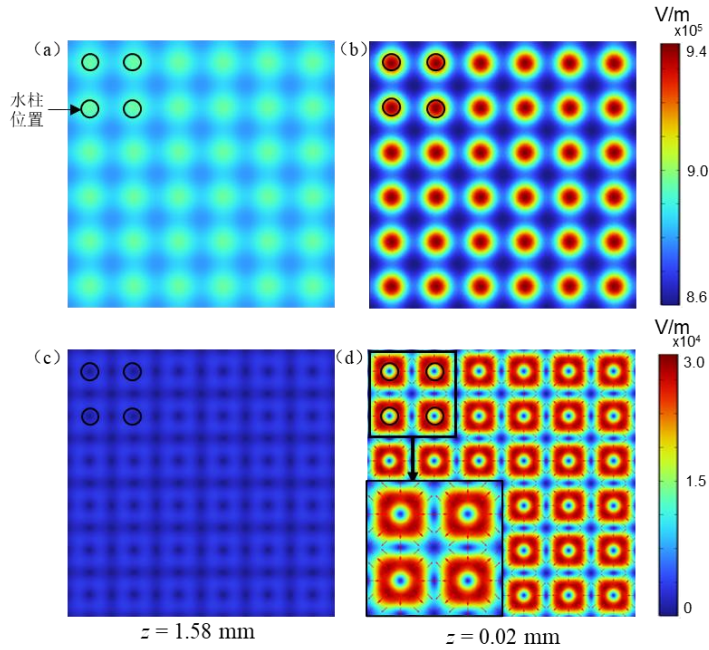
12

13

14

15

录用稿件, 非最终出版稿



1

2 **图 2** 单侧四边形阵列电极气隙中外加电场的空间分布. (a)-(b)不同 $z(z = 1.58, 0.02 \text{ mm})$ 处 x-

3 y 平面内的总电场($\sqrt{Ex^2 + Ey^2 + Ez^2}$)分布; (c)-(d)不同 $z(z = 1.58, 0.02 \text{ mm})$ 处 x-y 平面内的

4 横向电场($\sqrt{Ex^2 + Ey^2}$)分布. 外加电场的模拟电压为 2.2 kV. 箭头表示横向电场的方向

5 **Figure 2.** Spatial distribution of applied electric field in the gas gap. (a)-(b) The total electric

6 field($\sqrt{Ex^2 + Ey^2 + Ez^2}$) distribution in the x-y plane with different z values ($z = 1.58, 0.02 \text{ mm}$);

7 (c)-(d) The transverse electric field($\sqrt{Ex^2 + Ey^2}$) in the x-y plane with different z values ($z = 1.58,$

8 0.02 mm). The applied voltage is 2.2 kV. The arrows indicate the direction of the transverse electric

9 field.

10 3 实验结果与讨论

11 图 3 为斑图随外加电压增加的演化过程, 以及对应的电流电压波形图. 当电

12 压为 2.2 kV 时, 气体击穿, 形成如图 3(a₁)所示的四边形斑图. 此时放电仅出现在

13 各水柱位置处, 这是由于阵列电极固定了击穿位置. 相比之下, 采用平行平板电

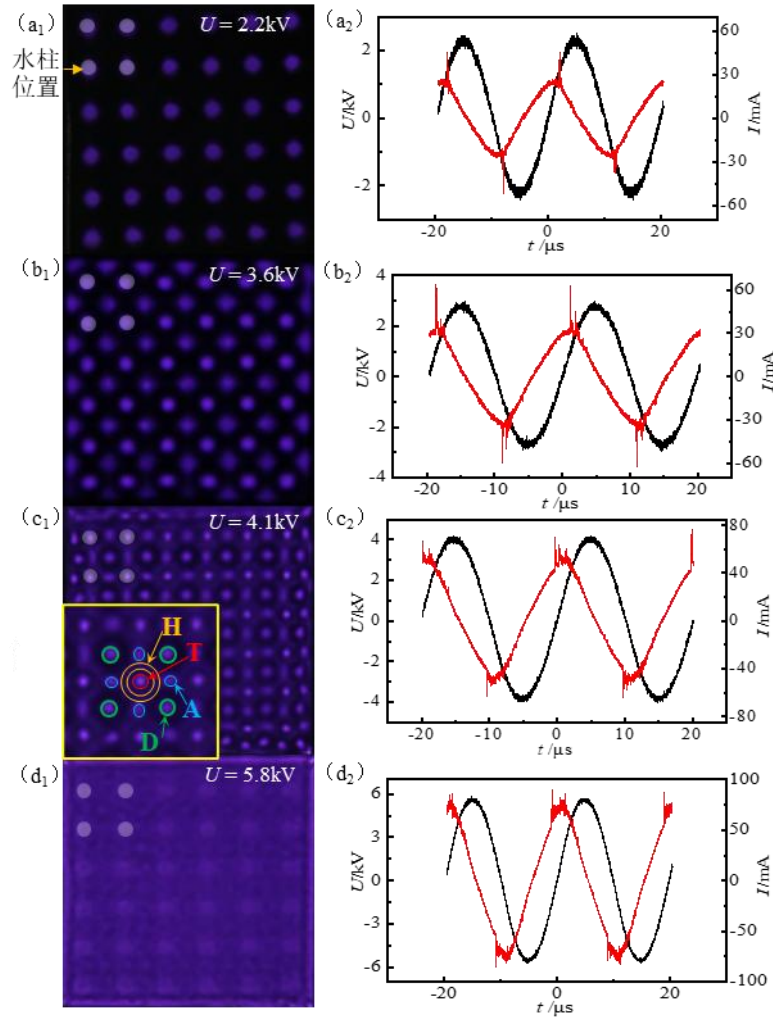
14 极虽也能产生四边形斑图, 但其放电位置不确定. 随着电压增至 3.6 kV, 除了水

15 柱位置处的放电丝外, 在四个水柱对角线交点的位置处出现放电, 其强度弱于水

1 柱位置处, 构成了一种四边形超点阵斑图如图 3(b₁)所示. 当电压进一步升高到
2 4.1 kV 时, 斑图演化为一种复杂四边形超点阵斑图, 如图 3(c₁)所示. 该斑图由四
3 种子结构构成: 水柱位置处的放电丝(标记为 T, 图中用红色标注)、水柱位置周围
4 的晕(标记为 H, 图中用黄色标注)、两个相邻水柱中间位置的放电丝(标记为 A,
5 图中用蓝色标注)以及四个水柱对角线交点位置的放电丝(标记为 D, 图中用绿色
6 标注). 故称该斑图为 DAHT 斑图. 电压继续上升至 5.8 kV 时, 斑图演化为另一
7 种复杂四边形超点阵斑图如图 3(d₁)所示. 综上, 我们在电压上升过程中发现了
8 四种斑图, 其中图 3(c₁)和图 3(d₁)中的四边形超点阵斑图是首次在 DBD 系统中获
9 得, 下面将以 DAHT 斑图作为本工作研究的重点.

10

录用稿件, 非最终出版稿



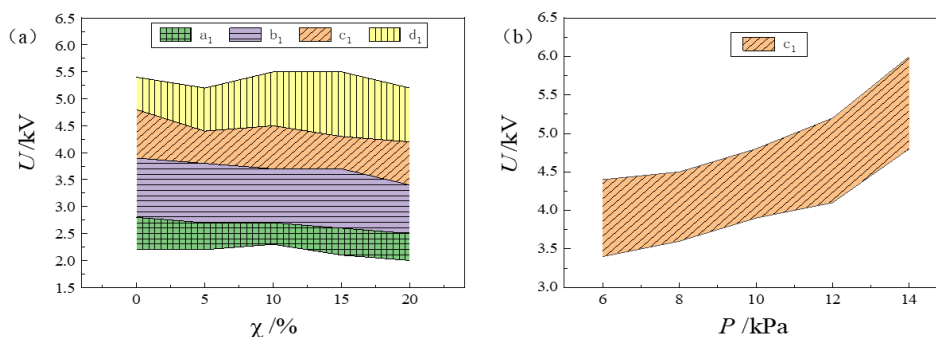
1

2 **图 3** 随外加电压的增加斑图类型的演化过程以及对应的电流电压波形图. (a₁) 四边形斑图,
 3 $U = 2.2 \text{ kV}$; (b₁) 四边形超点阵斑图, $U = 3.6 \text{ kV}$; (c₁) DAHT 斑图, $U = 4.1 \text{ kV}$; (d₁) 复杂四边形
 4 超点阵斑图, $U = 5.8 \text{ kV}$. (a₂)-(d₂) 各个斑图对应的电流电压波形图. 其他实验参数: $f = 50 \text{ kHz}$,
 5 $p = 10 \text{ kPa}$, $\chi = 5\%$

6 **Figure 3.** Transition of the pattern with increasing applied voltage and the corresponding current
 7 and voltage waveforms. (a₁) Square pattern, $U = 2.2 \text{ kV}$; (b₁) Square superlattice pattern, $U = 3.6$
 8 kV ; (c₁) DAHT pattern, $U = 4.1 \text{ kV}$; (d₁) Complex square superlattice pattern, $U = 5.8 \text{ kV}$. (a₂)-(d₂)
 9 Current and voltage waveforms corresponding to each pattern. Other experimental parameters: $f =$
 10 50 kHz , $p = 10 \text{ kPa}$, $\chi = 5\%$.

11 实验发现, DAHT 斑图的形成与气压、气体成分及外加电压有关. 图 4(a)为
 12 斑图类型演化的氩气含量 χ 和电压 U 变化的相图. 图 4(b)为 DAHT 斑图的气压
 13 p 和电压 U 变化的相图. 可以看出, 在氩气含量为 0-20%、电压为 3.4-5.8 kV、气

1 压为 6-14 kPa, 均可观测到 DAHT 斑图. 图中以土黄色斜条纹区域明确标识了可
2 观察到 DAHT 斑图的参数范围.



3
4 **图 4** (a) 斑图类型演化过程随氩气含量 χ 和电压 U 变化的相图; (b) DAHT 斑图随气压 p 和
5 电压 U 变化的相图

6 **Figure 4.** (a) Phase diagram of the evolution process of the DAHT pattern as a function of the
7 argon content χ and voltage U ; (b) Phase diagram of the DAHT pattern as a function of the gas
8 pressure p and voltage U .

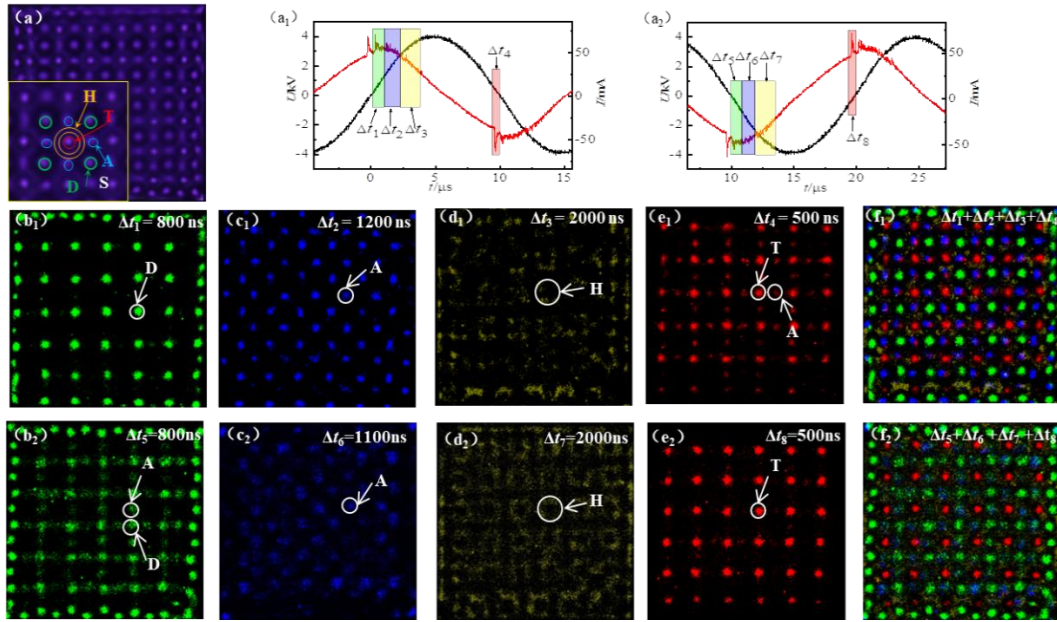
9 在介质阻挡放电中, 斑图的形成机制与其时空结构密切相关, 可通过对其时
10 空结构的研究予以阐明. 本工作通过 ICCD 与 PMT, 研究了斑图的形成机制, 对
11 斑图的时空结构进行了实验测量.

12 为了探究斑图随外加电压增加的演化形成过程, 我们对图 3 中的图 3(a₁), 图
13 3(b₁)和图 3(c₁)三个斑图进行了时空动力学测量. 我们首先对图 3(a₁)的四边形斑
14 图进行了测量: PMT 结果显示, 该斑图可进一步区分为两种子结构, 其放电顺序
15 ABBA. 具体而言, 先放电的水柱位置抑制周围水柱位置放电, 导致后者放电延
16 后; 后放电的水柱位置积累较多的壁电荷, 因而在下一半周期先放电. 图 3(b₁)的
17 四边形超点阵斑图在每个半周期的放电顺序为: 首先在水柱位置处放电, 随后在
18 四个水柱对角线交点位置发生放电, 因此该斑图具有两套子结构, 它的放电顺序
19 也可以称为 ABAB. 该四边形超点阵斑图的形成机制可解释为: 水柱位置先放电,

1 其积累的壁电荷较少. 放电积累的壁电荷对周围区域产生禁阻作用, 使得下一个
2 放电在禁阻作用最弱位置处产生, 也就是四个水柱对角线交点位置. 因为对角线
3 交点位置后放电, 其积累的壁电荷较多. 如前所述, 在平行平板 DBD 的近似均
4 匀电场中, 放电顺序由壁电荷决定: 若某半周期子结构放电顺序为 AB, 则下一
5 半周期为 BA. 然而, 在本装置的非均匀电场下, 放电顺序始终为 AB, 未发生反
6 转. 原因在于水柱位置处外加电场较强, 即便其放电积累的壁电荷较少, 但会在
7 两者共同作用下率先达到击穿阈值. 而对角线交点位置处外加电场较弱, 即使壁
8 电荷积累较多, 其有效电场不足使其先于水柱位置放电. 综上可知, 要搞清斑图
9 的形成机制, 不仅依靠外加电场分布, 还需要充分考虑外加电场和壁电荷的共同
10 作用, 后面我们将求解泊松方程定量计算有效电场来解释一些斑图的时空动力
11 学过程. 下面将对图 3(c₁)所示的 DAHT 斑图进行深入分析.

12
13
14
15

录用稿件, 非最终出版稿



1

2 **图 5** DAHT 斑图正负半周期的瞬时照片，叠加周期为 50 次。(a) 斑图不同子结构位置；(a₁)
 3 正半周期电流电压波形图($\Delta t_1 = 800$ ns, $\Delta t_2 = 1200$ ns, $\Delta t_3 = 2000$ ns, $\Delta t_4 = 500$ ns); (b₁)-(e₁) 分
 4 别对应曝光时间为 Δt_1 - Δt_4 的瞬时照片; (f₁) 为图(b₁)-(e₁)的叠加图。(a₂) 负半周期电流电压波
 5 形图($\Delta t_5 = 800$ ns, $\Delta t_6 = 1100$ ns, $\Delta t_7 = 2000$ ns, $\Delta t_8 = 500$ ns); (b₂)-(e₂) 分别对应曝光时间为 Δt_5 -
 6 Δt_8 的瞬时照片; (f₂) 为图(b₂)-(e₂)的叠加图

7 **Figure 5.** Instantaneous photos of positive and negative half-cycles of DAHT pattern, photograph
 8 integrated over 50 voltage cycles. (a) Different substructure positions of pattern; (a₁) Current and
 9 voltage waveforms of the positive half-cycle. ($\Delta t_1 = 800$ ns, $\Delta t_2 = 1200$ ns, $\Delta t_3 = 2000$ ns, $\Delta t_4 =$
 10 500 ns); (b₁)-(e₁) Images exposed corresponding to Δt_1 - Δt_4 denoted in (a₁); (f₁) Superposition of
 11 panels (b₁)-(e₁). (a₂) Current and voltage waveforms of the negative half-cycle. ($\Delta t_5 = 800$ ns, $\Delta t_6 =$
 12 1100 ns, $\Delta t_7 = 2000$ ns, $\Delta t_8 = 500$ ns); (b₂)-(e₂) Images exposed corresponding to Δt_5 - Δt_8 denoted in
 13 (a₂); (f₂) Superposition of panels (b₂)-(e₂).

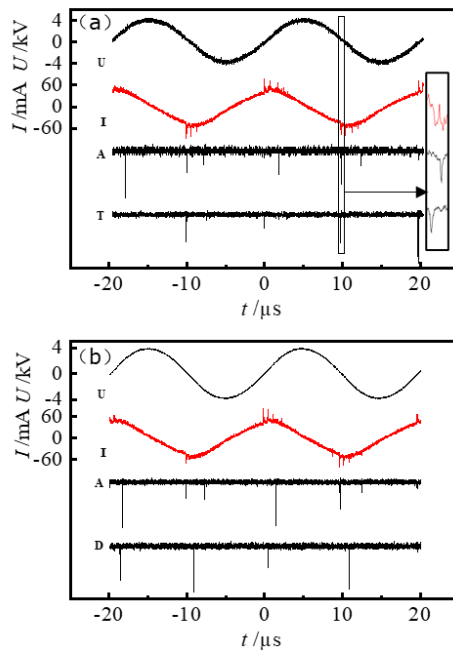
14 图 5 是在一个电压周期内使用 ICCD 对斑图分脉冲拍摄的瞬时图像。图 5(a)
 15 为 DAHT 放电斑图。图 5(a₁)为在外加电压正半周期内，将电流脉冲分为四部分，
 16 分别标记为 Δt_1 , Δt_2 , Δt_3 和 Δt_4 ($\Delta t_1 = 800$ ns, $\Delta t_2 = 1200$ ns, $\Delta t_3 = 2000$ ns, $\Delta t_4 = 500$ ns).
 17 前三个脉冲位于外加电压正半周期的上升沿($\frac{d|U_{app}|}{dt} > 0$), 最后一个脉冲位于外
 18 加电压正半周期的下降沿($\frac{d|U_{app}|}{dt} < 0$). 图 5(a₂)为在外加电压的负半周期内，将
 19 电流脉冲依旧分为四部分，分别标记为 Δt_5 , Δt_6 , Δt_7 和 Δt_8 ($\Delta t_5 = 800$ ns, $\Delta t_6 = 1100$

1 ns, $\Delta t_7 = 2000$ ns, $\Delta t_8 = 500$ ns). 前三个脉冲位于外加电压负半周期的上升沿
2 ($\frac{d|U_{app}|}{dt} > 0$), 最后一个脉冲位于外加电压负半周期的下降沿($\frac{d|U_{app}|}{dt} < 0$). 其中
3 $\Delta t_1-\Delta t_4$ 和 $\Delta t_5-\Delta t_8$ 分别是根据正半周期和负半周期内电流脉冲的起止时刻划分的
4 时间窗口, 同时结合拍摄结果进行微调, 以将子结构清楚区分为目的. 图 5(b₁)-
5 (d₁)是正半周期不同脉冲拍摄叠加 50 个放电周期后染色的照片, 图 5(e₁)是正半
6 周期四个照片叠加的结果. 图 5(b₂)-(d₂)是负半周期不同脉冲拍摄叠加 50 个放电
7 周期后染色的照片, 图 5(e₂)是负半周期四个照片叠加的结果. 通过对放电脉冲的
8 分析, 可以发现在正半周期内: D 在 Δt_1 内放电, A 在 Δt_2 内放电, H 在 Δt_3 内放电,
9 而在 Δt_4 内则同时存在 T 和 A 的放电. 而在负半周期内: D 与 A 在 Δt_5 内放电, A
10 在 Δt_6 内放电, H 在 Δt_7 内放电, T 在 Δt_8 内放电. 值得注意的是, Δt_4 内 T 和 A 以及
11 Δt_5 内 D 与 A 的放电顺序无法确定, 还需要通过灵敏度更好的 PMT 核实, 以确定
12 其放电顺序.

13

14

录用稿件, 非最终定



1

2

图 6 (a) A 与 T 的时间相关性测量; (b) A 与 D 的时间相关性测量.

3

Figure 6. (a) Time correlation measurement between A and T; (b) Time correlation measurement

4

between A and D.

5

为了进一步探究 A 与 T 和 D 的放电顺序, 采用在时间上有更高灵敏度的

6

PMT 进行测量. 图 6(a)是 A 和 T 的时间相关性测量, 进一步将光信号放大可以

7

发现, 在正半周期下降沿 T 先于 A 放电. 图 6(b)是 A 和 D 的时间相关性测量, 可

8

以发现, 在负半周期上升沿初期 A 先于 D 放电. 值得注意的是, A 在一个电压周

9

期内发生了三次放电, 其中一次位于正半周期下降沿末端并跨越电压零点. 该次

10

放电时间上晚于 T、早于 D, 我们称之为 A 的再次放电. 综合图 5 的 ICCD 图

11

像所提供的空间分布信息与图 6 的 PMT 时序测量结果, 发现 DAHT 斑图在正负

12

半周期的放电顺序不一致. 其中正半周期放电顺序为 $D \rightarrow A \rightarrow H \rightarrow T \rightarrow A$, 负半周为

13

$D \rightarrow A \rightarrow H \rightarrow T$, 可见正半周期比负半周期多一个 A 的放电, 使得斑图出现时空结

14

构的不对称. 斑图的时空不对称性可能与电压极性改变所导致的瞬时阳极位置

15

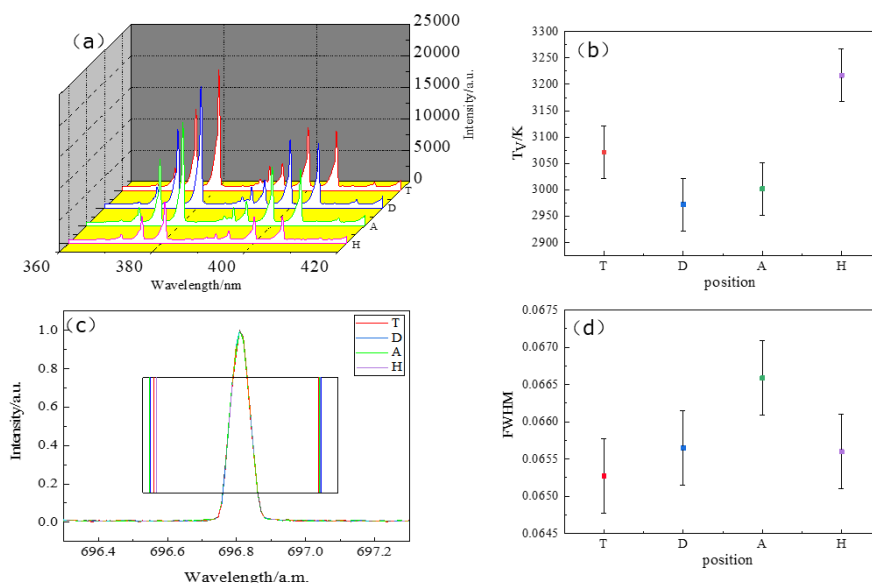
不同有关: 在正半周期, 瞬时阳极为阵列电极, 其表面附近存在较强的横向电场

1 (如图 2 所示). 该横向电场可能使得部分向阳极运动的电子向 A 处发生偏转, 从
2 而使 A 处的壁电荷增大并在正半周期下降沿接近零点位置突破击穿阈值, 导致
3 A 的再次放电; 而在负半周期, 瞬时阳极为平板电极, 其表面附近横向电场较弱,
4 无法以驱动足量电子去影响 A 的壁电荷分布, 使得 A 在负半周期不能再次放电.
5 这表明, 放电斑图的时空不对称性与电极结构不对称所导致的横向电场分布不
6 同有关.

7 另外, 按照外加电场的强度分布来看(图 2), $E_T > E_H > E_A > E_D$. 因此仅按照外
8 加电场分布来预测斑图放电顺序应为 $T \rightarrow H \rightarrow A \rightarrow D$, 而实验结果与外加电场模
9 拟预测不相符. 故在研究 DAHT 斑图的放电机制时需考虑壁电荷与外加电场的
10 共同作用, 因此我们在后续将用泊松方程求解有效电场来研究斑图的形成机制.

11 为进一步探究 DAHT 斑图中四种子结构的内在机制, 采用发射光谱法测量
12 各个子结构的等离子体参量. 图 7(a)给出不同子结构的氮分子(N_2)第二正带系
13 ($C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$)的处于 360-420 nm 波长之间的发射谱线. 采用振动序带 $\Delta v = -2(0-$
14 $2, 1-3, 2-4)$ 和 $\Delta v = -3(0-3, 1-4, 2-5)$ 的谱线强度计算振动温度^[41], 经过多次测量取
15 平均值, 计算结果如图 7(b)所示, D 的振动温度为 2972 ± 50 K, A 的振动温度为
16 3002 ± 50 K, H 的振动温度为 3217 ± 50 K, T 的振动温度为 3071 ± 50 K. 结果表明,
17 DAHT 斑图中不同位置的振动温度呈现 $H > T > A > D$ 的分布规律, 其中 D 的振
18 动温度最低, H 的振动温度最高. 电子密度越高, Stark 展宽越显著, 因此谱线峰值
19 一半的宽度(full width at half height, FWHM)与电子密度存在正相关, 因此可以用
20 696.54 nm 处的 FWHM 来比较不同子结构之间电子密度的大小. 图 7(c)给出了子
21 结构 D, A, H 和 T 在 696.54 nm (Ar I 谱线)处的谱线轮廓及其半高宽放大图. 通
22 过 Stark 展宽法分析 Ar I 696.54 nm 谱线的展宽特性, 计算得到子结构的 D, A, H

1 和 T 的 FWHM^[42]如图 7(d)所示, 分别为 0.0657 ± 0.0005 nm, 0.0666 ± 0.0005 nm,
 2 0.0656 ± 0.0005 nm 和 0.0653 ± 0.0005 nm, 据此得出的电子密度大小顺序为 $A > D >$
 3 $H > T$. 综上, 四个子结构的振动温度和电子密度存在差异, 表明它们处于不同的
 4 等离子体态.



5
 6 **图 7** DAHT 斑图的发射光谱. (a) 不同子结构在 360-420 nm 内的氮分子发射光谱; (b)子结构
 7 D, A, H 和 T 的振动温度; (c) 不同子结构在 696.54 nm 处谱线和中心部分放大图; (d) 子结构
 8 D, A, H 和 T 的 FWHM

9 **Figure 7.** Emission spectra of the DAHT pattern. (a) N₂ emission spectra of substructures within
 10 360-420 nm; (b) Vibrational temperatures for substructures D, A, H and T; (c) Spectral line at 696.54
 11 nm and magnified central region for different substructures; (d) FWHM for substructures D, A, H
 12 and T.

13 4 DAHT 斑图形成机制研究

14 通过求解泊松方程来数值模拟, 解释斑图时空不对称性的物理过程. 由上可
 15 知, 仅由拉普拉斯方程得到的外加电场无法完全解释斑图的实际放电顺序, 因此
 16 需要求解带有壁电荷的泊松方程来进一步分析其放电机制. 为此, 我们采用
 17 COMSOL 数值求解泊松方程, 模拟 DAHT 斑图不同子结构放电前气隙内的电场

1 分布如图 8 所示, 讨论了调制电极瞬时阳极位置对壁电荷的横向输运的影响, 探
2 究了 DAHT 斑图的形成机制.

3 泊松方程:

$$4 \quad \nabla^2 \psi = -\rho / \varepsilon_r \varepsilon_0 \quad (1)$$

5 其中: ψ 代表电势, ρ 代表电荷密度, ε_r 代表介质的相对介电常数, ε_0 代表真空
6 的介电常数. 气隙中的电场 E 和电势 ψ 之间的关系为:

$$7 \quad E = -\nabla \psi \quad (2)$$

8 每个子结构放完电后, 方形气隙内的总电场, 横向电场:

$$9 \quad E_{\text{总}} = \sqrt{E_x^2 + E_y^2 + E_z^2} \quad (3)$$

$$10 \quad E_{\text{横}} = \sqrt{E_x^2 + E_y^2} \quad (4)$$

11 用电流脉冲积分:

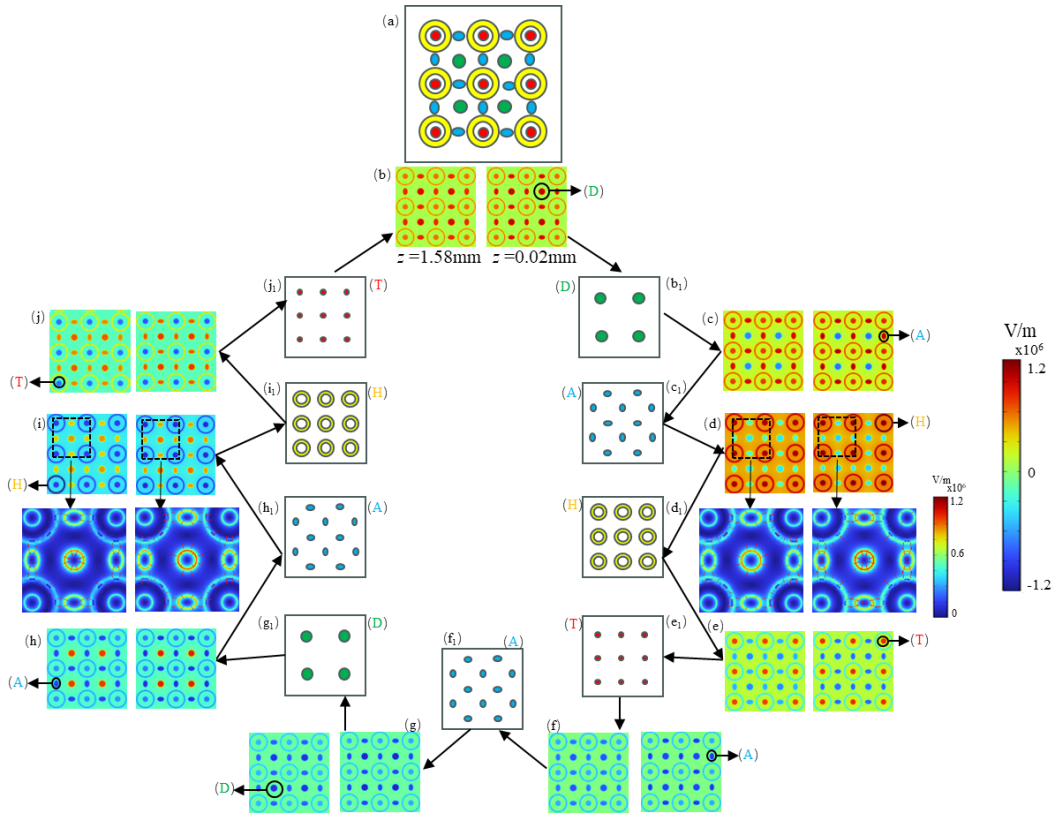
$$12 \quad Q = \int I dt \quad (5)$$

13 为构建模拟所需的壁电荷分布, 需确定各子结构放电后沉积在介质表面的
14 转移电荷量. 实验中, 通过积分各个电流脉冲, 得到每个脉冲对应的转移电荷量.
15 在此方法下得到 D, A, H, T 放电后在正半周期积累的壁电荷的电荷量为 $Q_D = 4.4$
16 $\pm 0.2 \times 10^{-9} \text{ C}$, $Q_A = 6.0 \pm 0.3 \times 10^{-9} \text{ C}$, $Q_H = 7.0 \pm 0.3 \times 10^{-9} \text{ C}$, $Q_T = 2.6 \pm 0.2 \times 10^{-9} \text{ C}$. 在
17 负半周期积累的电荷量为 $Q_D = 4.1 \pm 0.2 \times 10^{-9} \text{ C}$, $Q_A = 5.7 \pm 0.3 \times 10^{-9} \text{ C}$, $Q_H = 6.8 \pm$
18 $0.3 \times 10^{-9} \text{ C}$, $Q_T = 2.5 \pm 0.2 \times 10^{-9} \text{ C}$.

19 然后根据公式:

$$20 \quad \rho = \frac{Q}{nS} \quad (6)$$

21 其中 n 为子结构的个数, S 为放电丝的面积, ρ 为面电荷密度. 将此面电荷密
22 度作为模拟壁电荷场的边界条件, 代入泊松方程进行求解.



1

2 **图 8** DAHT 斑图一个电压周期内的电场分布以及对应的子结构放电示意图。(a) DAHT 斑
 3 图结构示意图; (b)-(f) 正半周期每个子结构放电前的电场分布; (g)-(j) 负半周期每个子结构
 4 放电前的电场分布; (d)和(i) 的框选区域为此区域内的横向电场分布。(b₁)-(j₁) 分别对应图
 5 (b)-(j)电场分布下的子结构放电示意图

6 **Figure 8.** Electric field distributions at different moments of the DAHT pattern and the corre-
 7 sponding schematic diagrams of substructure. (a) Schematic diagram of the DAHT pattern; (b)-(f)
 8 Electric field distribution of each substructure before discharge in positive half-cycle; (g)-(j) Electric
 9 field distribution of each substructure before discharge in negative half-cycle; the framed area of (d)
 10 and (i) is the transverse electric field in this area. (b₁)-(j₁) Schematic illustrations of substructure
 11 discharge corresponding to the electric fields in panels(b)-(j).

12 图 8 展示了一个电压周期内, 由泊松方程模拟得到的有效电场的分布演化。
 13 图 8(a)为斑图结构示意图, 其中各子结构分别用绿色大圆(D), 蓝色椭圆(H), 黄
 14 色圆环(A)和红色小圆(T)表示. 正半周期内的放电过程如图 8 (b)-(f)所示: 图 8(b)
 15 展示了在电压上升沿初期气隙中的电场分布. 此时 D 位置电场强度最大, 因而在

1 该处率先发生放电. D 放电结束后, 电场分布发生重构, 如图 8(c)所示, 可以看出
2 A 区域已成为电场最强处, 随后 A 开始放电. A 放电完成后, 电场分布演化为图
3 8(d)所示状态, 此时 H 处场强最大, H 随即在该阶段放电. H 放电结束后, 电场分
4 布进一步演化如图 8(e)所示. 此时 T 处场强最大, T 随之发生放电. 值得注意的是,
5 是, T 放电后至正半周期电压过零点前, A 处有效电场达到击穿阈值发生再次放电
6 如图 8(f)所示. 这是由于正半周期瞬时阳极为阵列电极, 其表面附近存在较强横
7 向电场(图 2(d)). 在 H 放电过程中, 电子向阳极迁移时受 H 与 A 之间较强横向电
8 场作用(图 8e 框选区域), 部分电子向 A 区域偏转, 形成壁电荷的横向输运. 由于
9 电子迁移率远高于离子, 该输运过程主要由电子贡献, 离子迁移可忽略. 这一输
10 运过程使部分本应沉积在 H 的电子转移至 A 区域, 导致 A 处壁电荷额外积累,
11 从而电压过零点前, 触发了 A 的再次放电. 当外加电压极性反转进入负半周期后,
12 放电过程如图 8(g)–(j)所示. 其过程与正半周期大体对应. 然而, 由于负半周期瞬
13 时阳极为平板电极, 其表面附近横向电场较弱(图 2(c)). 对比正、负半周期 H 放
14 电前的横向电场分布(图 8(d)与图 8(i)框选区域)可以发现, 负半周期 H 与 A 之间
15 的横向电场弱于正半周期, 未能驱动足量的壁电荷横向输运. 因此, A 区域在负
16 半周期未积累到足够的额外壁电荷, 也就不会出现在再次放电的现象.

17 综上, 由图 8 中电场与放电的时空演化结果可以看出, 在单侧四边形阵列电
18 极 DBD 中, 由泊松方程求解出的有效电场决定放电的位置. 值得注意的是, 正
19 半周期阵列电极为瞬时阳极, 其表面附近较强的横向电场影响了壁电荷的横向
20 输运, 使得 A 处壁电荷增加, 最终导致正半周期下降沿 A 再次放电的产生. 而负
21 半周期平板电极为瞬时阳极时横向电场较弱, 无法驱动足量的壁电荷向 A 处输
22 运, 故未能发生类似的现象. 这种由电极结构决定的电场分布与壁电荷输运之间

1 的耦合机制,是导致斑图呈现时空不对称性的根本原因.

2 5 结论

3 本工作设计了单侧四边形阵列电极 DBD 装置,首次在空气和氩气的混合气
4 体放电中观察到两种具有时空不对称性的斑图,重点研究了其中的 DAHT 斑图,
5 并对其形成机制进行了实验和理论研究.

6 首先,通过求解拉普拉斯方程得到在电极表面附近电场分布,发现水柱位置
7 处的电场最强并向四周衰减,以及在阵列电极表面附近具有较强的横向电场.实
8 验上,在空气和氩气的混合气体中发现了两种新型的四边形超点阵斑图,采用
9 ICCD 和 PMT 测量了 DAHT 斑图的时空结构,发现其具有正负半周期不对称的
10 时空动力学特性.表现为:正半周期的放电顺序为 $D \rightarrow A \rightarrow H \rightarrow T \rightarrow A$,在下降沿
11 末尾出现 A 的再次放电;负半周期的放电顺序为 $D \rightarrow A \rightarrow H \rightarrow T$,无再次放电现象.
12 使用光谱仪采集了氩原子 696.54 nm ($2p^2 \rightarrow 1S^5$) 和氮分子 (N_2) 第二正带系
13 ($C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$) 的发射谱线,计算得到了斑图中不同子结构的振动温度和 FWHM.
14 理论上,采用 COMSOL 求解泊松方程模拟不同子结构放电的电场分布,解释了
15 斑图放电的时空顺序,还发现正半周期子结构的再次放电是由于阵列电极表面
16 附近横向电场较强导致的壁电荷输运,给出了时空不对称斑图的形成机制.本工
17 作从实验和理论两方面证实,DAHT 斑图的时空不对称性源于电极结构与壁电荷
18 的自组织.

19 综上所述,本工作首次将电极几何结构与壁电荷横向输运相关联,揭示了非
20 均匀电场下斑图时空不对称性的形成机制.此外在等离子体光子晶体和材料表
21 面局域处理等的应用领域,展现出潜在的应用前景.未来可通过改变电极几何参
22 数(如圆孔深径比,排列周期)以期发现更多新的斑图和物理机制.

1 参考文献

- 2 [1] Kogelschatz U 2010 *J. Phys. Conf. Ser.* **257** 012015
- 3 [2] Duan X, He F, Ouyang J 2012 *Plasma Sources Sci. Technol.* **21** 015008
- 4 [3] Peng B F, Wang R Z, Li J, Jiang N, Yuan D K, Chen Z Q, Lei Z P, Kang A L, Song
- 5 J C 2024 *Appl. Phys. Lett.* **125** 144102
- 6 [4] Pan Y Y, Li Y H, Dou Y Y, Fu G S, Dong L F 2022 *Phys. Plasmas* **29** 053502
- 7 [5] Fan W L, Wang Q H, Li R, Deng T K, Wang S, Li Y H, He Y F, Chu L Z, Liu F C
- 8 2024 *Appl. Phys. Lett.* **124** 121703
- 9 [6] Peng B F, Jiang N, Zhu Y F, Li J, Wu Y 2024 *Plasma Sources Sci. Technol.* **33** 045018
- 10 [7] Dong L F, Qi Y Y, Liu W Y, Fan W L 2009 *J. Appl. Phys.* **106** 013301
- 11 [8] Fan W L, Sheng Z M, Dang W, Liang Y, Gao K, Dong L F 2019 *Phys. Rev. Appl.* **11**
- 12 064057
- 13 [9] Garrod D R, Forman D 1977 *Nature* **265** 144
- 14 [10] Joron M, Jiggins C D, Papanicolaou A, McMillan W O 2006 *Heredity* **97** 157
- 15 [11] Werner T, Koshikawa S, Williams T M, Carroll S B 2010 *Nature* **464** 1143
- 16 [12] Beldade P, Brakefield P M 2002 *Nat. Rev. Genet.* **3** 442
- 17 [13] Cominotti R, Berti A, Farolfi A, Zenesini A, Lamporesi G, Carusotto I, Recati A,
- 18 Ferrari G 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 210410
- 19 [14] Frumkin V, Gokhale S 2023 *Phys. Rev. E* **108** L012601
- 20 [15] Bánsági Jr T, Vanag V K, Epstein I R 2011 *Science* **331** 1309
- 21 [16] von Kameke A, Huhn F, Muñuzuri A P, Pérez-Muñuzuri V 2013 *Phys. Rev. Lett.*
- 22 **110** 088302

- 1 [17] Rogers J L, Schatz M F, Brausch O, Pesch W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4281
- 2 [18] Perkins A C, Grigoriev R O, Schatz M F 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 064501
- 3 [19] Desangles V, Raimbault J L, Poyé A, Chabert P, Plihon N 2019 *Phys. Rev. Lett.*
- 4 **123** 265001
- 5 [20] Peng B F, Li J, Jiang N, Jiang Y, Chen Z Q, Lei Z P, Song J C 2024 *Phys. Fluids*
- 6 **36** 037144
- 7 [21] Dong L F, Li B, Shen Z K, Wang Y J, Lu N 2012 *Phys. Rev. E* **86** 036211
- 8 [22] Li J F, Yao J F, Wang Y, Zhou Z X, Lan Z H, Yuan C X 2024 *Adv. Opt. Mater.* **12**
- 9 2303244
- 10 [23] Pan Y Y, Feng J Y, Li C X, Dong L F 2022 *Plasma Sci. Technol.* **24** 115401
- 11 [24] Dong L F, Mi Y L, Pan Y Y 2020 *Phys. Plasmas* **27** 023504
- 12 [25] Callegari T, Bernecker B, Boeuf J P 2014 *Plasma Sources Sci. Technol.* **23** 054003
- 13 [26] Mikheyev P A, Demyanov A, Kochetov I, Sludnova A A, Torbin A P, Mebel A M,
- 14 Azyazov V N 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 29
- 15 [27] Fang Z, Liu Y, Liu K, Shao T, Zhang C 2012 *Vacuum* **86** 1305
- 16 [28] Kogelschatz U 2003 *Plasma Chem. Plasma Process.* **23** 1
- 17 [29] Dong L F, Li B, Lu N, Li X C, Shen Z K 2012 *Phys. Plasmas* **19** 052304
- 18 [30] Dong L F, Liu B B, Li C X, Pan Y Y 2019 *Phys. Rev. E* **100** 063201
- 19 [31] Dong L F, Liu W B, Wang Y J, Zhang X P 2014 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **42** 2
- 20 [32] Dong L F, Li Y H, Yan Z H, He Y N, Li C, Pan Y Y 2025 *Chaos Solitons*
- 21 *Fract.* **200** 117023
- 22 [33] Dong L F, Xiao H, Fan W L, Zhao H T, Yue H 2010 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **38**

1 2486

2 [34] Li C X, Dong L F, Feng J Y, Huang Y P 2019 *Phys. Plasmas* **26** 023505

3 [35] Yu G L, Dong L F, Guo L T, Liu F C, Li C X, Dou Y Y, Ren C H, Pan Y Y 2020 *Phys.*

4 *Plasmas* **27** 053503

5 [36] Dong L F, Yin Z Q, Wang L, Fu G S, He Y F, Chai Z F, Li X C 2003 *Thin Solid*

6 *Films* **431** 136

7 [37] Sinclair J, Walhout M 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 035005

8 [38] Wang Y J, Dong L F, Liu W B, He Y F, Li Y H 2014 *Phys. Plasmas* **21** 073505

9 [39] Chu J H, Dong L F, Tian M, Li Y H, He Y N, Zhang J H, Pan Y Y 2024 *Sci. China-*

10 *Phys. Mech. Astron.* **54** 245212 (in Chinese) [褚佳惠, 董丽芳, 田淼, 李耀华, 贺玉

11 楠, 张建华, 潘宇扬 2024 中国科学: 物理学 力学 天文学 **54** 245212]

12 [40] Li C, Yan Z H, Qi X X, Li Y X, Pan Y Y, Dong L F 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 225202

13 (in Chinese) [李骋, 闫志浩, 齐晓秀, 李雨昕, 潘宇扬, 董丽芳 2025 物理学

14 报 **74** 225202]

15 [41] Dong L F, Zhang L J, He Y N, Wei T, Li Y H, Li C, Pan Y Y 2024 *Appl. Phys. Lett.*

16 **125** 104101

17 [42] Li Y H, Pan Y Y, Tian M, Wang Y, He Y N, Zhang J H, Chu J H, Dong L F

18 2023 *Phys. Plasmas* **30** 033502

19

20

录用稿件，
请尽早出版

Study on the spatiotemporally asymmetric superlattice patterns in dielectric barrier discharge with an array electrode*

ZHAO Zhengbin¹⁾ PI Wentao²⁾ LI Cheng¹⁾ GAO Weimin¹⁾ SUN Shiwei¹⁾

LIU Chang^{3)†} PAN Yuyang^{2)†} DONG Lifang^{1)†}

1) (College of Physics Science and Technology, Hebei University, Baoding 071002, China)

2) (College of Quality and Technical Supervision, Engineering Research Center of Zero-carbon Energy Buildings and Measurement Techniques, Ministry of Education, Hebei University, Baoding 071002, China)

3) (College of Public Health, Hebei University, Baoding 071002, China)

Abstract

In this work, two types of superlattice patterns with spatiotemporal asymmetry are observed for the first time using a dielectric barrier discharge device with an array electrode. The device consists of a square array water electrode and a plate water electrode. Experimental and theoretical studies are conducted on the formation mechanism of the spatiotemporally asymmetric patterns. By solving the Laplace equation, the electric field in the gas gap presents periodic spatial distribution, and the array electrode surface possesses a stronger transverse electric field. Using this device, two new types of square superlattice patterns are observed in the discharge of a mixture of air and argon. We employ a high-speed camera and photomultiplier tubes to conduct spatiotemporal dynamics measurements on one of the patterns. The results reveal a pronounced spatiotemporal asymmetry.

1 During the positive half-cycle, one substructure exhibits two discharge
2 events. The second begins near the voltage zero-crossing and extends into
3 the negative half-cycle, whereas no similar behavior is observed during the
4 negative half-cycle. To estimating the plasma parameters, the emission op-
5 tical spectra are measured by a spectrograph. Theoretically, the Poisson
6 equation is solved using COMSOL. The results not only explain the spati-
7 otemporal sequence of the pattern discharge, but also reveal the underlying
8 mechanism of the observed asymmetry. It is found that the secondary dis-
9 charge of the substructure in the positive half-cycle is induced by the trans-
10 verse transport of wall charges, which is driven by the stronger transverse
11 electric field. These findings elucidate the pattern's formation mechanism
12 and open a new direction for studying pattern dynamics in asymmetric di-
13 electric barrier discharges.

14 **Keywords:** dielectric barrier discharge, pattern, spatiotemporal asymmetry, array electrode

15 *The Central Government Guiding Local Science and Technology Development Fund (No.246Z7607G),
16 Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No.12075075), the Foun-
17 dation of President of Hebei University (XZJJ202317), and the Excellent Youth Research Innovation
18 Team of Hebei University (QNTD202402).

19 † Corresponding author. E-mail: liuch8989@163.com, pyy1616@163.com, donglfhbu@163.com

20 The first author.2806018283@qq.com