

实验研究大气压多脉冲辉光放电的模式和机理^{*}

郝艳捧 阳 林[†] 涂恩来 陈建阳 朱展文 王晓蕾

(华南理工大学电力学院, 广州 510640)

(2009 年 3 月 30 日收到; 2009 年 7 月 16 日收到修改稿)

采用稍不平行电极进行大气压 He 气介质阻挡多脉冲辉光放电实验, 通过增强电子耦合器件相机短时曝光照片, 研究大气压多脉冲辉光放电在不同时刻的放电模式. 通过气隙放电电流、表面电荷计算, 理论分析了表面电荷、空间电荷、外加电压与气隙电场强度的关系, 研究大气压辉光放电形成多脉冲的机理. 实验结果表明, 放电首先在间隙稍窄的电极左端开始; 在第一个脉冲电流峰值, 电极右端也开始放电; 第一个电流脉冲经历了 Townsend 放电到辉光放电的过程; 电流脉冲之间的时间内, 间隙一直维持着微弱的辉光放电; 随后的每个电流脉冲均是辉光放电. 理论分析表明, 大气压辉光放电的多个电流脉冲是表面电荷、空间电荷与外加电压共同演化的结果; 除放电伊始出现 Townsend 放电外, 同一半周期内的放电电流脉冲中不会再出现 Townsend 放电.

关键词: 介质阻挡放电, 增强电子耦合器件, 大气压辉光放电, 多脉冲

PACC: 5150, 5280H, 5270K, 5270D

1. 引 言

近年来, 低温等离子体在材料改性、薄膜生长、等离子体显示等领域得到越来越广泛的应用, 显示出优越的经济和环保效益^[1,2]. 大气压下介质阻挡放电 (dielectric barrier discharge, 简记为 DBD) 很容易产生低温等离子体. 但是, 由于工作气体、电极结构、外加电压等实验条件不同, 大气压 DBD 表现为不同的放电模式^[3,4], 如丝状放电^[5,6]、辉光放电^[7-10]、Townsend 放电^[8-10]和多脉冲放电^[11-19]等.

在合适的条件下, 大气压 He 气 DBD 通常表现为在外加电压每半个周期内仅有一个电流脉冲, 放电空间类似于低气压辉光放电的结构^[7,11], 常称为大气压辉光放电 (atmospheric pressure glow discharge, 简记为 APGD). Massines 和清华大学通过纳秒级曝光时间的高速 (intensified charge-couple device, 简记为 ICCD) 相机研究表明, 随着电流增大, He 气 APGD 由非自持放电向 Townsend 放电转化, 最后到辉光放电^[8,9]; 清华大学还研究指出单脉冲辉光放电从电极中央开始, 并逐渐沿径向往外发展^[10].

最近发现, 在一定条件下, 如 0.5 mm 间隙中, 大气压 He 气 DBD 中还存在另外一种均匀放电形式, 放电在外加电压每半个周期内形成多个电流脉冲^[12-19], 又称为伪辉光放电^[15].

对于大气压 He 气介质阻挡辉光放电形成多脉冲的原因, Akishev 等^[12]利用数值模型将多脉冲的形成归因于辉光放电阴极压降区的负差率阻抗. Golubovskii 等^[13]通过数值计算认为, 多脉冲放电是 Townsend 放电, 并且多脉冲是由于阳极附近离子的产生与随后的阴极离子-电子发射之间的延迟造成的. 有人指出 Akishev 和 Golubovskii 等的研究使问题变得过于复杂, 指出只要外加电压足够高就会形成多个放电电流脉冲^[11].

Mangolini 等^[14]通过分段电极研究发现, 在径向不同位置上, 放电电流脉冲首先从电极中心开始出现, 通过放电脉冲过程中的电场强度和阻挡介质表面电荷的演变过程分析发现, 不均匀的阻挡介质表面电荷使得第二个电流脉冲首先在电极边缘附近击穿. 文献^[11]采用一维流体模型数值模拟了多脉冲辉光放电的产生, 并对这一现象给出了并不复杂的解释: 当被考虑为电容的固体介质被放电电流充

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 50807018)、全国优秀博士论文作者专项基金 (批准号: 200541) 和高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 200805611056) 资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: lin.yb@mail.scut.edu.cn

电后,减小了气隙电压,放电熄灭;随后,气隙电压随外加电压升高. 只要外加电压足够高,第二次击穿就会发生,出现第二个电流脉冲.

大气压多脉冲辉光放电的放电模式和形成机理仍没有定论^[13]. 本文采用稍不平行电极,通过 ICCD 相机拍摄多脉冲辉光放电脉冲各时刻的短曝光照片,研究各个放电电流脉冲以及脉冲之间的放电模式,结合气隙放电电流、阻挡介质表面电荷仿真计算,分析阻挡介质表面电荷、空间电荷、外加电压与气隙电场强度的关系,研究大气压多脉冲辉光放电的演化过程.

2. 实验装置

实验装置如图 1 所示. 电源在 3—47 kHz 范围内连续可调,输出电压为 0—30 kV. 放电室中上下电极为 Φ60 mm 的圆形不锈钢电极,厚度 635 μm、纯度 96% 的 Al₂O₃ 片材作为阻挡介质分别覆盖在上下电极表面,面积分别为 100 mm × 120 mm 和 100 mm × 100 mm. 放电间隙为 4 mm. 为了观察放电的径向演化,本实验电极稍不平行. 放电室被抽真空至 2.5 Pa,之后充入纯度 99.999% 的 He 气至大气压.

外加电压用 1:1000 的 Tektronix P6015A 型高压探头测得,放电电流通过回路中串连 50 Ω 的无感电阻 r 获得. 测量信号由 1 GHz, 5 GS/s 型号为 Tektronix DPO4104 的数字存储示波器采集. 气隙放电发射的光经 Nikon 镜头聚焦到 PI-MAX2:1003 型 ICCD 相机. 相机由型号为 DPO4104 示波器测量的外加电压或回路电流触发,通过调节触发电平和相机门延迟时间,实现对电流脉冲上某时刻的放电曝光.

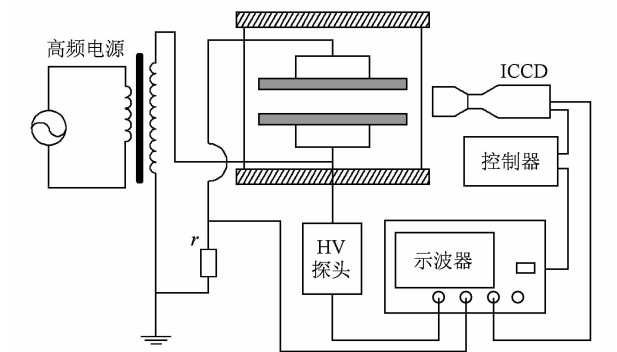


图 1 介质阻挡放电实验与测量装置

3. 实验结果

大气压 He 气介质阻挡电极条件下,当外加电压的频率为 11.85 kHz,峰值为 3.18 kV 时,形成三脉冲放电,测量的回路电流如图 2 所示.

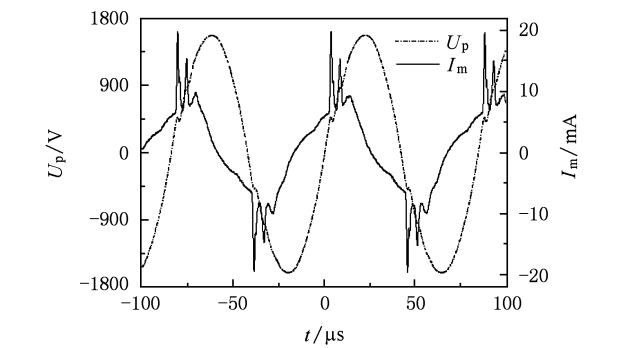


图 2 大气压 He 气三脉冲放电的外加电压 U_p 和回路电流 I_m

由图 2 可知,在外加电压作用下,回路电流呈现出一个正弦电流上叠加了气隙放电电流脉冲,每半个周期内,气隙放电电流脉冲有 3 个,幅值依次减小.

本文根据 Massines 等^[8]提出的介质阻挡放电简化电路,仿真计算了气隙的放电电流,图 3 为其负半周波形. 实验过程中用 ICCD 相机拍摄了放电电流脉冲上各时刻的图像,图 3 中标出了拍摄图像的放电时刻,对应的放电图像见图 4. 图 4 中左上角数字与图 3 中放电时刻相对应,放电时刻 1 的照片曝光时间为 50 ns,其余照片曝光时间为 20 ns.

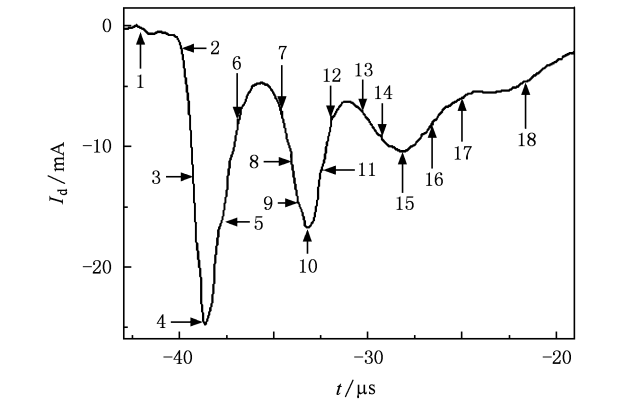


图 3 三脉冲放电时在外加电压负半周内气隙放电电流 I_d 及放电时刻

从图 4 中放电时刻 1 的照片可知,在第一个电流脉冲起始之前,阳极附近可以观察到微弱的发光

层,这是 Townsend 放电的典型特征^[9].

从图 4 中放电时刻 2 的照片可知,在放电电流脉冲起始阶段,阴极附近出现明亮的发光区,阳极附近也有亮度仅次于阴极的亮区,两个亮区之间有一比较宽的较弱的亮区.从阳极到阴极,依次表现出阳极亮区、正柱和负辉,这些是辉光放电的发光特征^[10].

从图 4 中放电时刻 3—6 可知,各个放电时刻都呈现辉光放电的特征.其中放电时刻 4 对应着放电电流脉冲峰值的照片,表现出极强烈的辉光放电.随着放电电流的大小变化,发光强度做相应的强弱变化.由图 4 还可看出,气隙首先在左端击穿.但是,并没有像 Mangolini 等^[14]提出的最弱电场强度的电

极处放电造成了第二个脉冲,而是在第一个电流脉冲峰值时,电场强度最弱的右端也发生了击穿.在放电电流开始减小的过程中,左端放电开始减弱,右端放电在增强.

图 4 中放电时刻 7—12 和放电时刻 13—17 分别为第二个和第三个放电电流脉冲时的放电图像.可以看出,第二个和第三个放电电流脉冲过程中放电空间都呈现出辉光放电的特征,只是随着放电电流的大小变化,发光强度做相应的强弱变化.第二个放电电流脉冲过程似乎从右端开始.达到电流峰值时,电极中间放电最强,左右两边放电强度相当.第三个电流脉冲,放电已经均匀,左端和右端同时放电.

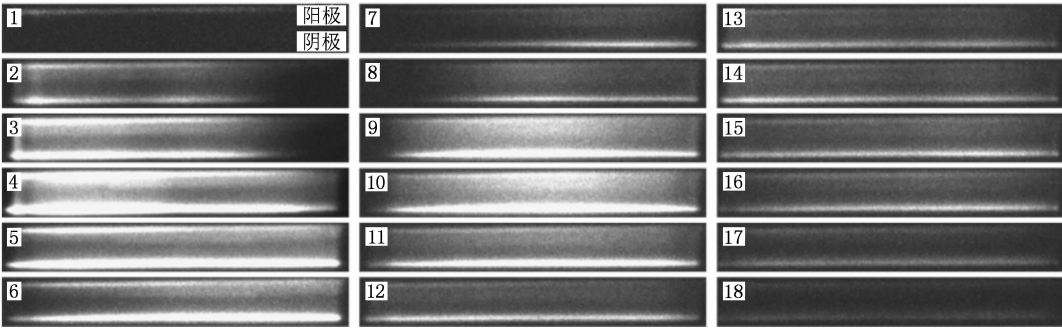


图 4 气隙在各放电时刻 ICCD 短时曝光放电图像

本文研究了气隙放电电流脉冲之间的放电模式.在图 3 中放电时刻 6 和 7 之间约 $2.5\ \mu\text{s}$ 的范围内,以曝光时间 $100\ \text{ns}$ 连续拍摄了 25 幅放电图像,如图 5 所示.同样,在图 3 中放电时刻 12 和 13 之间约 $2.0\ \mu\text{s}$ 的时间范围内,以曝光时间 $100\ \text{ns}$ 连续拍摄了 20 幅放电图像,如图 6 所示.

从图 5 可知,放电集中在电极右端;每张照片均表现出辉光放电的特征.图 5 表明,第一和第二放电电流脉冲之间,气隙的放电没有熄灭,仍然维持着辉光放电,只是强度很弱.图 3 中放电时刻 6 和 7 之间的气隙放电电流并不为零也证明了这一结论.从图 6 可知,放电几乎覆盖整个电极表面,每张照片也表现出辉光放电的特征.图 6 表明,第二和第三放电电流脉冲之间,气隙的放电也没有熄灭,仍然维持着辉光放电,只是强度更弱了.图 3 中放电时刻 12 和 13 之间的气隙放电电流并不为零也证明了这一结论.

此外,图 4 中放电时刻 18,为第三放电电流脉冲过后,在电流过零点前约 $4\ \mu\text{s}$ 时刻的放电图像.

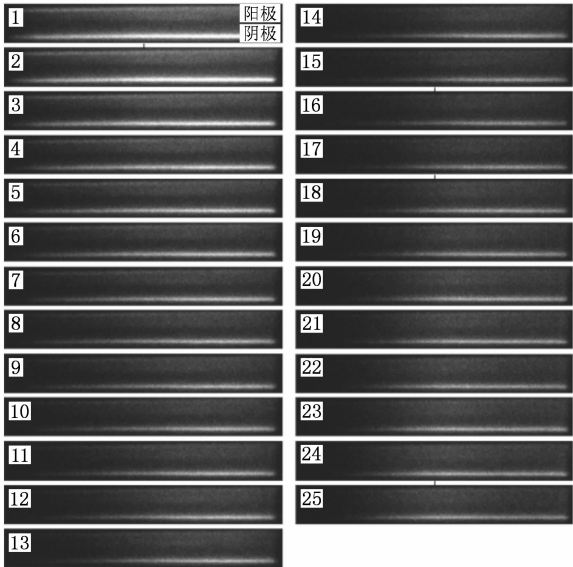


图 5 气隙在第一、二电流脉冲之间时 ICCD 短时连续曝光的放电图像

图像和图 3 中放电时刻 18 的气隙放电电流都表明,在放电电流不为零时仍然保持着辉光放电.



图 6 气隙在第二、三放电电流脉冲之间时 ICCD 短时连续曝光放电图像

4. 讨 论

4.1. 大气压辉光放电形成多脉冲的原因

可以用放电过程中阻挡介质表面电荷、气隙空间电荷、外加电压与气隙电场强度的关系来解释多脉冲形成的原因。

介质表面电荷用下式计算：

$$Q(t) = - \int_{t_0}^t I_d(t) dt + Q(t_0), \tag{1}$$

(1) 式中, I_d 为气隙的放电电流, 根据 Massines 等^[8]提出的介质阻挡放电简化电路仿真计算求得, 负号表示放电累积在阻挡介质上的表面电荷形成电场的极性与外加电场相反. I_d, Q 的仿真结果见图 7.

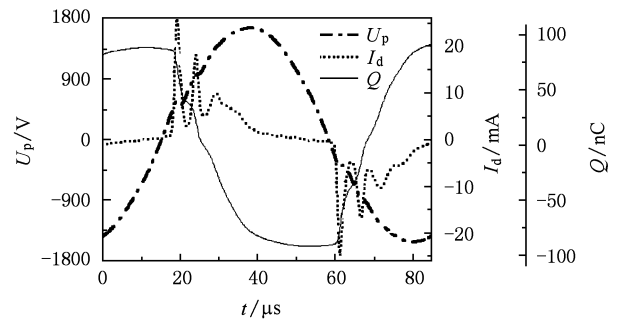


图 7 三脉冲放电时的外加电压 U_p , 气隙放电电流 I_d 和阻挡介质表面电荷 Q

由图 7 可知, 在 U_p 的负半周 Q 为正极性, 这是因为放电累积的电荷与外加电压方向相反. 在 U_p

由负半周按正弦变化到正半周后, Q 的极性与 U_p 相同, 都为正. 这种情况下, Q 的电场与 U_p 的电场方向相同, 如果 Q 越多, 则可在越低的 U_p 下使气隙放电, 在回路电流上形成放电电流脉冲. Q 在第一个放电电流脉冲过程中急剧减小. 这是因为放电过程中阻挡介质上累积的表面电荷与上个半周期放电累积的表面电荷极性相反, 中和了部分表面电荷. 同样, 第二个放电电流脉冲过程中表面电荷急剧减小. 在两条急剧减小的 Q 线之间, Q 缓慢减小, 这是因为脉冲之间微弱的放电电流造成的. 在第二个放电电流脉冲过后, 上半周期放电累积的表面电荷基本被中和完毕, Q 基本为零. 在第三个放电电流脉冲过程中, 表面电荷继续累积, 极性与外加电压的电场方向相反. 在第三个放电电流脉冲过后, 放电电流缓慢减小到零, Q 缓慢增加.

根据上述阻挡介质表面电荷的计算分析, 结合气隙空间电荷的数值模拟^[11], 可研究稍不平行电极在第一个放电电流脉冲过程中, 阻挡介质表面电荷、气隙空间电荷、外加电压与气隙电场强度的关系. 若外加电压在气隙中形成电场为 E_p , 假设上半周内阻挡介质表面电荷分布均匀, 表面电荷和空间电荷在气隙中形成的电场为 E_Q , 如图 8 所示.

由于电极左端气隙稍窄, 电场强度 $E_p + E_{Q1}$ 最大. 随着外加电压升高, E_p 增大, 当 $E_p + E_{Q1}$ 达到气隙击穿电压 E_b 时, 气隙左端首先发生电子崩. 此时, 由于 $E_p + E_{Q1}$ 较低, 发展电子崩需要的初始电子是正离子轰击阴极产生的, 气体电离的主要形式是电子与气体原子的碰撞电离. 根据电子崩理论, 阳极的高能电子密度最大, 与气体原子碰撞电离产生的受激原子密度最大, 回到基态辐射的光子也最多, 所以阳极发光最强^[9]. 这就是为什么图 4 中伊始的放电图像是 Townsend 模式.

电极左端气隙击穿后, 在电流脉冲上升沿过程中, 在上半周积累的阻挡介质表面电荷逐渐被中和, E_{Q1} 逐渐减小. 随着外加电压升高, E_p 增大, $E_p + E_{Q1} \geq E_b$, 放电增强, 放电电流幅值升高. 大量的电子崩中电子移动速度很快, 正离子移动速度较慢, 此时形成的空间电荷不能忽略, 部分正离子驻留在阴极附近形成空间电荷, 见图 8(b). 放电由 Townsend 模式进一步发展成辉光模式, 因此在放电电流上升沿和峰值时, 图 4 中放电图像出现了负辉、正柱、阳极发光区等发光特征.

反过来, 表面电荷以及空间电荷的累积对上半

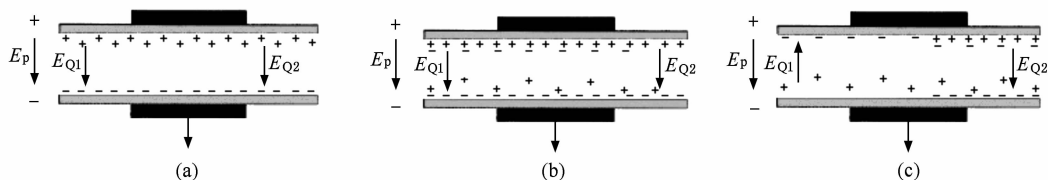


图8 第一放电电流脉冲过程中阻挡介质表面电荷、气隙空间电荷与电场强度 (a)未放电,(b)上升沿,(c)下降沿

周积累的表面电荷以及空间电荷的中和作用越来越强, E_{Q1} 越来越小. 在某一时刻使得 $E_p + E_{Q1} < E_b$, 放电开始减弱, 放电电流幅值开始减小. 此时, 对于电极右端气隙, 由于 E_p 增大, $E_p + E_{Q2} \geq E_b$ 成立, 因此, 电极右端气隙开始放电.

在第一个放电电流脉冲下降沿, 如图8(c)所示. 随着电极左端气隙放电逐渐减弱, 放电电流逐渐减小, 表面电荷减小, E_{Q1} 减小, 使得 $E_p + E_{Q1}$ 越来越小于 E_b , 放电逐渐减弱, 直至放电熄灭. 此时电极左端的表面电荷以及空间电荷达到最低值. 而电极右端气隙, 由于 E_p 增大, $E_p + E_{Q2} \geq E_b$, 放电增强, 放电电流增加, 表面电荷以及空间电荷累积很快. 同样, 因中和作用 E_{Q2} 迅速减小, 直到 $E_p + E_{Q2} < E_b$, 放电减弱.

在第一个放电电流脉冲接近结束时, 电极左端气隙的表面电荷以及空间电荷相对右端气隙较小, 而右端气隙放电还没有熄灭. 因此, 外加电压的增加使得右端放电在熄灭前又重新增强, 第二次放电发生, 形成了第二个放电电流脉冲. 第二个放电电流脉冲过程中, 从电极右端气隙放电逐渐增强. 到放电电流峰值时, 放电集中在电极中间区域, 此时左右两端表面电荷和空间电荷的积累已基本相当, 弥补了电极的稍不平行引起的不均匀, 电场变得均匀, 因此, 第三个脉冲从电极中间开始.

以上分析表明, 阻挡介质的表面电荷、气隙的空间电荷以及外加电压的变化形成了大气压辉光放电的多个放电电流脉冲. 只要外加电压电场与表面电荷以及空间电荷电场之差超过气体击穿电压, 气隙就会放电. 放电累积在阻挡介质上的表面电荷以及驻留在气隙的空间电荷会阻挡放电的发展, 使放电越来越弱. 但是, 在外电压达到峰值前, 这种阻止放电的作用不至于使放电熄灭. 而外加电压升高促成了微弱放电的再次增强, 貌似造成再一次的放电. 如果外加电压幅值较低, 在第一次放电后, 不足以引起第二次放电, 则在到达外加电压峰值之前只能形成一个电流脉冲, 这就是 APGD.

作者认为, Mangolini 等^[14]提出的表面电荷使得放电径向发展, 不同径向位置的击穿形成了多个脉冲是不准确的. 对于特定的电极尺寸, 有可能是不同径向位置形成了多个放电脉冲. 但是, 对不同尺寸或不同结构的电极, 不一定是不同径向位置形成多个放电脉冲. 对于任何尺寸的平板阻挡电极, 满足一定条件, 即外加电压在气隙形成的电场与表面电荷以及空间电荷电场之差达到气体击穿场强, 气隙就会放电. 表面电荷以及空间电荷会使放电减弱, 貌似放电熄灭, 只要外加电压足够高, 就会发生多次放电.

4.2. 辉光放电并未熄灭的原因

辉光放电并未熄灭, 不会再出现 Townsend 放电的原因? 通常认为多脉冲之间的放电熄灭了. 而本文图5和图6表明脉冲之间的放电并未熄灭. 由图7中的放电电流波形可知, 第一和第二个电流脉冲之间、第二和第三个脉冲电流之间, 放电电流并未等于零, 而是稍大于零. ICCD 放电图像和气隙放电电流都证明, 脉冲之间的辉光放电并未熄灭. 因为放电并未熄灭, 也就不会有从非自持放电到 Townsend 放电, 再到辉光放电的过程. 而由于微弱的辉光放电在气隙中产生的大量电子提供了下一次的种子电子, 在外加电压稍有升高时, 发生了再一次较强的放电. 因此, 除了第一个放电电流脉冲伊始的 Townsend 放电外, 同一半周期内不会再出现 Townsend 放电.

5. 结 论

大气压 He 气多脉冲放电的第一个电流脉冲经历了 Townsend 放电到辉光放电的过程, 随后的每一个脉冲均是辉光放电. 放电电流脉冲之间, 气隙放电并没有熄灭, 仍维持着微弱的辉光放电, 不再出现 Townsend 放电. 多脉冲辉光放电的形成是由放电累积的表面电荷以及驻留在气隙的空间电荷与外加电压共同演化的结果.

[1] Roth J R, Rahel J, Dai X, Sherman D M 2005 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38** 555

[2] Fang Z, Qiu Y, Luo Y 2003 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **36** 2980

[3] Wang X X, Lu M Z, Pu Y K 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2778 (in Chinese) [王新新、芦明泽、蒲以康 2002 物理学报 **51** 2778]

[4] Luo H Y, Wang X X, Mao T, Liang Z, Lü B, Guan Z C, Wang L M 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 4298 (in Chinese) [罗海云、王新新、毛婷、梁卓、吕博、关志成、王黎明 2008 物理学报 **57** 4298]

[5] Kogelscharz U 2002 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **30** 1400

[6] Li X C, Jia P Y, Liu Z H, Li L C, Dong L F 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1001 (in Chinese) [李雪辰、贾鹏英、刘志辉、李立春、董丽芳 2008 物理学报 **57** 1001]

[7] Okazaki S, Kogomat M, Ueharat M, Kimurat Y 1993 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **26** 889

[8] Massines F, Gherardi N, Naude N, Segur P 2005 *Plasma Phys. Contrl. Fusion* **47** 577

[9] Luo H Y, Liang Z, Lv B, Wang X X, Guan Z C, Wang L M 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 221504

[10] Luo H Y, Liang Z, Lü B, Wang X X, Guan Z C, Wang L M 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 231504

[11] Lü B, Wang X X, Luo H Y, Liang Z 2009 *Chin. Phys. B* **18** 0646

[12] Akishev Y S, Demyanov A V, Karalnik V B, Pankin M V, Trushkin N I 2001 *Plasma Phys. Rep.* **27** 164

[13] Golubovskii Y B, Maierov V A, Behnke J, Behnke J F 2003 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **36** 39

[14] Mangolini L, Orlov K, Kortshagen U, Heberlein J, Kogelschatz U 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 1722

[15] Radu I, Bartnikas R, Czeremuszkin G, Wertheimer M R 2003 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **31** 411

[16] Zhang Y T, Wang D Z, Wang Y H, Liu C S 2005 *Chin. Phys. Lett.* **22** 171

[17] Wang Y H, Wang D Z 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1295 (in Chinese) [王艳辉、王德真 2005 物理学报 **54** 1295]

[18] Wang D Z, Wang Y H, Liu C S 2006 *Thin Solid Films* **506**—**507** 384

[19] Zhang Y, Gu B, Wang W C, Peng X W, Wang D Z 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5532 (in Chinese) [张燕、顾彪、王文春、彭许文、王德真 2009 物理学报 **58** 5532]

Experimental study on mode and mechanism of multi-pulse atmospheric-pressure glow discharges

Hao Yan-Peng Yang Lin[†] Tu En-Lai Chen Jian-Yang Zhu Zhan-Wen Wang Xiao-Lei

(School of Electric Power, South China University of Technology, Guangzhou 510640, China)

(Received 30 March 2009; revised manuscript received 16 July 2009)

Abstract

Multi-pulse atmospheric-pressure glow discharges between two slightly unparallel electrodes were carried out in helium. The mode of discharge was investigated using an intensified charge-coupled device camera. The discharge current through gas gap and surface charge on the solid dielectric barrier were calculated. Based on analysis of surface charge on the solid barrier, space charges in gas gap, applied voltage across electrodes and field strength in gas gap, the formation mechanism of multi-pulse discharge was discussed. The discharge evolution pictures show that discharge is generated at the narrower side. At the other side, discharge is also generated at the first current peak. Physical process of the first pulse of atmospheric-pressure glow discharge in helium starts from a Townsend discharge leading to a glow discharge, and that of each subsequent current pulse is a glow discharge. Between two consecutive current pulses, a faint glow discharge is maintained in the gas gap. Theoretical analysis shows that multi-pulse discharge is a result of co-evolution of both surface charge as well as space charge and applied voltage, and the Townsend discharge does not appear during current pulse sequence of the same half cycle, except for discharge inception.

Keywords: dielectric barrier discharge, intensified charge-coupled device, atmospheric-pressure glow discharge, multi-pulse

PACC: 5150, 5280H, 5270K, 5270D

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50807018), the Foundation for the Author of National Excellent Doctoral Dissertation of China (Grant No. 200541) and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 200805611056).

[†] Corresponding author. E-mail: lin.yb@mail.scut.edu.cn