

常压针-板放电等离子体密度演化

冯博文 王若愚 马雨彭雪 钟晓霞

Evolution of electron density of pin-to-plate discharge plasma under atmospheric pressure

Feng Bo-Wen Wang Ruo-Yu Ma Yu-Peng-Xue Zhong Xiao-Xia

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 095201 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201790

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201790>

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

大气压甲烷针-板放电等离子体中粒子密度和反应路径的数值模拟

Numerical simulation on particle density and reaction pathways in methane needle-plane discharge plasma at atmospheric pressure

物理学报. 2018, 67(8): 085202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172192>

飞秒激光成丝诱导Cu等离子体的温度和电子密度

Temperature and electron density in femtosecond filament-induced Cu plasma

物理学报. 2017, 66(11): 115201 <https://doi.org/10.7498/aps.66.115201>

激光诱导氮气等离子体时间分辨光谱研究及温度和电子密度测量

Time-resolved spectra and measurements of temperature and electron density of laser induced nitrogen plasma

物理学报. 2017, 66(9): 095201 <https://doi.org/10.7498/aps.66.095201>

微空心阴极维持辉光放电的时空特性

Spatio-temporal characteristics of microhollow cathode sustained discharge

物理学报. 2017, 66(5): 055101 <https://doi.org/10.7498/aps.66.055101>

同轴枪脉冲放电等离子体输运过程中密度变化的实验研究

Experimental study on coaxial gun pulse discharge plasma density change in transport process

物理学报. 2017, 66(5): 055203 <https://doi.org/10.7498/aps.66.055203>

超短脉冲激光与微小水滴相互作用中电子密度和光场的时空分布

Spatiotemporal distributions of plasma and optical field during the interaction between ultra-short laser pulses and water nanodroplets

物理学报. 2017, 66(12): 127801 <https://doi.org/10.7498/aps.66.127801>

专题: 等离子体物理及其材料处理

常压针-板放电等离子体密度演化*

冯博文¹⁾²⁾ 王若愚¹⁾²⁾ 马雨彭雪¹⁾²⁾ 钟晓霞^{1)2)†}

1) (上海交通大学物理与天文学院, 区域光通信网与新型光纤通信系统国家重点实验室, 上海 200240)

2) (上海交通大学物理与天文学院, 激光等离子体教育部重点实验室, 上海 200240)

(2020 年 10 月 27 日收到; 2021 年 3 月 14 日收到修改稿)

分别采用 Stark 展宽法、图像法诊断等离子体电子密度, 研究常压针-板放电等离子体电子密度随放电参数的演化. 实验结果表明, 降低电源的脉冲频率, 减小等离子体的电极间距和采用细径电极, 都有助于提高等离子体密度. 利用全局模型分析影响电子密度变化的因素可知, 随着脉冲频率的下降, 等离子体放电体积减小, 导致电子密度上升. 在电极间距减小的过程中, 电子密度变化则是降低等离子体吸收功率与减小放电体积共同作用的结果, 其中放电体积的减小起到了更为主导的作用, 导致电子密度上升. 此外, 采用细径电极也可以使等离子体放电体积减小, 从而有利于获得较高的电子密度.

关键词: 常压等离子体, 针-板放电, 电子密度, 放电体积**PACS:** 52.20.Fs, 52.50.Nr, 52.65.-y, 52.70.-m**DOI:** 10.7498/aps.70.20201790

1 引言

电子密度反映了等离子体的性质, 在低气压等离子体^[1,2]、大气压等离子体^[3-5]、激光诱导等离子体^[6,7]、聚变等离子体^[8,9]等领域研究中, 关于电子密度的研究是等离子体物理研究的重点. 其中, 在大气压低温等离子体领域, 追求高电子密度、高电子温度、低气体温度的等离子体是等离子体走出实验室, 进入应用领域的目标之一. 电子密度对一些关键反应物质的合成具有举足轻重的影响, 因此, 诊断电子密度随放电参数的演化, 并通过改变放电参数调控电子密度, 可以优化等离子体的特性, 进而为后续的应用研究提供技术支撑.

有关电子密度的研究主要包括对电子密度诊断方法的研究、对电子密度时空演化和随实验参数演变的研究. 其中, 对电子密度诊断方法的研究旨在探索全新的诊断技术或者对一些较成熟的诊断

技术进行改进. 例如, Torres 等^[10]根据 H_γ 谱线和 H_β 谱线各自的 Stark 展宽与电子温度和电子密度的函数关系式, 在测量两种谱线的 Stark 展宽后, 分别绘制每条谱线的 T_e - n_e 曲线, 则曲线的交叉点位置就是等离子体的电子温度和电子密度. 潘成刚等^[11]用傅里叶变换的方式提取高密度 (10^{16} — 10^{17} cm⁻³) 焊接电弧光谱的 Stark 展宽, 该方法有效地分离了谱线的高斯线宽和洛伦兹线宽, 而且无需测量气体温度和仪器展宽, 使 Stark 展宽技术应用更为便利. 针对低密度等离子体 (低于 10^{14} cm⁻³) 发射谱线所涉及到的精细结构的问题, Palomares 等^[12]改进算法在谱线精细结构中成功提取 Stark 展宽, 使 H_β 谱线测量的电子密度低至 5×10^{12} cm⁻³. 此外, Akatsuk^[13]在综述文献中总结了碰撞辐射模型, 将基于这种模型的电子密度诊断技术归纳为三种方法, 并对每种方法的优势和局限性作出评价. 2019 年, 我们课题组提出一种基于等离子体图像测量开放环境下等离子体密度的方法, 该方法不仅

* 国家自然科学基金 (批准号: 11675109) 和国家重点研发计划 (批准号: 2018YFA0306304) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xxzhong@sjtu.edu.cn

可以估算开放环境下的等离子体边界, 而且能够反映开放环境对等离子体密度的影响^[14]. 此外, 人们还针对等离子体电子密度时空演化和随实验参数演变的问题, 进行了广泛和深入的研究, 如纳秒脉冲放电等离子体电子密度时间演化的实验研究^[15,16], 外加电压与介质阻挡放电微放电通道中的电子密度、斑图形态三者之间关系的研究^[17], 电子密度的时空分布规律研究^[18,19], 脉冲形状对等离子体密度影响的模拟研究^[20]等.

为了进一步探究常压等离子体电子密度随放电参数的变化规律, 本文开展了两方面的工作, 一方面对等离子体发射光谱的原子谱线作插值处理, 以减小谱线的 Stark 展宽读取误差; 另一方面, 使用 Stark 展宽法和图像法对比研究针-板放电等离子体密度的变化规律, 并采用全局模型分析影响电子密度变化的主要因素. 实验和模型分析的结果表明, 等离子体放电体积变化是影响针-板放电等离子体密度的主要因素.

2 研究方法及原理

2.1 Stark 展宽法

Stark 展宽法作为直接且有效的电子密度诊断方法, 一直被视为大气压等离子体电子密度诊断的首要途径. 其基本原理是原子发射光谱的 Stark 展宽和电子密度之间存在一定范围内的线性响应^[21]. 原子发射光谱的展宽机制主要包含 Stark 展宽 $\Delta\lambda_s$, van der Waals 展宽 $\Delta\lambda_w$, Doppler 展宽 $\Delta\lambda_D$ 和仪器展宽 $\Delta\lambda_i$. 其中, Doppler 展宽和仪器展宽都属于 Gauss 线型, 对应展宽为 $\Delta\lambda_G$, 而 van der Waals 展宽和 Stark 展宽则同属于 Lorentz 线型, 对应展宽为 $\Delta\lambda_L$. 对这两种线型的谱线进行卷积运算, 可以得到 Voigt 线型函数的原子发射光谱, 设该光谱的线宽为 $\Delta\lambda_V$, 则上述多种展宽机制满足如下的关系式^[22,23]:

$$\Delta\lambda_w = 3.6 \times P/T_g^{0.7}, \quad (1a)$$

$$\Delta\lambda_D = 7.16 \times 10^{-7} \lambda_0 \sqrt{T_g/M}, \quad (1b)$$

$$\Delta\lambda_L = \Delta\lambda_s + \Delta\lambda_w, \quad (1c)$$

$$\Delta\lambda_G = \sqrt{\Delta\lambda_D^2 + \Delta\lambda_i^2}, \quad (1d)$$

$$\Delta\lambda_V = \left[\left(\frac{\Delta\lambda_L}{2} \right)^2 + \Delta\lambda_G^2 \right]^{\frac{1}{2}} + \frac{\Delta\lambda_L}{2}, \quad (1e)$$

式中, P 为气体压强, 单位为 atm; T_g 为气体温度, 单位为 K; λ_0 为谱线的中心波长; M 为相对原子质量. 显然, 在测量并计算得到 $\Delta\lambda_D$, $\Delta\lambda_w$, $\Delta\lambda_i$ 和 $\Delta\lambda_V$ 后, 就可以求得谱线的 Stark 展宽 $\Delta\lambda_s$.

采用 Stark 展宽法计算等离子体密度首先要确定谱线的半高全宽 (full width of half maximum, FWHM). 对于实际测量得到的谱线, 其波长采样间隔直接影响谱线 FWHM 的计算误差. 以本文所用的光谱仪为例, 其 2400 线/毫米光栅的波长采样间隔为 0.0076 nm, 根据 (2) 式和 (3) 式中所需满足的电子密度测量范围, 即使对于 H_α 和 H_β 谱线可以计算的最低电子密度 (5×10^{14} 和 $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$) 而言, 这一波长采样间隔可能引起的电子密度最大计算误差分别可以达到 38.8% 和 26.6%. 因此, 需要对实验中获得的光谱数据点进行插值处理, 降低数据的波长间隔带给电子密度的诊断误差. 如图 1(a) 所示, 如果使用原始实验采样数据, 会造成对 FWHM 边界波长的判断出现误差. 而当对实验光谱采用三次样条插值处理后, 波长数据点之间的间隔可以缩短至 0.0001 nm, 此时 FWHM 边界的判断相对更准确, 即获得更准确的 FWHM. 采用插值方法处理后, H_α 和 H_β 谱线在实际电子密度为 5×10^{14} 和 $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ 时对应的电子密度最大计算误差则分别下降到 1% 和 0.34%.

在一定波段范围内, 光谱仪的仪器展宽应该是基本一致的, 采用波长相近的激光谱线可以直接得到光谱仪的仪器展宽^[24]. 如图 1(b) 所示, 使用型号为 DH-HN250P 的氦氖激光器 (线宽 2 pm) 测得波长 632.8 nm 处光谱仪的仪器展宽为 0.023 nm, 该展宽即可视为实验中的仪器展宽 $\Delta\lambda_i$.

常压等离子体的电子密度取值一般在 10^{13} — 10^{14} cm^{-3} , 这一密度范围与氢巴尔末线的测量范围基本符合. 特别是 H_α 谱线 (656.3 nm) 和 H_β 谱线 (486.1 nm), 其电子密度的测量下限分别为 6×10^{14} 和 $4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ ^[21,25]. 因此, 通常采用这两种谱线作为电子密度的诊断工具. 对于氩气或氦气放电, 理论上还可以用 Ar I 谱线 (430 或 696.5 nm) 或 He I 谱线 (471.3, 501.6, 667.7, 728.1 nm)^[21] 测量电子密度, 但是因为测量下限高达 10^{16} cm^{-3} , 使其应用范围受到了一定的限制.

对于低密度的等离子体 ($n_e < 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$), 可通过直接测量 H_β 的 Stark 展宽 $\Delta\lambda_s$ 获得电子密度. 在这一密度范围内, $\Delta\lambda_s$ 只是电子密度 n_e 的函

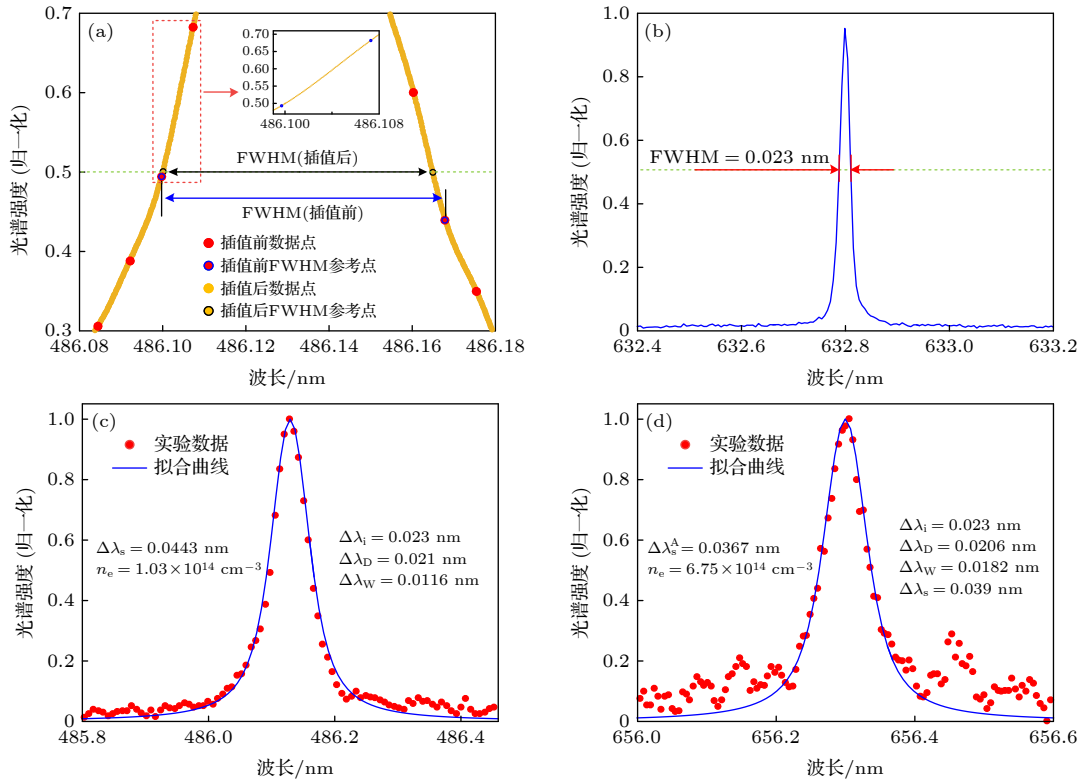


图 1 Stark 展宽法测量电子密度的相关步骤 (a) H_{β} 谱线的插值处理; (b) 光谱仪测得的氦氖激光器发射光谱; (c) H_{β} 谱线的 Stark 展宽拟合实例 (实验条件: 粗径电极脉冲放电, 频率为 5 kHz, 占空比为 50%, 电压幅值为 2 kV, 气体流量为 25 sccm (1 sccm = 1 mL/min)); (d) H_{α} 谱线的半面积 Stark 展宽拟合实例 (实验条件: 细径电极直流放电, 电流幅值为 20 mA, 气体流量为 25 sccm)

Fig. 1. Measurement steps of the electron density by using the Stark broadening method: (a) Interpolation of the H_{β} line; (b) emission line of the He-Ne laser; (c) fitting of the H_{β} line (Experimental conditions: pulsed discharge by the larger inner electrode with 5 kHz pulse frequency, 50% duty cycle, 2 kV voltage and 25 sccm gas flow rate); (d) fitting of the H_{α} line (Experimental conditions: DC discharge by the thinner inner electrode with 20 mA discharge current and 25 sccm gas flow rate).

数^[26], 表达式为^[27]

$$n_e = 10^{17} \times \left(\frac{\Delta\lambda_s}{4.8} \right)^{1.46808}, \quad (2)$$

式中, 电子密度需满足 $n_e > 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. 一组 H_{β} 谱线的 Stark 展宽拟合实例如图 1(c) 所示.

对于高密度的等离子体 ($n_e > 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$), H_{β} 谱线的 Stark 展宽不仅取决于电子密度, 同时也受电子温度的影响. 此外, 由于 H_{β} 谱线具有较低的信噪比, 且在氩气放电时易受临近的 Ar^+ 谱线 (488 和 484.8 nm) 干扰^[28], 因此当待测电子密度较大时, 则应该采用不受电子温度干扰的 H_{α} 谱线的半面积 Stark 展宽 (full width at half area, FWHM, 定义详见参考文献^[27]) 计算电子密度, 表达式为^[21]

$$n_e = 10^{17} \times \left(\frac{\Delta\lambda_s^A}{1.098} \right)^{1.47135}, \quad (3)$$

式中, 电子密度需满足 $n_e > 5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. 一组

H_{α} 谱线的半面积 Stark 展宽拟合实例如图 1(d) 所示.

由 (1a) 式和 (1b) 式可知, 谱线的 $\Delta\lambda_w$ 和 $\Delta\lambda_D$ 可以通过测量气体温度直接计算得到. 通过拟合双原子分子的辐射谱线计算气体的转动温度 T_{rot} 是诊断气体温度 T_g 的主要手段^[29]. 这种诊断方法的优点在于这是一种非接触的测量方法, 相对于一些接触性的测量技术, 如热耦合器件或探针诊断, 这种方法可以避免电磁场对测量结果的影响, 同时也不会对等离子体本身的性质造成影响^[30]. 对于常压氩气放电等离子体, 由于环境中水蒸气的存在, 可以通过拟合 OH (A-X) 谱带 (305.5—309.75 nm) 估算转动温度 T_{rot} ^[31]. 实验中使用的拟合软件为 LIFBASE^[32], 拟合实例如图 2 所示.

2.2 图像法

除了常用的 Stark 展宽法外, 本课题组提出了一种可以通过等离子体图像计算电子密度的方

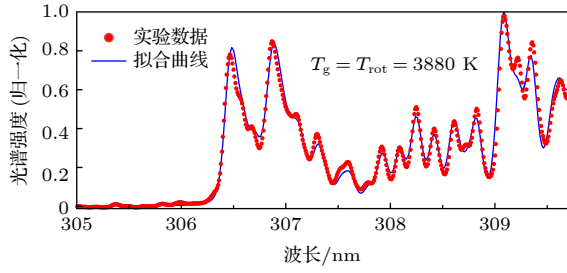


图2 拟合 OH (A-X) 谱带估算气体的转动温度 (实验条件: 粗径电极脉冲放电, 频率为 8 kHz, 占空比为 80%, 电压幅值为 2 kV, 气体流量为 25 sccm)

Fig. 2. Fitting of the OH (A-X) bands to estimate the gas temperature (Experimental conditions: pulsed discharge by the larger inner electrode with 8 kHz pulse frequency, 80% duty cycle, 2 kV voltage and 25 sccm gas flow rate).

法^[14]. 该方法基于等离子体的等效电路模型^[33], 根据主等离子体区的等效电感与电子密度之间的函数关系

$$L_p = \frac{dm}{Ae^2n_e} \quad (4)$$

就可以计算出等离子体的电子密度. 其中, L_p 为等离子体的等效电感, d 为电极间距, A 为等离子体的横截面积, m 和 e 分别是电子的质量和电荷量. 由于回路中电源的内电感远大于等离子体的等效电感, 因此等离子体的电感无法通过测量电路参数直接求得. 但是如果把等离子体近似地视作圆柱形的导体, 则其电感可以直接由圆柱导体的电感计算公式求得, 即^[34]:

$$L_p = \frac{\mu_0 d}{2\pi} \left(\ln \frac{2d}{r} - 0.75 + \frac{128}{45\pi} \frac{r}{d} - \frac{r^2}{4d^2} \right), \quad (5)$$

其中 μ_0 为真空磁导率, r 为等离子体平均半径. 根据 (5) 式和等离子体的辐射图像, 采用文献^[14] 所介绍的方法, 不但能够获得开放环境下的等离子体尺寸信息, 还可以进一步求得等离子体的电感. 将计算得到的等离子体电感及尺寸代入 (4) 式就可以获得等离子体的电子密度.

2.3 全局模型

全局模型 (global model) 是一种忽略了等离子体空间差异以便提高计算效率的数值模拟方法. 这种模型通过建立流体方程来描述等离子体的空间平均化参数, 包括电子温度、电子密度以及其他重粒子的密度^[35]. 全局模型主要基于两种方程: 粒子平衡方程和功率平衡方程. 当研究对象为电子时, 所建立的方程即为电子平衡方程. 电子产生的

主要方式共有两种: 其一是电子碰撞中性粒子发生电离产生的新电子; 其二是被电场加速的离子轰击阴极而产生的二次电子, 电子在电场中定向运动至阳极则是电子损失的主要方式. 考虑到电子密度 n_e 随时间 t 的变化率, 设阴极的二次电子发射系数为 γ_{se} , 粒子平衡方程可以表示为^[36]

$$\frac{1}{n_e} \frac{dn_e}{dt} = \nu_{iz} - \nu_{loss} (1 - \gamma_{se}). \quad (6)$$

(6) 式表明, 主等离子体区的电子密度的变化率取决于中性粒子的电离速率 ν_{iz} 以及电子损失速率 ν_{loss} . 二者的表达式分别为 $\nu_{iz} = n_g K_{iz}$, $\nu_{loss} = u_B/d$. 其中 n_g 为中性粒子的密度; K_{iz} 为中性粒子的电离速率系数, 该系数是电子温度 T_e 的函数; u_B 为玻姆速度, 同样也是电子温度的函数.

等离子体在电场中吸收的功率则通过如下两种途径消耗: 其一是电子与中性粒子发生碰撞造成的能量损失, 包括电离、激发和弹性碰撞三种过程; 此外, 电子和离子在电场中分别定向运动至阳极和阴极的过程中, 也会损失各自所拥有的动能. 因此, 设等离子体吸收的功率为 P , 考虑到电子温度 T_e 随时间 t 的变化率, 则功率平衡方程满足^[36]:

$$\begin{aligned} \frac{1}{T_e} \frac{dT_e}{dt} = & \frac{2P}{3en_e T_e V} - \left(\frac{2\varepsilon_c}{3T_e} + 1 \right) \nu_{iz} \\ & - \left(\frac{2}{3} \frac{V_s + T_e}{T_e} + \gamma_{se} \right) \nu_{loss}, \end{aligned} \quad (7)$$

其中, ε_c 是每产生一对新的电子和离子所消耗的能量, V 和 V_s 分别是等离子体的放电体积和鞘层电压. 在等离子体放电稳定后, $dn_e/dt = 0$ 且 $dT_e/dt = 0$, 设此时的电子温度和电子密度分别为 T_{ef} 和 n_{ef} , 则二者满足如下的关系:

$$n_g K_{iz}(T_{ef}) = \frac{1 - \gamma_{se}}{d} u_B(T_{ef}), \quad (8)$$

$$\frac{P}{en_{ef}V} = n_g K_{iz}(T_{ef}) \varepsilon_c(T_{ef}) + \frac{V_s}{d} u_B(T_{ef}). \quad (9)$$

在本文的模拟计算中, (8) 式和 (9) 式中的相关参数分别为: 气体分子数密度 $n_g = 2.6875 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, 即 1 标准大气压条件下的气体分子密度; 二次电子发射系数 $\gamma_{se} = 0.1$ ^[37]; 电离速率系数 $K_{iz}(T_e)$ 和能量损失 $\varepsilon_c(T_e)$ 采用 Gudmundsson 和 Lieberman 在文献^[38] 中的计算结果; 等离子体的放电体积则依据图像法的测量结果, 其他电学参数如 P 和 V_s 则直接通过实验测量得到.

3 实验结果与讨论

3.1 实验系统

实验中采用的常压等离子体放电系统的示意图可以参考文献 [14]. 电源系统包括高压直流电源 (SL2000, SPELLMAN) 和高压脉冲开关 (PVX-4110), 在实验过程中根据需要可随时组合或拆分, 以便产生需要的高压直流或高压脉冲信号. 钨钢管 (内径 1 mm) 或不锈钢毛细管 (内径 175 μm) 直接接地, 作为放电阴极, 中间通入纯净的氩气, 其端面距离液面的高度可以调节. 将铂电极插入饱和碳酸氢钠溶液, 并连接电源高压端, 使溶液成为放电阳极, 该系统即为针-板放电系统. 产生在钨钢管端面与液面之间的等离子体的发射光谱和图像则通过光谱仪 (SP-2500, Princeton Instruments) 和 ICCD (PI-MAX4, Princeton Instruments) 分别探测. 实验中 ICCD 和光谱仪被组合为一台仪器, 二者通过移动收集透镜后面的狭缝进行切换. 在脉冲放电时, 触发信号为不同频率和占空比的脉冲信号, 由任意函数发生器 (AFG3052C, Tektronix) 产生, 用于对 ICCD 和高压脉冲开关的调节和同步测量. 测量过程中, 需保证 ICCD 的曝光时间以及光谱仪的积分时间与脉冲工作时间完全匹配. 此外, 在测量光谱时, 根据等离子体的成像位置, 选取等离子体轴向正中心轴线处作为狭缝正对的位置. 因此, 实验中光谱法诊断的等离子体参数 (电子密度、气体温度), 既属于谱线积分时间内的时间平均参数, 也属于等离子体轴向位置处的空间上平均参数. 而图像法诊断的电子密度, 则既属于图像曝光时间内的时间平均电子密度, 也属于等离子体放电空间内的平均电子密度. 电路中的电流和等离子体分压则分别用电流探头 (TCP0030A, Tektronix) 和电压探头 (P6015, Tektronix) 探测并显示在示波器 (Tektronix MDO3024) 上.

3.2 脉冲频率对电子密度的影响

占空比是影响脉冲放电等离子体特性的主要方式. 改变占空比有两种方式: 其一是固定脉冲频率, 改变脉冲宽度; 其二是固定脉冲宽度, 改变脉冲频率. 我们在文献 [36] 中对前一种方案已经进行了深入研究, 相对于固定脉冲频率改变脉冲宽度的方案, 固定脉冲工作的时间, 只改变间歇时间, 则

更能体现脉冲间歇时间对放电特性的影响. 实验中脉冲频率从 2 kHz 调节到 9 kHz, 同时脉冲的占空比由 20% 增加到 90%, 从而保证脉冲宽度在实验过程中始终保持在 100 μs , 该时间也是 ICCD 的曝光时间和光谱仪的积分时间. 脉冲电源的电压幅值保持在 2 kV, 实验中使用内径为 1 mm 的钨钢管电极, 钨钢管端面与液面的间距为 2 mm, 氩气流量为 25 sccm.

图 3(a) 为使用 ICCD 采集的不同脉冲频率下的等离子体辐射强度分布图. 根据这些等离子体图像, 使用图像法计算的等离子体尺寸和电子密度如图 3(c) 和图 3(d) 所示. 图 3(c) 中的平均半径为等离子体在轴向各个位置对应的半径平均值. 图 3(b) 为采用拟合 OH ($A-X$) 谱线得到的气体温度变化曲线, 使用 Stark 展宽法得到的电子密度诊断结果如图 3(d) 所示.

图 3(d) 中两种方法的电子密度诊断曲线演化趋势都显示, 随着脉冲频率的增加, 等离子体的电子密度逐渐下降. 图 3 及后文中的所有实验数据的误差线均为 5 次测量的标准差. 因为实验中测得的电子密度为脉冲工作期间的时间平均值, 所以为了使用全局模型分析这一过程, 需要关注在脉冲工作期间, 包括脉冲开启瞬间与稳态放电两个时间段内吸收功率的变化情况. 因此有必要测得等离子体在脉冲工作期间的波形图, 如图 4(a) 和图 4(b) 所示.

在图 4(a) 和图 4(b) 中可以发现, 当改变脉冲频率时, 稳定放电状态下的极间电压和回路电流没有变化, 分别为 400 V 和 150 mA, 但是降低脉冲频率则会大幅度提高等离子体的击穿电压和击穿电流 [39], 并且延长击穿所需的时间. 这主要是由于低脉冲频率的情况下, 脉冲处于间歇期的时间较长. 前一次放电结束残留的电荷随脉冲间歇时间的延长呈指数形式衰减 [36], 使下一次放电的种子电荷数减少, 导致发生气体击穿所需时间延长, 因此对应的击穿电压升高, 击穿电流增大. 结合图 3(c) 中的等离子体尺寸数据, 基于全局模型可以计算出如图 4(c) 所示的稳态等离子体的电子温度和电子密度.

由图 4(a) 和图 4(b) 可知, 随着脉冲电源频率的增加, 等离子体在稳态放电时的吸收功率保持不变, 同时图 4(c) 的数值模拟结果显示等离子体的稳态电子温度也没有变化. 此时由于前一次脉冲结束后残留的种子电荷数在增加, 使下一次脉冲的放

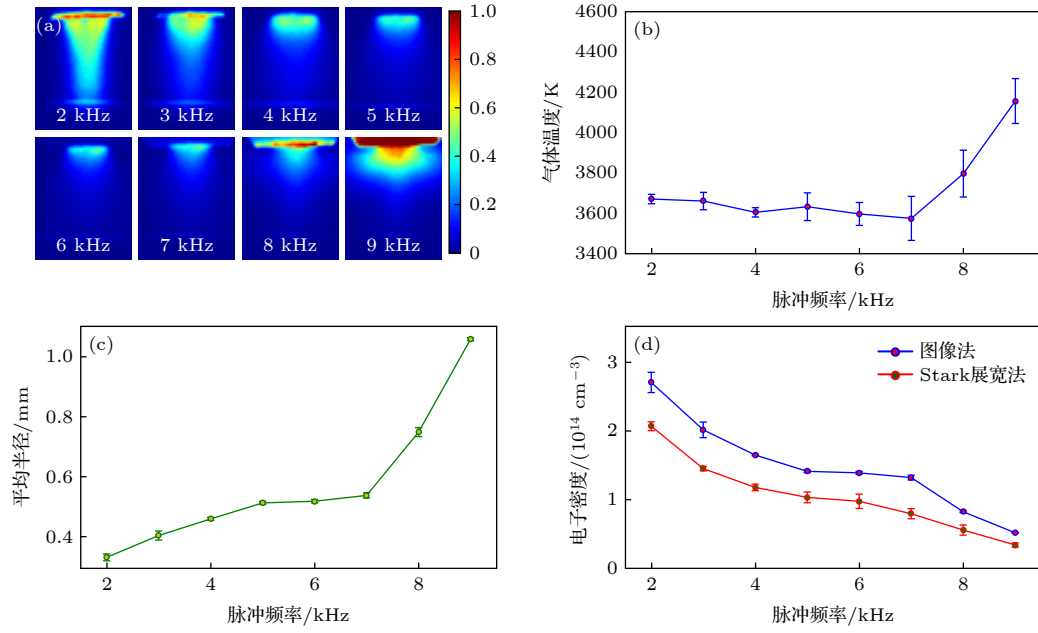


图3 不同脉冲频率下的等离子体参数测量结果 (a) 等离子体辐射强度分布图; (b) 气体温度; (c) 平均半径; (d) 电子密度
Fig. 3. Measurement results of the plasma parameters at different pulse frequencies: (a) Normalized spatially resolved emission intensity; (b) gas temperature; (c) average radius; (d) electron density.

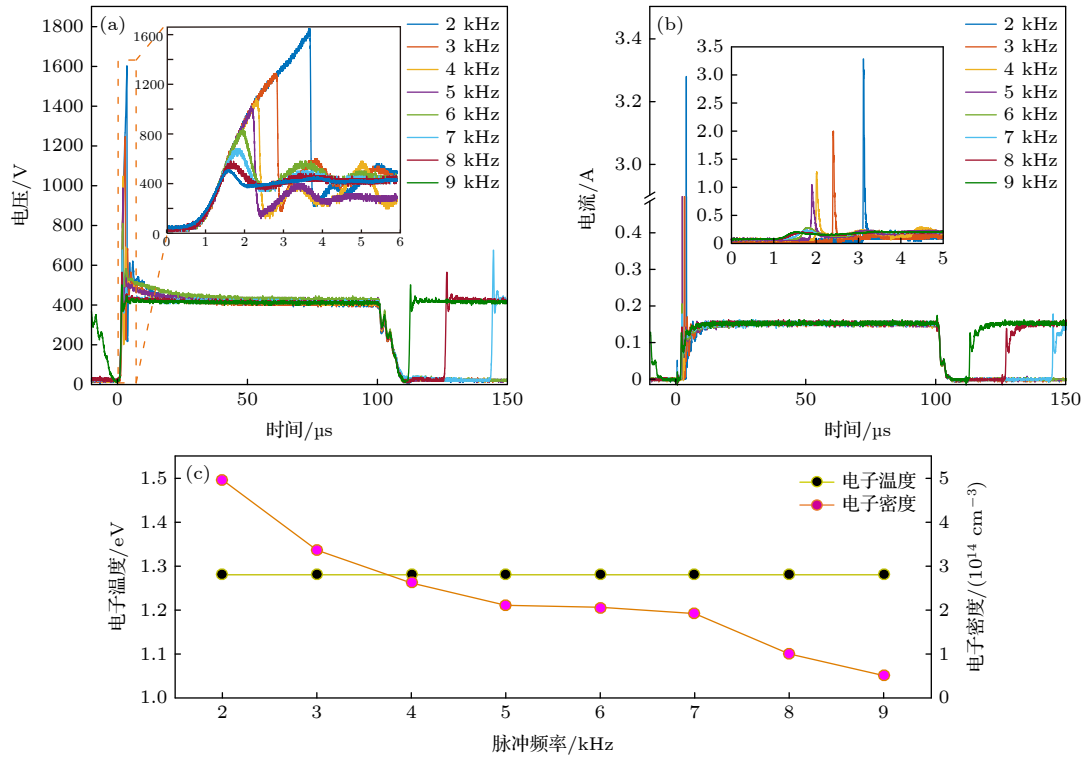


图4 不同脉冲频率时等离子体的波形图和基于全局模型的数值模拟结果 (a) 极间电压; (b) 回路电流; (c) 稳态下的电子温度和电子密度数值模拟结果
Fig. 4. Waveform and simulated results based on global model at different pulse frequencies: (a) Voltage drop; (b) discharge current; (c) simulated results of the electron temperature and electron density at the steady state.

电通道数增加^[40], 导致等离子体的放电体积在逐渐扩大, 引起等离子体稳态电子密度的下降. 另外, 图4(a)和图4(b)还显示, 在脉冲频率增加时, 峰

值吸收功率也在下降. 根据文献^[36]的报道, 脉冲间歇时间直接影响气体击穿瞬间的电子密度, 间歇时间越短, 击穿瞬间的电子密度越低. 在上述因素

共同作用下,随着脉冲频率的上升,时间平均电子密度是逐渐下降的.

在图 3(b) 中,等离子体的气体温度在脉冲频率从 2 kHz 调节到 7 kHz 时没有明显变化;而在 7 kHz 以上则呈现快速升高的趋势. 这是因为一方面在脉冲频率增加的过程中,等离子体的放电体积逐渐增大,导致具有较高气体温度的等离子体与环境空气之间发生传导散热的接触面积不断扩大,即散热效果更为明显. 另一方面,在脉冲频率由 2 kHz 增加到 9 kHz 的过程中,脉冲占空比由 20% 增加到 90%,如图 4(a) 和图 4(b) 所示,稳态时的等离子体吸收功率不随脉冲频率发生变化,因此脉冲占空比的增加意味着在一定时间内等离子体在电场中获得了更多的能量,从而导致气体温度上升到更高的数值. 两种效果相反的因素使得图 3(b) 中脉冲频率在 7 kHz 以下时气体温度变化不是很明显. 此外,根据文献 [41] 的结论,对于脉冲放电等离子体,前一个脉冲周期结束后气体的“剩余温度”越高,下一次脉冲开启后气体温度将会以更快的速度上升至更高的数值. 由于前后两次脉冲间隔的时间直接影响到气体热量的弛豫时间,这也是导致气体

温度在 7 kHz 以上时上升较快的原因. 但是如果弛豫时间足够长,放电气体温度则会直接下降至室温,此时“剩余温度”对下一次脉冲放电时的气体温度的影响则可以忽略不计.

3.3 电极间距对等离子体电子密度的影响

在常压等离子体放电系统中,改变放电系统的电极间距,也是一种直接而有效的改变等离子体特性的方式. 实验中,粗径钨钢管端面(内径 1 mm)距液面的高度依次调整为 1, 1.5, 2, 2.5 和 3 mm,同时氩气流量控制在 25 sccm,此时不再使用高压脉冲开关,而是采用高压电源进行直流放电. 在改变电极间距的过程中,通过改变电压保持回路中的电流为 50 mA. 与前文类似,不同电极间距情况下的等离子体辐射强度分布图、气体温度、平均半径和电子密度的变化如图 5 所示.

由图 5(c) 可知,随着电极间距的增加,等离子体的平均半径逐渐增大,导致电子密度下降,如图 5(d) 所示. 联系图 3(d) 中的实验结果可以发现,尽管两种诊断方法得到的电子密度演化趋势是一致的,但是 Stark 展宽法与图像法的测量结果的绝

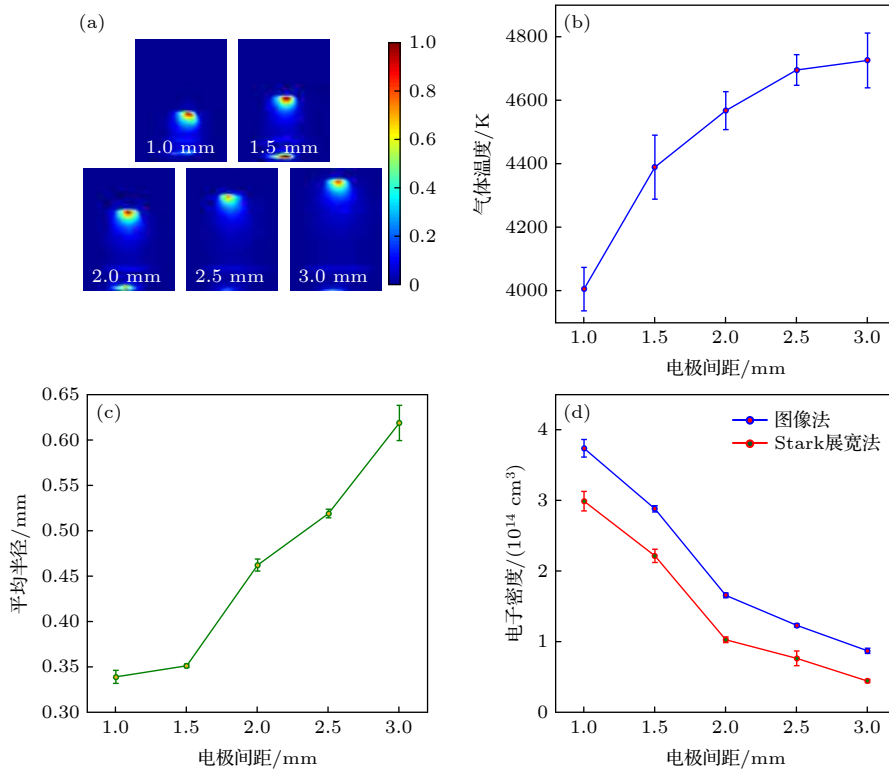


图 5 不同电极间距时的等离子体参数测量结果 (a) 等离子体辐射强度分布图; (b) 气体温度; (c) 平均半径; (d) 电子密度
Fig. 5. Measurement results of the plasma parameters at different gap distances: (a) Normalized spatially resolved emission intensities; (b) gas temperature; (c) average radius; (d) electron density.

对数值存在一定的差异. 这是因为在图像法诊断的过程中, 将主等离子体区视为标准圆柱状是一种简化近似, 这种近似必然会对图像法的诊断结果造成影响. 同时在 Stark 展宽法中, 即使采用插值的方法降低了测量误差, 但是气体温度诊断误差以及不可避免的环境扰动也会对 Stark 展宽法的诊断结果造成影响. 换句话说, 在使用这两种方法诊断电子密度时, 多种诊断误差都会对两种方法的绝对数值造成影响.

在电极间距增加、等离子体密度下降的过程中, 等离子体的吸收功率和放电体积都发生了变化, 因此, 采用全局模型作数值模拟时须同时兼顾这几种因素的影响. 通过测量得到图 6(a) 所示的等离子体在不同电极间距时的极间电压后, 可以计算得到等离子体的吸收功率. 将这一数据代入 (8) 式和 (9) 式, 基于全局模型就可以计算得到如图 6(b) 所示的稳态电子密度和稳态电子温度.

在图 6(b) 中可以发现, 与固定电极间距的情况不同, 随着电极间距的增加, 等离子体的电子温度逐渐下降. 这是因为电极间距的增加导致电子从阴极到阳极的过程中与中性粒子发生碰撞的概率增大, 使自身损失了更多的能量. 而文献 [42] 中的理论则进一步证明了吸收功率的增加对稳态电子温度几乎没有影响, 这就意味着电子将更多自身的能量传递给了中性气体, 一方面使其发生电离和激发, 另一方面也使气体的温度上升, 如图 5(b) 所示. 当气体温度上升到一定程度后, 不断增大的等离子体与空气接触面积使气体温度的上升速度逐

渐放缓.

由于此时的放电环境为直流放电, 因此只需要考虑稳态放电情况下的电子密度变化情况. 根据稳定放电状态下的功率平衡方程 (9), 等离子体的体积 (图 5(c))、极间电压 (图 6(a)) 以及稳态电子密度和电子温度的数值模拟结果 (图 6(b)) 可知, 改变电极间距会同时对等离子体放电体积和极间电压造成影响, 而电子密度的变化则是等离子体放电体积和吸收功率共同作用的结果. 其中, 放电体积增大会降低电子密度, 而等离子体吸收功率上升则会提高电子密度. 图 5(d) 的实验结果和图 6(b) 中的模拟结果则说明相比于吸收功率的增加, 放电体积的增大是增加电极间距的过程中电子密度降低的主导性因素.

3.4 电极内径对电子密度的影响

等离子体的放电体积对电子密度起到了决定性的作用. 当改变电极的内径时, 等离子体的放电体积会随之发生变化. 如图 7(a) 所示, 使用内径为 1 mm 的粗径电极和内径为 175 μm 的细径电极, 在表 1 所列的相同的放电条件下, 进行直流放电, 放电图像如图 7(b) 所示. 其中, 表 1 不仅列出放电实验参数, 也给出了对等离子体气体温度、尺寸、电子密度的诊断结果.

表 1 的数据显示, 在相同的放电条件下, 细径电极所产生的等离子体放电体积更小, 因而也更容易产生较高的电子密度. 同时, 虽然细径电极产生的等离子体与环境空气接触面积更小, 造成的传导

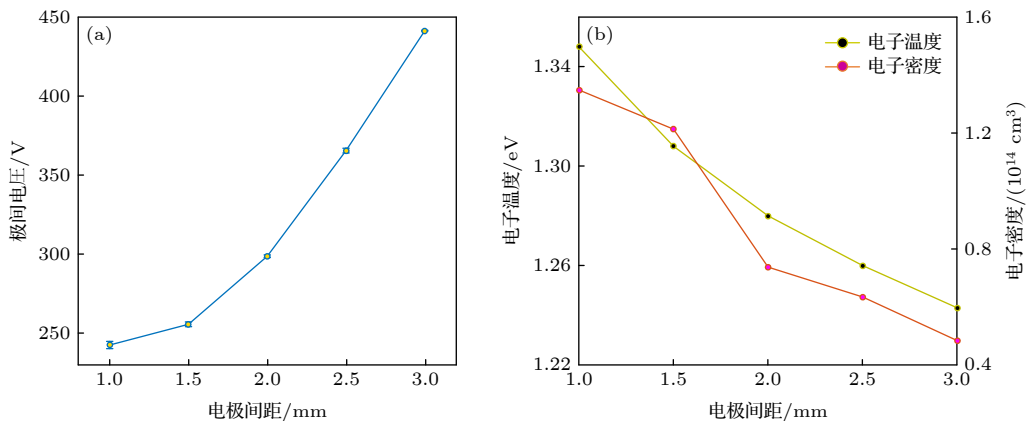


图 6 不同电极间距时等离子体极间电压和基于全局模型的数值模拟结果 (a) 极间电压; (b) 稳态下的电子温度和电子密度数值模拟结果

Fig. 6. Voltage drop and simulated results based on global model at different gap distances: (a) Voltage drop; (b) simulated results of the electron temperature and electron density at the steady state.

散热更少,但作为气体流体,气体在两种电极中的流速差异很大 (0.53 m/s, 17.31 m/s),对流传热差异使得细径电极中的气体带走了更多的热量,因此它所产生的等离子体气体温度更低一些。

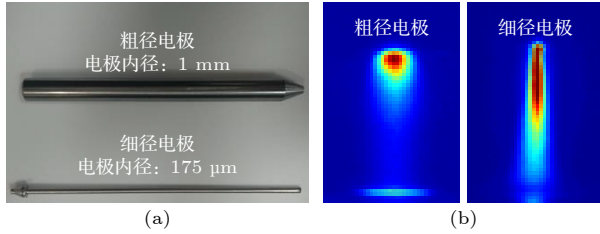


图 7 两种不同内径电极放电图片 (a) 电极实物图; (b) 辐射强度分布图

Fig. 7. Photographs of the electrodes for two different inner diameters and their plasma images: (a) Photographs of the electrodes; (b) normalized spatially resolved emission intensities.

表 1 两种不同内径电极的放电参数

Table 1. Discharge parameters of two kinds of electrodes with different inner diameters.

放电参数	粗径电极	细径电极
电极内径/mm	1	0.175
气体流量/sccm	25	25
放电电流/mA	20	20
气体温度/K	2736 ± 21	1914 ± 13
等离子体平均半径/ μm	238 ± 4.6	170 ± 1.5
电子密度 (图像法)/ cm^{-3}	$(4.61 \pm 0.13) \times 10^{14}$	$(7.91 \pm 0.12) \times 10^{14}$
电子密度 (Stark展宽法)/ cm^{-3}	$(3.73 \pm 0.45) \times 10^{14}$	$(6.46 \pm 0.68) \times 10^{14}$

4 结 论

本文首先通过插值处理原子发射光谱线型改善了 Stark 展宽的读取精度,减小了电子密度的计算误差。对比使用 Stark 展宽法和图像法,研究了常压针-板放电等离子体在不同脉冲频率,电极间距和电极内径情况下的电子密度演化情况。当脉冲频率降低时,等离子体密度上升。全局模型的计算结果指出脉冲频率降低引起等离子体放电体积减小是电子密度上升的主要原因。当等离子体电极间距变化时,放电体积和等离子体的吸收功率都会对电子密度造成影响。而全局模型的计算结果则说明,在电极间距减小的过程中,放电体积减小对电子密度上升起到了更为主导的作用。此外,电极的

内径尺寸对等离子体的放电体积也会有影响,当采用细径电极放电时,即使其他放电条件完全相同,由于放电体积受到限制,导致其产生的等离子体的密度相比于粗径电极也有提高。

参考文献

- [1] Zou S, Tang Z H, Ji L L, Su X D, Xin Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 075024 (in Chinese) [邹帅, 唐中华, 吉亮亮, 苏晓东, 辛煜 2012 *物理学报* **61** 075024]
- [2] Cui R, Han R, Yang K, Zhu W Y, Wang Y Q 1, Zhang Z, Ouyang J T 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 015018
- [3] Xin Y, Di X L, Yu Y Q, Ning Z Y 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 3494 (in Chinese) [辛煜, 狄小莲, 虞一青, 宁兆元 2006 *物理学报* **55** 3494]
- [4] Jiang C, Miles J, Hornef J, Carter C, Adams S 2019 *Plasma Sources Sci. Technol.* **28** 085009
- [5] Keudel A V, Gathe S V D 2017 *Plasma Sources Sci. Technol.* **26** 113001
- [6] Liu Y F, Ding Y J, Peng Z M, Huang Y, Du Y J 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 205205 (in Chinese) [刘玉峰, 丁艳军, 彭志敏, 黄宇, 杜艳君 2014 *物理学报* **63** 205205]
- [7] Sun H, Chang H, Rong M, Wu Y, Zhang H 2020 *Phys. Plasmas* **27** 073508
- [8] Shukla G, Shah K, Chowdhuri M B, Raj H, Macwan T, Manchanda R, Nagora U C, Tanna R L, Jadeja K A, Patel K, Mayya K B K, Atrey P K, Ghosh J 2019 *Nucl. Fusion* **59** 106049
- [9] Spong D A, Heidbrink W W, Paz-Soldan C, Du X D, Thome K E, Van Zeeland M A, Collins C, Lvovskiy A, Moyer R A, Austin M E, Brennan D P, Liu C, Jaeger E F, Lau C 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 155002
- [10] Torres J, Jonkers J, van der Sande M J, van der Mullen J J A M, Gamero A, Sola A 2003 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **36** L55
- [11] Pan C G, Hua X M, Zhang W, Li F, Xiao X 2012 *Spectrosc. Spect. Anal.* **32** 1739 (in Chinese) [潘成刚, 华学明, 张旺, 李芳, 肖笑 2012 *光谱学与光谱分析* **32** 1739]
- [12] Palomares J M, Hübner S, Carbone E A D, de Vries N, van Veldhuizen E M, Sola A, Gamero A, van der Mullen J J A M 2012 *Spectrochim. Acta, Part B* **73** 39
- [13] Akatsuka H 2019 *Adv. Phys. X* **4** 1592707
- [14] Feng B W, Zhong X X, Zhang Q, Chen Y F, Sheng Z M, Ostrikov K 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 265203
- [15] Podolsky V, Khomenko A, Macheret S 2018 *Plasma Sources Sci. Technol.* **27** 10LT02
- [16] Wang X, Stockett P, Jagannath R, Bane S, Shashurin A 2018 *Plasma Sources Sci. Technol.* **27** 07LT02
- [17] Dong L, Qi Y, Zhao Z, Li Y 2008 *Plasma Sources Sci. Technol.* **17** 015015
- [18] Yang J, Xu Y Q, Zhu L M 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 1788 (in Chinese) [杨涓, 许映乔, 朱良明 2008 *物理学报* **57** 1788]
- [19] Seo S H, In J H, Chang H Y 2006 *Plasma Sources Sci. Technol.* **15** 256
- [20] Donkó Z, Hamaguchi S, Gans T 2019 *Plasma Sources Sci. Technol.* **28** 075004
- [21] Nikiforov A Y, Leys C, Gonzalez M A, Walsh J L 2015 *Plasma Sources Sci. Technol.* **24** 034001
- [22] Balcon N, Aanesland A, Boswell R 2007 *Plasma Sources Sci. Technol.* **16** 217
- [23] Xiao D, Cheng C, Shen J, Lan Y, Xie H, Shu X, Meng Y, Li

- J, Chu P K 2014 *Phys. Plasmas* **21** 053510
- [24] Qian M, Ren C, Wang D, Zhang J, Wei G 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **107** 063303
- [25] Konjević N, Ivković M, Sakan N 2012 *Spectrochim. Acta, Part B* **76** 16
- [26] Czernichowski A, Chapelle J 1985 *J. Quant. Spectrosc. Radiat.* **33** 427
- [27] Gigos M A, González M Á, Cardenoso V N 2003 *Spectrochim. Acta, Part B* **58** 1489
- [28] Zhu X M, Walsh J L, Chen W C, Pu Y K 2012 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **45** 295201
- [29] Donnelly V M, Malyshev M V 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2467
- [30] Bruggeman P, Sadeghi N, Schram D, Linss V 2014 *Plasma Sources Sci. Technol.* **23** 023001
- [31] Bruggeman P, Iza F, Guns P, Lauwers D, Kong M G, Gonzalvo Y A, Leys C, Schram D C 2009 *Plasma Sources Sci. Technol.* **19** 015016
- [32] Doyle S J, Xu K G 2017 *Rev. Sci. Instrum.* **88** 023114
- [33] Lieberman M A, Lichtenberg A J 2005 *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing* (New Jersey: John Wiley & Sons) p390
- [34] Калантаров П И (translated by Chen T M) 1992 *Inductance Calculation Manual* (Beijing: China Machine Press) p83 (in Chinese) [卡兰塔罗夫 著 (陈汤铭 译) 1992 电感计算手册 (北京: 机械工业出版社) 第83页]
- [35] Hurlbatt A, Gibson A R, Schröter S, Bredin J, Foote A P S, Grondein P, O'Connell D, Gans T 2017 *Plasma Processes Polym.* **14** 1600138
- [36] Feng B W, Zhong X X, Zhang Q, Chen Y F, Wang R Y, Ostrikov K 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 085017
- [37] Daksha M, Derzsi A, Wilczek S, Trieschmann J, Mussenbrock T, Awakowicz P, Donkó Z, Schulze J 2017 *Plasma Sources Sci. Technol.* **26** 085006
- [38] Gudmundsson J, Lieberman M 2002 *Technical Report* RH-21-2002
- [39] He J, Hu J, Liu D, Zhang Y T 2013 *Plasma Sources Sci. Technol.* **22** 035008
- [40] Sun J, Wang Q, Ding Z, Li X, Wang D 2011 *Phys. Plasmas* **18** 123502
- [41] Adams S, Miles J, Ombrello T, Brayfield R, Lefkowitz J 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 355203
- [42] Ashida S, Lee C, Lieberman M A 1995 *J. Vac. Sci. Technol. A* **13** 2498

SPECIAL TOPIC—Several problems in plasma physics and material treatment

Evolution of electron density of pin-to-plate discharge plasma under atmospheric pressure^{*}

Feng Bo-Wen¹⁾²⁾ Wang Ruo-Yu¹⁾²⁾ Ma Yu-Peng-Xue¹⁾²⁾ Zhong Xiao-Xia^{1)2)†}

1) (*State Key Laboratory of Advanced Optical Communication Systems and Networks, School of Physics and Astronomy, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)

2) (*Key Laboratory for Laser Plasmas, Ministry of Education, School of Physics and Astronomy, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)

(Received 27 October 2020; revised manuscript received 14 March 2021)

Abstract

Based on the Stark broadening method and the imaging method, the electron densities of the plasma generated at different pulse frequencies, gap distances and inner diameters of the electrodes are diagnosed. The experimental results indicate that reducing the pulse frequency, shortening the gap distance between the electrodes, and using thinner diameter electrode are all in favor of enhancing the electron density. With the help of the global model, we perform the numerical simulation to explore the factors that influence the variation of the electron density. According to the simulations results, we find that the reduced discharge volume results in the increase of electron density with the increase of pulse frequency. When the gap distance between the electrodes is reduced, although the increased absorbed power and the reduced discharge volume both have an effect on the electron density, the reduced discharge volume plays a decisive role in these two factors. Moreover, using a thinner inner diameter electrode can also reduce the discharge volume, which is of benefit to obtaining the plasma with high electron density.

Keywords: atmospheric pressure plasma, pin-to-plate discharge, electron density, discharge volume

PACS: 52.20.Fs, 52.50.Nr, 52.65.-y, 52.70.-m

DOI: 10.7498/aps.70.20201790

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11675109) and the National Key R&D Program of China (Grant No. 2018YFA0306304).

[†] Corresponding author. E-mail: xxzhong@sjtu.edu.cn