

文章编号: 1008- 1402(2001)02- 0125- 05

常压辉光放电的建立及其特性实验研究

史庆军, 顾 彪, 邓 祥

(大连理工大学电气工程与应用电子技术系, 辽宁 大连 116023)

摘 要: 常压辉光放电(APGD)是新近发展起来的一种等离子体源,与低气压辉光放电相比更具有工业应用前景。本文详细介绍我们实验室在大气压条件下建立的均匀稳定、介质垒控制的辉光放电等离子体发生装置。该放电发生器采用频率为 10kHz 和 20kHz 高压电源,平板电极结构,电极覆盖绝缘层,间隙 2~ 3mm,可在多种气体环境下稳定运行。放电电流波形和电压- 电荷李萨如图形的测量充分表明它是常压下的均匀辉光放电。

关键词: 气体放电; 常压辉光放电(APGD); 等离子体

中图分类号: O 461; O 531 **文献标识码:** A

0 问题的提出

近一、二十年来,气体放电在微电子技术、激光、材料的改性和合成等高新技术的发展中起着相当重要的作用。

外加电场可以有效地把能量直接传递给反应体系中的气体原子,促使气体被击穿和电离,是人们广泛采用的一种直接、有效获得等离子体的方法。迄今,人们在实验室和生产实践中研究了各种各样的气体放电形式。典型的气体放电形式及参数如表 1 所示。

表 1 典型的气体放电种类及其相关参数^{[1],[2]}

类别	气压	电子浓度	电子平均能量	气体温度	电场强度
	P (Torr)	n_e (cm^{-3})	(eV)	T_g (K)	E (V/cm)
弧光放电	> 100	> 10^{14}	~ 1	~ 10^4	< 20
辉光放电	< 100	$10^9 \sim 10^{12}$	2~ 8	~ 7×10^2	50~ 10000
电晕放电	> 100	< 10^6	< 3	~ 4×10^2	~ 2×10^4
介质阻挡放电	> 100	$10^{14} \sim 10^{15}$	1~ 10	~ 3×10^2	$10^3 \sim 10^5$

由该表可以看出,辉光放电和介质阻挡放电(DBD)是具有较高电子能量的非平衡等离子体,非常适合工业化应用。但是辉光放电目前还只能在低压下才能获得,并需要有真空系统和具有严格密封的真空罩反应器,工艺过程复杂,能耗大,成本高,难以实现流水化作业,将其应用于市场极其广阔的产业- 如薄膜与织物的表面改性时受到了很大的限制。例如, Rakowski W^[3]曾采用低气压辉光放电等离子体(2~ 6torr)成功地实施了对羊毛条的改进,其能耗比氯化处理工艺(7kwh/kg 羊毛)降低了 10~ 20 倍,而且节水,无有毒气体与污染物排放,但由于上述原因而未能获得实用。

介质阻挡放电是近十年来发展起来的一种放电形式,由于能在常压下运行而在臭氧合成、环境保护、聚合材料的表面改性等方面获得了广泛应用。通常在高气压(0.1MPa),电极间距 $d > 0.1\text{mm}$ 时,介质阻挡放电击穿被认为是主要机制^[4]。这是一种高压下的非平衡放电,其电极结构特征是它的电极(至少有一个)被绝缘介质层所覆盖。放电空间的带电粒子在电场作用下的电子繁流和迁移运动使带电粒子沉积

收稿日期: 2001- 5- 8

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(项目号 100075010)

作者简介: 史庆军(1966—),男,黑龙江穆稷人,佳木斯大学信息电子技术学院讲师,大连理工大学硕士研究生

在绝缘介质层上,所形成的壁电荷抵消了外电场,并使电子繁流猝灭,因此这是一种放电着火又猝灭的暂态过程。从而,在电极间形成大量的电流细丝通道,即微放电。每个微放电寿命 $< 10\text{ns}$,圆柱状细丝的半径约为 0.1mm ,平均看来貌似均匀的辉光放电。但是值得注意的是,介质阻挡放电具有较高的能量密度^[5],虽然在材料表面改性工业化中具有低气压辉光放电无法比拟的优点,但是在化纤织物与薄膜的改性实验中,我们发现电流细丝对织物表面的刻蚀作用很强烈,控制不当极易造成损伤^[6]。因此,研究开发一个大气压下工作的,均匀稳定大面积常压辉光放电等离子体(APGD)是一个颇具理论和实用价值的课题。据科技情报查询,国内至今尚未见对常压辉光放电等离子体及其应用研究的报道。

一般认为,辉光放电等离子体只能在低气压(几torr)状态下才能产生。这是因为在低气压下,气体压强与放电间隙的乘积 p_d 值很小,即使折合击穿电场 E/n 很高,电子也无法经历足够次碰撞以使电子雪崩达到足够大,空间电荷场的幅度也比高压情况下的,这样离子将有足够时间向阴极运动,从阴极表面激发出二次电子。因此通常获得的是汤生放电或辉光放电。

对常压辉光放电的研究有很长的历史了。1933年Von Engle等^[7]研究了在低气压 H_2 条件下引燃再过渡到常压的辉光放电等离子体特性,但由于需要真空条件及对电极的温度控制而限制了应用。由于该放电形式良好的工业化应用前景,近年来受到了各国研究人员的高度重视,获得了很大的进展。1988年,Kanazawa等^[8]首先报道了常压辉光放电的建立,但是建立条件依然苛刻,需要满足三个条件,即(1)激励源频率需在 1kHz 以上;(2)两个金属电极之间必须要有绝缘介质存在;(3)必须使用昂贵的氦气作稀释气体。1993年Okazaki^[9]和1997年Roth等^{[10][11]}使用特定形式的电极和较低的电源频率,在空气等多种气体中建立了常压辉光放电,并尝试用来对pp材料进行表面改性。

APGD是一种新的放电形式,不同于低气压辉光放电,对其放电特性及等离子体特性进行实验测定,进而对其建立过程和机制进行研究,是非常必要和较困难的事情。目前国际上对它的研究尚处于起步阶段,对其等离子体特性的研究报道则更少。Massines^[12]和Okazaki^[9]分别通过计算机模拟和实验研究,初步揭示了这种放电区别于细丝放电的基本特征和判别依据。

我们实验室在电晕放电和无声放电等离子体化纤改性研究结果的基础上,通过对常压下的介质阻挡放电特性分析,经过大量实验和摸索,对电晕放电等离子体处理装置进行电极改造,调变频率、电压及改变工作气体组分,将辉光放电条件延伸到大气条件下,建立了常压辉光放电等离子体源。与已报道的放电装置相比,该放电采用平板电极结构,可工作在 10kHz 和 20kHz 频率下,配置简单,放电均匀、稳定,既克服了传统的对电极形式要求很高的技术难题,又拓宽了工作气体的种类。

本文详细介绍该放电装置的组成及工作条件,通过对其基本特性的电测量,结果充分表明其为常压辉光放电。

1 常压辉光放电的建立

工业用等离子体常常由高频放电产生。电源频率从 1kHz 到 10GHz ,覆盖了很宽的电磁频谱范围。甚低频VLF($3\text{kHz}\sim 30\text{kHz}$)及低频LF($30\text{kHz}\sim 300\text{kHz}$)等离子源可以提供较高的电场,产生的等离子体均匀稳定,电子温度及粒子的活性都很高,在工业应用中技术成熟。虽然,高频放电等离子体发生装置要比直流放电复杂,但是这些附加设备的功耗与复杂性应就其运行的优点来做出评判。这些优点已被许多工业

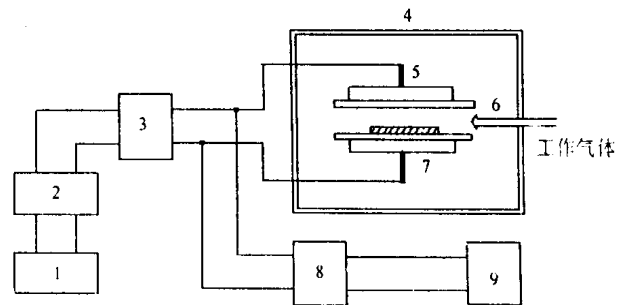


图1 常压辉光放电等离子体改性装置
1—交流高压发生器 2—高频变压器 3—匹配网络
4—放电室 5—电极 6—介质 7—待改样品
8—取样网络 9—测量系统

应用所证实^[13]。

我们建立的常压辉光放电等离子体源如图 1 所示 它由交流高频电压源、高频变压器、匹配网络、放电室、供气系统和测量系统等部分组成 高压发生器采用可控硅变频, 分别输出固定频率 10/20kHz、功率可调的电流电压加到高频变压器的初级, 在次级输出 1~ 12kV 的交变电压, 带动放电电极 由于放电等离子体呈容抗性质, 在高频电源与放电反应器之间所加阻抗匹配网络是必需的 为了高效率产生大面积、均匀高密度等离子体, 我们采用内电极平板型结构 另外绝缘介质的种类和厚度也是很重要的因素 放电电极配置及其工作条件如表 2 所示

表 2 常压辉光放电装置电极配置及工作条件

气压	760Torr	760Torr
工作气体	He, Ar, Ar/乙醇, Ar/丙酮	He/Ar, Ar/乙醇
电极面积	234cm ²	234cm ²
放电间隙	2mm	2~ 3mm
工作频率	10kHz	20kHz
工作电压	> 3kV	> 3kV
绝缘介质厚度	2mm	2mm

2 常压辉光放电基本特性测量

通过对 DBD 放电特性的基本分析和选择合适的放电频率、放电间隙和绝缘介质等大量实验, 实现了常压下的辉光放电 从放电情况来看, 极间放电均匀, 充满辉光, 没有观察到细丝的出现和臭氧生成 然而, 该放电是否是大量细丝耦合而成还无法确定

限于实验条件, 我们采用电磁测量手段对 APGD 的基本电特性—伏安特性和电压—电荷李萨如图形进行了测量, 并通过获得的测量结果讨论这种新型放电的基本特征 测量原理图分别如图 2, 图 3 所示 电源电压 V_i 波形通过 30M Ω 和 100k Ω 电阻构成取样网络来测量, 放电电流 I_d 通过与放电电极串联的小电阻 (51 Ω) 获得 利用电容上的电压正比于电荷关系, 通过在回路中串联一个比介质等效电容大的多的电容 (0.47 μ F) 获得电极极板上的电荷 Q . 测量结果如图 4, 图 6 所示

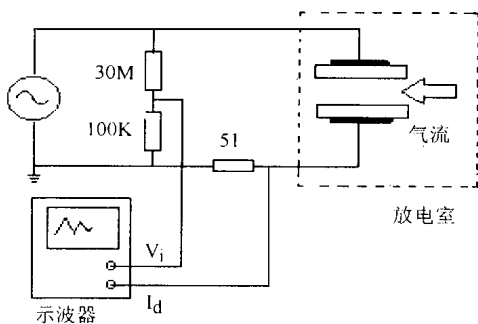


图 2 常压辉光放电电压、电流测量

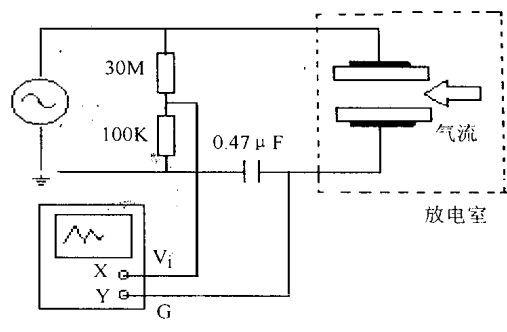


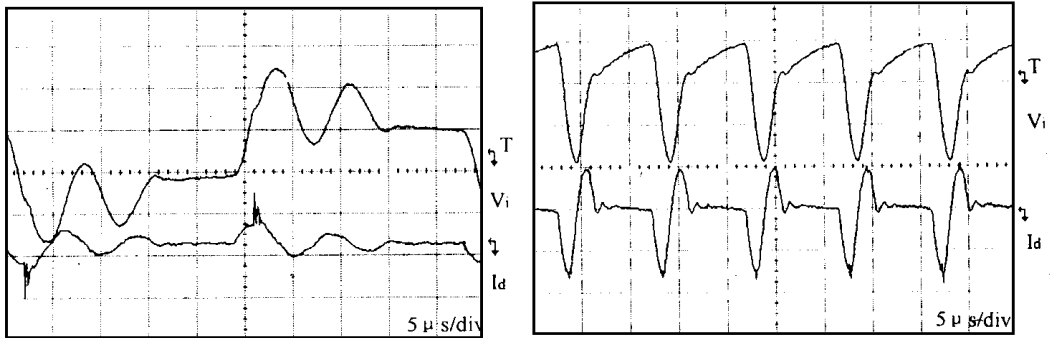
图 3 常压辉光放电电压—电荷李萨如图形测量

3 结果讨论

由图 4 放电电压- 电流示波图可以看出, 尽管激励电源波形不同, 频率不同, 但放电的电流波形非常相似, 即均为单脉冲形式, 分别出现在电压的正负半周, 其周期与电源频率相同 ((b) 除外, 因该电源关系, 输出正半周电压小于气体着火电压), 脉冲幅度约为 60mA, 持续时间约为 1~ 2 μ s

该放电电流的主要特性是各放电脉冲出现的周期相同, 也就是说, 它与外界电压具有相同的周期性 这种放电过程可解释为: 同 DBD 放电类似, 由于合适的绝缘介质对电荷的积累作用, 在电源电压还未达到最大值时, 间隙中的气体电压 V_g 的增长足以点燃放电 瞬间放电释放的电荷与介质板表面上的积累电荷中和将导致 V_g 迅速下降直至电流变小以致无法补偿外界电压的增大, V_g 下降导致放电熄灭, 避免了阴极

斑点的形成 在电压负半周, 外电压和记忆电压共同使气体电压向反向增大直至达到击穿电压, 继而产生新的放电



(a) 电源频率为 20kHz

(b) 电源频率为 10kHz

图 4 常压辉光放电电压、电流测量示波图

应该注意的是, 一次放电结束后, 即使外界电压增大直到最大值, 但是由于绝缘介质的存在, 气体电压在放电过程中下降较大, 因此看不到放电 这与通常的细丝放电特性(图 5)截然不同 在那里, 放电从某电压值一直持续到电压达到最大值为止 这种现象表明, 放电结束时, 电极整个表面均匀带电 实验发现, 放电气体组分、绝缘介质的种类和厚度是决定常压辉光放电产生的非常重要的因素

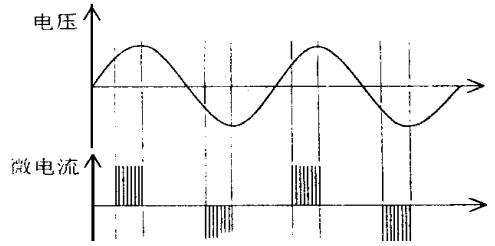


图 5 细丝放电特性示波图

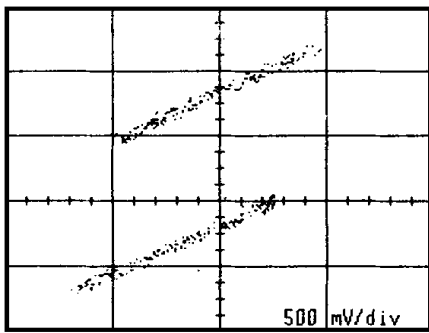


图 6 常压辉光放电电压—电荷李萨如图形

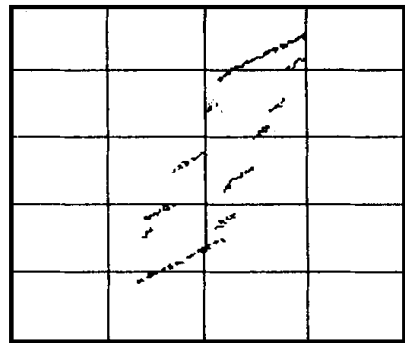


图 7 DBD 放电电压—电荷李萨如图^[9]

图 6 表明这种放电的李萨如图形仅由上下两条平行线组成, 区别于细丝放电(图 7). 其原因是: 由于 A PGD 放电电流在外加电压的半个周期内为单脉冲形式, 且在放电瞬间电压几乎不变, 放电脉冲持续时间极短(见图 4), 因此放电瞬间放电电极上电荷变化异常迅速, 而在李萨如图形上反映这种变化的应该是平行四边形的垂直两条边, 故无法看到 这种变化与已测得的放电电流的变化曲线是非常吻合的, 也同 Massines 的理论模拟相吻合 这说明, 我们建立的常压放电确实是一种常压下的瞬间连续放电, 即辉光放电

4 结 论

我们通过对介质阻挡放电特性的分析和对电晕放电等离子体装置的合理改造, 获得了稳定均匀的常压放电 放电电压电流波形及电极上电压—电荷的李萨如图形的测量结果充分表明该放电为常压辉光放电, 可稳定地运行在设计所期望的状态 与已有各装置相比, 该放电采用平板电极结构, 面积大、放电均匀, 配置简单实用, 可工作在 10kHz 和 20kHz 频率下, 既克服了传统的对电极形式要求很高的技术难题, 又拓

宽了工作气体的种类, 特别是不再依赖于较昂贵的氦气, 可以使用有机气体如乙醇、丙酮等, 且只需简单密封即可。实践表明, 利用该放电产生的非平衡等离子体进行涤纶织物表面改性, 亲水性显著提高, 吸水时间由原来的 1800 秒减少到 1 秒左右, 对碱性紫染料的染色深度提高了三倍

参考文献:

- [1] 赵化侨. 等离子体化学与工艺[M]. 安徽: 中国科学技术大学出版社, 1993 P111.
- [2] 徐学基, 诸定昌. 气体放电物理[M]. 上海: 复旦大学出版社, 1996 P309- 327.
- [3] Rakowski W. Plasma modification of wood under industrial conditions [J]. *Melliand Textilber*. 1989, 70: 780- 785.
- [4] Yokayama T, Kogoma M, Moriwaki T and Okazaki S. The mechanism of the stabilization of glow plasma at atmospheric pressure [J]. *J. Phys D: Appl Phys* 1990, 23: 1125~ 1128 [5] Eliasson B and Kogelschatz U. *IEEE trans Plasma Sci* 19(1991): 309 - 323.
- [5] Eliasson B and Kogelschatz. Dielectric- barrier discharges: principle and applications [J]. *J. De physique* 1997, 4: 47- 66.
- [6] 张砚臣. 高分子材料表面等离子体改性研究. D. 大连理工大学: 大连理工大学图书馆 1997. 77.
- [7] Von Engle A, Seeliger R and Steenbeck, M. On the glow discharge at high pressure [J]. *Z. Physik* 1933, 85: 144- 160.
- [8] Kanazawa S, Kogoma M, Moriwaki T and Okazaki S. Stable glow plasma at atmospheric pressure [J]. *J. Phys D: Appl Phys* 1988, 21: 838- 840.
- [9] Okazaki S, Kogoma M, Uehara M. and Kimura Y. Appearance of stable glow discharge in air, argon, oxygen and nitrogen at atmospheric pressure using a 50Hz source [J]. *J. Phys D: Appl Phys* 1993, 26: 889- 892.
- [10] Roth J. R., Spence P. D and Liu C. Preliminary measurements of the plasma properties of a one atmosphere glow discharge plasma [J]. *APS Bull* 1993, 38(10): 1901.
- [11] Tsai P. P., Roth J. R. et al. Surface modification of fabrics using a one- atmosphere glow discharge plasma to improve fabrics wettability [J]. *Textile Res J.* 1997, 67: 359- 369.
- [12] Massines F, Rabehi A, Decomps P et al. Experimental and theoretical study of a glow discharge at atmospheric pressure controlled by dielectric barrier [J]. *J. Appl Phys* 1998, 86(6): 2950- 2957.
- [13] Roth J. R. *Industrial Plasma Engineering*[J]. Institute of Physics Publisher, Bristol, U. K. 1995 ch 9 785- 786.

ESTABLISHMENT OF THE ATMOSPHERIC PRESSURE GLOW DISCHARGE PLASMA AND EXPERIMENTAL STUDY ON ITS CHARACTERISTICS

SHI Qing-jun, GU Biao, DENG Xiang

(Department of Electrical and Electronic Engineering, Dalian University of Technology, Dalian 116023, China)

ABSTRACT: The atmospheric pressure glow discharge (APGD) is a new kind of plasma source that has been recently developed. It has wider industrial application prospects compared with low-pressure glow discharge. A stable, homogeneous glow discharge plasma device produced in our laboratory and controlled by dielectric barrier at 1atm is introduced in detail. It is capable of operating by using 10/20KHz- power supply, a parallel plate configuration with electrodes being covered by insulating surfaces, 2mm of gap distance and many kinds of working gases. The measurements of the discharge current pulse shapes and lissajous figure of voltage- electric charges provide sufficient evidence that this is really a uniform glow discharge at atmospheric pressure.

KEY WORDS: gas discharge; atmospheric pressure glow discharge (APGD); plasma