

专题: 低温等离子体非平衡输运与主动调控

# 表面水滴附着对大气压氦气介质阻挡放电系统 放电特性与化学分布的影响\*

蔡加禾 戴栋<sup>†</sup> 潘泳全

(华南理工大学电力学院, 广州 510641)

(2025年6月24日收到; 2025年9月27日收到修改稿)

在大气压介质阻挡放电的某些应用场景中, 待处理物表面附着的水滴会改变气隙宽度、介电分布、气相成分等条件, 进而影响低温等离子体的应用效果. 本文建立了大气压氦气介质阻挡放电仿真模型, 探究了接触角为  $45^\circ$ ,  $90^\circ$  和  $135^\circ$  的水滴附着于待处理物表面时稳态放电结构与活性粒子分布受到的影响及其背后机制. 结果表明, 水滴表面与上方区域的稳态放电强度受到削弱, 这是因为在负击穿中, 水滴表面的极化电场增强了等离子体双极性扩散, 促成环形放电抑制区; 在次正放电阶段, 水滴极化导致的种子电子清除效应抑制了水滴上方区域放电, 上述放电抑制作用随水滴接触角变大而提升. 在化学分布部分, 待处理物和水滴表面的活性粒子与电子存在着协同分布关系, 其中 O 与 N 的分布会因  $O_2$  与  $N_2$  键能的不同产生差异, OH 与  $He^+$  的分布则分别受到水滴蒸发与电场的影响. 本文系统地阐述了水滴附着对介质阻挡放电电化学反应过程的影响机制, 为等离子体-液滴系统的相关应用提供了理论指导.

**关键词:** 介质阻挡放电, 水滴, 放电结构, 活性粒子**PACS:** 52.20.-j, 52.25.Jm, 52.65.-y**DOI:** 10.7498/aps.74.20250827**CSTR:** 32037.14.aps.74.20250827

## 1 引言

大气压低温等离子体 (atmospheric pressure cold plasma, ACP) 以其反应温和性、产物多样性、环境适应性在材料改性<sup>[1]</sup>、生物医学<sup>[2]</sup>、污染治理<sup>[3]</sup>和食品加工<sup>[4]</sup>等应用领域得到了广泛使用. ACP 可以产生于多种放电情景, 其中, 放电气体与液体相互作用产生的 ACP 因直接接触气-液两相界面, 且携带有丰富的活性粒子, 便于直接处理目标液体或通过活化液体间接处理其他物质, 在医学<sup>[5]</sup>、食品工业<sup>[6]</sup>、农业<sup>[7]</sup>等领域有着独到的作用. 因此, 研究人员开始对等离子体-液体系统产生浓厚兴趣,

对其中发生的物理化学过程展开了细致研究.

等离子体-液体系统有多种应用场景, 通常 ACP 在气相空间生成, 然后接触水平<sup>[8,9]</sup>或受气流影响的凹陷液面<sup>[10]</sup>, 也可以直接在液体或液相气泡中生成以提高处理效率<sup>[11]</sup>. 除此之外, ACP 也可与气溶胶形式存在的微型悬浮液滴<sup>[12]</sup>或是以悬挂<sup>[13]</sup>、滴落<sup>[14]</sup>、附着<sup>[15]</sup>形态存在的肉眼可见的液滴产生相互作用. 球形液滴因具有高表面积-体积比在溶解活性化学物质时效果卓著<sup>[16-18]</sup>, 对沾染病菌或有害化学物质的液滴的处理也会涉及等离子体-液滴相互作用<sup>[19-22]</sup>. 在上述应用场景中, 具有不同相对介电常数  $\epsilon_r$ 、大小、形状、电导率等属性的液滴会对等离子体的应用效果产生不同影响, 研究者们通过实验或建模仿真手段探究了这些影响的具体

\* 国家自然科学基金 (批准号: 52377145) 和广东省自然科学基金 (批准号: 2023A1515012312) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: ddai@scut.edu.cn

形式与背后机制. 例如, Ning 等<sup>[23]</sup>探究了高压电极对水中气泡中心的水滴进行放电的过程, 指出水滴形状的改变会引发表面极化电场分布的变化, 电离通道位置会因此不同. Kruszelnicki 等<sup>[16]</sup>比较了具有不同亨利系数的气相物种在大水滴与小水滴中的溶解效果, 发现高亨利系数物种会被大水滴迅速耗尽, 导致水滴活化效果不佳. Nayak 等<sup>[17]</sup>比较了 O, OH 和 O<sub>3</sub> 等放电产物对气溶胶液滴中甲酸盐的分解效率, 揭示了电离诱导反应和液相氧化抑制效应在甲酸盐分解中的作用规律. Meyer 等<sup>[24]</sup>在射频辉光放电二维模型中嵌入电导率、介电性、尺度各异的微米级悬浮水滴以研究其表面的等离子体鞘层, 发现其形状会沿电场方向拉伸. Wang 等<sup>[14]</sup>将流量、电导率各异的滴落水滴作为沟通高压与接地极板的放电纽带, 缩短了活性粒子与水滴之间的传输距离, 提高了水滴活化效率. Li 等<sup>[25]</sup>对水滴进行充电与极化, 配合空间中的梯度电场与电荷精准驱动水滴传输, 研究了水滴体积等因素对驱动效果的影响.

产生 ACP 的一种常见方式是使用介质阻挡放电 (dielectric barrier discharge, DBD) 装置, 其由时变电源驱动, 放电时反向电荷会积累于非等电势的介质表面, 大量放电柱在气隙中不同位置交替生成与熄灭, 使得 DBD 可以在大气压条件下产生均匀、稳定、柔和的 ACP. 因其结构简单、能耗低、处理面积大的优点, DBD 在需要使用 ACP 的工程应用领域展现出独特的优势<sup>[26-29]</sup>.

为解决新鲜果蔬上残留的大肠杆菌、沙门氏菌、李斯特菌等病原菌种导致的食源性健康危害事件<sup>[30-34]</sup>, 一种能够稳定高效产出 ACP 的 DBD 装置被广泛用于新鲜果蔬的灭菌工艺<sup>[33]</sup>, 包装果蔬的塑料盒能够在隔绝二次污染的同时充当放电间隙介质. 在此工艺中无法完全避免因细胞液析出<sup>[20]</sup>、清洗残留<sup>[30]</sup>与水气凝结<sup>[35]</sup>而导致果蔬表面附着水滴的情况, ACP 会直接作用于附着有水滴的待处理物. 附着型水滴直接改变了 DBD 的气隙宽度与介电分布, 通过蒸发间接影响了气相温度分布与气体成分, 这些物理条件的变化都会影响等离子体的电学和化学过程<sup>[10,11,21,36]</sup>, 进而影响其应用效果. 为研究等离子体-附着型液滴相互作用, 人们已经进行了初步探索, 例如, Yan 等<sup>[21]</sup>使用大气压等离子体射流 (atmospheric pressure plasma jet, APPJ) 从上方冲击附着于介质表面的不同尺寸水滴, 发现

被极化的大尺寸水滴可以将高场强区限制在液面与射流头部之间, 抑制了 APPJ 的径向传播. Konina 等<sup>[22]</sup>则探讨了另一种情况: 等离子体从侧向冲击附着型水滴, 水滴表面会产生非均匀电场, 引导电离波跃过液面. 然而, 这些研究仍暴露了两点不足: 一是由于边界条件复杂等原因, 目前还没有涉及 DBD-附着型液滴相互作用的建模仿真; 二是以往研究人员忽略了液滴接触角这一关键变量: 不同果蔬表面亲水性相异, 附着其上的水滴的接触角跨度可达 39.6°—138.9°<sup>[37]</sup>, 对于该变量的研究具有现实意义. 理论层面, 接触角不同的水滴具有不同外形, DBD 的气隙宽度、介电分布等物理条件因此不同, 进而影响稳态放电结构与活性粒子分布, 但这种影响的具体表现形式及其背后机制尚未可知.

本文将通过建模仿真手段解析附着水滴有无与水滴接触角改变对 DBD 放电特性与化学分布的影响. 本文第 2 节介绍了研究所需的水滴蒸发流体力学模型与等离子体流体模型, 包括其几何结构、网格划分、边界条件、初始条件与控制方程; 第 3 节展示了仿真模型计算的相关结果, 展示了无水滴附着、接触角为 45°, 90°和 135°的水滴附着这四种情况中 DBD 的稳态放电结构与活性粒子分布, 并分析相关影响机制; 第 4 节是对研究内容的总结.

## 2 仿真模型

图 1 展示了上文提到的果蔬灭菌 DBD 装置的应用场景, 对其简化后, 我们使用 COMSOL Multiphysics 软件建立仿真模型, 如图 2 所示, 这是一个以  $z$  轴为中心的二维轴对称 DBD 模型. 无厚度、半径为 10 mm 的电源极板 (施加正弦交流电压, 幅值为 3 kV, 频率为 10 kHz) 与接地极板分别位于模型上下两端, 不完全地覆盖住两块半径为 15 mm、厚度为 1 mm 的电介质板 ( $\epsilon_r = 8$ ). 底部介质板上放置着半径为 12 mm、厚度为 1 mm 的待处理物切片 ( $\epsilon_r = 40$ <sup>[38,39]</sup>), 水滴 ( $\epsilon_r = 80$ ) 附着于切片表面中心, 切片上方的气隙宽度为 3 mm (此条件下均匀放电结构较易出现<sup>[40]</sup>). 另外, 为减少仿真计算时间, 模型径向尺寸较现实情况大幅缩小, 此类模型已被证明可胜任 DBD 放电结构演化的研究<sup>[36,41]</sup>.

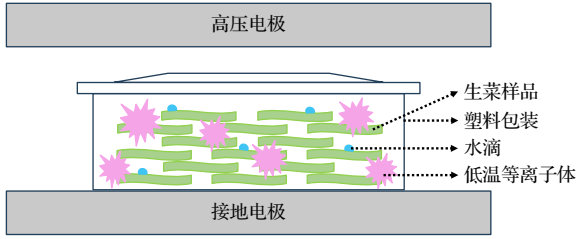


图 1 Min 等<sup>[33]</sup>设计的 ACP 杀菌装置

Fig. 1. The ACP sterilization device designed by Min et al<sup>[33]</sup>.

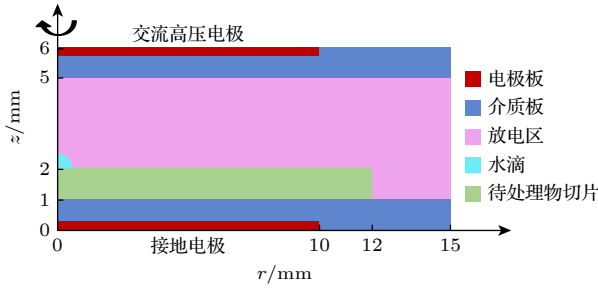


图 2 DBD 仿真模型的几何结构

Fig. 2. Geometric structure of the DBD simulation model.

本文考虑到了水滴的蒸发过程, 因此首先建立了与 DBD 模型具有相同几何结构的水滴蒸发流体力学模型, 蒸发时间设置为 150 s, 仿真计算得到的相关结果 (水蒸气与空气的摩尔分数空间分布、温度场和水滴外形曲线) 单向输入到 DBD 模型作为初始条件. 由于水滴蒸发的特征时间远大于等离子体的特征时间与放电周期, 从放电过程来看蒸发过程是静止的, 因此这种单向耦合在本文中是合理的<sup>[10]</sup>. 另外, 等离子体流体模型理论被用于描述 DBD, 相比于粒子模型, 其计算速度快得多, 适用于本文的微秒级时间尺度计算<sup>[42]</sup>, 也克服了全局模型无法计算二维结果的缺点<sup>[43]</sup>.

DBD 模型中的等离子体化学反应体系可详见附录表 A1, 我们在保留主要反应路径的同时对其进行了适当简化, 以减少仿真计算时间、增强模型收敛性.

### 2.1 水滴蒸发流体力学模型

水滴蒸发流体力学模型中, 水滴成分为不导电纯净水, 初始背景气体为 99.9% 氮气和 0.1% 空气 (空气中氧气占 21%, 氮气占 79%, 以上百分数均为摩尔分数), 20% 相对湿度的水蒸气混合其中, 气相初始压强为一个大气压, 液相初始压强的计算方式在 2.2.1 节给出, 模型全域初始温度设定为 293.15 K.

如图 3(a) 所示, 液滴接触角 (下文用  $\theta$  代指) 是指液滴-气体-固体三相交界处的液面切线与附着面之间的夹角. 如图 3(b) 所示, 由于具有不同  $\theta$  的液滴可以近似看作椭球或圆球的一部分<sup>[44]</sup>, 因此我们通过分割正圆取得  $\theta$  分别为  $45^\circ$ ,  $90^\circ$  和  $135^\circ$  的二维水滴外形, 水滴体积保持一致. 图 4 展示了当  $\theta = 90^\circ$  时, 水滴蒸发流体力学模型与等离子体流体模型的计算域及有限元网格划分, 区域 ABD 代表水滴, 区域 ACE 设置了动网格以应对水滴收缩.

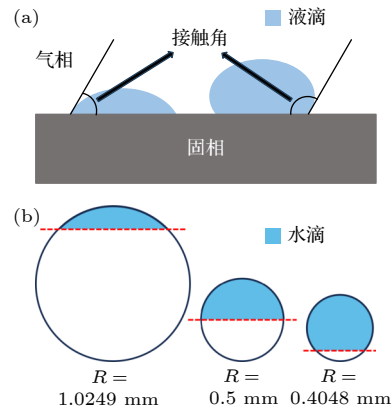


图 3 (a) 液滴接触角  $\theta$  定义; (b)  $\theta$  为  $45^\circ$ ,  $90^\circ$  和  $135^\circ$  的水滴的二维几何结构,  $R$  为被分割正圆的半径

Fig. 3. (a) The definition of a droplet contact angle  $\theta$ ; (b) two-dimensional geometric structures of water droplets with  $\theta$  of  $45^\circ$ ,  $90^\circ$ , and  $135^\circ$ ,  $R$  is the radius of the segmented circle.

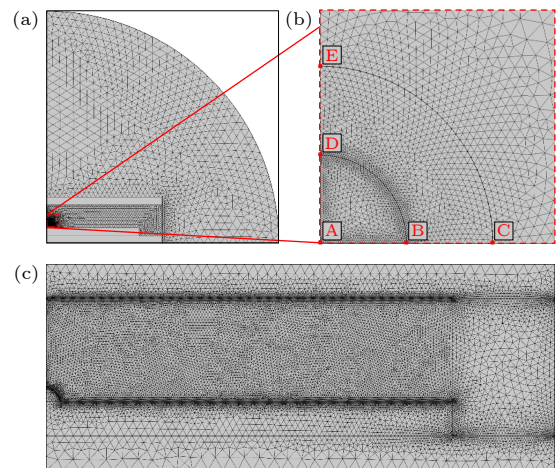


图 4 仿真模型计算域与网格划分 (a) 水滴蒸发流体力学模型与 (b) 水滴及周围区域局部放大图; (c) 等离子体流体模型  
Fig. 4. The computation domain and grid partitioning of simulation models: (a) The fluid dynamics model of water droplet evaporation and (b) the partial enlarged view of water droplets and surrounding areas; (c) the plasma fluid model.

### 2.1.1 层流场

层流场方程适合描述本文涉及的低雷诺数流体, 假设流体具有弱可压缩性后, Navier-Stokes (N-S) 连续性方程为以下形式:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u) = 0, \quad (1)$$

$\rho$  为流体密度, 在气相部分由各种气体占比确定, 液相部分则取  $1 \text{ kg/m}^3$ ;  $u$  为流体速度. 忽略外力项的 N-S 动量方程用以描述流体的动量守恒情况:

$$\rho \left( \frac{\partial u}{\partial t} + u \cdot \nabla u \right) = \nabla \cdot \left[ -p \mathbf{I} + \mu (\nabla u + (\nabla u)^T) - \frac{2}{3} \mu (\nabla \cdot u) \mathbf{I} \right]. \quad (2)$$

$p$  为流体压力;  $\mathbf{I}$  为单位矩阵;  $\mu$  为流体动力黏度. 为计算水滴内部压力, 液面内外压力差由 Young-Laplace 方程给出:

$$p_{\text{in}} - p_{\text{out}} = \frac{2\sigma}{R_0}. \quad (3)$$

$\sigma$  为水的表面张力, 为  $0.07 \text{ N/m}$ ;  $R_0$  为水滴半径.

最后, 因为无滑移流体边界方程无法精确描述由蒸发引起的水滴在固体表面的小尺度缓慢收缩, 因此在图 4(a) 中的 AC 边界设置 Navier 滑移条件:

$$u_s = L_s \left( \frac{\partial u}{\partial n} \right)_w. \quad (4)$$

$u_s$  为边界处的流体切向速度;  $L_s$  为虚拟长度;  $n$  为从固体壁指向流体的法向量.

### 2.1.2 稀物质传递

本模型的主要稀物质传递过程是水滴表面的水蒸气向外部气相空间的扩散, 此过程需遵循物质传递方程与 Fick 定律:

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \nabla \cdot J_i + u \cdot \nabla c_i = R_i, \quad (5)$$

$$J_i = -D_i \nabla c_i. \quad (6)$$

$c_i$  为稀物质的摩尔浓度,  $J_i$ ,  $R_i$ ,  $D_i$  分别为其摩尔扩散通量、生成源项与扩散系数; 水蒸气的扩散系数设置为  $2.82 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ . 水滴表面 (图 4(b) 中弧线 BD) 被设置具有饱和水蒸气摩尔浓度, 其值通过 Antoine 方程与理想气体方程求出:

$$\log_{10}(p_{\text{sat}}) = A - \frac{B}{C + (T - 273.15)}, \quad (7)$$

$$c_{\text{sat}} = \frac{p_{\text{sat}}}{RT}. \quad (8)$$

$p_{\text{sat}}$  与  $c_{\text{sat}}$  指水蒸气饱和压力与饱和摩尔浓度;  $A$ ,  $B$ ,  $C$  分别为 8.07131, 1730.63, 233.426;  $T$  为温度, 单位为 K;  $R$  为理想气体常量.

### 2.1.3 热传递

基于能量守恒原理, 系统的热传递平衡方程为

$$p C_p u \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q, \quad (9)$$

$C_p$  为恒压比热容;  $k$  为热导率;  $Q$  为系统边界热源, 在模型中即为水滴表面蒸发吸收的热量, 其值由蒸发潜热方程与质量通量方程得到:

$$Q = -J \cdot L_H, \quad (10)$$

$$J = M_w n \cdot (-D \nabla c_i), \quad (11)$$

$J$  为水滴表面蒸发质量通量;  $L_H$  为蒸发潜热常量, 值为  $2260 \text{ kJ/kg}$ ;  $M_w$  为水的摩尔质量, 值为  $0.018 \text{ kg/mol}$ ;  $n$  为从液面指向气相的法矢量. 除了计算热量损失, 方程 (11) 也用于计算水滴的质量损失, 从而得到蒸发后的液面曲线函数.

## 2.2 等离子体流体模型

在等离子体流体模型中, 气相压强仍为一个大气压, 初始电子数密度  $n_e$  与电子平均能量分别为  $5 \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$  与  $2 \text{ eV}$ . 做出漂移-扩散的近似假设后, 使用 Boltzmann 方程简化后的连续性方程求解  $n_e$  与电子能量密度  $n_\varepsilon$ :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_e = S_e, \quad (12)$$

$$\frac{\partial n_\varepsilon}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_\varepsilon = S_\varepsilon - E \cdot \Gamma_e, \quad (13)$$

$$\Gamma_e = -\mu_e n_e E - D_e \nabla \cdot n_e, \quad (14)$$

$$\Gamma_\varepsilon = -\frac{5}{3} \mu_e n_\varepsilon E - \frac{5}{3} D_\varepsilon \nabla \cdot n_\varepsilon, \quad (15)$$

$\Gamma_e$  与  $\Gamma_\varepsilon$  分别为电子数通量与电子能通量;  $S_e$  与  $S_\varepsilon$  分别为电子数密度源项与电子能量密度源项;  $\mu_e$  为电子迁移率, 通过 Boltzmann 方程求解器 Bolsig+求得; 电场  $E$  与电子扩散系数  $D_e$  分别由 Poisson 方程与 Einstein 关系式求出:

$$\nabla \cdot (\varepsilon_0 \varepsilon_r E) = \rho_v, \quad (16)$$

$$D_e = k_B T \mu_e / e, \quad (17)$$

$\varepsilon_0$  为真空介电常数;  $\rho_v$  为空间净电荷密度;  $k_B$  为玻尔兹曼常数;  $e$  为单位电荷量.

原子、离子、分子等重物质的传输情况由多组

分输运方程组确定:

$$\rho \frac{\partial \omega_k}{\partial t} = \nabla \cdot J_k + S_k, \quad (18)$$

$$J_k = \rho \omega_k \left[ D_k \left( \frac{\nabla \omega_k}{\omega_k} + \frac{\nabla M_n}{M_n} \right) - z_k \mu_k E \right], \quad (19)$$

$\rho$  与  $M_n$  表示气体混合物的密度和摩尔质量;  $\omega_k$  与  $z_k$  指重物质的质量分数与电荷量,  $J_k$  与  $S_k$  则为其传输通量与产生源项;  $D_k$  与  $\mu_k$  指重物质的扩散系数与迁移率.

离子被电场加速后会撞击固体介质与水滴表面, 在特定情况下将引发二次电子发射, 为此, 方程 (20)—方程 (22) 用于计算界面上的  $\Gamma_e$ ,  $\Gamma_\varepsilon$  与重物质通量  $\Gamma_k$ :

$$n \cdot \Gamma_e = \frac{1 - r_e}{1 + r_e} \left( \frac{1}{2} v_{e,th} n_e \right) - \sum \gamma_j (\Gamma_j \cdot n), \quad (20)$$

$$n \cdot \Gamma_\varepsilon = \frac{1 - r_e}{1 + r_e} \left( \frac{5}{6} v_{e,th} n_\varepsilon \right) - \sum \gamma_j \varepsilon_j (\Gamma_j \cdot n), \quad (21)$$

$$n \cdot \Gamma_k = M_k R_{surf,k} + \alpha_s M_k c_k \mu_{k,m} z_k E \cdot n, \quad (22)$$

$n$  为从界面指向介质的单位法向量;  $r_e$  为边界电子反射系数, 值为 1/3;  $v_{e,th}$  为电子热速度;  $\Gamma_j$  为重物质  $j$  的界面通量,  $\gamma_j$  与  $\varepsilon_j$  指该物质撞击界面后的二次电子发射系数 (在固体介质与水滴表面分别设置为 0.1 与 0.01<sup>[10]</sup>) 和二次电子平均能量

(设置为 5 eV);  $M_k$ ,  $R_{surf,k}$ ,  $c_k$ ,  $z_k$  分别代表重粒子的摩尔质量、表面反应速率、质量分数与电荷量;  $\alpha_s$  是一类开关函数;  $\mu_{k,m}$  为混合物的平均迁移率.

由于模型中的固体介质与水滴不具备导电能力, 带电粒子不会穿透它们而是累积在其表面, 表面电荷密度  $\sigma_s$  由以下方程计算:

$$\sigma_s = (D_2 - D_1) \cdot n, \quad (23)$$

$$\frac{\partial \sigma_s}{\partial t} = J_i \cdot n + J_e \cdot n, \quad (24)$$

$D_1$  与  $D_2$  为表面电位移动矢量;  $J_i$  与  $J_e$  指边界上的离子电流密度与电子电流密度.

## 3 结果与讨论

### 3.1 水滴蒸发与液面收缩

图 5 展示了  $\theta$  不同的水滴蒸发 150 s 后其周围相关物理场的计算结果. 从图 5(a1)—(a3) 中看出, 水滴周围的水蒸气摩尔分数显著高于其他区域, 而在距离水滴较远的位置则基本与蒸发前水平 (0.4611%) 保持一致; 从图 5(b1)—(b3) 中看出, 空气摩尔分数的空间分布规律与水蒸气相反, 但数值较为均匀. 氮气被设置为质量约束气体, 其摩尔分

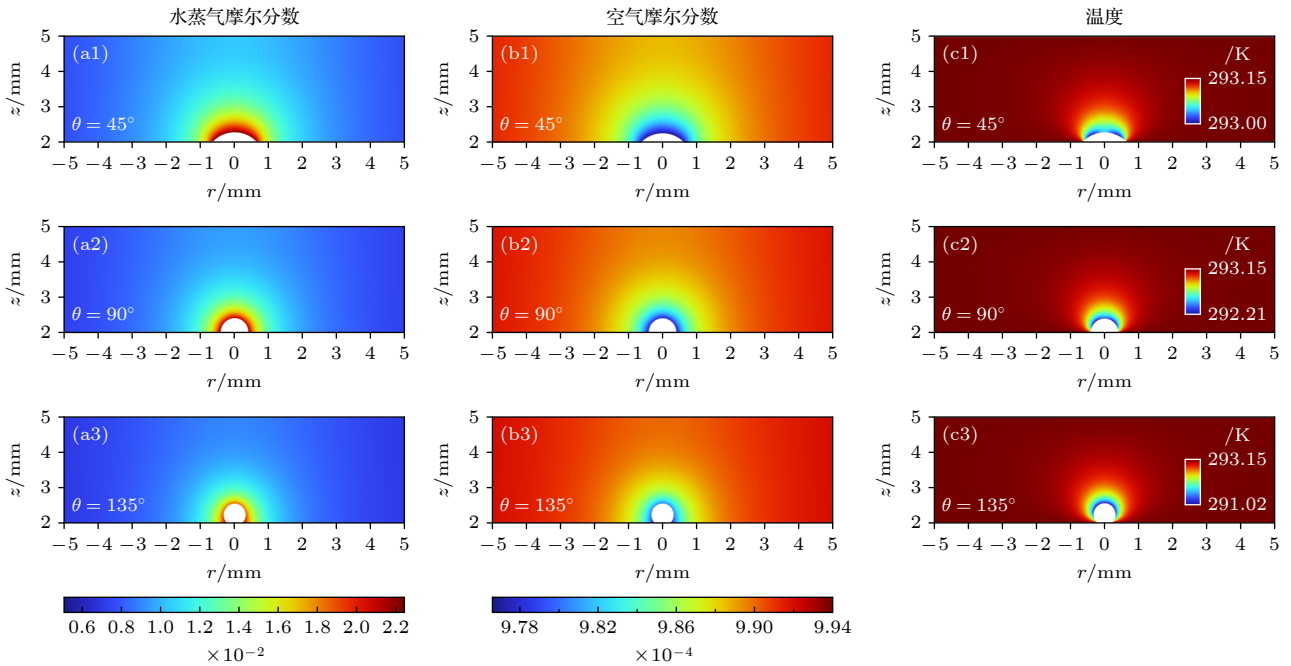


图 5 水滴蒸发 150 s 后周围区域水蒸气与空气的摩尔分数空间分布以及温度场

Fig. 5. Spatial distributions of mole fractions of water vapor and air in the surrounding area of water droplets after 150 s of evaporation, as well as the temperature field.

数空间分布不需要被输入到 DBD 模型, 因而在此处不展示. 通过比较图 5(a1)—(a3) 发现,  $\theta$  越小的水滴其周围水蒸气高浓度区域 (深红色区域) 越大, 这一规律可凭借图 5(c1)—(c3) 解释:  $\theta$  越小的水滴表面温度越高, 这会助长蒸发速率.

图 6 展示了  $\theta$  不同的水滴在蒸发后的液面收缩情况, 由于在模型中设置了  $\theta$  恒定, 水滴的形状几乎无变化.  $t = 150$  s 对应的液面曲线将被引入 DBD 模型用于建立几何结构.

### 3.2 不同水滴附着情景下的 DBD 稳态放电特性

DBD 模型的计算时间只有 6 个放电周期, 这既是因为模型第 5, 6 周期的放电特性基本保持一致, 可以认为 DBD 在第 6 放电周期已经进入了稳

态<sup>[45]</sup>, 也是为了省时 (单模型 1 个放电周期的计算时间在 48 h 左右). 图 7 展示了无水滴附着与  $\theta = 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$  的水滴附着的情况 (下文称情况 A, B, C, D) 中 DBD 稳态阶段的电流  $I$ 、外施电压  $V_a$  与气隙电压  $V_g$  曲线, 其中  $I$  曲线在  $V_a$  曲线每个正负半周期内会出现 1 至 2 个主尖峰 (幅值在 9.8—22.8 mA 之间, 与先前关于辉光 DBD 的研究呈现的数值范围相近<sup>[29,41,45]</sup>), 随后会出现若干小尖峰 (幅值不超过 5 mA), 这分别标志着气隙的主击穿与次击穿. 这种多尖峰  $I$  曲线也出现于先前一些关于 DBD 的研究<sup>[29,41,46]</sup>, 但正、负放电 ( $I$  为正时发生正放电, 瞬时阳极位于气隙上边界;  $I$  为负时发生负放电, 瞬时阳极位于气隙下边界) 阶段  $I$  尖峰的幅值与数量与一些研究呈现的对称形式有所不同<sup>[47]</sup>.

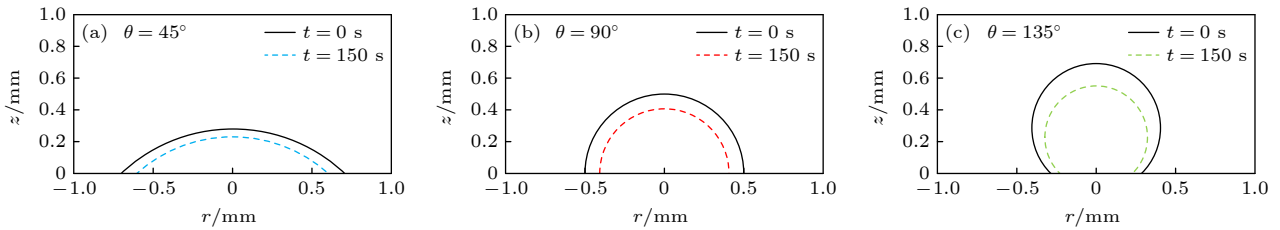


图 6 水滴蒸发 150 s 前后液面外形曲线

Fig. 6. Shape curves of liquid surfaces of water droplets before and after 150 s of evaporation.

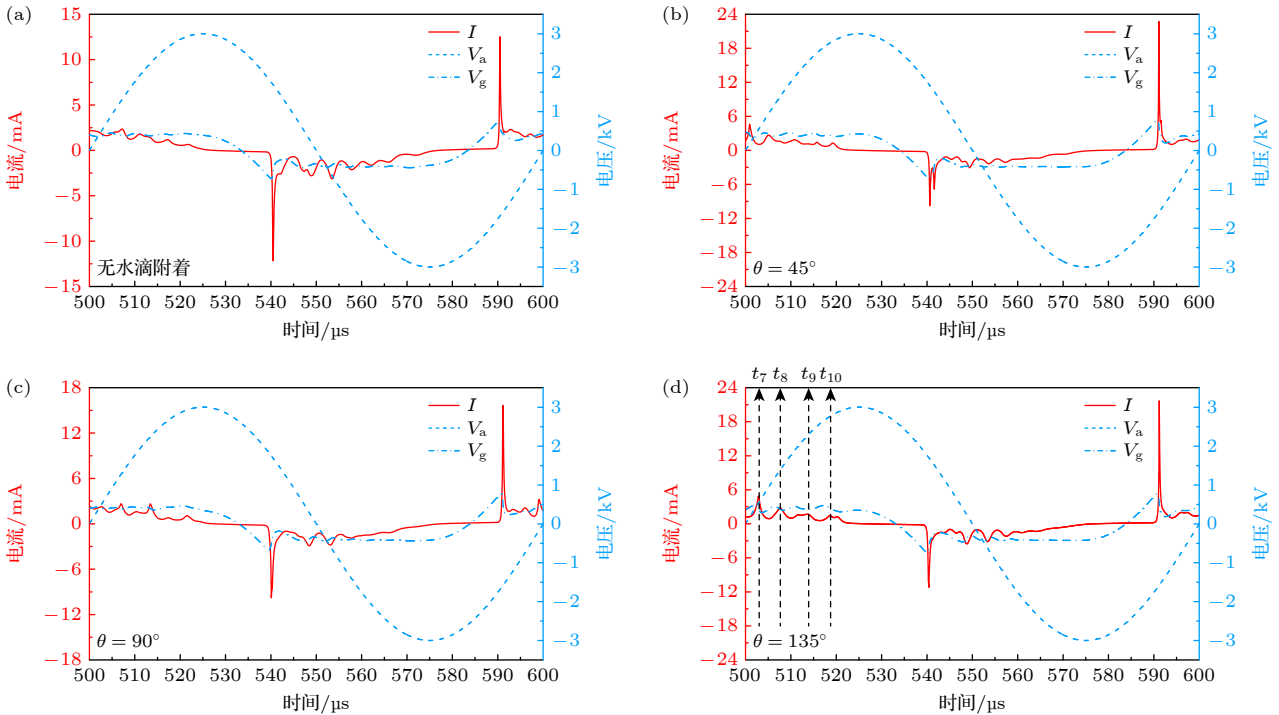


图 7 各情况中 DBD 的稳态电参数曲线

Fig. 7. Steady-state electrical parameter curves of DBDs in various situations.

从图 7 中还能看出, 气隙主击穿发生于  $V_a$  曲线的下降沿,  $I$  的相位领先  $V_a$   $120^\circ$  左右, 这是由于 DBD 模型中介质的介电性较强, 反向电荷的积累速度较快,  $V_g$  在  $V_a$  曲线过零前就达到了可以触发气隙击穿的水平 [45,47].

图 8 展示了不同情况中 DBD 的稳态放电结构 (用  $\log_{10}(n_e)$  的时均空间分布表示 [29]). 在情况 A 中, 考虑到柱状放电模式特征并不明显, 我们认为 DBD 的稳态放电结构是均匀的; 情况 B, C 中, DBD 的稳态放电均匀性遭到轻微破坏, 体现在水滴表面出现环形放电抑制区 (图 8(b) 和图 8(c) 中水滴周围的蓝色区域), 以及水滴上方区域放电强度被削弱; 情况 D 中 DBD 的稳态放电均匀性被进一步破坏, 表现为水滴周围的放电抑制区进一步增宽. 四种情况中沿  $z = 3.5$  mm,  $-10$  mm  $\leq r \leq 10$  mm 的直线区域 (图 8(a) 中白色虚线) 分布的稳态时均对数  $n_e$  展现在图 9 中, 显然, 在水滴周围区域, 情况 D 中稳态放电强度的削弱比情况 B, C 更明显.

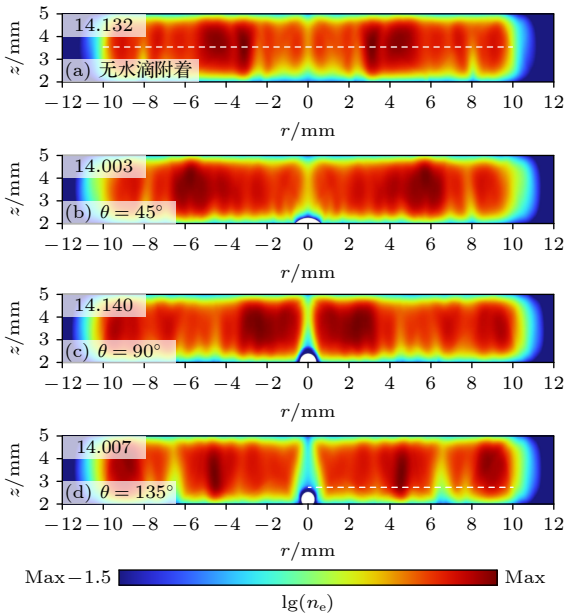


图 8 各情况中 DBD 的稳态时均对数  $n_e$  空间分布 ( $n_e$  单位为  $m^{-3}$ , 下同),  $\log_{10}(n_e)$  最大值被标注在图中左上角  
Fig. 8. Spatial distributions of steady-state time-averaged logarithmic  $n_e$  of DBDs in various situations (the unit of  $n_e$  is  $m^{-3}$ , the same below), the maximum value of  $\log_{10}(n_e)$  is marked in the upper left corner of figures.

为验证模型径向尺寸相对于现实情况的缩小程度不会对 DBD 的稳态放电结构产生明显影响, 我们在附录图 A1 中展示了不同径向尺寸缩小比

例下情况 D 中的稳态放电结构, 从附录图 A1 中可以看出, 水滴周围产生了相似的放电抑制区.

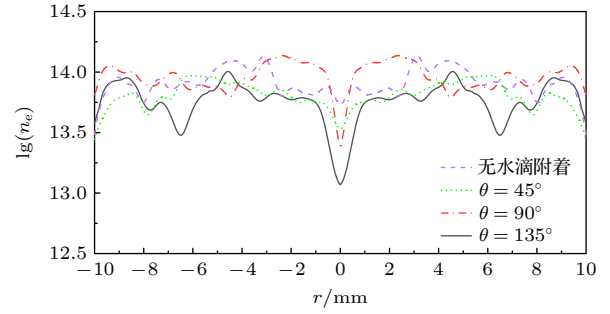


图 9 各情况中沿 DBD 径向方向的稳态时均对数  $n_e$  空间分布

Fig. 9. Spatial distributions of steady-state time-averaged logarithmic  $n_e$  along the radial direction in DBDs in various situations.

当 DBD 装置的放电模式由均匀转向非均匀时, 其应用效果会受到影响 (变劣 [28,29] 或变优 [48]), 因此本文亟需理清两个问题: 1) 由水滴附着引发的何种机制导致了水滴表面与上方区域的稳态放电强度被削弱; 2) 为什么这种削弱效应随着  $\theta$  增大到  $135^\circ$  会显著增强. 从放电的瞬态视角分析上述问题是可行的, 而气隙主击穿时放电强度最高, 其应成为重点分析对象 [45].

### 3.3 水滴附着对 DBD 放电结构演化的影响

#### 3.3.1 极化电场与增强放电效应

分析第 1 放电周期的击穿瞬态过程有助于理清 DBD 放电结构演化规律 [45]. 根据仿真结果, 各情况中 DBD 第 1 次主正击穿都发生在第 5  $\mu s$ , 附近时段  $I$ ,  $V_g$  的变化趋势也基本相同, 因此我们选取情况 A 为代表, 在图 10(a) 中绘制出 DBD 在 0—14  $\mu s$  的  $I$ ,  $V_a$ ,  $V_g$  曲线以及标注四个时刻:  $t_1$  (0.6  $\mu s$ ),  $t_2$  (1.5  $\mu s$ ),  $t_3$  (4  $\mu s$ ) 和  $t_4$  (5  $\mu s$ ), 这些时刻对应的 DBD 放电结构被展示于图 11. 如图 10(a) 与图 11(b1), (c1), (d1) 所示,  $t_1$  时刻,  $I$  曲线出现了一个在主正击穿前的小尖峰, 这是空间电子向气隙瞬时阳极迁移的结果, 水滴上方气隙较窄, 电场更强, 电子迁移得更快, Wang 等 [45] 也报道了类似现象.  $t_2$  时刻, 空间电子迁移阶段结束, 上介质板下表面临近区域残存着一些空间电子, 其数量在水滴上方尤为稀少, 这些空间电子在之后的气隙击穿中将充当种子电子 (触发电子崩的初始自由电子).  $t_2$ — $t_3$  时段, 随着  $V_g$  的不断升高, DBD 进入汤森放电

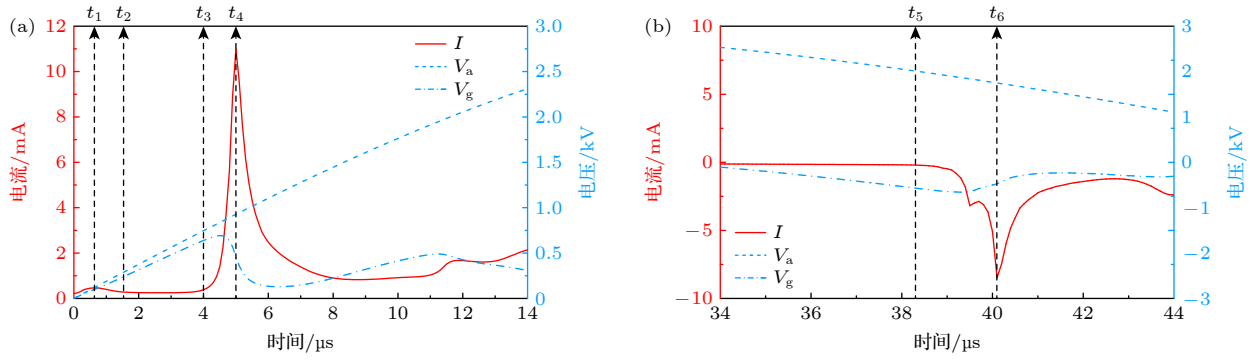


图 10 情况 A 中 DBD 的电参数曲线, 第 1 放电周期主正击穿 (a) 与主负击穿 (b) 时刻附近

Fig. 10. Electrical parameter curves of DBDs in situation A: Near the time of (a) main positive breakdown and (b) main negative breakdown in the first discharge cycle.

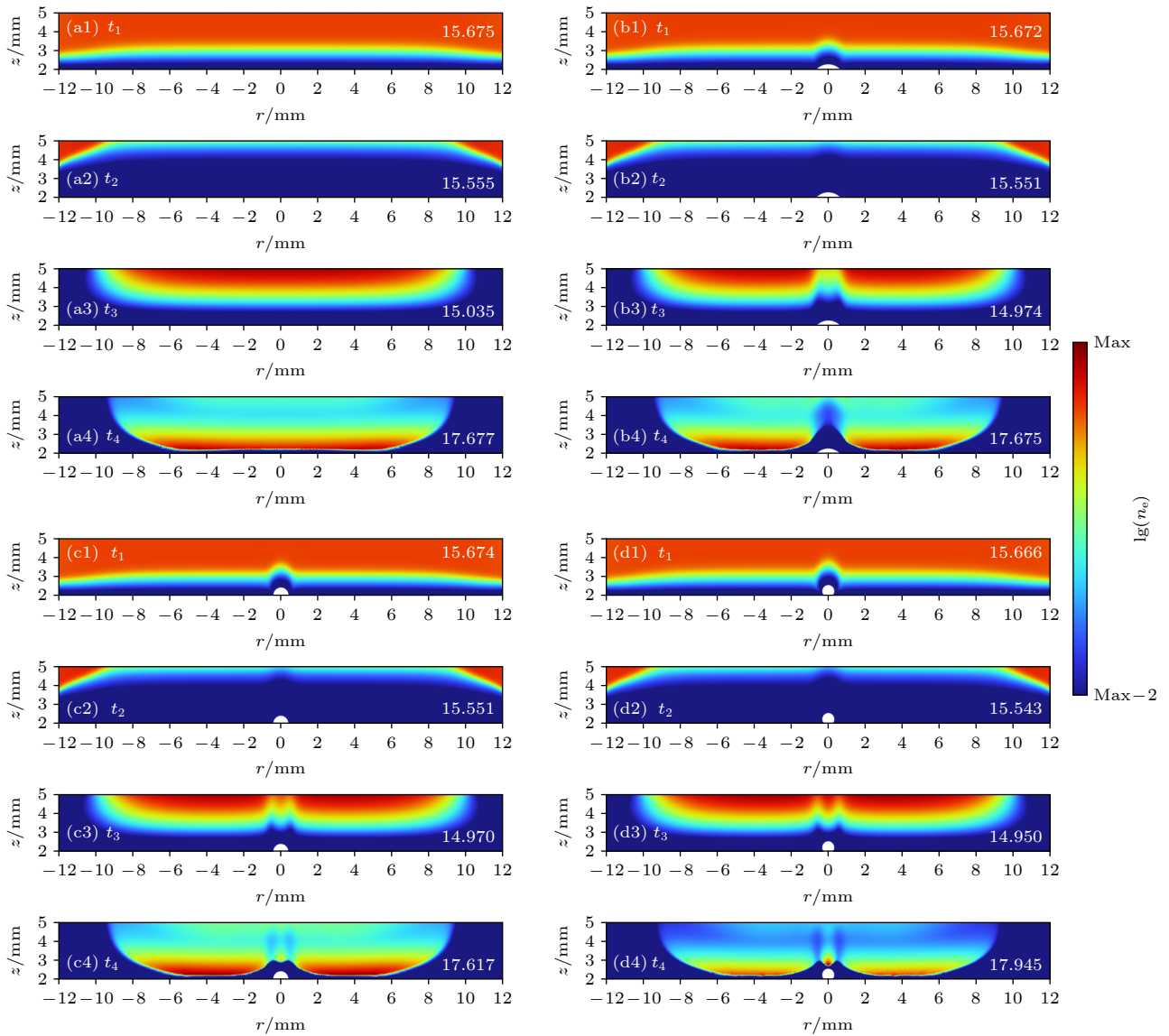


图 11  $t_1-t_4$  时段 DBD 的对数  $n_e$  空间分布,  $\log_{10}(n_e)$  最大值被标注在图中右侧 (a1)–(a4) 情况 A; (b1)–(b4) 情况 B; (c1)–(c4) 情况 C; (d1)–(d4) 情况 D

Fig. 11. Spatial distributions of logarithmic  $n_e$  of DBDs from  $t_1$  to  $t_4$ , the maximum value of  $\log_{10}(n_e)$  is marked in the bottom right corner of figures: (a1)–(a4) Situation A; (b1)–(b4) situation B; (c1)–(c4) situation C; (d1)–(d4) situation D.

阶段: 如图 10(a) 与图 11(a3)、(b3)、(c3)、(d3) 所示, 其特点是  $I$  与  $n_e$  处于较低水平, 电子崩在瞬时阳极开始发展, 没有贯穿整个气隙<sup>[41]</sup>. 值得注意的是, 在  $t_3$  时刻, 情况 B, C 和 D 中水滴上方原本种子电子缺少的区域也发生了小规模的汤森放电.  $t_3-t_4$  时段, 随着  $V_g$  进一步增加, 正离子更猛烈地撞击阴极, 二次电子发射开始参与空间电子的生成, 气隙间的汤森放电发展为辉光放电: 如图 10(a) 与图 11(a4)、(b4)、(c4)、(d4) 所示, 其特点是  $I$  与  $n_e$  急剧上升,  $V_g$  随后迅速降低, 空间电子集中在瞬时阴极附近的负辉区, 在其之上正柱区与阳极辉区形成<sup>[41]</sup>.  $t_4$  时刻, 情况 B 中水滴上方的汤森放电没有过渡到辉光放电, 反而彻底消退了, 情况 C, D 则与之不同, 甚至在情况 D 中水滴上方的辉光放电强度与两侧主击穿区域相当.

为解析上述差异性现象, 考虑到电场在汤森放电向辉光放电的发展过程中起关键作用, 将  $t_3$  时刻四种情况中的电场空间分布展示于图 12, 箭头长度正比于场强. 从图 12(b), (c), (d) 可以看出, 由于水滴具有强介电性, 其内部场强相比于气相空间低得多, 但其表面却存在着较强的极化电场<sup>[13,16,23,24]</sup>, 其最大幅值在情况 B, C 和 D 中分别为  $4.95 \times 10^5$ ,  $7.34 \times 10^5$  和  $8.88 \times 10^5$  V/m. 极化电场的强度与其所在位置的水滴表面曲率呈正相关关系<sup>[23]</sup>, 由于  $\theta = 90^\circ$  与  $\theta = 135^\circ$  的水滴半径差距较小, 而  $\theta = 45^\circ$  的水滴半径明显大于前两者, 因此情况 B 中水滴表面的极化电场格外弱. 通过上述分析, 我们给出了  $\theta$  不同的水滴上方放电发展各异的原因:  $\theta$  较大的水滴上方存在更强的极化电场, 更大幅度地增强了水滴上方的碰撞电离 (图 13 可以佐证) 与水

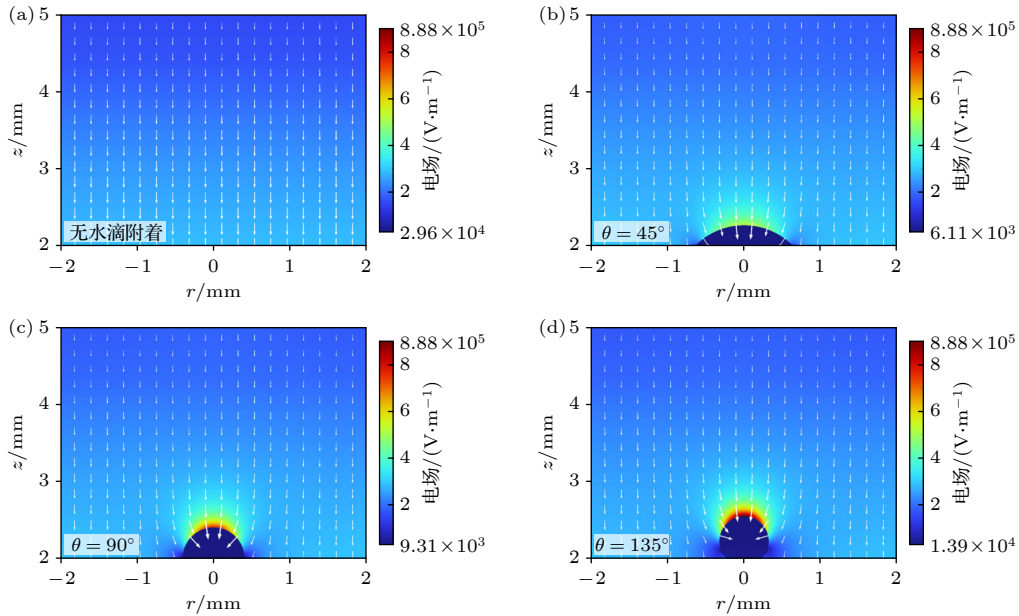


图 12  $t_3$  时刻各情况中水滴周围区域电场空间分布

Fig. 12. Spatial distributions of the electric field around water droplets in various situations at  $t_3$ .

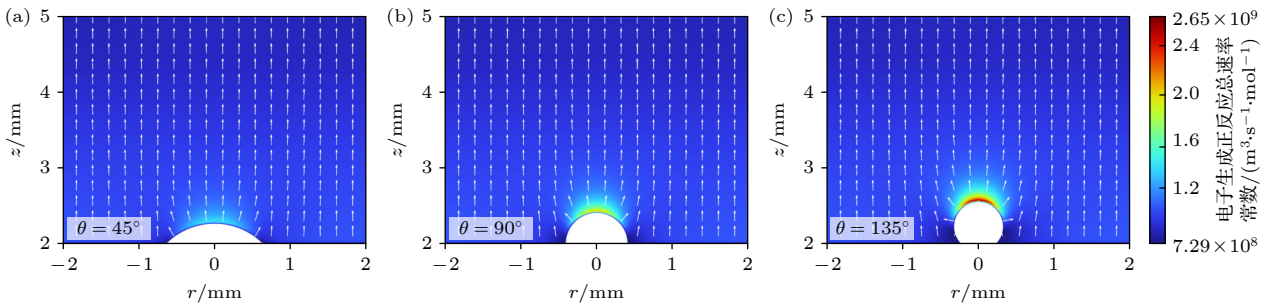


图 13  $t_3$  时刻情况 B, C, D 中水滴周围电子生成总反应速率常数空间分布, 长度归一化的白色箭头表示空间电子通量分布

Fig. 13. Spatial distributions of total reaction rate constants for electron generation around water droplets in situation B, C, and D at  $t_3$ , the length normalized white arrow represents the spatial electron flux distribution.

滴表面的二次电子发射 (图 14 可以佐证,  $r$  代表从水滴表面中心到边缘的归一化长度, 我们主要关注  $r \leq 0.5$  的部分, 根据图 13 展示的空间电子通量分布, 此区域发射的二次电子更有可能来到水滴正上方), 在汤森放电向辉光放电的过渡阶段成功补充了原本缺失的种子电子, 而情况 B 中极化电场较弱, 导致水滴上方辉光放电发育中止.

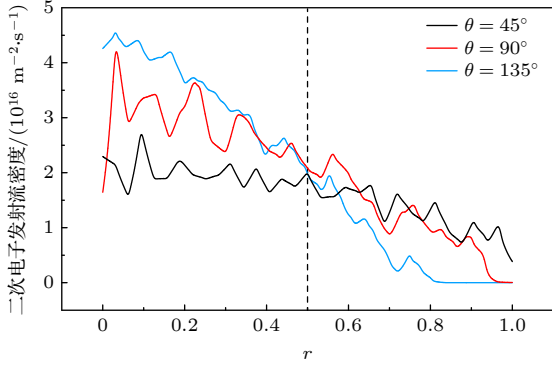


图 14  $t_3$  时刻情况 B, C, D 中水滴表面二次电子发射流密度空间分布  
Fig. 14. Spatial distributions of the secondary electron emission flux density on the surface of water droplets in situation B, C, and D at  $t_3$ .

### 3.3.2 双极性扩散与环形放电抑制区

为了验证极化电场对主正击穿的促进作用是否也能适用于主负击穿, 将情况 A 中第 1 放电周期主负击穿时刻附近的  $I$ ,  $V_a$  与  $V_g$  曲线展示于

图 10(b) 中以展开分析, 图中标注出两个时刻  $t_5$  和  $t_6$ . 各情况之间第 1 放电周期主负击穿的发展速度存在差异,  $t_5$  和  $t_6$  对应的具体时刻不同, 但表征的放电发展阶段是一样的:  $t_5$  时刻气隙中汤森放电开始向辉光放电过渡 (判据为  $\log_{10}(n_e)$  最大值升至 15 左右<sup>[49]</sup>),  $t_6$  时刻主负击穿发生. 图 15 展示了四种情况中  $t_5$  与  $t_6$  时刻的 DBD 放电结构, 情况 A 中, 辉光放电由同一位置的汤森放电发展而来,  $n_e$  最大值提升 3 个数量级以上, 气隙中出现 4 处主击穿区域; 情况 B, C, D 中汤森放电只发展于水滴周围区域, 而到  $t_6$  时刻在  $6 \text{ mm} \leq |r| \leq 10 \text{ mm}$  的区域产生了新的、比水滴周围区域更强的辉光放电, 水滴表面出现了  $n_e$  极低的环形放电抑制区.

为解析上述现象, 选取情况 D 作为示例进行分析, 图 16 展示了 DBD 第 1 次主负击穿时刻附近的  $I$ ,  $V_a$  与  $V_g$  曲线, 标注出  $t_5$  ( $37 \mu\text{s}$ ),  $t_{5a}$  ( $38 \mu\text{s}$ ),  $t_{5b}$  ( $38.9 \mu\text{s}$ ) 和  $t_6$  ( $41.2 \mu\text{s}$ ) 四个时刻, 图 17 展示了这些时刻对应的  $n_e$  与电场空间分布, 图 17(a4) 和图 17(b4) 中  $\log_{10}(n_e)$  与场强的最大值被标于右下角. 从上述两图中看出,  $t_5$  时刻, 极化电场存在于水滴表面, 支持着局部汤森放电;  $t_{5a}$  时刻,  $V_g$  进一步上升, 汤森放电过渡到辉光放电, 放电头部上移,  $n_e$  最大值上升两个数量级以上, 极化电场消失;  $t_{5b}$  时刻, 水滴周围区域辉光放电发展至极盛,  $I$  曲线出现小尖峰, 水滴表面电场开始偏转, 环形放电

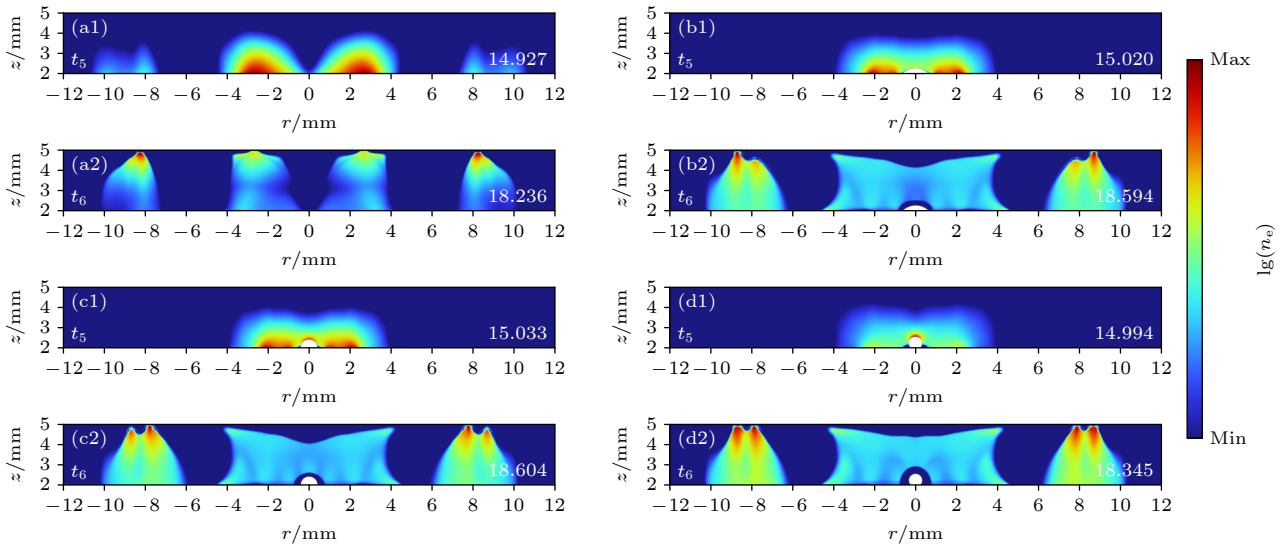


图 15  $t_5$ ,  $t_6$  时刻 DBD 的对数  $n_e$  空间分布,  $\log_{10}(n_e)$  最大值被标注在图中右下角 (a1), (a2) 情况 A; (b1), (b2) 情况 B; (c1), (c2) 情况 C; (d1), (d2) 情况 D  
Fig. 15. Spatial distributions of logarithmic  $n_e$  of DBDs at  $t_5$  and  $t_6$ , the maximum value of  $\log_{10}(n_e)$  is marked in the bottom right corner of figures: (a1), (a2) Situation A; (b1), (b2) situation B; (c1), (c2) situation C; (d1), (d2) situation D.

抑制区完全包裹水滴;  $t_6$  时刻, 主负击穿发生,  $I$  达到峰值, 水滴表面出现完全偏转向液面的局部强电场, 环形放电抑制区进一步扩大. 通过上述分析, 我们认为, 水滴表面的偏转电场不仅降低了间隙电压, 使得周围区域的辉光放电被削弱, 主负击穿被迫在其他区域产生, 还清除了其影响范围内绝大部分空间电子, 产生环形放电抑制区.

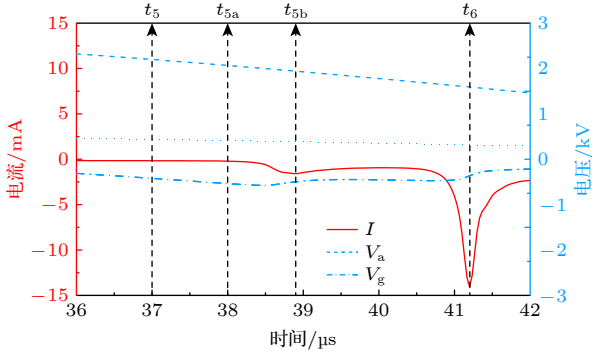


图 16 情况 D 中 DBD 的电参数曲线: 第 1 放电周期主负击穿时刻附近  
Fig. 16. Electrical parameter curves of DBDs in situation D: Near the time of main negative breakdown in the first discharge cycle.

从图 17(a3) 和图 17(b3) 中可知, 偏转电场出现于水滴被正柱区包裹后. 因具有高度电中性, 正柱区是发生等离子体双极性扩散的理想区域, 后者有两个发展阶段: 1) 由于电子热运动速度远高于离子, 其先一步逃离等离子体区; 2) 等离子体区因电荷不平衡产生正电势, 形成向外的电子阻滞电场. 当双极性扩散发生于等离子体与介质交界处时, 该位置将出现鞘层, 其内部电子数密度相较于

等离子体区低得多. 由于水滴表面的偏转电场与鞘层电子阻滞电场在形态与影响上的一致性, 可以认为, 环形放电抑制区是一种特殊的鞘层生成现象, 类似于 Meyer 等<sup>[24]</sup>所报道的悬浮液滴表面鞘层.

图 18 从侧面反映了水滴表面等离子体双极性扩散的发展过程: 阶段一开始于  $t_5$  时刻, 除了自身热运动, 电子还受到极化电场的作用向水滴表面迁移 (这是水滴表面鞘层格外宽的原因), 水滴表面平均  $n_e$  越来越高; 阶段二开始于  $38.6 \mu\text{s}$  (图 18 中曲线最大值对应时刻), 电子阻滞电场生成,  $n_e$  曲线迅速下降, 在  $t_{5b}$  时刻达到极低水平, 此时环形放电抑制区开始完整包裹水滴. 从图 15(b2), (c2), (d2) 中可以看出, 环形放电抑制区宽度与  $\theta$  呈正相关关系, 结合 3.3.1 节的结论, 这是因为  $\theta$  大的水滴在  $t_5$  时刻存在更强的表面极化电场, 双极性扩散阶段一的发展速度更快.

### 3.3.3 种子电子清除效应

在探明水滴附着如何影响 DBD 第 1 放电周期的正、负主击穿放电结构后, 为了探究正放电与负放电各自对 DBD 稳态放电结构的影响, 将四种情况中稳态正、负放电阶段的放电结构展示于图 19 中. 在 DBD 稳态正放电阶段, 从图 19(a1) 可以看出, 无水滴附着时, 气隙将被密集排列的放电柱所均匀占据, 这表明在多次正击穿中放电柱在气隙各处不断出现与消散; 图 19(b1)、图 19(c1) 和图 19(d1) 则表明, 有水滴附着时, 其上方区域很少发育放电柱. 图 19(c2) 和图 19(d2) 表明, 在 DBD 稳态负放电阶段, 3.3.2 节提到的环形放电抑制区

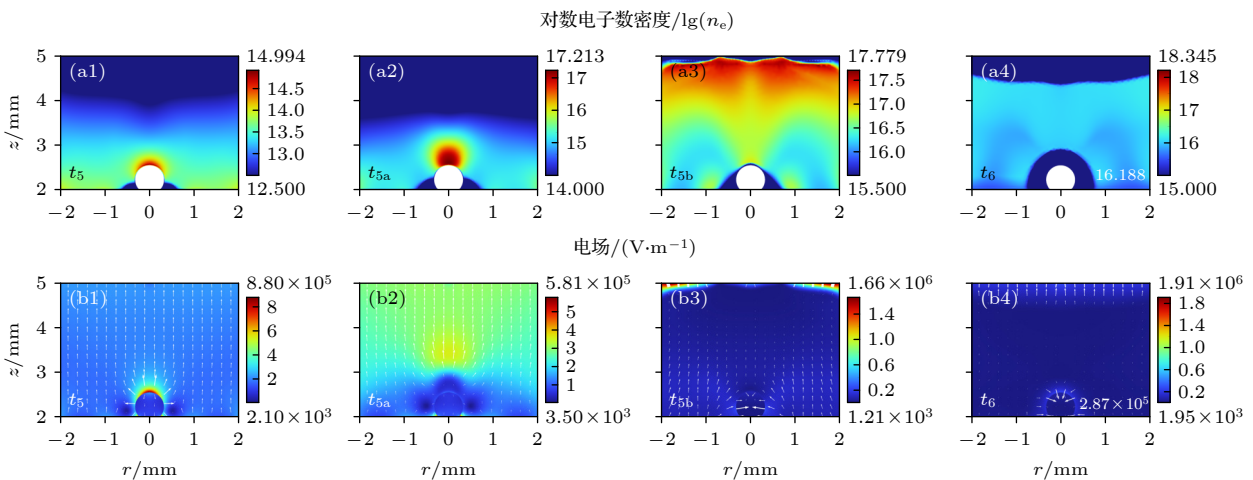


图 17 情况 D 中  $t_5$ ,  $t_{5a}$ ,  $t_{5b}$  和  $t_6$  时刻水滴周围区域对数  $n_e$  与电场空间分布

Fig. 17. Spatial distributions of logarithmic  $n_e$  and the electric field around water droplets at  $t_5$ ,  $t_{5a}$ ,  $t_{5b}$  and  $t_6$  in situation D.

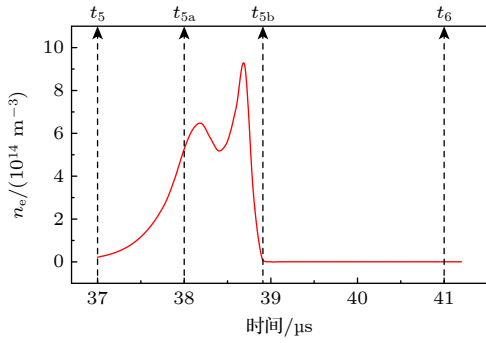


图 18 情况 D 中  $t_5$ — $t_6$  时段水滴表面平均  $n_e$

Fig. 18. Average  $n_e$  on the surface of the water droplet from  $t_5$  to  $t_6$  in situation D.

体现于情况 C 和 D 的放电结构中水滴表面环状区域  $n_e$  较低. 令人困惑的是: 图 19(c1) 和图 19(d1) 的现象与 3.3.1 节的结论相悖-极化电场对主正击穿有促进作用, 但 DBD 的稳态正放电强度却在水滴上方被抑制了.

为分析这一异常现象, 首先应确定 3.3.1 节提到的放电增强效应是否适用于所有放电周期的主正击穿. 以情况 D 为例, 将第 2—6 放电周期主正击穿时刻的 DBD 放电结构展示于图 20 中, 从图中可以看到, 水滴上方均出现了击穿通道. 既然主正击穿依然能在水滴上方发生, 那必然存在着某些放电抑制机制, 使得后续的次正击穿无法在水滴上方发育, 导致此区域稳态正放电强度被削弱. 为厘

清此机制, 我们选取情况 D 中第 6 放电周期起始的 4 次次正击穿, 将它们发生的时刻  $t_7$ — $t_{10}$  标注在图 7(d) 中, 并分别将这些时刻沿图 8(d) 中白色虚线 ( $z = 2.8$  mm,  $0$  mm  $\leq r \leq 10$  mm) 分布的  $n_e$  绘制于图 21 中. 从图 21 可以看到, 除了水滴上方 (设定此区域范围为  $r \leq 0.5$  mm) 的其他区域在连续的次正击穿中都有机会发育出放电柱, 这可能是由于在次正放电阶段水滴上方区域场强过低或种子电子过少.

为验证上述猜想, 将水滴周围  $t_7$ — $t_{10}$  时段的时均电势与场强空间分布展示于图 22 中, 图 22(a) 展现了水滴在此阶段的极化情况: 其强介电性导致内部等电位线分布稀疏, 外部等电位线被压缩至其上表面, 导致如图 22(b) 所示的局部场强升高, 这表明极化电场在次正放电阶段仍然存在, 场强过低不是放电抑制机制的产生原因. 从图 22(a) 展示的时均径向电场分布 (用归一化长度的洋红色箭头表示) 来看, 主正击穿后残余在水滴上表面附近的种子电子会持续向外迁移, 很难保存下来用以触发次级放电. 与其他区域有所不同, 这里的电场畸变是由水滴本身的介电性决定的, 在次正放电阶段长期存在, 这就解释了为什么 4 次次正击穿都无法在水滴上方发育. 由于  $\theta$  更大的水滴表面极化电场更强, 种子电子被清除得更彻底, 因此在次正放电阶段其上方的放电抑制现象更明显.

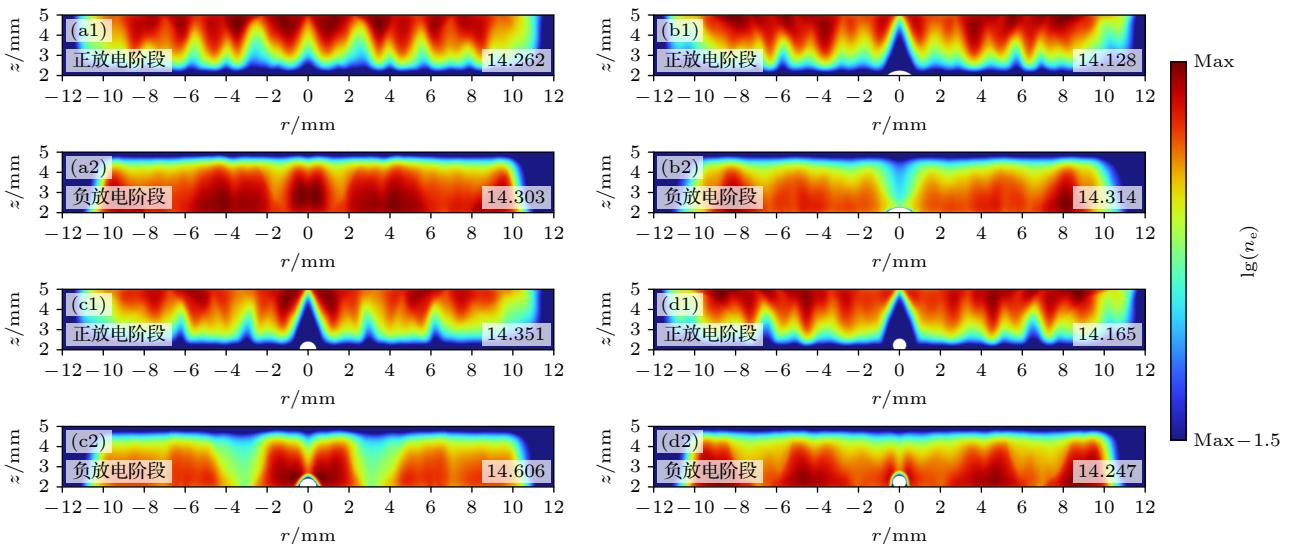


图 19 DBD 的稳态正、负放电阶段时均对数  $n_e$  空间分布,  $\log_{10}(n_e)$  最大值被标注在图中右下角 (a1), (a2) 情况 A; (b1), (b2) 情况 B; (c1), (c2) 情况 C; (d1), (d2) 情况 D

Fig. 19. Spatial distributions of time-averaged logarithmic  $n_e$  during the steady-state positive and negative discharge phases of DBDs, the maximum value of  $\log_{10}(n_e)$  is marked in the bottom right corner of figures: (a1), (a2) Situation A; (b1), (b2) situation B; (c1), (c2) situation C; (d1), (d2) situation D.

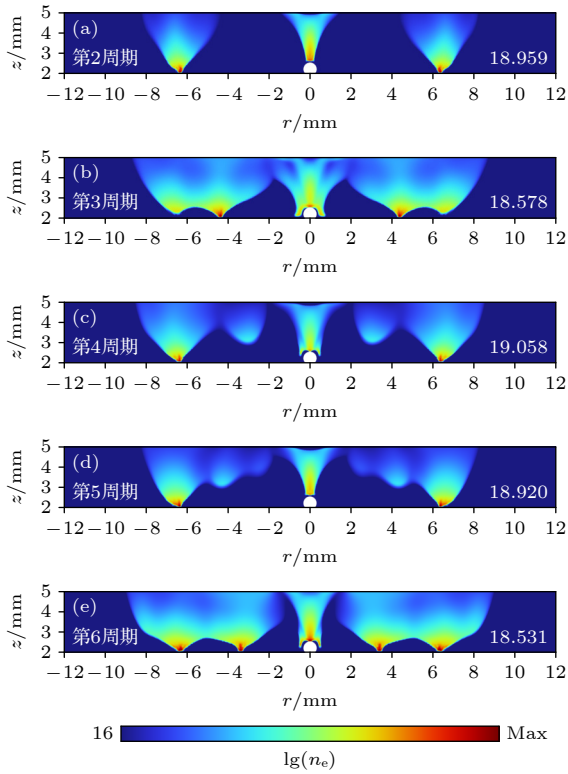


图 20 情况 D 中第 2—6 放电周期主正击穿时刻对数  $n_e$  空间分布,  $\log_{10}(n_e)$  最大值被标注在图中右下角

Fig. 20. Spatial distributions of logarithmic  $n_e$  at the time of main positive breakdown during the 2<sup>nd</sup> to 6<sup>th</sup> discharge cycles in situation D, the maximum value of  $\log_{10}(n_e)$  is marked in the bottom right corner of figures.

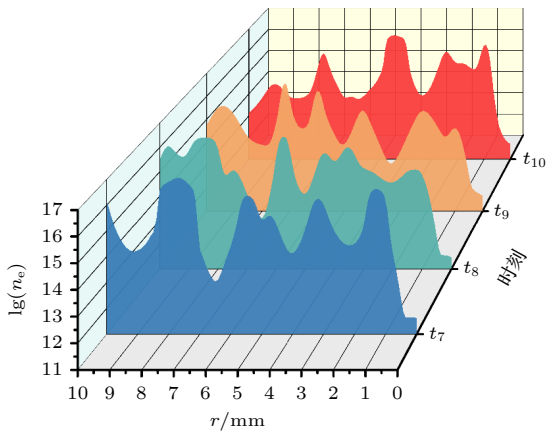


图 21 情况 D 中  $t_7$ — $t_{10}$  时段径向对数  $n_e$  空间分布

Fig. 21. Radial spatial distributions of logarithmic  $n_e$  from  $t_7$  to  $t_{10}$  in situation D.

### 3.4 水滴附着对活性粒子分布的影响

在 DBD 中产生的各类活性粒子, 例如活性氧物质 (reactive oxygen species, ROS)(O, O<sub>2</sub><sup>-</sup>, O<sub>3</sub> 等)、活性氮物质 (reactive nitrogen species, RNS)(N, N<sub>2</sub><sup>+</sup>, NO<sub>2</sub> 等)、由惰性气体参与反应的产物

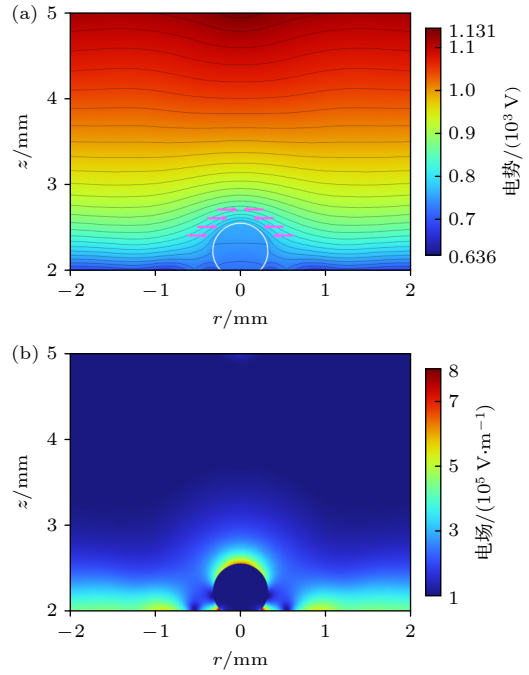


图 22 情况 D 中  $t_7$ — $t_{10}$  时段时均电势与时均场强空间分布

Fig. 22. Spatial distributions of time-averaged potential and time-averaged electric field strength from  $t_7$  to  $t_{10}$  in situation D.

(He<sup>+</sup>, He\* (激发态氦原子) 等) 与水解产物 (OH, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 等), 已被证明可以有效杀灭致病菌或降解有害化学物质 [50-52]. 活性粒子的分布均匀性与总沉积量是评价等离子体应用效果的关键指标, 通常, 活性粒子分布越均匀、总沉积量越大, 其应用效果越显著 [52,53].

由于活性粒子只有在电子碰撞反应或含有电子碰撞反应产物的反应中才能生成, 因此对  $n_e$  分布的研究不可忽视. 图 23(a) 展示了不同情况中待处理物表面的稳态时均  $n_e$  分布, 可以看到, 在情况 A 中, 电子于待处理物表面中心区域密集沉积,  $n_e$  局部峰值出现在  $r = 5.8$  mm 与  $r = 8.1$  mm 处; 情况 B 中  $n_e$  局部峰值处于  $r = 0.8$  mm,  $r = 2.7$  mm,  $r = 7.3$  mm; 情况 C 中  $n_e$  局部峰值处于  $r = 0.8$  mm,  $r = 1.7$  mm,  $r = 6.2$  mm; 情况 D 中  $n_e$  局部峰值处于  $r = 0.6$  mm,  $r = 3.4$  mm,  $r = 4.4$  mm,  $r = 6.3$  mm. 图 23(b) 展示了情况 B, C 和 D 中水滴表面稳态时均  $n_e$  分布,  $r$  代表从水滴表面中心到边缘的归一化弧长, 可以看到,  $\theta$  不同的水滴表面  $n_e$  分布都呈现从中心向边缘减少的趋势, 情况 B 中  $n_e$  峰值为  $17.19 \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$ , 明显低于情况 C, D 的  $3.80 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$  与  $4.62 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ .

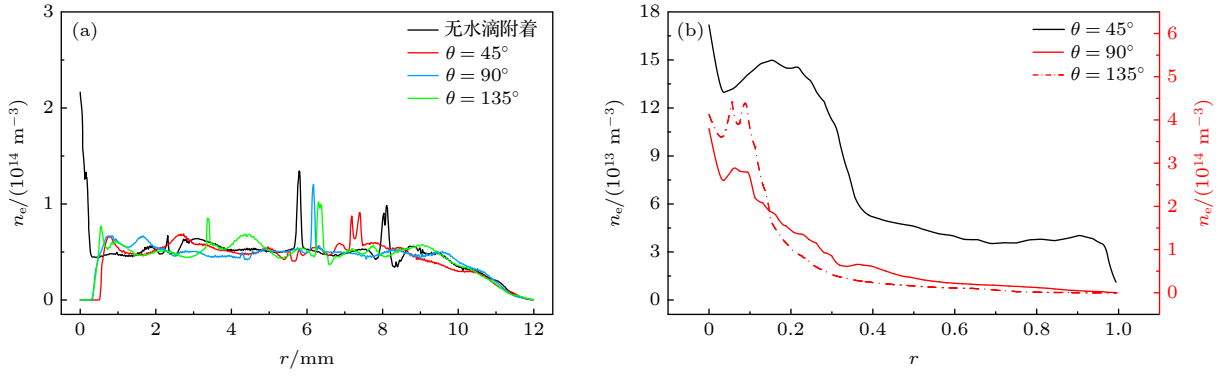

 图 23 各情况中稳态时均  $n_e$  空间分布 (a) 待处理物表面; (b) 水滴表面

 Fig. 23. Spatial distributions of steady-state time-averaged  $n_e$  on the surface of (a) specimens to be treated and (b) water droplets in various situations.

我们选取  $\text{He}^+$ , OH, O 和 N 来研究 DBD 的活性粒子分布, 它们分别代表惰性气体参与反应的产物、水解产物、ROS 和 RNS. 图 24(a)–(d) 展示了在四种情况中, 这四种活性粒子在待处理物表面的稳态时均数密度分布, 通过比较图 24(a) 与图 23(a) 可以看出, 电子与  $\text{He}^+$  的密集沉积位置基本一致, 这是由于  $\text{He}^+$  是电子碰撞反应的直接产物, 其生成量与  $n_e$  正相关, 导致这两种粒子呈现出协同分布的关系. 另外, 从图 24(a) 与图 24(b), (c), (d) 的比较中可以看出, 相比于其他三类活性粒子,  $\text{He}^+$  的分布极不均匀, 其数密度峰值与谷值相差 3–4 个数量级. 根据图 24(e) 可知, 迁移作用在  $\text{He}^+$  向待处理物表面沉积过程中的重要性比扩散作用大得多, 这是由于  $\text{He}^+$  作为带电粒子, 在强电场的作用下会快速运动到局部低电势区而来不及扩散至低浓度区, 这正是其分布极不均匀的原因.

如图 24(b) 所示, OH 数密度分布在四种情况中都大致呈现出从中心向边缘递减的趋势, 这种趋势在情况 B, C 和 D 中尤其明显, 这是因为 OH 是水解的直接或间接产物, 而水滴的存在使附近气相空间的水蒸气摩尔密度在放电起始时高于其他区域, 这也解释了为什么情况 A 中绝大部分位置的 OH 沉积量都不及有水滴附着时的情况. 图 24(f) 可佐证图 24(b) 的结果: 待处理物表面 OH 净生成速率较高的区域与其密集沉积区域高度重合, 在情况 B, C 和 D 中 OH 在水滴附近区域大量地生成. 电子与 OH 也有着协同分布关系, 两处现象可佐证: 一是在情况 A 中, 放电起始时水蒸气在空间中均匀分布, 此时电子集中分布的待处理物表面中心区域沉积了最多的 OH; 二是在所有情况中, 电子

局部集中区域 ( $5 \text{ mm} \leq r \leq 8 \text{ mm}$ ) 上的 OH 数密度曲线都出现了局部高峰.

最后, 我们同时分析 O 与 N 在待处理物表面的分布情况, 这既是考虑到它们都是空气参与电子碰撞反应的直接或间接产物, 也是因为从图 24(c), (d) 中得知, 两者的分布曲线基本一致: 在四种情况中都形似起伏的波浪, 在电子局部集中区域 ( $5 \text{ mm} \leq r \leq 8 \text{ mm}$ ) 都出现了局部高峰. 在情况 A, B 和 D 中, O 与 N 的分布沿径向向外大体呈现先减小后增加再减小的趋势, 在情况 C 中则是先增加后减小. 另外, N 明显比 O 分布得更不均匀, 整体沉积密度也更低, 这是  $\text{O}_2$  比  $\text{N}_2$  的键能更小导致的<sup>[54]</sup>: 电子不需要太多的能量就能解离  $\text{O}_2$ , 而 N 需要在平均电子能量更高的区域才能形成.

为了清楚比较各种活性粒子在待处理物表面的总沉积量差异, 将图 24 中 16 条活性粒子数密度曲线的平均值标于图 25(a) 中. 对于  $\text{He}^+$  来说,  $\theta$  较小的水滴附着时其在待处理物表面的平均沉积密度略微下降, 但随着水滴  $\theta$  逐渐增大, 该值也随之提高, 最终反超无水滴附着时的情况; 对于 OH 来说, 水滴附着显著增加了其平均沉积密度; 对于 O 与 N 来说, 水滴的存在抑制了它们在待处理物表面的沉积, 这是由于 O 与 N 的生成原料-空气的摩尔浓度与水滴蒸发过程无关, O 与 N 的生成量只受放电强度的影响, 其在有水滴附着时是被局部削弱的.

图 26 展示了情况 B, C 和 D 中水滴表面四种活性粒子的稳态时均数密度分布, 不难看出,  $\theta$  不同的水滴表面沉积的活性粒子都大体呈现从液面

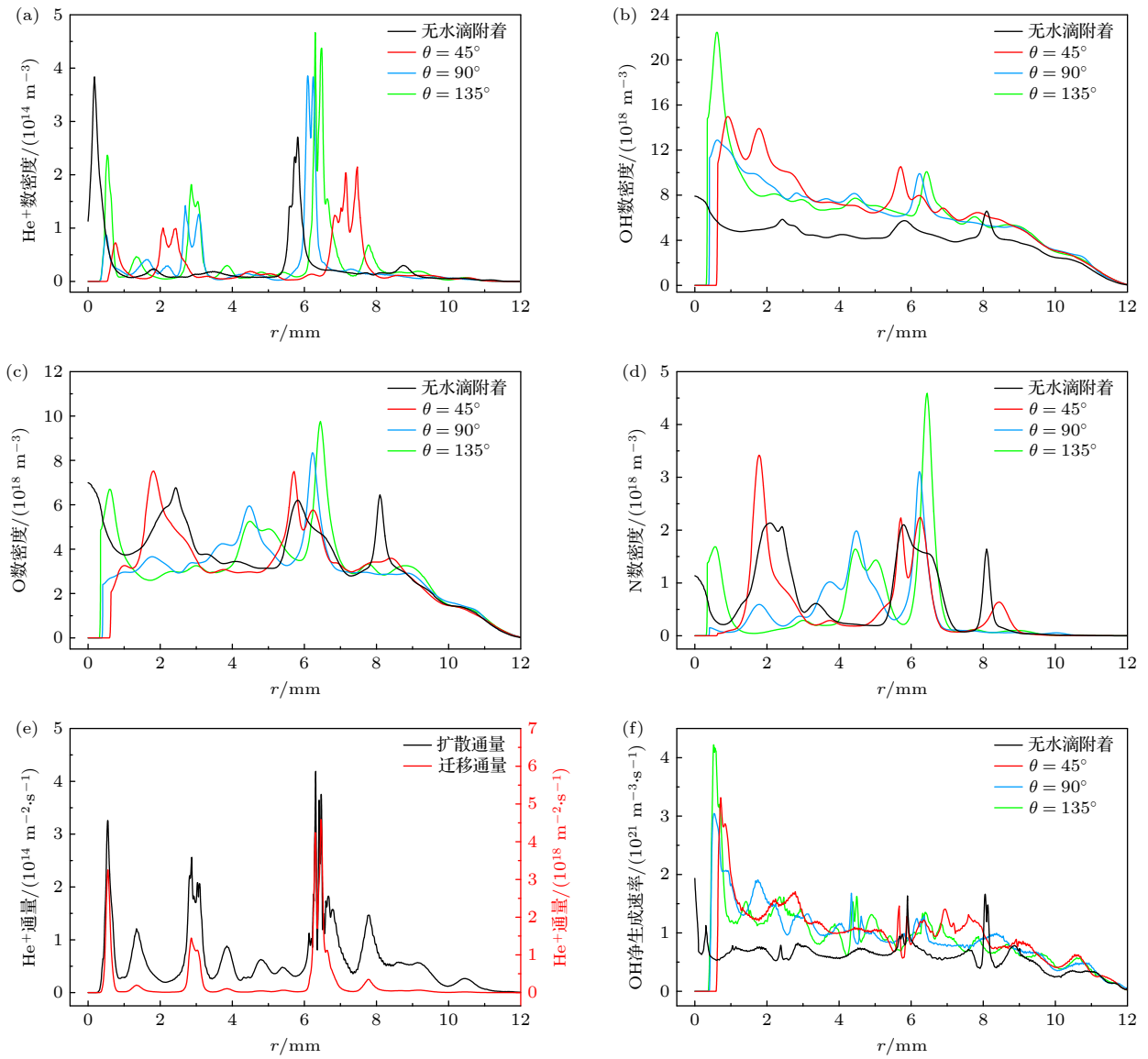


图 24 待处理物表面稳态时均数据的空间分布 (a)—(d) 各情况中活性粒子的数密度; (e) 情况 D 中 He<sup>+</sup> 的通量; (f) 各情况中 OH 的净生成速率

Fig. 24. Spatial distributions of steady-state time-averaged data on the surface of specimens to be treated: (a)–(d) Active particle number density in various situations; (e) He<sup>+</sup> flux in situation D; (f) net generation rate of OH in various situations.

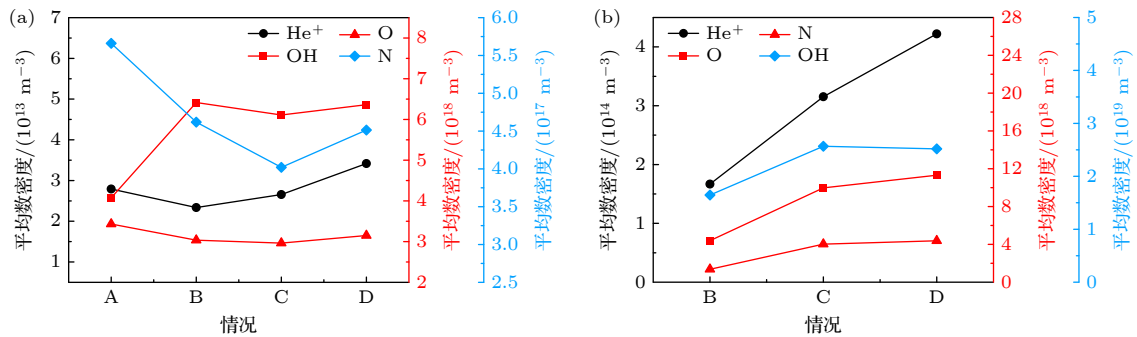


图 25 各情况中活性粒子稳态时均数密度的平均值 (a) 待处理物表面; (b) 水滴表面

Fig. 25. Average values of steady-state time-averaged active particle number density on the surface of (a) specimens to be treated and (b) water droplets in various situations.

中心向边缘逐渐减少的趋势,这与图 23(b)中  $n_e$  的分布规律是一致的,说明在水滴表面电子与活性粒子的协同分布关系依然存在.水滴表面活性粒子的总沉积量体现在图 25(b)中,情况 C 与情况 B 相比,四种活性粒子的平均沉积密度都大幅提高;而情况 D 与情况 C 对比时,活性粒子之间出现了差异: O, N 和 OH 的平均沉积密度变化幅度很小,而  $\text{He}^+$  却继续增加,这是因为  $\theta$  由  $90^\circ$  变为  $135^\circ$  后,水滴表面电子总沉积量并无明显变化(从图 23(b)中可以看出情况 C 和 D 的  $n_e$  分布曲线大致重合),协同分布在 O, N 和 OH 向水滴表面沉积的过程中仍然起主导作用;而对于  $\text{He}^+$  来说,因为  $\theta$  更大的水滴表面极化电场更强,在  $\text{He}^+$  整体向气隙下表面迁移的正放电阶段对其有更强的聚集作用.

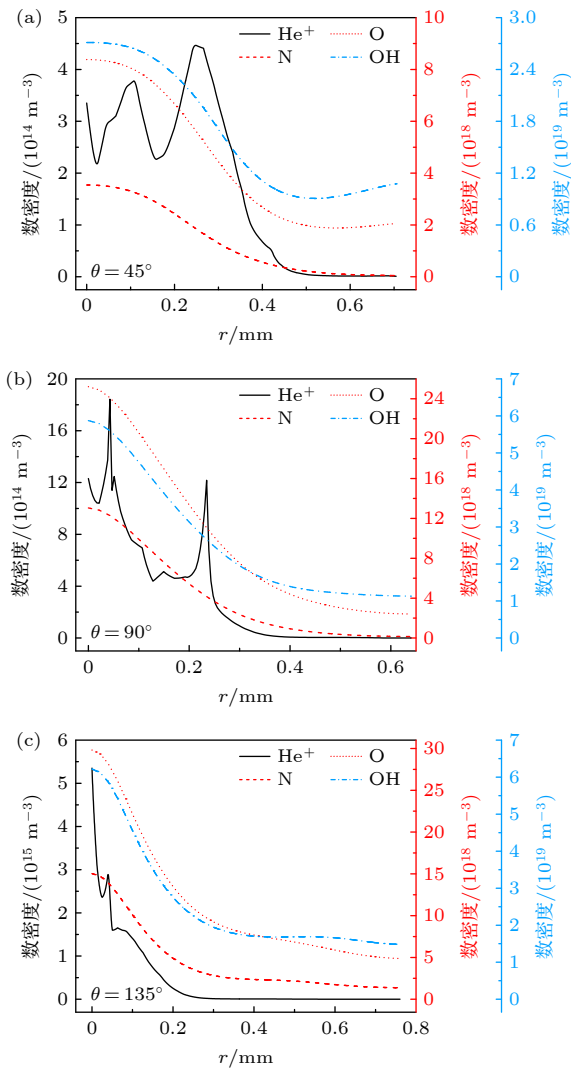


图 26  $\theta$  不同的水滴表面活性粒子稳态时均数密度空间分布  
Fig. 26. Spatial distributions of steady-state time-averaged active particle number density on the surface of water droplets with different  $\theta$ .

## 4 结 论

本文建立了具有  $\text{He-O}_2\text{-N}_2\text{-H}_2\text{O}$  化学反应体系的二维轴对称 DBD 仿真模型,用以探究  $\theta$  为  $45^\circ$ ,  $90^\circ$  和  $135^\circ$  的水滴附着于待处理物表面时, DBD 放电特性与化学分布受到的影响及背后机制.研究发现,在 DBD 的稳态阶段,水滴附着削弱了其表面与上方区域的放电强度,  $\theta = 135^\circ$  时削弱最为显著.水滴附着对 DBD 放电结构演化的影响主要体现在下述三个方面: 1) 在 DBD 的主正击穿中,  $\theta$  更大的水滴表面能产生更强的极化电场,同时引导水滴上方区域产生更强的辉光放电; 2) 在负击穿中,辉光放电正柱区与水滴交界处会发生强烈的双极性扩散现象,引发局部电场向水滴表面偏转,产生随  $\theta$  增大而变宽的环形放电抑制区,这是因为水滴表面的极化电场加速了电子逃逸进程; 3) 在次正放电阶段,因水滴极化产生的径向电场会持续清除种子电子,使得次正击穿无法在水滴上方发生,削弱了该区域的整体正放电强度.后两个影响是造成 DBD 稳态放电强度被局部削弱的主要原因.

在化学分布部分,研究了稳态阶段电子与活性粒子  $\text{He}^+$ , OH, O 和 N 的时均沉积密度与沉积均匀性.在待处理物表面,无水滴附着时电子密集沉积于中心区域,各种活性粒子与电子都存在着协同分布关系,其中 OH 作为水解产物在有水滴附着时总沉积量更大且密集分布于水滴周围;  $\text{He}^+$  作为带电粒子因受到电场作用分布得极不均匀;因  $\text{O}_2$  比  $\text{N}_2$  键能更小, O 比 N 分布得更均匀且总沉积量更大,水滴附着导致的局部放电削弱作用会减少它们的总沉积量.在水滴表面,活性粒子与电子的沉积密度呈现出从液面中心向边缘逐渐减小的趋势,其中 OH, O 和 N 与电子的总沉积量严格遵循协同分布关系,而  $\text{He}^+$  还受到水滴表面极化电场的聚集作用,其总沉积量随  $\theta$  增大而不断增大.这项工作为理解 DBD-附着型水滴系统中发生的电学与化学过程提供了独到见解,为相关大气压低温等离子体应用实践积累了理论经验.

## 附录 A

等离子体化学反应体系以及不同径向尺寸下仿真结果的对比见表 A1 和图 A1.

表 A1 等离子体化学反应体系  
Table A1. Chemical reaction system of plasma.

序号	反应式	速率系数	焓变/eV	参考文献
1	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}$	$f(c, \varepsilon)$	—	[43]
2	$e + \text{He} \rightarrow e + \text{He}^*$	$f(c, \varepsilon)$	19.82	[43]
3	$e + \text{He}^* \rightarrow e + \text{He}$	$2.9 \times 10^{-15}$	-19.82	[43]
4	$e + \text{He} \rightarrow 2e + \text{He}^+$	$f(c, \varepsilon)$	24.58	[43]
5	$e + \text{He}^* \rightarrow 2e + \text{He}^+$	$4.661 \times 10^{-16} \times T_e^{0.6} \times \exp(-4.78/T_e)$	4.78	[43]
6	$e + \text{He}_2^+ \rightarrow 2e + \text{He}_2^+$	$1.268 \times 10^{-18} \times T_e^{0.71} \times \exp(-3.4/T_e)$	3.4	[43]
7	$e + \text{He}_2^+ \rightarrow \text{He}^* + \text{He}$	$5.386 \times 10^{-13} \times T_e^{-0.5}$	—	[10]
8	$e + \text{He}^+ \rightarrow \text{He}^*$	$6.76 \times 10^{-19} \times T_e^{-0.5}$	—	[10]
9	$2e + \text{He}^+ \rightarrow e + \text{He}^*$	$6.186 \times 10^{-39} \times T_e^{-4.4}$	—	[10]
10	$e + \text{He} + \text{He}^+ \rightarrow \text{He} + \text{He}^*$	$6.66 \times 10^{-42} \times T_e^{-2}$	—	[10]
11	$2e + \text{He}_2^+ \rightarrow \text{He}_2^* + e$	$1.2 \times 10^{-33}$	—	[10]
12	$e + \text{He} + \text{He}_2^+ \rightarrow \text{He}_2^* + \text{He}$	$1.5 \times 10^{-39}$	—	[10]
13	$e + \text{He} + \text{He}_2^+ \rightarrow \text{He}^* + 2\text{He}$	$3.5 \times 10^{-39}$	—	[10]
14	$2e + \text{He}_2^+ \rightarrow \text{He}^* + \text{He} + e$	$2.8 \times 10^{-32}$	—	[10]
15	$e + \text{N}_2 \rightarrow e + \text{N}_2$	$f(c, \varepsilon)$	—	[43]
16	$e + \text{N}_2 \rightarrow e + \text{N}_2 (v = 1)$	$f(c, \varepsilon)$	0.29	[55]
17	$e + \text{N}_2 \rightarrow e + \text{N}_2 (v = 2)$	$f(c, \varepsilon)$	0.59	[55]
18	$e + \text{N}_2 \rightarrow e + \text{N}_2 (v = 3)$	$f(c, \varepsilon)$	0.856	[10]
19	$e + \text{N}_2 \rightarrow e + \text{N}_2 (v = 4)$	$f(c, \varepsilon)$	1.134	[10]
20	$e + \text{N}_2 \rightarrow e + \text{N}_2 (v = 5)$	$f(c, \varepsilon)$	1.4088	[43]
21	$e + \text{N}_2 \rightarrow 2e + \text{N}_2^+$	$f(c, \varepsilon)$	15.6	[55]
22	$e + \text{N}_4^+ \rightarrow 2\text{N}_2$	$3.18 \times 10^{-13} \times T_e^{-0.5}$	—	[10]
23	$e + \text{N}_2^+ \rightarrow 2\text{N}$	$4.8 \times 10^{-13} \times T_e^{-0.5}$	—	[10]
24	$e + \text{N}_2^+ \rightarrow \text{N}_2$	$7.72 \times 10^{-14} \times T_e^{-0.5}$	—	[10]
25	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2$	$f(c, \varepsilon)$	—	[55]
26	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}^-$	$f(c, \varepsilon)$	—	[55]
27	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2 (v = 3)$	$f(c, \varepsilon)$	0.57	[55]
28	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2 (v = 4)$	$f(c, \varepsilon)$	0.75	[55]
29	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2 (\text{a1})$	$f(c, \varepsilon)$	0.977	[55]
30	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2$	$f(c, \varepsilon)$	-0.977	[10]
31	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2 (\text{b1})$	$f(c, \varepsilon)$	1.627	[55]
32	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2$	$f(c, \varepsilon)$	-1.627	[10]
33	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2 (\text{EXC})$	$f(c, \varepsilon)$	4.5	[55]
34	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^-$	$f(c, \varepsilon)$	—	[43]
35	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O} + \text{O}$	$f(c, \varepsilon)$	5.58	[10]
36	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O} + \text{O} (^1\text{D})$	$f(c, \varepsilon)$	8.4	[10]
37	$e + \text{O}_2 \rightarrow 2e + \text{O}_2^+$	$f(c, \varepsilon)$	12.06	[55]
38	$e + 2\text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2^-$	$5.17 \times 10^{-43} \times T_e^{-1}$	-0.43	[43]
39	$e + \text{O}_2^+ \rightarrow 2\text{O}$	$6 \times 10^{-11} \times T_e^{-1}$	-6.91	[43]
40	$e + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O}_2$	$4 \times 10^{-18}$	—	[43]
41	$e + \text{O}_4^+ \rightarrow 2\text{O}_2$	$2.25 \times 10^{-13} \times T_e^{-0.5}$	—	[10]
42	$e + \text{H}_2\text{O} \rightarrow e + \text{H}_2\text{O}$	$f(c, \varepsilon)$	—	[10]
43	$e + \text{H}_2\text{O} \rightarrow e + e + \text{H}_2\text{O}^+$	$f(c, \varepsilon)$	13.76	[10]
44	$e + \text{H}_2\text{O} \rightarrow e + \text{H} + \text{OH}$	$f(c, \varepsilon)$	7	[10]
45	$e + \text{H} + \text{OH} \rightarrow e + \text{H}_2\text{O}$	$f(c, \varepsilon)$	-7	[10]
46	$e + \text{H}_2\text{O}^+ \rightarrow \text{OH} + \text{H}$	$6.6 \times 10^{-12} \times T_e^{-0.5}$	—	[10]
47	$\text{He}^* + \text{He}^* \rightarrow e + \text{He} + \text{He}^+$	$4.5 \times 10^{-16}$	-15	[10]
48	$\text{He}^* + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^* + \text{He}$	$1.3 \times 10^{-45}$	—	[10]
49	$\text{He}^+ + 2\text{He} \rightarrow \text{He}_2^+ + \text{He}$	$1 \times 10^{-43}$	—	[10]

表 A1 (续) 等离子体化学反应体系  
Table A1 (continued). Chemical reaction system of plasma.

序号	反应式	速率系数	焓变/eV	参考文献
50	$O^- + O_2^+ \rightarrow O + O_2$	$2 \times 10^{-13}$	—	[10]
51	$O_2^- + O_2^+ \rightarrow 2O_2$	$2 \times 10^{-13}$	—	[10]
52	$O_2^- + O_2^+ + O_2 \rightarrow 3O_2$	$2 \times 10^{-37}$	—	[10]
53	$O_2^- + O_4^+ + O_2 \rightarrow 4O_2$	$2 \times 10^{-37}$	—	[10]
54	$O_2 + O_2 + O_2^+ \rightarrow O_2 + O_4^+$	$2.4 \times 10^{-42}$	—	[10]
55	$He^* + N_2 \rightarrow e + N_2^+ + He$	$7 \times 10^{-17}$	—	[10]
56	$He_2^* + N_2 \rightarrow e + N_2^+ + 2He$	$7 \times 10^{-17}$	—	[10]
57	$He_2^* + O_2 \rightarrow e + O_2^+ + 2He$	$3.6 \times 10^{-16}$	—	[10]
58	$He^* + O_2 \rightarrow e + O_2^+ + He$	$2.6 \times 10^{-16}$	—	[10]
59	$He_2^+ + N_2 \rightarrow N_2^+ + 2He$	$5 \times 10^{-16}$	—	[10]
60	$He^+ + N_2 \rightarrow N_2^+ + He$	$5 \times 10^{-16}$	—	[10]
61	$He + N_2 + N_2^+ \rightarrow He + N_4^+$	$8.9 \times 10^{-42}$	—	[10]
62	$He + O_2 + O_2^+ \rightarrow He + O_4^+$	$5.8 \times 10^{-43}$	—	[10]
63	$O + O + N \rightarrow O_2 + N$	$3.2 \times 10^{-45}$	—	[10]
64	$O_2 + N + N \rightarrow O_2 + N_2$	$3.9 \times 10^{-45}$	—	[10]
65	$O_2 + N_4^+ \rightarrow 2N_2 + O_2^+$	$2.5 \times 10^{-16}$	—	[43]
66	$N_2 + O_2 + N_2^+ \rightarrow O_2 + N_4^+$	$5 \times 10^{-41}$	—	[10]
67	$O_2^- + O_4^+ + N_2 \rightarrow 3O_2 + N_2$	$2 \times 10^{-37}$	—	[10]
68	$O_2^- + O_2^+ + N_2 \rightarrow 2O_2 + N_2$	$2 \times 10^{-37}$	—	[10]
69	$O_2^- + O_2^+ + He \rightarrow 2O_2 + He$	$2 \times 10^{-37}$	—	[10]
70	$He + O + H \rightarrow He + OH$	$3.2 \times 10^{-45} \times T^{-1}$	—	[10]
71	$O + 2O_2 \rightarrow O_3 + O_2$	$6 \times 10^{-46} \times (T/300)^{-2.8}$	—	[56]
72	$2O + O_2 \rightarrow O_3 + O$	$3.4 \times 10^{-46} \times (T/300)^{-1.2}$	—	[56]
73	$O + O_2 + N_2 \rightarrow N_2 + O_3$	$1.1 \times 10^{-46} \times \exp(510/T)$	—	[56]
74	$O + O_2 + He \rightarrow He + O_3$	$3.4 \times 10^{-46} \times (T/300)^{-1.2}$	—	[56]
75	$O_3 + O \rightarrow 2O_2$	$8 \times 10^{-18} \times \exp(-2060/T)$	—	[56]
76	$2O_3 \rightarrow O + O_2 + O_3$	$1.6 \times 10^{-15} \times \exp(-11400/T)$	—	[56]
77	$O_3 + N_2 \rightarrow O + O_2 + N_2$	$1.6 \times 10^{-15} \times \exp(-11400/T)$	—	[56]
78	$He + O_3 \rightarrow He + O + O_2$	$1.56 \times 10^{-15} \times \exp(-11400/T)$	—	[56]

注:  $f(c, e)$ 代表该反应的速率系数是使用碰撞截面与电子能的函数和电子能量分布函数计算得到的;  $T_e$  为电子温度, 单位为 eV;  $He^*$  代表  $He(2^3S)$  和  $He(2^1S)$ ;  $He_2^*$  代表  $He_2(a^3\Sigma_u^+)$ ;  $N_2$  代表  $N_2(v=1)$ ,  $N_2(v=2)$ ,  $N_2(v=3)$ ,  $N_2(v=4)$  和  $N_2(v=5)$ ;  $O_2$  代表  $O_2(v=3)$ ,  $O_2(v=4)$ ,  $O_2(a1)$ ,  $O_2(b1)$  和  $O_2(EXC)$ ;  $O$  代表  $O(^1D)$ ; 双体和三体反应的速率系数单位分别为  $m^3 \cdot s^{-1}$  和  $m^6 \cdot s^{-1}$  [10,43].

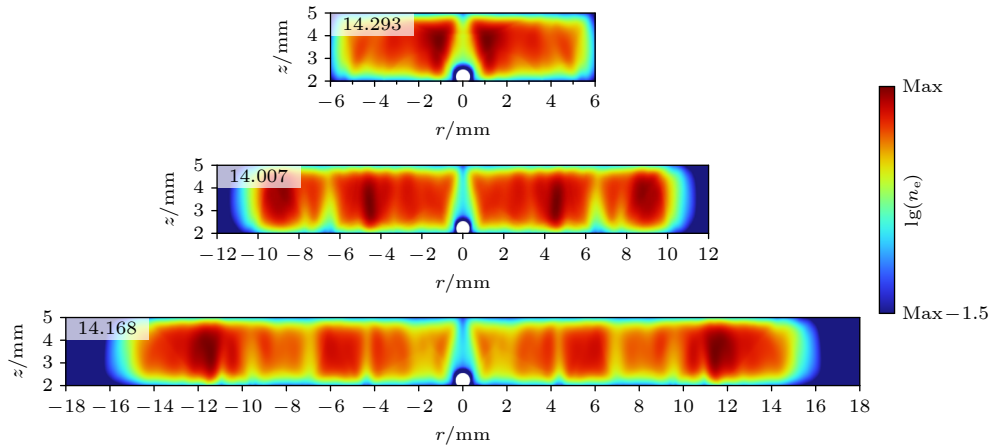


图 A1 在模型径向尺寸缩小比例不同的情况下, 情况 D 中 DBD 的稳态放电结构,  $\log_{10}(n_e)$  最大值被标注在图中左上角  
Fig. A1. The steady-state discharge structure of DBDs in situation D under different radial size reduction ratios of the model, the maximum value of  $\log_{10}(n_e)$  is marked in the upper left corner of figures.

## 参考文献

- [1] Zhang S, Oehrlein G S 2021 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54** 213001
- [2] Chen Z T, Chen G J, Obenchain R, Zhang R, Bai F, Fang T X, Wang H W, Lu Y J, Wirz R E, Gu Z 2022 *Mater. Today* **54** 153
- [3] Poggemann H-F, Schüttler S, Schöne A L, Jeß E, Schütcke L, Jacob T, Gibson A R, Golda J, Jung C 2025 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **58** 135208
- [4] Zhou B S, Zhao H G, Yang X, Cheng J-H 2024 *Food Res. Int.* **196** 115117
- [5] Woedtke T, Laroussi M, Gherardi M 2022 *Plasma Sources Sci. Technol.* **31** 054002
- [6] Moldgy A, Nayak G, Aboubakr H A, Goyal S M, Bruggeman P J 2020 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 434004
- [7] Konchekov E M, Gusein-zade N, Burmistrov D E, Kolik L V, Dorokhov A S, Izmailov A Y, Shokri B, Gudkov S V 2023 *Int. J. Mol. Sci.* **24** 15093
- [8] Hamdan A, Diamond J, Herrmann A 2021 *J. Phys. Commun.* **5** 035005
- [9] Srivastava T, Simeni Simeni M, Nayak G, Bruggeman P J 2022 *Plasma Sources Sci. Technol.* **31** 085010
- [10] Ling Y, Dai D, Chang J X, Wang B A 2024 *Plasma Sci. Technol.* **26** 094002
- [11] Kovačević V V, Sretenović G B, Obradović B M, Kuraica M M 2022 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **55** 473002
- [12] Toth J R, Abuyazid N H, Lacks D J, Renner J N, Sankaran R M 2020 *ACS Sustainable Chem. Eng.* **8** 14845
- [13] Zhao Z G, Liu D P, Xia Y, Li G F, Niu C J, Qi Z H, Wang X, Zhao Z L 2022 *Phys. Plasmas* **29** 043507
- [14] Wang X P, Zhao D M, Tan X M, Chen Y X, Chen Z H, Xiao H 2017 *Chem. Eng. J.* **328** 708
- [15] Sebih L, Carbone E, Hamdan A 2025 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **58** 045206
- [16] Kruszelnicki J, Lietz A M, Kushner M J 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 355207
- [17] Nayak G, Oinuma G, Yue Y F, Sousa J S, Bruggeman P J 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 115003
- [18] Oinuma G, Nayak G, Du Y J, Bruggeman P J 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 095002
- [19] Samukawa S, Hori M, Rauf S, Tachibana K, Bruggeman P, Kroesen G, Whitehead J C, Murphy A B, Gutsol A F, Starikovskaia S 2012 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **45** 253001
- [20] Wang R X, Nian W F, Wu H Y, Feng H Q, Zhang K, Zhang J, Zhu W D, Becker K H, Fang J 2012 *Eur. Phys. J. D* **66** 276
- [21] Yan A, Kong X H, Xue S, Guo P W, Chen Z T, Li D L, Liu Z W, Zhang H B, Ning W J, Wang R X 2024 *Plasma Sources Sci. Technol.* **33** 105011
- [22] Konina K, Kruszelnicki J, Meyer M E, Kushner M J 2022 *Plasma Sources Sci. Technol.* **31** 115001
- [23] Ning W J, Lai J, Kruszelnicki J, Foster J E, Dai D, Kushner M J 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 015005
- [24] Meyer M, Nayak G, Bruggeman P J, Kushner M J 2022 *J. Appl. Phys.* **132** 083303
- [25] Li D C, Li C, Liang T Y, Li J W, Yang Z W, Fu Q X, Zhang M, Yang Y, Yu K X, Du Y P, Zhao X G 2024 *Phys. Fluids* **36** 122020
- [26] Adesina K, Lin T C, Huang Y W, Locmelis M, Han D 2024 *IEEE Trans. Radiat. Plasma Med. Sci.* **8** 295
- [27] Massines F, Gouda G, Gherardi N, Duran M, Croquesel E 2001 *Plasmas Polym.* **6** 35
- [28] Wang Q, Ning W J, Dai D, Zhang Y H, Ouyang J T 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 205201
- [29] Wang Q, Dai D, Ning W J, Zhang Y H 2021 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54** 115203
- [30] Sudarsan A, Keener K M 2022 *LWT-Food Sci. Technol.* **155** 112903
- [31] Lee H, Kim J E, Chung M-S, Min S C 2015 *Food Microbiol.* **51** 74
- [32] Ziuzina D, Misra N N, Han L, Cullen P J, Moiseev T, Mosnier J P, Keener K, Gaston E, Vilaró I, Bourke P 2020 *Innov. Food Sci. Emerg. Technol.* **59** 102229
- [33] Min S C, Roh S H, Niemira B A, Boyd G, Sites J E, Uknalis J, Fan X T 2017 *Food Microbiol.* **65** 1
- [34] Tan J Z, Karwe M V 2021 *Innovative Food Sci. Emerg. Technol.* **74** 102868
- [35] Min S C, Roh S H, Niemira B A, Sites J E, Boyd G, Lacombe A 2016 *Int. J. Food Microbiol.* **237** 114
- [36] Wang Q, Zhou X Y, Dai D, Huang Z N, Zhang D M 2021 *Plasma Sources Sci. Technol.* **30** 05LT01
- [37] Lu L, Ku K M, Palma-Salgado S P, Storm A P, Feng H, Juvik J A, Nguyen T H 2015 *PLoS ONE* **10** e0132841
- [38] Sipahioglu O, Barringer S A 2003 *J. Food Sci.* **68** 234
- [39] Nelson S O 2003 *IEEE Antennas Propag. Soc. Int. Symp.* **4** 46
- [40] Liu J, Yang Y, Nie L, Liu D, Lu X 2024 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **57** 275201
- [41] Huang Z M, Hao Y P, Yang L, Han Y X, Li L C 2015 *Phys. Plasmas* **22** 123509
- [42] Boeuf J P, Bernecker B, Callegari T, Blanco S, Fournier R 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 244108
- [43] Wang Q 2022 *Ph. D. Dissertation* (Guangzhou: South China University of Technology) (in Chinese) [王乔 2022 博士学位论文 (广州: 华南理工大学)]
- [44] Lubarda V A, Talke K A 2011 *Langmuir* **27** 10705
- [45] Wang Q, Ning W J, Dai D, Zhang Y H 2020 *Plasma Process. Polym.* **17** 1900182
- [46] Zhou X Y, Wang Q, Dai D, Huang Z N 2021 *Plasma Sci. Technol.* **23** 064003
- [47] Zhang Y H, Ning W J, Dai D, Wang Q 2019 *Plasma Sources Sci. Technol.* **28** 104001
- [48] Yatom S, Dobrynin D 2022 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **55** 485203
- [49] Bruggeman P J, Iza F, Brandenburg R 2017 *Plasma Sources Sci. Technol.* **26** 123002
- [50] Katsigiannis A S, Bayliss D L, Walsh J L 2022 *Compr. Rev. Food Sci. Food Saf.* **21** 1086
- [51] Hasan M I, Walsh J L 2016 *J. Appl. Phys.* **119** 203302
- [52] Chen X Y, Li Y H, Li M Q, Xiong Z L 2022 *Plasma Sci. Technol.* **24** 124015
- [53] Yang X, Keener K M, Cheng J-H 2025 *J. Food Eng.* **388** 112389
- [54] Mayer S E 1969 *J. Phys. Chem.* **73** 3941
- [55] Lxcat program, Phelps database [https://us.lxcat.net/data/set\\_databases.php](https://us.lxcat.net/data/set_databases.php) [2024-11-16]
- [56] Hasan M I, Bradley J W 2015 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48** 435201

SPECIAL TOPIC—Non-equilibrium transport and active control strategy in low-temperature plasmas

# Influence of surface-adhered water droplets on discharge characteristics and chemical species distribution in atmospheric-pressure helium dielectric barrier discharge system\*

CAI Jiahe    DAI Dong<sup>†</sup>    PAN Yongquan

(*School of Electric Power, South China University of Technology, Guangzhou 510641, China*)

( Received 24 June 2025; revised manuscript received 27 September 2025 )

## Abstract

Dielectric barrier discharge technology can generate cold plasma at atmospheric pressure, which contains abundant active particles and shows great potential for fresh produce sterilization applications. However, water droplets frequently adhere to the surfaces of fruits and vegetables, which changes key parameters including the gas gap width, dielectric distribution, and gas-phase composition, consequently affecting the effectiveness of plasma applications. Currently, plasma-droplet interactions with contact angle as a variable remain unexplored, and the underlying mechanisms by which adhering droplets affect the electrochemical characteristics of dielectric barrier discharge require further investigation. In this work, we develop an atmospheric-pressure helium dielectric barrier discharge simulation model with an He-O<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O reaction system. This model is used to study how water droplets (with contact angles of 45°, 90°, and 135°) adhering to the surface of the specimens affect both the steady-state discharge structure and active particle distribution, as well as their underlying mechanisms. The results show that the steady-state discharge intensity is significantly weakened both at the droplet surface and in the region above it, with the greatest reduction occurring at a contact angle of 135°. During the main positive breakdown phase, the polarized electric field at the droplet surface significantly enhances both electron impact ionization and secondary electron emission, thereby promoting gas-phase breakdown in the region above the water droplet. During the main negative breakdown phase, this polarized electric field accelerates electron migration toward the liquid surface, which intensifies plasma ambipolar diffusion and consequently leads to the formation of an annular discharge suppression zone around the water droplet. During the secondary positive discharge phase, even though the water droplet becomes polarized and a radially inward electric field is generated near the liquid surface, the resulting seed electron scavenging effect suppresses discharge in the region above the water droplet. Due to the stronger polarized electric fields generated at the surfaces of water droplets with larger contact angles, both the discharge enhancement and suppression effects become more pronounced with the increase of contact angle. Regarding the chemical species distribution, active particles and electrons exhibit a synergistic distribution relationship. On the surface of the

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52377145) and the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 2023A1515012312).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [ddai@scut.edu.cn](mailto:ddai@scut.edu.cn)

specimens,  $\text{He}^+$  ions undergo electric field-driven migration, resulting in a highly non-uniform spatial distribution. The evaporation of water droplets provides more reactant sources for OH generation, thereby increasing its total deposition quantity. Because the bond energy of  $\text{O}_2$  is lower than that of  $\text{N}_2$ , oxygen (O) demonstrates a more uniform distribution and a greater total deposition quantity than nitrogen (N). On the surfaces of water droplets, the active particles exhibit a gradually decreasing distribution from the center to the edge. Notably, the total deposition quantity of  $\text{He}^+$  continuously increases with larger contact angles increasing due to the aggregation effect of the polarized electric field. This study systematically elucidates the influence mechanisms of adhering water droplets on the electrochemical processes in dielectric barrier discharge, providing theoretical guidance for relevant applications of plasma-droplet systems.

**Keywords:** dielectric barrier discharge, water droplet, discharge structure, active particle

**PACS:** 52.20.-j, 52.25.Jm, 52.65.-y

**DOI:** [10.7498/aps.74.20250827](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250827)

**CSTR:** [32037.14.aps.74.20250827](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250827)

表面水滴附着对大气压氦气介质阻挡放电系统放电特性与化学分布的影响

蔡加禾 戴栋 潘泳全

**Influence of surface-adhered water droplets on discharge characteristics and chemical species distribution in atmospheric-pressure helium dielectric barrier discharge system**

CAI Jiahe DAI Dong PAN Yongquan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 235204 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250827

CSTR: 32037.14.aps.74.20250827

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250827>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

正弦削波电压调控大气压氦气非平滑表面介质阻挡放电均匀性的仿真研究

Numerical study on uniformity of atmospheric helium gas dielectric barrier discharge on non-smooth surface regulated by sinusoidal clipping voltage

物理学报. 2023, 72(13): 135201 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230385>

结合机器学习的大气压介质阻挡放电数值模拟研究

Numerical study of discharge characteristics of atmospheric dielectric barrier discharges by integrating machine learning

物理学报. 2022, 71(24): 245201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221555>

射频/直流驱动大气压氩气介质阻挡放电的一维仿真研究

One-dimensional simulation of Ar dielectric barrier discharge driven by combined rf/dc sources at atmospheric pressure

物理学报. 2022, 71(24): 245202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221361>

条纹水电极介质阻挡放电中 $D_{2h}$ 超点阵斑图

$D_{2h}$  superlattice patterns in dielectric barrier discharge with striped water electrode

物理学报. 2025, 74(22): 225202 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250985>

介质阻挡放电中类蜂窝超点阵斑图

Honeycomb-like superlattice pattern in dielectric barrier discharge

物理学报. 2025, 74(22): 225201 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250952>

双气隙下介质阻挡放电斑图的放电特性与参数诊断

Discharge characteristics and parameter diagnosis of dielectric barrier discharge patterns in double-gap configuration

物理学报. 2025, 74(11): 115202 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250111>