介质阻挡放电丝模式和均匀模式转化的特性*

李雪辰,贾鹏英 刘志辉 李立春 董丽芳

(河北大学物理科学与技术学院,保定 071002) (2007年4月14日收到2007年5月22日收到修改稿)

利用水电极介质阻挡放电装置,采用电学方法和发射光谱,研究了空气中介质阻挡放电从微放电丝模式向均 匀放电模式转化的过程.结果表明,大气压下增大外加电压或者电压一定减小气压,放电都能够从微放电丝模式 过渡到均匀模式.高气压下放电为流光击穿而低气压下为辉光放电.利用放电发射光谱,研究了高能电子比例随 实验参数的变化.结果表明气压减小时高能电子比例增大,电压增加时高能电子减少.利用壁电荷理论对以上实 验结果进行了定性分析.结果对介质阻挡均匀放电的深入研究具有重要价值.

关键词:介质阻挡放电,光学发射谱,微放电丝,均匀放电模式 PACC:5280H,5200,5270K

1.引 言

介质阻挡放电是一种非平衡交流气体放电,已 经被广泛地应用于臭氧产生、表面改性、材料生长、 尾气处理、等离子体显示等诸多领域¹⁻³¹.介质阻 挡放电的特点是两个电极之一至少要有一个被绝缘 电介质层覆盖,由于电介质层的存在,放电一般只能 由交流电压驱动.目前,介质阻挡放电已经成为产 生大气压非平衡等离子体的重要技术手段.按照 Townsend理论^[4].在大气压条件下的自持气体放电, 具有很高的电流密度(20—400 A·cm⁻²).如此高的 电流密度导致放电等离子体只能收缩为许多亚毫米 直径的微放电通道(微放电丝),所以大气压介质阻 挡放电空间分布一般是不均匀的.放电的这种空间 不均匀性必然导致材料的生长或者处理是非均匀 的,所以人们在一直致力于如何实现一种大气压下 的均匀放电.

早在 20 世纪 80 年代,日本东京的 Sophia 大学的研究人员在氦气中利用介质阻挡放电产生了一种 大气压下的均匀放电,并称之为大气压辉光放电^[5]. 随后的研究,分别在大气压氩气、氖气、氦气等气体 中实现了均匀放电,并利用数值模拟来研究放电的 机理^{6--8]}. 按照 Rahel 研究小组^[9]的观点,一般将不 能观察到微放电丝的情况称为均匀放电,而将辉光 放电专指气体击穿机理. 实验和理论结果表明,在 惰性气体或者纯氮气中,放电中形成的亚稳态粒子 对均匀放电的产生具有重要作用^[5].在外加电压达 到峰值电压后 瞬时放电结束 但放电产生的大量亚 稳态粒子通过与气体中粒子碰撞或者通过和电极表 面作用能产生电子,这些电子作为种子电子,能减 小下半周期的击穿电压. 低的击穿电压使放电电流 也很小 这就类似于低气压直流辉光放电 所以即使 在大气压下 由于亚稳态粒子的存在也能实现均匀 放电. 如果工作气体含有氧等电负性气体,则放电 中亚稳态粒子产生的种子电子会与氧结合,这种条 件下放电很难形成均匀放电,因此,如何在大气压 空气中实现均匀放电成为研究热点. Okazaki 等 人[10]通过在电极和电介质层间加入一层细金属丝 网而实现了大气压空气中的均匀放电, Trunec 利用 相似的装置重复该实验,发现只有惰性气体中放电 均匀 而在大气压空气中放电不均匀. 他们将均匀 放电形成的原因解释为:金属网的加入增大了放电 回路电阻 限制了放电电流 所以放电仅能维持在辉 光放电阶段, 2006 年清华大学的王新新等^{11]}重复 了 Okazaki 的工作 认为该条件下均匀放电的实现是

[†] E-mail:xcli@mail.hbu.edu.cn

由于金属网附近存在电晕放电,这样使得整个放电 气隙击穿电压减小而实现了均匀放电.

本文将利用透明的水电极装置,实现了大气压 空气中的均匀放电.采用电学和光学方法研究气压 和驱动电压改变时,介质阻挡放电从微放电丝模式 向均匀放电模式转化的过程.通过分析放电电流波 形,说明大气压空气均匀放电属于流光击穿机理而 低气压空气放电属于辉光放电机理.对均匀放电模 式的光谱特性进行研究,分析了高能电子随驱动电 压和工作气压的变化关系.

2. 实验装置

实验装置如图1所示,其中两个电极均采用水 电极 水电极用圆筒形有机玻璃管制成 管的两端用 石英玻璃封口,管中装满自来水作为电极.两个电 极分别通过浸于水中的金属环与交流高压电源的输 出端相连接,水电极的直径是 75 mm,两个水电极 平行正对 两片石英玻璃作为放电的介质阻挡层 其 厚度均为1.0mm, 两片石英玻璃的距离(气隙宽度) 通过垫片调节,本实验中气隙宽度固定为1.2 mm. 高压电源的输出频率为 30-60 kHz 的正弦波,峰值 电压为 0-20 kV 可调 ,高压电源的输出利用高压探 头 Tektronix P6015A, 1000X 测量并用数字示波器 泰 克公司生产,型号为 Tektronix TDS3054B,带宽 500 MHz 采样频率为1 GHz)记录. 放电电流通过测量放 电回路中串联的小电阻 $R = 50 \Omega$)上的分压得到. 放 电的发光信号经过透镜成像后进入光谱仪入射狭缝 (ACTON research Spectropro2785, 2400 grooves/mm), 通过 CCD 采集(ACTON, 1340 × 400 pixels)放电的发 射谱. 实验时,入射狭缝宽度为10 µm, CCD 曝光时





图1 实验装置图

间3s.

3. 实验结果和讨论

在大气压空气中,当外加电压刚刚超过击穿阈 值,气体开始击穿放电.电极上随机分布着微放电 丝 如图 ((a)所示,图中的亮点对应稳定的微放电 丝通道,图中还有一些线状和棉絮状的微放电通道, 这些对应于照相曝光时间内发生运动的微放电,放 电的电压电流波形如图 ((a)所示.从图 ((a)可以看 出,电流波形是在正弦的位移电流上叠加了若干放电 电流脉冲,每个放电电流脉冲宽度很小(约几十 ns). 随着外加电压逐渐增大,微放电丝密度也增加,同时 电流波形中脉冲数目也逐渐增多.当外加电压处于 11.8 kV 到 14.4 kV,放电空间将被随机微放电丝占 满,形成均匀放电.在此基础上继续增大外加电压, 放电将在均匀背景上出现微放电丝.图((b)给出了



均匀放电的一个典型照片,其对应的电压电流波形 如图 3(b)所示.从图 3(b)可以看出,电流波形由许 多放电电流脉冲叠加在电路的位移电流之中.

在大气压空气中,逐渐减小放电气体气压,则放 电区域的微放电丝也经历从少到多的一个过程,最 后放电区域不能分辨出微放电丝.图3(c)给出了在 5.07×10³ Pa空气中放电的电压电流波形.显然,外 加电压每半周期,电流波形仅含有一个放电电流脉 冲.相比于大气压下的放电电流脉冲,低气压下放 电电流脉冲宽度很大(约1.5 μs).图3(c)还显示, 放电时外加电压波形有很大的变形.



图 3 放电的电压电流波形 (a) l × 10⁵ Pa 空气中微放电丝模 式;(b) l × 10⁵ Pa 空气中均匀放电模式;(c) 0.05 × 10⁵ Pa 空气中 均匀放电模式

为了能研究电压升高和气压减小两种情况下, 从微放电丝模式过渡到均匀模式的机理 ,图 4 将图 3的放电电流脉冲进行了对比. 从图 4 可以看出 在 大气压条件下 无论微放电丝模式还是均匀模式 脉 冲的上升时间很短(图上看小于 20 ns). 而低气压条 件下的均匀放电,脉冲上升时间约0.2 µs. 气压不 同 放电电流上升时间的巨大差别应该是放电击穿 机理的不同造成的. 短的上升时间说明气体击穿放 电进展很快 这样的击穿机理应该属于流光击穿 在 流光击穿过程中,电子雪崩的发展速度可以达到光 速的 1/10. 上升时间很长则说明放电击穿进展缓 慢 这样的放电应对应于 Townsend 击穿,电子雪崩 的发展速度约等于电子的漂移速度,这个速度要比 光速慢很多. 由于不同气压下,击穿物理机理不同 导致了放电的发展速度不同,最终使得放电电流脉 冲的上升时间也不同.



图 4 不同模式的放电电流波形图 (a) l × 10⁵ Pa 空气中微放电 丝模式;(b) l × 10⁵ Pa 空气中均匀放电模式;(c) 0.05 × 10⁵ Pa 空 气中均匀放电模式

气体发生击穿后,电子和离子分别向两个电极 移动,碰撞电介质层后积累在电介质上形成壁电荷. 随着放电的进行,壁电荷量不断增加.此时,壁电荷 的电场和外加电场方向相反,随着壁电荷增加总电 场不断减小,因此放电很快熄灭.外加电压下半周 期到来后,壁电荷电场与外加场方向相同.壁电荷 电场的存在有助于气体的击穿.壁电荷的这种记忆 效应,使得微放电丝一旦在某处形成,则外加电压下 半周期放电仍会在此发生,即不考虑其他微放电丝 影响的情况下,微放电丝会稳定地存在于某个地点, 这样就形成视觉可见的微放电丝通道.如果随机发 生的微放电距离太近,则两个微放电间和两个微放 电的壁电荷间将发生相互作用,这种作用使得微放 电快速运动,形成图 (a)中的线状或絮状结果.随 着外加电压峰值增大,新的微放电会出现在没有壁 电荷的地方.这样随着外加电压不断增加,整个区 域会被微放电所占满,所以形成均匀的放电.并且 随着微放电丝密度的增加,微放电之间相互作用会 更加明显,由于微放电丝的运动也会造成视觉上均 匀的放电.在低气压条件下,由于放电发展缓慢,电 子有更多的时间扩散,所以低气压下微放电能占据 更多的电极表面.与高气压条件下相比,电极会更 容易被微放电占满,所以低气压下均匀放电更容易 实现.



图 5 300-450 nm 范围放电的发射光谱

对放电的发射光谱进行了采集,波长范围在 300—450 nm 的发射光谱如图 5 所示. 从图 5 可以看 出,放电发射光谱包括氮分子的第二正带系 (($C^3 \Pi_u$)_{u'=0} →($B^3 \Pi_g$)_{u'=0},对应波长 337.1 nm)和 氮分子离子的第一负带系(($B^2 \Sigma_u^*$)_{u'=0} → ($X^2 \Sigma_g^*$)_{u'=0} 对应波长 391.4 nm). 文献 12,13 对 放电的发射光谱进行了研究,在空气中氮分子主要 通过与能量大于11 eV的电子碰撞而由基态跃迁到 第二正带系的激发态. 氮分子通过与能量大于



18.7 eV的电子碰撞电离而跃迁到氮分子离子第一 负带系激发态.从以上分析看出,光谱线强度比 (391.4 nm 比337.1 nm)反映了放电等离子体中高能 电子的比例,谱线强度比越大则高能电子数越多. 利用这种方法,我们对介质阻挡放电的发射谱谱线 强度比随气压和外加电压的变化关系进行了研究, 结果分别如图 6 和图 7 所示.

从图 6 可以看出,固定电压情况下随着气压从 低到高,强度比不断减小.在大气压空气放电中,高 能电子比例随外加电压峰值的增大而减小.图 (a) 结果的出现可能是由于气压升高,电子的平均自由 程减小,那么电子在一个自由程中从电场中所获得 的能量也减小,最终导致高能电子随气压升高而减 小.为了对图 (b)的实验结果进行解释,我们研究 了放电起始电压 U_{in} (对应第一个放电脉冲的外加 电压值)与外加电压峰值 U_{p} 之和随外加电压峰值 的关系,结果如图 7 所示.图 7 中曲线表明,随外加 电压峰值增大, $U_{in} + U_{p}$ 之和减小.既然均匀放电 由微放电构成,而微放电满足如下的熄火和击穿 方程:

$$E_{\rm a} - E_{\rm w} = E_{\rm g} , \qquad (1)$$

$$E_{\rm a} + E_{\rm w} = E_{\rm b} , \qquad (2)$$

其中 E_a , E_w , E_b , E_q 分别为外加电压的电场、壁电 荷电场, 气体的击穿电场值和熄火电场值. 按照这 个模型,只要气体中的总电场达到 E_b , 气体击穿放 电, 壁电荷积累而减小气体中的电场. 当电场低于 E_q 放电就熄灭. 因此, 放电过程中气体中电场应介 于 E_b 和 E_q 之间. 换言之, 击穿电场变化则放电气 体分担的电压也相应变化.

现在考虑熄火方程,对外加电压半周期不同时 刻的产生微放电而言,外加电场越强则微放电熄灭



图 6 391.4 与 337.1 nm 谱线强度比随实验参数的变化关系 (a) 随气压变化;(b) 随外加电压峰值的变化

后积累的壁电荷也越多,即外加电压峰值时刻出现 的微放电能够积累最多的壁电荷.因为本半周期积 累的壁电荷的电场与下一个半周期的外加电场方向 相同,帮助下半周期的放电,所以峰值时刻的微放电 在下一个半周期应该最先击穿.也就是说电压峰值 出现的微放电和下半周期的起始电压出现的微放电 相对应.根据熄火方程,该微放电应满足

$$E_{\rm p} - E_{\rm w} = E_{\rm q} , \qquad (3)$$

其中 *E*_p为外加电场峰值.因为壁电荷在一个半周 期内的衰减可以忽略,根据击穿方程,该微放电应 满足

$$E_{\rm in} + E_{\rm w} = E_{\rm b} , \qquad (4)$$

其中 *E*_{in}为起始电压对应的外加电场. 假设击穿电 场和熄火电场不随外加电压变化. 外加电压峰值增 大,按照熄火方程,峰值时刻的微放电会积累更多的 壁电荷,这个微放电存留的壁电荷电场要增大. 这 个微放电对应下半周期第一个微放电,因为壁电荷 增多,按照击穿方程,该微放电所需的外加电场必然 减小,即 *U*_{in}随外加电压峰值增大而减小. 也就是 说,外加电压峰值增大,放电电流脉冲出现不断提 前. 这正是图 4 所表示的实验结果.

将峰值时刻的微放电的熄火方程和击穿方程联 立,可得

$$E_{\rm in} + E_{\rm p} = E_{\rm q} + E_{\rm b}$$
, (5)

为了简化,仍然假设熄火电场不随外加电压峰值而 变化. 但当外加电压峰值增大后,会有更多的能量 进入放电区域,导致放电区域和电极温度升高,导致 正离子轰击阴极发射电子的概率增大,这可能使得 气体的击穿电压(*E*_b)减小. 另一方面,外加电压峰 值增大,放电会更剧烈,放电产生的紫外辐射也会增 强. 这些紫外辐射在周围空间光电离气体可以为放 电提供种子电子,所以外加电压峰值增大后,种子电 子增多,这也将导致气体的击穿电压减小.

利用等效电路^[14],采用低气压辉光放电对上述 因素进行了实验验证.实验中,将一个已知电容 (*C*_{test} = 3300 pF 和放电装置串联.通过测量外加电 压、测试电容上的电压可以将气隙上的电压计算出 来.很显然,外加电压等于介质上的电压、气隙上的 电压和测试电容上的电压之和.由于介质上的输运 电荷与测试电容上的电压之和.由于介质上的输运 电荷与测试电容上的电压成正比,其比为 *C*_{test}/*C*_{diel},其中 *C*_{test}和 *C*_{diel}分别为测试电容和介质层总电容的电容 值.因此介质上的电压为 $V_{\text{diel}} = V_{\text{test}} (C_{\text{test}} / C_{\text{diel}})$.从 而气隙上的电压可通过下式得到:

 $V_{\rm g} = V_{\rm a} - V_{\rm diel} - V_{\rm test} = V_{\rm a} - V_{\rm test} (1 + C_{\rm test} / C_{\rm diel}),$ (6)

这里, C_{diel} 是将两块本实验中作为电介质的玻璃并 在一起测量得到的电容值为57.8 pF, V_a 为外加电 压, V_{test} 为测试电容两端的电压.利用这种方法可以 研究低气压辉光放电模式下,气体击穿电压 U_g 随 外加电压峰值 U_b 的关系.结果如图7所示.



图 7 低气压辉光放电模式击穿电压随外加电压峰值的变化关系



图 8 起始电压峰值电压之和随外加电压峰值的变化关系

由于以上提及的因素,导致外加电压峰值增大时, $E_{in} + E_{p}$ 会减小.这对应于图 8 的曲线,随外加电压峰值增大, $U_{in} + U_{p}$ 之和减小.

根据前面的分析,放电时气体中的总电场与击穿电场有关.因为击穿电场随外加电压峰值增大而减小,所以外加电压峰值增大时,微放电气体上的电场减小.高能电子的比例取决于电子在一个平均自由程中从电场中加速而获得的能量,应与气体中的电场成正比.因为微放电电场随外加电压峰值增大

而减小,所以高能电子会随着外加电压峰值的增大 而减小.这就是图 ({ b)所给出的实验结果.

4.结 论

大气压条件下增大外加电压或者电压一定时减 小空气气压 放电都能够从空间不均匀的微放电丝 模式过渡到均匀模式的放电.高气压情况下,微放 电丝模式和均匀放电模式的电流波形都包含许多宽

- [1] Fan WL, Dong LF, Li XC, Yin ZQ, Liu SH 2007 Acta Phys. Sin. 56 1467 (in Chinese)[范伟丽、董丽芳、李雪辰、尹增谦、 刘书华 2007 物理学报 56 1467]
- [2] Ouyang J T, He F, Miu J S, Feng S 2006 Acta Phys. Sin. 55 5969 (in Chinese)[欧阳吉庭、何 锋、缪劲松、冯 硕 2006 物理学报 55 5969]
- [3] Zhang H Y , Wang D Z , Wang X G 2007 Chin . Phys. 16 1089
- [4] Raizer Y P 1991 Gas Discharge Physics (Berlin : Springer) 180
- [5] Kanazawa S , Kogoma M , Moriwaki T , Okazaki S 1988 J. Phys. D: Appl. Phys. 21 838
- [6] Trunec D, Brablec A, Buchta J 2001 J. Phys. D: Appl. Phys. 34 1697
- [7] Kogelschatz U 2002 IEEE Trans. Plasma Sci. 30 1400

度为几十 ns 的脉冲 ,而低气压下 ,外加电压每半个 周期放电电流是一个持续时间约 1 µs 的脉冲. 由此 判断 ,高气压下放电为流光击穿而低气压下为辉光 放电. 通过采集均匀放电的发射光谱 ,研究 N₂⁺ 谱 线 391.4 nm 和 N₂ 谱线 337.1 nm)强度之比随气压 和电压的关系 ,确定了高能电子随实验参数的变化. 结果表明气压减小时高能电子增多 ,电压增加时高 能电子减少. 结合气体的击穿方程和熄火方程 ,对 这个实验结果进行了定性解释.

- [8] Somekawa T, Shirafuji T, Sakai O 2005 J. Phys. D: Appl. Phys.
 38 1910
- [9] Rahel J , Sherman D M 2005 J. Phys. D: Appl. Phys. 38 547
- [10] Okazaki S , Kogoma M , Uehara M 1993 J. Phys. D : Appl. Phys. 26 889
- [11] Wang X X , Luo H Y , Liang Z , Mao T , Ma R L 2006 Plasma Sources Sci. Technol. 15 845
- [12] Gallimberti I, Hepworth JK, Klewe R C 1974 J. Phys. D: Appl. Phys. 7 880
- [13] Spyrou N, Manassis C 1989 J. Phys. D: Appl. Phys. 22 120
- [14] Wang X X , Li C R , Lu M Z , Pu Y K 2003 Plasma Sources Sci. Technol. 12 358

Study on the transition from filamentary to uniform discharge in dielectric barrier discharge *

Li Xue-Chen[†] Jia Peng-Ying Liu Zhi-Hui Li Li-Chun Dong Li-Fang

(College of Physics Science and Technology, Hebei University, Baoding 071002, China)
 (Received 14 April 2007; revised manuscript received 22 May 2007)

Abstract

The transition from filamentary discharge to uniform discharge in a device with water electrodes is studied in air by electrical method and emission spectroscopy. Results show that discharge can transit from filamentary mode to uniform mode by increasing the applied voltage or decreasing the gas pressure. The discharge mechanism at high pressure is the streamer and that at low pressure is glow discharge. The relations of the number of high-energy electrons and experimental parameters were studied by optical emission spectroscopy. The results show that high-energy electrons increases in number with decreasing gas pressure and decreases with increasing applied voltage. The experimental results are explained qualitatively based on the theory of wall charge. The results are of value for the study of uniform discharge in dielectric barrier discharge.

Keywords : dielectric barrier discharge , optical emission spectroscopy , micro-discharge filament , uniform discharge mode PACC : 5280H , 5200 , 5270K

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10575027, 10647123), the Natural Science Foundation of Hebei Province, China (Grant Nos. A2006000950, A2007000134), and the Research Foundation of Education Bureau of Hebei Province, China (Grant No. 2006106).

[†] E-mail: xcli@mail.hbu.edu.cn