

正极性直流驱动大气压氦气等离子体射流的传播机制：氦气-空气混合层的影响

赵莉华, 冀一玮, 尚豪, 黄小龙, 任俊文, 宁文军*

(四川大学电气工程学院, 四川省 成都市 610065)

Propagation Mechanism of a Positive DC Driven Atmospheric Pressure Helium Plasma Jet: Influences of He-air Mixing Layer

ZHAO Lihua, JI Yiwei, SHANG Hao, HUANG Xiaolong, REN Junwen, NING Wenjun*

(College of Electrical Engineering, Sichuan University, Chengdu 610065, Sichuan Province, China)

ABSTRACT: Helium atmospheric pressure plasma jets (He APPJs) have promising applications in many fields such as biomedicine and material processing. In this contribution, a 2-dimensional fluid model was constructed to study the physical mechanism of the cathode-directed propagation of a positive DC driven He APPJ. Influence of helium-air mixing layer and a small amount of air impurities in the discharge channel on the discharges was highlighted. The simulation results were in good agreement with the experimental observations, and it further showed that the change of electron collision ionization rate caused by the electron energy distribution in the He-air mixing layer played an essential role in the formation of cathode-directed streamer and the hollow-section ionization wave structure. Penning ionization can promote the discharge, but it has no decisive effect on the formation of the streamer and the ionization wave structure. A small amount of N_2/O_2 impurities in the discharge core channel show two competing effects of promoting the discharge via Penning ionization, or inhibiting the discharge via energy dissipation to molecule excitation and electron attachment to O_2 .

KEY WORDS: atmospheric pressure plasma jet; two dimensional fluid model; discharge mechanism

摘要: 氦气等离子体射流在生物医学、材料处理等诸多领域具备广阔的应用前景。该文通过二维等离子体流体仿真模型,研究正极性直流驱动等离子体射流阴极导向传播的物理机制,并进一步探讨氦气-空气混合层以及放电通道内混合少量空气杂质对放电的影响。仿真结果与实验观测结果较好

地吻合,并进一步表明:氦气-空气混合层内电子能量分布导致的电子碰撞电离速率变化是形成阴极导向流柱和空心截面电离波结构的本质原因;潘宁电离能够促进放电,但是对形成流柱和电离波结构不具有决定性影响;放电核心通道内少量的 N_2/O_2 杂质对放电存在通过潘宁电离促进放电,以及通过分子激发耗散能量和 O_2 吸附电子抑制放电这两种竞争性作用。

关键词: 大气压等离子体射流; 二维流体模型; 放电机制

0 引言

大气压等离子体射流(atmospheric pressure plasma jet, APPJ)在生物医学、材料处理、食品安全和环境保护等方面具有广阔的应用前景,得到人们广泛的关注和深入的研究^[1-5]。以氦气为典型代表的惰性气体因其单原子结构和相对较少的激发态,易于在大气压下形成均匀弥散的放电形态,是产生稳定低温 APPJ 的理想工作气体。实际的 He APPJ 一般在开放大气空间中产生,射流尾焰处氦气与空气混合,包含多种化学组分,存在着复杂的反应过程。He 与 N_2/O_2 之间存在较强的化学耦合, Martens 等人发现, He 介质阻挡放电(dielectric barrier discharge, DBD)中混合 10^{-6} 摩尔分数的 N_2 即能产生显著变化^[6];同时,低浓度的 O_2 或者空气也对 He 放电具有重要影响^[7-9]。已有大量研究表明,正电压驱动的 He APPJ 尾焰是由一系列高速运动(10^3 m/s~ 10^5 m/s)的孤立电离波(或称为“等离子体子弹”)组成,因此尾焰并非由外施气流场驱动(速度一般在 10 m/s 量级),而可能是带电粒子的电场迁移行为;另外,典型“等离子体子弹”表现为中空的环境状结

基金项目: 国家自然科学基金项目(51977085); 中央高校基本科研业务费专项资金资助项目(YJ202070)。

Project Supported by National Natural Science Foundation of China (51977085); Fundamental Research Funds for the Central Universities (YJ202070).

构, 在往下游运动的过程中逐渐收缩为实心形状。

围绕氦气-空气混合气体的等离子体化学特性及其对 He APPJ 产生传播机制、尤其是环状“子弹”的形成机理的影响, 国内外诸多研究小组开展了深入的研究。2006 年, 卢新培教授等人提出一种基于光电离的流柱传播模型, 用以描述“子弹”的动力学行为^[10]。但该模型无法解释为何射流尾焰不具备传统流柱放电的分枝现象, 也无法解释“子弹”的加速、减速和熄灭原因。Karakas 等人分析了 He APPJ 的气流场及其与放电的相互作用, 观察到放电时背景气流场存在层流、层流-湍流转换、湍流 3 种模式, 并且“子弹”会在气流通道中空气浓度高于某临界值时熄灭^[11]。Karakas 的研究结果暗示氦气-空气混合化学性质对放电具有重要影响。Zhu 等人^[12]和 Wu 等人^[13]分别通过实验观测发现, 当 He APPJ 射入纯氦气氛后(即将周围空气替换为氦气), 将不能形成定向运动的射流, 取而代之的是向周围均匀扩散的球面状电离波, 从而进一步说明了氦气-空气混合层对 APPJ 尾焰传播的重要作用。随后, Naidis 通过仿真提出, He APPJ 尾焰中电离波大致沿着 99% He 浓度的氦气-空气混合层传播, 因此“子弹”会在传播的过程中由环状收缩为实心形状^[14]。Sakiyama 等人的仿真结果进一步表明, 氦气-空气混合层内的潘宁电离(Penning Ionization)是导致电离波偏离轴线的重要因素, 因此认为“环状子弹”由 He 亚稳态和 N₂/O₂ 的潘宁电离导致^[15]。然而, Breden 等人认为 He APPJ 的传播及“环状子弹”的形成并不决定性地依赖于潘宁电离^[16], 且其结论得到了 Chang 等人的实验支撑^[17]。

由此可见, 氦气-空气混合层对 He APPJ 具有显著影响, 但具体的影响机制尚未获得统一认识。由于 APPJ 放电系统本身的多物理场、多组分、多时间和空间尺度等复杂性, 实验观测和诊断难以全面把控主导的物理过程、化学粒子和化学反应; 而数值仿真可作为一种有力的辅助研究手段。本文搭建一个基于经典流体模型的二维等离子体模型, 单向耦合 APPJ 稳态气体组分分布模型, 研究正极性直流电压驱动 He APPJ(正极性 He APPJ 易于形成孤立传播的“子弹”, 而负极性时一般表现为弥散的空间放电^[18]) 在 100ns 时间尺度上的物理和化学过程, 包括碰撞引起的粒子密度守恒、粒子输运、电子能量分布、静电场、壁面电子发射和电荷累积等, 忽略了更长时间尺度上的气体加热、流场变化等过

程。计算得到的等离子体分布较好地吻合了实验观测的放电图像; 而基于等离子体化学过程的分析认为氦气-空气混合层影响电子能量分布(electron energy distribution, EED), 并进一步改变电子碰撞电离频率, 是形成阴极导向传播流柱和“环状子弹”的原因; 潘宁电离并不具备决定性的作用。在此基础上, 本文进一步探讨了 He APPJ 中混合少量 N₂/O₂ 对放电的影响及物理机制。

1 仿真模型

He 气流从管口射入空气, 向前运动的同时与空气相互扩散, 这一过程可用稳态的组分方程描述, 包括 Navier-Stokes 方程、连续性方程和对流扩散方程。由于 APPJ 是低温、低电离率放电, 模型不考虑放电导致的升温及粒子碰撞等因素对 He 及空气摩尔分数的影响。

本文使用的 APPJ 仿真模型与 Breden 等人^[19]及 Liu 等人^[20]的模型类似。模型包括电子的连续方程(求解电子密度分布)、电子能量守恒方程(求解电子能量分布)和重粒子的迁移/扩散方程(求解离子、亚稳态粒子和其他中性粒子的密度分布), 并通过耦合静电场泊松方程(求解电场分布)达到自洽。此外, 考虑到 He APPJ 中光电离不具备显著作用, 且计算量巨大^[8, 16], 模型中未考虑光电离, 而设置了空间均匀分布的初始电子密度($8 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$)。

等离子体放电模型包含的粒子种类和反应过程见表 1。总共考虑了 13 种反应粒子(N₂、O₂ 和 O 的激发态粒子被处理为对应的基态粒子), 包括 e、He、He⁺、He₂⁺、Hes、He₂s、N₂、N₂⁺、O₂、O₂⁺、O₂⁻、O 和 O⁻, 它们组成了 53 个反应。

首先, 计算稳态的 He 摩尔分数分布, 求解区域为 50mm×100mm; 在此区域内截取 8mm×20mm 的面积作为耦合放电流体模型的计算区域。图 1 显示了实际的放电装置结构、对应的仿真区域, 以及 He 流量为 3L/min 时 He 摩尔分数的空间分布, 并且标注出 He 的摩尔分数 $\eta=0.99$ 的边界线。由于氦气流和周围空气的扩散对流(扩散是主导过程, 而径向对流非常微弱), 气流通道边缘会形成 He-空气混合层。APPJ 的管内半径为 $r=2\text{mm}$, 管壁厚为 0.5mm, 电极宽度 0.1mm, 下沿距离管口 3mm; 电极包覆在介质层内, 介质层的相对介电常数为 5(Pyrex 玻璃)。网格剖分采用非结构化的三角形网格, 最小尺寸为 30 μm 。耦合模型的总网格数约为

表 1 模型中考虑的碰撞过程

Table 1 Collision processes included in the model

编号	反应	文献	编号	反应	文献
R1	$e+\text{He}\rightarrow e+\text{He}$	[21]	R28	$e+\text{He}_2\text{S}\rightarrow 2e+\text{He}_2^+$	[22]
R2	$e+\text{He}\rightarrow e+\text{Hes}$	[21]	R29	$2\text{Hes}\rightarrow e+\text{He}+\text{He}^+$	[22]
R3	$e+\text{Hes}\rightarrow e+\text{He}$	[21]	R30	$e+\text{He}_2^+\rightarrow \text{Hes}+\text{He}$	[22]
R4	$e+\text{He}\rightarrow 2e+\text{He}^+$	[21]	R31	$e+\text{He}^+\rightarrow \text{Hes}$	[22]
R5	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2$	[21]	R32	$2e+\text{He}_2^+\rightarrow e+\text{Hes}$	[20]
R6	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2(v0-1)$	[21]	R33	$e+\text{He}+\text{He}^+\rightarrow \text{Hes}+\text{He}$	[20]
R7	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2(v0-2)$	[21]	R34	$2e+\text{He}_2^+\rightarrow \text{He}_2\text{S}+e$	[20]
R8	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2(v0-3)$	[21]	R35	$e+\text{He}+\text{He}_2^+\rightarrow \text{He}_2\text{S}+\text{He}$	[20]
R9	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2(v0-4)$	[21]	R36	$e+\text{He}+\text{He}_2^+\rightarrow \text{Hes}+2\text{He}$	[20]
R10	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2(v0-5)$	[21]	R37	$2e+\text{He}_2^+\rightarrow \text{Hes}+\text{He}+e$	[20]
R11	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2(\text{A})$	[21]	R38	$2e+\text{N}_2^+\rightarrow \text{N}_2+e$	[20]
R12	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2(\text{C})$	[21]	R39	$e+\text{N}_2+\text{N}_2^+\rightarrow 2\text{N}_2$	[20]
R13	$e+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2^+$	[21]	R40	$e+2\text{O}_2\rightarrow \text{O}_2+\text{O}_2^-$	[23]
R14	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}_2$	[21]	R41	$\text{Hes}+2\text{He}\rightarrow \text{He}_2\text{S}+\text{He}$	[22]
R15	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}^-$	[21]	R42	$\text{He}^++2\text{He}\rightarrow \text{He}_2^++\text{He}$	[22]
R16	$e+\text{O}_2\rightarrow \text{O}^{2-}$	[21]	R43	$\text{O}^-+\text{O}_2^+\rightarrow \text{O}+\text{O}_2$	[23]
R17	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}_2(v0-3)$	[21]	R44	$\text{O}_2^-+\text{O}_2^+\rightarrow 2\text{O}_2$	[23]
R18	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}_2(v0-4)$	[21]	R45	$\text{O}_2^-+\text{O}_2^++\text{He}\rightarrow 2\text{O}_2+\text{He}$	[24]
R19	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}_2(\text{A1})$	[21]	R46	$\text{O}_2^-+\text{O}_2^++\text{O}_2\rightarrow 2\text{O}_2+\text{O}_2$	[24]
R20	$e+\text{O}_2(\text{A1})\rightarrow e+\text{O}_2$	[21]	R47	$\text{O}_2^-+\text{O}_2^++\text{N}_2\rightarrow 2\text{O}_2+\text{N}_2$	[24]
R21	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}_2(\text{B1})$	[21]	R48	$\text{Hes}+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2^++\text{He}$	[22]
R22	$e+\text{O}_2(\text{B1})\rightarrow e+\text{O}_2$	[21]	R49	$\text{He}_2\text{S}+\text{N}_2\rightarrow e+\text{N}_2^++2\text{He}$	[22]
R23	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}_2(\text{EXC})$	[21]	R50	$\text{Hes}+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}_2^++\text{He}$	[24]
R24	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}+\text{O}$	[21]	R51	$\text{He}_2\text{S}+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}_2^++2\text{He}$	[24]
R25	$e+\text{O}_2\rightarrow e+\text{O}+\text{O}(\text{1D})$	[21]	R52	$\text{He}_2^++\text{N}_2\rightarrow \text{N}_2^++2\text{He}$	[22]
R26	$e+\text{O}_2\rightarrow 2e+\text{O}_2^+$	[21]	R53	$\text{He}^++\text{N}_2\rightarrow \text{N}_2^++\text{He}$	[22]
R27	$e+\text{Hes}\rightarrow 2e+\text{He}^+$	[22]			

注：实际计算中，激发态粒子 $\text{N}_2(v0-1)$ 、 $\text{N}_2(v0-2)$ 、 $\text{N}_2(v0-3)$ 、 $\text{N}_2(v0-4)$ 、 $\text{N}_2(v0-5)$ 、 $\text{N}_2(\text{A})$ 、 $\text{N}_2(\text{C})$ 、 $\text{O}_2(v0-3)$ 、 $\text{O}_2(v0-4)$ 、 $\text{O}_2(\text{A1})$ 、 $\text{O}_2(\text{B1})$ 、 $\text{O}_2(\text{EXC})$ 以及 $\text{O}(\text{1D})$ 当成对应的 N_2 、 O_2 和 O 处理。所列反应的速率常数和能量损耗请参考对应的文献。

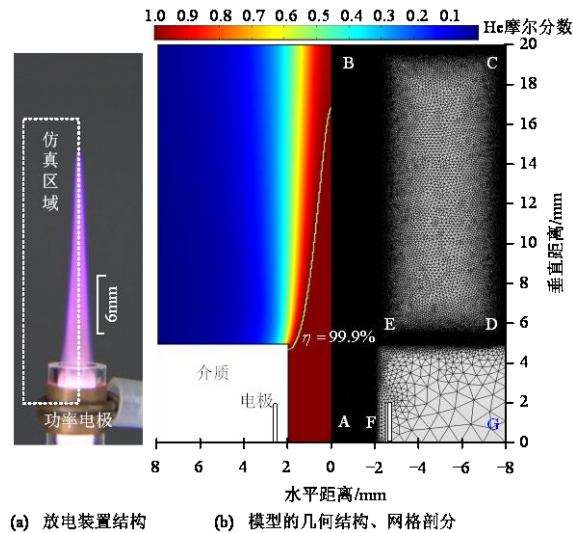


图 1 放电装置结构及 3L/min 时 He 摩尔分数分布

Fig. 1 Structure and simulation area of discharge device and Geometric structure, mesh generation and He mole fraction distribution at 3L/min of the model

186000 个，计算的自由度达到 1300000。

模型为二维轴对称结构，AB 为对称轴；BC、CD 及 DG 的电位为零(接地)，且粒子通量及电子能量在 BC、CD 边界的法线方向为零；DE 与 EF 是介质表面，电子在此累积，而激发态和电离态的重粒子淬灭回到基态，同时发射二次电子，发射系数设置为 0.01，平均能量为 5eV；AF 的电子通量及能量通量在法线方向为零；介质内电荷守恒，且认为 FG 表面电荷密度为零。

2 结果与分析

2.1 模型验证

首先，对比了计算的 APPJ 形状与实验拍摄图片，如图 2 所示。仿真与实验的反应器结构参数及气体流量一致。需要指出的是，实验所用的电源是 10kHz 交流电压源(南京苏曼 CTP-2000K)，电压峰值 4.8kV(正半周期放电时的电压幅值约为 2kV)，照片拍摄的快门时间是 0.25s。仿真中驱动源是 2kV 幅值、50ns 上升沿的直流电压。驱动源的不同固然会导致放电的差异，但文献[25]研究表明，相同电压幅值直流源与 kHz 交流源驱动的介质阻挡放电会存在放电强度的差异，而放电模式和形态等宏观部分并无明显区别。因此为了节约计算时间，仿真中的驱动源为直流电压，而仿真结果能够对实验现象作定性的解释与预测^[8]。计算的总时长为 750ns，明显的电离波形成于 100ns，将 100~750ns 时间区段内的电子密度进行时间积分，然后再除以总积分时长，得到平均电子密度分布。

从图 2 可以看出，仿真形状与实验照片比较吻

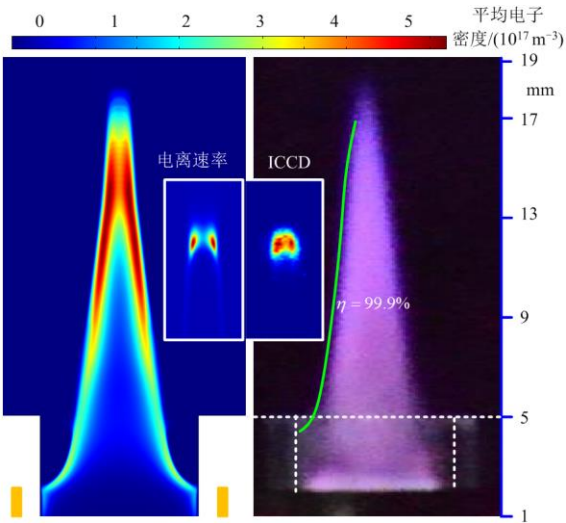


图 2 仿真结果与实验拍摄 APPJ 照片

Fig. 2 Validation of simulation model with experimental images

合: 射流从高压电极下沿产生后, 即脱离管壁而靠近轴线运动; 射入空气后射流的直径持续收缩, 最后聚集到轴线上, 放电熄灭, 管外传播距离约为 13.6mm。从外形观察, 射流呈现为倒锥形状, 放电大致沿着 99% He 的界面传播。计算的平均电子密度约为 $5.2 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ 。根据实验结果^[25], 一般脉冲电源放电电流要高出同条件下正弦交流电压驱动放电电流约 3~13 倍; 另外, 类似模型计算 He APPJ 的电子密度一般处于 $10^{17} \sim 10^{20} \text{ m}^{-3}$ ^[26-27], 与本文模型的计算值相符。图中插入的两幅子图, 分别为计算的电离速率和 ICCD(Andor iStar, 10ns 门宽时间、100 次叠加)拍摄的等离子体“子弹”, 可见仿真与实验在高速形态上能较好地吻合。

2.2 氦气-空气混合层影响

He 和空气的混合层被认为对 APPJ 的传播有至关重要的影响: Breden 等人^[19]利用模型计算了 He APPJ 射入纯 He 气氛中的运动, 发现管外没有射流, 而形成了沿壁面传播的表面电离波; Zhu 等人^[12]设计实验观察了 He APPJ 射入开放空气和充满 He 气氛的封闭空间的不同现象, 前者能形成箭头形状的下游射流, 而后者则呈现为弥散状的放电形态(见图 3(d))。为了探究下游射流的形成条件, 本文分别计算了 3000V 电压下, 包含了表 1 中完整反应的模型、忽略电子与空气直接碰撞反应(R5—R26)的模型以及整个计算区域充满 100% He(即只考虑 He 相关反应)的模型。管内半径 r 设置为 1mm 便于减少细化网格从而加快计算速度, 结果展示在图 3 中。

图 3(a)的电子密度($\log_{10}(n_e)$)分布表现出明显的流注传播形态。APPJ 在纯氦气氛中的放电形态如图 3(c)所示。放电的起始时间在 40ns 左右, 管内放电的电子密度受到管壁鞘层的作用往中间轴线处收缩成环状结构^[20], 且平行于轴线向管外传播; 100ns 时放电前端运动至管口, 然后电子密度分布并未往轴线收缩, 而是以管口为中心向管外四周均

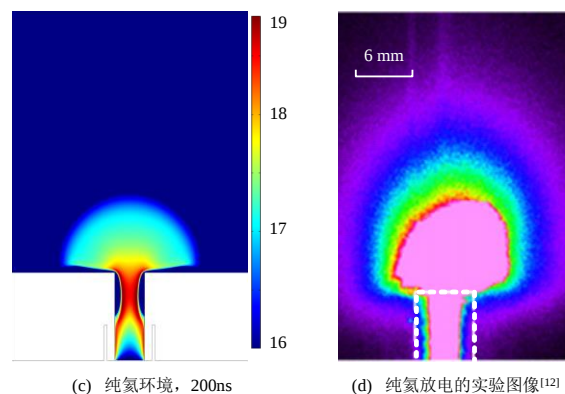
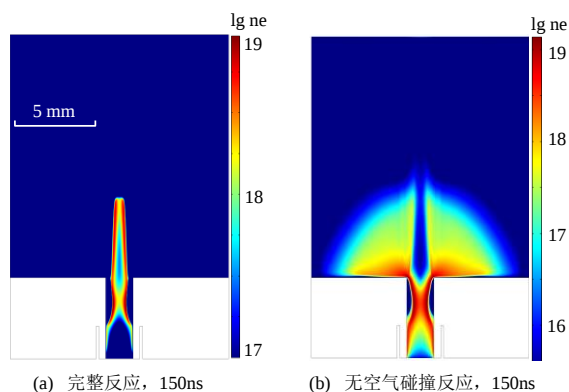


图 3 电压 3000V 时不同计算条件下的 $\lg n_e$ 及与文献^[12]的实验结果比较

Fig. 3 Calculated electron density (in log10 scale) with different reaction processes at 3000V

匀地扩散开去, 形成一簇弥散的电子云。对比 Zhu 等人^[12]在类似条件下的实验结果(见图 3(d)), 两者的形态具有较高的相似性。经计算得到 200ns 时纯 He 环境中 APPJ 的米克判据 M 值约为 24.68, 不符合流注放电的特征 M 值(18~20); 换言之, He APPJ 射入纯氦环境中不能形成流注放电。

为了明确下游流注的形成机理, 继续计算了忽略电子与 N_2/O_2 碰撞反应(表 1 中 R5—R26)而保留了 He-空气的混合层及相互反应(如潘宁电离等)的模型, 如图 3(b)所示 150ns 时的 $\lg n_e$ 分布。有趣的是, 此时的放电形态与纯氦气环境中的放电形态有类似之处, 表现为发散的电离波头, 根据电子密度分布形态, 计算的积分电离值 $M \approx 25.69$, 意味着放电未进入流注模式。另一方面, 当不考虑电子碰撞 N_2/O_2 反应时, 对称轴附近高氦气浓度的区域没有放电。电子碰撞气体分子影响了电子能量分布函数(electron energy distribution function, EEDF)。EEDF 由 2 项近似玻尔兹曼方程计算得到^[21], 如图 4(a)所示。根据 EEDF, 进一步计算得到电子碰撞气体分子的电离速率, 并根据不同气体组分比例得到约化的电子碰撞电离频率, 如图 4(b)所示。可见, 当少量空气混入氦气中后, EEDF 会向低电子能量区域偏移, 尤其当空气含量超过 1%后。而当空气含量不超过 1%时, EEDF 无显著变化; 由于氧气(电离阈值 $\Delta\varepsilon=12\text{V}$)和氮气($\Delta\varepsilon=15.6\text{V}$)相比氦气($\Delta\varepsilon=24.6\text{V}$)较低的电离阈值, 约化电子碰撞电离频率相较纯氦气情况时增加, 尤其在低电场强度的情况下。

由此, He-空气混合层对 APPJ 尾焰等离子体动力学的作用机制解释如下: 因为氦气混合含量少于 1%空气时能够提升电子碰撞电离频率, 而在空气含

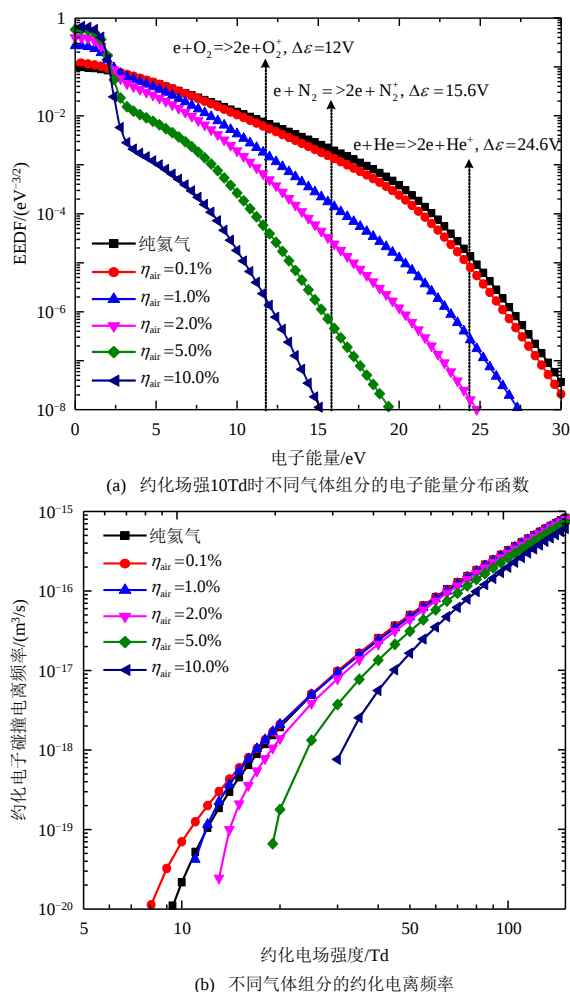


图4 氦气中混合不同比例空气时的
电子能量分布函数及约化电离频率

Fig. 4 Electron energy distribution function and reduced ionization frequency in helium mixed with different proportions of air

量高于2%时电子碰撞电离频率快速衰减(图4(b)), 所以 He APPJ 内的电离波会沿着 He 气流通道核心区域往下游传播, 形成阴极导向的流柱; 并且管口处电离波的峰值会偏离对称轴, 表现为中空的“环状子弹”。同时, 亚稳态氦原子/分子与 N_2/O_2 之间的潘宁电离能够促进放电, 但对形成阴极导向流柱无决定性作用(见图3(b))。Breden 等人^[19]及 Naidis^[14]强调了 He-空气的混合层对于流注形成和传播的决定性作用, 本文的计算支持这一结论, 并且更深入探讨了决定因素, 即混合层内的电子与 N_2/O_2 的直接碰撞反应是形成管外流注的必要条件: 这些反应影响 EEDF 的形状, 使主导放电的电子碰撞电离在 He-空气混合层内达到峰值, 从而引导放电的传播方向。

2.3 潘宁电离影响

潘宁电离并非流注形成的决定因素, 其电离速

率对电离波的形成和维持作用甚微; 另一方面, 电离波前端空间的潘宁电离具有最高的电离速率, 为流注的传播产生了种子电子。为了明确潘宁电离的作用, 将 R48—R51 的反应速率常数置零(即忽略潘宁电离), 然后将计算结果与考虑完整反应的结果比较, 如图5所示。当管内半径 $r=1\text{mm}$ 时, 可发现在 200ns 时刻, 考虑潘宁电离模型(模型1)的电子密度出现环状结构, 而忽略潘宁电离的模型(模型2)则呈现实心形状。到 300ns 时, 模型1的电子密度向轴线收缩, 环状半径减小; 模型2的电子密度则

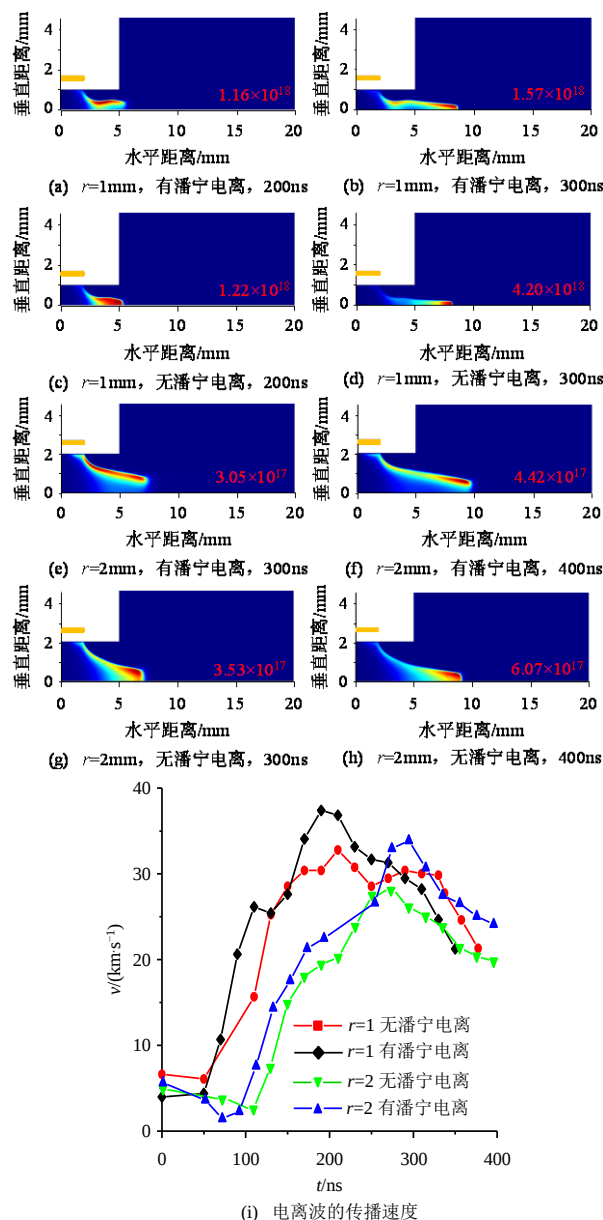


图5 潘宁电离对放电电子密度分布的影响
(图中右下角数字表示电子密度最高值)

Fig. 5 Influence of Penning Ionization on the electron density distributions (The number in the lower right corner of each sub-image indicates the maximum electron density in m^{-3}).

沿着轴线运动, 一直表现为实心形状。 $r=2\text{mm}$ 时, 由于传播速度较慢, 对比了 300ns 和 400ns 时的电子密度分布, 可发现虽然模型 2 的有效放电半径较小, 但是明显地存在环状结构。另外, 有效放电半径减少将导致电子密度的最高值增大: $r=1\text{mm}$ 时, 300ns 时模型 1 和模型 2 的电子密度峰值分别为 $1.57 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ 和 $4.20 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$; $r=2\text{mm}$ 时, 400ns 时 2 个模型的电子密度峰值分别为 $4.42 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ 和 $6.07 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ 。这也再次证实了电子碰撞 He 分子电离是 APPJ 的主要电离机制。图 5 总结了 2 个模型的电离波传播速度, 可发现模型 1 的传播速度要高于模型 2。如前文所述, 潘宁电离能在电离波前端产生种子电子, 从而加快放电的发展速度^[28]。

关于潘宁电离在 APPJ 中的作用引发了广泛的实验和仿真研究。Chang 等人^[17]设计实验对比了有无潘宁电离下 APPJ 的高速形态: 实验使用直径 5.5mm 的石英管, 发现潘宁电离对环状结构的形成没有影响; Sakiyama 等人通过仿真^[29]和实验光谱测量^[30]总结出潘宁电离对环状结构的出现具有重要影响, 他们所用管内半径为 1.5mm ; Naidis^[14]计算了 $r=1.5\text{mm}$ 的 He APPJ 动态发展过程, 总结出潘宁电离不影响环状结构形成; 但是 Breden 等人^[19]计算了 $r=2\text{mm}$ 的 APPJ, 结果显示无论考虑潘宁电离与否, 环状结构都存在。

需要注意的是, Breden 模型中高压电极下沿距离管口为 5mm , 大于本文模型设置的 3mm 。Xian 等人^[31]通过实验研究了电极下游管壁长度对 APPJ 放电形态的影响, 发现管壁长度越长, 越利于环状放电结构的出现。因此本文计算了 5mm 间距下考虑潘宁电离与否的放电模型, 电压幅值为 3000V 。 150ns 时刻的结果如图 6 所示, 可见不论考虑潘宁电离与否, 下游射流都存在环状结构, 与 Breden 模型结果一致, 也符合 Xian 等人的实验结果。

因此, 潘宁电离对于环状结构的形成具有有限的影响。由于潘宁电离在电离波的前方及边缘处是占主导地位的电离机制, 忽略潘宁电离将降低放电的传播速度, 同时缩小有效放电半径, 从而使环状

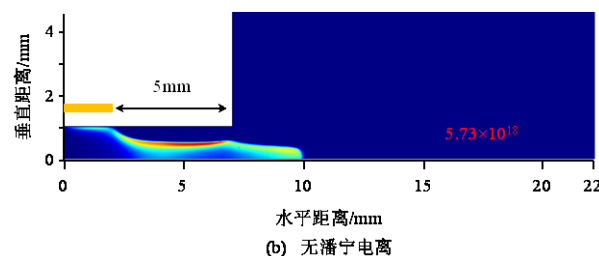


图 6 电极下沿距离管口 5mm 时, 有无潘宁电离的电子密度分布

Fig. 6 Electron density distribution in the cases with or without Penning Ionization as the edge of the electrode is 5mm away from the tube nozzle

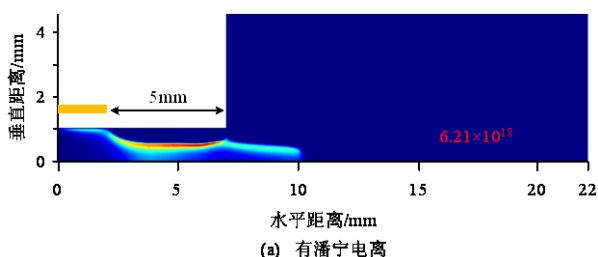
结构提前转化为实心结构。因此在管内半径较小的情况下(如 $r=1\text{mm}$), 忽略潘宁电离时几乎观察不到环状结构; 而 r 较大时(如 $r=2\text{mm}$), 则可明显看见环状结构; 另外, 增加电极下游管壁长度也能在忽略潘宁电离的情况下观察到环状结构。从这个意义上来说, 潘宁电离虽然能够影响环状结构形成, 但并非决定性因素; 增加管径或者电极下游管壁长度都能弥补由于潘宁电离缺失而导致的环状结构消失。

2.4 杂质气体影响

前文已经证实, He-空气的混合层对于 APPJ 的形成与传播具有决定性作用, 于是本文进一步计算了在 He 气流中混合 1% 空气/ N_2/O_2 的模型, 以研究气体杂质对 APPJ 动态特性的影响。添加杂质气体时, 将稳态的组分模型求解的 He 摩尔分数分布乘以 0.99 系数, 添加 1% 的空气($79\%\text{N}_2+21\%\text{O}_2$)或者 N_2/O_2 。

N_2 和 O_2 杂质对 He APPJ 主要存在两方面的影响。第一, 分子气体的引入消耗了部分电子能量用于跃迁至分子的转动态、振动态等激发态; 增加杂质气体含量将导致 EEDF 往低能段迁移, 从而使需要较高碰撞能量的电离反应更难以进行, 不利于等离子体的形成和维持; 同时 O_2 是一种电子吸附性气体, 能够吸附电子形成负离子(R15 、 R16 和 R40), 减少活动电子的数量。从这个方面看, He 中混合 N_2 和 O_2 将削弱放电强度。第二, 由于电子碰撞 He 分子形成亚稳态 Hes 的所需能量低于直接电离的能量, Hes 具有较高的密度; 因此混合 N_2 和 O_2 后, 将在通道内引发潘宁电离过程, 从而促进 APPJ 的发展传播。

图 7 给出混合不同杂质的模型的电子密度分布和电离波传播速度。可以看出, 混合杂质后 APPJ 的发展传播速度有明显提升。在放电前期(200ns), 混合空气使等离子体的发展速度加快, 电离波前端



到达 $z=7.9\text{mm}$ 处; N_2 和 O_2 对 APPJ 的加速作用相当, 电离波前端位置为 $z=7.6\text{mm}$, 纯 He 射流的到达位置为 $z=5.6\text{mm}$ 。在 300 ns 时, 混合空气或 O_2 的放电前端都到达 $z\approx 12.0\text{mm}$ 处, 混合 N_2 的 APPJ 发展速度稍慢, 但是都快于纯 He 射流的情况。为了明确杂质气体的作用及机理, 考察了 200ns 时刻各模型放电前端 0.1mm 处的潘宁电离总反应速率 ($R_{48}+R_{49}+R_{50}+R_{51}$) 的径向分布, 数据取样位置标注在图 7 中 200ns 时刻的电子密度分布图上, 结果

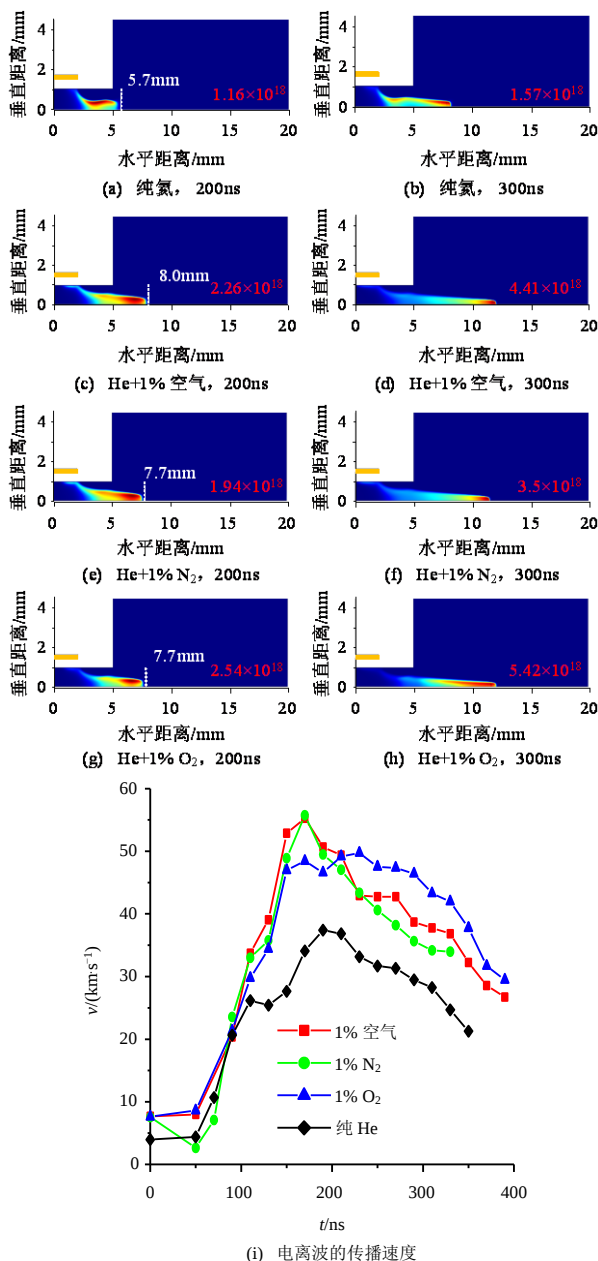


图 7 不同杂质组分下 APPJ 的电子密度分布及电离波传播速度(图中右下角数字表明最大的电子密度值)

Fig. 7 Electron density distribution and ionization wave propagation velocity of APPJ with different impurity components. (The number in the lower right corner of each sub-image indicates the maximum electron density in m^{-3})

如图 8 所示。混合 N_2 和 O_2 杂质后, 潘宁电离的径向最大值在轴线上; 且由于 O_2 的潘宁电离反应速率常数较大, 将在放电前端产生更多的种子电子, 这也解释了图 7 中混合 O_2 的模型具有最高的电子密度。前文已经说明, 种子电子的分布将引导放电的发展路径, 因此混合杂质后种子电子将主要通过潘宁电离产生而集中在轴线处。由于管壁鞘层约束, 放电在起始阶段呈现环状结构, 一旦射出管口后在种子电子的牵引下将快速收缩至轴线, 如图 7 中 300ns 时刻的电子密度分布所示。Wu 等人^[13]通过实验发现在 He APPJ 加入 N_2 后将导致环状结构收缩为实心结构, 并且 N_2 能够提升电离波的传播速度, 这与本文的模型计算结果是一致的。

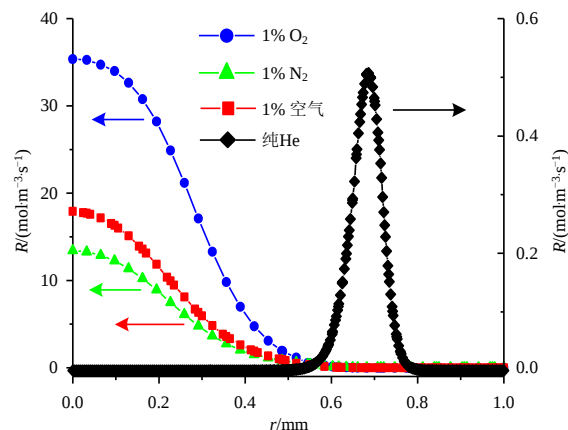


图 8 200ns 时混合不同杂质模型放电前端 1mm 处的径向潘宁电离总反应速率

Fig. 8 Radial distribution of Penning ionization rate 1mm ahead of the ionization front at 200 ns

相反, 由于 He 通道内极低的 N_2 和 O_2 密度, 纯 He 射流的潘宁电离反应速率峰值出现在非轴线位置; 另外, 因为潘宁电离速率同时取决于 He 的亚稳态粒子(He^s 和 He_2^s)及 N_2/O_2 的密度, 其反应速率相对较低。这些因素使纯 He 射流在管外以环状结构相对缓慢地传播。

O_2 对 He APPJ 的作用需要综合考虑其电子吸附性和潘宁电离特性。从计算结果分析, 加入 1% O_2 能促进放电的发展, 使 APPJ 的密度和传播速度都加快, 说明在等离子体中心区域潘宁电离占主导。为了更直观地认识 O_2 的电子吸附性作用, 图 9 对比了 300ns 时纯 He APPJ 以及混合了 1% O_2 和 1% N_2 APPJ 的电子密度轴线分布。定义 Δl 为电子峰值向前衰减至背景电子密度值的距离, 可以看出纯 He APPJ 的 $\Delta l_1=1.479\text{mm}$; 混合 1% N_2 的 $\Delta l_2=1.433\text{mm}$; 混合 1% O_2 的 $\Delta l_3=1.149\text{mm}$ 。模型中放电区域的电子主要通过吸附(碰撞) O_2 形成 O^- 和 O_2^- (R_{15} 、 R_{16} 和 R_{40})

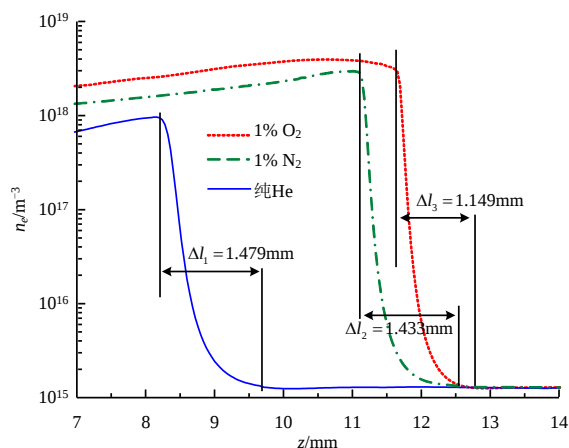


图 9 300ns 时混合 1% O₂/N₂ 与纯 He APPJ 的电子密度轴线分布

Fig. 9 Axial distribution of electron density when mixing 1% O₂/N₂ and pure He APPJ at 300ns

等方式消耗掉，因此 Δl 的长度实际上是 O₂ 消耗电子以及通过潘宁电离产生种子电子这两种机理相互竞争，且最终 O₂ 消耗电子占主导的空间尺寸。由此可见，O₂ 的电子吸附性主要作用于电离波的前端空间，随着 O₂ 浓度的增加，前方产生的种子电子减少，将导致放电提前熄灭。Thiyagarajan 等人^[32]的实验观察到 He APPJ 中混合 O₂ 后电流增大(可近似理解为电子密度增加)，但是射流长度缩短，与本文的模型计算结果相符合。

3 结论

本文建立了 He APPJ 的二维流体仿真模型，计算结果与实验观测具有较好的一致性，从而验证了模型的有效性。借助该仿真模型，本文分析了正极性直流驱动 He APPJ 尾焰放电的传播过程和支配机制，强调了氦气-空气混合层对电离波传播方向截面形状的重要性，并进一步探讨了 N₂/O₂ 杂质气体对 He APPJ 的影响。主要的结论如下：

1) 放电在高压电极下沿处产生后，受到管壁附近鞘层的约束而向轴线收缩，呈现环状结构；射出管口后，传播速度开始有较大提升，随后减速；往下游运动过程中，射流截面逐渐收缩，环状结构变成实心结构；电子直接碰撞 He 电离是主要的电子产生机理，而潘宁电离能在电离波的前方产生种子电子，引导放电的传播路径。

2) 氦气-空气混合层是产生下游流注的必要因素，原因在于电子与 N₂ 及 O₂ 的碰撞激发电离等过程调控了电子能量及电场强度的分布；纯氦环境中的管外射流表现为径向膨胀的弥散放电形式，不具

备流注特征。

3) 流速主要影响环状结构持续的长度；初始电子密度和上升时间主要作用于等离子体的形成阶段；混合 N₂/O₂ 杂质可通过加强潘宁电离促进电离波传播，且由于潘宁电离峰值在轴线上，引导等离子体往轴线传播而使环状结构消失；O₂ 一方面通过潘宁电离增强放电，另一方面由于电子吸附性吸附电子使放电减弱；其电子吸附特性在电离波前端作用明显，从而决定射流长度。

参考文献

- [1] 梅丹华, 方志, 邵涛. 大气压低温等离子体特性与应用研究现状[J]. 中国电机工程学报, 2020, 40(4): 1339-1358.
MEI Danhua, FANG Zhi, SHAO Tao. Recent progress on characteristics and applications of atmospheric pressure low temperature plasmas[J]. Proceedings of the CSEE, 2020, 40(4): 1339-1358(in Chinese).
- [2] 张凯, 张帅, 高远, 等. 大气压 CO/Ar 混合气体射频放电光学特性研究[J]. 中国电机工程学报, 2019, 39(11): 3280-3288.
ZHANG Kai, ZHANG Shuai, GAO Yuan, et al. Study on the optical characteristics of CO/Ar radio-frequency discharge at atmospheric pressure[J]. Proceedings of the CSEE, 2019, 39(11): 3280-3288(in Chinese).
- [3] 张迅, 田承越, 曾华荣, 等. 大气压等离子体气相沉积制备超疏水表面及其防污防酸碱腐蚀性能研究[J]. 高电压技术, 2019, 45(5): 1367-1374.
ZHANG Xun, TIAN Chengyue, ZENG Huarong, et al. Investigation of super-hydrophobic surface prepared by atmospheric-pressure plasma vapor deposition and its anti-dust, acid-and-alkaline resistant properties[J]. High Voltage Engineering, 2019, 45(5): 1367-1374(in Chinese).
- [4] 刘定新, 何桐桐, 张浩. 等离子体对人体组织的渗透作用: 研究现状与前沿问题[J]. 高电压技术, 2019, 45(7): 2329-2342.
LIU Dingxin, HE Tongtong, ZHANG Hao. Penetration effect of gas plasmas on human tissues: state-of-the-art and current issues[J]. High Voltage Engineering, 2019, 45(7): 2329-2342(in Chinese).
- [5] 胡多, 任成燕, 章程, 等. 等离子体射流处理对聚全氟乙丙烯薄膜沿面绝缘特性的影响研究[J]. 中国电机工程学报, 2019, 39(15): 4633-4641.
HU Duo, REN Chengyan, ZHANG Cheng, et al. Effect of deposited film on the surface insulation characteristics

- of fep material by atmospheric pressure plasma jet[J]. Proceedings of the CSEE, 2019, 39(15): 4633-4641(in Chinese).
- [6] MARTENS T, BOGAERTS A, BROK W J M, et al. The dominant role of impurities in the composition of high pressure noble gas plasmas[J]. Applied Physics Letters, 2008, 92(4): 041504.
- [7] 洪涯, 宁文军, 戴栋, 等. 空气杂质对大气压氦气介质阻挡放电中主要化学过程的影响[J]. 高电压技术, 2019, 45(5): 1404-1412.
- HONG Ya, NING Wenjun, DAI Dong, et al. Influence of air impurities on chemical processes in atmospheric helium dielectric barrier discharges[J]. High Voltage Engineering, 2019, 45(5): 1404-1412(in Chinese).
- [8] NING Wenjun, DAI Dong, ZHANG Yuhui, et al. Effects of trace of nitrogen on the helium atmospheric pressure plasma jet interacting with a dielectric substrate[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2018, 51(12): 125204.
- [9] ZHANG Yuhui, NING Wenjun, DAI Dong, et al. Influence of nitrogen impurities on the characteristics of a patterned helium dielectric barrier discharge at atmospheric pressure[J]. Plasma Science and Technology, 2019, 21(7): 074003.
- [10] LU Xinpei, LAROUCSI M. Dynamics of an atmospheric pressure plasma plume generated by submicrosecond voltage pulses[J]. Journal of Applied Physics, 2006, 100(6): 063302.
- [11] KARAKAS E, KOKLU M, LAROUCSI M. Correlation between helium mole fraction and plasma bullet propagation in low temperature plasma jets[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2010, 43(15): 155202.
- [12] ZHU Wenchao, LI Qing, ZHU Ximing, et al. Characteristics of atmospheric pressure plasma jets emerging into ambient air and helium[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2009, 42(20): 202002.
- [13] WU Shuqun, HUANG Qunjun, WANG Zhan, et al. The effect of nitrogen diffusion from surrounding air on plasma bullet behavior[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2011, 39(11): 2286-2287.
- [14] NAIDIS G. Modelling of plasma bullet propagation along a helium jet in ambient air[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2011, 44(21): 215203.
- [15] SAKIYAMA Y, GRAVES D B, JARRIGE J, et al. Finite element analysis of ring-shaped emission profile in plasma bullet[J]. Applied Physics Letters, 2010, 96(4): 041501.
- [16] BREDEN D, MIKI K, RAJA L. Computational study of cold atmospheric nanosecond pulsed helium plasma jet in air[J]. Applied Physics Letters, 2011, 99(11): 111501.
- [17] CHANG Zhengshi, JIANG Nan, ZHANG Guanjun, et al. Influence of Penning effect on the plasma features in a non-equilibrium atmospheric pressure plasma jet[J]. Journal of Applied Physics, 2014, 115(10): 103301.
- [18] XIONG Zaiping, LU Xingsai, XIAN Y, et al. On the velocity variation in atmospheric pressure plasma plumes driven by positive and negative pulses[J]. Journal of Applied Physics, 2010, 108(10): 103303.
- [19] BREDEN D, MIKI K, RAJA L L. Self-consistent two-dimensional modeling of cold atmospheric-pressure plasma jets/bullets[J]. Plasma Sources Science and Technology, 2012, 21(3): 034011.
- [20] LIU X Y, PEI Xuekai, LU Xinpei, et al. Numerical and experimental study on a pulsed-dc plasma jet[J]. Plasma Sources Science and Technology, 2014, 23(3): 035007.
- [21] HAGELAAR G J M, PITCHFORD C L. Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models[J]. Plasma Sources Science and Technology, 2005, 14(4): 722-733.
- [22] YUAN Xiaohui, RAJA L L. Computational study of capacitively coupled high-pressure glow discharges in helium[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2003, 31(4): 495-503.
- [23] KOSSYI I A, KOSTINSKY A Y, MATVEYEV A A, et al. Kinetic scheme of the non-equilibrium discharge in nitrogen-oxygen mixtures[J]. Plasma Sources Science and Technology, 1992, 1(3): 207.
- [24] MURAKAMI T, NIEMI K, GANS T, et al. Chemical kinetics and reactive species in atmospheric pressure helium-oxygen plasmas with humid-air impurities[J]. Plasma Sources Science and Technology, 2013, 22(1): 015003.
- [25] KETTLITZ M, HÖFT H, HODER T, et al. Comparison of sinusoidal and pulsed-operated dielectric barrier discharges in an O_2/N_2 mixture at atmospheric pressure [J]. Plasma Sources Science and Technology, 2013, 22(2): 025003.
- [26] NAIDIS G V. Modeling of helium plasma jets emerged into ambient air: Influence of applied voltage, jet radius, and helium flow velocity on plasma jet characteristics[J]. Journal of Applied Physics, 2012, 112(10): 103304.
- [27] NING Wenjun, DAI Dong, LI Licheng. Atmospheric pressure plasma jet impinging on a wavy dielectric surface: effects of DC polarities[J]. Plasma Sources

Science and Technology, 2018, 27(8): 08LT01.

- [28] LIKHANSKII A V, SHNEIDER M N, MACHERET S O, et al. Modeling of dielectric barrier discharge plasma actuator in air[J]. Journal of Applied Physics, 2008, 103(5): 053305.
- [29] SAKIYAMA Y, GRAVES D B. Neutral gas flow and ring-shaped emission profile in non-thermal RF-excited plasma needle discharge at atmospheric pressure[J]. Plasma Sources Science and Technology, 2009, 18(2): 025022.
- [30] SAKIYAMA Y, GRAVES D B. Finite element analysis of an atmospheric pressure RF-excited plasma needle[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2006, 39(16): 3451-3456.
- [31] XIAN Yubin, ZHANG Peng, LU Xinpei, et al. From short pulses to short breaks: exotic plasma bullets via residual electron control[J]. Scientific Reports, 2013, 3(1): 1599.
- [32] THIYAGARAJAN M, SARANI A, NICULA C. Optical emission spectroscopic diagnostics of a non-thermal atmospheric pressure helium-oxygen plasma jet for biomedical applications[J]. Journal of Applied Physics, 2013, 113(23): 233302.



赵莉华

在线出版日期：2021-04-27。

收稿日期：2020-12-30。

作者简介：

赵莉华(1968), 女, 工学硕士, 副教授, 主要从事状态监测及评估、电能质量、放电等离子体技术及其应用、电力电子在电力系统的应用等方面的研究工作, tyorika@163.com;

黄小龙(1988), 男, 工学博士, 副研究员, 主要从事电气设备状态监测及评估、真空电弧理论、放电等离子体技术及其应用等方面的研究工作, xlhuang2018@163.com;

任俊文(1987), 男, 工学博士, 助理研究员, 主要从事功能电介质材料、电力设备绝缘劣化机理及故障检测、放电等离子体技术及其应用等方面的研究工作, myboyryl@scu.edu.cn;

*通信作者：宁文军(1987), 男, 工学博士, 副研究员, 主要从事冷等离子体技术及其应用、电气设备状态监测及评估等方面的研究工作, ningwj@scu.edu.cn。

(责任编辑 李婧妍)

Propagation Mechanism of a Positive DC Driven Atmospheric Pressure Helium Plasma Jet: Influences of He-air Mixing Layer

ZHAO Lihua, JI Yiwei, SHANG Hao, HUANG Xiaolong, REN Junwen, NING Wenjun*

(College of Electrical Engineering, Sichuan University)

KEY WORDS: atmospheric pressure plasma jet; two dimensional fluid model; discharge mechanism

Atmospheric pressure plasma jets (APPJs) possess great potential in application fields including surface modification, material processing, bio-medicine, etching, etc. A typical APPJ is ignited by a dielectric barrier discharge in inert gas atmosphere such as helium or argon, and then propagating into ambient open space to form a plasma plume. For helium APPJ, it is observed from experiments that a stable diffusive plume can be sustained in ambient air. The plasma plume is featured by a highly orientated streamer discharge, which is actually visualized from a high-speed moving ionization wave, also known as the “plasma bullet”. A comprehensive understanding on the propagation mechanism of the plasma plume, as well as the properties of ionization wave, is essential for application-orientated APPJ device design and optimization. In this paper, a 2D fluid model is constructed to study the propagation of a He APPJ driven by a DC voltage, focused on the influence of the He-air mixing layer on the discharge dynamics. The model is consisted by a gas flow module solved for the steady-state distribution of the background gas component, and a transient discharge module solved for the particle densities, electron energy and electric field. Thirteen kinds of particles contributed to 55 reactions are included in the plasma chemistry. Fine agreements are achieved between the calculated plume morphology, transient “bullet” pattern and experimental observations, as shown in Fig. 1, validating the ability of qualitative prediction of the simulation model.

The simulation results emphasize the decisive role of the helium-air mixing layer on the formation of an isolated ionization wave that leads to the highly

orientated streamer discharge. Modulation of electron energy distribution function in the helium-air mixing layer affects the reduced electron-impact ionization frequency, and guiding the ionization wave to propagate within the He-air mixing layer where mole fraction of helium is about 99%. For similar reason, in the case where helium is injected into ambient helium atmosphere, an isotropic discharge is formed near the tube orifice, resembling a semi sphere. Penning ionization can promote the discharge on certain level, but it has no decisive effect on the formation of the discharge column and the ionization wave structure. A small amount of N_2/O_2 impurities in the discharge core channel show two competing effects of promoting the discharge via Penning Ionization or inhibiting the discharge via energy dissipation to molecule excitation and electron attachment to O_2 . Results presented in this paper contributed to physical insight into the formation mechanism of highly orientated streamer discharge in helium APPJ, and a promising method of regulating the discharge behavior by adding trace of N_2/O_2 to the helium flow.

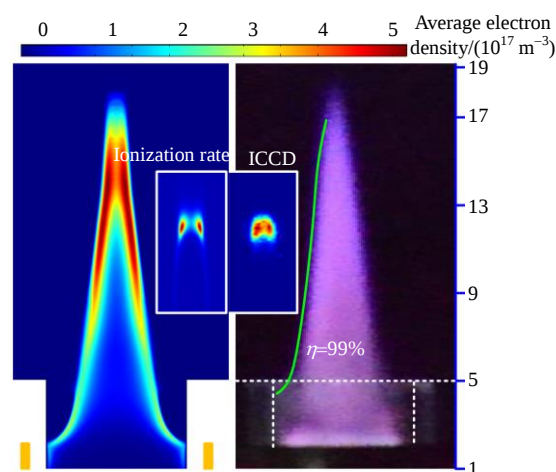


Fig. 1 Validation of simulation model with experimental images