

脉冲参数对脉冲介质阻挡放电臭氧产生影响的数值模拟

李 鸣¹, 彭邦发^{2,5}, 魏林生^{3,4}, 章亚芳³

(1. 南昌大学信息工程学院, 南昌 330031; 2. 南昌大学机电工程学院, 南昌 330031;

3. 南昌大学资源环境与化工学院, 南昌 330031;

4. Department of Mechanical and Aerospace Engineering, Florida Institute of Technology, FL 32901;

5. 中国科学院广州能源研究所, 广州 510640)

摘 要: 在脉冲介质阻挡放电产生臭氧的过程中, 脉冲参数至关重要。为研究脉冲参数对其流光传播速度和臭氧分子浓度的影响, 构建了 1 个由流体动力学模型和包含 11 种粒子、29 个反应的反应模型组成的准 2 维动力学模型并进行了数值模拟。模拟结果表明: 流光传播速度和臭氧分子浓度均随脉冲峰值电压的增大而增大, 随脉冲上升时间的减小而增大, 在模拟工况所得流光速度范围为 $4.2 \times 10^4 \sim 3.57 \times 10^5$ m/s; 脉冲宽度的变化对流光传播速度与臭氧分子浓度基本无影响, 但减小脉冲宽度有利于提高臭氧产率; 随着脉冲上升率的增大, 在流光出现后并经历相同时间时对应的电场强度更大, 流光的传播速度随之加快, 同时臭氧分子浓度也由于氧原子产生速率的增大而增大。该研究可以为脉冲电源的选择和优化提供参考。

关键词: 脉冲参数; 流光传播; 臭氧产生; 脉冲介质阻挡放电; 平板型; 动力学; 数值模拟

Numerical Simulation for the Effects of Pulse Power Parameters on Ozone Generation by Pulsed Dielectric Barrier Discharge

LI Ming¹, PENG Bangfa^{2,5}, WEI Linsheng^{3,4}, ZHANG Yafang³

(1. School of Information Engineering, Nanchang University, Nanchang 330031, China;

2. School of Mechanical & Electrical Engineering, Nanchang University, Nanchang 330031, China;

3. School of Resources, Environmental & Chemical Engineering, Nanchang University, Nanchang 330031, China;

4. Department of Mechanical and Aerospace Engineering, Florida Institute of Technology, FL 32901, USA;

5. Guangzhou Institute of Energy Conversion, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China)

Abstract: The parameters of pulse power play a vital role in ozone generation by pulsed dielectric barrier discharge. To investigate effects of pulse power parameters on streamer propagation velocity and ozone density, a quasi-two-dimensional dynamic model is developed. The numerical model consists of hydrodynamic model and chemical model including 11 species and 29 reactions. The numerical results show that both streamer propagation velocity and ozone density increase with the increase of pulse peak voltage and the decrease of pulse rise time. The streamer propagation velocity varies from 4.20×10^4 m/s to 3.57×10^5 m/s. Pulse width hardly has impact on streamer propagation velocity and ozone density, but decreasing pulse width is favorable for the improvement of ozone yield. With the increase of pulse rise rate, the change of electric field strength becomes larger at the same time interval and the electric field strength is also larger at the same time after the streamer emerging. So streamer propagation velocity increases with increasing the pulse rise rate. Meanwhile, ozone density increases because the production rate of O radical increases. This work will provide a reference for choice and optimum of pulse power.

Key words: pulse power parameters; streamer propagation; ozone generation; pulsed dielectric barrier discharge; parallel-plate; dynamics; numerical simulation

基金资助项目: 国家自然科学基金(51366012; 11105067); 江西省青年科学家(井冈之星)培养对象计划(20133BCB23008); 江西省自然科学基金(20151BAB206047); 江西省高等学校科技落地计划(KJLD-14015)。

Project supported by National Natural Science Foundation of China (51366012, 11105067), Jiangxi Province Young Scientists (Jinggang Star) Cultivation Plan of China (20133BCB23008), Natural Science Foundation of Jiangxi, China (20151BAB206047), Jiangxi Province Higher School Science and Technology Landing Plan of China (KJLD-14015).

0 引言

脉冲放电作为新型的臭氧产生方式,已成为当前的研究热点。经系统的文献调研发现,众多学者已对脉冲电晕放电过程中流光传播与粒子产生的特性进行了研究。如日本 Ono R 等在针-板型放电结构中显示氮气中的一次流光传播速度大约仅为相同条件下空气中的 $1/4$ ^[1]。荷兰 Van Veldhuizen E M^[2], Winands G J J^[3]和法国 Tardiveau P^[4]分别在针-棒、线-板和针-板结构中均发现流光传播速度随着脉冲峰值电压的增大而增大。Briels T M P 等在针-板型放电中观察到流光直径随着脉冲峰值电压的增大而增大^[5]。学者刘典实验研究得出针-棒型结构产生的分叉流光易向棒电极两端运动^[6]。Wang D Y 等在线-筒型结构中发现脉冲宽度为 5 ns 时,流光传播速度约为 $6.0 \times 10^6 \sim 8.0 \times 10^6$ m/s,比脉冲宽度为 100 ns 时所得更大^[7]。2011 年 Yagi I 等发现大气压线-筒型反应器中增大脉冲上升率有利于提高流光传播速度^[8]。而 Clevis T T J 等在针-板型结构、10 kPa 压力的氮气源条件下,得到相反的结果^[9]。在脉冲电晕放电对粒子产生的影响研究中,Ono R 等在针-板反应器中发现脉冲宽度的减小有利于提高臭氧产率^[10]。闫克平等在线-筒型反应器中也发现短脉冲可提高整体臭氧质量浓度^[11]。2013 年 Komuro A 等在针-板型放电结构中得到:随着脉冲上升率的提高,氧原子数量呈上升趋势^[12]。Fujiwara M^[13]和 Namihira T^[14]分别在针-板与线-筒反应器结构中表明短的脉冲宽度有利于 NO 的去除。在水蒸气 H₂O、氧气 O₂ 和氮气 N₂(它们的体积分数分别为 2.8%、2.0%和 95.2%)的混合气体中,Ono R 等指出针-板型正电晕放电中·OH 粒子主要在二次流光中产生^[15]。2015 年徐双艳等模拟研究了介质阻挡放电中电子、O₂⁺和 N₂⁺粒子数密度空间分布^[16]。然而,对于脉冲介质阻挡放电臭氧发生的研究鲜有报道。Wei L S 等实验研究了脉冲参数对臭氧产生的影响^[17]。Baldus S 等实验和模拟研究了空气放电中氧原子的动力学与臭氧产生特性^[18]。

无需质疑,脉冲参数对流光和粒子的产生有着举足轻重的影响,以往该方面的研究主要集中于脉冲电晕放电,对平板脉冲介质阻挡放电的研究非常匮乏,且脉冲电晕放电中脉冲上升率对流光传播速度的影响也存在分歧。为此,本文建立 1 个准 2 维数值模型,深入研究脉冲参数对平板脉冲介质阻挡

放电中流光传播速度和臭氧分子浓度的影响。诚然,在臭氧产生过程中,由于臭氧主要在流光中产生,因此流光传播速度决定着产生的臭氧分子浓度;另一方面,由于臭氧的形成会影响电子、离子以及电场强度的空间分布,因此臭氧分子浓度又反过来影响着流光传播速度。流光传播速度和臭氧分子浓度之间复杂的相互影响机理目前无从得知。本文着重单方面分析脉冲参数对平板脉冲介质阻挡放电流光传播速度和臭氧分子浓度的影响,为下一步揭示流光传播速度与臭氧分子浓度之间的相互影响机理奠定基础,同时为平板脉冲介质阻挡放电臭氧发生器脉冲电源的选择和优化提供一定的参考。

1 数值模型

图 1 所示为平板脉冲介质阻挡放电模型的计算区域,由 4 个部分组成。由下往上依次为:镍铂(高压)电极,厚度为 0.4 mm;紧接着为陶瓷电介质层,厚度为 1 mm,相对介电常数为 9;而后为放电空间,其间隙厚度为 1 mm,里面通入纯氧;最后 1 层为不锈钢(接地)电极,厚度为 1 mm。

本文所需的详细化学模型与流体动力学模型可参见文献[19],此处对它进行简要的描述。调研究发现,在对氧气源放电臭氧产生的动力学模拟过程中,不同的学者采用了不同的反应模型。如 Mennad B 等^[20]为研究臭氧随部分参数的变化趋势时,建立了 1 个包含 15 种粒子和 103 个反应的反应模型。Eliasson B 等^[21]采用了 16 种粒子、70 个反应进行数值模拟,模拟表明激发态粒子对臭氧产生有着重要

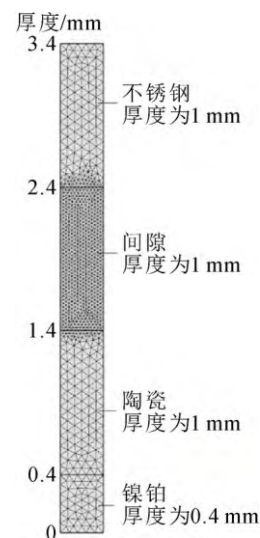


图 1 计算区域

Fig.1 Computational domain

作用。Yanallah K 等^[22]选取包含 15 种粒子的 38 个反应的反应模型用于研究焦耳热对臭氧产生的影响。此外, Loiseau J F 等^[23]为简化计算, 只选取包含 4 种粒子的 5 个反应对臭氧产生进行分析。本文在 Yanallah K 和 Mennad B 的模型基础上, 经简化完善与预模拟, 建立了包含电子、基态、激发态与离子 4 类 11 种粒子与其之间重要的 29 个反应的化学模型, 详细化学反应及其反应速率^[23-24]见表 1。

同时将传统用于描述放电的粒子连续性方程和 Poisson 方程耦合电子能量密度守恒方程从而建立流体动力学模型。该种处理方法已广泛应用于其他等离子体放电的研究中^[25-30]。其控制方程如下:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot (-n_e(\mu_e \cdot E) - D_e \cdot \nabla n_e) = R_e \quad (1)$$

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot (-n_e(\mu_e \cdot E) - D_e \cdot \nabla n_e) = R_e \quad (2)$$

$$\rho \frac{\partial \omega_k}{\partial t} + \rho(\mathbf{u} \cdot \nabla) \omega_k = \nabla \cdot \mathbf{j}_k + R_k \quad (3)$$

$$-\nabla \cdot \varepsilon_0 \varepsilon_r \nabla V = \rho_q \quad (4)$$

$$\rho_q = e \left(\sum_{k=1}^N Z_k n_k - n_e \right) \quad (5)$$

式中: t 为时间; n_e 、 n_e 和 n_k 分别为电子数密度、电子能量密度和重粒子数密度; μ_e 、 μ_e 、 D_e 和 D_e 分别为电子迁移率、电子能量迁移率、电子扩散率和电子能量扩散率; R_e 和 R_e 分别为电子化学源项和电子能量源项; ρ 为混合气体密度; ω_k 为重粒子质量分数; \mathbf{u} 为质量平均流体速度矢量; \mathbf{j}_k 为扩散通量矢量; R_k 为重粒子 k 的产生速率; ε_0 和 ε_r 分别为真空介电常数与相对介电常数; ρ_q 为空间电荷密度; e 为元电荷; Z_k 为粒子 k 所带电荷量; E 为电场矢量; V 为所加电势。

具体求解过程为: 先将上述控制方程转化为弱形式, 因为弱形式相较于偏微分方程与能量最小值问题更适合求解非线性多物理场问题, 再运用有限元方法对每个变量求得其相应的数值解。其中, 由于漂移-扩散方程所固有的高非线性度, 电子数密度在很短的距离内能增长 10 倍之多。因此, 为有利于计算的收敛性, 对电子数密度与电子能量密度进行对数处理。

图 2—图 4 给出了不同脉冲参数下的正脉冲电压波形。这里采用的波形来自实验所测波形图^[17], 不过忽略了由于电源与放电室不匹配而引起的尾部振荡。其中图 2 为当脉冲宽度和脉冲上升时间为

表 1 化学反应及其反应速率

Table 1 Reactions and reaction rates

编号	反应式	反应速率/($\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ 或 $\text{cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$)	参考文献
R1	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O} + e$	$f(E/N)$	[24]
R2	$e + \text{O}_2 \rightarrow 2e + \text{O}_2^+$	$f(E/N)$	[24]
R3	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}^-$	$f(E/N)$	[24]
R4	$e + \text{O}_2 \rightarrow 2e + \text{O} + \text{O}^+$	$f(E/N)$	[24]
R5	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + e + \text{O}(^1\text{D})$	$f(E/N)$	[24]
R6	$e + \text{O}_3 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2^-$	$f(E/N)$	[24]
R7	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2(^1\Delta_g) + e$	$f(E/N)$	[24]
R8	$e + \text{O}_2(^1\Delta_g) \rightarrow \text{O} + \text{O} + e$	$f(E/N)$	[24]
R9	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2(^1\Sigma_g^+) + e$	$f(E/N)$	[24]
R10	$e + \text{O}_2(^1\Sigma_g^+) \rightarrow e + \text{O} + \text{O}$	$f(E/N)$	[24]
R11	$e + \text{O}_3 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2 + e$	5.0×10^{-9}	[23]
R12	$e + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{O}(^1\text{D})$	$2.2 \times 10^{-8} (T_e)^{-0.5}$	[24]
R13	$\text{O} + \text{O}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3 + \text{O}_2$	$6.9 \times 10^{-34} (300/T_g)^{1.25}$	[23]
R14	$\text{O} + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2$	$1.8 \times 10^{-11} \exp(-2300/T_g)$	[24]
R15	$\text{O}_2 + \text{O}_3 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2 + \text{O}_2$	$7.26 \times 10^{-10} \exp(-11400/T_g)$	[24]
R16	$\text{O}^+ + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{O}_2$	$2.6 \times 10^{-8} (T_g/300)^{-0.44}$	[24]
R17	$\text{O}_2 + \text{O}^+ \rightarrow \text{O} + \text{O}_2^+$	2.1×10^{-11}	[24]
R18	$\text{O}_2 + \text{O}^- \rightarrow \text{O} + \text{O}_2^-$	3.2×10^{-10}	[24]
R19	$\text{O}_2^- + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2$	$2.01 \times 10^{-7} (T_g/300)^{-0.5}$	[24]
R20	$\text{O}(^1\text{D}) + \text{O}_3 \rightarrow \text{O} + \text{O}_3$	2.5×10^{-10}	[24]
R21	$\text{O} + \text{O}_2 + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_3 + \text{O}_3$	$1.45 \times 10^{-34} \exp(-663/T_g)$	[24]
R22	$\text{O}_2^- + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_3^-$	7.8×10^{-10}	[24]
R23	$\text{O}^- + \text{O}_3 \rightarrow \text{O} + \text{O}_3^-$	5.3×10^{-10}	[24]
R24	$\text{O}(^1\text{D}) + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2(^1\Sigma_g^+)$	$2.56 \times 10^{-11} \exp(-67/T_g)$	[24]
R25	$\text{O}_2^- + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{O} + \text{O}_2$	$1.01 \times 10^{-7} (T_g/300)^{-0.5}$	[24]
R26	$\text{O}_2^+ + \text{O}_3^- \rightarrow \text{O}_3 + \text{O}_2$	$2.0 \times 10^{-7} (T_g/300)^{-0.5}$	[24]
R27	$\text{O}_2^+ + \text{O}_3^- \rightarrow \text{O} + \text{O} + \text{O}_3$	$1.01 \times 10^{-7} (T_g/300)^{-0.5}$	[24]
R28	$\text{O}_2^+ + \text{O}^- \rightarrow \text{O} + \text{O} + \text{O}$	$2.6 \times 10^{-8} (T_g/300)^{-0.44}$	[24]
R29	$\text{O}(^1\text{D}) + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2$	$7.0 \times 10^{-12} \exp(67/T_g)$	[24]

注: 表中二体反应速率单位为 $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$; 三体反应速率单位为 $\text{cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$; T_e 代表电子温度, 单位为 eV; T_g 代表气体温度, 单位为 K。

380 ns 时不同脉冲峰值电压对应的正脉冲电压波形图。图 3 为当脉冲峰值电压为 9 kV、脉冲上升时间为 380 ns 时不同脉冲宽度对应的正脉冲电压波形图。图 4 为当脉冲峰值电压为 9 kV、脉冲宽度为 380 ns 时不同脉冲上升时间对应的正脉冲电压波形图。此外, 本文所涉及其他变化的脉冲宽度和脉冲上升时间波形图, 其变化波形分别与图 3 和图 4 相似, 只是对应的脉冲峰值电压不同。

2 结果与分析

2.1 脉冲参数对流光传播速度的影响

图 5 所示为当脉冲宽度和脉冲上升时间为 380 ns 时流光传播速度随脉冲峰值电压的变化趋势。流光传播速度为气体间隙厚度与流光从阳极传播到阴极所需传播时间的比值, 传播时间是从阳极微弱流光出现(雪崩开始发展成流光)开始至流光头

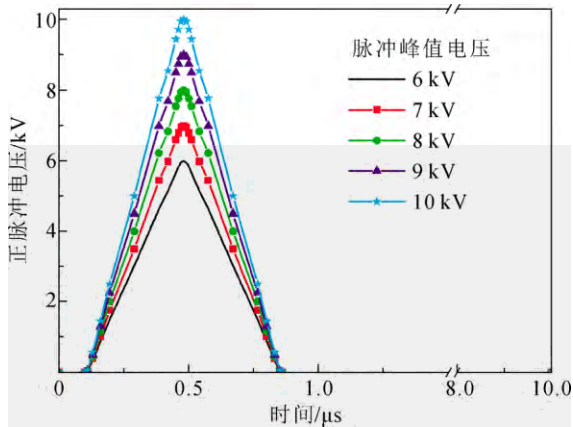


图2 不同脉冲峰值电压对应的正脉冲电压波形图
Fig.2 Waveform of positive pulse voltage at different pulse peak voltages

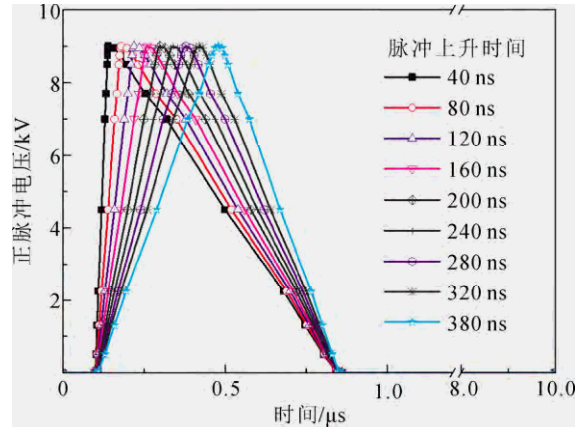


图4 不同脉冲上升时间电对应的正脉冲电压波形图
Fig.4 Waveform of positive pulse voltage at different pulse rise time

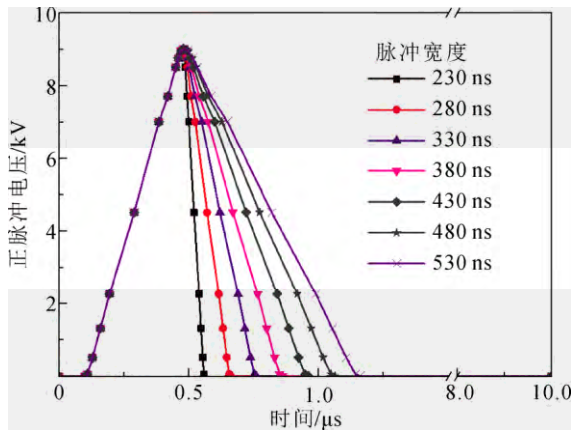


图3 不同脉冲宽度对应的正脉冲电压波形图
Fig.3 Waveform of positive pulse voltage at different pulse widths

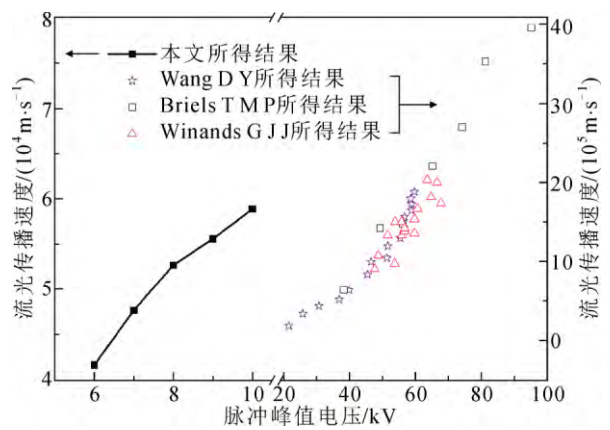


图5 流光传播速度与脉冲峰值电压的关系曲线
Fig.5 Streamer propagation velocity as a function of pulse peak voltage

到达阴极为止。由图 5 可知，随着脉冲峰值电压的增大，流光传播速度逐渐增大。出现该趋势的原因是电极上加载的电压使流光头与阳极之间的等离子通道具有较高的导电性，对流光头的运动产生强烈的影响^[31]。国外学者 Wang D Y^[31]、Briels T M P^[32]和 Winands G J J^[33]等人通过实验研究也得到与图 5 所示相同的变化趋势。当脉冲峰值电压为 6~10 kV 时，本文获得的对应流光传播速度范围为 $4.2 \times 10^4 \sim 6.0 \times 10^4$ m/s，比上述 3 学者所得的结果小，原因可能主要是各自采用不同参数的脉冲电压和不同的反应器结构。本文采用的脉冲峰值电压更小，其对应的速度也更小。

图 6 给出了当脉冲上升时间为 380 ns 时流光传播速度随脉冲宽度的变化趋势。从图 6 中可以看出，脉冲宽度的改变对流光传播速度基本没有影响。其

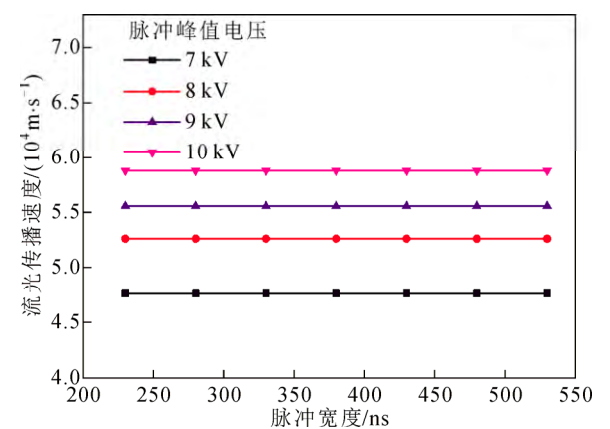


图6 流光传播速度与脉冲宽度的关系曲线
Fig.6 Streamer propagation velocity as a function of pulse width

原因为流光的出现是在脉冲的上升沿阶段, 虽然脉冲宽度不同, 但上升沿阶段一样, 所对应的流光起始电压也一样, 不随脉冲宽度的改变而改变, 因此流光传播速度基本上不受脉冲宽度的影响。此外, 图 6 中更高的脉冲峰值电压对应更大的流光传播速度与图 5 的结果一致。

图 7 为当脉冲宽度为 380 ns 时流光传播速度随脉冲上升时间的变化曲线。在不同的脉冲峰值电压下, 随着脉冲上升时间的增大, 流光传播速度均呈下降趋势。据英国 Allen N L 等报道: 流光传播速度随着电场强度的增大而增大, 且流光传播速度的上升率在高电场强度下比低电场强度下大^[34]。因此, 当脉冲上升时间变短时, 在相同的时间间隔内改变的电压更大, 也即在流光出现后并经历相同时间, 此时对应的电场强度更大, 致使流光传播速度变大如图 7 所示。同时流光传播速度在短脉冲上升时间的下降率比在长脉冲上升时间的大。由图 7 可知, 在模拟工况条件下得到的流光传播速度范围为 $4.76 \times 10^4 \sim 3.57 \times 10^5$ m/s, 其最小值对应的脉冲峰值电压和脉冲上升时间分别为 7 kV 和 380 ns, 最大值对应的分别为 10 kV 和 40 ns。Yagi I 等在线-筒型脉冲电晕放电实验中也得到类似的变化趋势^[8]。

从脉冲上升率的角度来讲, 流光传播速度随着脉冲上升率的增大而增大, 本文所得结果如图 8(a) 所示, 与国外学者 Briels T M P^[35], Winands G J J^[33] 和 Yagi I^[8] 分别在针-板型、线-板型和线-筒型放电结构中得到的趋势一致, 与 Clevis T T J 等^[9] 得到的由于起始云存在而导致流光传播速度变小趋势相反。流光传播速度随脉冲上升率增大而增大的原因是: 流光在脉冲上升沿阶段产生, 对应的流光起始电压不变, 且流光传播速度随着电场强度的增大而增大; 随着脉冲上升率的增大, 放电空间的电场强度在相同时间间隔内变化增大, 即在流光出现后并经历相同时间, 此时对应的电场强度更大, 使流光传播速度加快。而不是 Clevis T T J 等所说的, 随着脉冲上升率的增大, 将会生成尺寸更大、传播速度更慢的起始云, 导致整体流光传播变慢。Winands G J J 等所得到的结果如图 8(b) 所示, 与本文所得的流光传播速度及上升率数值不一致, 这是由于采用了不同的反应器结构和脉冲上升率。

2.2 脉冲参数对臭氧分子浓度的影响

图 9 所示为当脉冲上升时间为 380 ns 时臭氧分子浓度随脉冲宽度的变化曲线。由图 9 可知, 脉冲

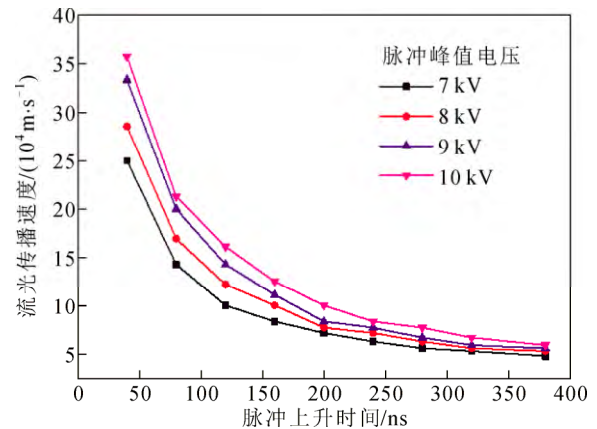
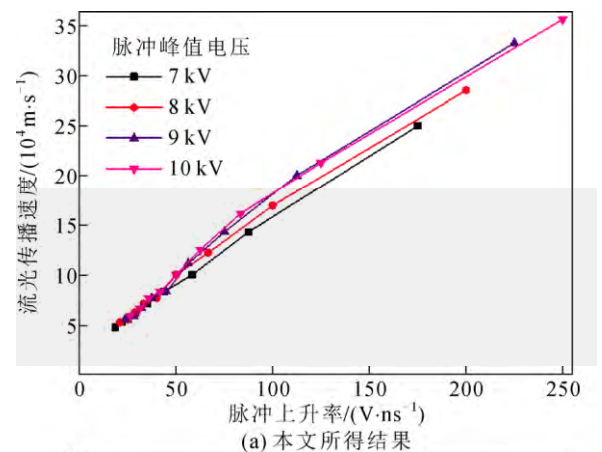
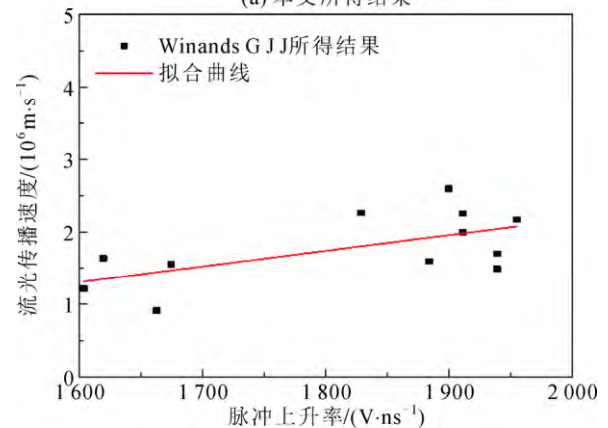


图 7 流光传播速度与脉冲上升时间的关系曲线

Fig.7 Streamer propagation velocity as a function of pulse rise time



(a) 本文所得结果



(b) Winands G J J 所得结果

图 8 流光传播速度与脉冲上升率的关系曲线

Fig.8 Streamer propagation velocity as a function of pulse rise rate

宽度对臭氧分子浓度的影响甚微。但从放电能量的角度来看, 随着脉冲宽度的减小, 消耗的电能量减小, 在臭氧分子浓度基本无变化的情况下臭氧产率是增大的, 即减小脉冲宽度有利于提高臭氧产生的能量

效率。类似变化趋势 Ono R 等也有报道^[10]。出现上述结果的原因是放电中氧原子与臭氧主要在有流光存在时产生。流光的存在时间对应脉冲上升沿阶段，而脉冲宽度变化是在脉冲上升时间不变的情况下，通过延长脉冲下降时间实现的，因此增大脉冲宽度并不能有效的提高臭氧分子浓度，而注入的脉冲电能却是增大的。对于相同脉冲宽度下，臭氧分子浓度随着脉冲峰值电压的增大而增大，原因是在脉冲上升沿阶段，流光存在时，更高的电场强度分布在反应器中，有利于高能电子的产生，进而有利于臭氧的产生。

图 10 和图 11 分别为当脉冲宽度为 380 ns 时臭氧分子浓度随脉冲上升时间与脉冲上升率的变化曲线。由图 10 可知，随着脉冲上升时间的增大，臭氧分子浓度呈下降趋势，并且臭氧分子浓度的下降率在短脉冲上升时间比在长脉冲上升时间大。最大臭氧分子浓度在脉冲峰值电压为 10 kV 和脉冲上升时间为 40 ns 的条件下得到，其值约为 $3.88 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ 。由图 11 可知，臭氧分子浓度随着脉冲上升率的增大呈线性增大的趋势。为深入研究臭氧分子浓度随脉冲上升时间与脉冲上升率的演变规律，探究氧原子的时空分布必不可少，因为臭氧的产生主要通过三体碰撞反应($\text{O} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{O}_3 + \text{M}$)实现。

图 12(a)所示当脉冲峰值电压为 9 kV 时氧原子数密度在两脉冲上升率下随时间的变化曲线。图 12(a)中虚线所指位置对应流光传播阶段产生的氧原子数密度，两脉冲上升率在此阶段产生氧原子数基本一样。而对于整个放电过程中氧原子数密度在大的脉冲上升率下更大且上升趋势更陡。该结果趋势与 Komuro A 等^[12]的单个脉冲产生的氧原子数量变化趋势一致如图 12(b)所示，具体氧原子数值不一样是由不同的反应器结构和不同参数的脉冲电压引起。本文采用的为平板结构，加载的脉冲峰值电压为 9 kV、脉冲上升率分别为 23.68 V/ns 和 45 V/ns；Komuro A 等采用的为针-板结构，所加载的脉冲峰值电压为 24 kV、脉冲上升率分别为 110 V/ns 和 520 V/ns。本文在脉冲上升率为 45 V/ns 时，所得到的氧原子数密度可能比实际的偏大但变化趋势是一致的。图 12(a)也显示了氧原子主要在流光的后期阶段即阴极流光区域产生，且其产生量随着脉冲上升率的增大而增大。出现该现象的原因可以从图 13 所示的氧原子产生速率来解释。图 13(a)所示为当脉冲上升率为 23.68 V/ns 时氧原子产生速率的空间分

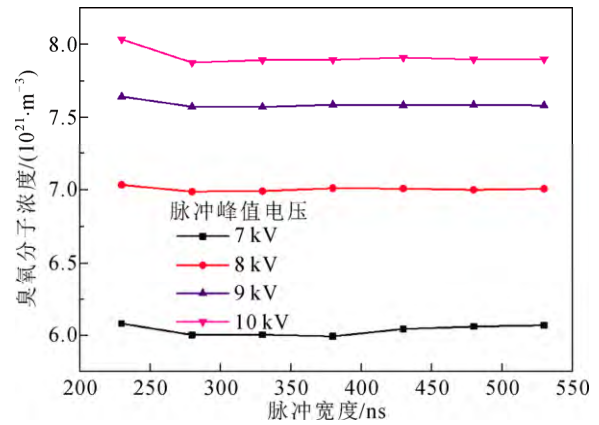


图 9 臭氧分子浓度与脉冲宽度的关系曲线

Fig.9 Ozone density as a function of pulse width

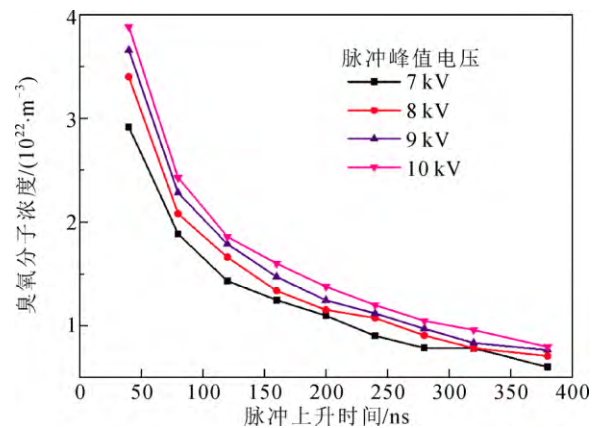


图 10 臭氧分子浓度与脉冲上升时间的关系曲线

Fig.10 Ozone density as a function of pulse rise time

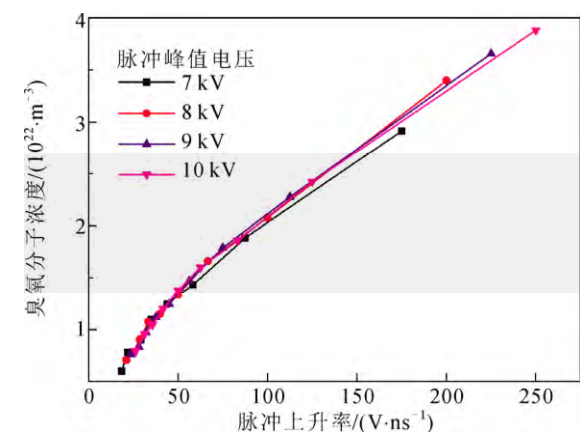
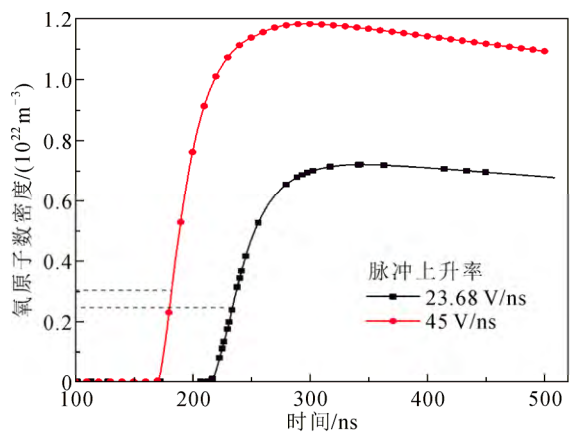


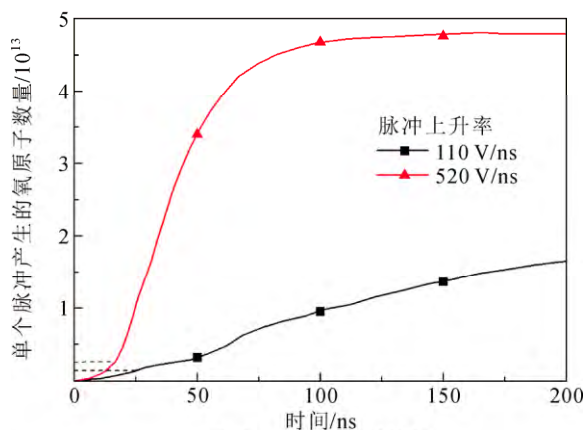
图 11 臭氧分子浓度与脉冲上升率的关系曲线

Fig.11 Ozone density as a function of pulse rise rate

布图。从图 13(a)可看出，氧原子产生速率随着流光的向前传播而向前推进，其值也随之增大；当流光到达阴极时，氧原子产生速率达到最大值



(a) 本文所得结果

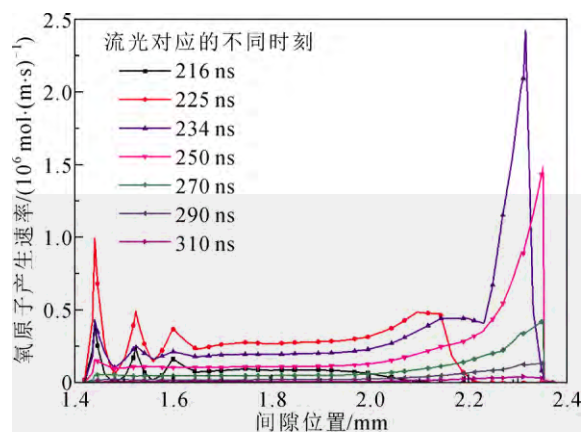


(b) Komuro A所得结果

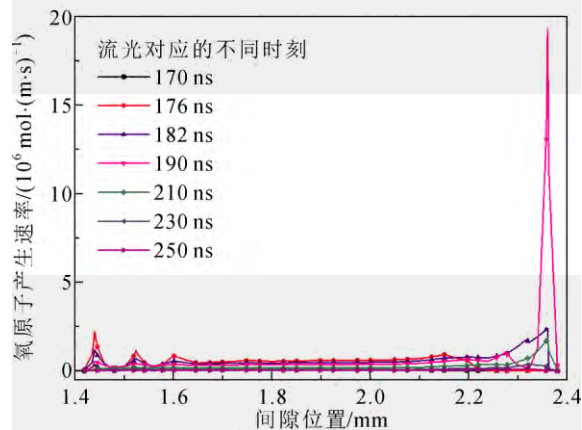
图 12 氧原子数密度及氧原子数量的时间分布图

Fig.12 Time evolution of the density and number of O radical

$2.5 \times 10^5 \text{ mol}/(\text{m}^3 \cdot \text{s})$; 随即流光停留在阴极区域直至 290 ns 后完全消失, 此时, 氧原子产生速率达到最大也随着时间的演变而慢慢减小。此外, 由图 13(a) 可知, 氧原子产生速率在流光停留在阴极阶段比在流光传播阶段大, 且流光在阴极区域的停留时间亦比其传播时间长。图 13(b) 所示为当脉冲上升率为 45 V/ns 时氧原子产生速率的空间分布图。对比图 13(a) 和图 13(b) 可知, 氧原子产生速率在脉冲上升率为 45 V/ns 时与 23.68 V/ns 时的变化趋势一致, 其最大值在阴极流光区域为 $2 \times 10^7 \text{ mol}/(\text{m}^3 \cdot \text{s})$, 比在脉冲上升率为 23.68 V/ns 的情况下大 2 个数量级, 且放电产生的流光在 230 ns 后消失。然而流光在脉冲上升率为 45 V/ns 时停留在阴极的时间为 48 ns, 只比在 23.68 V/ns 情况下小 8 ns, 但氧原子产生速率却很大, 且流光停留在阴极的时间仍比其传播时间长。因此氧原子数密度随着脉冲上升率的增大而增大, 即臭氧分子浓度随着脉冲上升率的增大而增大, 且 2 种粒子主要在阴极流光区域产生。



(a) 脉冲上升率为 23.68 V/ns



(b) 脉冲上升率为 45 V/ns

图 13 氧原子产生速率的空间分布图

Fig.13 Spatial distribution of the production rate of O radical

3 结论

在臭氧产生的过程中, 脉冲参数是影响其流光传播和臭氧产生特性的关键因素。本文建立了由流体动力学模型与含有 11 种粒子、29 个反应的化学模型组成的完整的数值模型, 并模拟研究了氧气源下、平板正脉冲介质阻挡放电中脉冲参数对流光传播速度与臭氧分子浓度的影响, 主要结论如下:

1) 流光传播速度随脉冲峰值电压的增大而增大, 随脉冲上升时间的减小而增大且增长趋势逐渐增大, 但几乎不受脉冲宽度变化的影响。在模拟工况下所得流光传播速度范围为 $4.20 \times 10^4 \sim 3.57 \times 10^5 \text{ m/s}$ 。

2) 臭氧分子浓度随脉冲峰值电压的增大而增大, 随脉冲上升时间的增大而减小; 脉冲宽度对臭氧分子浓度也基本没有影响, 但从能量角度来看, 减小脉冲宽度有利于提高臭氧产率。

3) 随着脉冲上升率的增大, 流光传播速度呈上升趋势, 原因是放电空间中电场强度随着脉冲上升率的增大而增大, 致使流光传播加快。由于氧原

子产生速率随脉冲上升率的增大而增大, 其值在流光停留在阴极阶段比在流光传播阶段大且存在时间更长, 因此臭氧分子浓度与氧原子数密度均随着脉冲上升率的增大而增大。且臭氧与氧原子主要在阴极流光区域产生, 即流光的后期阶段产生。

参考文献 References

- [1] Ono R, Oda T. Formation and structure of primary and secondary streamers in positive pulsed corona discharge-effect of oxygen concentration and applied voltage[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2003, 36(16): 1952-1958.
- [2] Van Veldhuizen E M, Rutgers W R. Pulsed positive corona streamer propagation and branching[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2002, 35(17): 2169-2179.
- [3] Winands G J J, Liu Z, Pemen A J M, *et al.* Temporal development and chemical efficiency of positive streamers in a large scale wire-plate reactor as a function of voltage waveform parameters[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2006, 39(14): 3010-3017.
- [4] Tardiveau P, Marode E, Agneray A. Tracking an individual streamer branch among others in a pulsed induced discharge[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2002, 35(21): 2823-2829.
- [5] Briels T M P, Van Veldhuizen E M, Ebert U. Experiments on the diameter of positive streamers in air[C]. *Proceedings of the 27th International Conference on Phenomena in Ionised Gases*. Eindhoven, Netherlands: Eindhoven University of Technology, 2005.
- [6] 刘典, 夏胜国. 短空气间隙放电电流注分叉特性实验研究[J]. *高电压技术*, 2015, 41(1): 282-286.
LIU Dian, XIA Shenguo. Experimental studies on characteristics of streamer branching in short air gaps discharge[J]. *High Voltage Engineering*, 2015, 41(1): 282-286.
- [7] Wang D Y, Okada S, Matsumoto T, *et al.* Pulsed discharge induced by nanosecond pulsed power in atmospheric air[J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2010, 38(10): 2746-2751.
- [8] Yagi I, Okada S, Matsumoto T, *et al.* Streamer propagation of nanosecond pulse discharge with various rise times[J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2011, 39(11): 2232-2233.
- [9] Clevis T T J, Nijdam S, Ebert U. Inception and propagation of positive streamers in high-purity nitrogen: effects of the voltage rise rate[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2013, 46(4): 045202.
- [10] Ono R, Nakagawa Y, Oda T. Effect of pulse width on the production of radicals and excited species in a pulsed positive corona discharge[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2011, 44(48): 485201.
- [11] 闫克平, 李树然, 冯卫强, 等. 高电压环境工程应用研究关键技术问题分析和展望[J]. *高电压技术*, 2015, 41(8): 2528-2544.
YAN Keping, LI Shuran, FENG Weiqiang, *et al.* Analysis and prospect on key technology of high-voltage-discharge for environmental engineering study and application[J]. *High Voltage Engineering*, 2015, 41(8): 2528-2544.
- [12] Komuro A, Ono R, Oda T. Effects of pulse voltage rise rate on velocity, diameter and radical production of an atmospheric-pressure streamer discharge[J]. *Plasma Sources Science and Technology*, 2013, 22(4): 045002.
- [13] Fujiwara M. Short-pulse discharge for simultaneous pursuit of energy and volume-efficient NO_x removal[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2006, 45(2A): 948-950.
- [14] Namihira T, Tsukamoto S, Wang D Y, *et al.* Improvement of NO_x removal efficiency using short-width pulsed power[J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2000, 28(2): 434-442.
- [15] Ono R, Oda T. Measurement of gas temperature and OH density in the afterglow of pulsed positive corona discharge[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2008, 41(3): 035204.
- [16] 徐双艳, 李江, 蔡晋生, 等. 二维对称结构纳秒脉冲介质阻挡放电数值模拟[J]. *高电压技术*, 2015, 41(6): 2100-2107.
XU Shuangyan, LI Jiang, CAI Jinsheng, *et al.* Modeling of the two-dimensional nanosecond SDBD discharge with symmetry electrodes[J]. *High Voltage Engineering*, 2015, 41(6): 2100-2107.
- [17] Wei L S, Yuan D K, Zhang Y F, *et al.* Experimental and theoretical study of ozone generation in pulsed positive dielectric barrier discharge[J]. *Vacuum*, 2014, 104: 61-64.
- [18] Baldus S, Schröder D, Bibinov N, *et al.* Atomic oxygen dynamics in an air dielectric barrier discharge: a combined diagnostic and modeling approach[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2015, 48(27): 275203.
- [19] Wei L S, Peng B F, Li M, *et al.* A numerical study of species and electric field distributions in pulsed DBD in oxygen for ozone generation[J]. *Vacuum*, 2016, 125: 123-132.
- [20] Mennad B, Harrache Z, Amir Aid D A, *et al.* Theoretical investigation of ozone production in negative corona discharge[J]. *Current Applied Physics*, 2010, 10(6): 1391-1401.
- [21] Eliasson B, Hirth M, Kogelschatz U. Ozone synthesis from oxygen in dielectric barrier discharges[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1987, 20(11): 1421-1437.
- [22] Yanallah K, Pontiga F, Fernandez-Rueda A, *et al.* Ozone generation by negative corona discharge: the effect of joule heating[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2008, 41(19): 195206.
- [23] Loiseau J F, Lacassie F, Monge C, *et al.* Numerical simulation of ozone axial and radial distribution in a cylindrical oxygen-fed ozonizer[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1994, 27(1): 63-73.
- [24] Eliasson B, Kogelschatz U. Basic data for modelling of electrical discharges in gases: oxygen[R]. California, USA: University of California, 1986.
- [25] 李清泉, 许光可, 房新振, 等. 沿面型介质阻挡放电的数值仿真计算[J]. *高电压技术*, 2012, 38(7): 1548-1555.
LI Qingquan, XU Guangke, FANG Xinzhen, *et al.* Numerical simulation of surface dielectric barrier discharge[J]. *High Voltage Engineering*, 2012, 38(7): 1548-1555.
- [26] Rafatov I R, Akbar D, Bilikmen S. Modelling of non-uniform DC driven glow discharge in argon gas[J]. *Physics Letters A*, 2007, 367(1): 114-119.
- [27] Almeida P G C, Benilov M S, Cunha M D, *et al.* Analysing bifurcations encountered in numerical modelling of current transfer to cathodes of dc glow and arc discharges[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2009, 42(19): 194010.
- [28] Kumara S, Serdyuk Y V, Gubanski S M. Charging of polymeric surfaces by positive impulse corona[J]. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 2009, 16(3): 726-733.
- [29] Liu X H, He W, Yang F, *et al.* Numerical simulation and experimental validation of a direct current air corona discharge under atmospheric pressure[J]. *Chinese Physics B*, 2012, 21(7): 075201.
- [30] 彭庆军, 司马文霞, 杨庆, 等. 初始电子浓度对空气中针板间隙

正极性流注放电的影响[J]. 高电压技术, 2013, 39(1): 37-43.

PENG Qingjun, SIMA Wenxia, YANG Qing, *et al.* Influence of initial electron concentration on positive streamer discharge in pin-plate air gap[J]. High Voltage Engineering, 2013, 39(1): 37-43.

- [31] Wang D Y, Jikuya M, Yoshida S, *et al.* Positive and negative-pulsed streamer discharges generated by a 100-ns pulsed-power in atmospheric air[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2007, 35(4): 1098-1103.
- [32] Briels T M P, Kos J, Winands G J J, *et al.* Positive and negative streamers in ambient air: measuring diameter, velocity and dissipated energy[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2008, 41(23):

234004.

- [33] Winands G J J, Liu Z, Pemen A J M, *et al.* Analysis of streamer properties in air as function of pulse and reactor parameters by ICCD photography[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2008, 41(23): 234001.
- [34] Allen N L, Mikropoulos P N. Dynamics of streamer propagation in air[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 1999, 32(8): 913-919.
- [35] Briels T M P, Kos J, Van Veldhuizen E M, *et al.* Circuit dependence of the diameter of pulsed positive streamers in air[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2006, 39(24): 5201-5210.



LI Ming

Ph.D., Professor

李 鸣

1957—, 男, 博士, 教授, 硕导

主要研究方向为现代控制技术及仪器

E-mail: liming@ncu.edu.cn



WEI Linsheng

Ph.D., Professor

Corresponding author

魏林生(通信作者)

1980—, 男, 博士, 教授, 硕导

主要研究方向为低温等离子体、过程装备节能技术和污染物控制

E-mail: weilinsheng@ncu.edu.cn



PENG Bangfa

彭邦发

1992—, 男, 硕士

主要研究方向为低温等离子体臭氧发生技术

E-mail: 1207591028@qq.com



ZHANG Yafang

章亚芳

1981—, 女, 硕士, 讲师

主要从事天然产物的提取与分离和低温等离子体臭氧发生技术的研究工作

Email: zhangyafang@ncu.edu.cn

收稿日期 2016-01-30 修回日期 2016-03-26 编辑 李 东