

常压射流等离子体发射光谱研究

李 驰¹, 唐晓亮^{1,2}, 邱 高^{1,2*}

1. 东华大学理学院, 上海 201620

2. 东华大学材料科学与工程学院, 上海 201620

摘 要 使用改进介质阻挡放电装置生成常压射流等离子体, 采用光纤光栅光谱仪在 300~1 000 nm 范围记录了不同放电电压的氩气发射光谱, 并比较了空气和氩气常压介质阻挡放电等离子体发射光谱, 分析发现氩气发射光谱中的谱线都是氩原子的发射谱线, 表明常压射流装置产生的等离子体全部为氩等离子体, 而无其他空气成分参与放电。为测量电子激发温度, 选用相距较近的 763.51 和 772.42 nm 两条光谱线对电子温度进行分析, 结果表明电子激发温度的范围在 0.1~0.3 eV, 而且它还随着放电电压的增加而增加。初步使用“红外测温仪”测量被处理材料表面温度, 结果发现材料表面的温度也随着放电电压的增加而增加, 范围在 50~100 ℃, 材料表面温度的变化趋势可以近似表征等离子体宏观温度变化趋势。通过分析常压射流等离子体的温度特性, 探讨了常压射流等离子体温度对材料改性研究的意义。

关键词 介质阻挡放电; 光谱诊断; 射流等离子体; 电子温度; 材料表面温度

中图分类号: O461.2 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2008)12-2754-04

引 言

介质阻挡放电(DBD)是一种典型的非平衡态的交流气体放电, 又称无声放电。由于 DBD 能够在大气压气体中产生非平衡态等离子体而被广泛应用于等离子体显示、臭氧制造、照明、废水处理、材料表面改性等^[1-7]。本实验通过改进常压介质阻挡放电装置, 产生射流“氩”等离子体, 并对等离子体进行光谱诊断, 测量“氩”等离子体的电子温度, 并利用“红外测温计”测量等离子体宏观温度, 实现对常压等离子体材料表面改性的实时监测。

1 实验装置与方法

实验采用了改进的介质阻挡放电装置, 在平行板电极中间放置厚度为 2 mm、外径 8 mm 的陶瓷管, 将频率为几十 kHz 的高频高压交流电加在两电极之间, 当电压超过击穿电压时, 陶瓷管内的氩气会被电离而形成“氩”等离子体。由于氩气不断从气瓶流出, 管内产生的等离子体会喷射出来而形成射流“氩”等离子体。本实验使用高压探极和示波器对等离子体放电装置两端的电压和电流进行测量, 将 HR2000 光纤

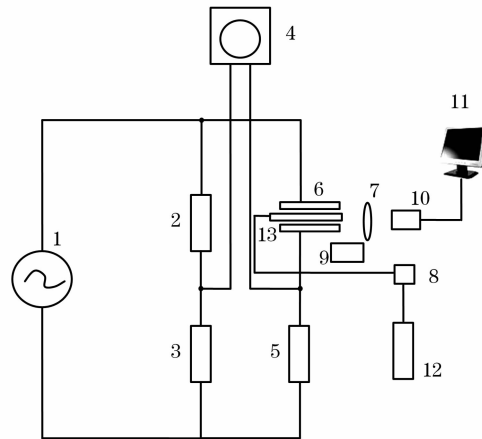


Fig. 1 Experimental arrangement of spectroscopic diagnostics of dielectric barrier discharge

1: Power; 2, 3: Resistance ($R_2/R_3 = 1\ 000$); 4: Digital oscilloscope; 5: Current-sampling resistance ($R = 100\ \Omega$); 6: Electrodes; 7: Lens system; 8: Flowmeter; 9: Infrared thermometer; 10: Optical fiber; 11: PC; 12: Gas bottle; 13: Earthenware pipe

光栅光谱仪放置在常压介质阻挡放电等离子体喷射装置前来测量等离子体发射谱线, 使用 OOIBase32 光谱软件系统将光

收稿日期: 2007-05-26, 修订日期: 2007-09-06

基金项目: 上海市教委“曙光计划”项目(02SG28)资助

作者简介: 李 驰, 女, 1983 年生, 东华大学等离子体物理专业研究生 e-mail: lc4869@163.com

* 通讯联系人 e-mail: gqiu@dhu.edu.cn

谱信息输入到计算机,如图 1 所示。在实验中,能实时从计算机获得准确读数。喷射等离子体的宏观(离子)温度由红外温度计(TN1)近似测量。常压射流氩气放电形貌如图 2 所示。



Fig. 2 Atmospheric pressure argon plasma jet

电子温度是等离子体的基本参数之一,其诊断技术的发展对常压等离子体材料改性的研究有着非常重要的实际意义^[8]。由于气体放电中的光发射谱线是与等离子体的电子温度有关,因此通过测量等离子体发射光谱,可以来确定它的电子温度。采用等离子体局部热平衡近似,同一元素两条光谱线强度的比值可表示为^[9-12]

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

式中 λ_1 和 λ_2 是谱线 1 和谱线 2 的波长, g_1 , A_1 和 g_2 分别为能级 E_1 和 E_2 的统计权重与跃迁概率。对(1)式取自然对数可得电子温度

$$kT_e = (E_1 - E_2) / \left(\ln \frac{A_1 g_1 \lambda_2}{A_2 g_2 \lambda_1} - \ln \frac{I_1}{I_2} \right) \quad (2)$$

通常,不同方式产生的等离子体因场强、压力、温度条件不同,其活性粒子密度及稳定性都不同,一般弧光放电等离子体因其高温而不适合纺织纤维的处理,低温等离子体是在高压和高频电场作用下进行辉光放电而使部分气体分子被电离,产生高温的电子在常温或接近常温的气体中穿梭运动并发生碰撞^[13]。低温等离子体在材料改性方面已经取得了许多比较大的进展^[6],但由于一些材料(如羊毛)的耐热性比较低,过高的温度容易造成表面烧蚀,所以等离子体宏观(离子)温度的测量也对材料表面改性有着重要意义。

红外测量等离子体宏观温度是利用了黑体辐射原理,因其具有非接触的特性,在对有一些距离的物体进行温度测量时,具有可靠、方便等优势,对它进一步的研究,无论是在军事上,还是在其他国民经济领域里,均具有重要意义^[14]。在给定温度和波长的条件下,物体发射的辐射能有一个最大值,这种物质称为黑体,并设定其反射系数为 1,其他的物质反射系数小于 1,称为“灰体”,由于黑体的光谱辐射功率与绝对温度 T 之间满足普朗克定理^[15]

$$P_b(\lambda T) = \frac{c_1 \lambda^{-5}}{[e^{c_2/T} - 1]} \quad (3)$$

其中 $P_b(\lambda T)$ 为黑体的辐出度, λ 为波长, T 为绝对温度, c_1 和 c_2 为辐射常数。根据斯特藩—玻尔兹曼定理^[15, 16]: 黑体的辐出度 $P_b(\lambda T)$ 即黑体表面单位面积上所发射的各种波长的总辐射功率与温度 T 的 4 次方成正比,即

$$P_b(\lambda T) = \sigma T^4 \quad (4)$$

式中 σ 为斯特藩常数, T 为热力学温度。相同情况下,物体辐射的功率总是小于黑体的功率,它们之比被称为物体的“单色黑度”,即

$$\epsilon(\lambda) = P(T)/P_b(T) \quad (5)$$

对于不同的物质,其单色黑度 $\epsilon(\lambda)$ 也是不同的。只有黑体的 $\epsilon(\lambda)$ 为 1,而一般“灰体” $0 < \epsilon < 1$ 。由(4)和(5)式可得所测物体的温度

$$T = \sqrt[4]{P(T)/\epsilon\sigma} \quad (6)$$

实验中,为了便于常压喷射等离子体材料表面改性过程的可控性,检测等离子体喷射改性材料的表面温度就显得相当重要。同时,通过测量改性材料的表面温度可大致掌握常压喷射等离子体宏观温度的变化情况。实验中采用的红外温度计理论上在环境温度为 300K 左右,对从 300~400 K 的目标温度进行测量时,产生的能量误差为 11%左右^[17]。

2 实验结果

图 3 是空气常压等离子体和氩气常压射流等离子体的发射光谱。经比较分析可知,在氩气发射光谱中没有观测到空气环境下产生的发射谱线,这意味着在本实验中用到的改进的常压射流等离子体装置产生的仅有氩气等离子体,而避免了一般常压放电所产生的部分空气成分电离情况。由实验装置也可分析得出,放电区域在充满氩气的陶瓷管内,所以只有氩气被电离,产生的等离子体仅仅是单一的“氩”等离子体,这与光谱分析的结果是吻合的。

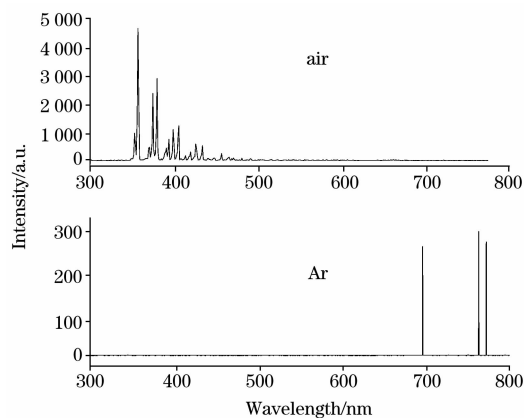


Fig. 3 Emission spectra of atmospheric pressure plasma

实验在 680~930 nm 范围测量了不同电压氩气介质阻挡放电射流的发射光谱。经分析,这些光谱的特征谱线全部是“氩”原子的发射谱线。由图 4 分析可以得出,发射谱线的相对强度随着放电电压的增大而增强。

考虑到谱线自吸收、信噪比和谱线间的相互干扰等因素后,选用波长 763.51 和 772.42 nm 两条谱线来计算电子温

度, 数据如表 1 所示, 将表中参数代入(2)式, 即得电子温度。在实验中, 计算得几组不同放电电压下的电子温度在 1 eV 以下, 并且产生的“氩”等离子体电子温度随着放电电压增大而增大, 变化关系如图 5 所示。

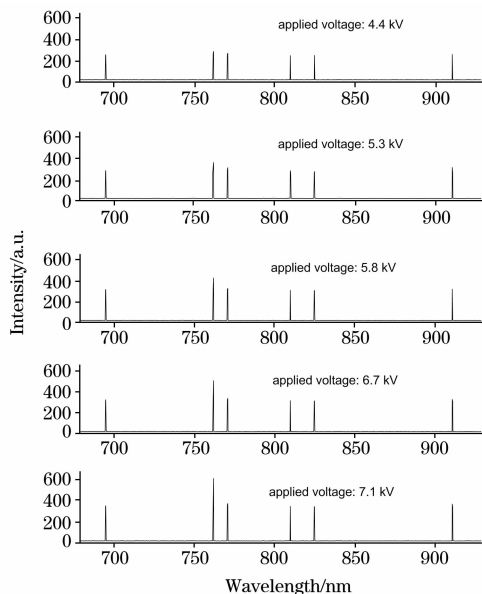


Fig. 4 Emission spectra of argon plasma jet at different discharge voltage

Table 1 Excitation energy, statistical weights of the upper energy level and transition probabilities^[18]

波长/nm	跃迁	激发能/cm ⁻¹	g	A/10 ⁶ s ⁻¹
763.51	2P ₆ —1S ₅	106 237.597	5	24.5±0.08
772.42	2P ₂ —1S ₃	107 496.463	3	11.7±0.05

图 6 是使用“红外测温仪”测得的材料表面温度随电压变化的曲线, 在等离子体材料表面改性时, 等离子体作用于材料表面使之表面温度提高, 材料表面温度随等离子体温度的升高而提高, 因此材料表面温度的变化趋势可以近似表征等离子体宏观温度变化趋势。由图可见, 随着电压升高, 陶瓷管内氩的电离也越来越充分, 喷射出的等离子体的离子温度也不断上升。

3 讨论

随着科学技术发展以及全人类对环境和生活质量要求的

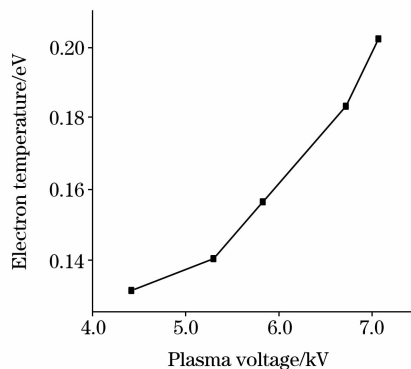


Fig. 5 Electron excitation temperature as a function of discharge voltage

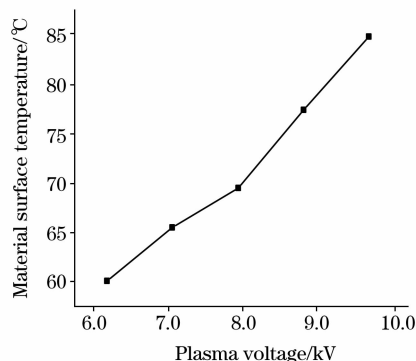


Fig. 6 Material surface temperature as a function of discharge voltage

提高, 低温等离子体越来越广泛的被应用于多种材料的表面改性^[19-21]。与其他方法相比, 等离子体表面处理具有更高的电子温度和能量密度, 可以精确地控制表面处理工艺参数(可以控制在距离表面 10⁻⁷~10⁻⁵ cm)^[8], 更节省能源, 减少污染。尤其是常压介质阻挡放电产生等离子体, 由于不需要真空设备, 降低了成本, 适用工业化生产。而改进的喷射等离子体不需要材料从等离子体中穿过, 避免了常压介质阻挡放电中常见的不稳定的丝状放电, 使得材料不会因此而被击穿或者温度过高产生烧蚀, 同时也能满足部分材料单面处理的需求。通过常压等离子体发射光谱诊断可以很好的研究等离子体的性质, 为实际应用奠定了理论基础; 加上等离子体的宏观温度测量, 可以从材料的温度特性实时监控等离子体处理过程。

参 考 文 献

- [1] YIN Zeng-qian, DONG Li-fang, LI Xue-chen, et al(尹增谦, 董丽芳, 李雪辰, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2003, 23(3): 607.
- [2] Falkenstein Z, Coogan J J. J. Phys. D: Appl. Phys., 1997, 30(5): 817.
- [3] Brauer I, Punset C, Purwins H G. J. Appl. Phys., 1999, 85(11): 7569.
- [4] Muller I, Puset C. IEEE Trans. Plasma Science, 1999, 27(1): 20.
- [5] Ammelt E, Schweng D, Purwins H G. Phys. Lett. A, 1993, 179: 348.

- [6] YANG Chao, QIU Gao(杨超, 邱高). Journal of Donghua University(东华大学学报), 2001, 27(6): 91.
- [7] Eliasson B, Kogelschatz U. IEEE Trans. Plasma Science, 1991, 19(2): 309.
- [8] TANG Xiao-liang, FENG Xian-ping, LI Zhi-guang, et al(唐晓亮, 冯贤平, 黎志光, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2004, 24(11): 1437.
- [9] Древин С В(苏)德列斯文, 著. Low-Temperature Plasma Physics and Technology(低温等离子体物理及技术). Translated by TANG Fu-lin, CHEN Yun-ming, MAO Bin(唐福林, 陈允明, 毛斌, 译). Beijing: Science Press(北京: 科学出版社), 1980. 50, 91.
- [10] LI Ting-jun(李廷钧). Analysis of Emission Spectroscopy(发射光谱分析). Beijing: Atomic Energy Press(北京: 原子能出版社), 1983. 46.
- [11] YANG Can-zhu, PU Xiao-yun, LI Li-zhong, et al(杨灿珠, 普小云, 林理忠, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 1997, 17(6): 40.
- [12] Campbell H D, Barnard A J. J. Quant. Spectrosc. Radiant. Transfer., 1969, 9: 461.
- [13] CUI Fu-zhai, ZHENG Chuan-lin(崔福斋, 郑传林). China Surface Engineering(中国表面工程), 2003, 4: 7.
- [14] YANG Li(杨立). Infrared Technology(红外技术), 1999, 21(4): 20.
- [15] Sparrow E M, Cess R D(美)斯帕罗, 塞斯, 著. Radiation and Transfer(辐射传热). Translated by GU Quan-bao, ZHANG Xue-xue(顾全保, 张学学, 译). Beijing: Higher Education Press(北京: 高等教育出版社), 1982. 61, 7.
- [16] YOU Fu-en, ZHANG Cun-fang, FU Le-yong(由富恩, 张存芳, 付乐勇). The Principle and Calibrations of Radiant Thermometers(辐射测温仪原理及检定). Beijing: China Metrology Publishing House(北京: 中国计量出版社), 1990.
- [17] YAN Min, PENG Chu-wu, YAN Yong-hong, et al(晏敏, 彭楚武, 颜永红, 等). Journal of Hunan University(湖南大学学报), 2004, 31(5): 110.
- [18] DONG Li-fang, RAN Jun-xia, YIN Zeng-qian, et al(董丽芳, 冉俊霞, 尹增谦, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2005, 25(8): 1184.
- [19] FENG Xiang-fen, XIE Han-kun, ZHANG Jing(冯祥芬, 谢涵坤, 张菁). Physics(物理), 2002, 31(1): 27.
- [20] CHI Hai-tao, LI Hong-wei, CHEN Ying(池海涛, 李宏伟, 陈英). Wool Textile Journal(毛纺科技), 2007, 7: 60.
- [21] CHEN Bing, CHEN Yin, WANG Hong-wei(陈冰, 陈银, 王红卫). Journal of Textile Research(纺织学报), 2007, 28(6): 28.

Spectral Diagnosis of Plasma Jet at Atmospheric Pressure

LI Chi¹, TANG Xiao-liang^{1, 2}, QIU Gao^{1, 2*}

1. College of Science, Donghua University, Shanghai 201620, China

2. College of Materials Science and Engineering, Donghua University, Shanghai 201620, China

Abstract A new approach to surface modification of materials using dielectric barrier discharge (DBD) plasma jet at atmospheric pressure is presented in the present paper. The emission spectral lines of argon plasma jet at atmospheric pressure were recorded by the grating spectrograph HR2000 and computer software. The argon plasma emission spectra, ranging from 300nm to 1000nm, were measured at different applied voltage. Compared to air plasma emission spectra under the same circumstance, it is shown that all of the spectral lines are attributed to neutral argon atoms. The spectral lines 763.51 and 772.42 nm were chosen to estimate the electron excitation temperature. The purpose of the study is to research the relationship between the applied voltage and temperature to control the process of materials' surface modification promptly. The results show that electron excitation temperature is in the range of 0.1-0.5 eV and increases with increasing applied voltage. In the process of surface modification under the plasma jet, the infrared radiation thermometer was used to measure the material surface temperature under the plasma jet. The results show that the material surface temperature is in the range of 50-100 °C and it also increases with increasing applied voltage. Because the material surface was under the plasma jet and its temperature was decided by the plasma, and the material surface temperature increased with increasing the macro-temperature of plasma jet, the relationship between the surface temperature and applied voltage indicates the relationship between the macro-temperature of the plasma jet and the applied voltage approximately. The experimental results indicate that DBD plasma jet at atmospheric pressure is a new approach to improving the quality of materials' surface modification, and spectral diagnosis has proved to be a kind of workable method by choosing suitable applied voltage.

Keywords Dielectric barrier discharge; Spectral diagnosis; Plasma jet; Electron temperature; Material surface temperature

* Corresponding author

(Received May 26, 2007; accepted Sep. 6, 2007)