

空气等离子体作用于苹果表面细菌生物膜的模拟研究



程鹤 刘大伟*

强电磁工程与新技术国家重点实验室 华中科技大学 武汉 430074

1 摘要

大气压非平衡等离子体在食品消毒技术方面具有很大的应用潜力。本报告展示了一种通过介质阻挡放电产生负流注等离子体作用于苹果表面细菌生物膜的计算模型。为了保证模型的自治性，在计算等离子体泊松方程和输运方程中我们考虑了细菌生物膜的结构，电导率，以及介电常数。模拟结果表明，当流注头部距离生物膜1mm时，生物膜表面的电离对负流注的推进有促进作用。由于带电粒子的平均自由程在微米量级，因而等离子体能够渗入生物膜的空腔中。在电压脉冲的关断周期，由于扩散的作用会使空腔内等离子体产生的活性氧、氮粒子呈现均匀分布，而密度上会降低6~7个数量级。报告同时展示了两个流注处理三个生物膜的情况。

2 研究背景



等离子技术在食品安全领域的应用

3 模型建立

等离子体控制方程

$$E = -\nabla\phi, \nabla^2\phi = -\rho/\epsilon_0$$

$$\partial n_k / \partial t + \nabla \cdot \Gamma_k = R_k \quad \Gamma_k = -\mu_k n_k \nabla \Phi - D_k \nabla n_k, \quad k = 1, 2, 3, \dots, k_g$$

$$\partial n_e / \partial t + \nabla \cdot \left(\frac{5}{3} \epsilon \Gamma_e - \frac{5}{3} n_e D_e \nabla \epsilon \right) = +e \Gamma_e \cdot \nabla \phi - e \sum_i \Delta E_i^e r_i - \frac{3}{2} k_b n_e \frac{2m_e}{m_{kb}} (T_e - T_g) v_{e, kb}$$

$$S_{ph}(\vec{r}) = \sum_{j=1}^3 S_{ph}^j(\vec{r})$$

$$S_{ph}^j(\vec{r}) = \iiint_V \frac{I(\vec{r}')}{4\pi R^2} A_j P_{O_2}^2 e^{-\lambda_j P_{O_2} R}$$

$$\nabla^2 S_{ph}^j(\vec{r}) - (\lambda_j P_{O_2})^2 S_{ph}^j(\vec{r}) = -A_j P_{O_2}^2 I(\vec{r})$$

Helmholtz方程

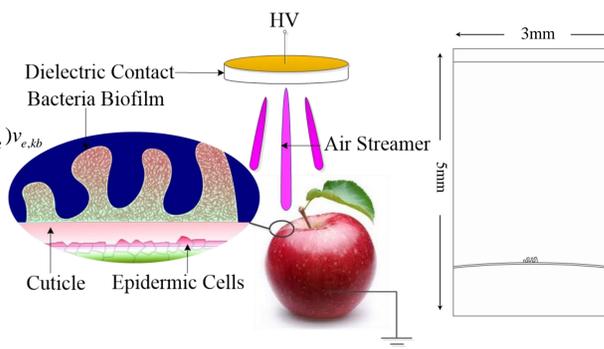


图1 DBD处理水果表面细菌生物膜及计算域图示

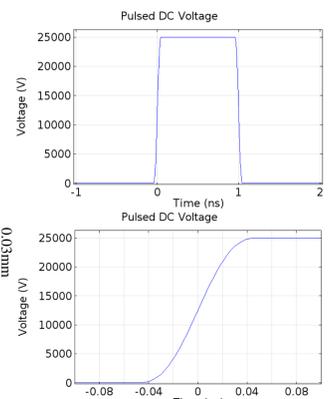


图2 脉冲电压波形及其上升沿放大

4 模拟研究结果及分析

- 流注在产生后0.3ns即发展至细菌生物膜上。(图3(c))
- 等离子体通道的高电导率使得流注头部的电势很高。(~70%外施电压，电导率 $\sigma = e\mu_e n_e$)
- 生物膜的突起，以及与流注头部之间的电压降使膜附近形成强电场。(3.3×10⁶V/m, 图3(j))
- 膜表面的电场大于空气击穿的电场，促使膜表面发生电离，促进了流注的传播。(图3(f)(g))
- 鞘层附近的二次电子发射促进了电离，使得峰值电子密度从生物膜表面移到了鞘层下方。(图3(d))
- O原子主要通过电子(主要)和N原子的碰撞解离反应产生，进而生成O₃, NO, OH粒子。(主要反应: e+O₂=>O+O^{*}, e+O₂=>e+2O, e+O₂=>e+O+O_{1d}, N+O₂=>NO+O, O+O₂=>O₃, O+N₂=>NO+N, O+H₂O=>2OH)
- 由于脉宽时间内电子密度增加，导致O原子密度也随之增加(图4(a)(b))，进而使得O₃的增加(图4(c)(d))。
- 模拟结果表明NO主要由N与O₂的碰撞解离反应产生。
- OH主要由O^{*}+H₂O=>2OH和e+H₂O=>H+OH+e产生，复合反应使OH大量转化成了H₂O₂(2OH+N₂=>H₂O₂+N₂) (图4(g)(h))。
- Debye长度在微米尺度，解释了等离子体渗入膜的空腔中的原因。(图5(b))
- 空腔内电子的累积导致了膜表面充电，产生了很高的转换电场，可以诱导细胞凋亡。(图5(f), 8.32×10⁶V/m, 强于纳秒脉冲电场60kV/cm)
- 强电场中电子加热，使得电子温度很高(8.61eV)，促进了等离子体的产生。(图5(d))
- 流注到达生物膜之后，活性粒子的峰值密度在脉宽周期内仍然增加且位置相同。活性粒子增加，造成更有效的脂质氧化反应，以及细胞受损。由于N、O主要由电子的碰撞解离产生，而NO主要由N与O₂的碰撞解离反应产生，因而NO的峰值密度处必然也是N、O峰值密度位置，也即峰值电子密度的位置。(图6)
- 脉冲关断时间，复合反应使得活性粒子密度大幅降低，扩散则促进活性粒子的均匀分布。(图7)
- 双流注处理三个细菌生物膜：在流注距离生物膜1mm处时，原本2个等离子体通道会分成3个。由于中间生物膜距离两个流注最短，以及两个流注发展的同时性影响，中间生物膜区域的电离要比两边的生物膜区域的电离要强，因而中间生物膜上的峰值电子密度相对两边的要高。(图8(a))
- 多个流注能增大等离子体处理的面积。

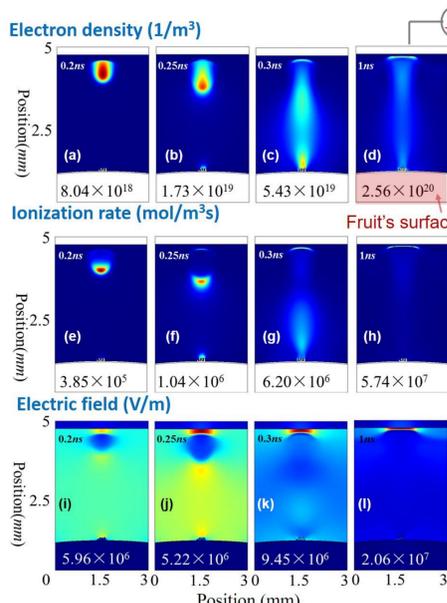


图3: 电子密度、电离率、电场随时间变化模拟结果图

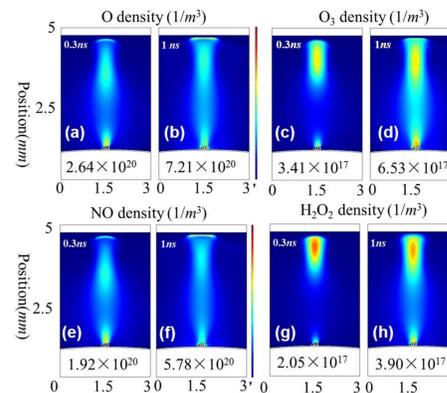


图4: O、O₃、NO、H₂O₂密度随时间变化模拟结果图

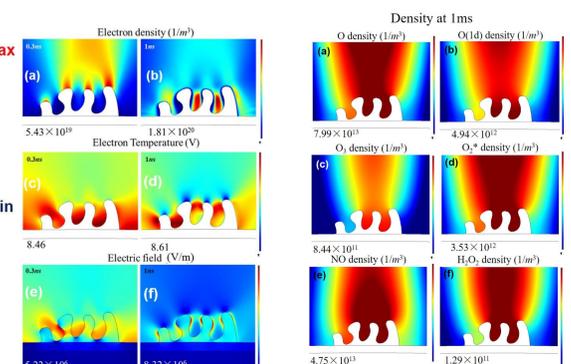


图5: 膜附近电子密度、电子温度、电场模拟结果图(0.3ns, 1ns)

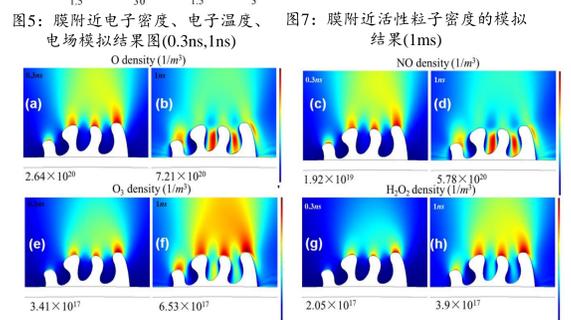


图6: 膜附近活性粒子密度的模拟结果(0.3ns, 1ns)

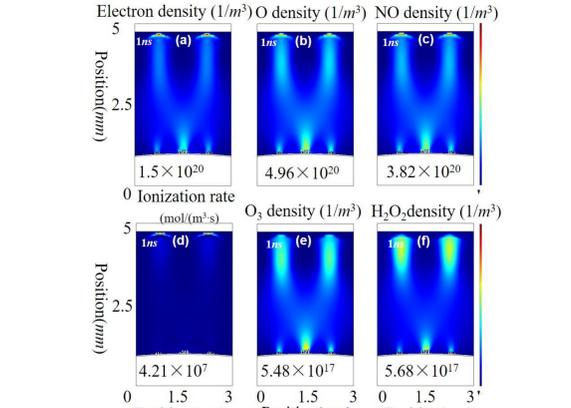


图7: 膜附近活性粒子密度的模拟结果(1ns)

5 结论

本报告展示了DBD处理细菌表面生物膜的2维放电模型。传播特性表明当流注头部位于生物膜1mm处时，生物膜附近的电离促进了负流注的传播。由于带电粒子的平均自由程在微米量级，因而等离子体能够渗入生物膜的空腔中。在电压脉冲的关断周期，由于扩散的作用会使空腔内的ROS和RNS呈现均匀分布，而密度上会降低6~7个数量级。多个流注能增大等离子体的处理面积。

6 创新点

- 展示了等离子体在苹果表面细菌生物膜的分布结果。不局限于电子密度，而是包括电子温度，电场，以及各种活性粒子的完整的空间分布情况。
- 采用数值计算方法来进行DBD处理细菌生物膜的研究。比较传统实验方法，能够更简洁直观的获取等离子体及其中的活性粒子，电子温度，电场等等再空间的分布情况，从而为进一步实验提供参考。