

介质阻挡放电系统中超四边形斑图 形成的实验研究*

董丽芳[†] 赵海涛 谢伟霞 王红芳 刘微粒 范伟丽 肖 红

(河北大学物理科学与技术学院, 保定 071002)

(2007 年 12 月 20 日收到, 2008 年 1 月 24 日收到修改稿)

采用水电极介质阻挡放电装置, 在氩气和空气的混合气体放电中, 对超四边形斑图的形成进行了实验研究. 发现随着外加电压的升高, 斑图类型经历了四边形斑图、准超点阵斑图、超四边形斑图、条纹斑图或六边形斑图的演化顺序. 对这些斑图进行了傅里叶谱分析, 得到了空间模式随电压的变化关系. 此外, 在外加电压升高的过程中, 出现了具有不同空间尺度的两种超四边形斑图, 它们满足不同的驻波条件. 分析了壁电荷在超四边形斑图形成中的作用. 实验测量了斑图类型随气隙间距和外加电压变化的相图以及超四边形斑图随气隙间距和气隙气压变化的相图. 测量了击穿电压和超四边形斑图的产生电压随空气含量变化关系, 发现随着空气含量的增大, 击穿电压和超四边形斑图的产生电压都逐渐增大.

关键词: 介质阻挡放电, 斑图, 壁电荷, 放电参量

PACC: 5280P, 0547, 0565

1. 引 言

斑图是指在空间或时间上具有某种规律性的非均匀宏观结构^[1], 是一种典型的非线性自组织现象. 它广泛存在于自然界中, 也可在不同的实验室系统中研究. 虽然各个系统斑图形成的具体机理不同, 但斑图在形态、形成及演化上具有相似性. 斑图动力学就研究这些共性. 在斑图动力学研究领域, 可按斑图包含空间波矢数的多少, 将斑图粗略地分为三类: 一类是具有单个波矢的简单斑图(如六边形斑图及条纹斑图等); 再一类是具有无限个波矢的混沌态; 还有一类就是包含两个或两个以上有限个空间波矢的超点阵斑图及准晶斑图^[2].

从以往的研究看, 对前两类斑图研究很多, 而对第三类则很少. 其主要原因是超点阵斑图不易获得, 很多系统必须采用非常复杂的实验手段才能得到. 例如, 在法拉第系统中, 需要至少加 2 个频率的外界驱动^[3]; 在化学反应扩散系统中, 需要加各种瞬时挡板作为空间周期性的初始激发条件^[2]; 在对流系统

中除了产生对流外还需要再加垂直振荡驱动^[4]; 在非线性光学系统以及铁磁流体系统中, 人们也分别采取了光学反馈^[5]和正弦磁场驱动^[6]等手段.

近年来, 介质阻挡放电(DBD)系统作为一个新兴的斑图研究系统, 以其本身发光可视、形成稳定斑图所需时间短、构成斑图的单元(放电丝)可被单独测量及控制参数调节方便等优点而备受关注^[7-17]. 特别是, DBD 中只需要一个频率的电压驱动, 就可在适当的条件下产生超点阵斑图^[7, 8, 18], 因此方法简单, 不像其他系统那样复杂. 另外, 介质阻挡放电斑图还有望应用在未来的信息处理、材料的局域生长及新近提出的等离子体光子晶体等方面^[13, 19]. 例如, 由于介质阻挡放电斑图是微放电等离子体通道的周期性排列, 而等离子体的折射率与不放电气体的折射率是不同的, 因此, 放电斑图实际上就构成了一个二维等离子体光子晶体^[13, 19].

最近, 本研究小组通过特殊设计的水电极 DBD 装置, 在气体放电中实现了多种超点阵斑图, 包括超四边形斑图、超六边形斑图及蜂窝斑图. 同时, 采用光学方法, 对这些超点阵斑图的时空动力学进行了

* 国家自然科学基金(批准号: 10575027 和 10775037), 教育部高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 20050075001), 河北省自然科学基金(批准号: A2006000950 和 A2004000086)资助的课题.

[†] E-mail: Donglfhu@163.com

研究,发现它们具有不同的时空结构。

本工作就是在上述工作基础上,进一步研究了超四边形斑图的形成以及各种放电参数对超四边形斑图形成的影响。主要目的不仅在于进一步揭示超四边形斑图形成、分岔和演化的动力学规律,还在于为超四边形斑图的应用提供基础。对光子晶体的研究表明,超点阵结构能够显著地增加其绝对禁带宽度^[20]。因此,对超四边形点阵斑图形成的研究,将对加快其在等离子体光子晶体方面的应用进程起到重要的推动作用。

2. 实验装置

实验装置如图 1 所示,放电电极由两个装满水的内径为 70 mm 的圆柱形容器组成,与高压电源两端相连的金属丝浸入到水中,圆柱形容器的两端用厚度为 1.5 mm 的玻璃封住,玻璃兼作电介质。整个电极系统放入一个密封的气室中,气室中充入比例可调的空气和氩气的混合气体。交流高压电源电压在 0—10 kV 可调,频率固定为 55 kHz。放电间隙可在 1.1—3.0 mm 之间变化。气室内的气压在 76—760 torr (1 torr = 1.33322 × 10² Pa) 之间变化。气室两侧开有观察窗,用数码相机 (DiMAGEZ2) 记录放电丝的空间分布。高压交流电源输出波形由高压探头监测,并输入数字示波器 (Tektronix TDS3052, 500 MHz) 记录。

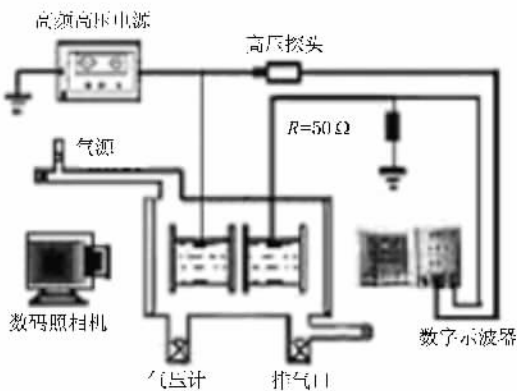


图 1 实验装置示意图

3. 结果与讨论

实验首先固定气体成分和放电间隙不变,发现超四边形斑图随外加电压的升高由四边形斑图分岔而来,继而又随外加电压的升高演化为条纹斑图或

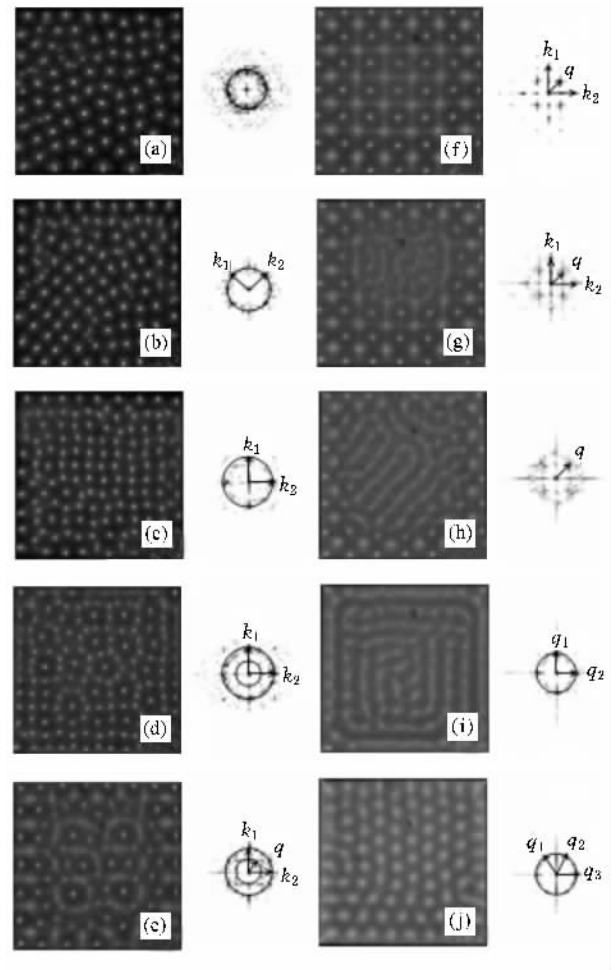


图 2 随外加电压升高,斑图的演化过程照片及其相应的傅里叶变换图。(a) $U = 2.28$ kV (b) $U = 2.92$ kV (c) $U = 3.08$ kV (d) $U = 3.32$ kV (e) $U = 3.56$ kV (f) $U = 3.8$ kV (g) $U = 3.9$ kV (h) $U = 4.2$ kV (i) $U = 4.36$ kV (j) $U = 5.08$ kV (其他实验条件:电压频率 $f = 55$ kHz,放电区域面积为 31 mm × 31 mm,照片曝光时间为 1/40 s,气隙间距 $d = 1.5$ mm,气压 $p = 760$ torr,空气含量 $\chi = 0.8\%$)

六边形斑图。图 2 给出了随外加电压逐渐升高斑图的演化照片及其相应的傅里叶变换图。照片中每个亮点代表一个放电丝。从图 2 可以看到,当外加电压超过击穿电压时,放电区域内出现少量随机走走的放电丝。随着电压的升高,放电丝个数逐渐增多,布满整个放电区域,并且逐渐排列成具有四边形对称性的结构。继续升高电压,放电丝空间频率继续增大,形成了规则的四边形斑图。随着电压的进一步升高,四边形对称性被打破,同时放电区域中出现了具有两种空间尺度的点,形成了准超点阵斑图。继续升高电压,放电区域中出现直径不同的大小两种点,它们互相嵌套构成了规则的超四边形斑图。继续升高电压,超四边形斑图从中心区域开始逐渐失稳,发生

对称性破缺,接着出现条纹斑图.进一步升高电压,大点六边形斑图代替条纹斑图占据整个放电区域.

从图 2 所示的傅里叶谱中可以看到,气体刚被击穿时,空间模式在 360° 范围内都有分布.随着电压的升高,模式逐渐集中并形成两个相互垂直的 k_1 和 k_2 模.继续增加电压则在傅里叶空间中又生长出了与 k 模具有不同空间尺度的另一模式 q . k 模和 q 模相互作用,共同决定了斑图的选择与形成.当 k 模和 q 模满足三波共振关系时,形成稳定规则的超四边形斑图.进一步升高电压使得 k 模逐渐消失, q 模占据主导地位,形成条纹斑图.再升高电压则使空间模式在 360° 范围内重新分配,从而形成六边形斑图.

图 3 给出了每种斑图的傅里叶能谱中波矢的变化情况.显见,随着外加电压的逐渐升高, k 模经历了先增大后减小,最后消失的变化过程,而 q 模则经历了从无到有,由小变大的过程.在电压较低和较高时,都只有单一模式支配着斑图的形成和选择,因此表现为简单结构的斑图,而在图 2(e)(f)及(g)三种类型的斑图中,两种模式共存,并相互作用,因而产生了结构复杂的超点阵斑图.

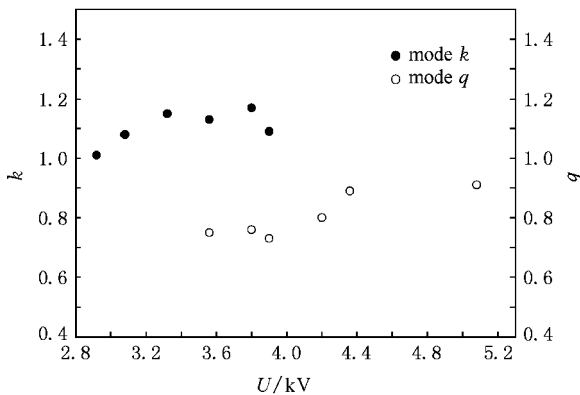


图 3 空间模式随电压的变化关系

实验中发现,当其他实验参数不变而只改变外加电压时,会出现具有不同空间尺度的两种超四边形斑图,如图 4 所示.当外加电压升高时,超四边形斑图最外层中间的一个大点会逐渐分裂为两个大点,同时在此处产生一个局部缺陷,当外加电压升高到某一值时,此局部缺陷对斑图产生全局性的影响,整个超四边形斑图中每一排的大点瞬间由原来的 5 个变为 6 个,小点由原来的 6 个变为 7 个(如图 4 所示).显见,超四边形斑图满足驻波条件,即其上点的数目只能以整数倍的形式增加.

众所周知,对于等离子体光子晶体而言,其晶格参数是一个十分重要的参数,它决定了等离子体光子晶体禁带的位置和宽度,从而影响和改变等离子体光子晶体的应用频率的范围.介质阻挡放电系统中产生的超四边形斑图作为一种等离子体光子晶体,一方面由于其具有超点阵结构,能够显著地增加其绝对禁带宽度;另一方面,外加电压的改变使得其上每一排的点的个数以整数倍的形式增加,相当于改变了其晶格参数,因而这种超四边形斑图又属于一种可调式的等离子体光子晶体,在应用中具有极大的灵活性.

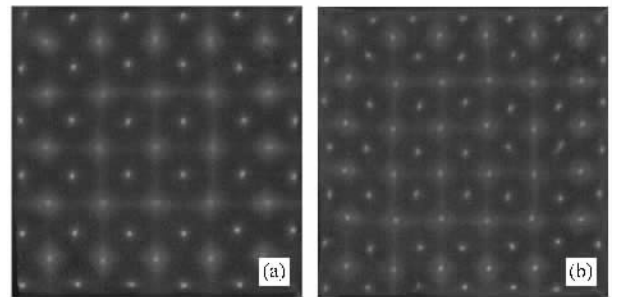


图 4 不同外加电压下超四边形斑图照片 (a) $U = 3.82$ kV (b) $U = 4.04$ kV (其他实验条件: 电压频率 $f = 55$ kHz, 放电区域面积为 31 mm \times 31 mm, 照片曝光时间为 $1/40$ s, 气隙间距 $d = 1.5$ mm, 气压 $p = 760$ torr, 空气含量 $\chi = 0.15\%$)

从非线性科学角度而言,非线性系统中模式之间的竞争与相互作用导致了斑图的形成与选择.在介质阻挡放电中,壁电荷对放电斑图的形成具有十分重要的作用.在介质阻挡放电中,当外加电压超过击穿阈值时,气体被击穿放电,产生大量的正负带电粒子.在电场的作用下,正负带电粒子分别向两极运动.由于电极表面覆盖着介质层,电荷将沉积在介质表面,形成壁电荷.壁电荷将在放电间隙内产生一个内建电场,在本半周期,内建电场与外加电场方向相反,对放电起到熄灭作用;在下半周期,内建电场与外加电场方向相同,因此对放电起到促进作用.这就是壁电荷的双重作用.

从以前的文献报道中已经知道,演化过程中产生的四边形斑图是由两套等价的交替放电的四边形子结构嵌套而成的,并且每套子结构在外加电压的上升沿放一次电^[21].当外加电压升高时,导致放电间隙间的电流增大,其中一套子结构所积累的壁电荷增多.当壁电荷增大到一定程度,以致于其形成的内建电场与外加电场之差仍然大于击穿电压时,在外加电压的下降沿又会产生一次放电.总体来说,在

此种斑图中形成了两套不等价的子结构,其中一套子结构(称为第一套子结构)仅在电压的上升沿放电,而另一套子结构(称为第二套子结构)除了在电压上升沿放电外,还会因为其壁电荷足够多而在下降沿又放一次电.根据 Klein 等人在介质阻挡放电中对一维超点阵斑图的研究可知^[22],第一套子结构在上升沿的放电以及第二套子结构在下降沿的放电所形成的放电丝形状是漏斗形,而第二套子结构在上升沿的放电所形成的放电丝的形状为圆柱形.从端面观察,漏斗形放电丝表现为一个很亮的点,而圆柱形放电丝则表现为均匀的光晕.因此,此种斑图整体上表现为小点和大点组成的超四边形斑图.很明显,大点的出现使得傅里叶谱中模式 q 完全产生,并且与模式 k 发生谐振.总之,随着外加电压的升高,壁电荷增大,使四边形中一套子点阵放电丝形成两次放电,该子点阵放电丝直径变大,即出现大点,此时产生出一个新的空间模式 q ,结果四边形斑图演化为超四边形斑图.所以,介质阻挡放电中壁电荷的增加产生了新的空间模式,这些新的空间模式与原有的空间模式相互作用,产生新的斑图.

当外加电压继续增加时,放电间隙内的电流也随之增加,此时放电电流的增加不再以单个放电丝的脉冲数增加的形式出现,而是通过放电丝个数的增加来实现.放电首先在局部增加放电丝,而后局部的缺陷使得壁电荷在介质层上重新分布,导致了超四边形斑图整体空间密度的增大,而且这种增大还必须满足驻波条件.

实验测量了超四边形斑图演化过程中外加电压与放电间隙之间的关系,得到了如图 5 所示的斑图类型相图.从图中可以看到,随着放电间隙的增大,演化过程中产生的每种斑图的电压都有所增大,但变化的幅度较小.当放电间隙增加到 2 mm 时,演化过程不再经历条纹斑图,而是直接从超四边形斑图过渡到六边形斑图.继续增大放电间隙,当宽度大于 2.2 mm 时,放电丝直径变得很大,超四边形斑图变得极不稳定和不规则,以至于无法产生超四边形斑图.

实验还研究了超四边形斑图产生的 pd 值范围,图 6 给出了出现稳定的超四边形斑图时的气隙间距和气压的关系.图中阴影部分表示稳定的超四边形斑图存在的区域,不难得出,超四边形斑图的 pd 值在 84—167 torr cm 之间($1 \text{ torr} = 1.33322 \times 10^2 \text{ Pa}$).从图中可以看到随着气隙间距的增大,产生

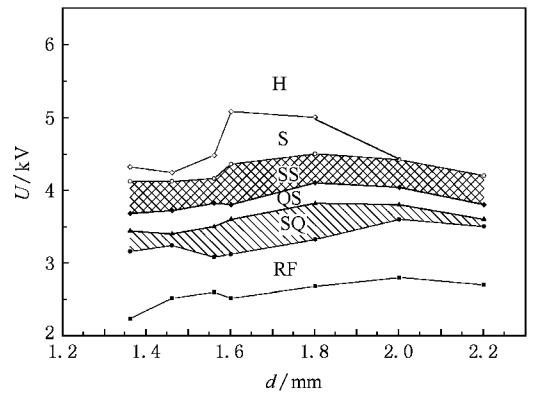


图 5 斑图类型随气隙间距和外加电压变化的相图.图中 RF 表示随机放电丝状态, SQ 表示四边形斑图, QS 表示准超点阵斑图, SS 表示超四边形斑图, S 表示条纹斑图, H 表示六边形斑图(其他实验条件: $f = 55 \text{ kHz}$, 气压 $p = 760 \text{ torr}$, 空气含量 $\chi = 0.8\%$)

超四边形斑图所需要的气压随之减小.由于实验条件的限制,无法在一个大气压以上的范围进行实验,根据气体放电随 pd 值的变化规律,当气压增大到一个大气压以上时,可通过减小气隙间距来产生超四边形斑图.

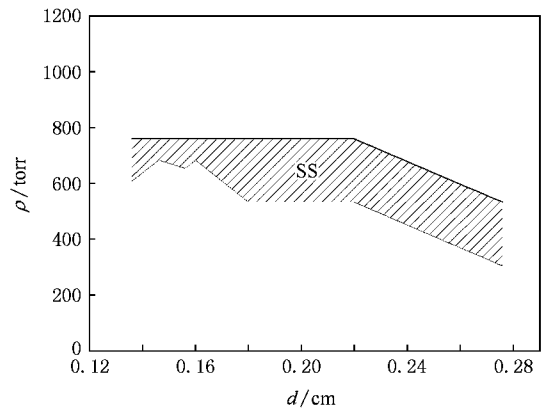


图 6 超四边形斑图存在的 pd 值范围(图中 SS 表示超四边形斑图.其他实验条件: $f = 55 \text{ kHz}$, 空气含量 $\chi = 0.8\%$)

实验发现,气体成分对超四边形斑图的产生有很大的影响:当混合气体中空气含量较大时无法产生超四边形斑图,只有当空气含量低于 5% 时才能产生稳定和规则的超四边形斑图.实验同时测量了超四边形斑图的产生电压随混合气体中空气含量的变化关系,如图 7 所示.可以发现,超四边形斑图的产生电压随着空气含量的增加而增加.图 7 还给出了气体放电电压随空气含量的变化关系,显见,其随空气含量的增加而增加.但仔细比较两条曲线,发现超四边形斑图的产生电压的变化率比击穿电压的变

化率要略高.说明超四边形斑图电压的增加不仅与击穿电压有关,而且还存在着其他的因素(如上面所讨论的壁电荷等)影响超四边形斑图电压的变化率.

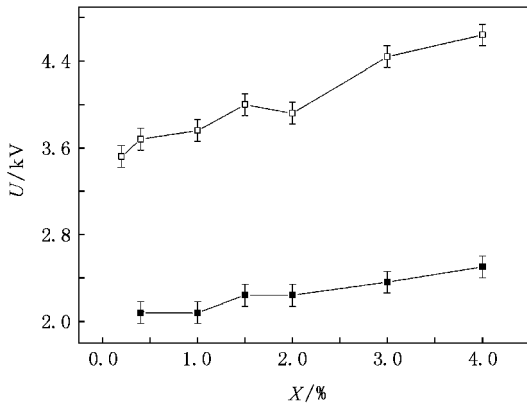


图7 超四边形斑图的产生电压与空气含量的关系(实验条件:电压频率 $f = 55$ kHz,气隙间距 $d = 1.5$ mm,气压 $p = 760$ torr. \square 为超四边形斑图的产生电压 \blacksquare 为气体放电的击穿电压)

4. 结 论

利用水电极介质阻挡放电装置,在空气和氩气的混合气体中研究了超四边形斑图的形成以及放电

参数对超四边形斑图的形成所产生的影响.实验发现,随着外加电压的升高,放电区域内依次出现四边形斑图、准超点阵斑图、超四边形斑图、条纹斑图或六边形斑图.对这些斑图进行了傅里叶谱变换,分析了在电压升高过程中空间模式的变化,发现随着外加电压的升高,模式 k 经历了从大到小,从有到无的过程,而模式 q 则经历了从无到有,从小到大的变化过程.在适当的电压下, q 模和 k 模相互作用,形成了超四边形斑图.在实验中同时发现,在适当的条件下,当外加电压不同时会产生两种空间尺度的超四边形斑图,它们满足不同的驻波条件.从介质阻挡放电的角度分析了壁电荷对超四边形斑图的形成以及 q 模的产生所起到的作用.此外,本工作还研究了超四边形斑图演化过程中外加电压与放电间隙之间的关系,发现每种斑图的产生电压都随气隙间距的增大而有所升高,当气隙间距大于 2.2 mm 时超四边形斑图无法产生.实验还得到了超四边形斑图随气隙间距和气压变化的相图,发现随着气隙间距的增大,产生超四边形斑图所需要的气压随之减小.另外,测量了空气含量对超四边形斑图的产生电压的影响,发现其随空气含量的增加而增加,并且其变化率比击穿电压随空气含量的变化率略高.

- [1] Ouyang Q 2000 *Pattern Formation in Reaction-Diffusion Systems* (Shanghai: Shanghai Scientific & Technological Publishing Education House) p2 (in Chinese) [欧阳颀 2000 反应扩散系统中的斑图动力学(上海:上海科技教育出版社)第2页]
- [2] Yang L, Dolnik M, Zhabotinsky A M, Epstein I R 2006 *Chaos* **16** 037114
- [3] Epstein T, Fineberg J 2006 *Phys. Rev. E* **73** 055302(R)
- [4] Rogers J L, Schatz M F, Brausch O, Pesch W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 4281
- [5] Vorontsov M A, Samson B A 1998 *Phys. Rev. A* **57** 3040
- [6] Pi H J, Park S Y, Lee J, Lee K J 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5316
- [7] Dong L F, Gao R L, He Y F, Fan W L, Liu W L 2006 *Phys. Rev. E* **74** 057202
- [8] Dong L F, Fan W L, He Y F, Liu F C, Li S F, Gao R L, Wang L 2006 *Phys. Rev. E* **73** 066206
- [9] Boyers D G, Tiller W A 1982 *Appl. Phys. Lett.* **41** 28
- [10] Breazeal W, Flynn K M, Gwinn E G 1995 *Phys. Rev. E* **52** 1503
- [11] Gurevich E L, Zanin A L, Moskalenko A S, Purwins H G 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 154501
- [12] Guikema J, Miller N, Niehof J, Klein M, Walhout M 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3817
- [13] Dong L F, He Y F, Liu W L, Gao R L, Wang H F, Zhao H T 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 031504
- [14] Dong L F, Ran J X, Mao Z G 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 161501
- [15] Dong L F, Liu F C, Liu S H, He Y F, Fan W L 2005 *Phys. Rev. E* **72** 046215
- [16] Zhang Y T, Wang D Z, Kong M G 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 063304
- [17] Ouyang J T, He F, Feng S, Yu Z N, Liang Z H, Wang J Q 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 031504
- [18] Dong L F, Liu W L, Wang H F, He Y F, Fan W L, Gao R L 2007 *Phys. Rev. E* **76** 046210
- [19] Sakai O, Sakaguchi T, Tachibana K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 241505
- [20] Anderson C M, Giapis K P 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 2949
- [21] Dong L F, Fan W L, Li X C, Gao R L, Liu F C, Li S F, He Y F 2006 *Acta Phys Sin.* **55** 5375 (In Chinese) [董丽芳、范伟丽、李雪辰、高瑞玲、刘富成、李树峰、贺亚峰 2006 物理学报 **55** 5375]
- [22] Klein M, Miller N, Walhout M 2001 *Phys. Rev. E* **64** 026402



Experimental investigation of square superlattice pattern formation in a dielectric barrier discharge^{*}

Dong Li-Fang[†] Zhao Hai-Tao Xie Wei-Xia Wang Hong-Fang Liu Wei-Li Fan Wei-Li Xiao Hong

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

(Received 20 December 2007 ; revised manuscript received 24 January 2008)

Abstract

The formation of the square superlattice pattern in discharge in the mixture of argon and air is investigated by using a dielectric barrier discharge device with water electrode. It is found that the bifurcation process of the patterns follows goes through the stages of square pattern ,quasisuperlattice pattern ,square superlattice pattern and the stripe or hexagonal pattern. Their spatial Fourier spectra are analyzed and the variation of the wave vector as a function of the applied voltage is determined. In addition , two types of square superlattice patterns with different spatial scales are observed with the applied voltage increasing. They all satisfy the standing wave condition. The role of wall charge accumulated in the dielectric layers in the formation of the square superlattice pattern is analyzed. Both the phase diagram on the plot of pattern type against the gas gap width and applied voltage and the phase diagram on the plot of the square superlattice pattern against the gas gap width and the gas pressure are obtained. In addition ,the changes of the breakdown voltage and the voltage of the square superlattice pattern as a function of the air concentration are determined. It is found that they increase with the increasing of the air concentration.

Keywords : dielectric barrier discharge , pattern , wall charge , discharge parameters

PACC : 5280P , 0547 , 0565

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grants Nos. 10575027 ,10775037) ,the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20050075001) ,the Natural Science Foundation of Hebei Province ,China (Grant Nos. A2006000950 , A2004000086).

[†] E-mail :Donglfhbu@163.com