



国家科学技术学术著作出版基金资助出版

大气压非平衡 等离子体射流 I 物理基础

ATMOSPHERIC PRESSURE NONEQUILIBRIUM PLASMA JET
I FUNDAMENTALS OF PHYSICS

卢新培 著



华中科技大学出版社

<http://www.hustp.com>



国家科学技术学术著作出版基金资助出版

大气压非平衡 等离子体射流

I 物理基础

ATMOSPHERIC PRESSURE NONEQUILIBRIUM PLASMA JET
I FUNDAMENTALS OF PHYSICS

卢新培 著



华中科技大学出版社

<http://www.hustp.com>

中国·武汉

内 容 简 介

大气压非平衡等离子体射流(N-APPJ)是在开放空间而不是在两个电极间隙之间产生大气压非平衡等离子体,这就使得被处理对象不受空间尺寸的限制,从而大大拓展了其应用范围。本书介绍了我们针对不同应用研制的多种惰性气体和空气 N-APPJ,并系统阐述了各种实验参数对 N-APPJ 的影响,以及所观测到的诸多新现象。本书还对大气压放电所发射的 VUV 光谱测量结果及 N-APPJ 推进可重复性研究成果进行了介绍。本书最后对多种大气压等离子体诊断方法进行了详细的介绍。

图书在版编目(CIP)数据

大气压非平衡等离子体射流. I, 物理基础/卢新培著. —武汉:华中科技大学出版社, 2021. 11

ISBN 978-7-5680-6900-7

I. ①大… II. ①卢… III. ①非平衡等离子体-等离子体射流-物理学-研究 IV. ①O53

中国版本图书馆 CIP 数据核字(2021)第 097914 号

大气压非平衡等离子体射流: I. 物理基础

卢新培 著

Daqiya Feipingheng Dengliziti Sheliu; I. Wuli Jichu

策划编辑: 徐晓琦

责任编辑: 徐晓琦 曾小玲

装帧设计: 原色设计

责任校对: 刘 竣

责任监印: 周治超

出版发行: 华中科技大学出版社(中国·武汉)

电话: (027)81321913

武汉市东湖新技术开发区华工科技园

邮编: 430223

录 排: 武汉市洪山区佳年华文印部

印 刷: 湖北新华印务有限公司

开 本: 710mm×1000mm 1/16

印 张: 27

字 数: 452 千字

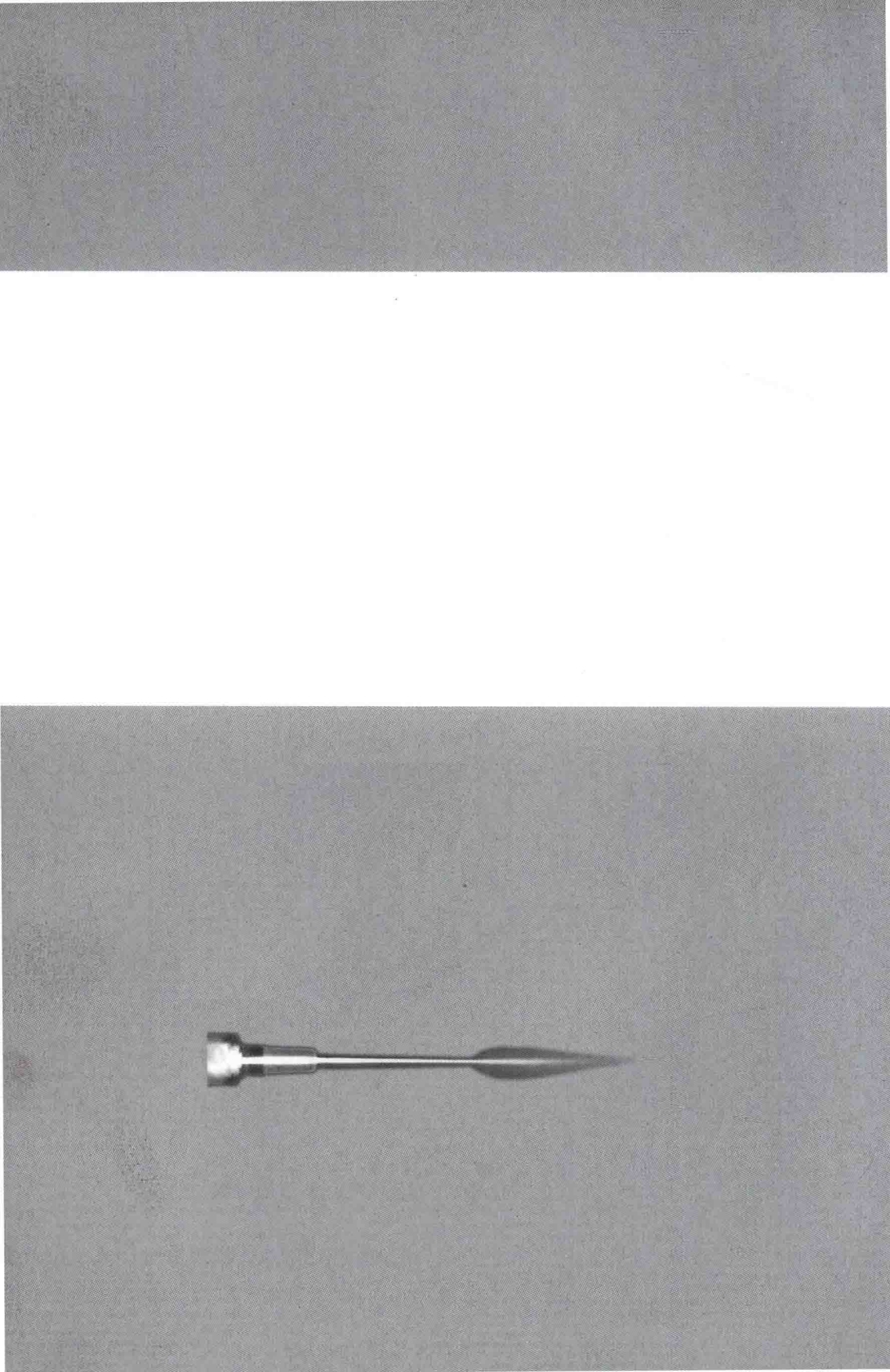
版 次: 2021 年 11 月第 1 版第 1 次印刷

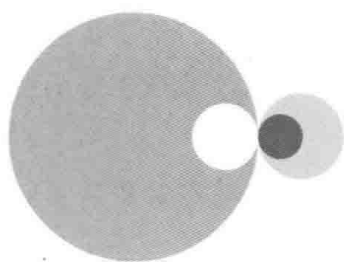
定 价: 228.00 元



华中出版

本书若有印装质量问题, 请向出版社营销中心调换
全国免费服务热线: 400-6679-118 竭诚为您服务
版权所有 侵权必究





致谢

本书是我从 2007 年回国以来与我的所有学生及合作者一起工作的部分研究内容的一个总结。这些学生包括现在工作于重庆大学的熊青博士,华中科技大学的鲜于斌博士、聂兰兰博士、熊紫兰博士、程鹤博士,南京航空航天大学吴淑群博士,加州大学伯克利分校的裴学凯博士,北京市神经外科研究所的闫旭博士,武汉科技大学的赵沙沙博士,华中科技大学同济医学院附属同济医院的宋珂博士、石琦博士,郑州大学第一附属医院的杜田丰博士,成都市第二人民医院的杨平,深圳市宝安区妇幼保健院的周鑫才博士,湖北省十堰市太和医院的刘得玺博士,以及邱云昊博士、谭笑博士、李丛云博士、苟建民博士、涂亚龙博士、邹长林博士,硕士岳远富、唐志渊、余飞、程素霞、卢佳敏、曹星、徐海涛,在读博士生吴帆、李嘉胤、刘凤梧、李志宇、晋绍辉、吕洋、雷昕雨、李旭,在读硕士生杨莹、徐家兴、彭布成、刘嘉林、毛鹏飞等。在此对他们为本书所做的贡献表示感谢。

这里还要特别对 2007 年以来一直和我合作的华中科技大学生命科学与技术学院的何光源教授、华中科技大学同济医学院附属同济医院的曹颖光教授、华中科技大学同济医学院附属协和医院的冯爱平教授、华中科技大学电气与工程学院的刘大伟教授表示由衷的感谢。他们长期以来的大力支持,才使得本书出版成为可能。

此外,在本书的撰写过程中得到了刘大伟博士、熊青博士、鲜于斌博士、聂兰兰博士、程鹤博士、吴淑群博士、闫旭博士、赵沙沙博士、段江伟博士、马明宇

博士,以及吴帆、李嘉胤、刘凤梧、雷昕雨、李志宇等的帮助,在此对他们表示诚挚的感谢。

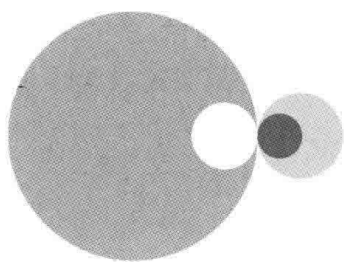
还要感谢我的导师潘垣院士这些年来对我的鼓励和帮助,他对我不厌其烦的教诲及他咬定青山不放松的科研精神使我终生受益。在此感谢华中科技大学各级领导和电气与工程学院历任院长、书记,特别是段献忠教授、冯征书记、康勇教授、于克训书记、文劲宇教授、陈晋书记,没有他们给予我的一次次有求必应的帮助,为我提供研究平台,我也就无法安心从事我所喜爱的研究工作。

尤其感谢我的朋友孙明江、邵惠玉夫妇在这近半年疫情期间对我的关心和帮助,让我可以完全投入到本书的撰写之中。

最后还要感谢我的家人,是他们这么多年对我的无私奉献,使得我有时间和精力投入到我所喜爱的研究中。

作 者

2020年6月25日端午节于黔县



序

2020 年注定是不平凡的一年,一转眼我回华中科技大学工作已经十几年了。回顾这些年,虽有过不少迷茫,但更多的是快乐,特别是这么多年和学生们一起在实验中获得的一次次的小惊喜总是那样令人难忘。

今年由于疫情我被困老家,得以陪伴母亲以尽孝道,弥补这几十年在外不能尽孝的缺憾,同时静心写书再合适不过了,因此思考着能否把这些年的工作进行一次梳理,著书出版;但又有点诚惶诚恐,毕竟本人的水平有限,之前多次被他人劝说著书都被自己坚决否定了。因为要写一本全面介绍国内外大气压等离子体射流研究最新成果方面的书,本人深知着实没有那个能力,但细想能否把该书定位为我们课题组这些年所做工作的一个总结呢?虽然所做工作不成体系,但本人所幸这些年坚持只做了一件事情,也就是研究大气压非平衡等离子体射流(N-APPJ)及其生物医学应用,这也还算别有特色。因此将这些内容进行梳理、归纳总结也算在我的能力范围之内。

本书见证了我青春岁月的日日夜夜、实验的点点滴滴、情绪的起起落落,是我的研究团队热情与心血的结晶。

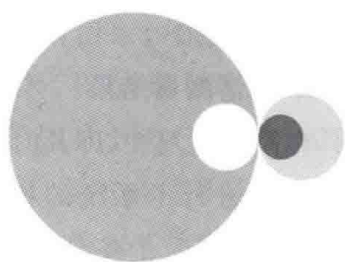
本书包括两册,第一册介绍 N-APPJ 的物理基础,包括我们课题组研制的多种 N-APPJ 装置,各种实验参数对 N-APPJ 物理特性的影响,我们发现的 N-APPJ 所呈现出的诸多有趣的新现象,以及 N-APPJ 所发射的真空紫外光谱和 N-APPJ 放电可重复性的讨论,最后还介绍了几种大气压非平衡等离子体诊断方法。

第二册介绍了我们在 N-APPJ 生物医学应用方面所做的工作,主要包括围绕口腔疾病利用 N-APPJ 处理病菌、真菌、病毒方面的研究,围绕伤口愈合方面的研究,以及 N-APPJ 诱导癌细胞凋亡和促进干细胞分化方面的工作。本书还针对等离子体医学的几个核心问题,对我们在这方面所做的工作进行了介绍,具体包括等离子体射流所产生的各种活性粒子在生物组织中的穿透问题,N-APPJ 的生物安全性问题,等离子体剂量的科学定义问题。

由于水平有限,本人虽然对书中的内容进行了多次核对,但书中错误之处仍在所难免,因此恳请大家批评指正,以期在将来有机会再版时更正。

作 者

2020 年 6 月 25 日端午节于黔县



前言

大气压非平衡等离子体射流(N-APPJ)是在开放空间而不是在两个电极间隙之间产生大气压非平衡等离子体,这就使得被处理对象不受空间尺寸的限制,从而大大拓展了其应用范围。N-APPJ 的研究同时极大地推动了其在生物学方面的应用,并形成了一个新兴的研究方向,即等离子体医学。等离子体医学是研究等离子体所产生的各种活性成分,包括各种自由基、带电粒子、激发态粒子、紫外线、电场等对生物体的综合效应的一门学科。

大气压非平衡等离子体射流与传统的流注放电有许多共同点,如它的推进速度与流注推进速度在一个数量级,它所产生的空间电荷会对电场产生畸变,光电离在其推进过程中扮演着重要的角色等。但人们在研究 N-APPJ 时又发现了传统流注放电所未观测到的许多新现象。

本书分为两册,其中第一册介绍了我们在 N-APPJ 相关物理机理的研究方面所做的一些工作,第二册介绍了我们在 N-APPJ 用于生物学应用方面所做的一些基础性研究。第一册第 1 章简要介绍针对各种具体应用研制的几种惰性气体 N-APPJ 和空气 N-APPJ。第 2 章较为系统地介绍了各种实验参数对 N-APPJ 的影响的研究结果。第 3 章对 N-APPJ 中所观测到的诸多新现象做了详细的分析,包括 N-APPJ 随机推进与可重复推进模式之间的转换、人体可任意触摸的等离子体射流激发次级等离子体射流的接力现象、一个电压脉冲出现的多子弹现象、射流呈现的羽毛状现象、蛇形推进现象、射流的分节现象等,以及在外加电压消失后的放电现象和无外加磁场的螺旋状等离子体



现象。

大约一个世纪前流注理论提出,正流注推进过程中,流注头部的光电离是二次电子崩的主要电子来源。1982年,Zheleznyak提出了较为完整的空气放电光电离假设。他认为在空气等 N_2/O_2 混合气体放电中,辐射来源主要是氮分子三种激发态 $b^1\Pi_u$ 、 $b'^1\Sigma_u^+$ 和 $c'^1\Sigma_u^+$ 在 98~102.5 nm 范围内的辐射,但一直未在大气压放电中测量到该辐射。第一册第4章介绍了我们最近采用真空差分窗口首次对大气压等离子体射流及空气放电的 VUV 光谱测量结果。

N-APPJ 的一个显著特点是其子弹推进模式往往具有高可重复性,即其时间和空间的不确定性。第一册第5章对国内外相关研究工作进行了系统的梳理,并根据我们的研究成果,指出了实现放电可重复性所需要满足的条件,最后提出了高种子电子密度放电理论。

研究大气压非平衡等离子体的一个难点是诊断其各种参数。第一册最后一章对几种适合于大气压非平衡等离子体的诊断方法做了较为详细的介绍,包括利用辐射光谱法诊断气体的温度、电子密度和温度,以及空间电场分布;利用毫米波干涉诊断电子的密度和温度;利用激光诱导荧光获得 OH 和 O 原子密度;利用激光散射获得电子温度和密度,以及中性粒子密度。该章最后介绍了利用液相化学分析方法测量液体中羟基(OH)、单线态氧(1O_2)、超氧阴离子($\cdot O_2^-$)、过氧亚硝酸(ONOOH)、双氧水(H_2O_2)、亚硝酸盐(NO_2^-)和硝酸盐(NO_3^-)的方法。

本书第二册介绍了大气压等离子体射流在生物医学应用方面的研究成果。第二册第2章首先对 N-APPJ 用于杀灭典型的口腔内的致病菌、细菌生物膜、混合菌种生物膜、真菌和病毒的研究成果进行了较为系统、全面的介绍,然后介绍了利用 N-APPJ 活化油促进伤口愈合的研究成果。

研究发现,在合适的处理条件下,N-APPJ 可以诱导癌细胞凋亡,与此同时对正常的细胞无显著影响,这就使得 N-APPJ 因具有在癌症治疗方面的潜在应用价值而受到研究者的关注。第二册第3章首先介绍了 N-APPJ 对质粒 DNA 的影响、N-APPJ 对多种肿瘤细胞系的增殖抑制作用,探讨了 N-APPJ 在各种癌症治疗中的应用潜力;然后分别介绍了 N-APPJ 对 HepG2 细胞形态、细胞染色质、细胞线粒体膜电位、细胞凋亡率的影响;最后介绍了 N-APPJ 诱导细胞凋亡机制的研究成果,包括氧化/硝化应激与 N-APPJ 诱导 HepG2 细胞凋亡的关系,内质网应激与 N-APPJ 诱导 HepG2 细胞凋亡的关系等。

神经系统疾病严重危害着人类健康,中枢神经系统修复成为临床医学的热点和难点;替代丢失的神经细胞,修复损伤的神经网络结构,促进神经功能的恢复,是治疗这类疾病的一种方法。等离子体中的重要活性粒子——一氧化氮(NO)是一种重要的神经递质,在神经系统的发育、信号传递中发挥重要作用。在第二册第4章中,给出了大气压非平衡等离子体对小鼠 C17.2-NSCs 细胞分化影响的研究成果,同时使用细胞形态分析、免疫荧光技术、Western Blot 和 qRT-PCR 等细胞生物学和分子生物学技术研究了大气压非平衡等离子体对小鼠 C17.2-NSCs 细胞分化的影响,鉴定所产生的神经元亚型,并探讨 NO 及下游信号通路对细胞分化的调控机制。

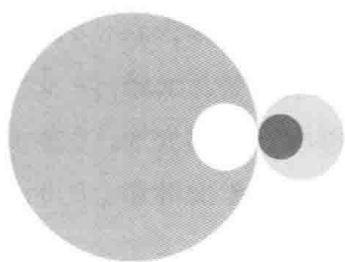
等离子体产生的 RONS 能在生物组织中穿透多深是等离子体医学重要的基础课题。研究该课题一方面可以帮助人们更加深入地理解等离子体医学的基本原理,另一方面也能为进一步优化等离子体医学应用时的等离子体源的各种参数,甚至拓宽其医学应用领域提供参考和指导。第二册第5章分别介绍了我们采用肌肉组织、皮肤组织、皮肤角质层为组织模型,研究 RONS 穿透这些组织模型的情况。由于接收池内的液体种类可能会对 RONS 浓度的测量产生影响,因此该章还探究了接收池内的液体种类对穿透组织的长寿命 RONS 浓度的影响。此外,为了从微观上理解 RONS 穿透皮肤角质层的行为,该章还介绍了采用分子动力学模拟的方法模拟并分析等离子体产生的主要 RONS 穿透角质层双脂质分子层的研究成果。

N-APPJ 直接作用于人体时对人体可能造成的热损伤、电损伤、紫外辐射等潜在的直接物理伤害,以及放电过程中产生的 O_3 等气体可能对人体造成的伤害比较容易评估,也是早期 N-APPJ 安全性研究所关注的。除了直接的物理损伤,N-APPJ 对生物体还可能存在着潜在的生物安全风险。例如,N-APPJ 与细胞或组织相互作用过程中生成的各种 RONS 在生物体中的作用效果存在着明显的剂量依赖效应,如果处理剂量过高,就可能会导致一系列病理生理效应,甚至可能具有致突变的风险,造成细胞遗传的不稳定性。针对 N-APPJ 的生物安全性问题,第二册第6章首先阐述了通过化学方法配制不同浓度的长寿命活性粒子(H_2O_2 、 NO_2^- 和 NO_3^-)溶液及其组合,得到了这些长寿命粒子对人体正常细胞的细胞毒性的实验结果;接着,为了深入了解等离子体处理介质(PAM)在肝癌治疗中的应用前景,系统研究了 PAM 对肝癌细胞的选择性杀伤作用;然后系统比较了使用化学方法配制的 RONS 溶液、PAM 和 N-APPJ

直接处理三种方法对正常细胞和癌细胞的毒性；最后，为了确认 N-APPJ 的长期安全性，还介绍了 N-APPJ 对正常细胞的遗传毒性和诱变特性的实验结果。

“等离子体剂量”是等离子体生物医学领域的重要基本概念之一。尽管国内外研究者在等离子体生物医学领域开展了大量的基础和应用研究，然而，关于“什么是等离子体剂量”这一基本问题仍没有一个被广泛接受的科学定义。科学定义“等离子体剂量”是开展等离子体临床应用的基础和前提。正如临床药理学中所讨论的“剂量-效应”关系，在利用等离子体处理特定对象时，同样需要回答“等离子体剂量”与“生物效应”的对应关系。由于 RONS 是主导等离子体生物效应的关键活性粒子，并且在细胞的病理过程中起重要作用，因此基于 RONS 定义等离子体剂量就成了一种自然的选择。基于此，第二册第 7 章提出等效总氧化势 (*ETOP*) 作为等离子体剂量的定义，其值代表等离子体对其生物效应的总贡献。进一步地，该章通过构建拟合模型研究了 *ETOP* 作为等离子体剂量的可行性。结果表明，*ETOP* 可以很好地预测 kINPen® 和 Flat-Plaster 的杀菌效果。此外，为了进一步了解 *ETOP* 作为等离子体剂量的可行性，我们采用自制的一种典型的 N-APPJ 装置处理了干燥的金黄色葡萄球菌，并结合诊断和模拟方法计算了 *ETOP*。相应的拟合结果同样表明，*ETOP* 与抑菌效率之间存在线性关系，进一步验证了 *ETOP* 作为等离子体剂量的适用性。

本书是我们最新研究成果的一个总结，故有许多科学问题还有待今后进一步研究。如“高种子电子密度放电理论”是否适用于空气放电，这仍有待进一步实验与理论研究。再比如用总氧化势来定义等离子体剂量，这里做了许多简化，在未来还需要考虑各种活性粒子的权重因子、带电粒子的影响、电场效应以及各种液相活性粒子等。希望本书的内容能起到抛砖引玉的作用，从而推进等离子体射流及其生物医学应用的发展。



目录

第 1 章 大气压非平衡等离子体射流 /1

- 1.1 引言 /1
- 1.2 大气压非平衡等离子体源 /6
- 1.3 大气压非平衡等离子体射流 /10
- 1.4 大气压非平衡等离子体射流的动态行为简述 /18
- 1.5 几种新型的惰性气体大气压非平衡等离子体射流 /19
- 1.6 几个新型的大气压空气非平衡等离子体射流 /33
- 1.7 极微等离子体 /64

第 2 章 实验参数对大气压非平衡等离子体射流的影响 /85

- 2.1 几种不同测量大气压等离子体射流推进速度的方法 /85
- 2.2 放电参数对大气压非平衡等离子体射流的影响 /93
- 2.3 脉冲直流与交流驱动大气压等离子体射流对比 /113
- 2.4 放电参数对气体流动的影响 /120
- 2.5 可见光对放电激发的影响 /131
- 2.6 管外加导体对大气压非平衡等离子体射流的影响 /142
- 2.7 U 型管中的等离子体 /151
- 2.8 大气压非平衡等离子体射流的加速行为 /155

- 2.9 大气压非平衡等离子体射流的环状结构 /159
- 2.10 大气压非平衡等离子体射流光谱辐射的时空演化 /170
- 2.11 气流驱动大气压非平衡等离子体射流 /178
- 2.12 大气压非平衡等离子体射流的磁场辐射 /181

第3章 大气压非平衡等离子体射流中的新现象 /191

- 3.1 大气压非平衡等离子体射流的随机推进特性 /191
- 3.2 大气压非平衡等离子体射流的接力现象 /195
- 3.3 大气压非平衡等离子体射流的多子弹现象 /200
- 3.4 大气压非平衡等离子体射流的羽毛状推进现象 /205
- 3.5 大气压非平衡等离子体射流的蛇形推进现象 /210
- 3.6 无外加电压时的放电 /216
- 3.7 大气压非平衡等离子体射流的分节现象 /222
- 3.8 螺旋等离子体 /231

第4章 大气压非平衡等离子体射流真空紫外光谱辐射 /260

- 4.1 引言 /260
- 4.2 大气压非平衡等离子体射流的真空紫外光谱测量 /264
- 4.3 大气压等离子体放电中的光电离机制的完善 /270
- 4.4 大气压非平衡等离子体射流真空紫外辐射相关应用 /274

第5章 大气压非平衡等离子体射流放电的可重复性 /286

- 5.1 引言 /286
- 5.2 汤逊理论 /289
- 5.3 经典流注放电理论 /290
- 5.4 大气压非平衡等离子体射流的推进模式——随机模式和可重复放电模式 /298
- 5.5 大气压非平衡等离子体射流可重复推进模式——高种子电子密度放电理论 /308
- 5.6 关于大气压非平衡等离子体射流高种子电子密度放电理论的展望 /312

5.7 小结 /314

第 6 章 大气压非平衡等离子体射流物理化学参数诊断 /336

6.1 引言 /336

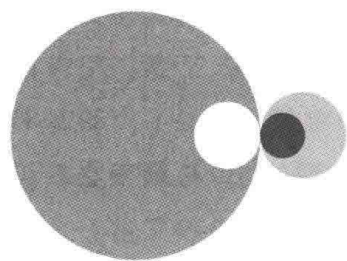
6.2 辐射光谱法 /337

6.3 毫米波干涉法 /354

6.4 激光诱导荧光 /359

6.5 激光散射 /383

6.6 液相化学分析法 /401



第 1 章

大气压非平衡 等离子体射流

1.1 引言

1.1.1 等离子体的定义

等离子体是物质的四个基本状态之一,其他状态分别为固体、液体和气体。等离子体是宇宙中最丰富的物质形式。实际上,等离子体占宇宙中可见物质的 99% 以上,它们由正离子、电子或负离子、中性粒子组成。当通过诸如放电等方式将大量能量注入到气体中时,从原子或分子中逃逸出的电子变成自由电子,这些自由电子继续从电场中获得能量,然后通过碰撞产生更多的电子和离子。最终,更多数量的电子和离子改变了气体的电特性,从而变成了电离的气体,即等离子体。

从科学严谨的角度来看,并非所有包含带电粒子的介质都可以归类为等离子体。它必须满足某些条件或标准才能被归类为等离子体。第一个标准是宏观中性,它与德拜长度(λ_D)^[1~3]有关,即

$$\lambda_D = \left(\frac{\epsilon_0 k T_e}{n_e e^2} \right)^{1/2} \quad (1.1.1)$$

其中, ϵ_0 是真空介电常数, k 是玻尔兹曼常数(1.38×10^{-23} J/K), T_e 是电子温

度, n_e 是电子密度, e 是电子电荷。假设 L 是等离子体的特征尺寸, 则等离子体需要满足的第一个标准是

$$L \gg \lambda_D \quad (1.1.2)$$

在 λ_D 的空间尺度范围内, 它可能不满足宏观电中性的条件; 但在远大于 λ_D 的空间尺度, 它满足宏观电中性。

另外, 德拜球内的电子数目必须非常大。因此, 等离子体需要满足的第二个标准是

$$n_e \lambda_D^3 \gg 1 \quad (1.1.3)$$

这意味着, 与 λ_D 相比, 电子之间的平均距离 (由 $n_e^{-1/3}$ 大致给出) 必须很小。该量被定义为

$$g = 1 / (n_e \lambda_D^3) \quad (1.1.4)$$

该参数称为等离子体参数, 条件 $g \ll 1$ 称为等离子体近似。

第三个标准是时域方面。它要求电子-中性粒子碰撞频率 (ν_{en}) 远小于电子等离子体频率 ν_{pe} , 即

$$\nu_{pe} \gg \nu_{en} \quad (1.1.5)$$

而电子等离子体频率为

$$\nu_{pe} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (1.1.6)$$

其中, m_e 是电子质量。如果不等式 (1.1.5) 得到满足, 就意味着电子将具有独立的行为, 否则电子将因碰撞而与中性粒子保持平衡, 此时仍应该将介质视为中性气体。式 (1.1.5) 也可以写成

$$\omega \tau \gg 1 \quad (1.1.7)$$

$\tau = 1/\nu_{en}$ 表示电子与中性粒子碰撞之间的平均时间, ω 代表典型等离子体振荡的角频率。当式 (1.1.7) 得到满足时, 就意味着与电子-中性粒子碰撞的平均时间比等离子体物理参数变化的特征时间长。

1.1.2 平衡和大气压非平衡等离子体

在实验室中, 不同气压下均可以产生等离子体。但是, 如果在实验室中低气压条件下产生等离子体, 则需要真空系统。为了避免使用昂贵和复杂的真空系统, 在过去的几十年中人们一直研究在大气压下产生等离子体。一方面, 在一个大气压下, 中性粒子密度约为 $2.4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ 。电子-中性粒子碰撞频率 $\nu_{en} = n_0 (2kT_e/m_e)^{1/2} \sigma_0$ 约为 $10^{11} \sim 10^{12} \text{ s}^{-1}$, 其中, n_0 、 T_e 、 m_e 、 σ_0 分别是中性