

发射光谱研究氩气/空气混合气体介质阻挡放电能量传递过程

董丽芳, 齐玉妍, 赵增超, 李永辉, 李雪辰

河北大学物理科学与技术学院, 河北 保定 071002

摘 要 使用水电极介质阻挡放电装置, 对比氩气与氩气/少量空气的混合气体以及空气与空气/少量氩气的混合气体放电的发射光谱, 研究了氩气与空气相混合时气体放电中的能量传递过程。实验发现, 当氩气中加入少量的空气时, 氩原子谱线均变弱, 说明空气中的氮分子对氩原子的各激发态具有猝灭作用。并且随着空气含量的增加, 各谱线变弱的速率不同。越是与氮分子的激发电位接近的氩原子的激发态被猝灭的作用越明显。另一方面, 当空气加入少量氩气时, 发现氮分子第二正带系和氮分子离子第一负带系的谱线均被增强。说明在空气/少量氩气放电中, 氮分子的激发由于亚稳态氩原子的潘宁激发传能而增强。因此在氩气/空气混合气体放电中, 气体成分及比例影响放电的发光特性和能量传输特性。

关键词 介质阻挡放电; 猝灭; 潘宁效应

中图分类号: O461.2; O433.4

文献标识码: A

DOI: 10.3964/j.issn.1000-0593(2008)11-2491-03

引 言

介质阻挡放电(简称 DBD)又叫无声放电, 是一种典型的非平衡态的交流气体放电。由于 DBD 可以实现大气压条件下的放电, 因而在很多工业领域诸如臭氧的工业制备、聚合物表面改性、真空紫外光源以及大面积平面等离子体显示等有着广泛的应用^[1-7]。在实际应用中往往需要的不仅是单一的气体放电产生等离子体, 而是要根据不同的目的加入不同的气体组份, 例如 $\text{Ar} + \text{air}$ ^[8], $\text{Ar} + \text{N}_2$ ^[9], $\text{N}_2 + \text{O}_2$ ^[10] 等体系, 高压氩气对等离子体辐射的增强效应^[11]。Qayyum 研究小组在反常辉光放电中发现了示踪稀有气体 Ar 与 N_2 的潘宁激发效应^[12, 13], 这种通过稀有气体增加活化氮原子的方法, 可以使渗氮工艺在金属表面处理、增加金属硬度的应用方面进一步深入。本工作测量了氩气、空气及其氩气与空气混合气体放电的发射光谱, 通过分析氩原子及氮分子谱线强度的变化, 研究了氮分子对氩原子激发态的猝灭作用和亚稳态氩原子对氮分子激发态的能量传递作用。

1 实验装置

实验装置在以前的文章^[14, 15]中曾有详细的描述, 现简介如下: 直径为 65 mm、长度为 70 mm 的两个玻璃管中装满水, 平行相对放置, 两端的 1.5 mm 厚的玻璃片兼作电介质

层, 水中的线圈与高压交流电源相连, 这样构成了介质阻挡放电回路。放电间隙间距 d 为 1.5 mm, 保持大气压不变, 驱动电源峰值电压为 0 ~ 10 kV, 频率调节范围为 40 ~ 80 kHz, 放电气体为氩气或空气或氩气与空气的混合气体。从放电侧面发射的光经焦距为 10 cm 透镜会聚后, 用光纤导入光谱仪(型号: ACTON SP-2758, CCD: 1340 × 400 pixels), 通过计算机控制采集并分析存储。

2 实验结果与讨论

实验选用光谱仪的 $300 \cdot \text{mm}^{-1}$ 的光栅, 在 300 ~ 800 nm 的范围内, 首先测量了纯氩气的介质阻挡放电发射光谱, 如图 1 所示。发现谱线集中在 690 ~ 800 nm 范围内, 均是氩原子的发射谱线。其中 763.51 nm 的谱线发光最强, 750.39 nm 谱线较弱。

然后, 我们测量了氩气/空气混合气体放电的发射光谱。图 2 给出了空气含量为 30 % 时的发射谱线。与纯氩气放电光谱相比, 光谱中在 300 ~ 500 nm 范围出现了氮分子第二正带系, 而且还观察到了氮分子离子 N_2^+ 第一负带系 391.4 nm 谱线。

改变空气含量, 发现随着空气含量的增大, 氮分子谱线强度增强而氩原子谱线强度减弱, 如图 3 所示。不难发现, 各谱线强度减弱的速率并不相同, 其中 Ar 763.51 nm ($2P_6 \rightarrow 1S_5$) 谱线强度衰减速率最大, 其次是 Ar 696.54

收稿日期: 2007-08-10, 修订日期: 2007-11-25

基金项目: 国家自然科学基金项目(10375015 和 10575027)和河北省自然科学基金项目(A2004000086, A2006000950)资助

作者简介: 董丽芳, 女, 1963 年生, 河北大学物理科学与技术学院教授 e-mail: donglf@hbu.edu.cn

nm($2P_2 \rightarrow 1S_5$)和 Ar 772.42 nm($2P_2 \rightarrow 1S_3$)谱线,而 Ar 750.39 nm($2P_1 \rightarrow 1S_2$)谱线变化最慢。说明氮分子对氩原子谱线具选择性猝灭作用。为了研究 N_2 对 Ar 谱线的这种选择性猝灭作用,表 1 给出了实验观察到的氩原子谱线及氮分子谱带上能级的激发电位。显见,当 Ar 的激发态电位和 N_2 ($C^3\Pi_u$)的激发电位(13.06 eV)相近时,氮分子对氩原子发射谱线的选择性猝灭作用更加明显,故出现图 3 中 Ar 763.51 nm($2P_6 \rightarrow 1S_5$)谱线强度衰减速率最大的实验结果。

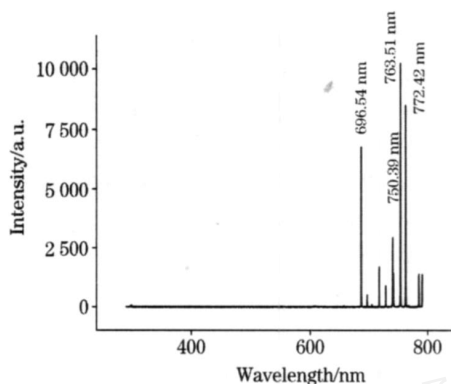


Fig. 1 300~800 nm scan optical emission spectrum of Ar DBD at atmospheric pressure

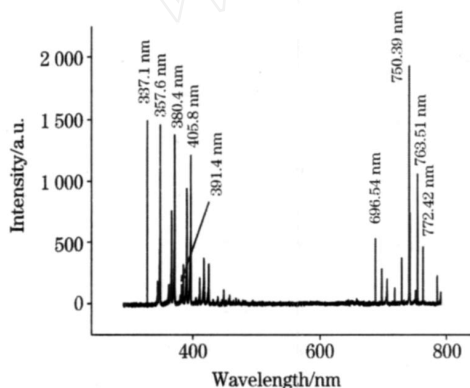


Fig. 2 300~800 nm scan optical emission spectrum of Ar/air DBD at atmospheric pressure

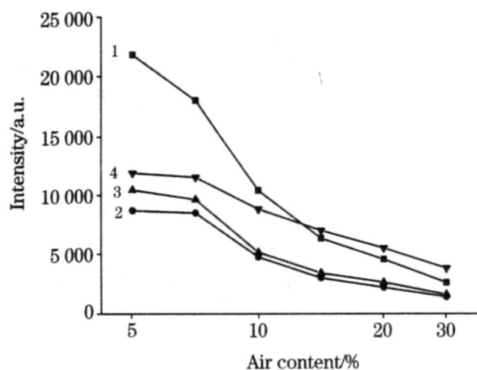


Fig. 3 Relative intensity of Ar as a function of air content $U_{app}=6.5$ kV

1: I_{763} ; 2: I_{696} ; 3: I_{772} ; 4: I_{750}

为了进一步研究氩原子对氮分子的能量传递作用,我们还测量了空气放电中 N_2 的发射光谱,如图 4 所示。将其与图 5 所示的空气与氩气的混合气体(其中氩气含量为 10%)放电中 N_2 的发射光谱比较,发现 N_2 第二正带系($C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$)和 N_2^+ 第一负带系($B^2\Pi_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$)的发射谱线强度不但没有降低,反而升高了。

Table 1 Observed spectrum transition and the corresponding excited energy of upper level

中心波长/nm	跃迁	激发电位/eV
Ar 763.51	$2P_6 \rightarrow 1S_5$	13.172
Ar 772.42	$2P_2 \rightarrow 1S_3$	13.328
Ar 696.54	$2P_2 \rightarrow 1S_5$	13.328
Ar 750.51	$2P_1 \rightarrow 1S_2$	13.48
N_2 (C) 第二正带	$C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$	13.06
$N^+ 2$ (B) 第一负带	$B^2\Pi_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$	18.76

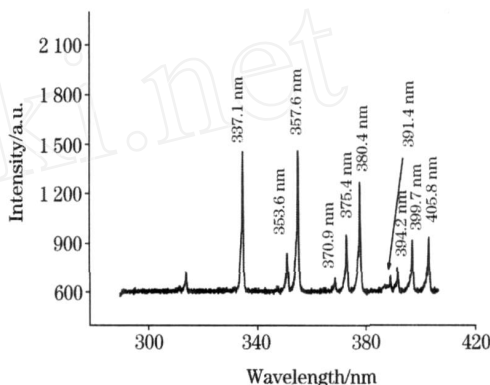


Fig. 4 Optical emission spectrum of N_2 in air DBD ($U_{app}=8$ kV)

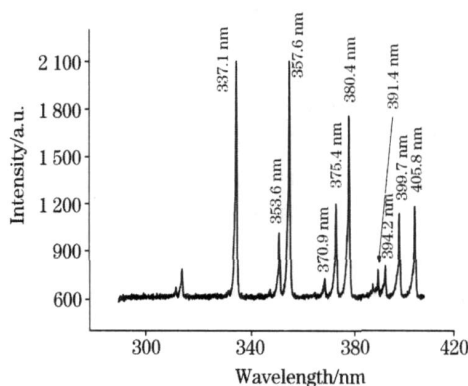
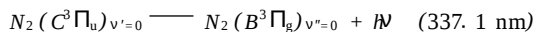
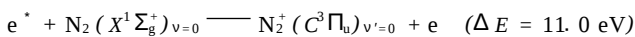
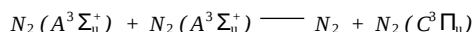


Fig. 5 Optical emission spectrum of N_2 in air/Ar DBD ($U_{app}=8$ kV)

众所周知,纯氮气放电系统中 N_2 的激发主要通过以下反应^[12]

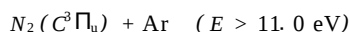
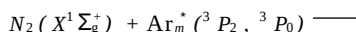


另外,通过级联碰撞也能够产生少量的 N_2 激发态



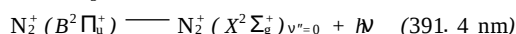
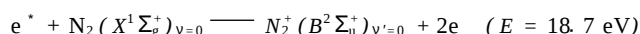
在混合气体放电中,不仅存在着上述过程使 N_2 激发。而且因为氩原子存在许多亚稳态,其中 $Ar_m 4^3P_2$, $Ar_m 4^3P_0$ 的激发电位分别为 11.55 和 11.72 eV,高于氮分子的第一激

发能 11.0 eV, 由于潘宁效应

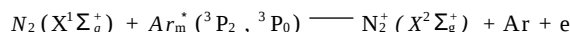


可使 $N_2(C^3\Pi_u)$ 的布居数增大。

同样, N_2^+ 谱线的产生需要更高的能量, 仅仅依靠下述电子碰撞激发



很难达到。然而, 通过潘宁电离效应



产生基态氮分子离子 $N_2^+(X^2\Sigma_g^+)$, $N_2^+(X^2\Sigma_g^+)$ 经进一步与电子或亚稳态氩原子碰撞, 激发到 $N_2^+(B^{2+}\Pi_u^+)$ 。

因此, 在氩气与空气混合气体放电中, 处于亚稳态的氩原子的传能作用使氮分子激发态 $N_2(C^3\Pi_u)$ 及氮分子离子激发态 $N_2^+(B^{2+}\Pi_u^+)$ 的布居数均增大, 从而使相应的谱线强度增强。

参 考 文 献

- [1] Mangolini L, Orlov K, Kortshagen U, et al. Appl. Phys. Lett., 2002, 80(10): 1722.
- [2] Kogelschatz U. IEEE Trans. Plasma Sci., 2002, 30: 1400.
- [3] Massines F, Gouda G. J. Phys. D: Appl. Phys., 1998, 31: 3411.
- [4] Mishra K K, Khardekar R K, Singh R, et al. Rev. Sci. Instrum., 2002, 73: 3251.
- [5] Kozlov K V, Wangner H E, Brandenburg R. J. Phys. D: Appl. Phys., 2001, 34: 3164.
- [6] Becker K H, Masoud N M, Martus K E, et al. J. Phys. D: Appl. Phys., 2005, 35: 279.
- [7] Stefanovic I, Bibinov N K, Deryugin A A, et al. Plasma Sources Sci. Technol., 2001, 10(3): 406.
- [8] Pack B W, Hieftje G M, Jin Q. Analytical Chimica Acta, 1999, 383(3): 231.
- [9] Williamson James M, Bletzinger Peter. J. Appl. Phys., 2005, 97: 103301.
- [10] Ono S, Teii S. J. Phys. D: Appl. Phys., 1988, 21: 10.
- [11] SHI Jin-chao, CHEN Jin-zhong, WEI Yan-hong, et al (史金超, 陈金忠, 魏艳红, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2006, 26(5): 798.
- [12] Qayyum A, Shaista Zeb, Naveed M A, et al. Appl. Phys., 2005, 98: 103303.
- [13] Qayyum A, Shaista Zeb, Naveed M A, et al. Journal Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2007, 107(3): 361.
- [14] 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.
- [15] DONG Li-fang, LIU Feng, LI Shu-feng, et al (董丽芳, 刘峰, 李树锋, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2006, 26(5): 802.

Study on Energy Transfer in Argon/ Air in Dielectric Barrier Discharge by Optical Emission Spectra

DONG Li-fang, QI Yu-yan, ZHAO Zeng-chao, LI Yong-hui, LI Xue-chen

College of Physics Science & Technology, Hebei University, Baoding 071002, China

Abstract The energy transfer in dielectric barrier discharge in argon/ air mixture in a device with water electrodes was investigated by comparing the optical emission spectra in pure argon, argon/ air mixture and air. It was observed that the intensities of argon spectral lines in argon/ air discharge are all lower than that in argon discharge, which indicates that the nitrogen in air has a quenching effect on the argon excited states. It was found that the decreasing rate of intensity of spectral lines with increasing the air concentration is different. The intensity of Ar I 763.51 nm decreases fastest, the Ar 772.42 nm and Ar 696.54 nm take second place, while the Ar I 750.39 nm decreases slowest. Comparing the excitation energy of argon excited state with the excitation energy of nitrogen molecule, the authors found that the smaller the difference between the excitation energy of argon excited state and the excitation energy of nitrogen molecule, the faster the spectral line decreases, implying the stronger the energy transfer. In addition, the additional argon in air makes the emission intensities of nitrogen band of second positive system and band of first negative system increase, which indicates that the excitation of nitrogen is enhanced by the energy transfer from argon through Penning excitation involving argon metastable states. In other words, the component and ratio of gas in the gas mixture influence the optical characteristic and energy transfer peculiarity in the mixed gas discharge. The optical emission spectra measurement as a useful plasma diagnostic tool has been successfully used in the study of energy transfer in the mixed gas discharge, and the results provide a reasonable reference for the underlying industrial applications of different species discharge.

Keywords Dielectric barrier discharge; Quench; Penning effect

(Received Aug. 10, 2007; accepted Nov. 25, 2007)