

مشخصه‌یابی پلاسمای هوا در سامانه تخلیه‌ی سد دی‌الکتریک

نرگس بیگ‌محمدی، مهناز عبدالهی درگاه، مهدیه بختیاری رضانی*

پژوهشکده فیزیک پلاسما و گداخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی ۸۳۶-۱۴۳۹۵، تهران، ایران.

چکیده

یکی از روش‌های نوین در حذف آلاینده‌های دارویی آب استفاده از پلاسما توسط سامانه تخلیه سد دی‌الکتریک است که توجه صنعتگران را به خود معطوف کرده است. در این روش، یک یا هر دو الکترود با یک ماده دی‌الکتریک پوشانده می‌شود. حضور دی‌الکتریک در بین الکترودها از ایجاد تخلیه قوسی جلوگیری می‌کند. در این مقاله، با استفاده از روش طیف سنجی نشر نوری، به مطالعه پلاسمای فشار اتمسفری هوا و بررسی گونه‌ها و رادیکال‌های آزاد تولید شده آن در سامانه‌ی تخلیه‌ی سد دی‌الکتریک پرداخته شده است. بنابراین، با استفاده از طیف سنج نشر نوری در بازه طول موجی ۱۰۰۰-۲۰۰ نانومتر، گونه‌ها و رادیکال‌های OH، H، Ar، O، N در این سامانه در بازه طول موجی مذکور مشاهده شدند. همچنین به کمک طیف نشری و استفاده از مفهوم پهن شدگی استارک برای این پلاسمای سرد فشار اتمسفری، چگالی الکترون، $(\text{cm}^{-3}) \times 10^{15}$ تخمین زده شد.

کلیدواژه‌ها: پلاسمای سرد، تخلیه سد دی‌الکتریک، طیف‌سنج نشر نوری.

Characterization of the Air Plasma in the Dielectric Barrier Discharge System

N. Beigmohammadi, M. Abdollahi Dargah, M. Bakhtiyari Ramezani*

Plasma and Nuclear Fusion Research Institute, Nuclear Science and Technology Research Institute (NSTRI), P.O.BOX: 14395-836, Tehran, Iran.

Abstract:

One of the new methods in removing pharmaceutical water contaminants is the use of plasma by the dielectric barrier discharge system, which has attracted the attention of industrialists. In this method, one or both electrodes are coated with a dielectric material. The presence of a dielectric between the electrodes prevents arc discharge. In this paper, using the optical emission spectroscopy method, the atmospheric pressure plasma of the air is studied and the species and free radicals produced in the dielectric dam discharge system are studied. Therefore, using light emission spectrometer in the wavelength range of 200-1000 nm, species and radicals N, O, Ar, H and OH were observed in the dielectric barrier discharge system in the mentioned wavelength range. Also, using the emission spectrum and using the concept of broadening for cold plasma, the electron density was also estimated to be $2.66 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$.

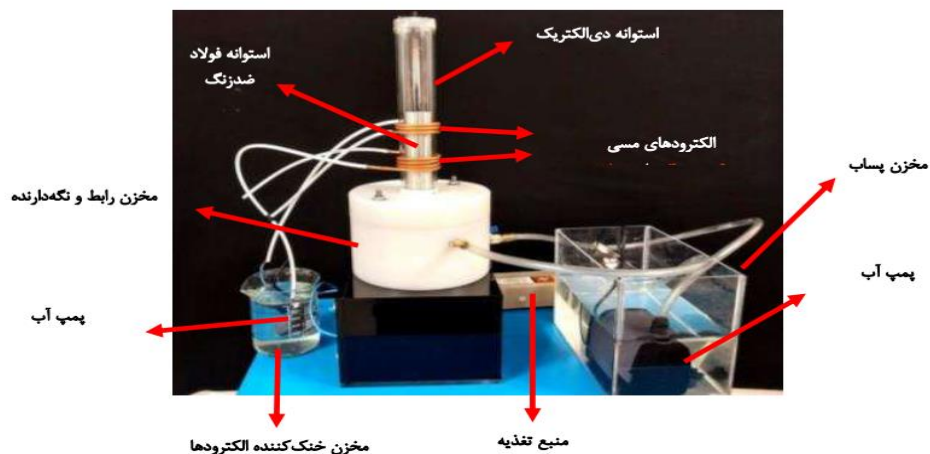
Keywords: Cold Plasma, Dielectric Barrier Discharge, Optical Emission pectrometer.

۱. مقدمه

دستگاه‌های پلاسما سرد اتمسفری، طی دهه‌های اخیر پدید آمده‌اند. چنین دستگاه‌هایی به دو روش مستقیم و غیرمستقیم قابل استفاده‌اند. از جمله کاربردهای آن‌ها می‌توان به غیرفعال کردن باکتری‌ها، کنترل بیولوژیکی، درمان سلول‌های سرطانی، تصفیه آب، تولید آب فعال شده با پلاسما و غیره اشاره نمود [۱]. طیف‌سنجی انتشار نوری (OES^۱) روشی رایج جهت مشخصه‌یابی پلاسما است، زیرا انجام آن آسان و غیرمخرب است [۲]. در بسیاری از مطالعات، پارامترهای پلاسما می‌تواند در بسیاری از زمینه‌های پلاسمایی به‌عنوان مثال در آزمایش‌های گداخت هسته‌ای و تولید مواد با کمک پلاسما استفاده گردد [۳]. یکی از کاربردهای مهم پلاسمای هوای سرد جهت تولید گونه‌های فعال و سایر گونه‌های پلاسما مانند نیتروژن، اکسیژن، هیدروژن، اوزون، رادیکال‌های هیدروکسیل و آرگون به منظور تخریب آفت‌کش‌ها هستند. تخریب سموم دفع آفات با ولتاژ و زمان پردازش بهینه قابل انجام است. از ویژگی‌های جذاب این روش برای تصفیه آب نیز می‌توان به استفاده از هوای اتمسفری به عنوان گاز القایی اشاره کرد [۴]. همچنین کاهش باکتری برای حفظ کیفیت غذا در بسته‌بندی صنایع غذایی نیز از فواید این نوع پلاسما می‌باشد [۵]. در این تحقیق از طیف‌سنج نشر نوری برای یافتن چگالی الکترون و مشخص نمودن انواع گونه‌های پلاسمای هوا در سامانه تخلیه سد دی الکتریک استفاده می‌شود.

۲. روش کار

سامانه تخلیه سد دی‌الکتریک مطابق شکل ۱ طراحی و ساخته شده است. برای یافتن مشخصات پلاسمای هوا مانند گونه‌ها و رادیکال‌های آزاد و تعیین چگالی الکترون از طیف‌سنج مدل ۷۹۰۰ در دو بازه طول موجی ۲۰۰ تا ۵۵۰ و ۵۵۰ تا ۱۱۰۰ نانومتر استفاده شد. به منظور کالیبراسیون، قبل از انجام طیف‌سنجی، طیفی از منبع نوری یک نمونه تک اتمی مانند لامپ‌های جیوه و هلیوم را که هر دو به یک عنصر شناخته شده تعلق دارند، توسط طیف‌سنج جمع‌آوری شد. مشخصات منبع تغذیه و طیف‌سنج در جداول ۱ و ۲ آورده شده است.



شکل ۱. نمایی از سامانه‌ی پلاسمای سرد تخلیه سد دی‌الکتریک

¹ Optical Emission Spectroscopy

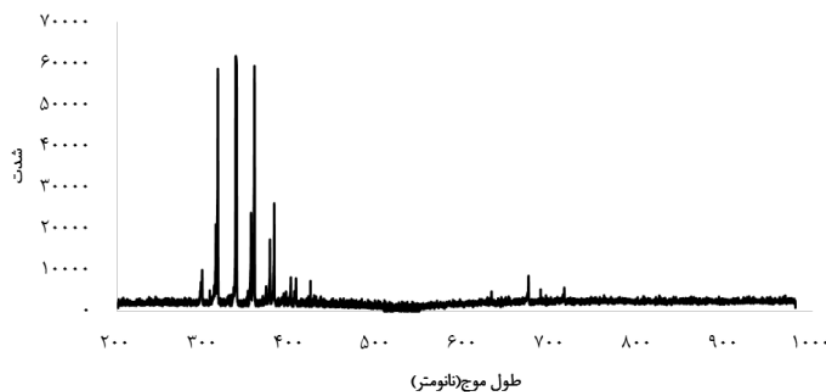
جدول ۱. مشخصات منبع تغذیه ترانس نئون

توان	جریان	فرکانس
۱۳۰ W	۳۰ mA	۱۰ kHz

جدول ۲. مشخصات طیف‌سنج v900

بازه اندازه‌گیری (نانومتر)	وضوح (نانومتر)	فاصله شکاف (میکرومتر)	زمان داده برداری
۱۱۰۰-۲۰۰ nm	۱/۸ nm	۲۵ μm	۶۰ s-۱۰ s

شکل ۲. طیف نشری پلاسمای سرد هوا را نشان می‌دهد. همان‌طور که مشخص است در بعضی از نقاط طول موجی، شدت قله و پهنا متفاوت است. شکل و عرض یک خط طیفی ساطع شده توسط پلاسمای نتیجه‌ای از فرآیندهایی است که در تخلیه اتفاق می‌افتد. محاسبه چگالی الکترون نیز از تجزیه و تحلیل پهن‌شدگی طیف انتشار، در مورد گونه‌های مورد نظر انجام می‌گردد. قله‌های طیفی با استفاده از کتابخانه داده‌ها در سایت مؤسسه بین‌المللی تکنولوژی و استانداردها (NIST)^۲ مشخصه‌یابی شدند. داده‌های اتمی مورد استفاده شامل O، Ar، N و H در جدول ۳ نشان داده شده است. کمیت‌های اسپکتروسکوپی مرتبط با طول موج قله‌های طیفی شامل E_k ، A_{ki} ، g_k به ترتیب انرژی تحریکی، احتمال انتقال نشر تابش خودبه‌خودی از سطح بالاتر k تا سطح پایین‌تر i و وزن آماری سطح بالاتر نشری k می‌باشند و ستون آخر گزار را نشان می‌دهد.



شکل ۲. طیف خطوط نشری پلاسمای هوا در بازه طول موجی ۲۰۰ تا ۱۰۰۰ نانومتر

جدول ۳. داده‌های اسپکتروسکوپی خطوط نشری اجزای پلاسمای هوا از سایت NIST

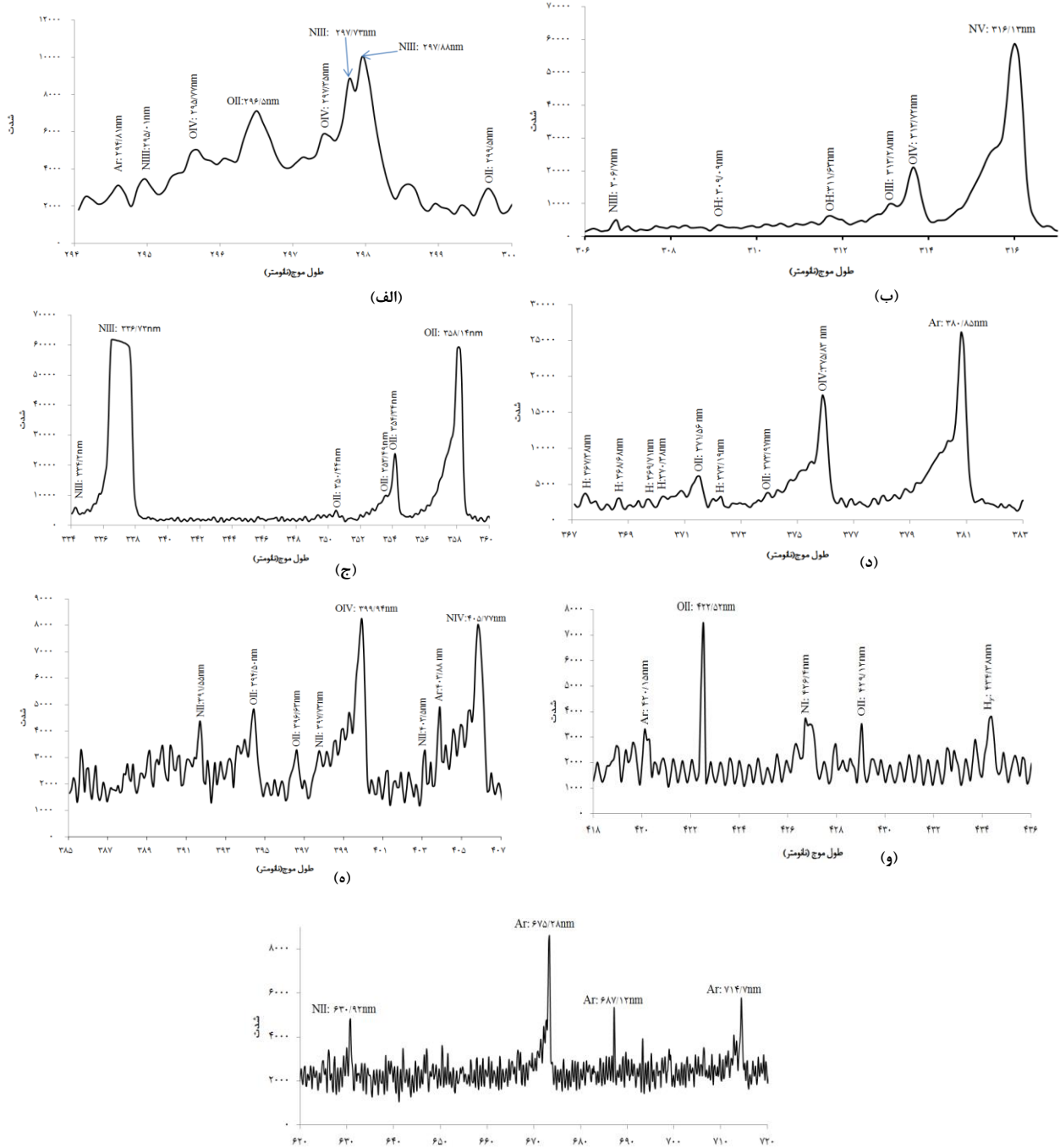
اجزای پلاسمای	λ (nm)	E_k (eV)	$g_k A_{ki}$ (1/s)	گذار
NII	۳۹۱/۵۵	۲۸/۳۵	$۵/۳۷ \times ۱۰^{-۷}$	۴p-۳p
	۳۹۷/۷۳	۲۱/۵۹	$۳/۹ \times ۱۰^{-۴}$	۳s-۳p
	۶۳۰/۹۲	۲۳/۱۲	$۸/۵۵ \times ۱۰^{-۴}$	۳p-۳d
	۴۰۳/۵۵	۱۳/۷۶	$۱/۱۴ \times ۱۰^{-۶}$	۳s-۵p
NIII	۲۹۵/۰۱	۴۴	$۵/۷۸ \times ۱۰^{-۶}$	۳p-۶f
	۲۹۷/۸۸	۴۲/۴۸	$۶/۶۴ \times ۱۰^{-۷}$	۳p-۳d
	۳۰۶/۷	۵۰/۷۵	$۱/۲۷ \times ۱۰^{-۴}$	۴p-۵d

² National Institute of Standards and Technology

	۳۳۴/۲	۸۴/۳۶	۲/۵۶×۱۰ ^۷	۳d-۳s
	۳۳۶/۷۳	۳۹/۳۵	۷/۶۲×۱۰ ^۸	۳s-۳p
NI	۴۲۶/۴	۱۴/۹۱	۲/۲۶×۱۰ ^۶	۳p-۳d
NV	۳۱۶/۱۳	۸۸/۰۲	۴/۱×۱۰ ^۸	۵p-۶s
NIV	۴۰۵/۷۷	۵۳/۲۰	۳/۳۱×۱۰ ^۸	۳p-۳d
	۲۹۶/۵	۳۴/۹۹	۹/۱۵×۱۰ ^۸	۴p-۴s
	۲۹۹/۵	۳۵/۴۵	۱/۳×۱۰ ^۸	۳d-۵f
	۳۷۱/۵۶	۳۴/۰۸	۸/۴۴×۱۰ ^۶	۴p-۴d
	۳۷۳/۹۷	۲۹/۶۱	۱/۷۸×۱۰ ^۸	۴p-۴d
OII	۳۹۴/۵	۲۶/۵۶	۸/۰۴×۱۰ ^۷	۳s-۳p
	۳۹۶/۶۳	۳۱/۶۳	۳/۸۷×۱۰ ^۶	۳p-۴d
	۴۲۲/۵۲	۳۱/۷۵	۵/۴×۱۰ ^۵	۳d-۴f
	۴۲۹/۱۲	۳۱/۷۱	۴/۶×۱۰ ^۶	۳d-۴f
	۳۵۴/۳۴	۳۲/۳۵	۱/۶۳×۱۰ ^۷	۳d-۵p
OIII	۳۱۳/۲۸	۴۰/۸۴	۶/۸۵×۱۰ ^۸	۴p-۳p
	۲۹۵/۷۷	۷۸/۱۲	۱/۴۳×۱۰ ^۸	۴d-۳d
	۲۹۷/۳۵	۷۸/۱۲	۷/۰۲×۱۰ ^۶	۴d-۳d
OIV	۳۱۳/۷۲	۷۲/۱۲	۲/۱۲×۱۰ ^۷	۳p-۳d
	۳۷۵/۸۳	۶۱/۴۱	۸/۸۸×۱۰ ^۶	۳p-۳d
	۳۹۹/۹۴	۶۶/۸۷	۲/۳۴×۱۰ ^۶	۳d-۵s
	۲۹۴/۸۱	۲۵/۵۷	۲/۱×۱۰ ^۸	۳d-۵f
	۲۹۷/۹۰	۲۱/۴۲	۸/۳۲×۱۰ ^۶	۴s-۴p
	۶۷۵/۲۸	۱۴/۷۴	۱/۹۳×۱۰ ^۶	۴p-۴d
Ar	۳۸۰/۸۵	۱۹/۶۸	۶×۱۰ ^۶	۳d-۴p
	۶۸۷/۱۲	۱۴/۷۱	۲/۸۷×۱۰ ^۶	۴p-۴d
	۴۰۳/۸۸	۱۹/۴۹	۹/۶×۱۰ ^۶	۳d-۴p
	۴۲۰/۱۵	۲۲/۵۹	۸/۴×۱۰ ^۶	۴p-۵s
	۷۱۴/۷	۱۹/۵۴	۶/۳×۱۰ ^۵	۴s-۴p
	۳۶۷/۳۸	۱۳/۵۷	۱/۱۴×۱۰ ^۶	
	۳۶۸/۶۸	۱۳/۵۶	۲/۰۲×۱۰ ^۶	
H	۳۶۹/۷۱	۱۳/۵۵	۲/۸۳×۱۰ ^۶	
	۳۷۰/۳۸	۱۳/۵۴	۳/۴×۱۰ ^۶	
	۳۷۲/۱۹	۱۳/۵۲	۵/۱×۱۰ ^۶	

برای پلاسمای هوا خطوط نشری مشاهده شده در طیف‌ها عمدتاً شامل نمونه‌های اصلی فعال شامل ازن، گونه‌های اکسیژن و نیتروژن، رادیکال‌های OH و هیدروژن است. از طیف مشخص است که نشر بیشتر در ناحیه نزدیک فرابنفش ۴۲۰-۲۸۰ نانومتر اتفاق می‌افتد. نشر از گونه‌های نیتروژن دارای قله‌هایی نزدیک این ناحیه است. تشخیص نیتروژن در طیف‌ها به دلیل پخش هوای محیط داخل پلاسما است. نشر گونه‌های اکسیژن در ناحیه طول موجی ۳۵۰-۳۸۰ نانومتر در طیف مشخص است. برخورد‌های ذره‌ای گونه‌های اکسیژن در پلاسمای هوا مسئول شدت‌های پایین مشاهده شده است. خطوط نشری آرگون معمولاً از ۶۵۰ تا ۱۱۰۰ نانومتر دیده می‌شود. هیدروژن نیز در محدوده‌ی ۳۶۷-۳۷۳ نانومتر دیده شد. رادیکال هیدروکسیل OH در بازه طول موجی ۳۲۰-۳۰۵ نانومتر دارای قله‌هایی با شدت کم است. از طرفی، به دلیل بالابودن شدت قله‌های نیتروژن در این ناحیه، ممکن است بعضی قله‌های رادیکال به وضوح دیده نشود و نیاز به استفاده از روش‌های دقیق‌تر طیف‌سنجی مانند فلورسانس القای لیزری یا طیف‌سنجی جرمی باشد. قله نشری هیدروکسیل OH احتمالاً به دلیل تجزیه‌ی مولکول‌های آب ناشی از پخش هوای محیط به درون پلاسما است. کم‌بودن شدت قله هیدروکسیل شاید از ناخالصی آب داخل گاز یا محلول نیز باشد، درحالی‌که قله نشری اکسیژن اتمی می‌تواند نتیجه‌ای از تجزیه مولکول آب یا تفکیک O_۲ باشد. به‌طور کلی تغییرات شدتی در خطوط نشری می‌تواند به دلیل تغییرات در توزیع

انرژی الکترون باشد [۶،۷،۸]. در شکل ۳ طیف نشری پلاسمای هوا در بازه طول موجی فرابنفش تا زیرقرمز (۲۰۰-۱۰۰۰ نانومتر) آورده شده است. انواع گونه‌های موجود در پلاسمای هوا در شکل‌ها بر اساس تغییر طول موج و شدت مشخص است.



شکل ۳. طیف خطوط نشری پلاسمای هوا در (الف) بازه طول موجی ۲۹۴ تا ۳۰۰ نانومتر و (ب) بازه طول موجی ۳۰۶ تا ۳۱۷ نانومتر، (ج) بازه طول موجی ۳۳۴ تا ۳۶۰ نانومتر، (د) بازه طول موجی ۳۶۷ تا ۳۸۵ نانومتر، (ه) بازه طول موجی ۳۸۵ تا ۴۰۷ نانومتر، (و) بازه طول موجی ۴۱۸ تا ۴۳۶ نانومتر و (ز) بازه طول موجی ۶۲۰ تا ۷۲۰ نانومتر.

برای محاسبه چگالی الکترون، پروفایل اندازه‌گیری شده از یک خط انتشار می‌تواند تحت تأثیر مکانیسم‌های مختلف هم‌چون پهن‌شدگی طبیعی، پهن‌شدگی واندروالس، پهن‌شدگی استارک (برخوردی) و پهن‌شدگی دوپلر باشد [۹]. شدت خط $H\alpha$ و $H\beta$ به دلیل مقدار کم هیدروژن در تخلیه، بسیار ناچیز است. به منظور تضمین یک وضوح خوب از این خط، مقدار

زیادی از H_2 ضروری است، اما این باعث می‌شود که پلاسمای اصلی به‌طور چشمگیری مختل گردد. به‌همین دلیل، فقط $H\gamma$ در حال حاضر در این طیف‌سنجی مورد استفاده قرار می‌گیرد. پهن‌شدگی دوپلر منجر به یک نمودار گاوسی خواهد شد و FWHM به‌صورت زیر است:

$$\Delta\lambda_D = 7.16 \times 10^{-7} \lambda \sqrt{\frac{T}{M}} = 3.48 \times 10^{-4} \sqrt{T_g} \quad (2)$$

به‌طوری‌که، λ طول موج مرکزی بر حسب آنگستروم، M وزن اتمی هیدروژن 1g/mol، T دمای اتم‌های هیدروژن است که با دمای گاز، T_g برابر می‌باشد. در این کار، چگالی اتم‌های H بسیار کم خواهد بود. بنابراین، فقط پهن‌شدگی واندروالس گسترش می‌یابد. FWHM پهن‌شدگی واندروالس است:

$$\Delta\lambda_{\text{Vanderwals}} = \frac{1.8}{(T_g)^{1/2}} \quad (3)$$

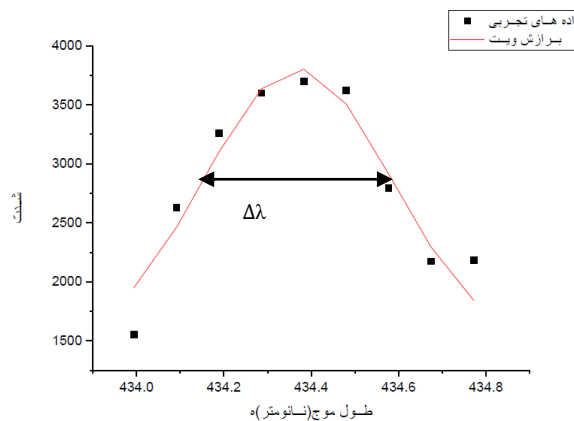
که T_g بر حسب K است. برای چگالی الکترون از $\Delta\lambda_S$ استفاده می‌گردد. سری بالمر هیدروژن 486/13 نانومتر معمولاً برای اندازه‌گیری چگالی الکترون بدون در نظر گرفتن ساختار خوب خط نشری و دینامیک یون استفاده می‌گردد. برای پهن‌شدگی استارک

$$\Delta\lambda_{\text{Stark}} = 2 \times 10^{-11} N_e^{2/3} \quad (4)$$

پارامترهای ویت به‌صورت:

$$\Delta\lambda_{\text{Lorentz}} = \Delta\lambda_{\text{Stark}} + \Delta\lambda_{\text{Vanderwals}} \quad (5)$$

که $\Delta\lambda_L$ ، $\Delta\lambda_V$ و $\Delta\lambda_S$ مولفه‌های لورنتزی، واندروالس و استارک می‌باشد [10-11]. برای محاسبه چگالی الکترون از طیف نشر نوری، یک خط طیفی از سری بالمر اتم هیدروژن به نام $H\gamma$ با طول موج 434/38 نانومتر را در ناحیه مرئی انتخاب، سپس محدوده طیفی مورد نظر توسط نرم افزار origin رسم گردید. نمودار تابع ویت در شکل 4 آورده شده است.



شکل 4. داده‌های تجربی خط $H\gamma$ برازش شده با نمایه ویت

با استفاده از تابع ویت، پهنای لورنتسی $\Delta\lambda_{\text{Lorentz}} = 0.48$ نانومتر تعیین شد. پهنای واندروالس نیز توسط رابطه‌ی (3) [12-13]، در فشار اتمسفر و دمای گاز $T_g = 300$ کلوین، برابر 0.335 نانومتر به‌دست آمد. با استفاده از روابط (4) و (5) چگالی الکترون برون‌یابی و با جایگذاری مقادیر مربوطه، برابر $n_e = 2.66 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ محاسبه شد. این مقدار در محدوده گزارش شده مقالات مربوط به پلاسمای فشار اتمسفری است، $10^{14} < n_e < 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ [12-14].

۵. نتیجه‌گیری

طیف‌سنج انتشارنوری، به عنوان یک دستورالعمل و یک روش غیرتهاجمی برای تشخیص پارامترها و گونه‌های واکنشی تولیدشده توسط پلاسما می‌باشد. در سامانه‌ی تخلیه‌ی سد دی‌الکتریک، پارامترهای مذکور به کمک این طیف‌سنج مشخصه‌یابی و انواع گونه‌ها و رادیکال‌های پلاسمای هوا شامل H, Ar, O, N و OH در بازه طول موجی ۲۰۰ تا ۱۰۰۰ نانومتر مشاهده شدند. چگالی الکترون نیز با استفاده از پهن‌شدگی‌های استارک، واندروالس و لورنتز و برازش تابع ویت آن به کمک نرم افزار origin برابر $n_e = 2.66 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ محاسبه گردید. این مقدار در محدوده‌ی گزارشات دیگران در زمینه پلاسمای سرد اتمسفری می‌باشد.

۶. مراجع

1. José Asenjo-Castillo, Iván Vargas-Blanco, *Emission spectroscopy of an atmospheric pressure plasma*, Tecnología en Marcha, Vol. 29 Número Especial Estudiantes 3, Tecnología en Marcha. Vol. 29, Número Especial Estudiantes 3. Pág 47-58, (2016).
2. Leila Taghizadeh, *Spectroscopic Study of a Non-Thermal Atmospheric Pressure Plasma Jet for the Inactivation of Biofilms*, Promotoren: prof. dr. ir. C. Leys, dr. A. Nikiforov Proefschrift ingediend tot het behalen van de graad van Doctor in de Ingenieurswetenschappen: Toegepaste Natuurkunde Vakgroep Toegepaste Fysica Voorzitter: prof. dr. ir. C. Leys Faculteit Ingenieurswetenschappen en Architectuur Academiejaar (2014).
3. D. M. Devia, L. V. Rodriguez-Restrepo, and E. Restrepo-Parra, *Methods Employed in Optical Emission Spectroscopy Analysis: a Review*, Ingeniería y Ciencia ISSN: 1794-9165, ing. cienc., vol. 11, no. 21, , enero-junio. 2015, pp. 239–267.
4. Chaitanya Sarangapani a, N.N. Misra, *Pesticide degradation in water using atmospheric air cold plasma*, Journal of Water Process Engineering 9 225–232,(2016).
5. Russell Scott Brayfield, *Optical Emission Spectroscopy of High Voltage Cold Atmospheric Plasma Generated Using Dielectric Barrier Discharges*, Theses, Purdue University , (2016).
6. Youang Gallen wod, *Instrumental methods of chemical analysis*, Ali Masoumi, (1381) (In Persian)
7. Fatemeh Rezaei, Marzieh Abbasi-Firouzjah, and Babak Shokri, *Investigation of antibacterial and wettability behaviours of plasma-modified PMMA films for application in ophthalmology*, J. Phys. D: Appl. Phys. 47, 085401, 2014.
8. Chaitanya Sarangapani, N.N. Misra, Vladimir Milosavljevic, Paula Bourke, *Pesticide degradation in water using atmospheric air cold plasma*, Journal of Water Process Engineering, 9, 225–232, (2016).
9. J Torres, J Jonkers, M J van de Sande, JJAMvanderMullen, A Gamero and A Sola, *An easy way to determine simultaneously the electron density and temperature in high-pressure plasmas by using Stark broadening* J. Phys. D: Appl. Phys. 36, (2003).
10. A FALAHAT, A GANJOVI, MTAHAZ, M N ROSTAMI RAVARI and A SHAHEDI, *Optical characteristics of a RF DBD plasma jet in various Ar/O₂ mixtures*, Pramana – J. Phys. 90:27,(2018).
11. Demtröder, W., “Laser spectroscopy 1: basic principles”, Springer, (2014).
12. Qiuping, Z., Cheng, C. and Yuedong, M., *Electron density and temperature measurement by Stark Broadening in a cold argon arc-plasma jet at atmospheric pressure*, Plasma Science and Technology, 11(5), PP:560 (2009).
13. Hamed Abbasi and Majid Nazeri, *Measuring electron density, electric field and temperature of a micro-dhscharge air plasma jet using optical emission spectroscopy*, 2nd International Conference on Knowledge-Based Engineering and Innovation(KBEI), (2015).
14. Sornsakdanuphap, J., Suanpoot, P., Hong, Y.J., Ghimire, B., Cho, G., Uhm, H.S., Kim, D., Kim, Y.J. and Choi, E.H., *Electron temperature and density of non-thermal atmospheric pressure argon plasma jet by convective wave packet model*, Journal of the Korean Physical Society, 70(11), PP: 979-989, (2017).