

О.В. СОЛОМЕНКО, О.В. ПРИСЯЖНА, В.Я. ЧЕРНЯК, В.В. ЛЕНДЕЛ,
Д.К. ГАМАЗІН, Є.В. МАРТИШ, Д.О. КАЛУСТОВА, І.В. ПРИСЯЖНЕВИЧ

Київський національний університет імені Тараса Шевченка
(Вул. Володимирська, 64/13, Київ 01601; e-mail: oksana_solomenko@ukr.net)

ДОСЛІДЖЕННЯ МІКРОРОЗРЯДНОЇ СИСТЕМИ З ТАНГЕНЦІАЛЬНОЮ ПОДАЧЕЮ ГАЗУ

УДК 533.9; 537.52

Проведено дослідження мікророзрядної системи за використання різних плазмотворюючих газів. Представлено результати по вимірних вольт-амперних характеристиках та емісійній спектроскопії. Визначено параметри заселення збуджених коливальних та обертальних рівнів компонент плазми.

Ключові слова: мікророзряд, вихровий потік, оптична емісійна спектроскопія.

1. Вступ

Одним з найбільш перспективних напрямків у нерівноважній плазмохімії сьогодні можна вважати генерацію мікророзрядної плазми. Даній тематиці присвячено велика кількість статей [1], адже застосування названої вище плазми є перспективним при низькотемпературній обробці матеріалів. Вже розроблено ряд конструкцій, що призначені для обробки ротової порожнини (відбілювання зубів [2], покращання щільності пломбуєчого матеріалу та лікування ротової порожнини [3–5], тощо). Також є експериментальні дані, що вказують на можливість успішного використання плазми для обробки живих тканин з метою деактивації мікроорганізмів [6], для стерилізації [7], використовують у боротьбі з раковими утвореннями [8], для зупинки кровотеч (як коагулятори крові), загоєння ран, тощо. Актуальною задачею сьогодні є обробка поверхні мікророзрядами чи нанесення на останню плівки з необхідними властивостями, такими як змочування [9] та ін. Також мікророзряди активно використовуються для задач напрацювання С–С та С–Н зв'язків та конверсії C_2H_8 у мікрореакторах [10, 11]. Все це можливо за рахунок того, що малопотужні мікророзряди (≤ 10 Вт) дають можливість генерувати плазмові потоки з низькою енергією та високим ступенем нерівноважності. Завдяки цим властивостям стає можливим використання таких розрядів як джерел хімічно

активних компонент. Показано, що використання плазми у комплексі з відомими медичними методами суттєво підвищує ефективність останніх. А взаємодія активних покриттів як джерела частинок на стінках мікророзрядних конструкцій в поєднанні з додатковою активацією поверхні плазмою може бути використано для отримання хімічних продуктів енергоефективним способом [10].

У медицині інтерес до різноманітних мікроплазмових систем забезпечується їхньою здатністю генерувати низькотемпературну нерівноважну плазму атмосферного тиску. Температура електронів у такій плазмі (кілька електронвольт), як правило, є достатньою для ініціації багатьох хімічних реакцій — модифікації ДНК, білків і клітинних мембран; напрацювання радикалів [10]. У той самий час температура важкої компоненти (іонів та нейтралів) близька до кімнатної, тому процес плазмової обробки не руйнує чутливі до температури біологічні тканини. Процеси дезінфекції, дезактивації та стерилізації за участю активних частинок плазми (радикалів, заряджених частинок, збуджених частинок, УФ випромінювання) відбуваються досить швидко. Експерименти показали, що для нейтралізації різних типів вірусів і бактерій на поверхні та у водних розчинах потрібно від кількох секунд до декількох хвилин відповідної плазмової обробки [12].

Сьогодні існує два основних підходи у використанні низькотемпературної плазми атмосферного тиску для дезінфекції, знезараження та стерилізації. У першому підході генерація плазми відбувається у розрядному проміжку, після чого утворені продукти виносяться газовим потоком до обро-

© О.В. СОЛОМЕНКО, О.В. ПРИСЯЖНА,
В.Я. ЧЕРНЯК, В.В. ЛЕНДЕЛ, Д.К. ГАМАЗІН,
Є.В. МАРТИШ, Д.О. КАЛУСТОВА,
І.В. ПРИСЯЖНЕВИЧ, 2016

блюваних біологічних тканин. Більшість заряджених частинок за межами області генерації плазми зникає, тому варто очікувати, що терапевтичний ефект, ймовірно, забезпечується існуючими тривалий час нейтральними частинками і радикалами. Застосування описаних джерел плазми забезпечує точкову дію на живу поверхню.

У другому підході плазма генерується у прямому контакті з живою тканиною. В такій системі одним із електродів виступає безпосередньо біологічна тканина [13]. Цей підхід принципово відрізняється від попереднього. По-перше, плазма безпосередньо торкається до біологічної поверхні, що забезпечує можливість зарядки поверхні і доставку іонів високих енергій. Інша особливість полягає в тому, що утворена на поверхні величина електричного поля [14] на багато порядків більша, ніж за непрямого контакту плазми. Таким чином, залежно від конкретного завдання використовують той, чи інший підхід. Зазвичай, використовують розбавлені гази, такі як гелій чи аргон, щоб уникнути нестійкості плазми, при цьому розряд легується кількома відсотками молекулярних газів, таких як кисень [14].

Сьогодні реалізовано досить багато пристроїв для генерації мікроплазмових факелів, які базуються на різних типах розрядів: бар'єрному, коронному, жевріючому, ВЧ, тощо. Але більшість з них працюють при великих напругах, що відповідають декільком кВ, а це досить багато у випадках медичного застосування. Внаслідок цього зменшується безпечність плазмових систем під час роботи з живими біологічними об'єктами. Тому одними з найбільш перспективних генераторів низьковольтних плазмових факелів, для застосування їх в біомедицині, по праву, можна вважати мікророзряди, які, залежно від робочого газу, можуть працювати за суттєво менших напругах живлення розряду ($U \approx 300$ В).

У даній роботі представлено результати досліджень оригінальної мікророзрядної плазмової системи з вихровим потоком. Застосування вихрового потоку може збільшити час роботи системи за рахунок зменшення фактора руйнації електродів під впливом плазми та стабілізувати плазмовий факел у просторі. Також, при суттєвому зменшенні геометричних розмірів електродної системи можна очікувати температуру важкої компоненти плазми, характерну для жевріючого розряду.

2. Опис експериментальної установки

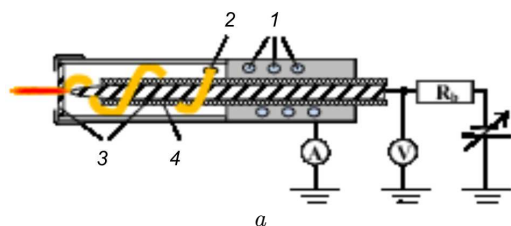
На рис. 1, а наведено схему експериментальної установки, за допомогою якої проводилися вимірювання оптичних параметрів плазми генерованої мікророзрядним факелом (рис. 2 і 3) та електричних параметрів мікророзряду (рис. 5 і 6). Конструкція генератора мікророзряду (рис. 1, б) являла собою аксіально-симетричну систему, в якій внутрішній електрод мав водяне охолодження (1). Вказаний електрод був відокремлений від корпусу системи за допомогою діелектричної трубки (4). Тангенційно до бічної поверхні через отвір (2) вводився робочий газ (повітря, Ar чи CO₂), який видувався із отвору d (0,5 мм, 1,0 мм, 1,5 мм або 2,0 мм) за потоку G (1,5 л/хв або 3,0 л/хв). Мідні електроди (3) (внутрішній у вигляді дротини діаметром 1 мм і зовнішній плоский електрод з товщиною 1 мм) знаходилися на відстані 1 мм один від одного. Як джерело живлення використовувався блок живлення БП-138 із позитивним значенням високого потенціалу або БП-100 із негативним значенням високого потенціалу. Зовнішній електрод завжди був заземлений.

3. Результати

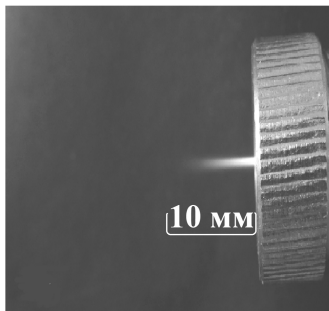
В роботі проводилися вимірювання вольт-амперних характеристик описаної конструкції в діапазоні струмів від 2 до 60 мА та досліджувалися параметри мікророзрядної плазми.

На рис. 5 та рис. 6 наведені результати вимірних вольт-амперних характеристик мікророзряду за різних полярностей високовольтного електрода та для різних діаметрів вихідного отвору d , з якого видувався мікророзрядний факел, при цьому $G = 1,5$ л/хв. Крайні точки на осі ординат представлених ВАХ відповідають напругам пробою. Варто відзначити, що зі збільшенням діаметра вихідного отвору мікроплазмовий факел ставав коротшим. Було виявлено, що за позитивного значення потенціалу високовольтного електрода напруги горіння розряду мали більші значення ніж за негативного.

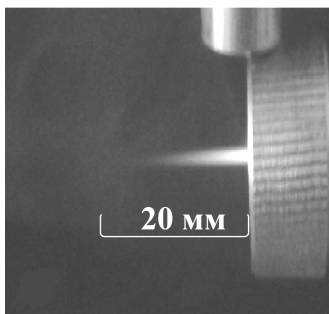
Як видно з представлених вольт-амперних характеристик, падіння напруги на розряді зменшуються зі зменшенням d . На рис. 5 та 6 можна спостерігати зменшення напруги горіння розряду із зміною газу: CO₂ → повітря → Ar. Та-



а



б



в

Рис. 1. Схематичне зображення конструкції генератора мікророзряду (а) та фотографії (б, в, г) зібраної конструкції за використання: в – повітря, г – CO₂ як робочого газу

кож можна помітити, що вольт-амперні характеристики мікророзряду нагадують вигляд вольт-амперних характеристик газового розряду низького тиску, що мають області нормального жевріючого розряду (починаючи з ≈ 10 мА і більше)

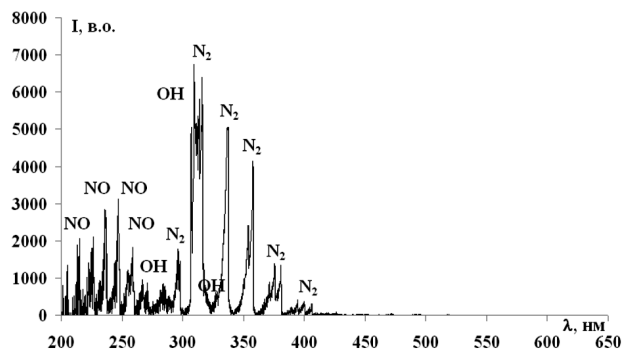


Рис. 2. Типовий емісійний спектр плазми мікророзряду в діапазоні довжин хвиль 200–650 нм. Струм розряду $I = 30$ мА, $U = 1200$ – 1300 В, $G(\text{air}) = 3$ л/хв, діаметр вихідного отвору $d = 2$ мм, міжелектродна відстань $l = 1$ мм, $h = 2,5$ мм

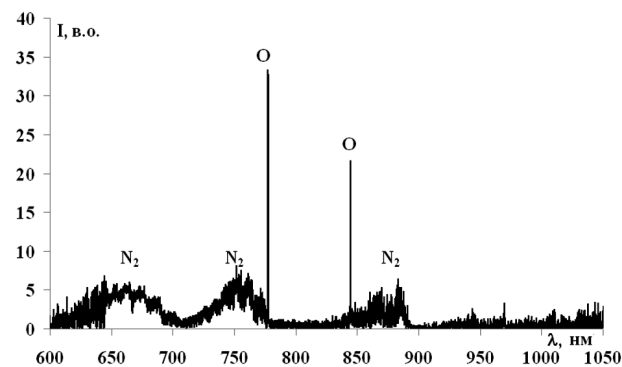


Рис. 3. Типовий емісійний спектр плазми мікророзряду в діапазоні довжин хвиль 600–1050 нм. Струм розряду $I = 30$ мА, $U = 1200$ – 1300 В, $G(\text{air}) = 3$ л/хв, діаметр вихідного отвору $d = 2$ мм, міжелектродна відстань $l = 1$ мм, $h = 2,5$ мм

та за менших значень струму крива проходить через область, що нагадує піднормальний жевріючий розряд.

Для дослідження поведінки розряду при різних режимах у роботі було застосовано фото та відео реєстрацію. Завдяки цьому було помічено, що зі зміною газу (CO₂ → повітря → Ar) мікророзрядний факел ставав коротшим (рис. 1, г, в). У випадку використання Ar факел не перевищував 2–3 мм. З урахуванням того, що електрод з отвором притискається за допомогою спеціальної насадки товщиною 2,0 мм, то вимірювання спектра мікророзрядної плазми проводилося вздовж плазмового факела починаючи з відстані 2,5 мм.

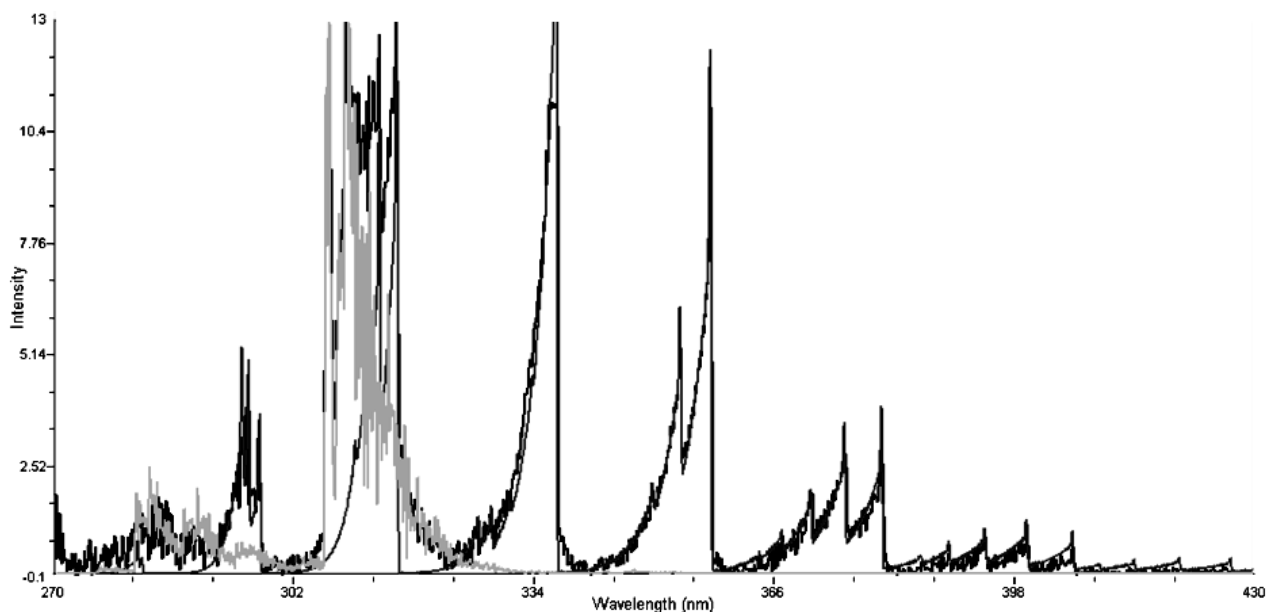


Рис. 4. Приклади порівняння експерименту (чорний спектр) з моделюванням азоту $N_2(C-B)$ (сірий спектр) та гідроксиду $OH(A-X)$ (світло-сірий спектр) при $T_r^*(N_2) = T_r^*(OH) = 2500 \pm 500$ К, $T_v^*(N_2) = T_v^*(OH) = 4500 \pm 500$ К. Струм розряду $I = 30$ мА, $U = 1200-1300$ В, $G(\text{air}) = 3$ л/хв, діаметр вихідного отвору $d = 2$ мм, міжелектродна відстань $l = 1$ мм, $h = 2,5$ мм

Для дослідження компонентного складу та параметрів плазми було застосовано емісійну спектроскопію плазми. Спектри реєструвалися за допомогою спектрометра S-150-2-3648 USB на базі ПЗЗ-лінійки Solar III, що працює в діапазоні довжин хвиль 200–1080 нм та має трикутну апаратну функцію з півшириною 0,2 нм в діапазоні довжин хвиль 200–650 нм та 0,3 нм в діапазоні 650–1080 нм. Реєструвалося випромінювання по променю зору перпендикулярному до осі плазмового факела.

На рис. 2 та 3 наведено типовий емісійний спектр плазми мікророзряду на відстані $h = 2,5$ мм від поверхні зовнішнього електрода. Спектр розглянутий для випадку, коли струм розряду $I = 30$ мА, при цьому напруга – $U = 1200-1300$ В, діаметр вихідного отвору $d = 2$ мм, міжелектродна відстань $l = 1$ мм. Швидкість подачі робочого газу (повітря) становила $G(\text{air}) = 3$ л/хв. За таких параметрів довжина видимої частини плазмового факела мікророзряду досягала 8 мм. Як можна бачити з рисунків, основна частка випромінювання відповідає УФ діапазону: частина спектра в діапазоні довжин хвиль 200–430 нм (рис. 2) значно інтенсив-

ніша, ніж частина спектра в діапазоні 600–1000 нм (рис. 3).

Як видно, спектри є складними та мультикомпонентними, але містять виключно компоненти робочого газу, а саме: атомарні мультиплети кисню (O: 777 нм, 844 нм), а також молекулярні смуги гідроксиду OH, NO та смуги першої (рис. 3) і другої (рис. 2) позитивної системи азоту N_2 . Варто відзначити, що вздовж факела зменшувалася інтенсивність випромінювання емісійного спектра, форма спектра в межах похибки залишалася сталою, що свідчить про те, що компонентний склад та параметри плазми в межах похибки залишалися без змін вздовж плазмового факела.

Характерні температури, що відповідають збудженим станам атомарних та молекулярних (температура збуджених коливальних T_v^* та обертальних T_r^* рівнів) компонент були визначені різними методами емісійної спектроскопії. Основні припущення, які використано при симуляції спектрів випромінювання молекул кодом SpecAir [15]:

- розподіли по обертальних та коливальних рівнях збуджених та основного електронних рівнів однакові;

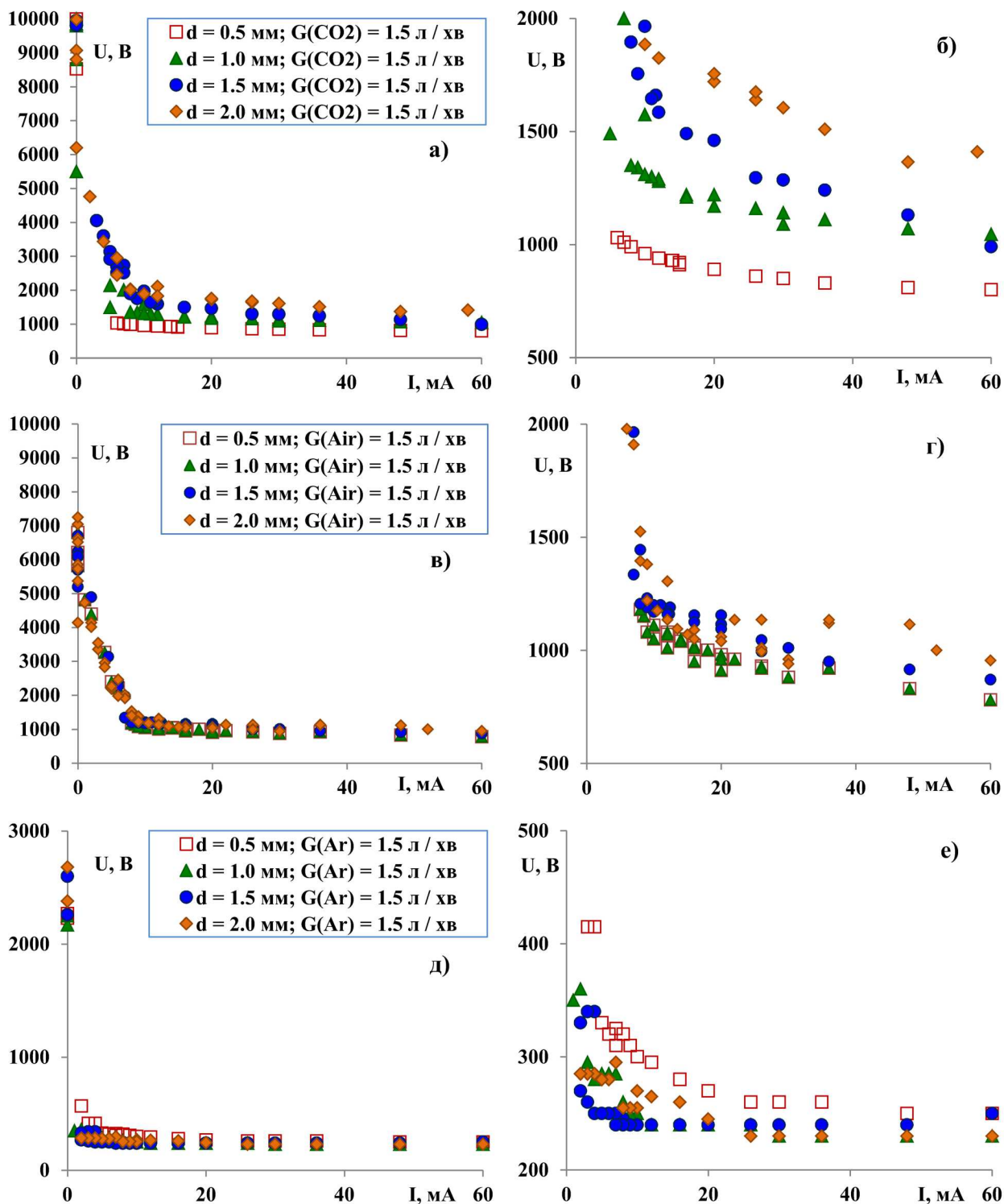


Рис. 5. Виміряні вольт-амперні характеристики в потоках $G = 1,5$ л/хв: CO₂ (а, б), повітря (в, г) та Ar (д, е) за використання різних d та позитивній полярності високовольного електрода

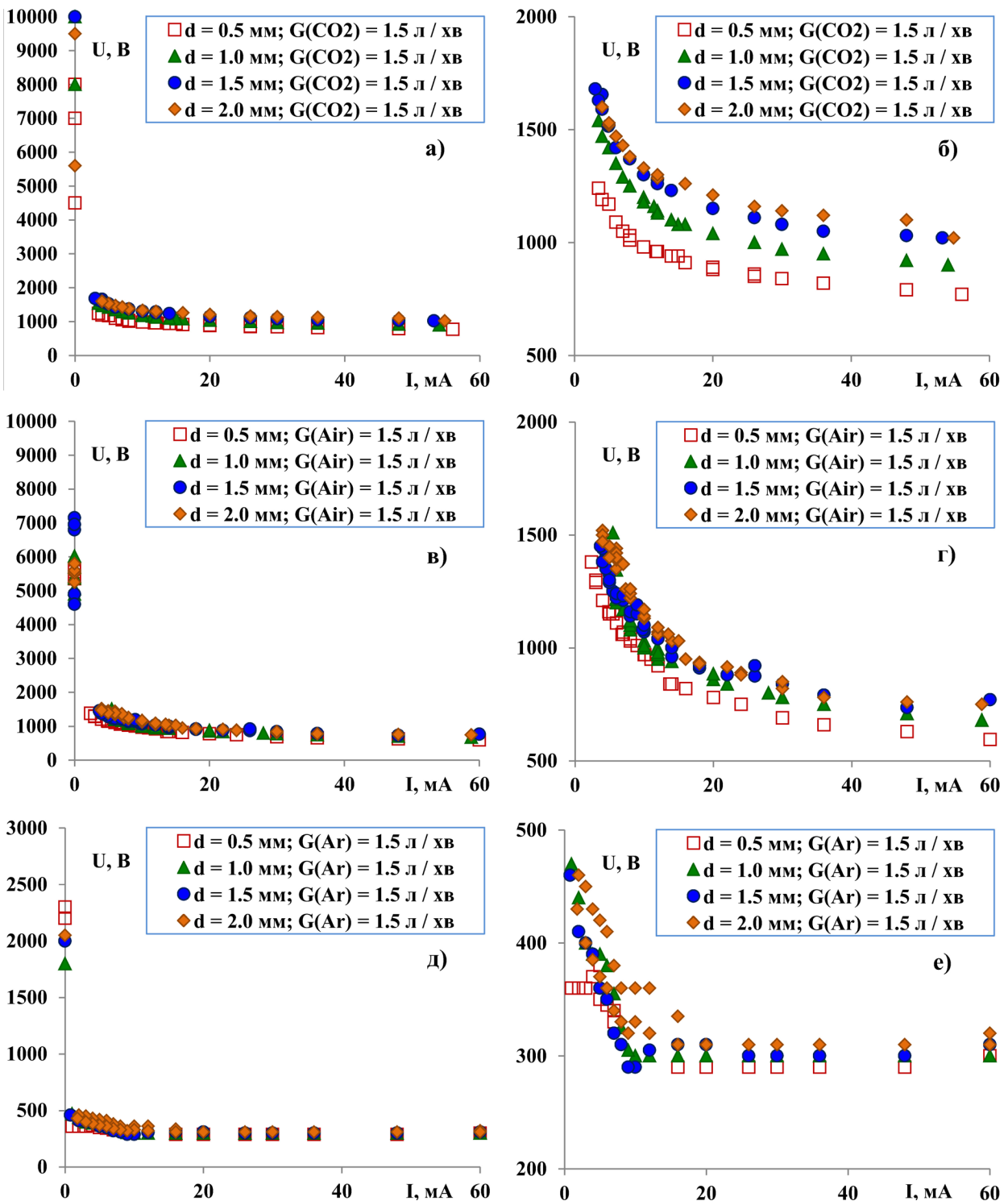


Рис. 6. Виміряні вольт-амперні характеристики в потоках $G = 1,5$ л/хв: CO_2 (а, б), повітря (в, г) та Ar (д, е) за використання різних d та негативній полярності високовольтного електрода

- розподіли по обергальних та коливальних рівнях відповідають больцманівським розподілам з відповідними T_v^* і T_r^* [15];

- обергальна температура відповідає температурі газу.

Особлива увага приділялась молекулярним смугам, які вільні від перенакладання, що відповідають переходам зі збудженого електронного стану в основний, для яких (ОН) у плазмі газового розряду атмосферного тиску вже показано існування больцманівського розподілу по обергальним рівням і близькість T_r^* збудженого електронного рівня до температури газу [16] і для яких суттєвий внесок у збудження спектра прямого електронного удару [17].

Визначались температури заселення збуджених коливальних та обергальних рівнів молекул шляхом порівняння експериментально виміряних спектрів з нерозділеною обергальною структурою смуг та синтезованих кодом Spasair спектрів випромінювання молекул азоту (N_2) та гідроксиду (ОН). Приклади порівняння експерименту (чорний спектр) з моделюванням N_2 ($C^3P_u - V^3P_g$) (сірий спектр) та ОН ($A^2\Sigma^+ - X^2\Pi_i$) (світло-сірий спектр) приведено на рис. 4. Температури, застосовані для моделювання, однакові для обох компонент і становлять: $T_r^*(N_2) = T_r^*(ОН) = 2500 \pm 500$ К, $T_v^*(N_2) = T_v^*(ОН) = 4500 \pm 500$ К.

Через те, що на спектрах вдалося зареєструвати лише два високоінтенсивні мультиплети атомарного кисню, а саме 777 та 844 нм, визначити температуру заселеності збуджених електронних рівнів ($T_e^*(O)$) не вдалося, оскільки ці мультиплети близькі за значенням верхніх енергетичних рівнів.

Тож у роботі було показано, що

- на напругу розряду впливає природа плазмозоутворюючого газу в досліджуваному діапазоні струмів: із зміною газу ($CO_2 \rightarrow Air \rightarrow Ar$) напруга горіння розряду зменшується;

- швидкість потоку газу слабо впливає на напругу горіння розряду в досліджуваному діапазоні струмів;

- із збільшенням діаметра отвору у вихідному електроді напруга горіння розряду також збільшувалася;

- із зміною газу ($CO_2 \rightarrow Air \rightarrow Ar$) довжина плазмозового факела зменшується;

- плазма мікророзряду є неізотермічною і її компонентний склад залишається незмінним вздовж факела. При збільшенні відстані вздовж факела інтенсивність випромінювання зменшується.

1. K.H. Becker, K.H. Schoenbach, J.G. Eden. Microplasmas and applications. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39**, R55 (2006) [DOI: 10.1088/0022-3727/39/3/R01].
2. S.H. Nam, H.W. Lee, S.H. Cho *et al.* High-efficiency tooth bleaching using non-thermal atmospheric pressure plasma with low concentration of hydrogen peroxide. *J. Appl. Oral Sci.: Revista FOB* **21(3)**, 265 (2013) [DOI: 10.1590/1679-775720130016].
3. A.C. Ritts, H. Li, Q. Yu *et al.* Dentin surface treatment using a non-thermal argon plasma brush for interfacial bonding improvement in composite restoration. *Eur. J. Oral Sci.* **118(5)**, 510 (2010) [DOI: 10.1111/j.1600-0722.2010.00761.x].
4. G.C. Kim, H.W. Lee, J.H. Byun *et al.* Dental applications of low-temperature nonthermal plasmas. *Plasma Process Polym.* **10**, 199 (2013) [DOI: 10.1002/ppap.201200065].
5. Y. Liang, Y. Li, K. Sun *et al.* Plasma thorns: Atmospheric pressure non-thermal plasma source for dentistry applications. *Plasma Process Polym.* **12**, 1069 (2015) [DOI: 10.1002/ppap.201400185].
6. J. Mizeraczyk, M. Dors, M. Jasiński *et al.* Atmospheric pressure low-power microwave microplasma source for deactivation of microorganisms. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **61**, 24309 (2013) [DOI: 10.1051/epjap/2012120405].
7. H.S. Uhm, E.H. Choi, G.S. Cho. Sterilization of microbes by using various plasma jets. *J. Korean Phys. Soc.* **60**, 897 (2012) [DOI: 10.3938/jkps.60.897].
8. A.A. Fridman, G. Friedman. *Plasma Medicine* (Wiley, 2013).
9. R.F. Caetano, Y.D.U. Hoyer, C. Oliveira *et al.* Study of microhollow cathode glow discharge to improve the wettability on surface of polypropylene film. *Am. J. Cond. Matter Phys.* **4(3A)**, 32 (2014) [DOI: 10.5923/s.ajcmp.201401.05].
10. A. Agilar, *PhD thesis* (2009).
11. T. Nozaki, K. Okazaki. Plasma enhanced C_1 -chemistry: towards greener methane conversion. *Green Process Synth.* **1**, 517 (2012) [DOI: 10.1515/gps-2012-0074].
12. J.A. Daseco, K.G. Pabellina, Ma.A.T. Siringan *et al.* Comparative study on the use of different metal electrodes in low-pressure glow discharge plasma sterilization. *Plasma Medicine* **4**, 1 (2014) [DOI: 10.1615/PlasmaMed.2014011720].
13. N.Y. Babaeva, M.J. Kushner. Intracellular electric fields produced by dielectric barrier discharge treatment of skin. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43**, 185206 (2010) [DOI: 10.1088/0022-3727/43/18/185206].
14. N.Yu. Babaeva, M.J. Kushner. Reactive fluxes from atmospheric pressure plasmas for deactivation of bacteria

- on rough surfaces and suspended in air. *Proc. 20th Int. Symp. Plasma Chemistry* (2011).
15. C.O. Laux. *Radiation and Nonequilibrium Collisional-Radiative Models* (Rhode-Saint-Genese, 2002).
16. V.I. Arkhipenko, A.A. Kirilov, Y.A. Safronau *et al.* DC atmospheric pressure glow microdischarges in the current range from microamps up to amperes. *Eur. Phys. J. D* **60**, 455 (2010) [DOI: 10.1140/epjd/e2010-00266-5].
17. V.N. Ochkin. *Spectroscopy of low temperature plasma* (Fizmatlit, 2010) [in Russian].

Одержано 20.11.15

*O. Solomenko, O.V. Prysiazhna,
V. Ya. Chernyak, V.V. Lendiel, D.K. Hamazin,
Eu. V. Martysh, D.O. Kalustova, I.V. Prysiazhnevych*

INVESTIGATION OF A MICRODISCHARGE SYSTEM WITH THE VORTEX GAS FLOW

S u m m a r y

A microdischarge system has been studied with the use of various plasma gases. The results of emission spectroscopy and measurements of the current-voltage characteristics are reported. The discharge parameters for the vibrational and rotational levels of plasma components are determined.