

Přechod z filamentárního do difúzního módu v dielektrickém bariérovém výboji

Obsah

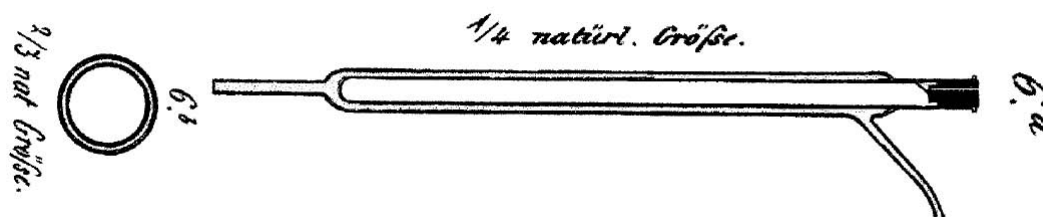
1	Přehled	3
1.1	Historie	3
1.2	Typy dielektrických bariérových výbojů a jejich aplikace	4
1.2.1	Elektrodová konfigurace objemového DBD	4
1.2.2	Elektrodová konfigurace povrchového DBD	5
1.3	Diagnostické metody	6
1.3.1	Elektrické metody	6
1.3.2	Emisní diagnostické metody	9
1.4	DBD módy	9
1.4.1	Filamentární mód	9
1.4.2	Difúzní mód	10
2	Experiment	13
2.1	Experimentální uspořádání	13
2.2	Rady a doporučení pro práci s plynovými láhvemi	13
2.3	Rady a doporučení pro práci s vysokým napětím	14
3	Úkoly	15
4	Otázky	16
	Literatura	16

Kapitola 1

Přehled

1.1 Historie

Dielektrické bariérové výboje (DBD) nebo jen krátce bariérové výboje, jsou známy již více než sto let. První experimenty provedl v roce 1857 Siemens, který se zabýval generací ozónu. Výboj hořel v kyslíku nebo vzduchu mezi dvěma skleněnými sousými trubičkami tak, že plazma a generovaný ozón nebyly v kontaktu s elektrodami. Umístění elektrod právě tak, aby nebyly v kontaktu s plazmatem, bylo v té době neobyklé (obr. 1.1).



Obrázek 1.1: Schéma prvního DBD reaktoru sestaveného Siemensem v roce 1857.

V pozdější době Siemens považoval toto elektrodové uspořádání pro generaci ozónu za jeden ze svých nejdůležitějších objevů. Je zajímavé, že tuto konfiguraci nikdy nepatentoval. Několik let po Siemensově první publikaci na toto téma, Andrews a Tait v roce 1860 navrhli jméno pro tento výboj, tzv. "tichý výboj", který je stále často používán v anglické, německé i francouzské vědecké literatuře (stille Entladung, de ´charge silencieuse). Po následující desetiletí se stala generace ozónu a také oxidu dusíku v DBD předmětem podrobného výzkumu.

Na začátku 20. století bylo provedeno mnoho experimentů za účelem zjistit podstatu tichého výboje. Warburg (Anglie), Becker (Německo) a Otto (Francie) významně přispěli k designu průmyslových ozónových generátorů vylepšením DBD. Důležitý krok k charakterizaci výboje udělal inženýr Budd, který zjistil, že elektrický průraz za atmosférického tlaku mezi rovinnými rovnoběžnými elektrodami pokrytými dielektrikem se projevuje v podobě velkého počtu tenkých filamentů s krátkou dobou života. Získal první fotografické stopy (Lichtenbergovi obrazy) těchto mikrovýbojů a osciloskopem zaznamenal také průběh napětí a proudu. Více informací o povaze těchto mikrovýbojů přinesli Klemenc, Suzuki, Honda a Naito, Gorbrecht a Bagirov. V roce 1943 Manley navrhl metodu pro určení ztráty výkonu v DBD použitím Lissajousových obrazů a odvodil rovnici, která se stala známou jako "výkonová rovnice pro ozónizátory" a bude detailněji popsána později. Tvorba ozónu v DBD byla dále zkoumána v Evropě (Brinerem, Suszem, Lunttem), v Rusku (Philippovem), v USA (Devinsem) a v Japonsku (Fujim).

Šlo především o pochopení fyzikálních, chemických, případně plazmo-chemických procesů v DBD, které pak vedli nejen ke zlepšení generátorů ozónu, ale také k nalezení nových uplatnění v průmyslu. Kromě tradičního průmyslového použití při generaci ozónu pro úpravu vody lze bariérové výboje využít pro úprava povrchů, PECVD, kontrola znečištění, excitace CO₂ laserů a excimerních zářivek, a nedávno také použití DBD ve velkoplošných plazmových obrazovkách.

Přestože existují tisíce článků na toto téma, které vznikly v průběhu let, stále existuje spousta otázek, na které dosud nebyly nalezeny odpovědi. Proto je studium generace ozónu a DBD stále aktuální.

1.2 Typy dielektrických bariérových výbojů a jejich aplikace

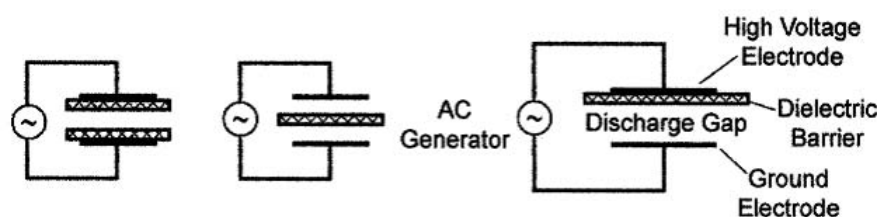
Dielektrické bariérové výboje mohou být buzeny pouze střídavým napětím. Konstrukčně je ve výbojovém prostoru mezi elektrodami vložena ještě dielektrická vrstva, a dielektrikem jako nevodivcem stejnosměrný proud neprochází. Průrazné napětí takového uspořádání je řádově stejné jako by se jednalo pouze o dvě elektrody. V případě elektrod vzdálených několik mm je průrazné napětí za atmosférického tlaku asi 10kV. Aby došlo k průrazu proudu mezi elektrodami, je tedy třeba dostatečně vysokého napětí. Jako dielektrikum se používají materiály s vysokou dielektrickou pevností - sklo, křemenné sklo, keramické materiály, tenká glazura nebo polymerní vrstvy. V některých aplikacích se používají další ochranné nebo funkční vrstvy.

Dielektrické bariérové výboje mohou být rozděleny podle několika parametrů. Například podle způsobu buzení výboje dělíme DBD na střídavé, radiofrekvenční nebo mikrovlnné, podle uspořádání elektrod rozlišujeme druhy DBD na objemové, povrchové a koplanární.

1.2.1 Elektrodová konfigurace objemového DBD

Objemový dielektrický bariérový výboj generuje plazma v objemu za atmosférického tlaku (ve vzduchu) typicky až do 10⁻³ m³, což je mnohem méně než v případě nízkotlakých reaktorů, které mohou generovat plazma až do 0.5 m³. V závislosti na aplikaci může být vzdálenost elektrod od 0.1 mm až po několik centimetrů. K zapálení výboje v mezielektrodovém prostoru vyplněného plynem je třeba za atmosférického tlaku napětí od několika stovek voltů až do několika kilovoltů.

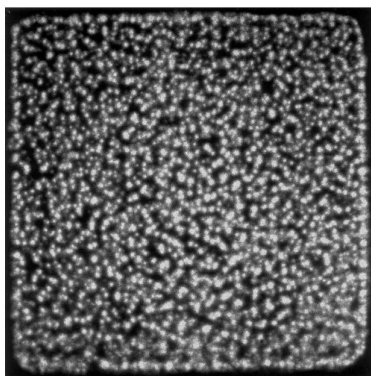
Bylo vyvinuto několik elektrodových uspořádání: planární, hrot a deska, a cylindrická konfigurace. Příklady planárního uspořádání jsou na obrázku 1.2.



Obrázek 1.2: Základní planární elektrodové uspořádání v DBD reaktoru.

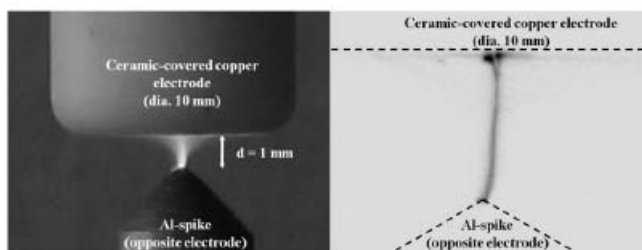
Ve většině výbojů v různých plynech vznikají po zapálení výboje za atmosférického tlaku (10⁵ Pa) mikrofilamenty. Za atmosféry se pracuje při generaci ozónu, výrobě excimerů stejně jako pro čištění odpadních plynů a pro snížení znečištění.

Obrázek 1.3 ukazuje mikrovýboje ve vzduchu za atmosférického tlaku pro mezielektrodovou vzdálenost 1mm (fotografováno skrz průhlednou elektrodu). Elektrická vodivost ve filamenárním módu je omezena na tyto mikrovýboje. Plyn mezi mikrovýboji není ionizován a slouží jako zásobník energie, která je odváděna z mikrovýbojů a sbírá a přenáší dlouho-žijící částice, které v plazmatu vznikly.

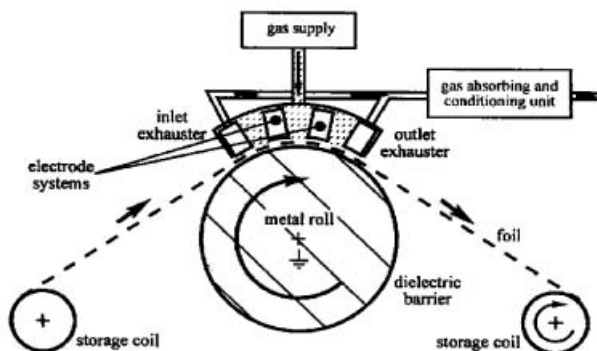


Obrázek 1.3: Pohled shora na mikrovýboje v atmosferickém DBD (doba expozice 20ms).

V konfiguraci hrot a deska je jedna elektroda mnohem menší než druhá. Schéma je na obrázku 1.4. Toto uspořádání se často využívá při opracovávání pevných povrchů. Praktický příklad takového systému můžete vidět na obrázku 1.5.



Obrázek 1.4: Elektrodové uspořádání hrot a deska.



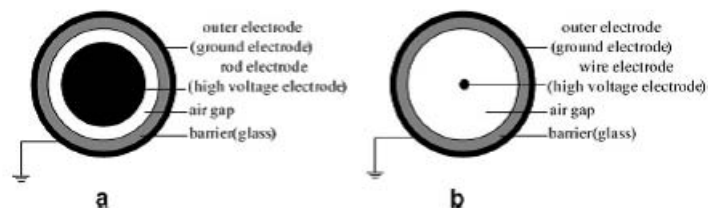
Obrázek 1.5: Praktický příklad aplikace elektrodové konfigurace hrot a deska na opracování fólií.

U válcové konfigurace plyny, tekutiny nebo jejich směsi protékají reaktorem. Typické schéma válcové konfigurace je na obrázku 1.6.

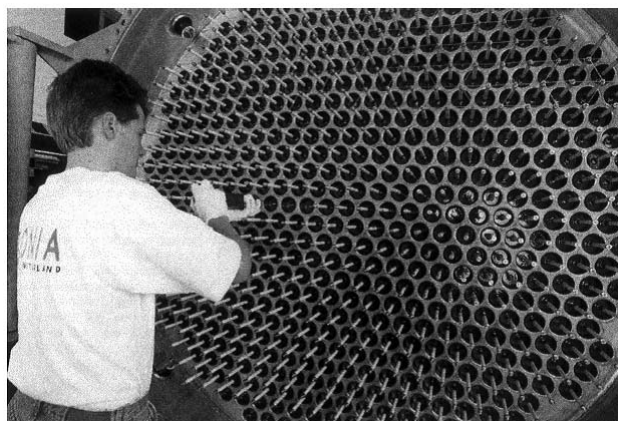
Obrázek 1.7 ukazuje průmyslovou čističku vody, ve které jsou válcové DBD reaktory pro generaci ozónu poskládány do matice.

1.2.2 Elektrodová konfigurace povrchového DBD

Mezi objemovým a povrchovým DBD není žádný rozdíl týkající se fyzikálních principů. Rozdíl je spíše v konstrukci DBD reaktorů. V případě povrchového DBD jsou obě elektrody umístěny v jedné desce. Bylo vyvinuto několik uspořádání. Schémata některých z nich můžeme vidět na

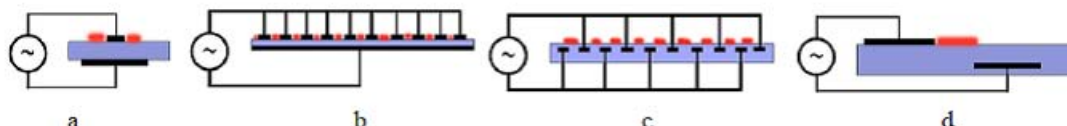


Obrázek 1.6: Schéma cylindrického uspořádání DBD: a) dvouválcové b) válec se střední tenkou elektrodou.



Obrázek 1.7: Průmyslové využití válcového DBD pro úpravu vody pomocí ozónu.

obrázku 1.8. Z geometrického pohledu je rovinná plocha opracovávána mnohem lépe povrchové DBD než objemovým, protože plazmatu je využíváno mnohem efektivněji a pro stejný použitý výkon je třeba méně času na opracování.



Obrázek 1.8: Příklady elektrodového uspořádání povrchového DBD.

1.3 Diagnostické metody

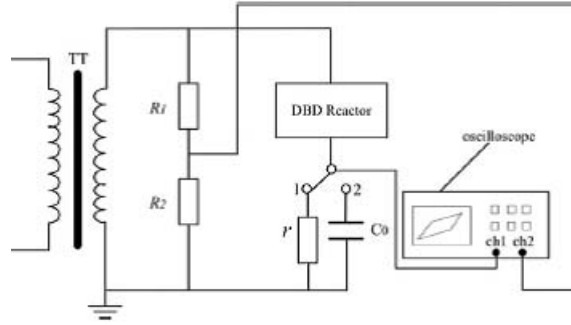
Cílem tohoto přehledu je poskytnout náhled do problémů týkajících se fyziky v dielektrických bariérových výbojích. Následuje přehled hlavních diagnostických metod týkající se tohoto typu výboje.

1.3.1 Elektrické metody

U diagnostiky elektrických vlastností je třeba vybavení, které je schopné měřit vysoké napětí (až do 20-25kV peak-to-peak) a nízké proudy (obvykle do 0.1A peak-to-peak).

Přehledové schéma elektrických měření můžeme vidět na obrázku 1.9.

Vysokonapěťový transformátor napájí DBD reaktor. Přiložené napětí můžeme měřit a) pomocí napěťového děliče, který se skládá ze dvou rezistorů, kdy $R_1 \gg R_2$ anebo b) jej můžeme měřit pomocí vysokonapěťové sondy přímo mezi DBD reaktorem a uzeměním.



Obrázek 1.9: Experimentální uspořádání pro měření elektrických vlastností DBD.

Výbojový proud měříme koaxiálním rezistorem (r) s relativně nízkým odporem umístěným mezi vnější elektrodu a uzemnění, který je zapojen do série s výbojem. Průběh proudu a napětí sledujeme na digitálním osciloskopu.

Dodávaný výkon do reaktoru můžeme určit pomocí Lissajousových obrazců. Lissajousovy obrazce můžeme získat z osciloskopu, kde na ose X je přenesený náboj a na ose Y je přiložené napětí. Přenesený náboj v testovací komoře můžeme měřit pomocí kondenzátoru C_0 , který zapojíme do série s uzemněním místo koaxiálního odporu (r). Přepnutím přepínače do pozice 1 naměříme proud a přepnutím do pozice 2 pak také napětí (obrázek 1.9). Elektrická energie disipovaná za jednu periodu můžeme vyjádřit jako:

$$W = \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} v(t)i(t)dt \quad (1.1)$$

kde T je perioda, $i(t)$ je proud ve výbojové komoře a $v(t)$ je přiložené napětí. Proud protékající kondenzátorem můžeme vyjádřit

$$i(t) = \frac{dq}{dt} = C_0 \frac{dv_c}{dt} \quad (1.2)$$

kde v_c je napětí na kondenzátoru a q je přenesený náboj v testovací komoře. Potom můžeme spočítat elektrickou energii disipovanou za jednu periodu pomocí následující rovnice:

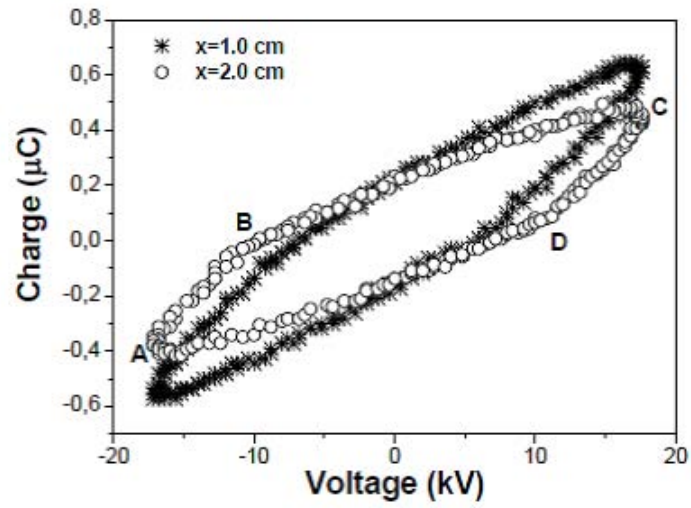
$$W = \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} v(t)C_0 dv_c = \int_{t_0-T/2}^{t_0+T/2} v(t)dq(t) \quad (1.3)$$

Z rovnice [3] můžeme vidět, že energie spotřebována během jedné periody je rovna ploše v Lissajousovém obrazci. Výkon dodávaný do výboje můžeme spočítat vynásobením této plochy frekvencí přiloženého napětí

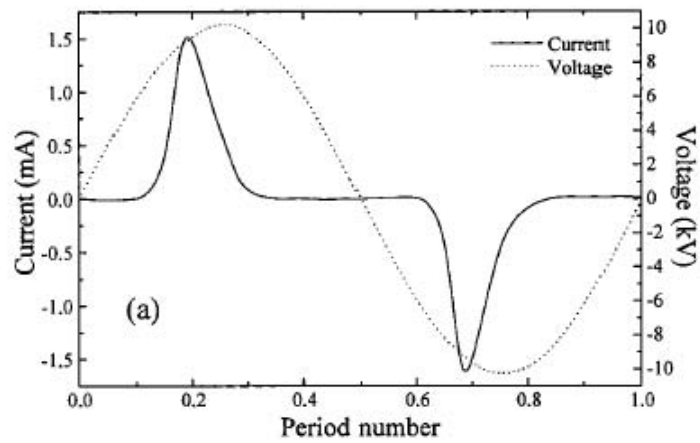
$$P = fW \quad (1.4)$$

Lissajousovy obrazce jsou používány pro výpočet nebo optimalizaci dodávaného výkonu. Příklad Lissajousového obrazce můžeme vidět na obrázku 1.10.

Průběh proudu charakterizuje módy v DBD a je zaznamenávám i s průběhem přiloženého napětí, viz. obrázek 1.11.



Obrázek 1.10: Lissajousovy obrazce DBD pro dvě různé mezielektrodové vzdálenosti.



Obrázek 1.11: Charakteristický průběh napětí a proudu v DBD.

1.3.2 Emisní diagnostické metody

Opticko-emisní diagnostika se stala základním nástrojem pro popis komplexních procesů v plazmatu. Excitace těžkých částic (atomů, molekul, iontů a radikálů) probíhá v každém plazmatu. Existuje několik možností přenosu excitační energie: i) srážkami nebo ii) vyzářením fotonu. Energie fotonu excitované částice spadá do oblasti viditelného nebo blízkého ultrafialového/infracherveného záření.

Při opticko-emisní diagnostice je třeba umístit vstupní štěrbinou co nejbližší k plazmatu. Z naměřených emisních spekter můžeme zjistit informace o hustotě částic, o jejich teplotě (vibrační, rotační, elektronové), rozdělovací funkci a složení plazmatu. Právě monitorování a identifikace jednotlivých částic v plazmatu za různých podmínek může hrát důležitou roli pro pochopení procesů v plazmatu a následně jejich vliv na opracovávaný povrch materiálů, který je v kontaktu s plazmatem. Optická emisní spektroskopie je důležitým nástrojem pro charakterizaci DBD nejen za atmosferického tlaku. Tato metoda je neinvazivní a tudíž nám neovlivňuje plazma.

V určitých případech je vhodnější zvolit absorpční diagnostiku, která nám může zajistit mnohem lepší náhled na parametry plazmatu než emisní diagnostika, přestože plazma ovlivňuje.

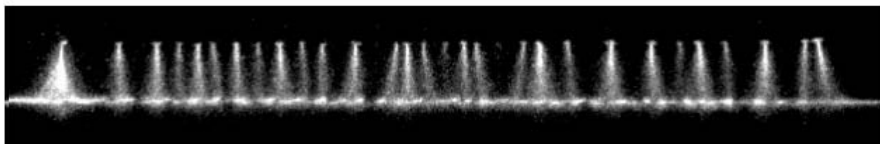
1.4 DBD módy

Existují dva typy módů v atmosferickém DBD plazmatu - filamentární a difúzní. Difúzního DBD můžeme dosáhnout ve dvou různých výbojích: atmosferickém Townsendovském výboji (APTD) a atmosferickém doutnavém výboji (APGD). Vlastnosti a rozdíly mezi těmito módy jsou popsány níže.

1.4.1 Filamentární mód

V roce 1932 si inženýr Buss všiml, že se při elektrickém průrazu mezi dvěma rovinnými elektrodami pokrytými dielektrikem objevuje velké množství jasných proudových filamentů. Asi o deset let později byl prezentován mechanismus zapálení výboje za vyššího tlaku (průraz streameru - Kanaldurchbruch), který je odlišný od Townsendovského mechanismu zapálení výboje pro nízkotlaký doutnavý výboj.

Za atmosferického tlaku (díky větší pravděpodobnosti srážek) může dojít na špičce rostoucí elektronové laviny k výraznému nárůstu koncentrace náboje. Rychlost streamerů je v cm/s a délka hlavy streameru včetně výsledného ionizovaného kanálu je v jednotkách centimetrů. Redukované pole E/n dosahuje v hlavě streameru podle numerického modelu 500 až 800Td, což je hodnota několikrát větší než při průrazu - od 100 do 200Td. Rostoucí elektronová lavina směřuje k anodě, vytvoří streamer, poté iniciuje streamer mířící ke katodě a nakonec zformuje vodivý mikrokanál (viz. obrázek 1.12).

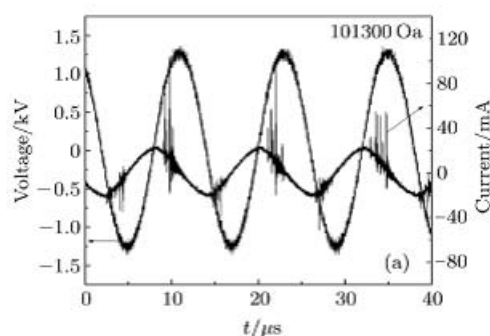


Obrázek 1.12: Mikrokanálky v objemovém DBD.

Počátek průrazu v bariérovém výboji jsou podobné těm bez dielektrika. Způsob šíření streamerů v dané elektrodové konfiguraci můžeme simulovat řešením 2-D hydrodynamických rovnic pro neutrální a nabitě částice svázané s Poissonovou rovnicí určující elektrické pole.

Zda DBD pracuje ve filamentárním módu můžeme zjistit vlastním okem. Nicméně lidské oko není vhodným nástrojem pro diagnostiku výboje, proto se provádějí elektrická měření, která pomáhají pochopit podstatu vzniku výboje. Na obrázku 1.13 vidíme typickou závislost proudu na

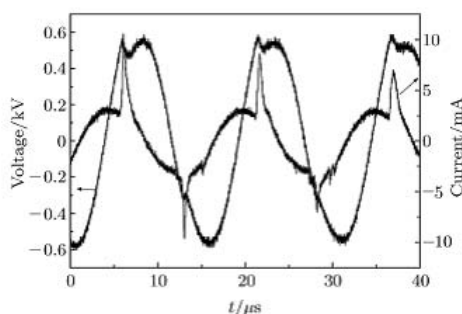
čase ve filamentárního módu. Všimněme si malých píků v průběhu proudu při zvyšování napětí. Přítomnost těchto píků je experimentálním důkazem, že výboj pracuje ve filamentárním módu.



Obrázek 1.13: Závislost proudu na čase pro filamentární mód.

1.4.2 Difúzní mód

Difúzní mód dielektrického bariérového výboje byl ve srovnání s filamentárním módem pozorován relativně nedávno. V tomto módu plazma hoří v celém mezielektrodovém prostoru. V typické závislosti proudu na čase nevidíme malé píkky v průběhu proudu při zvyšování napětí, jak se můžeme přesvědčit na obrázku 1.14.



Obrázek 1.14: Závislost proudu na čase pro difúzní mód.

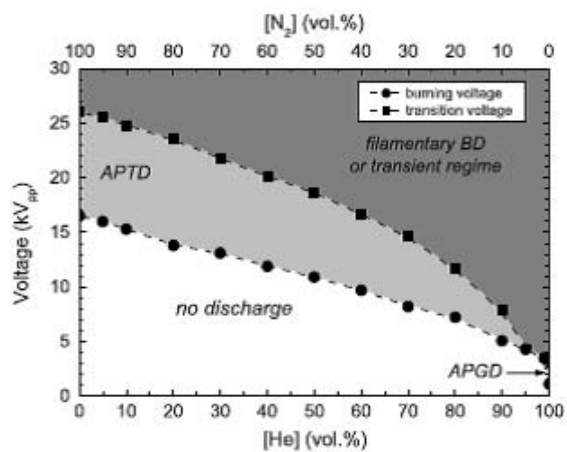
V závislosti na pracovním plynu nebo geometrickém uspořádání reaktoru pozorujeme dva typy difúzního DBD za atmosferického tlaku: atmosferický Townsendův výboj (APTD) a atmosferický doutnavý výboj (APGD). Nejjednodušeji můžeme tyto dva výboje porovnat, když použijeme jako pracovní plyn dusík a helium. Obrázek 1.15 ukazuje, jak se mění proud v závislosti na čase pro tyto pracovní plyny.

Rozdíl mezi filamentárním a difúzním módem je patrně ve vyšší energii elektronů, což umožňuje tvorbu a excitaci více částic a emitování světla v objemu plazmatu. Srovnání emisních spekter z FDBD a GDBD reaktorů je na obrázku 1.16, na kterém vidíme vyšší intenzitu a větší množství identifikovatelných částic pro stejné podmínky.

Při pořízení fotografií tohoto výboje pomocí rychlé kamery byly pozorovány různé světelné vzory. V případě APGD byla pozorována struktura typická pro nízkotlaký doutnavý výboj s oblastmi o vyšším a nižším jasu (obr. 1.17a). V případě APTD vidíme Townsendovský ionizační mechanismus v objemu plazmatu, což vede k jasnému světlu na anodě (obr. 1.17b).

Rozdíl v mechanismu ionizace má také vliv na parametry plazmatu. Byla věnována velká pozornost nejen studiu plazmových parametrů v závislosti na typu difúzního DBD ale také para-

metrům reaktoru. Například řízením poměru mezi dusíkem a heliem můžeme dosáhnout různých módů DBD, viz obr. 1.18.



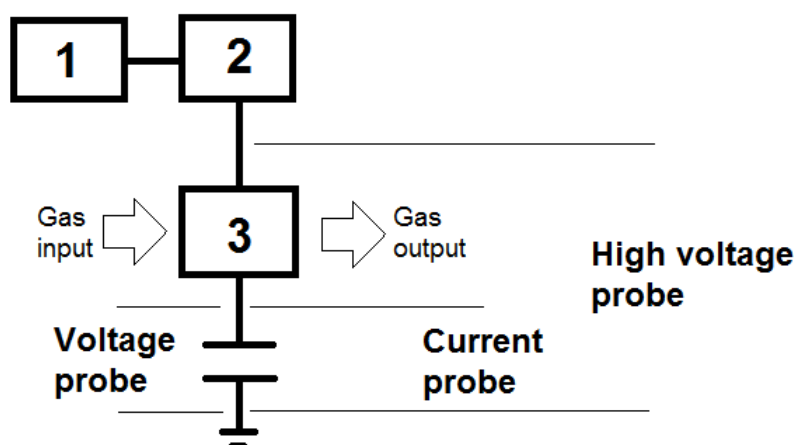
Obrázek 1.18: Vliv pracovního plynu na DBD mód.

Kapitola 2

Experiment

2.1 Experimentální uspořádání

Během tohoto experimentu sestavíte DBD reaktor, ve kterém budete měřit některé jeho vlastnosti v závislosti na zvolené geometrii, výkonu a pracovním plynu. Schéma experimentálního uspořádání naleznete na obrázku 2.1.



Obrázek 2.1: Experimentální uspořádání. 1 - generátor funkcí, 2 - zesilovač proudu a transformátor, 3 - plazmový reaktor.

2.2 Rady a doporučení pro práci s plynovými láhvemi

1. Informujte vedoucího praktika než budete pracovat s přívodem plynu.
2. Během práce používejte jen dusík anebo argon. Přívodu plynu otevírejte jen po zapojení přívodu a odtahu plynu z komory.
3. Používejte plyn rozumně. Přívod plynu zavřete po ukončení měření.
4. Nepoužívejte sílu k uzavření přívodu plynu. Můžete jej zničit.

2.3 Rady a doporučení pro práci s vysokým napětím

1. Nezapínejte vysoké napětí bez předešlé konzultace s vedoucím praktika.
2. Po ukončení každého měření nejdříve vypněte generátor.
3. Otvírejte nebo provádějte jakékoliv změny pouze, když je vysoké napětí vypnuté.

Kapitola 3

Úkoly

1. Zapojte elektrické komponenty a připojte přívod plynu. Poté konzultujte s vedoucím praktika.
2. Nastavte DBD systém.
3. Proměřte závislosti a) proudu na čase a b) Lissajousových obrazců podle zadání vedoucího praktika.
 - (a) v závislosti na pracovním plynu
 - (b) v závislosti na frekvenci signálu
 - (c) v závislosti na mezielektrodevém prostoru
4. Po ukončení měření vypněte nejdříve vysoké napětí a poté přívod plynu.
5. V protokolu shrňte teoretický přehled, použité diagnostické metody, experimentální výsledky (včetně výpočtu dodávaného výkonu do výboje), které diskutujte.

Kapitola 4

Otázky

1. Co je dielektrický bariérový výboj?
2. Popište měřící metody vhodné pro diagnostiku atmosferického dielektrického bariérového výboje.
3. Co si myslíte o použití emisní diagnostiky při analýze výboje za sníženého a atmosferického tlaku? Jaké potíže mohou nastat?
4. Popište filamentární mód v DBD?
5. Který typ difúzního DBD (APTD nebo APGD) se používá v průmyslu a proč?
6. Proč je objemový DBD používá ve výzkumných laboratořích?
7. Jmenujte rovnice používané pro modelování DBD plazmatu.
8. Proč je vhodné použít Rogovského cívku pro měření proudu?
9. Na základě výsledků diskutujte možné aplikace DBD.

Literatura

- [1] U. KOGELSCHATZ. Dielectric-barrier Discharges: Their History, Discharge Physics, and Industrial Applications. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 23 (2003), 1–45.
- [2] Z. FANG, Y. QIU, Y. SUN, H. WANG, K. EDMUND. Experimental study on discharge characteristics and ozone generation of dielectric barrier discharge in a cylinder–cylinder reactor and a wire–cylinder reactor. *Journal of Electrostatics*, 66 (2008) 421–426.
- [3] K.G. KOSTOV, R. Y. HONDA, L.M.S. ALVES, AND M.E. KAYAMA. Characteristics of Dielectric Barrier Discharge Reactor for Material Treatment. *Brazilian Journal of Physics*, 39, 2, 2009.
- [4] N. GHERARDI, G. GOUDA, E. GAT, A. RICARD, F. MASSINES. Transition from glow silent discharge to micro-discharges in nitrogen gas. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 9 (2000) 340–346.
- [5] B. ELIASSON, U. KOGELSCHATZ. Modeling and Applications of Silent Discharge Plasmas. *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 19, no. 2, 1991.
- [6] U. KOGELSCHATZ. Filamentary, Patterned, and Diffuse Barrier Discharges. *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 30, no. 4, 2002.
- [7] L. XUE-CHEN, L. ZHI-HUI, J. PENG-YING, L. LI-CHUN, Y. ZENG-QIAN, D. LI-FANG. Study on the transition from filamentary discharge to diffuse discharge by using a dielectric barrier surface discharge device. *Chinese Physics*, vol. 16, no. 10, 2007.
- [8] F. MASSINES, P. SEGUR, N. GHERARDI, C. KHAMPHAN, A. RICARD. Physics and chemistry in a glow dielectric barrier discharge at atmospheric pressure: diagnostics and modelling. *Surface and Coatings Technology*, 174 –175 (2003) 8–14.
- [9] R. BRANDENBURG, Z. NAVRATIL, J. JANSKY, P. STAHEL, D. TRUNEC, H. E. WAGNER. The transition between different modes of barrier discharges at atmospheric pressure. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 42 (2009) 085208 (10pp).
- [10] U. KOGELSCHATZ. Collective phenomena in volume and surface barrier discharges. *Journal of Physics: Conference Series*, 257 (2010) 012015.
- [11] H.-E. WAGNER, R. BRANDENBURG, K.V. KOZLOV, A. SONNENFELD, P. MICHEL, J.F. BEHNKE. The barrier discharge: basic properties and applications to surface treatment. *Vacuum*, 71 (2003) 417–436.
- [12] A. CHIROKOV, A. GUTSOL, A. FRIDMAN. Atmospheric pressure plasma of dielectric barrier discharges. *Pure Appl. Chem.*, vol. 77, no. 2, (2005), pp. 487–495.
- [13] R. VALDIVIA-BARRIENTOS, J. PACHECO-SOTELO, M. PACHECO-PACHECO, J. S. BENITEZ-READ, R. LOPEZ-CALLEJAS. Analysis and electrical modelling of a cylindrical DBD configuration at different operating frequencies. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 15 (2006) 237–245.

- [14] P. RAJASEKARAN, P. MERTMANN, N. BIBINOV, D. WANDKE, W. VIOL, P. AWAKOWICZ. DBD plasma source operated in single-filamentary mode for therapeutic use in dermatology. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 42 (2009) 225201 (8pp).
- [15] J. RAHEL, D. M. SHERMAN. The transition from a filamentary dielectric barrier discharge to a diffuse barrier discharge in air at atmospheric pressure. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 38 (2005) 547–554.