

## 发射光谱研究多针对板电晕放电 O 活性原子特性

葛辉<sup>1</sup>, 阎玲<sup>1</sup>, 宓东<sup>2</sup>, 朱益民<sup>1\*</sup>, 张路<sup>1</sup>

1. 大连海事大学环境污染治理研究所, 辽宁 大连 116026
2. 大连海事大学物理系, 辽宁 大连 116026

**摘要** 利用发射光谱技术在大气压下测量了空气中多针对板负直流电晕放电和正电晕流光放电产生的 O ( $3p^5P \rightarrow 3s^5S_2^o$  777.4 nm) 活性原子发射光谱。在负电晕放电中, 研究了放电功率、电极间距、N<sub>2</sub> 含量和相对湿度等因素对 O 活性原子产生过程的影响; 在正电晕流光放电阶段, 研究了 O 活性原子相对密度在放电反应空间的分布特点。结果表明: O 活性原子产量随放电功率的增加而增大, 随电极间距增大而减少, 随相对湿度和氮气含量的增加, 其产量先增大后减少; O 活性原子相对密度沿针尖轴向呈先增大后减小的趋势。

**关键词** 直流电晕放电; O 活性原子; 发射光谱

**中图分类号:** O461; O433 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2012)04-0886-04

### 引言

低温等离子体中存在着大量 OH, O, HO<sub>2</sub>, H 等自由基及活性粒子, 它们在去除 NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> 以及 VOC<sub>s</sub> 等过程中起着重要作用<sup>[1-5]</sup>。其中, O 的氧化电势为 2.42 V, 仅次于 OH<sup>[6]</sup>, 同时可与多种有机、无机分子反应, 日益受到人们的关注<sup>[7-9]</sup>。激发态 O 原子的分布可用发射光谱进行研究。O 活性原子发射光谱的研究主要集中在 777 和 844 nm 附近, 其中又以 777.4 nm ( $3p^5P \rightarrow 3s^5S_2^o$ ) 处的谱峰强度最强。Sun 等利用脉冲流光电晕放电技术在水溶液中检测到激发态 O ( $3p^5P$ ) 和 O ( $3p^3P$ ) 的跃迁谱线<sup>[6]</sup>。Leveille 等在脉冲放电条件下 He/O<sub>2</sub> 体系中检测到 O 活性原子发射光谱, 并对混合等离子体中各种自由基间相互作用机理进行了初步分析<sup>[10]</sup>。Zhu 等在 He/Air 混合等离子体中检测到 777 nm 处 O 活性原子发射光谱<sup>[11]</sup>。刘忠伟等在大气压射流等离子体中测量了 O 活性原子 777 和 844 nm 波段的发射光谱<sup>[12]</sup>。

在空气中, 迁移率较大的电子在电场作用下可与 N<sub>2</sub> 和 H<sub>2</sub>O 分子发生非弹性碰撞, 产生大量 OH, HO<sub>2</sub>, O, N<sup>+</sup>, N<sub>2</sub><sup>+</sup>, O<sub>2</sub><sup>-</sup> 等自由基, 活性原子和正负离子<sup>[13]</sup>, 其中 O 活性原子可通过多种过程产生<sup>[9, 11]</sup>。在大气压下, 激发态 O ( $3p^5P$ ) 自发辐射寿命短、激发能高、易与背景气体碰撞快速跃迁到基态。因此, 在大气压下空气中测量直流电晕放电产生的 O 原子发射光谱较为困难。本工作在空气中常压下检测到

多针对板正、负电晕放电产生的 O ( $3p^5P \rightarrow 3s^5S_2^o$  777.4 nm) 活性原子发射光谱, 同时研究了相关电参数和空气参数对其产量的影响, 以及其相对密度在放电空间内的分布。

### 1 实验部分

所用装置由 4 部分组成, 即直流电源、反应器、光谱测量系统和配气系统, 如图 1 所示。直流电源输出电压在 0~40 kV 范围内连续可调。反应器采用多针对板式电极结构, 高压针电极的针数为 6 根且针尖在同一直线上, 板电极为 70 mm×155 mm 的不锈钢板。针电极与板电极垂直, 针板间距为 20~30 mm 连续可调(如无特殊说明, 本实验针板间距保持在 20 mm), 相邻针尖间距为 20 mm。放电反应器置于一个 232 mm×232 mm×150 mm 的暗箱中。反应器可上下、左右移动, 单次移动的距离为 2 mm。光纤探头固定在暗箱侧壁的小孔内并保持水平放置, 从针电极侧面采光。光纤探头收集到光信号经光纤传输至 Acton 公司生产的 PI-2500i 型光谱仪(光栅 1 200 g·mm<sup>-1</sup>, 闪耀波长 500 nm)并将其转换为电信号, 最后由计算机采集处理。实验所用 N<sub>2</sub> 纯度为 99.999%, 经标定的转子流量计测量气体流量。用空气为载体携带水蒸气进入反应器(如无特殊说明, 反应室内相对湿度均为 50%)。实验中保持反应室内气体温度为 25 ℃, 气压为一个大气压。在大气压下空气中, 测得多针对板电晕放电产生的 O ( $3p^5P \rightarrow 3s^5S_2^o$  777.4 nm) 活性原子发射光谱, 如

收稿日期: 2011-08-04, 修订日期: 2011-11-28

基金项目: 国家自然科学基金项目(51078048)和新世纪优秀人才计划项目(NCET07-0-126)资助

作者简介: 葛辉, 1982 年生, 大连海事大学环境污染治理研究所博士研究生 e-mail: powerge@126.com

\* 通讯联系人 e-mail: ntp@dmlu.edu.cn

图 2 所示。

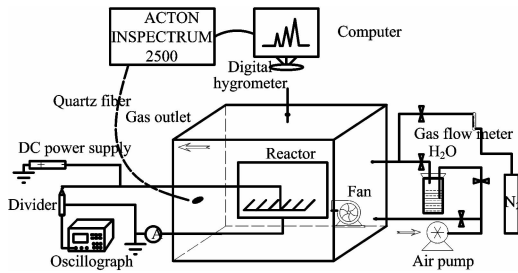


Fig. 1 Diagram of experimental setup

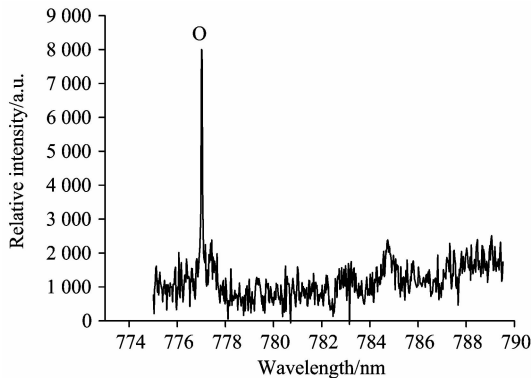


Fig. 2 Emission spectrum of excited O ( $3p^5 P \rightarrow 3s^5 S_2^0$  777.4 nm) generated by corona discharge in air

## 2 结果与讨论

### 2.1 负电晕放电

#### 2.1.1 放电功率对 O 活性原子产量影响

由图 3 可以看出, 随放电功率增加, 电离区内 O( $3p^5 P$ ) 产量呈逐渐增加的趋势。放电功率对激发态 O 活性原子产量的影响可归结为外加电压与放电电流两者的总效应。外加电压增大会导致电离区内电场强度增大, 从而可以使得高能电子的平均能量增加; 而放电电流的增加意味着存在更多的高能电子。高能电子数量和能量的增加使得电子与水分子的有效碰撞机会增大, 产生更多的 O 活性原子。

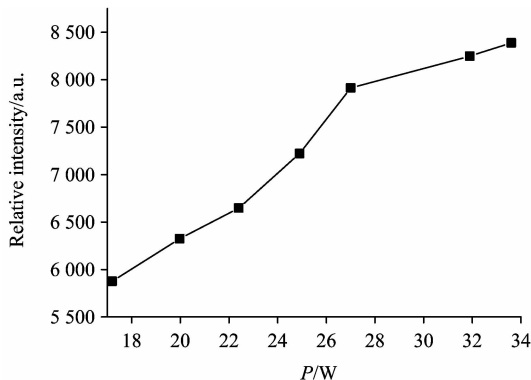


Fig. 3 Relative intensity of excited O atom as a function of power

#### 2.1.2 电极间距对 O 活性原子产量影响

图 4 显示的是针板间距分别为 20, 25 和 30 mm 时, O 活性原子产量随外加电压的变化趋势。由图 4 可知, 在同一针板间距下, O 活性原子产量随电压升高呈增大的趋势。在相同电压下, 随着针板间距的增大 O 活性原子产量逐渐减小。电压的升高将导致场强的增大, 从而会产生更多的高能电子; 而在外加电压一定时, 增大针板间距, 电场强度相应地减弱, 从而导致高能电子数量的减少。高能电子的多少近似与 O 活性原子产量, 从而与其激发态光谱强度成正比。

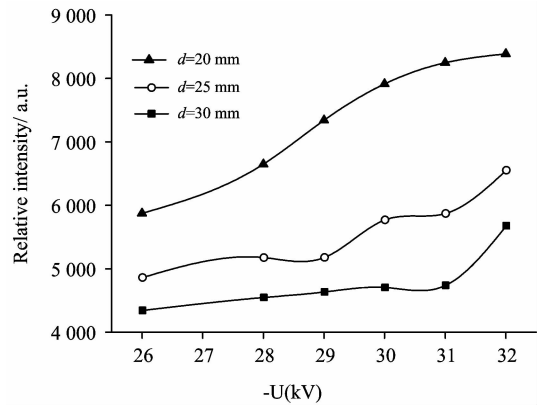


Fig. 4 Relative intensity of excited O as a function of voltage with different distances from needle to plate

#### 2.1.3 N<sub>2</sub> 流量对 O 活性原子产量影响

为了研究 O<sub>2</sub> 对激发态 O 活性原子的影响, 实验中通过加入不同流量的 N<sub>2</sub> 来改变空气中 N<sub>2</sub> 与 O<sub>2</sub> 的比例。N<sub>2</sub> 流量分别为 0.2, 0.4, 0.6, 0.8 和 1 L · min<sup>-1</sup>。图 5 显示的是, 在外加电压分别为 -26, -30 和 -32 kV 时, O 活性原子产量随着 N<sub>2</sub> 流量的变化趋势。

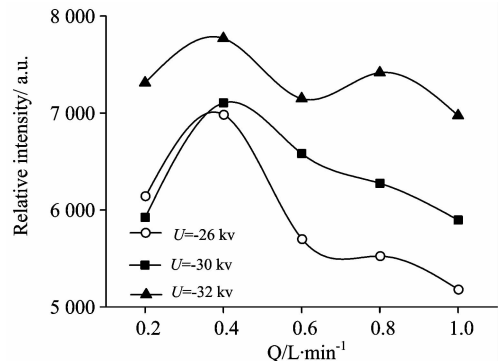


Fig. 5 Relative intensity of excited O as a function of N<sub>2</sub> flow at different voltages

由图可知, 在同一 N<sub>2</sub> 流量下, 电压越大, O 活性原子产量越大。因为电压越大, 场强越大, 从而会产生越多的高能电子。在不同外加电压下, O 活性原子产量均随 N<sub>2</sub> 流量的增加呈先增大再减小的趋势。其主要原因分析如下: O<sub>2</sub> 是电负性气体, 可以吸附其周围的电子。空气中 N<sub>2</sub> 含量的增加使其中 O<sub>2</sub> 比例下降, 从而导致电离区内电子密度的增加, 这样就可产生更多的高能电子, 使得 O 原子产量逐渐增加;

但随着 O<sub>2</sub> 含量不断减少, 高能电子与 O<sub>2</sub> 碰撞的概率也逐渐减小。在这两方面因素的综合作用下, 导致了在同一电压下 O 活性原子产量在 N<sub>2</sub> 流量约为 0.4 L · min<sup>-1</sup> 时出现最大值后逐渐减小。

#### 2.1.4 相对湿度对 O 活性原子产量影响

通过改变空气流量调整水蒸气携带量, 研究不同电压下相对湿度对 O 活性原子产量的影响。由图 6 可知, 在不同外加电压下, O 活性原子产量均随相对湿度增加呈先增大再减小的趋势。其原因是: 随着相对湿度的增大, 空气中水分子量不断增多, 高能电子与水分子的碰撞概率增大, O 活性原子产生量也增多。然而, 水分子为电负性气体, 其含量不断的增加也会吸附更多的电子, 导致平均电子密度降低, 平均电子能量降低, 使得 O 活性原子产生量减少。

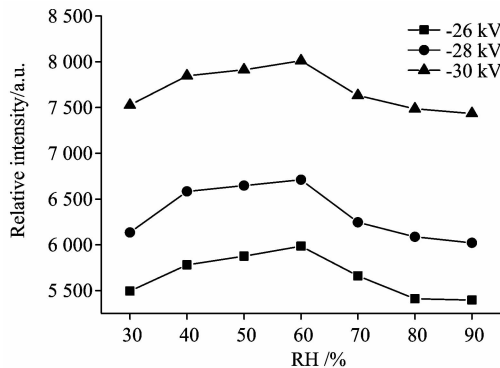


Fig. 6 Influence of RH on relative intensity of excited O at different voltages

## 2.2 正流光放电

正电晕放电中, 随外加电压的升高, 放电过程可分为起始流光、辉光和击穿流光<sup>[14]</sup>。根据本课题组前期研究获知, 起始流光与辉光放电阶段电流和发射光谱强度较小。因此, 本工作只对击穿流光放电阶段 O 活性原子发射光谱进行了检测。另外, 由于实验中发现击穿流光的外加电压范围与负电晕放电范围相比很窄, 所以主要研究了 O 活性原子相对密度在放电反应空间的分布特点, 对相关电参数和空气参数对其产量的影响未作研究。

在测量 O 活性原子空间分布时, 小孔前方加一长为 10 mm, 孔径为 2 mm 的绝缘细管, 只采集与光纤耦合入口在同一直线上的发光, 避免放电区内其他区域的发光同时被接

收。在正流光放电中, 几乎整个放电间隙内和针尖后部均可检测到 O 活性原子的发射光谱, 其中针尖附近 O 谱峰强度最强。考虑到 O 活性原子的谱峰强度与其相对数量近似成正比, 则 O 活性原子相对密度也存在相似的空间分布。图 7 是外加电压为 +19.8 kV 时, 针尖附近 O 活性原子相对密度空间分布图。图中, 原点为针尖处, 针尖轴向设为 x 轴, 纵向设为 y 轴。规定: 以针尖为中心, 反应器水平向下平移为负, 向上平移为正, 向前平移为正, 向后平移为负。

由图 7 可见, 当  $x=0$  mm 和  $x=2$  mm 时, 随 y 轴由左向右变化, 谱峰强度都呈现先增大后减小的趋势; 而当  $x=-2$  mm 时, 随 y 轴由左向右变化, 谱峰强度呈现先增大后减小, 再增大再减小的变化趋势。在  $x=-2$  mm,  $y=0$  mm 处, 谱峰强度较低, 原因是此处是在针尖后部, 电场强度较弱。在针电极附近, 由于外加电压的作用, 电场强度最强, 电子雪崩强烈, 此处谱峰强度最高。

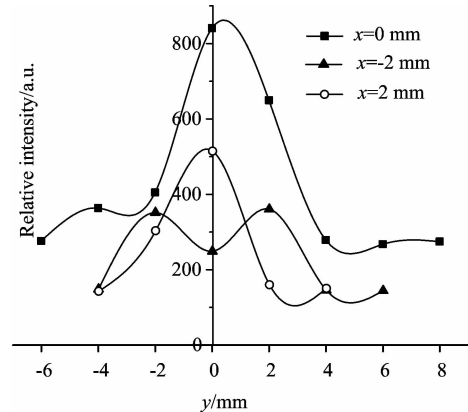


Fig. 7 Distribution of relative intensity of excited O in streamer discharge

## 3 结论

(1) 负电晕辉光放电中, 电离区内 O 活性原子相对密度随注入功率的升高呈增加趋势。随电极间距增大, 其相对密度减小。随相对湿度和 N<sub>2</sub> 流量增加, 其相对密度呈先增加再减小趋势。

(2) 常压下流光放电中几乎整个放电间隙内和针尖后部均可检测到 O 活性原子存在。流光放电间隙内 O 活性原子相对密度沿针尖轴向呈先增大后减小的趋势。

## References

- [1] Julien D, Astrid B, Francoise C, et al. *Chemphyschem*, 2010, 11(18): 4002.
- [2] Liao Xiaobin, Guo Yufang, He Jianhua, et al. *Plasma Chem. Plasma P.*, 2010, 30(6): 841.
- [3] Zhang Y, Li D, Wang H C. *Plasma Science & Technology*, 2010, 12(6): 702.
- [4] Huang H B, Ye D Q, Leung Dennis Y C. *J. Environ ENG-ASCE*, 2010, 136(11): 1231.
- [5] Huang H B, Ye D Q. *J. Hazard Mater*, 2009, 171(1-3): 535.
- [6] Sun B, Sato M, Clements J S. *Journal of Electrostatics*, 1997, 39(3): 189.
- [7] Jeong J Y, Babayan S E, Schutze A, et al. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 1999, 17: 2581.
- [8] Moisan M, Tabrizian M, Barbeau J, et al. *Int. J. Pharm.*, 2001, 226: 1.
- [9] Moreau S, Moisan M, Tabrizian M, et al. *J. Appl. Phys.*, 2000, 88: 1166.

- [10] Léveillé V, Coulombe S. *Plasma Processes and Polymers*, 2006, 3(8): 587.
- [11] Zhu W C, Li Q, Zhu X M, et al. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2009, 42(20): 1.
- [12] LIU Zhong-wei, CHEN Qiang, WANG Zheng-duo, et al(刘忠伟, 陈 强, 王正铎, 等). *High Power Laser and Particle Beams(强激光与粒子束)*, 2010, 22(10): 2461.
- [13] Laux C O, Kruger C H, Zare R N. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 2003, 12(2): 125.
- [14] XU Xue-ji, CHU Ding-chang(徐学基, 诸定昌). *Physics of Discharge in Gas(气体放电物理)*. Shanghai: Fudan University Press(上海: 复旦大学出版社), 1992. 267.

## Study of Characteristics of Excited O Atom Generated in Multi-Needle-to-Plate Corona Discharge by Emission Spectroscopy

GE Hui<sup>1</sup>, YAN Ling<sup>1</sup>, MI Dong<sup>2</sup>, ZHU Yi-min<sup>1\*</sup>, ZHANG Lu<sup>1</sup>

1. Institute of Environment of Remediation, Dalian Maritime University, Dalian 116026, China

2. Department of Physics, Dalian Maritime University, Dalian 116026, China

**Abstract** The emission spectra of  $O(3p^5P \rightarrow 3s^5S_2^o)$  (777.4 nm) produced by multi-needle-to-plate negative corona discharge and positive streamer discharge in air were successfully recorded at one atmosphere. The influences of discharge power, electrode gap, content of  $N_2$  and relative humidity on the excited O atom production were investigated in negative corona discharge. Meanwhile, the distribution of relative density of excited O atom in discharge space was also studied in positive streamer discharge. The results indicate that, for negative corona discharge, the amount of O active atom increases with the increase in power, decreases with increased discharge gap. And with the increase in relative humidity and  $N_2$  content, its amount firstly increases and then decreases; whereas for positive corona discharge, the relative density of O active atom from needlepoint to plate firstly increases and then decreases.

**Keywords** Multi-needle-to-plate DC corona discharge; Excited O atom; Emission spectra

(Received Aug. 4, 2011; accepted Nov. 28, 2011)

\* Corresponding author