

脉冲等离子体球磨放电的数值模拟研究

叶苍枫, 王永刚

上海理工大学机械工程学院, 上海

收稿日期: 2023年1月26日; 录用日期: 2023年3月10日; 发布日期: 2023年3月17日

摘要

为了研究等离子体球磨罐内部的放电机理, 并探索在球磨罐中所添加的磨球材质对放电的影响, 本文根据流体理论对球磨罐设备进行了二维建模, 模拟了在三种情况下(无填充磨球、氧化铝填充磨球和不锈钢填充磨球)一个脉冲电压周期内球磨罐放电腔体中的放电过程, 通过数值分析来对比仿真结果中的各种放电参数, 并结合实际球磨罐运行时的放电图片和仿真结果图片体现了建模仿真的可靠性。结果表明, 添加金属材料磨球时的放电电流幅值(5.0 A)较无磨球(3.5 A)和氧化铝磨球(3.7 A)情况下都要高, 对于放电过程中的最大电子密度, 添加金属磨球情况下($2.52 \text{ e}^{12}/\text{cm}^3$)较无磨球($5.48 \text{ e}^{11}/\text{cm}^3$)和氧化铝磨球($8.25 \text{ e}^{11}/\text{cm}^3$)情况下都要高, 同时对于像平均功率密度、电子温度和亚稳态粒子密度等参数, 都是以金属磨球情况下的数据最大, 氧化铝磨球情况下次之, 无磨球情况下最小, 可见填充磨球可有提高球磨罐内的放电强度, 填充金属材料磨球时的这种提高更加显著。

关键词

脉冲激励, 填充介质阻挡放电, 数值模拟, 放电特性, 粒子特性

Numerical Simulation of Pulsed Plasma-Assisted Milling Discharge

Cangfeng Ye, Yonggang Wang

School of Mechanical Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai

Received: Jan. 26th, 2023; accepted: Mar. 10th, 2023; published: Mar. 17th, 2023

Abstract

In order to study the discharge mechanism inside the plasma ball milling tank and explore the influence of the material of grinding balls added in the tank on the discharge, a two-dimensional model of the equipment of the ball milling tank was established according to the fluid theory, and

the discharge process in the discharge cavity of the ball milling tank was simulated under three conditions (no filled grinding balls, alumina filled grinding balls and stainless steel filled grinding balls) in a pulse voltage cycle. Various discharge parameters in the simulation results were compared by numerical analysis, and the modeling was embodied by combining the discharge pictures and simulation results pictures of the actual ball milling tank. The results show that the discharge current amplitude (5.0 A) with metal grinding ball is higher than that without grinding ball (3.5 A) and alumina grinding ball (3.7 A), and the maximum electron density in the discharge process with metal grinding ball ($2.52 \times 10^{12}/\text{cm}^3$) is lower than that without grinding ball ($5.48 \times 10^{11}/\text{cm}^3$) and alumina grinding ball (8.25×10^{11}). At the same time, for parameters such as average power density, electron temperature and metastable particle density, the data are the largest in the case of metal grinding ball, followed by alumina grinding ball, and the smallest in the case of no grinding ball. It can be seen that filling grinding ball can improve the discharge intensity in the ball milling tank, and this improvement is more detailed when filling metal grinding ball.

Keywords

Pulse Excitation, Filled Dielectric Barrier Discharge, Numerical Simulation, Discharge Characteristics, Particle Characteristics

Copyright © 2023 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

球磨技术主要是利用球磨介质对粉体材料进行反复长时间的激烈机械冲击碰撞,使粉体在反复冷焊、断裂中实现原子扩散,以获得超细的合金化粉末的一种材料制备方法。然而就目前而言,传统球磨技术在材料的制备上存在低效率、长耗时和高污染等缺点。通过加入叠加辅助物理场可有效实现球磨效率的提高,这是新型球磨技术的主要研究方向[1][2],在球磨设备中加入等离子体生成装置是外加辅助场的有效方式之一,其中填充介质阻挡放电(DBDP)由于其对放电环境条件要求不高的特点,经常被应用生成低温等离子体耦合到球磨设备中。

在含 DBDP 的球磨设备中,常用的磨球材质为氧化锆、氧化铝、玛瑙、不锈钢和碳化钨合金等,填充小球的材质一方面影响了空间电场的极化效果,从而决定了 DBDP 放电的功率;另一方面不同材质小球的耐磨性、稳定性等也决定了其使用寿命,因此对磨球材质的选取,需要一定的实验对比。然而,在实际的实验研究中,很难确定放电参数的特征,并且填充小球本身也为放电诊断的可见性增加了额外的障碍。计算建模可作为一种辅助工具,用于了解放电特性,并帮助以定向方式优化系统,提供更定量的过程参数关系[3]。

文献[4]-[16]是过去一些关于 DBDP 反应器的数值模拟研究。Kang [4]等人在 2003 年设计了铁电填充放电的二维模型,对比了无填充层、单层填充和双层填充的放电效果,但没有考虑任何等离子体化学反应;Van Laer 和 Bogaerts [5]等人在 2016 年设计了纯氮气的填充床 DBD 二维轴对称流体模型,通过两种互补关系的填充结构,强调了“放电通道”和介质接触点处的强放电两个理论;同样, Van Laer 和 Bogaerts [6]等人在 2017 年利用二维流体模型研究了放电间隙尺寸和填充材料的相对介电常数对放电特性的影响,发现过于细窄或宽大的间隙都会抑制放电的进行;Gadkari 和 Sai Gu [7]等人在 2018 年采用了三维包装下的二维模型,研究了无填充、部分填充和全填充情况下 DBDP 放电特性的比较,发现部分填充会增强腔

体内的放电强度, 但过多的填充会挤压腔体内原有的气体体积, 反而对放电不利; Cheng [8]等人在 2020 年用扇形的二维模型研究了在绝缘材质小球填充下的 DBDP 放电中的气体化学反应, 比较了其有无填充下净化 CO_2 的效率, 发现含填充小球时 CO_2 的离解度会更高。

可见建模仿真是分析 DBDP 放电过程的一种有效方法。但上述实验都是针对填充绝缘材质磨球下的 DBDP 模型, 等离子体球磨设备中为了促进材料的充分研磨, 实际运行中添加金属磨球时的放电强度要高于无磨球和含绝缘材质磨球的情况, 但这只是从表面现象观察得到的, 因此本文根据该等离子体球磨罐装置设计了一种二维流体模型, 从具体的放电理论来体现无填充磨球、绝缘材质填充磨球和金属材料填充磨球下的 DBDP 放电特性变化。

2. 球磨放电模型介绍

2.1. 控制方程

描述流体理论的控制方程关键在于求解玻尔兹曼输运方程, 它通过叠加粒子连续性、动量守恒和能量守恒三个条件, 把问题简化为求解一组与时间相关的耦合微分方程, 并用密度、动量和平均能量等物理量来描述等离子体。粒子变化率的连续性方程如下:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_i = S_i$$

其中 n_i 表示等离子体中物质 i 的密度, 它可以是电子、离子、自由基或中性粒子, Γ_i 代表它的通量, S_i 指它的源项, 表示它在整个化学反应或电离反应中的产生或损失, 其表达式如下:

$$S_i = \sum_r c_{i,r} R_{i,r}$$

其中 $c_{i,r}$ 指某一特定反应式 r 中物质 i 的化学计量系数, $R_{i,r}$ 指该反应的反应系数。另外, 方程中的通量项是通过粒子的漂移扩散近似方程求解的, 粒子的通量项由扩散项和漂移项组成, 并由此来描述粒子之间的动量守恒关系, 漂移扩散近似方程如下:

$$\Gamma_i = \pm n_i \mu_i \mathbf{E} - D_i \nabla n_i$$

其中 \mathbf{E} 代表电场效应, μ_i 和 D_i 分别表示物质 i 的迁移率和扩散系数, 当 i 代表中性粒子时, 方程中带电电场效应的迁移项值取 0。漂移扩散现象也会影响到电子能量的分布变化, 包括漂移扩散近似的电子能量密度变化率的最终表达式如下:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_e + \mathbf{E} \cdot e \Gamma_e = R_e$$

其中 n_e 代表电子能量密度, R_e 是指非弹性碰撞导致的能量损失或增益, 即电离以及激发反应和部分化学反应引起的电子能量变化, Γ_e 代表电子能量通量, 其表达式如下:

$$\Gamma_e = -\frac{5}{3} (\mu_e \cdot \mathbf{E}) n_e - \frac{5}{3} \nabla D_e n_e$$

其中 μ_e 和 D_e 分别表示电子的迁移系数和扩散系数, 再通过电子密度和电子能量, 可以计算出电子温度 T_e , 其表达式如下:

$$k_B T_e = \frac{2}{3} \bar{\varepsilon} = \frac{2}{3} \frac{n_e}{n_e}$$

k_B 为玻尔兹曼常数。此外, 还要求解泊松方程以计算自洽电场分布, 使用不同带电等离子体物种的密度作为气隙中的输入, 并求解电介质材料中的零空间电荷:

$$E = -\nabla V$$

$$-\nabla^2 V = 0$$

$$\nabla \cdot (\varepsilon_0 \varepsilon_r E) = -\nabla \cdot (\varepsilon_0 \varepsilon_r \nabla V) = \rho$$

ε_0 是真空的介电常数, ε_r 是材料或气体的相对介电常数, V 是指外加电势, ρ 是指空间电荷密度。由于电子和离子之间的通量差异, 电介质层上的表面电荷积聚使用以下边界条件进行考虑:

$$-n \cdot (D_1 - D_2) = \rho_s$$

$$\frac{d\rho_s}{dt} = n \cdot J_i + n \cdot J_e$$

其中 n 是单位法向, ρ_s 是表面电荷密度, D_1 和 D_2 是边界两侧的位移场, J_i 和 J_e 是壁上的离子和电子电流密度[17]。目前实验所研究的关键数据在于放电的电压电流特性、空间带电粒子的分布特性以及电场畸变对放电过程的影响。

2.2. 几何模型和边界条件

基于 COMSOL Multiphysics 多物理场仿真软件, 对一个同轴 DBDP 等离子体球磨放电装置进行二维流体模型建模, 该二维模型表示了球磨装置内部横向截面的一小部分, 包括内部电极和外部电极边界、聚四氟乙烯层、填充磨球和放电间隙, 选定的二维几何形状有助于减小模型的计算尺寸, 同时还允许分析两个磨球之间区域的放电。如图 1 所示, 该模型应用于具有两个同轴金属圆柱体作为电极的圆柱形球磨反应器。内电极连接到高压交流电源, 外电极接地。内外圆筒半径分别为 1 cm 和 2.55 cm, 在内部阳极铜棒外侧包裹了厚度为 4 mm 的聚四氟乙烯作为阻挡介质(相对介电常数 ε_1 为 2), 放电发生在外电极内壁和聚四氟乙烯层之间的 1.15 cm 区域内。采用部分填充的方法, 在放电区间中加入一层球形填充颗粒, 其对应的绝缘体材质和金属导体材质分别取氧化铝(相对介电常数 ε_2 为 9)和不锈钢合金(相对介电常数 ε_3 为 ∞)。在实际球磨设备运行时, 磨球会随装置的震动而不断改变位置, 但对于放电时间为纳秒级而言, 磨球的位置可以假设为不变, 由于当金属填充物与阴极侧接触会使填充小球变为阴极的一部分, 因此仿真中假设填充小球都位于放电区间的正中间位置。

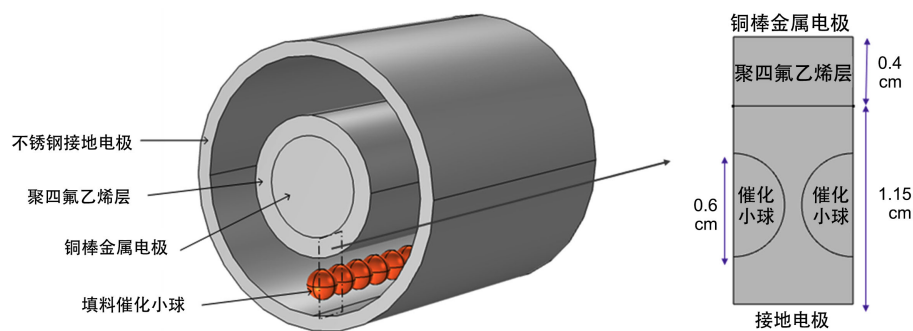


Figure 1. Schematic diagram of model interior of plasma ball milling tank

图 1. 等离子体球磨罐的模型内部示意图

氩气是气体放电中比较稳定的气体之一, 氩具有相对简单的等离子体化学性质和较低的击穿电压, 容易被电离形成稳定均匀的辉光放电, 因此本次实验选用了一套氩气等离子体放电反应组[18], 如表 1 所示, 主要粒子包括氩离子(Ar^+)、亚稳态氩原子(Ar^*)以及各种能量级的氩原子(Ar 、 $\text{Ar}^?$ 、 $\text{Ar}^?$)。在模型中需要对金属材质磨球做特别设置, 具体方法是通过耦合一个静电物理场模块, 设定磨球区域的相对介电

常数为无限大, 磨球边界选用悬浮电位条件使得小球整体保持统一电位, 同时在金属磨球表面设置能产生更高能级二次电子的表面反应。假定气体温度在 300 K 时是恒定的, 选定正离子和电子一开始在空间上是均匀分布的, 且数密度都为 $1 \text{ e}^7 \text{ cm}^{-3}$, 初始平均电子能为 4 eV, 在等离子体放电区间与固体接触层处设置壁面条件, 除了阴极壁以外的壁面上还需考虑表面电荷积累效应。同时在壁上, 会发生氩离子和激发态氩原子的猝灭变为中性氩原子, 其中氩离子撞击壁面变为中性氩原子的同时会发射二次电子。在聚四氟乙烯层壁面上二次电子发射系数取 0.05, 在绝缘氧化铝小球壁面上取 0.06, 在金属小球及阴极板壁面上取 0.08, 二次电子平均能取 4 eV, 金属磨球表面的二次电子平均能取 5 eV, 气体绝对压力取 1000 Pa。内部圆柱电极选用端子电压, 并取脉冲形式的分段函数, 其表达式如下:

$$V_0 = \begin{cases} n \cdot \sin(w_0 \cdot (t - (28k + 1)t_0)) & t \in \{(28k + 1)e^{-7}, (28k + 2)e^{-7}\}, k \in (0, 1, 2, \dots) \\ n \cdot \sin(w_0 \cdot (t - (28k + 11)t_0)) & t \in \{(28k + 12)e^{-7}, (28k + 13)e^{-7}\}, k \in (0, 1, 2, \dots) \\ 0 & t \in \{28ke^{-7}, (28k + 1)e^{-7}\} \cap \{(28k + 13)e^{-7}, (28k + 14)e^{-7}\}, k \in (0, 1, 2, \dots) \\ n & t \in \{(28k + 2)e^{-7}, (28k + 12)e^{-7}\}, k \in (0, 1, 2, \dots) \end{cases}$$

其中 n 为幅值, 仿真中取 6 kV, t_0 为一个上升沿和下降沿的时间, 大小取 100 ns, 即 $1e-7$ s, 整体电压波形为一个 100 ns 的低电平(即 0 V)、100 ns 的正弦上升沿、1 μ s 的高电平(即 6 kV)、100 ns 的正弦下降沿和最后一个 100 ns 的低电平, 仿真的整个过程为 $14e-7$ s, 时间步长取 $1e-8$ s, 从单个周期的仿真来横向比较磨球材质对放电性能的影响。模型边界处采用超细化网格, 并选用边界层属性来细化靠近壁面处的网格, 最后的网格数为 23,078, 计算时间为 45 分钟, 在不影响仿真结果的情况下大大缩短了仿真模型的计算时间。

Table 1. Main reaction process in argon discharge (where T_e is the electron temperature)

表 1. 氩气放电中的主要反应过程(其中 T_e 为电子温度)

Number	Equation	Energy /(eV)	Response ratio
1	$e + Ar \Rightarrow Ar^+ + 2e$	15.7	$k_i = 1.235e^{-7} \exp(-18.687/T_e)$
2	$e + Ar \Rightarrow Ar^* + e$	11.56	$k_i = 3.712e^{-8} \exp(-15.06/T_e)$
3	$e + Ar^* \Rightarrow Ar^+ + 2e$	4.14	$k_i = 2.05e^{-7} \exp(-4.95/T_e)$
4	$e + Ar^* \Rightarrow Ar + e$	-11.56	$k_i = 1.818e^{-9} \exp(-2.14/T_e)$
5	$e + Ar^+ \Rightarrow Ar^r$		$k_r = 2e^{-7}$
6	$e + Ar + Ar^+ \Rightarrow 2Ar^*$		$k_{mp} = 6.2e^{-10}$
7	$Ar + Ar^* \Rightarrow 2Ar$		$k_{2q} = 3e^{-15}$
8	$Ar^* + 2Ar \Rightarrow Ar + 2Ar^q$		$k_{3q} = 1.1e^{-31}$

3. 结果分析

3.1. 仿真结果分析

数值分析的结果比较了无磨球、含氧化铝磨球和含不锈钢磨小球三种情况。三种情况下的输出电流主要差异体现在上升沿期间的放电电流, 电压电流波形如图 2 所示。值得注意的是, 仿真只是模拟装置空间中的一小块部分, 所以整体装置的放电电流应是模拟结果的一定倍数, 这个倍数也体现了装置的长

度。从对比结果可以看出, 三种情况下上升沿期间都有两次幅值一低一高的放电电流, 这与文献[19] [20] [21]中的脉冲激励下的 DBDP 放电电流相似。其中无磨球时的第一次放电电流幅值为 1.79 A, 第二次放电电流幅值为 3.75 A; 含氧化铝填充小球时的第一次幅值为 2.24 A, 第二次为 3.70 A; 含不锈钢填充小球时的第一次幅值为 1.65 A, 第二次幅值为 5.0 A, 下降沿期间的放电电流波形几乎没有较大差异, 它们的电流幅值都在 -3.0 A 左右。

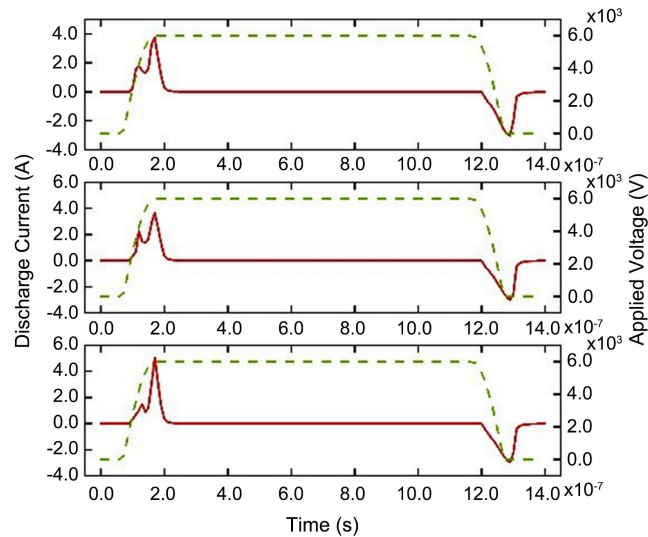


Figure 2. Simulation waveform diagram of discharge current under pulse excitation voltage (from top to bottom, there are no grinding balls, alumina grinding balls and stainless steel grinding balls)
图 2. 脉冲激励电压下的放电电流仿真波形图(从上到下依次为无磨球、含氧化铝磨球和含不锈钢磨球)

在下降沿时期的反向放电是用气体间隙的内部的表面电荷积累效应导致的, 其放电强度主要和脉冲激励电压的幅值和聚四氟乙烯介质层的厚度有关, 因此在三种情况下的反向放电电流波形几乎一致[22]。

结合电压电流波形图, 可以得到两次电流幅值产生的时刻, 以这些时刻为节点从二维模型中可以得到电场强度、电子密度、离子密度和空间电荷密度等参数的仿真结果图。下图中图 3 为电场强度的仿真结果, 图 4 为电子密度仿真结果, 图 5 为离子密度仿真结果, 图 6 为空间电荷密度仿真结果, 这些图中 a、d 分别表示无填充磨球情况下的第一次电流幅值时刻和第二次电流幅值时刻的仿真结果图, b、e 分别表示含氧化铝填充磨球下的第一次和第二次电流幅值时刻的仿真结果图, c、f 则分别表示含不锈钢填充磨球下情况。

对于第一次击穿电流幅值出现的时刻, 从图 3(a)、图 4(a)和图 5(a)可以看出, 在没有填充小球的氩气介质阻挡放电中, 电场、电子密度和离子密度的空间分布表现出低压辉光放电相似的特性, 在阴极到阳极之间观察到三个不同的区域, 即阴极下降、负辉光空间和正柱区域[23]。图 3(a)中, 在击穿点时刻, 电场在瞬时阴极处最大, 在阴极下降区慢慢减小, 从图 4 中可以更明显的看出在阴极附近有一个阴极下降区, 在这里观察到一个低强度的电子密度区。同时, 电子和离子密度在辉光区和阴极下降区相交处附近是最大的, 并且最大离子密度略高于击穿瞬间的最大电子密度, 这种现象也同样出现在包含填充小球的情况下。从图 3(b)、图 3(c)可以看出, 在包含填充小球时, 电场强度会在小球靠近阴极侧表面处形成一个低场强过渡区, 同时使得小球靠近聚四氟乙烯层侧表面处形成一个高场强区域, 并且这个高场强区中含有一个锥形的低场强区。在含不锈钢材质小球时, 这种高低强度的电场过渡区之间的电场强度差值更大。其中不锈钢

小球内部电场强度无限接近于 0, 在图中没有给出颜色表示, 这与导体的内部电场特性相吻合。根据图 4(b)、图 4(c)和图 5(b)、图 5(c)中的电子数密度和离子数密度分布可以看出, 这是一个放电形成的在不断变化的等离子体区域, 像“子弹”一样从聚四氟乙烯层表面向两球间隙中扩展, 这种方式也使得电子汇集从而最大电子密度在量级上要大于无填充小球时。从图 6(a)~(c)可以看出, 从无小球、含氧化铝小球到含金属小球, 空间电荷密度依次升高, 无小球时空间电荷主要位于离阴极板 3 mm 处, 含小球时空间电荷都主要位于尖锥等离子体头部, 这体现了添加小球会使放电空间中的电离程度得到一定的加强。

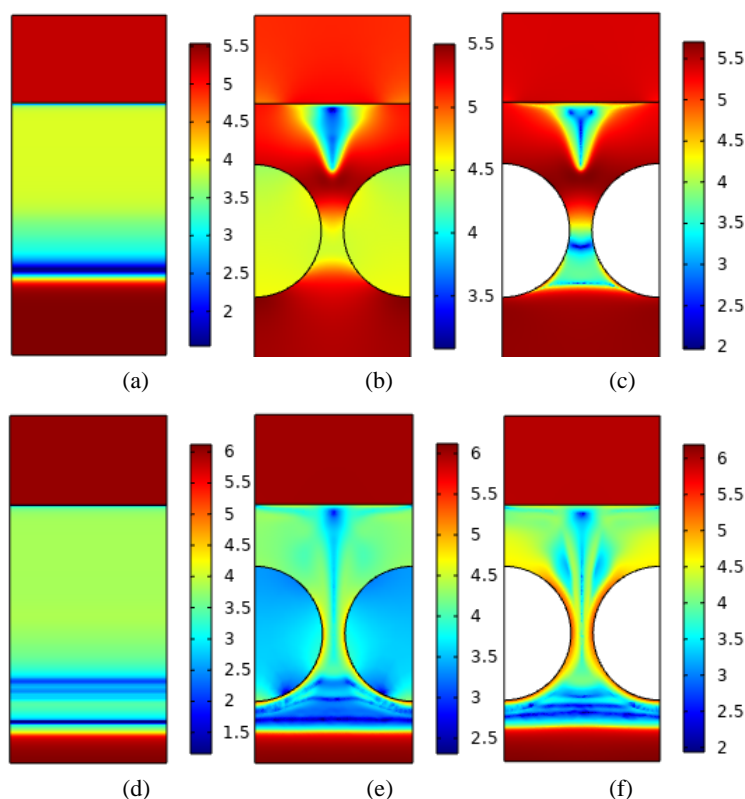
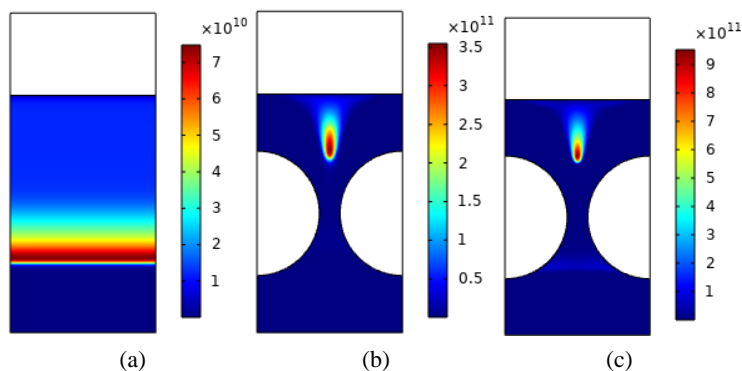


Figure 3. Schematic diagram of the electric field intensity (V/m) at the breakdown moment during the discharge process in three cases during the rising edge (logarithm with the base of 10), in which (a), (b) and (c) are the first discharge moments with lower amplitude, and (d), (e) and (f) are the second discharge moments with higher amplitude

图 3. 三种情况下上升沿期间放电过程中击穿瞬间的电场强度(V/m)示意图(以 10 为底的对数), 其中(a)、(b)和(c)为分别为三种情况下第一次幅值较低的放电瞬间, (d)、(e)和(f)为第二次幅值较高的放电瞬间



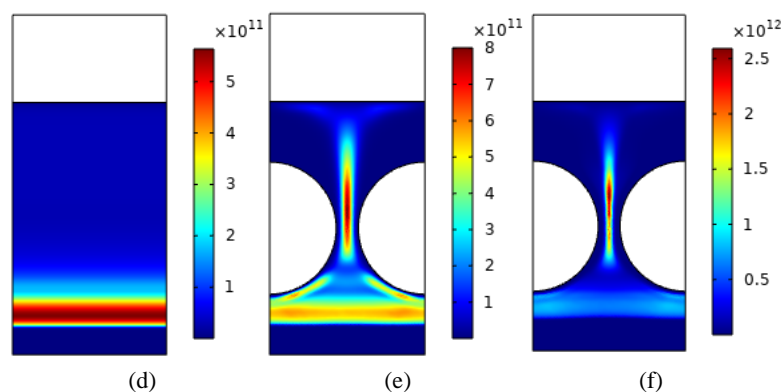


Figure 4. Schematic diagram of electron number density ($1/\text{cm}^3$) at the breakdown moment in the discharge process during the rising edge in three cases, in which (a), (b) and (c) are the first discharge moments with lower amplitude, and (d), (e) and (f) are the second discharge moments with higher amplitude, respectively

图 4. 三种情况下上升沿期间放电过程中击穿瞬间的电子数密度($1/\text{cm}^3$)示意图, 其中(a)、(b)和(c)分别为三种情况下第一次幅值较低的放电瞬间, (d)、(e)和(f)为第二次幅值较高的放电瞬间

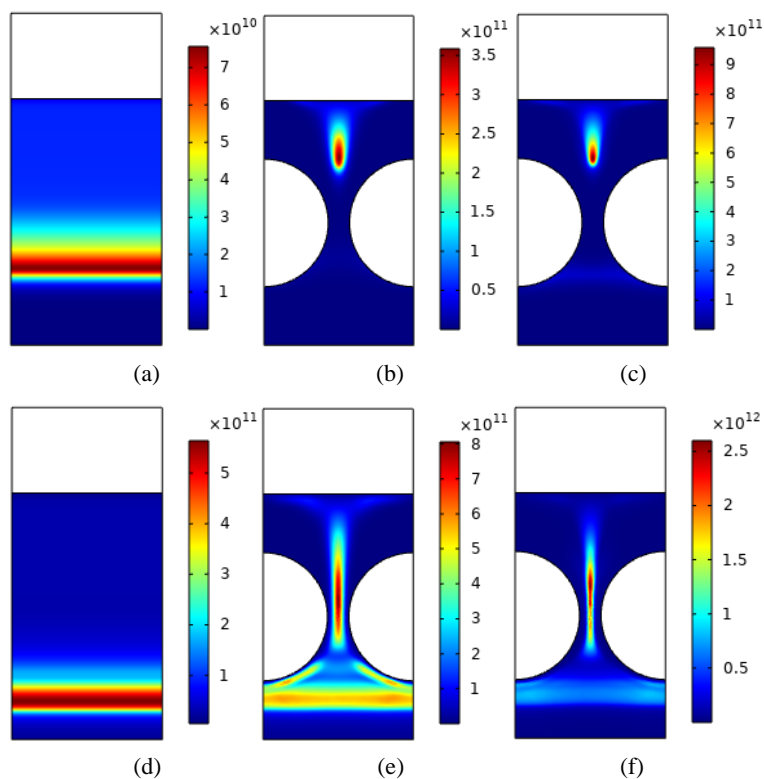


Figure 5. Schematic diagram of ion number density ($1/\text{cm}^3$) at the breakdown moment during discharge in three cases during rising edge, in which (a), (b) and (c) are the first discharge moments with lower amplitude, and (d), (e) and (f) are the second discharge moments with higher amplitude

图 5. 三种情况下上升沿期间放电过程中击穿瞬间的离子数密度($1/\text{cm}^3$)示意图, 其中(a)、(b)和(c)为三种情况下第一次幅值较低的放电瞬间, (d)、(e)和(f)为第二次幅值较高的放电瞬间

对于第二次击穿电流幅值出现的时刻, 从图 4(d)~(f)和图 5(d)~(f)的电子密度和离子密度分布中可以看出, 三种情况下都符合低气压辉光放电的三个不同区域的特征: 阴极下降、负辉光空间和正柱区域。但是第二次放电在位置上较第一次放电要更接近阴极板, 且电子密度和离子密度都高于第一次放电, 加

入绝缘氧化铝小球后, 放电主要集中在两小球中间狭窄区域内, 同时在靠近阴极板附近有较弱的辉光区, 并且在两小球下表面产生两个小分支与中间等离子体组成“Y”型符号。而在加入金属材质小球时, 两小球中间部分的等离子体更加细窄, 并于阴极板附近的弱辉光区形成“T”型符号。当加入氧化铝磨球时, 在磨球下表面会形成一层指向球心的薄电场层。在加入不锈钢磨球时, 电场强度的最大值要略大于氧化铝磨球时, 并且磨球表面的薄电场层蔓延的范围更大, 与空间处的电场强度差异体现得更加明显。这一点在图 6(e)、图 6(f)的空间电荷密度分布中可以明显看出, 在含绝缘氧化铝小球时只在小球下侧表面有较小的电荷分布, 但在金属小球时, 除了右表面的电荷分布以外, 在两小球中间靠上侧的表面以及空间区域中有明显的电荷分布, 这是因为等离子体鞘层的原因[24] [25], 使得在等离子体与壁面接触点会产生垂直于壁面的鞘层电场。鞘层电场的存在使得空间内更多的电子向中间的等离子体区域运动, 使等离子体的电子密度得到升高, 因此可见在含有磨球的模型中, 如果做到合理规划鞘层区域和等离子体区域是可以给放电带来促进效应的[26]。在所建立的模型中, 金属磨球产生的鞘层电场厚度更大, 使得等离子体放电区域更加集中在磨球之间, 同时这也是球磨机研磨材料的高效区域, 所以填充金属磨球可以起到强加放电强度的作用, 从而提高球磨机的生产效率。

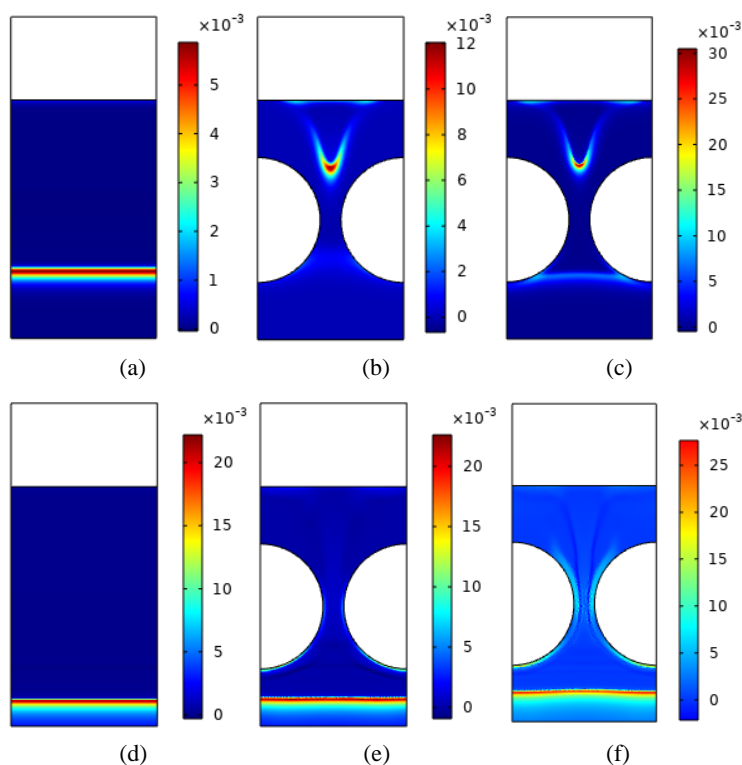


Figure 6. Schematic diagram of the space charge density (C/m^3) at the breakdown moment during the discharge process in three cases during the rising edge, where (a), (b) and (c) are the first discharge moments with lower amplitude, and (d), (e) and (f) are the second discharge moments with higher amplitude
图 6. 三种情况下上升沿期间放电过程中击穿瞬间的空间电荷密度(C/m^3)示意图, 其中(a)、(b)和(c)为第一次幅值较低的放电瞬间, (d)、(e)和(f)为第二次幅值较高的放电瞬间

这样的分布规律也导致了电子和离子密度分布呈现出“Y”和“T”型符号的形状, 单独的小球下表面电荷分布使弱辉光区形成较明显的分支, 而范围更广的电荷分布使中间等离子体区更加狭窄。

另外, 平均电子能量也是决定 DBDP 反应器产生等离子体效率的一个重要因素, 根据平均电子能量可以看出高速电子活跃的范围, 平均电子能量的最大值主要和激励电压的幅值有关, 这个最大值也能在

一定程度上体现出放电的强弱[27]。三种情况下的上升沿放电期间平均电子能量分布如图7所示,可以看出,上升沿放电期间的最大平均电子能量在三种情况下依次升高,在两填充小球的上表面以及在接地边界和催化小球之间的区域内电场强度的增强使得在这些区域中出现更高的电子能量。

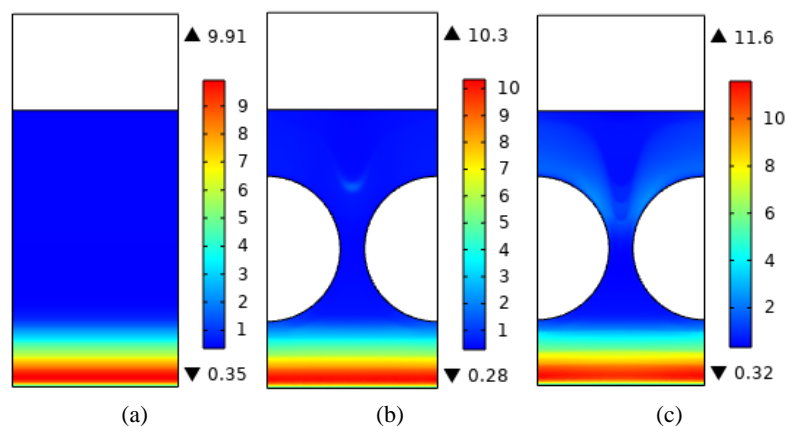


Figure 7. Time-averaged electron energy (eV) spatial distribution during the rising edge of three cases, in which (a), (b) and (c) respectively represent three cases: no grinding balls, alumina grinding balls and stainless steel grinding balls

图7. 三种情况下上升沿期间内的时间平均电子能量(eV)空间分布图,其中(a)、(b)和(c)分别表示无磨球、含氧化铝磨球和含不锈钢金属磨球三种情况

等离子体放电中产生的高能 and 激发状态下的亚稳态粒子也是放电过程中产生的重要粒子[28],可以参与一些特殊反应来生成更多的电子或高能级原子。因此观察三种情况下亚稳态氩原子的密度分布变化是必要的,亚稳态氩原子在三个情况下一个完整放电周期内的平均密度分布如图8所示,可以看出添加金属小球情况下,亚稳态氩原子在一个放电周期内的数密度要比无小球的多个量级,并且亚稳态氩原子分布的主要区域从两极板附近转移到两小球间通道处。

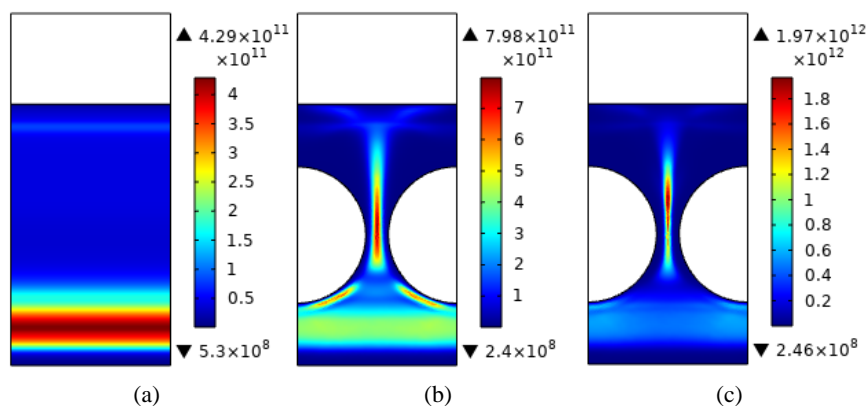


Figure 8. Spatial number density ($1/\text{cm}^3$) distribution of metastable argon atoms in a whole discharge cycle under three conditions, in which (a), (b) and (c) respectively represent three conditions: no grinding ball, grinding ball containing alumina and grinding ball containing stainless steel

图8. 三种情况下一个完整放电周期内的亚稳态氩原子的空间数密度($1/\text{cm}^3$)分布图,其中(a)、(b)和(c)分别表示无磨球、含氧化铝磨球和含不锈钢金属磨球三种情况

除了电子密度和电子能量外,放电功耗也是 DBDP 反应器性能和能量效率的重要指标[29]。通过对系统中耗散的瞬时功率积分可获得一个周期内的平均功率密度,其计算公式如下:

$$\bar{P} = \frac{1}{T} \int_0^T V_{gap}(t) I_{gap}(t) dt$$

其中, V_{gap} 和 I_{gap} 分别表示间隙电压和传导电流[30] [31]。一个电压周期的空间和时间平均耗散功率密度 (W/m^3)、电子密度 ($1/\text{cm}^3$) 和电子能量 (eV) 如表 2 所示, 从表中可以看出, 从无磨球到添加氧化铝磨球再到添加金属磨球, 整个装置的平均功率密度、平均电子密度和平均电子能量都逐一提高, 其中, 添加金属磨球的平均功率密度和平均电子密度较无磨球时都提高到了将近一倍的水平。虽然添加磨球会减少放电空间的体积大小, 但仿真中的部分填料所占的体积对低压情况下的气体密度而言可以忽略。

Table 2. Average power density (W/m^3), electron density (cm^3) and electron energy (eV) in one voltage cycle time
表 2. 一个电压周期时间内的平均功率密度 (W/m^3)、电子密度 (cm^3) 和电子能量 (eV)

deploy	Average power density (W/m^3)	electron density (cm^3)	electron energy (eV)
无磨球	5.66e^5	1.11e^{11}	3.08
氧化铝磨球	9.22e^5	1.64e^{11}	3.41
金属磨球	1.07e^6	2.22e^{11}	3.76

3.2. 实际放电结果分析

图 9 为等离子体球磨罐的实际放电图像, 其中 a 无磨球、b 为填充氧化铝磨球、c 为填充不锈钢磨球。氧化铝和不锈钢磨球分别通过固定在细尼龙棒上, 再将尼龙棒的另一端固定在球磨罐内壁, 使磨球悬浮。由于条件限制, 无法在罐内填充氩气, 并保持气压为 1000 Pa。实验中使用真空泵直接将球磨罐内的气压抽至 200 Pa, 且在三种情况下保持不变。通过自行研制的高压脉冲源驱动球磨罐, 电压幅值为 10 kV, 脉宽为 1 μs , 频率为 3 kHz。如图 9 所示, 三种情况下, 球磨罐内部都呈现稳定的辉光放电。在无磨球情况下, 能看到辉光放电形成的正柱区和靠近阴极附近的负辉区; 当加入氧化铝磨球后, 在磨球之间的区域和磨球另一端区域出现强烈的放电; 与氧化铝相比, 填充不锈钢磨球时, 这些区域的放电强度更高, 并在阴极附近可以看到一层更加明显的负辉光区域。尽管实验条件与仿真不完全相同, 但初步实验结果与仿真较为相似, 可以体现连续周期电压下的放电过程。

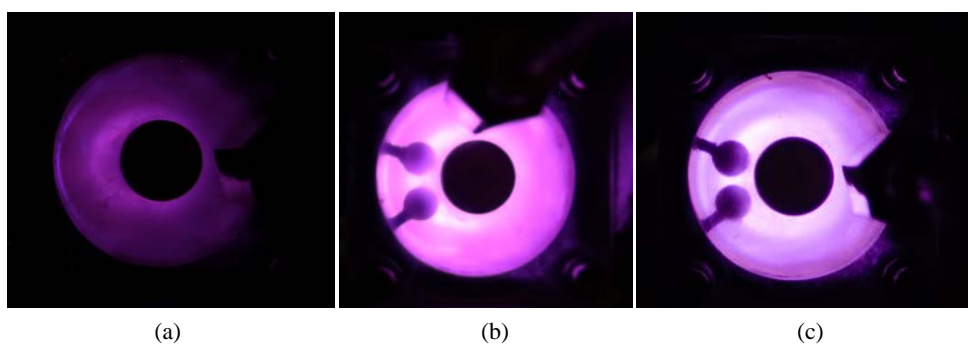


Figure 9. Actual discharge images of prototype ball mill tank: (a). no grinding ball, (b). alumina grinding balls, (c). stainless steel grinding balls

图 9. 原型球磨罐的实际放电图像: (a). 无磨球, (b). 氧化铝磨球, (c). 不锈钢磨球

4. 总结

本文通过模拟一个脉冲激励下的同轴 DBDP 等离子体球磨罐装置, 利用 COMSOL 仿真软件对三种不同情况下的氩气放电进行仿真, 分别是无磨球、添加氧化铝磨球和添加不锈钢金属磨球。并且对仿真

结果进行数值分析, 评估了三种情况下的放电特性和粒子特性, 包括对平均放电功率、电压电流波形、电子离子空间分布以及空间电场电荷分布等参数的对比。验证了:

1) 在无磨球情况下, 在上升沿期间产生幅值一小一大的两次放电电流, 并且在添加氧化铝磨球后, 会使第一次放电电流幅值升高, 在添加不锈钢磨球后, 会使第二次放电电流幅值升高;

2) 在分别两次击穿瞬间的电场分布上显示, 磨球的右表面和两小球之间的通道处电场得到加强, 这个加强在加入不锈钢磨球时更加明显, 这也使得在击穿时的电子密度和离子密度较无磨球时更高;

3) 通过对三种情况下的平均功率密度、平均电子密度和平均电子能量的对比, 可以看出添加小磨球填料可以加强气体空隙中的放电强度, 并且添加不锈钢小球较添加氧化铝小球, 这种加强会更加显著;

4) 从空间电荷密度以及电场强度仿真结果上看, 磨球表面鞘层电场的产生是放电强度提高的重要原因之一。然而本次实验在模拟不锈钢金属导体小球时更加关注了球体悬浮电位的影响, 对于金属内部的自由电荷运动、导体引发的过电流等问题没有涉及, 这些因素对等离子体放电的影响也有待考究, 值得做进一步的研究。

致 谢

感谢我的导师王永刚老师, 以及清华大学付洋洋教授等对该研究中模型设置、网格划分和结果处理等方面问题提出了宝贵的建议和指导。

基金项目

国家自然科学基金青年基金项目(51707122); 国家重点研发计划数字诊疗专项(2019YFC0119100)。

参考文献

- [1] Wang, S., Wang, W., Liu, Z. and Yang, D. (2017) Comparative Research of Plasma-Assisted Milling and Traditional Milling in Synthesizing AlN. *Plasma Science and Technology*, **19**, Article ID: 064005. <https://doi.org/10.1088/2058-6272/aa62f8>
- [2] Shkodich, N.F., Kuskov, K.V., Kovalev, I.D. and Scheck, Y.B. (2019) Nanostructured Cu-Cr-W Pseudoalloys by Combined Use of High-Energy Ball Milling and Spark Plasma Sintering. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, **558**, Article ID: 012047. <https://doi.org/10.1088/1757-899X/558/1/012047>
- [3] Neyts, E.C. and Bogaerts, A. (2014) Understanding Plasma Catalysis through Modelling and Simulation—A Review. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **47**, Article ID: 224010. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/47/22/224010>
- [4] Kang, W.S., Park, J.M., Kim, Y. and Hong, S.H. (2003) Numerical Study on Influences of Barrier Arrangements on Dielectric Barrier Discharge Characteristics. *IEEE Transactions on Plasma Science*, **31**, 504-510. <https://doi.org/10.1109/TPS.2003.815469>
- [5] Van Laer, K. and Bogaerts, A. (2017) Influence of Gap Size and Dielectric Constant of the Packing Material on the Plasma Behaviour in a Packed Bed DBD Reactor: A Fluid Modelling Study. *Plasma Processes and Polymers*, **14**, Article ID: 1600129. <https://doi.org/10.1002/ppap.201600129>
- [6] Gadkari, S., Tu, X. and Gu, S. (2017) Fluid Model for a Partially Packed Dielectric Barrier Discharge Plasma Reactor. *Physics of Plasmas*, **24**, Article ID: 093510. <https://doi.org/10.1063/1.5000523>
- [7] Gadkari, S. and Gu, S. (2018) Influence of Catalyst Packing Configuration on the Discharge Characteristics of Dielectric Barrier Discharge Reactors: A Numerical Investigation. *Physics of Plasmas*, **25**, Article ID: 063513. <https://doi.org/10.1063/1.5030508>
- [8] Cheng, H., Ma, M., Zhang, Y., Liu, D. and Lu, X. (2020) The Plasma Enhanced Surface Reactions in a Packed Bed Dielectric Barrier Discharge Reactor. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **53**, Article ID: 144001. <https://doi.org/10.1088/1361-6463/ab651e>
- [9] Kang, M., Kim, S., Kim, H. and Uhm, H. (2017) Nanosecond Pulse Plasma Dry Reforming of Methane with Carbon Dioxide for Syngas Production. *Applied Catalysis B: Environmental*, **201**, 217-244.
- [10] Zhang, Y.-R., Van Laer, K., Neyts, E.C. and Bogaerts, A. (2016) Can Plasma Be Formed in Catalyst Pores? A Modeling Investigation. *Applied Catalysis B: Environmental*, **185**, 56-67. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2015.12.009>

- [11] Wang, W., Kim, H.H., Van Laer, K. and Bogaerts, A. (2018) Streamer Propagation in a Packed Bed Plasma Reactor for Plasma Catalysis Applications. *Chemical Engineering Journal*, **334**, 2467-2479. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2017.11.139>
- [12] Ren, C., He, X., Jia, P., Wu, K. and Li, X. (2020) Influence of Asymmetric Degree on the Characteristics of a Homogeneous Barrier Discharge Excited by an Asymmetric Sine. *Physics of Plasmas*, **27**, Article ID: 113507. <https://doi.org/10.1063/5.0024907>
- [13] Lymberopoulos, D.P. and Economou, D.J. (1993) Fluid Simulations of Glow Discharges: Effect of Metastable Atoms in Argon. *Journal of Applied Physics*, **73**, 3668-3679. <https://doi.org/10.1063/1.352926>
- [14] Babaeva, N.Y., Tereshonok, D., Naidis, G.V. and Smirnov, B.M. (2016) Streamer Branching on Clusters of Solid Particles in Air and Air Bubbles in Liquids. *Journal of Physics: Conference Series*, **774**, Article ID: 012151. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/774/1/012151>
- [15] Zhang, Y.H., Ning, W.J. and Dai, D. (2018) Numerical Investigation on the Dynamics and Evolution Mechanisms of Multiple-Current-Pulse Behavior in Homogeneous Helium Dielectric-Barrier Discharges at Atmospheric Pressure. *AIP Advances*, **8**, Article ID: 035008. <https://doi.org/10.1063/1.5019815>
- [16] Liu, Q., Liu, Y., Samir, T. and Ma, Z. (2014) Numerical Study of Effect of Secondary Electron Emission on Discharge Characteristics in Low Pressure Capacitive RF Argon Discharge. *Physics of Plasmas*, **21**, Article ID: 083511. <https://doi.org/10.1063/1.4894223>
- [17] Russ, H., Neiger, M. and Lang, J.E. (1999) Simulation of Micro Discharges for the Optimization of Energy Requirements for Removal of NO/Sub x/ from Exhaust Gases. *IEEE Transactions on Plasma Science*, **27**, 38-39. <https://doi.org/10.1109/27.763019>
- [18] Liu, R., Liu, Y., Jia, W. and Zhou, Y. (2017) A Comparative Study on Continuous and Pulsed RF Argon Capacitive Glow Discharges at Low Pressure by Fluid Modeling. *Physics of Plasmas*, **24**, Article ID: 013517. <https://doi.org/10.1063/1.4974762>
- [19] Hu, H., He, F., Zhu, P. and Ouyang, J. (2018) Numerical Study of the Influence of Dielectric Tube on Propagation of Atmospheric Pressure Plasma Jet Based on Coplanar Dielectric Barrier Discharge. *Plasma Science and Technology*, **20**, Article ID: 054010. <https://doi.org/10.1088/2058-6272/aaaad9>
- [20] Jiang, H., Li, G., Liu, H., Zhang, C. and Shao, T. (2021) Numerical Verification of the Two-Spike-Current Behavior in the Initial Stage of Plasma Formation in a Pulsed Surface Dielectric Barrier Discharge. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **54**, Article ID: 345201. <https://doi.org/10.1088/1361-6463/ac0705>
- [21] Kruszelnicki, J., Engeling, K.W., Foster, J.E., Xiong, Z. and Kushner, M.J. (2017) Propagation of Negative Electrical Discharges through 2-Dimensional Packed Bed Reactors. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **50**, Article ID: 025203. <https://doi.org/10.1088/1361-6463/50/2/025203>
- [22] Kanazawa, S., Kogoma, M., Moriwaki, T. and Okazaki, S. (1988) Stable Glow Plasma at Atmospheric Pressure. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **21**, 838-840. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/21/5/028>
- [23] Radu, I., Bartnikas, R. and Wertheimer, M.R. (2003) Frequency and Voltage Dependence of Glow and Pseudoglow Discharges in Helium under Atmospheric Pressure. *IEEE Transactions on Plasma Science*, **31**, 1363-1378. <https://doi.org/10.1109/TPS.2003.820970>
- [24] Robertson, S. (2013) Sheaths in Laboratory and Space Plasmas. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, **55**, Article ID: 093001. <https://doi.org/10.1088/0741-3335/55/9/093001>
- [25] 樊康旗, 李小江, 贾建援, 刘小院. 空间等离子体鞘层的时域特性研究[J]. 电子科技, 2010, 23(11): 119-122.
- [26] Xiong, R., Zhao, P., Wang, H., Zhang, Y. and Jiang, W. (2020) Impact of Different Packing Beads Methods for Streamer Generation and Propagation in Packed-Bed Dielectric Barrier Discharge. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **53**, Article ID: 185202. <https://doi.org/10.1088/1361-6463/ab6ccf>
- [27] Soliman, H.M. and Masoud, M.M. (1994) Plasma Sheath Axial Phase Dynamics in Coaxial Device. *Physica Scripta*, **50**, 406-408. <https://doi.org/10.1088/0031-8949/50/4/012>
- [28] Storozhev, D.A. and Kuratov, S.E. (2017) Numerical Simulation of the Kinetics of Dissociation and Ionization of Molecular Hydrogen in the Penning Discharge Plasma with the Use of the Reduced Kinetic Model. *Journal of Physics: Conference Series*, **815**, Article ID: 012002. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/815/1/012002>
- [29] Press, A.F., Goeckner, M.J. and Overzet, L.J. (2019) Sub-rf Period Electrical Characterization of a Pulsed Capacitively Coupled Argon Plasma. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, **37**, Article ID: 062926. <https://doi.org/10.1116/1.5132753>
- [30] Zhang, Y.T., Wang, D.Z. and Kong, M.G. (2005) Two-Dimensional Simulation of a Low-Current Dielectric Barrier Discharge in Atmospheric Helium. *Journal of Applied Physics*, **98**, Article ID: 113308. <https://doi.org/10.1063/1.2140890>

- [31] Wang, W.Z., Butterworth, T. and Bogaerts, A. (2021) Plasma Propagation in a Single Bead DBD Reactor at Different Dielectric Constants: Insights from Fluid Modelling. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **54**, Article ID: 214004. <https://doi.org/10.1088/1361-6463/abe8ff>