

# 大气压氩气微放电通道中电子激发温度的时间演化\*

董丽芳<sup>†</sup> 冉俊霞 毛志国

(河北大学物理科学与技术学院, 河北保定 071002)

(2004 年 7 月 13 日收到 2004 年 8 月 4 日收到修改稿)

利用双水电极介质阻挡放电装置, 采用光谱方法测量了大气压氩气介质阻挡放电微放电通道中的电子温度的时间演化. 选取波长为 696.54nm ( $2P_2 \rightarrow 1S_5$ ), 763.51nm ( $2P_6 \rightarrow 1S_5$ ), 772.42nm ( $2P_2 \rightarrow 1S_3$ ) 的氩原子谱线进行了时间分辨测量. 实验发现在放电期间, 电压波形开始下降, 在放电熄灭后又开始上升. 高能级为  $2P_2$  的跃迁(772.42nm 和 696.54nm)比  $2P_6$  的跃迁 763.51nm 要延迟几十 ns. 根据其时间分辨谱, 估算了微放电中的电子激发温度的时间演化. 结果表明, 电子激发温度并不是一个恒定值, 而是随时间变化的. 当放电电流达到最大值, 即电子密度达到最大值时, 其电子温度并未达到最大值, 而经过 200ns 后才达到最大值.

关键词: 大气压介质阻挡放电, 发射光谱, 电子激发温度, 微放电通道

PACC: 5280P, 5270, 0765

## 1. 引言

介质阻挡放电(DBD)又叫无声放电, 是一种典型的非平衡态交流气体放电, 运行过程为准连续的瞬态过程. 其实验装置通常是由两个平行板电极组成, 其中两个电极中至少有一个被电介质层所覆盖, 当两极之间加上交流高压时, 就可在放电间隙间形成放电. 由于 DBD 可以工作在大气压或更高气压条件下, 是产生大气压非平衡态等离子体的一种可靠、经济的方法, 被广泛应用于臭氧合成、聚合物表面改性、等离子体化学气相沉积、CO<sub>2</sub> 激光器、污染物控制、大功率准分子紫外及真空紫外光源以及平面等离子体显示技术等领域<sup>[1]</sup>. 目前大部分的工业应用中, DBD 工作在流光模式, 即放电由大量的微放电通道(单丝)组成, 表现为复杂的时空分布, 并且几乎所有的反应动力学过程都发生在微放电通道内<sup>[1-6]</sup>. 因此需要对 DBD 微放电通道中等离子体参数的时空演变进行研究, 以提高所需反应产物的产额和转换效率. 很多文献报道了单丝的一些特性, 如在文献 [7] 中研究了单丝的电荷转移和紫外发射光

谱; 文献 [6, 8, 9] 研究了微放电的时间特性. 但是对于微放电中电子温度随时间的演化还未见报道. 而电子温度是等离子体中重要的参数, 其对于等离子体的过程研究意义重大. 本工作利用便于对微放电进行光学测量的水电极介质阻挡放电装置, 研究了大气压条件下氩气介质阻挡放电中微放电通道中的电子激发温度在放电期间的演化. 结果表明, 在微放电通道中, 电子激发温度范围在 0.1—0.5eV 之间. 在放电期间, 它并不是一个恒定值, 而是随时间变化的. 本工作结果对深入研究 DBD 动力学过程及其在信息处理等领域的应用具有重要意义.

## 2. 实验装置与实验方法

实验装置如图 1 所示. 长度为 80mm 的有机玻璃管中装满普通自来水, 两端是厚度为 1.5mm 的玻璃片, 兼作电介质层. 直径为 47mm 的环形电极分别浸入水中并与高压电源 HV 两极相接, 从而水可以充当水电极. 放电间隙间距  $d$  用螺旋测微计调节(本实验中  $d = 1.5\text{mm}$ ). 电源的电压调节范围为 0—10kV, 频率调节范围为 10kHz—40kHz(本实验中  $f =$

\* 国家自然科学基金(批准号: 10375015), 教育部重点科研项目(批准号: 02020), 河北省科学攻关项目(批准号: 01212180), 河北省教育厅博士基金(批准号: B2001112), 河北省自然科学基金(批准号: A2004000086)资助的课题.

<sup>†</sup>E-mail: Donglf@mail.hbu.edu.cn

33kHz), 放电气体为氩气, 压强为一个大气压. 高压探头 (Tektronix P6015A, 1000X) 用来测电压. 放电所发的总光信号用光电倍增管 (RCA7265) 探测, 并输入数字示波器 (Tektronix TDS3054, 500 MHz) 进行采集记录. 从放电间隙发射的光用透镜组进行会聚后进入单色仪 (American, Acton, AM-566) 分光, 探测器为光电倍增管, 从光电倍增管测得的信号分为两路, 一路直接接入数字示波器进行采集记录, 另一路接 Boxcar (American, Stanford Research, SRS 280/255) 进行平均后由计算机进行分析存储. 实验首先用 He-Ne 激光管测量了两个光电倍增管经过电路最终到达示波器时的时间延迟, 实验发现, 在 ns 的时间尺度内观测不到它们之间的时间延迟, 这说明, 此两路倍增管间的时延小于 ns 量级.

772.42nm 的谱线属于同一能级. 763.51nm 的谱线和 772.42nm 的谱线由于相邻较近, 而且彼此都是孤立的谱线, 可通过比较二者的相对强度研究电子激发温度.

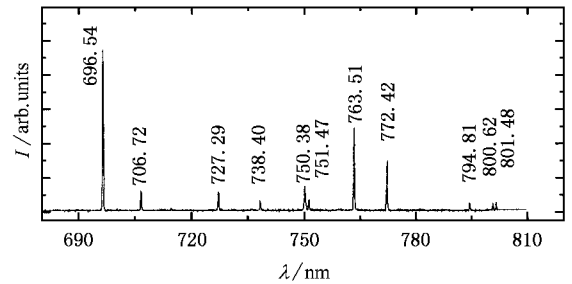


图 2 大气压氩气介质阻辉光放电中典型发射谱 (放电条件: 电压 3500V, 氩气流量 2slm)

电子温度有很多种, 通过比较两条电子态激发谱线的相对强度得到的电子温度称为电子激发温度. 在以往的 DBD 研究中, 一般只是研究平均的电子激发温度, 或者随空间的演化规律, 而对于随时间变化的电子激发温度的研究还未见报道. 本文测量了大气压氩气 DBD 中氩原子谱线中几条较强的谱线的时间分辨谱, 并由其估算了放电期间电子激发温度的时间演化.

在大气压氩气放电中, 当外加电压达到击穿阈值时气体击穿形成放电, 形成多个微放电通道. 为了研究微放电通道中的等离子体行为, 实验中降低外加电压, 使放电出现几个分立的单丝, 并且能够保持长时间的稳定. 此时选取其中的一个单丝进行研究. 首先将单色仪的中心波长固定在某一谱线的中心波长, 并且将单色仪的狭缝开得比较大, 使得被研究的单丝所发光经透镜会聚后完全进入单色仪. 图 3、图 4 就是在这种条件下获得的实验数据.

图 3(a) 是中心波长为 696.54nm 的氩原子谱线与总光信号以及所加电压的波形图. 从图 3(b) 中可以看出在放电期间, 放电开始时电压开始保持持平, 在几十 ns 后, 随着光强的增加电压却下降, 而在发光消失前几十 ns 才又恢复上升. 该现象与文献 [9, 10] 中观察到的放电时电压下降的现象一致. 为了研究单个脉冲中 696.54nm 的单色光与总光的时间相关性, 将其中的一个脉冲放大, 如图 3(c) 可以看出, 波长为 696.54nm 的单色光比总光延迟 50ns. 我们仔细分析了每一个放电脉冲, 发现波长为 696.54nm 的单色光比总光都有相对的延迟. 经过多次测量发现, 其延迟范围为 40—80ns. 为了研究这种

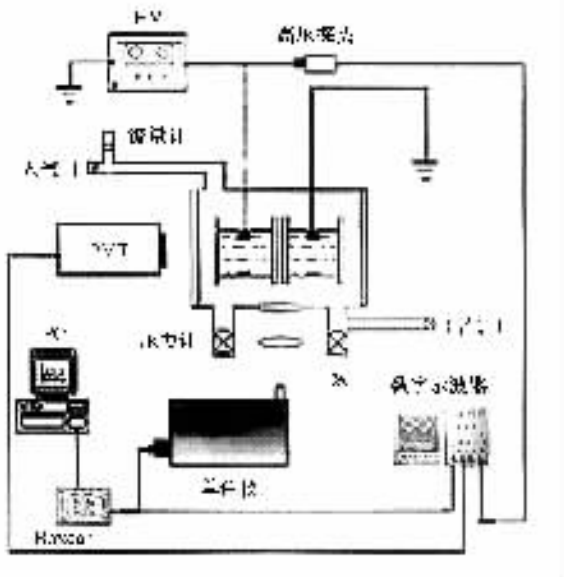


图 1 实验装置图 (HV 为高压高频电源, PMT 为光电倍增管, PC 为个人电脑)

### 3. 结果和讨论

实验首先在 690nm—800nm 范围内测量了大气压氩气 DBD 辉光放电的发射光谱. 图 2 给出了一个典型的发射光谱, 经分析, 这些谱线全部是氩原子的发射谱线. 其中, 最强的是中心波长为 696.54nm 的谱线, 它对应  $\text{Ar}(2P_2 \rightarrow 1S_5)$  的跃迁, 其激发能为 13.328eV; 其次是中心波长为 763.51nm 的谱线, 它对应  $\text{Ar}(2P_6 \rightarrow 1S_5)$  的跃迁, 其激发能为 13.172eV; 再次是 772.42nm 的谱线, 对应  $\text{Ar}(2P_2 \rightarrow 1S_3)$  的跃迁, 其激发能为 13.328eV. 其中, 696.54nm 的谱线和

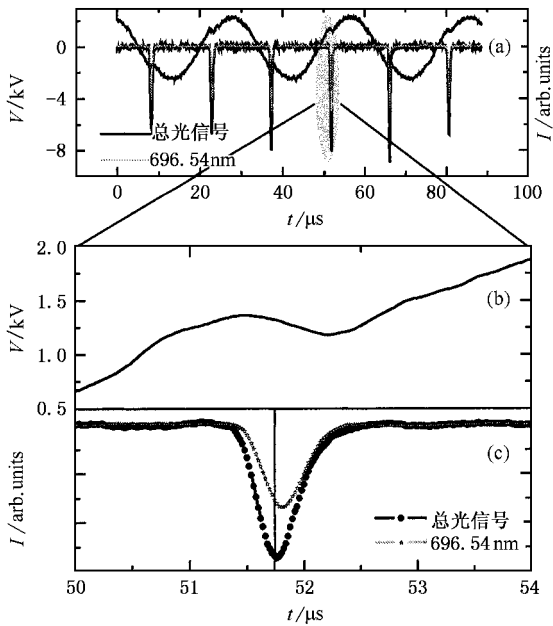


图3 氩原子谱线 696.54nm ( $2P_2 \rightarrow 1S_5$ )与总光信号的时间相关性 (a) 696.54nm Ar I 和总光以及电压波形 (b) 电压波形的放大 (c) 696.54nm 单色光和总光的放大

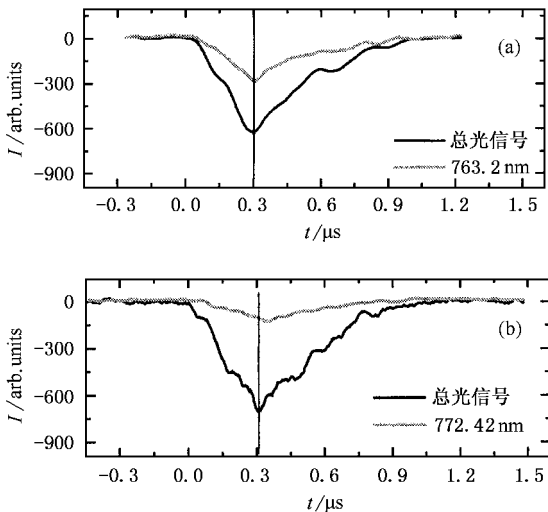


图4 中心波长为(a) 763.2nm ( $2P_6 \rightarrow 2S_5$ )和(b) 772.3nm ( $2P_2 \rightarrow 1S_3$ )的 Ar 原子的时间分辨谱和总光信号

相关性是否具有规律性,实验还研究了波长为 763.51nm 和 772.42nm 的单色光与总光的时间相关性,结果如图 4 所示.从图 4 可以看出,波长为 763.51nm 的单色光与总光信号同时出现并同时达到最大值,多次测量发现,其总是与总光信号同时达到最大值.而 772.42nm 的单色光比总光信号延迟 40ns,多次测量发现,其延迟范围为 40—80ns.经分

析,产生上述现象的可能原因如下:波长为 772.42nm 的单色光和 696.54nm 的单色光属于同一上能级  $2P_2$ ,而波长为 763.51nm 的单色光的上能级为  $2P_6$ , $2P_2$  的激发电位比  $2P_6$  的要高.因而气体击穿后,电子能量随外加电压的增加而增加,当其达到  $2P_6$  的激发能量时,氩原子首先被激发到  $2P_6$  能级并跃迁回到亚稳态而辐射出 763.51nm 的单色光.随着电压的继续增加,电子能量增加而达到  $2P_2$  能级的激发能量而使之激发,并跃迁回到亚稳态而辐射出 696.54nm 和 772.42nm 的单色光.所以高能级为  $2P_2$  的跃迁(772.42nm 和 696.54nm)比  $2P_6$  的跃迁(763.51nm)要延迟几十 ns.

另外实验还发现放电期间电压却下降,其原因可能与放电产生的壁电荷有关.气体击穿形成放电,放电产生的电荷向两极运动.由于极板上覆盖有电介质,电荷将累积在电介质表面,形成壁电荷,产生内建电场.显然内建电场的方向与外加电场方向相反,因而作用在气体上的净电场为外加电场与内建电场之差.随着放电的增强,壁电荷快速增加并加速积累在介质表面.壁电荷产生的内建电场增加的速率大于外加电场增加的速率,并且二者的方向相反,使净电场减小,从而电压波形在放电期间开始下降.当净电场减小到小于放电维持电场时,即在氩气 DBD 中约几百个 ns 后,放电被熄灭.此时壁电荷不再增加而呈衰减趋势,从而内建电场开始减小,电压波形又开始恢复上升.这与图 3 所观察到的现象正好一致.当外加电压升高时,由于外加电场增加的速率小于内建电场增加的速率,净电场减小,电压波形表现为下降.随后波长为 763.51nm 单色光光强首先达到峰值,稍后是 696.54nm 和 772.42nm 的单色光的光强达到峰值,这使得壁电荷快速增加.当放电熄灭时,壁电荷不再增加而是开始衰减,从而净电场又开始增加.但由于光辐射有一定的寿命,放电熄灭了,但还有一定的光强,从而表现为电压波形在光信号熄灭之前开始恢复上升.

为了更好地了解微放电通道中电子能量分布行为,本工作利用波长为 763.51nm 和 772.42nm 这两条离得很近的谱线估测了电子激发温度. DBD 是一个非平衡态等离子体,但是通常可认为其局部可以达到热平衡,这就称为局部热平衡近似.在该近似下,属于相同原子同一个电离级次的两条谱线  $\lambda_1$  和  $\lambda_2$  的强度  $I_1$  和  $I_2$  由下式给出<sup>[11]</sup>:

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{A_1 g_1 \lambda_2}{A_2 g_2 \lambda_1} \exp\left(-\frac{E_1 - E_2}{kT_e}\right), \quad (1)$$

式中下标 1、2 是分别指第一与第二条谱线. 其中  $I$  为谱线的强度,  $\lambda$  是波长,  $g$  为相应谱线的上能级的统计权重,  $E$  是相应的上能级的激发能,  $A$  为相应的跃迁概率,  $T_e$  为电子的激发温度. 表 1 中列出了计算中所需参数<sup>[12]</sup>.

表 1 Ar 原子的两条谱线的激发能量、上能级的权重因子和跃迁概率

波长/nm	跃迁	激发能/cm <sup>-1</sup>	$g$	$A/10^6\text{s}^{-1}$
763.51	2P <sub>6</sub> →1S <sub>5</sub>	106237.597	5	24.5 ± 0.08
772.42	2P <sub>2</sub> →1S <sub>5</sub>	107496.463	3	11.7 ± 0.05

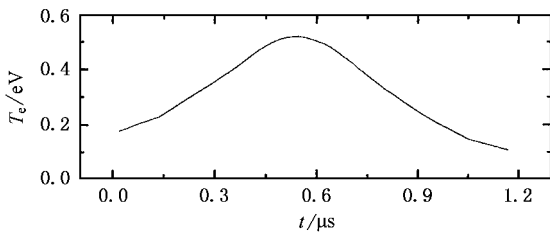


图 5 微放电单丝中放电过程中电子激发温度随时间的演化

为了减小误差,将相邻的几个正半周测得的 763.51nm 和 772.42nm 两条谱线的光强波形平均来估算电子激发温度. 如图 5,从图可以看出电子激发温度在 0.1—0.5eV 之间,它并不是一个恒定值而是随时间变化的,且并不与放电同步达到最大值,而是滞后 200 ns 左右. 以前的研究已经证明在 DBD 中可以用总光信号来代替放电电流<sup>[13]</sup>,但是由于光信号的传输与放大过程,使得总光信号比电流信号要延

迟大约几十 ns. 所以上述结果表明,当放电电流达到最大值,即电子密度达到最大值时,其电子温度并未达到最大值,而经过 200ns 后才达到最大值. 由于电子激发温度的估测是在局部热平衡假设下计算的,当德拜球内的粒子数相当大时,这种假设才有效,即(1)式才成立,一般来说有<sup>[14]</sup>

$$Ne \geq 1.4 \times 10^{14} T^{1/2} (\Delta E_{nm})^3 \text{cm}^{-3}, \quad (2)$$

式中  $T$  是温度(用 eV 单位),  $\Delta E_{nm}$  是谱线相应的上下能级差. 我们将本工作中得到的电子激发温度的极值 0.52eV, 以及  $\Delta E_{nm}$  代入(2)式,计算得到的是  $4.3 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$ , 而在 DBD 中,电子密度为  $10^{15} \text{cm}^{-3}$  的量级,高于(2)式的必要条件. 因此对于  $T_e$  的估测显然是可行的.

当增加电压时,微放电通道数增加. 放电经过无规则的放电丝、斑图模式,最后形成辉光,同时放电的放电脉冲数逐渐增多,实验发现上能级为 2P<sub>2</sub> 的跃迁相对于 2P<sub>6</sub> 的跃迁仍有延时,进一步的研究工作正在进行中.

## 4. 结 论

实验对大气压氩气介质阻挡放电中微放电的时间行为进行了研究,并对放电过程中系统中的电子激发温度进行了诊断. 实验发现,放电过程中电子激发温度并不是一个恒定值,而是随时间变化的,并且它与总光信号并不同时达到最大值,而是滞后 200ns 以上. 这表明,当放电电流达到最大值,即电子密度达到最大值时,其电子温度并未达到最大值,而是经过 200ns 后才达到最大值. 本工作的结果对介质阻挡放电动力学研究具有重要参考价值.

- [1] Kogelschatz U 2002 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **30** 1400  
 [2] Yin Z Q et al 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 929 (in Chinese) [尹增谦等 2003 物理学报 **52** 929]  
 [3] Yin Z Q et al 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 925 (in Chinese) [尹增谦等 2003 物理学报 **52** 925]  
 [4] Eliasson B and Kogelschatz U 1991 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **19** 309  
 [5] Coogan J J and Sappay A D 1996 *IEEE Trans. Plasma Sci.* **24** 91  
 [6] Kozlov K V et al 2001 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **34** 3164  
 [7] Heise M et al 2004 *Plasma Sources Sci. Technol.* **13** 351

- [8] Yin Z Q et al 2002 *Chin. Phys. Lett.* **19** 476  
 [9] Merbahi N et al 2004 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37** 1664  
 [10] Trunec D, Brablec A and Buchta J 2001 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **34** 1697  
 [11] Hahn T D and Wiese W L 1990 *Phys. Rev. A* **42** 5747  
 [12] Wiese W L et al 1989 *Phys. Rev. A* **39** 2461  
 [13] Yin Z Q et al 2003 *Spectroscopy and Spectral Analysis* **23** 607 (in Chinese) [尹增谦等 2003 光谱学与光谱分析 **23** 607]  
 [14] Man B Y 1998 *Appl. Phys. B* **67** 241



# Temporal evolution of electron excited temperature in micro-discharge in argon at atmospheric pressure \*

Dong Li-Fang<sup>†</sup> Ran Jun-Xia Mao Zhi-Guo

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

( Received 13 July 2004 ; revised manuscript received 4 August 2004 )

## Abstract

The temporal evolution of electron excited temperature of micro-discharge in dielectric barrier discharge ( DBD ) in argon at atmospheric pressure is studied by spectroscopy method. The time-resolved spectra of  $696.54\text{nm}$  ( $2P_2 \rightarrow 1S_5$ ),  $763.51\text{nm}$  ( $2P_6 \rightarrow 1S_5$ ) and  $772.42\text{nm}$  ( $2P_2 \rightarrow 1S_3$ ) Ar are measured. It is found that the voltage decreases during the discharge, and increases after the discharge quenched. The transition of lower level  $2P_6$  ( $763.51\text{nm}$ ) is some dozens of ns ahead of the transitions of higher level  $2P_2$  ( $772.42\text{nm}$  and  $696.54\text{nm}$ ). According to the time-resolved spectrum, the electron excited temperature is estimated during the discharges. It is shown that the temperature is not a constant. It is variable with the time. The peak value of temperature exists about two hundred ns time-delay after the peak value of the discharge current. It is shown that the electron excited temperature does not reach its peak value when the electron density is at the peak value. And the electron excited temperature reaches the peak value 200ns late.

**Keywords :** dielectric barrier discharge at atmospheric pressure, emission spectrum, electron-excited temperature, micro-discharge channel

**PACC :** 5280P, 5270, 0765

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10375015 ), the Key Project of Chinese Ministry of Education ( Grant No. 02020 ), Committee of Science and Technology, Hebei Province, China ( Grant No. 01212180 ), Bureau of Education, Hebei Province, China ( Grant No. B2001112 ), and the Natural Science Foundation of Hebei Province, China ( Grant No. A2004000086 ).

<sup>†</sup> E-mail : Donglf@mail.hbu.edu.cn