Azot Gazı Deşarjlarının Üretilmesi ve İncelenmesi

Çağrı Durmuş

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Fizik Anabilim Dalı

Aralık 2018

Production and Investigation of Nitrogen Gas Discharges

Çağrı Durmuş

MASTER OF SCIENCE THESIS

Department of Physics

December 2018

Azot Gazı Deşarjlarının Üretilmesi ve İncelenmesi

Çağrı Durmuş

Eskişehir Osmangazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Lisansüstü Yönetmeliği Uyarınca Fizik Anabilim Dalı Yüksek Enerji ve Plazma Fiziği Bilim Dalında YÜKSEK LİSANS TEZİ Olarak Hazırlanmıştır

Danışman: Prof. Dr. Tamer Akan

Bu tez ESOGÜ-BAP tarafından "2017-1564" no'lu proje çerçevesinde desteklenmiştir.

Aralık 2018

ONAY

Fizik Anabilim Dalı Yüksek Lisans öğrencisi Çağrı Durmuş'un YÜKSEK LİSANS tezi olarak hazırladığı "Azot Gazı Deşarjlarının Üretilmesi ve İncelenmesi" başlıklı bu çalışma, jürimizce lisansüstü yönetmeliğin ilgili maddeleri uyarınca değerlendirilerek oybirliği ile kabul edilmiştir.

Danışman : Prof. Dr. Tamer Akan

İkinci Danışman :-

Yüksek Lisans Tez Savunma Jürisi:

Üye : Prof. Dr. Tamer Akan

Üye : Prof. Dr. Ferhunde Atay

Üye : Doç. Dr. Rasim Dermez

> Prof. Dr. Hürriyet ERŞAHAN Enstitü Müdürü

ETİK BEYAN

Eskişehir Osmangazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü tez yazım kılavuzuna göre, Prof. Dr. Tamer Akan danışmanlığında hazırlamış olduğum "Azot Gazı Deşarjlarının Üretilmesi ve İncelenmesi" başlıklı YÜKSEK LİSANS tezimin özgün bir çalışma olduğunu, tez çalışmamın tüm aşamalarında bilimsel etik ilke ve kurallara uygun davrandığımı; tezimde verdiğim bilgileri, verileri akademik ve bilimsel etik ilke ve kurallara uygun olarak elde ettiğimi; tez çalışmamda yararlandığım eserlerin tümüne atıf yaptığımı ve kaynak gösterdiğimi ve bilgi, belge ve sonuçları bilimsel etik ilke ve kurallara göre sunduğumu beyan ederim. 27/12/2018

> Çağrı Durmuş İmza

ÖZET

Bu çalışmada azot gazı deşarjları üretilmiş ve bazı özellikleri incelenmiştir. Azot gazı desarjları düşük basınçta borosilikat cam vakum odası içinde metal iki elektrot arasında 11 kV DC güç kaynağı kullanılarak üretilmiştir. Farklı basınçlarda üretilen düşük basınç DC azot gazı deşarjı dijital fotoğraf makinesi ile görüntülenmiştir. Basınç değişimi ile plazmanın yapısal değişimi gözlemlenmiştir. Aynı borosilikat cam vakum odası içinde iki metal elektrot arasında farklı basınçlarında, 18 kV-15 kHz AC güç kaynağı kullanılarak azot gazı deşarjları üretilmiştir. Üretilen farklı basınçlarda azot gazı AC deşarjlar dijital fotoğraf makinesi ile görüntülenmiş ve optik emisyon spektroskopisi (OES) ile incelenmiştir. Bununla birlikte aynı basınçta üretilen AC azot gazı deşarjının emisyon spektrumlarının, uygulama voltajı ve frekansa göre değişimi incelenmiştir. Azot gazı deşarjları atmosferik basınçta 18 kV-15 kHz AC güç kaynağı kullanılarak jet olarak üretilmiştir. Üretilen atmosferik basınç azot plazma jet, gaz akış hızına göre uzunluğunun değişimi incelenmiş olup üretilen jet uzunluğu yaklaşık olarak 2 cm'dir. Atmosferik basınçta üretilen azot plazma jet, OES ile de incelenerek gaz akış hızı ile emisyon spektrumlarındaki değişimler incelenmiştir. Bununla birlikte atmosferik basınç azot gazı plazma jetin elektron sıcaklığı ve elektron yoğunluğu hesaplanmıştır.

Anahtar Kelimeler: Azot, deşarj plazma, plazma jet, düşük basınç plazma, atmosferik basınç plazma, elektron sıcaklığı, elektron yoğunluğu.

SUMMARY

In this study, nitrogen gas discharges were produced and some properties were investigated. Nitrogen gas discharges were generated using a 11 kV DC power supply between two electrodes in a borosilicate glass vacuum chamber at low pressure. Low pressure DC nitrogen gas discharge produced at different pressures was visualized by using a digital camera. The structural changing of plasma was observed with pressure change. At different pressure values between two metal electrodes within the same borosilicate glass vacuum chamber, nitrogen gas discharges were generated using an 18 kV-15 kHz AC power supply. At different pressures produced, the nitrogen gas AC discharges were visualized with digital cameras and examined by optical emission spectroscopy (OES). In addition, the emission spectra of the AC nitrogen gas discharge produced at the same pressure were investigated according to the application voltage and frequency. Nitrogen gas discharges are produced as jet using an 18 kV-15 kHz AC power source at atmospheric pressure. The change of length of produced atmospheric pressure nitrogen plasma jet, according to the gas flow rate has been investigated and the produced jet length is approximately 2 cm. Nitrogen plasma jet produced at atmospheric pressure was examined with OES and the changes in gas flow rate and emission spectra were investigated. Furthermore, electron temperature and electron density of atmospheric pressure nitrogen gas plasma jet were calculated.

Keywords: Nitrogen, discharge plasma, plasma jet, low pressure plasma, atmospheric pressure plasma, electron temperature, electron density.

TEŞEKKÜR

Sadece yüksek lisans çalışmamda değil, hayatın her alanında bana yardımcı olan, eğitim ya da sosyal hayatta karşıma çıkan zorlukları aşmamda yol gösterici olan, hayata bakış açısıyla beni düşünmeye sevk eden değerli hocam Prof. Dr. Tamer Akan'a çok teşekkür ederim.

Gerek laboratuvarda gerek üniversite dışında sürekli bana yardım eden, yol gösteren, bilgisini sakınmayan arkadaşım Arş. Gör. Dr. Erkan İlik'e çok teşekkür ederim.

Desteklerinden dolayı Eskişehir Osmangazi Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Komisyonuna (ESOGÜ-BAP, Proje No: 2017-1564) teşekkür ederim.

Hayatımın her döneminde olduğu gibi bu dönemde de bana destek olan aileme çok teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

<u>Sayfa</u>

ÖZET	vi
SUMMARY	vii
TEŞEKKÜR	viii
İÇİNDEKİLER	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ	X
ÇİZELGELER DİZİNİ	xi
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ	xii
1. GİRİŞ VE AMAÇ	1
2. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI	5
3. MATERYAL VE YÖNTEM	12
3.1. Deneysel Sistem	12
3.1.1. Düşük basınç azot gazı deşarjı üretim sistemi	12
3.1.2. Atmosferik basınçta azot gazı deşarj üretim sistemi	17
4. BULGULAR VE TARTIŞMA	20
4.1. Düşük Basınçta Azot Gazı Deşarj Üretimi	20
4.1.1. Doğru akım (DC) güç kaynağı ile azot gazı deşarj üretimi	20
4.1.2. Alternatif akım (AC) güç kaynağı ile azot gazı deşarj üretimi	22
4.2. Atmosferik Basınçta Azot Gazı Deşarj Üretimi	27
4.3. Azot Gazı Deşarjlarında Elektron Sıcaklığının Hesaplanması	29
4.4. Azot Gazı Deşarjlarında Elektron Yoğunluğunun Hesaplanması	31
5. SONUÇ VE ÖNERİLER	32
KAYNAKLAR DİZİNİ	35

ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Şekil</u>		<u>Sayfa</u>
3.1.	Düşük basınç azot gazı deşarj üretim sisteminin fotoğrafı	
3.2.	Düşük basınç azot gazı deşarj üretim sisteminin şematik gösterimi	13
3.3.	AC güç kaynağının tasarımı	14
3.4.	AC güç kaynağının osiloskop çıktısı	15
3.5.	DC güç kaynağının tasarımı	16
3.6.	Optik emisyon spektrometresi	17
3.7.	a) Atmosferik basınç azot gazı deşarj üretim sistemi fotoğrafı,	
	b) Plazma jet sistemi fotoğrafi	18
3.8.	Atmosferik basınç azot gazı deşarj üretim sisteminin şematik çizimi	18
4.1.	DC glow deşarjda elektrotlar arasındaki elektrik ve potansiyel alan	
	dağılımı ile yük ve akım yoğunlukları değişimi	21
4.2.	Düşük basınç DC Azot gazı deşarj fotoğrafları	21
4.3.	Farklı basınçlarda üretilen AC Azot gazı deşarjlarının fotoğrafları	22
4.4.	Azot gazı temel parçacıklarının enerji diyagramı	24
4.5.	AC Azot gazı deşarjların farklı basınçlarda spektrumları	26
4.6.	a) Sabit basınçta ve sabit voltajda, uygulama voltajı frekans değişimine	
	ve b) sabit basınçta ve sabit uygulama voltajı frekansında uygulama	
	voltaj değişimine göre azot gazı deşarjlarının optik	
	emisyon spektrumları	27
4.7.	Atmosferik basınç azot gazı plazma jetin farklı gaz akış hızlarında	
	fotoğrafları	28
4.8.	Atmosferik basınç azot gazı plazma jetinin aynı noktasından	
	farklı gaz akış hızlarında elde edilen spektrumları	29
4.9.	Azot gazı atmosferik basınç plazma jetin gaz akış hızına göre	
	elektron sıcaklığı değişimi	30

ÇİZELGELER DİZİNİ

<u>Çizelge</u>		
3.1.	AC güç kaynağının özellikleri	15
3.2.	DC güç kaynağının özellikleri	
3.3.	Optik emisyon spektrometresinin özellikleri	
4.1.	Azot gazı deşarjlarında bilinen atomik ve moleküler geçişler	25



SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

<u>Simgeler</u>	<u>Açıklama</u>
kV	kilo Volt
kHz	kilo Hertz
eV	Elektron Volt
Κ	Kelvin
λ	Dalgaboyu
Ν	Azot atomu
N ₂	Azot molekülü
N_2^+	Azot iyonu
NO	Azot Oksit
ОН	Hidroksil
Te	Elektron sıcaklığı
Ti	İyon sıcaklığı
Tu	Uyarılmış atomların sıcaklığı
Tg	Nötral atomların sıcaklığı
T _f	Fotonların enerjisi
ne	Elektron yoğunluğu
Z	Atom numarası
<u>Kısaltmalar</u>	<u>Açıklama</u>

ESOGU BAP	ESOGÜ Bilimsel Araştırma Projesi Komisyonu
AC	Alternatif Akım
DC	Doğru Akım
RF	Radyo Frekansı
MW	Mikrodalga
TTD	Toplam Termodinamik Denge
LTD	Lokal Termodinamik Denge
non-LTD	Lokal Termodinamik Dengede olmayan
OES	Optik Emisyon Spektroskopisi

1. GİRİŞ VE AMAÇ

Sir William Crookes, deşarj tüplerinde elektrik yüklü gaz moleküllerini oluşturarak maddenin dördüncü halini keşfetmiştir (Crookes, 1879). 1929 yılında Irving Langmuir, ilk kez "PLAZMA" terimini kullanmıştır (Tonks ve Langmuir, 1929). Son 30 yıldır laboratuvarda plazmalar üzerine çalışmalar oldukça artmakla birlikte günlük hayatımıza floresan lambalar, plazma klimalar ve plazma televizyonlar gibi teknolojik kullanımları da her geçen gün artmaktadır.

Plazma; genelde maddenin dördüncü hali olarak bilinse de enerjisi maddenin katı, sıvı, gaz hallerinden çok daha yüksektir ve büyük patlamadan sonra evrende ilk oluşan hallerden biridir. Maddenin katı, sıvı, gaz halleri, plazma halinin enerjisi kaybetmesiyle oluşur. Bu bakımdan evrende plazma maddenin ilk hallerinden biridir. Evrendeki maddelerin yaklaşık %99'u da hala plazma halindedir. Yıldızlar, galaksiler arası boşlukta bulunan bulutsular, dünyamızın çevresinde bulunan Van Allen kuşakları, kutup ışıkları (Auroralar), atmosferimizin tabaklarından biri olan iyonosfer ve şimşek doğal olarak bulunan plazmalara örnektir.

Maddenin plazma halini elde etmek için maddenin katı, sıvı ya da gaz haline yeterli miktarda enerji vermek gereklidir. Bu enerji ısı, elektrik, nükleer enerji ya da herhangi bir başka tür enerji olabilir. Örneğin katı haldeki bir maddeyi yeteri kadar ısıtırsak atomları arasındaki bağlar zayıflar ve sıvı hale döner, sıvı haldeki maddeyi ısıtmaya devam edersek bağlar kopar ve gaz haline dönüşür. Gaz halindeki maddeye de yeterli miktarda enerji aktarırsak bu enerjiyi artık kopacak bağ kalmadığı için maddedeki atomların veya moleküllerin parçalanmasına harcanır ve maddenin plazma hali oluşur. Plazma; elektriksel olarak nötral olan ve rastgele doğrultularda birlikte hareket eden, hemen hemen eşit yoğunluktaki pozitif ve negatif yüklü parçacıklar topluluğudur. Plazma içinde, pozitif ve negatif iyonların yanında, nötr atom ya da moleküller, uyarılmış atom ya da moleküller, ayrışmış atomlar, elektronlar, fotonlar, radikaller ve metastable (ya da yarı kararlı) atomlar da vardır. Plazma içindeki parçacıklar sürekli birbirleriyle etkileşerek kollektif bir davranış içindedirler. Bu nedenle difüzyonları ambipolar difüzyon şeklinde olurken dışarıdan yapılacak etkilere karşı Debye kılıfı ile kendini korumaya alır. Plazma içinde çok farklı özellikte parçacık bulunması nedeniyle farklı türde plazma türleri üretilebilmektedir. Düşük basınç plazmaları ve yüksek basınç plazmaları gibi iki temel kategoriye ayrılabildikleri gibi en temel plazma sınıflandırılması denge koşulları üzerinden yapılır. Plazma içindeki tüm parçacıkların sıcaklıkları eşit ise "Sıcak Plazmalar", plazma içindeki elektronların sıcaklıkları özellikle iyonlar ve diğer parçacıkların sıcaklıklarından çok yüksek olursa "Soğuk Plazmalar" olarak adlandırılır. Yıldızlar ve ark jetler, sıcak plazmaya örnek olarak verilebilirken, şimşek ve laboratuvarlarda üretilen gaz deşarj plazmaları, soğuk plazmalara örnek olarak verilebilir (Akan, 2005).

Plazma içindeki her farklı tür, farklı sıcaklık terimleri ile ifade edilir. T_g; nötral atomların sıcaklığı (gaz sıcaklığı), T_u; uyarılmış atomların sıcaklığı, T_i; iyonların sıcaklığı, T_e; elektronların sıcaklığı, T_a; molekül halinden atoma ayrışmış atomların atom sıcaklığı, T_f; fotonların enerjisini karakterize eden foton sıcaklığını ifade eder. Eğer plazma içindeki bütün türlerin sıcaklığı birbirine eşitse; bu durumdaki plazmalara toplam termodinamik dengede (TTD) plazma denir. Bu tip plazmalar güneşte ve yıldızlarda meydana gelir. Eğer plazma içindeki türlerden foton sıcaklığı haricinde diğer türlerin sıcaklığı birbirine eşitse bu tip plazmalara Lokal termodinamik denge (LTD) plazma denir. Bu tip plazmalar olarak adlandırılır. Bu plazmalar yüksek basınçlarda meydana geldiği için yüksek basınç plazmalar olarak da adlandırılır. Plazma içinde basıncın artmasıyla elektronlar ve nötral atomların çarpışma sayısı artar. Daha düşük basınçlarda elektronlar ile nötral atomlar ve iyonlar termal dengeye ulaşamaz bu nedenle elektronun sıcaklığı diğer türlerden daha yüksektir. Bu tür plazmalara Lokal termodinamik denge elektronun kütlesi diğer türlerden çok daha küçük olduğu için enerjisini diğer türlere aktaramaz (Akan, 2005).

Laboratuvar koşullarında plazma üretmek için iki metal elektrot arasındaki gazdan, gazı kritik seviyede iyonlaştıracak kadar elektrik akımı geçirilmesi yeterlidir. Bu tür plazmalara "Gaz Deşarj Plazmalar" denir. Gazı iyonlaştırmak için gerekli olan elektrik akımı doğru akım (DC) veya alternatif akım (AC) olarak uygulanabilir. AC uygulamalarında voltaj, kHz, radyo frekansı (RF), mikrodalga (MW) gibi farklı frekanslarda da uygulanabilir. Kullanılan güç kaynağına göre üretilen gaz deşarjlar AC deşarj, DC deşarj, RF deşarj, mikrodalga deşarj gibi isimlerle anılır. Laboratuvar koşullarında üretilecek plazmada farklı güç kaynakları uygulanabileceği gibi farklı basınçlı sistemlerde de üretilebilir. Bir vakum pompası yardımıyla havası alınmış bir sistem içinde istenilen gazın düşük basınçta plazmaları üretilebilir. Bu tip sistemlerde, sistem içinde daha az parçacık olduğu için gaz halinden plazma haline geçiş daha düşük voltajlarla elde edilebilir. Plazmalar kapalı bir sistem içinde düşük basınçta üretilebildiği gibi atmosfer basıncında da üretilebilir. Bu sistemlerde parçacık sayısı düşük basınca göre çok daha fazla olduğu için iyonlaşma daha zor olabilir. Bunun için daha yüksek enerji sağlayabilecek güç kaynaklarına ihtiyaç vardır. Atmosferik basınçta üretilen plazmalarda vakum pompası ve vakum ölçüm cihazlarına gerek olmadığından çok daha basit ve ekonomik sistemlerdir.

Azot gazı soğuk plazmaları (deşarjları), önemli özelliklerinden dolayı birçok teknolojik uygulamada kullanılmaktadır. Azot gazı soğuk plazmaları; farklı materyal üretimi, materyal işleme, nitrürleme, tıp, biyoloji, biyomedikal, zirai tohum işleme gibi çok farklı alanlarda kullanılmaktadır. Azot gazı soğuk plazmalarının geniş uygulama alanı bulmasının nedeni; O, N, $O_2^*(^1\Delta)$, O₃, OH, NO, H₂O₂, O_2^{-7} , N₂O, HNO₂ gibi reaktif oksijen ve reaktif nitrojen türlerini üretebilmesidir. Reaktif oksijen ve nitrojen türleri, etkileşim halinde bulunduğu madde ile kolayca reaksiyona girer ve maddenin yapısında önemli değişikliklere neden olur. Bu nedenle azot gazı soğuk plazmalarında reaktif oksijen ve nitrojen türlerinin hangi oranda üretildikleri, plazmanın hangi bölgelerinde yoğun bulundukları ve kontrol edilebilmeleri teknoloji açısından önemli bir gereksinimdir. Bununla birlikte azot gazı soğuk plazmalarında üretilen reaktif oksijen ve nitrojen türlerinin incelenmesi bilimsel açıdan da önemlidir. Bu türlerin incelenmesi ve genel olarak azot gazı soğuk plazmaların davranışlarının ve farklı maddelerle girdiği reaksiyonların anlaşılması atom-molekül fiziği ve kimya biliminin önemli sorularına cevap bulmaktadır. Özellikle azot gazı soğuk plazmalarından alınan spektroskopik ölçümler, uyarılmış ve iyonlaşmış türlerin incelenmesi ve plazma içi reaksiyonların anlaşılması için önemlidir. Bu nedenle azot gazı soğuk plazmaları, farklı plazma içi reaksiyonlar ile farklı türde parçacık davranışlarının incelenmesi için en uygun ortamlardan biri olmaktadır.

Bu çalışmada azot gazı soğuk plazmaları (gaz deşarjları) düşük basınçta ve atmosferik basınçta üretilmiştir. Atmosferik basınçta azot gazı soğuk plazması "jet" olarak üretilmiştir. Azot gazı atmosferik basınç soğuk "plazma jet" şimdiye kadar nadir üretilebildiği için önemlidir. Düşük basınç ve atmosferik basınç azot gazı soğuk plazmaları yüksek voltaj doğru akım (DC) ve yüksek voltaj alternatif akım (AC) güç kaynakları ile ayrı ayrı üretilmiştir. Bu şekilde farklı basınç ve farklı elektromanyetik etki ile üretilen azot gazı soğuk plazma yapıları incelenmiştir. Bununla birlikte düşük basınç ve atmosferik basınçta farklı elektrot yapıları kullanılarak azot gazı soğuk plazmaları üretilmiştir.

Bu çalışmada farklı basınçta, farklı elektromanyetik etki ile farklı elektrot yapısında, farklı plazma üretim mekanizmasında, farklı gaz akış hızında azot gazı soğuk plazmaları (gaz deşarjları) üretilmiştir. Tüm üretim sistemleri ESOGÜ Soğuk Plazma Laboratuvarı'nda imal edilmiştir. Farklı üretim koşullarında üretilen azot gazı soğuk plazmaları, Dijital fotoğraflama ve Optik Emisyon Spektroskopisi ile incelenmiştir. Farklı koşullarda her üretilen azot gazı soğuk plazmalarının nötr, uyarılmış ve iyonlaşmış reaktif oksijen ve nitrojen türleri tespit edilerek incelenmiştir. Bu bilgiler ışığında azot gazı soğuk plazma içinde uygulama açısından ihtiyaç duyulan reaktif türlerin kontrol edilebilirliği ve optimum değerleri yapılan çalışmalar sonucu ortaya konmuştur. Düşük basınçta üretilen DC azot gazı deşarjlarının aynı basınçta uygulama voltajı ve frekansına göre emisyon spektrumlarındaki değişimler incelenmiştir. Bununla birlikte atmosferik basınçta üretilen azot gazı atmosferik basınç plazma jetin gaz akış hızına göre emisyon spektrum değişimi incelenmiş elektron sıcaklığı ve elektron yoğunluğu hesaplanmıştır.

2. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI

Maddeyi oluşturan parçacıkların enerjisi bakımından plazma; katı, sıvı ve gaz hallerinden farklı olarak maddenin dördüncü halidir. Plazmaların teknolojide ilk uygulama alanlarından biri aydınlatma olurken daha sonraları gaz deşarj plazmaları; kağıt, ahşap ve cam endüstrisinde, uzay teknolojilerinde, materyal işleme (aşındırma, sertleştirme, kaplama, kesme, kaynak, yeni tür malzeme üretimi) teknolojilerinde, tekstil endüstrisinde, yapay elmas yapımında, yarıiletken teknolojisinde, elektronik çip yapımında, iletişim teknolojisinde, yüzey kaplama ve dekorasyon teknolojilerinde, sterilizasyon ve su arıtma sistemlerinde, gıda endüstrisinde, tehlikeli ve zararlı atık (nükleer, çöp ve tıbbi atık) arıtmada, güneş enerjisi ve optikte, otomobil ve uçak endüstrisinde, yeni teknoloji inşaatlarda, savunma sanayinde, kristal büyütmede, zirai tohumlar üzerinde, radar ve füzyon araştırmalarında kullanılmaktadır. Floresan lambalar gibi plazma televizyonları ve plazma klimalar da günlük hayatımıza giren plazma teknolojileridir. Plazmaların tıp ve biyomedikal uygulamaları da başta sterilizasyon olmak üzere oldukça yaygındır (Akan, 2014).

1970 yılından bu yana "Plazma Fiziği" üzerine birçok çalışma yapılmakla birlikte çok sayıda kitapta bu bilgiler toplanmıştır (Grill, 1993; Roth, 1995; Raizer, 1991; Fridman ve Friedman, 2012). Soğuk plazmalar olarak bilinen "gaz deşarj plazmaları" ile şimdiye kadar birçok çalışma yapılmıştır. Düşük ısı etkisinin yanında elektrik alan etkisi, yüklü parçacık etkisi, aktif parçacıkların kimyasal etkisi, ultraviyole (UV) etkisi gibi birçok etkiyi aynı anda üretebildiği için de endüstride son derece fazla uygulama alanı bulmuştur. Yüzey kaplama, yüzey aktivasyonu, yüzey polimerizasyonu, oksitleme, nitrürleme, yüzey temizleme, sterilizasyon ve medikalde önemli ve farklı özellikleri nedeniyle oldukça fazla kullanılmaktadır (Bogaerts gaz deşarj plazmalar vd., 2002; Tendero vd., 2006; Treumann vd., 2008; Petitpasa vd., 2007). Elekromanyetik radrasyonun yansıtılması ve emiliminde kullanılabilir (Vidmar, 1990).

Gaz deşarj plazmalarında daha çok Helyum, Neon ve Argon gibi soy gazlar tercih edilmiştir. Soy gazlar iyonlaşma enerjilerinin nispeten düşük olması, karmaşık plazma etkileşimlerinin olmaması ve üretildikleri ortamda farklı reaksiyonları üretmemesi nedeniyle tercih edilmiştir. Ancak havanın plazmasının üretilmesiyle hava içindeki oksijen ve azot gazlarının plazmalarının üretilmesi önemli olmuştur. Özellikle uygulama alanlarında hava, oksijen ve azot gibi gazların plazmaları son derece etkili sonuçlar çıkarmıştır. Bunun ana nedeni her üç gazın plazmasında üretilebilen radikal (reaktif) parçacıklar ve metastable parçacıklardır. Radikal oksijen (O) ve radikal azot (N) en önemli radikal parçacıklar olurken, OH ve NO gibi türevleri de uygulamada oldukça etkin sonuçlar çıkarmaktadır. Bununla birlikte uzun yaşam sürelerine sahip uyarılmış parçacıklar (metastable parçacıklar) uygulamada önemli olmaktadır. Plazma içinde üretilen gerek radikal parçacıklar gerekse metastable parçacıklar uygulama yapılan numune ile son derece aktif etkileşim içinde olmaktadır. Bu nedenle uygulanan numunede önemli değişikliklere neden olmaktadır. Yüzeylerin temizlenmesi, yüzey aktivasyonu, yüzey sertleştirme, oyuklama (etching), yüzey sterilizasyonu bunlara birkaç örnek verilebilir. Bu şekilde aktif etkili parçacıkların üretilmesi plazma ortamında kolayca yapılabilmektedir. Örneğin oksijen plazması içinde üretilen aktif oksijenin (O) bakteri sterilizasyonunda en önemli etken olduğu artık bilinmektedir (Akan ve Çabuk, 2014). Benzer şekilde hava plazmasında da önemli aktif parçacıklar üretilmektedir. Havanın plazmasında bulunan reaktif oksijen ve nitrojen türleri sayesinde kanserli hücrelerin tedavisi mümkün olabilmektedir (Ahn vd., 2014).

Azot gazı (N₂) plazmaları da ürettiği radikal (reaktif) parçacıklar ve uzun ömürlü metastable parçacıklar açısından son derece önemlidir. Moleküler azot (N₂) normal şartlarda kolayca reaksiyona girmez ve etkisizdir. Ancak N₂ veya N₂ içeren karışımlı gazlar içindeki uyarılmış (excited) veya ayrışmış (dissociated) N₂ türleri özellikle atomik nitrojen (N), birçok reaksiyon oluşturarak önemli uygulamalarda kullanıma sebep olmuştur. N₂, N₂⁺ ve atomik nitrojen (N) gibi türlerin farklı uyarılmış halleri de azot (N₂) plazması içinde oluşur ve önemli reaksiyonları oluşturur (Ricard vd., 2015). Azotun ilk elektronik olarak uyarılmış hali olan metasable triplet N₂(A³∑_u⁺), 6.2 eV eşik enerjisine (threshold) ve yaklaşık 2 saniye yaşam süresi (lifetime)'ne sahiptir. Bundan dolayı önemli bir enerji taşıyıcısıdır ve iyonizasyon, ayrışma, plazma kimyası ve gaz ısınması kadar önemli mekanizmalarda bulunarak azot plazmalarında aktif rol oynar (Ricard vd., 2013). N₂(A), nitrojen deşarjı kontrol eden temel işlemlerde merkezi bir rol oynamakla birlikte ana enerji depolamasının elektronik metasable ile olmayıp N₂(X¹∑_g⁺) halinin titreşim seviyelerinde olduğu görülmektedir (Guerra vd., 2001). Bununla birlikte özellikle metalik nitrürlemede kullanılan nitrojen moleküllerinin ayrışması ile oluşan N atomları, nitrojen plazmalarında kolaylıkla üretilir. N_{2^+} ($B^2 \sum_{u}^{+} \longrightarrow X^2 \sum_{g}^{+}$) geçişlerinin gözlenmesi de N_{2^+} 'nın bolca oluştuğunu göstermektedir (Loureiro vd., 2001). Azot plazması içinde üretilen bu farklı parçacık türlerinin incelenmesi, düşük basınç ve atmosferik basınç azot ışıldamalı (glow) deşarj içindeki N_2 , N_2^+ , N^+ , ve N gibi türlerin karakteristik emisyonları ve sayısal hesaplamaları incelenmiştir (Zhang vd., 2008; Ricard vd., 2015; Rankovic vd., 2015; Hrycak vd., 2012).

Azot (Nitrojen) plazması içindeki N2 ve N türleri güçlü kimyasal aktiviteye sahip oldukları için yeni fonksiyonel ve mekanik malzemelerin sentezinde oldukça önemli rol oynamaktadırlar. Saf azot gazı ya da azot gazını karışım olarak kullanan gazlar ile üretilen soğuk plazmalar düşük basınçta ve atmosferik basınçta farklı plazma üretim teknikleri ile üretilmiş ve farklı uygulamalarda kullanılmıştır. Anti-mikrobiyal düşük yoğunluklu polietilen (polyethylene) filmlerin ve hidrofilik (hyrophilic) polimer yapıların üretiminde (Karam vd., 2016), hidroksil selüloz (Hydroxyethyl cellulose) filmlerin işlenmesinde (Mahmoud, 2016), nano-tel ve nano-parçacık içeren GaN nanoyapı üretiminde (Gholampour vd., 2015), ultra ince Germanyum oxynitride (GeO_xN_y) tabakaların üretiminde (Lai vd., 2016), paslanmaz celik içinde CrN tabakaların incelenmesinde (Mändl vd., 2014), gate oksit filmlerin azot plazması ile işlenmesinde (Choi ve Park, 2014), silikon nitrit filmlerin depolanması için yüksek aktiviteli azot plazma kaynağı üretiminde (Shi vd., 2016), azot plazma uygulamasıyla amorf SiO₂ nano-parçacıkların yüzey modifikasyonunda (Pan vd., 2016), Sm₂O₃ yapıların azot plazma implantasyonu ile uygulanılmasında (Wang vd., 2015), azot plazma iyon implantasyon ile işlenilen NiTi tellerin üretiminde (Santos vd., 2016), NiMoNb yapıların indüktif azot plazma ile işlenmesinde (Bang, 2016), azot plazma işleme ile N içeren ZnO tek kristal üretiminde (Wang vd., 2015), azot plazma işlenimi ile N içeren karbon nano-tüp halı üretiminde (Subramanian vd., 2014), azot plazma imersiyon iyon implantasyon ile paslanmaz çelik yüzeylerin modifikasyonunda (Castro-Colin vd., 2016), indiyum kalay oksit (ITO) filmlerin azot plazması ile işlenmesinde (Praveen vd., 2015), üç boyutlu hydroxyapatite/chitosan yapıların azot plazması ile oyulma (etching) işlemlerinde (Myung ve Kim, 2016), azot içeren amorf karbon (a-C:N) filmlerin üretiminde (Maddia vd., 2015), grafen (graphene) ve grafit (graphite) üzerine azot plazması uygulamalarında (Bertoti vd., 2015), azot plazma işlenmesi ile polyacrylonitrile copolymer yapıların yüzey modifikasyonu çalışmasında (Pal vd., 2015), SiO₂/4H-SiC yapıların azot plazması ile işlenmesinde (Modic vd., 2014), elmas yapı karbon (Diamond Like Carbon) üretiminde (Khatir vd., 2015), azot plazmasıyla Ta₂O₅ filmlerinin tavlanması (Alers, 1998) gibi farklı çalışmalar, düşük basınç azot ve azot gazı karışımları ile üretilen soğuk plazmaların materyal işlemesi uygulamalarına örnek olarak verilebilir.

Düşük basınçta azot gazı plazmaları materyal işlemede en çok nitrürleme olarak adlandırılan uygulamalarda kullanılmaktadır. Düşük basınç azot ve azot gazı karışımları ile üretilen plazmalar ile nitrürleme; vakum ortamında ve 400-560 °C sıcaklık aralığında uygulanan bir nitrürleme yöntemidir. Burada genelde uygulama yapılacak numune azot plazması içine sokulur ve azot iyonları ile yüzeyin yapısında değişim meydana gelir. Plazma nitrürlemenin önemli avantajları vardır. Azot plazması ile uygulama yapılan yüzeyler pürüzsüz olur ve uygulama sonrasında taşlama ihtiyacı ortadan kalkar. Nispeten derin mesafede numune içine nüfuz olur. Uygulanan malzemenin mekanik özelliklerinde de iyileşme sağlanır. Korozyon ve kaynak işlemlerine dayanıklı numuneler üretilir. Uygulama vakum ortamında gerçekleştiğinden ısınma homojen olmakta, soğuma sırasında da düşük soğuma hızı sayesinde ısıl gerilmeler nedeni ile çarpılma riski en aza inmektedir. Plazma nitrürleme sonrası boyutsal değişim ihmal edilecek düzeydedir. Çelik, dökme demir, paslanmaz ve sinterlenmiş çelikler plazma ile nitrürlenebilir ve malzeme özellikleri düşük sıcaklıklarda nitrür tabakasının elde edilebilmesi, hassas malzemelerin de işlem görebilmesine olanak tanır. Plazma nitrürleme ile elde edilen beyaz tabaka daha yoğun ve gözeneksizdir. Dolayısıyla dişli malzemelerde aşınma dayanımı, dayanıklılık ve yorulma mukavemeti önemli oranda artar. Nitrürlenmis yüzeyin oksidasyonu ile korozyon dayanımı önemli oranda iyileştirilir. Bu işlem uzun yıllardır otomotiv endüstrisinde uygulanmaktadır. Malzeme yüzeyinde kararlı demir oksit fazı oluşturulur. Korozyon, Aşınma (abrazif, adhesif, erosif), yorulma ile birlikte mukavemet problemlerinin çözümünde plazma nitrürleme etkin bir işlemdir. Yüksek performanslı dişli uygulamalarında (dişli kutularında, hassas dişlilerde), valflerde, iticilerde ve hidrolik pistonlarda yüksek tekrarlanabilirlik özellikleri nedeni ile tercih edilmektedir (Anonim, 2018). Teknolojik olarak son derece yaygın olan plazma ile nitrürleme bilimsel çalışmalarda da oldukça fazla çalışılmıştır (Zheng vd., 2017; Li ve Lei, 2017; Jin vd., 2016).

Düşük Basınç Azot ve Azot Gazı Karışımları ile üretilen soğuk plazmalar ile tıp ve biyomedikal alanında uygulamamalar yapılmıştır. Soğuk plazmaların gram pozitif ve gram negatif bakteri, mantar, virüs, spor gibi farklı parazit ve patojen birçok mikroorganizmayı etkisiz hale getirici ve yok edici etkileri kanıtlanmıştır. Neredeyse hiç ısı etkisi üretmeyen soğuk plazmaların bakteriler üzerinde yok edici etkisi yepyeni bir yöntemdir. Bu kimyasal yöntemlerle sterilizasyon tekniklerinden de çok farklıdır. Kimyasal yöntemler, zararlı kimyasal atıklar ürettiği için hem kullanıcıya zararları vardır hem de uygulama yapıldıktan sonra uygulama sahası uzun süre havalandırılmalıdır. Bu hem vakit hem de iş gücü kaybıdır. Soğuk plazmalar uygulama yöntemine göre fiziksel ve kimyasal zararlar oluşturmadığından, doğrudan canlılar üzerine uygulama yapılabilmektedir. Bu nedenle canlı üzerindeki bakterilerin sterilizasyonunda dahi kullanılmaktadırlar. Soğuk plazmalar ile son derece kısa uygulama zamanlarında farklı türde bakteriler etkisiz hale getirilebilmektedir. Soğuk plazmalar oda sıcaklığı kadar düşük sıcaklıkta plazma ürettikleri için, bakterilerin kendisine veya bakterilerin olduğu ortama sıcaklık etkisi aktarmamaktadırlar. Bu nedenle sıcaklığa hassas ortamların sterilizasyonunda önemli bir metot olmaktadır. Son yıllarda polimer tabanlı (çabuk eriyen) tıbbi elektronik cihazların sterilizasyonu büyük önem arz etmektedir. Örneğin insan vücudu içinde hareket eden mikro kameralar veya diğer pahalı tıbbi cihazlar, bir hastada kullanıldıktan sonra steril edilemediği için diğer bir hasta üzerinde yeniden kullanılamamaktadır. Bu, yüksek ısı fırınları ile sterilizasyon yapılması sebebiyledir. Bu şekilde yüksek ısı fırınlarında steril edilemeyen pek çok tıbbi, askeri, biyomedikal cihazlar soğuk plazmalar ile steril edilebilmektedir. Plazma ile sterilizasyon ayrıca herhangi toksik atık ya da radyasyon etkisi yapmamaktadır. Ayrıca maliyet açısından da oldukça ekonomiktir. Bununla birlikte bugün kullanılan klasik sterilizasyon teknikleri ile kolayca öldürülemeyen mikroorganizmalar da plazma ile öldürülebilir. Örneğin deli dana hastalığına sahip olan bir et yüksek ısılarda dahi pişirilse ölmemektedir. Ancak plazma ile kısa sürede öldürülebilmektedir. Kuş gribi, sars virüsü ve şarbon gibi insanlığı tehdit eden biyolojik silah etkisi gösterebilecek durumlarda da soğuk plazmalar kullanılabilecektir (Akan, 2014).

Soğuk plazmaların canlı (ökaryot) hücreler üzerinde belirli bir doza kadar nekroz ve apoptozis yapmadığı gözlenmiştir. Bununla birlikte özellikle cilt üzerinde neredeyse hiçbir zararı bulunmamaktadır. Bu nedenle yukarıdaki birçok bakteri insan üzerinde bulunduğunda da steril edilebilir. Bu özellikle hastane, okul, kreş ve uçaklarda çok önemli bir uygulama olacaktır. Bununla birlikte yine üretilen plazma türü ve uygulama dozuna göre kan bankalarında depolanan kanlar ve insan vücudundaki kanın sterilizasyonu söz konusu olmaktadır. Organ naklinde kullanılan organların da sterilizasyonu yapılabilir. Soğuk plazmalar diş çürüğü tedavisi, yara ve yanık tedavisi, cilt yenileme ve sivilce-leke temizleme, kan pıhtılaştırma ve yara kapatma işlemlerinde başarıyla uygulanmıştır (Akan, 2014). Bununla birlikte plazma tıp konusunda çok sayıda araştırma makalesi ve kitap yayınlanmıştır (Akan, 2007; Morris vd., 2009; Laroussi vd., 2008; Laroussi ve Akan, 2007; Laroussi, 2009; Laroussi vd., 2012; Fridman ve Friedman, 2012).

Plazma tıp uygulamalarında genelde Helyum, Argon gibi soy gazlar içine oksijen karışımı kullanılmaktadır. Ancak yalnızca azot gazı kullanımı ya da farklı gazlarla azot karışımının oluşturduğu gazların plazmaları da plazma tıp uygulamalarında oldukça fazla çalışılmıştır (Gomathi vd., 2015; Ulbin-Figlewicz vd., 2015; Cui vd., 2016; Crofton vd., 2016).

Düşük basınç plazmaları çalışmalarında vakum pompası, vakum odası ve vakum ölçüm cihazları gibi pahalı ve sistemin kurulmasında hem maliyet açısından hem de teknik anlamda zorluklar vardır. Bu nedenle atmosfer ortamında atmosferik basınç plazmaları üretilmektedir. Atmosferik basınç plazmalarında vakum odası, vakum pompası ve vakum ölçüm cihazları kullanılmadığı için sistemler oldukça kolay üretilebilmektedir. Maliyet de oldukça düşmektedir. Ancak yüksek basınçlarda daha yüksek elektrik voltajı uygulamak gereklidir. Bunun için frekansı yüksek alternatif akım güç kaynakları düşük maliyetleri nedeniyle tercih edilmektedir. Atmosferik basınç plazmalarında "jet" olarak adlandırılan plazma sistemleri son yıllarda daha çok tercih edilmektedir. Plazma jetlerde elektrotlar arasında üretilen plazma, elektrotlar arasından çıkarıldığı için numunenin üzerine doğrudan uygulama şansı olmaktadır. Ayrıca elektrotlar arasındaki yüksek elektrik alandan da korunulmuş olunmaktadır. Fizik açısından ise elektrotlar arasından çıkarılan parçacıkların yaşam süreleri kontrol edilerek istenilen yüzeye istenilen plazma parçacığı ile uygulama şansı sağlamaktadır. Bu farklı uygulamalarda avantajlar sağlamaktadır. Örneğin plazma ile bakteri sterilizasyonunda aktif oksijenin önemli rol yaptığı bilinirken kaplama gibi uygulamalarda aktif oksijen istenilmeyen etkiler üretebilmektedir. Dolayısıyla atmosferik basınç plazma jetler numune üzerine uygulanmak istenilen plazma parçacığının kontrol edilmesine olanak sağlamaktadır. Atmosferik basınç plazmaları ve atmosferik basınç plazma jetleri daha çok helyum ve argon gibi gazlarla üretilirken azot gazı atmosferik basınç plazmalarının son derece farklı uygulamaları yapılmıştır. Atmosferik basınç ve atmosferik basınç plazma jetleri önemli uygulamalardan birisi ziraat çalışmalarında tohum üzerine azot gazı plazma uygulamasıdır. Azot gazı plazmalarında üretilen NO, tohumun filizlenmesinde ve yeşermesinde avantajlar sağlamaktadır (Ji vd., 2015). Bununla birlikte atmosferik basınç azot plazma jetlerinin plazma tıpta uygulanması son derece önemli olmuştur. Atmosferik basınç azot plazma jet, bakteri üzerine (Xiao vd., 2016) ve canlı insan hücresi üzerine (Bekeschus vd., 2015) uygulanmıştır. Gerek tohum gerekse bakteri ve canlı insan hücresi üzerine atmosferik basınç azot plazmaları uygulamaları, azot plazmalarının O, N, $O_2^*(^1\Delta)$, O₃, OH, NO, H₂O₂, O₂⁻, N₂O, HNO₂ gibi radikal (reaktif) oksijen ve reaktif azot türleri üretmesinden dolayıdır. Bu parçacık türlerinin incelenmesi de atmosferik basınç azot plazmaları çalışmalarının temel konusu olmuştur (Wagenaars vd., 2012; Lu ve Wu, 2013; Akishev vd., 2015; Huai vd., 2014; Léoment vd., 2014). Atmosferik basınç azot plazma jet içinde moleküler dönme sıcaklığının hesaplaması yapılmıştır (Belevtsev vd., 2004). Atmosferik basınç azot plazma jetleri materyal uygulamalarında da çalışılmıştır. Poly (dimethylsiloxane) üzerine azot plazma jet uygulama ile, damla testinde en küçük açı azot plazma jet ile elde edilmektedir (Kim vd., 2012). TiA₆V₄ titanyum alaşım üzerine azot plazma jet uygulama, ıslanabilirlik (wettability) ve yüzey enerji değişimi meydana getirmektedir (Panousis vd., 2007). Islanabilirlik özellikle tekstil sektöründe kumaşların boyanması ve boyanın kumaş üzerine daha uzun süre kalması için yapılan bir işlemdir. Azot plazma jetlerin kumaş üzerine uygulaması ıslanabilirlik açısından iyi sonuçlar vermektedir. Azot gazı kullanılarak plazma ile nitrürleme daha çok düşük basınçta gerçekleştirilse de atmosferik basınç plazma jetleri ile de azot gazı kullanılarak plazma nitrürleme gerçekleştirilmektedir (Nagamatsu vd., 2013). Atmosferik basınçta azot gazı plazma jet ile mikro-gözenekli N-katkılı karbon film (Li vd., 2014) ve SnO_x filmlerin azot plazma jet ile tavlanması (annealing)'da yapılmıştır (Lin vd., 2015).

Azot gazı deşarjları, uygulamada ve fiziksel ve kimyasal olayların incelenmesinde son derece önemli sonuçlar çıkardığı için bu çalışmada azot gazı deşarjları farklı koşullarda üretilerek özellikleri incelenmiştir.

3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1. Deneysel Sistem

Bu bölümde azot gazı deşarjlarını üretmek ve azot gazı deşarjlarının optik emisyon özelliklerini incelemek için kurulan düşük basınç ve atmosferik basınç plazma üretim sistemleri için gerekli olan sistem tasarımları ve gerekli cihazlar açıklanmıştır. Deneysel çalışmalarda kullanılan sistemler ESOGÜ Soğuk Plazma Laboratuvarı'nda imal edilmiştir.

3.1.1. Düşük basınç azot gazı deşarjı üretim sistemi

Düşük basınçta azot gazı deşarjının üretilmesi için kullanılan deneysel sistemin fotoğrafı Şekil 3.1.'de, sistemin şematik gösterimi ise Şekil 3.2.'de verilmiştir.



Şekil 3.1. Düşük basınç azot gazı deşarj üretim sisteminin fotoğrafı.



Şekil 3.2. Düşük basınç azot gazı deşarj üretim sisteminin şematik gösterimi.

Düşük basınçta azot gazı deşarjlarının üretimi için vakum odası olarak 2 mm kalınlıkta 500 mm x 150 mm ölçülerinde pyrex (borosilikat) bir cam reaktör kullanılmıştır. Camlar arası vakum sızdırmazlığını sağlamak için 60 mm iç çaplı 80 mm dış çaplı 10 mm et kalınlıklı ölçülerde paslanmaz çelik flanşlar kullanılmıştır. Flanşların arasında vakum sızdırmazlığı için orijinal Edwards marka çember yüzük (O-ring) ve merkezleme yüzüğü (Centered-ring) kullanılmıştır. Gaz girişi için 6,5 mm çaplı pnömatik hortum kullanılmıştır. Gaz girişi ve pnömatik hortum arasında vakum sızdırmazlığı sağlamak için düşük basınçta kullanılabilen seramik yapıştırıcı (Varian Torr Seal) kullanılmıştır. Gaz akış miktarını ölçmek için Mass-Stream (M+W Instruments, 0-6,5 l/dk) marka dijital gaz akışölçer (flowmetre) kullanılmıştır. Gaz akışölçerin bir ucu sistemin gaz girişine, diğer ucu azot gazı tüpüne (Habaş %99,999 saflıkta) bağlıdır. Vakum odasını vakumlamak için çekiş gücü 9,7-11,7 m³/saat olan 10⁻⁴ mbar basınca kadar vakumlama yapabilen mekanik vakum pompası (Edwards RV-8) kullanılmıştır. Vakum odasının basınç değerini takip etmek için dijital basınç okuyucu (Edwards Digital Gauge Controller, <10⁻⁴ mbar) ve basınç ölçer cihazı (Edwards APG100-XM) kullanılmıştır. Üretilen deşarjların spektroskopik özelliklerini incelemek için spektrometre (Ocean Optics USB 2000+), fiber optik kablo ve bilgisayar programı kullanılmıştır (OceanView). Sistemin içinde 4 mm çaplı 10 mm kalınlıkta demir

elektrot kullanılmıştır. Alternatif akım güç kaynağı olarak voltaj değeri 6-18 kV arasında ve frekans değeri 13-20 kHz arasında ayarlanabilen alternatif akım güç kaynağı (ELES HV-711GK4) kullanılmıştır. Doğru akım güç kaynağı olarak 8-11 kV arasında ayarlanabilen DC-yüksek gerilim kaynağı (ELES MK-711-GK9) kullanılmıştır. Sistemin dik ve sağlam bir şekilde durabilmesi için metal ayak ve sert plastik malzemeler kullanılmıştır. Bununla birlikte vakum bağlantıları için orijinal Edwards marka kelepçe, boru ve vanalar kullanılmıştır. Sistem içinde üretilen gazlar, vakum pompasının gaz tahliye hortumu ile çeker ocağa gönderilmiştir ve deneyler sırasında çeker ocak sürekli çalıştırılmıştır.

Düşük basınç ve atmosferik basınç azot gazı deşarjları AC voltaj ve DC voltaj kullanılarak üretilmiştir. Şekil 3.3.'te AC güç kaynağının tasarımı, Şekil 3.4.'te osiloskop çıktısı ve Çizelge 3.1.'de özellikleri verilmiştir. 220 V alternatif akım ile çalışabilen AC güç kaynağının frekans değeri 13-20 kHz frekans aralığında ayarlanabilir ve 6 kV, 12 kV, 18 kV değerlerinden birisinde voltaj verebilir şekilde ayarlanabilmektedir. Güç kaynağını korumak için arkasında bir adet soğutma fanı ve güç kaynağının yüksek akım çekmesini önlemek için 1 amper sigorta bulunmaktadır.



Şekil 3.3. AC güç kaynağının tasarımı.



Şekil 3.4. AC güç kaynağının osiloskop çıktısı.

Özellik	Değer
İşletme Gerilimi	1 faz 1 nötr, 220 V-240 V
Trafo Gücü	80 W
İşletme Frekansı	50 Hz
Gecikme Zamanı	10 ms
Ortam Sıcaklığı	−5 °C-50 °C
Çıkış Frekansı	13-20 kHz
Çıkış Gerilimi	6-18 kV (t-t)
Koruma Sınıfı	IP 20
Boyutlar	280x220x100 m ³

Çizelge 3.1. AC güç kaynağının özellikleri.

Deneylerde kullanılan DC güç kaynağının şematik çizimi Şekil 3.5.'te, ve özellikleri Çizelge 3.2.'de verilmiştir. Doğru akım güç kaynağı 8 kV, 9 kV, 10 kV, 11 kV çıkış gerilimi verebilir şekildedir. 220 V alternatif akımla çalışabilen doğru akım güç kaynağını soğutmak için arkasında bir adet fan bulunmaktadır. Yüksek akım çekmesine karşı 1 amper değerinde sigortası vardır.



Şekil 3.5. DC güç kaynağının tasarımı.

Özellik Değer	
İşletme Gerilimi	1 faz 1 nötr, 220 V-240 V
Trafo Gücü	80 W
İşletme Frekansı	50 Hz
Gecikme Zamanı	1 ms
Ortam Sıcaklığı	−5 °C-50 °C
Çıkış Gerilimi	8-9-10-11 kV (yüke ve çıkış
	kablosuna bağlı)
Koruma Sınıfı	IP 20
Ağırlık	~3 kg
Boyutlar	$280x220x100 \text{ m}^3$

Çizelge 3.2. DC güç kaynağının özellikleri.

Güç kaynaklarının osiloskop çıktılarını almak için 1 V/1 kV'luk yüksek voltaj probu (PINTEK HVP-40 model) ve 40 MHz'lik osiloskop (FEEDBACK OS-9040 D) kullanılmıştır. Üretilen azot gazı deşarjlarının spektroskopik incelenmesinde Şekil 3.6.' da fotoğrafı verilen optik emisyon spektroskopisi kullanılmıştır. Bunun için Ocean Optics marka USB 2000+ model spektrometre, Ocean Optics marka fiber kablo, bilgisayar ve OceanView bilgisayar yazılımı kullanılmıştır. Kullanılan spektrometre 200-1100 nm ölçüm aralığına sahiptir. Spektrometre bilgisayara USB girişi üzerinden bağlanılmaktadır. Fiber kablo ölçüm alınacak bölgeye güvenli bir mesafede sabit tutularak ölçüm alınmıştır. Bilgisayar yazılımı üzerinden spektrometrenin 1 ms ile 60 s arasında istenilen süre kadar fotonları toplamasına izin verilebilmektedir. Bu tez çalışmasında alınan ölçümlerde bu süre 1 s olarak ayarlanmıştır. Çizelge 3.3.'te optik emisyon spektrometresinin özellikleri verilmiştir.

Cizelge 3.3. Optik emisyon spektrometresinin özellikleri.

<u></u>	
Spektrometre Türü Atomik emisyon spektrometresi	
Marka – Model	Ocean Optics–USB 2000+
Detektör Tipi ve Ölçüm Aralığı	Lineer silikon CCD, 200-1100 nm
Giriş Sliti	25 μm
Piksel Sayısı ve Boyutu	2048-14 μm x 200 μm
Optik Çözünürlük	2,1 nm
Heggeslik	400 nm'de 75 foton/sayım, 600 nm'de
Hassastik	41 foton/sayım
Odak Uzaklığı	42 mm giriş, 65 mm çıkış
Integration Time (Birleştirme Süresi)	1 ms-60 s



Şekil 3.6. Optik emisyon spektrometresi.

3.1.2. Atmosferik basınçta azot gazı deşarj üretim sistemi

Azot gazının atmosferik basınçta plazmasının üretimi için Şekil 3.7.'de fotoğrafi ve Şekil 3.8.'de şematik çizimi verilen sistem kullanılmıştır. Burada kullanılan atmosferik basınç plazma sistemi plazma jet olarak bilinir.



Şekil 3.7. a) Atmosferik basınç azot gazı plazma üretim sistemi fotoğrafi, b) plazma jet sistemi fotoğrafi.



Şekil 3.8. Atmosferik basınç azot gazı deşarj üretim sisteminin şematik çizimi.

Azot gazının boğucu etkilerinden korunmak için sistem çeker ocak içine kurulmuştur. Atmosferik basınç plazma jet oluşturmak için 50x25x37 mm ölçülerinde bir

mika parça içine "T" şeklinde olacak biçimde kuvars cam borulardan sistem oluşturulmuştur. Kuvars cam boruların bir ucundan gaz girişi sağlanırken diğer uçlarından birisi tungsten elektrot için ve diğer ucu da plazma jet çıkışı içindir. Plazma jet çıkışı olan kuvars cam boru mika parçadan 85 mm dışarıya uzanmaktadır. Kuvars cam boruların dış çapı 6 mm, iç çapı 4 mm'dir. Tungsten telin kalındığı 0,5 mm'dir ve tungsten tel, kuvars boru içinde plazma jet çıkış ucundan yaklaşık 3 mm içeriye kadar uzanmaktadır. Sistemin gaz girişine gaz akış miktarını kontrol etmek için 2-10 l/dk ölçekli bir gaz akışölçer (LZT M-6 flowmetre) bağlıdır. Gaz akış ölçer, sistemin gaz girişine ve çeker ocağın gaz çıkışına dış çapı 10 mm, iç çapı 6 mm olan pnömatik hortumlarla bağlıdır. Sisteme gaz sağlanması için azot gazı tüpü (Habaş %99,999 saflıkta) kullanılmıştır. Bu gaz tüpü ile çeker ocak arasındaki bağlantı 6,5 mm çaplı pnömatik hortum ile sağlanmıştır. Sistemin güç beslemesi için yukarıda detayları verilen voltaj değeri 6-18 kV arasında ve frekans değeri 13-20 kHz arasında ayarlanabilen alternatif akım (AC) güç kaynağı (ELES HV-711GK4) kullanılmıştır. Plazmanın spektroskopik özelliklerini incelemek için yukarıda detayları verilen 200-1100 nm aralığında çalışabilen spektrometre (Ocean Optics USB2000+), fiber optik kablo ve bilgisayar programı (OceanView) kullanılmıştır. Sistemin dik durabilmesi ve ölçümlerin kolay yapılabilmesi için yüksekliği ayarlanabilir demir stant ile desteklenmiştir. Demir stant ile sistem arasında elektrik kaçağı olmaması için sistem stantta elektriği iletmeyen mika parçadan sabitlenmiştir. Yüksek voltaj güç kaynağının yüksek potansiyel kutbu tungsten tele toprak ise cam borunun dışına bağlanmıştır. Azot gazı tüpünden gönderilen gaz, gaz akış ölçerden okunarak deşarj tüpü içine gönderilmiştir. Bu durumda elektrotlar arasına AC voltaj uygulandığında elektrotlar arasında azot gazı deşarjı üretilmektedir. Azot gazı akışı belli bir değerde ayarlanınca elektrotlar arasındaki azot gazı deşarjı atmosfer ortamına jet olarak çıkmaktadır.

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

Bu bölümde bölüm 3'te verilen sistemlerde düşük basınç ve atmosferik basınçta üretilen azot gazı soğuk plazma deşarjlarının üretimi ve görsel ve spektroskopik incelenmeleri verilmiştir.

4.1. Düşük Basınçta Azot Gazı Deşarj Üretimi

Düşük basınç azot gazı deşarjları DC voltaj güç kaynağı ve AC voltaj güç kaynağı kullanılarak üretilmiştir.

4.1.1. Doğru akım (DC) güç kaynağı ile azot gazı deşarj üretimi

DC deşarjlarda glow deşarjlar için Breakdown voltajının değeri,

$$V_B = \frac{A_1(pd)}{A_2 \ln(pd)} \tag{4.1}$$

eşitliği ile hesaplanabilir. Burada A₁ ve A₂ deneysel olarak elde edilen birer sabit, p; gaz basıncı ve d; elektrotlar arası uzaklıktır (Remy vd., 2003). Şekil 4.1.'de görüleceği gibi, glow deşarjın oluşması için elektrotlar arasına uygulanan potansiyel farkı, deşarj oluştuktan sonra anot ile katot arasında eşit olarak dağılmaz, üç parçaya ayrılır fakat neredeyse tümüyle katodun birkaç milimetre önüne düşer. Katot-anot arası uzaklık örneğin 100 Pascal argon gazında 1-10 cm olduğunda, elektrotlar arasında; Aston karanlık bölgesi, Katot ışıltısı, Katot karanlık bölgesi, Negatif ışıltı, Faraday karanlık bölgesi, Pozitif kolon, Anot karanlık bölgesi, Anot ışıltısı gibi elektromanyetik radyasyon yayınlayan ve yayınlamayan bölgeler ortaya çıkar.



Şekil 4.1. DC glow deşarjda elektrotlar arasındaki elektrik ve potansiyel alan dağılımı ile yük ve akım yoğunlukları değişimi (Remy vd., 2003).

Farklı düşük basınç değerlerinde DC voltaj kullanılarak üretilen azot gazı deşarjlarının fotoğrafları Şekil 4.2.'de verilmiştir.



Şekil 4.2. Düşük basınç DC Azot gazı deşarj fotoğrafları.

Şekilde pembe-mor bölgede negatif ışıldamalar, turuncu-kırmızı bölgede ise pozitif kolon görülmektedir. Şekil 4.1.'de verilen diğer bölgeler de farklı basınçlarda gözlenmiştir. Katot değiştirildiğinde negatif ışıldamanın yer değiştirdiği, bununla birlikte basınç düştükçe pozitif kolonun uzadığı belirlenmiştir.

4.1.2. Alternatif akım (AC) güç kaynağı ile azot gazı deşarj üretimi

DC deşarjlarda uygulanan elektrik alan anottan katoda doğru sabit olduğu için iyonlaşma ile birlikte bir süre sonra katottan ikincil elektron sökülerek deşarj üretilir. AC deşarjlarda elektrik alan yönü frekans ile değiştiği için katottan ikincil elektron sökülmesi olmadığı için üretilen deşarjın karakteristikleri farklı olur. AC voltaj uygulandığında şiddetli voltaj, yön değiştirerek elektronların çarpışma sayısını artırarak daha çok iyonlaşma ile deşarj üretilir. Bu nedenle elektrotlar arasında katot ve anot ışıltısı ve elektrotlar arasında pozitif kolon oluşur. Düşük basıncın belirli değerinden sonra pozitif kolon içinde aydınlık (ışıltılı) ve karanlık bölgeler oluşur. Şekil 4.3.'te 18 kV-15 kHz AC güç kaynağı ile farklı azot gazı akış hızı ile farklı basınçlarda üretilen azot gazı deşarjlarının fotoğrafları verilmiştir. Plazma potansiyeli, pozitif kolonu üzerinde kalırken basınç yükselmesi plazma akımını arttırırken (akım yoğunluğunu korumak için) basıncın daha yüksek değerlerinde plazma potansiyeli pozitif kutup (yüksek potansiyel) bölgesine geçmiş ve negatif kutup (alçak potansiyel-toprak) bölgesinde plazma sönümlenmiştir.



Şekil 4.3. Farklı basınçlarda üretilen AC Azot gazı deşarjlarının fotoğrafları.

Azot gazı DC deşarjlarında çok sayıda farklı özelliklere sahip bölge olduğu için tutarlı spektroskopik analizler yapmak oldukça zordur. Bu nedenle spektroskopik analizler

AC azot gazı deşarjların pozitif kolon bölgesinden alınmıştır. AC deşarjlarda basıncın farklı değerlerinde plazma yapı değiştirdiği gibi elektrotlar arasındaki plazma da, elektrotlar üzerindeki kenarlar nedeniyle zaman zaman salınımlar yapmaktadır. Ayrıca elektrotlar arasındaki pozitif kolon olarak tanımlanan plazma içinde de aydınlık ve karanlık bölgeler spektrum sonuçlarını etkilemektedir.

Azot gazı deşarjlarında elektronlarla birlikte taban durumundaki azot molekülleri $N_2(X^1\Sigma_g^+, v = 0)$, titreşim uyarılmış moleküler azot $N_2(X^1\Sigma_g^+, v = 1 - 6)$, metastable moleküler azot $N_2(A^3\Sigma_u^+)$, taban durumunda atomik azot $N(^4S)$, metastable atomik azot $N(^2D)$ ve $N(^2P)$ ve N^+, N_2^+, N_3^+ ve N_4^+ gibi pozitif iyonlar bulunur. Azot deşarjları içindeki azot molekülleri ve azot atomları elektronlarla ve birbirleriyle sürekli çarpışmalar yapmaktadır. Bu çarpışmalar sonucu birçok atom ya da molekül yeni iyonlaşmalar yaparken birçoğu da uyarılarak foton yayınlar. Azot gazı deşarjları içinde meydana gelebilecek bazı elektron çarpışmaları ve plazma içi parçacık çarpışmaları sonucu oluşabilecek reaksiyonlar eşitlik 4.2-4.16'da verilmiştir.

$$N_2(X^1\Sigma_g^+) + e \to N_2(C^3\Pi_u) + e \tag{4.2}$$

$$N_2(X^1\Sigma_g^+) + e \to N_2(A^3\Sigma_u^+) + e \tag{4.3}$$

$$N_2(A^3\Sigma_u^+) + e \to N_2(C^3\Pi_u) + e$$
(4.4)

$$N_2(A^3\Pi_u^+) + e \to N_2(B^3\Pi_g) + e$$
(4.5)

$$N_2(A^1\Sigma_g^+) + e \to N_2^+(B^2\Sigma_u^+) + 2e$$
(4.6)

$$N_2(A^3\Sigma_u^+) + e \to N_2^+(X^2\Sigma_g^+) + 2e$$
 (4.7)

$$N_2^+ \left(X^2 \Sigma_g^+ \right) + e \to N_2^+ \left(B^2 \Sigma_u^+ \right) + e \tag{4.8}$$

$$N_2(A^3\Sigma_u^+) + N_2(A^3\Sigma_u^+) \to N_2(C^3\Pi_u, B^3\Pi_g) + N_2(X^1\Sigma_g^+)$$
(4.9)

$$N_2^+(X) + N_2(X, \nu > 12) \to N_2^+(B) + N_2(X, \nu - 12)$$
(4.10)

$$N_2(X, v = 0) + e \to N_2^+(X, v^i) + 2e$$
(4.11)

$$N_2(X, v = 0) + e \to N_2^+(B, v^i) + 2e$$
(4.12)

$$N_2(C, v^i) \to N_2(B, v^{ii}) + hv$$
 (4.13)

$$N_2^+(B, v^l) \to N_2^+(X, v^{ll}) + hv$$
 (4.14)

$$N_2(A^3\Sigma_u^+) + N(^4S) \to N_2(X^1\Sigma_g^+, 6 \le v \le 9) + N(^2P)$$
(4.15)

$$e + N_2(X^1\Sigma_q^+, v = 0) \to e + N(^4S) + N(^2D)$$
 (4.16)



Azot gazı deşarjlarında atom ya da moleküllerde çarpışmalar nedeniyle meydana gelebilecek enerji değişimleri Şekil 4.4.'teki azot enerji diyagramından görülebilir.

Şekil 4.4. Azot gazı temel parçacıklarının enerji diyagramı (Guerra vd., 2006).

Azot gazı deşarjlarında ortaya çıkan bilinen uyarılmış atom geçişleri Çizelge 4.1.'de verilmiştir.

(Kamnan vu., 2004, Pananna vu., 2017).			
Plazma	λ (nm)	Geçiş	Uyarılma
Bileșeni			Enerjisi (eV)
NO	204,70	$A^{2}\Sigma^{+}$, (v=2) – X, (v=0)	~5,46
NO	214,80	$A^{2}\Sigma^{+}$, (v=1) – X, (v=0)	~5,46
NO	226,20	$A^{2}\Sigma^{+}$, (v=0) – X, (v=0)	~5,46
NO	236,30	$A^{2}\Sigma^{+}$, (v=0) – X, (v=1)	~5,46
NO	247,10	$A^{2}\Sigma^{+}$, (v=0,) – X, (v=2)	~5,46
NO	258,70	$A^{2}\Sigma^{+}$, (v=0) – X, (v=3)	~5,46
NO	271,30	$A^{2}\Sigma^{+}$, (v=0) – X, (v=4)	~5,46
OH	308,00	$A^{2}\Sigma^{+}$ (v=0), $-X^{2}\Pi$, (v=0)	9,1
N ₂	315,90	$C^{3}\Pi_{u}$, (v=1) – $B^{3}\Pi_{g}$, (v=0)	11,3
N ₂	337,10	$C^{3}\Pi_{u}$, (v=0) – $B^{3}\Pi_{g}$, (v=0)	11
N ₂	353,60	$C^{3} \Pi_{u}$, (v=1) – $B^{3} \Pi_{g}$, (v=2)	11,3
N ₂	357,70	$C^{3} \Pi_{u}$, (v=0) – $B^{3} \Pi_{g}$, (v=1)	11
N_2	370,90	$C^{3} \Pi_{u}$, (v=2) – $B^{3} \Pi_{g}$, (v=4)	11,5
N ₂	375,40	$C^{3} \Pi_{u}$, (v=1) – $B^{3} \Pi g$, (v=3)	11,3
N ₂	380,40	$C^{3} \Pi_{u}$, (v=0) – $B^{3} \Pi g$, (v=2)	11
N_2	399,70	$C^{3} \Pi_{u}$, (v=1) – $B^{3} \Pi g$, (v=4)	11,3
N_2	405,80	$C^{3} \Pi_{u}$, (v=0) – $B^{3} \Pi g$, (v=3)	11
N_2	434,30	$C^{3} \Pi_{u}$, (v=0) – $B^{3} \Pi g$, (v=4)	11
N ₂ ⁺	391,40	$B^{2}\Sigma_{u}^{+}, (v=0) - X^{2}\Sigma_{g}^{+}, (v=0)$	18,7
N ₂ ⁺	427,80	$B^{2}\Sigma_{u}^{+}, (v=0) - X^{2}\Sigma_{g}^{+}, (v=1)$	18,7
N ₂ ⁺	470,90	$B^{2}\Sigma_{u}^{+}, (v=0) - X^{2}\Sigma_{g}^{+}, (v=2)$	18,7
N	746,80	$3s^{4}P - 3p^{4}S^{0}$	11,9
N	870,30	$3s {}^{4}P - 3p {}^{4}D^{0}$	11,8

Çizelge 4.1. Azot gazı deşarjlarında bilinen atomik ve moleküler geçişler (Rahman vd., 2004; Panarina vd., 2017).

Şekil 4.5.'te AC voltaj güç kaynağı ile üretilen AC azot gazı deşarjından farklı basınçlarda pozitif kolon bölgesinden alınan optik emisyon spektrumları, oluşan deşarj fotoğrafları ile birlikte verilmektedir. Spektrometrenin probu deşarj bölgesinden 1 cm uzaklığa sabitlenerek her bir basınç değeri için bu sabit uzaklık ve elektrotların merkezi arasında belirlenen noktadan ölçümler alınmıştır. Görüldüğü gibi azot gazı deşarjının basıncı arttıkça 200-500 nm arasında gözlemlenen N₂ ve N₂⁺ pikleri artmıştır. Düşük basınçta plazmanın hacimsel olarak genişlerken, yüksek basınçlarda daraldığı tespit edilmiştir. Azot gazı deşarjlarında gözlemlenen atomik azot (N), NO ve OH pikleri oldukça zayıf çıkmıştır. Bu pikler Şekil 4.6.'da da görülmektedir.



Şekil 4.5. AC Azot gazı deşarjların farklı basınçlarda optik emisyon spektrumları.

Şekil 4.6.'da 2,5 mbar sabit basınçtaki azot gazına, farklı voltaj ve farklı frekansta AC voltaj uygulandığı zaman aynı noktadan alınan spektrumlar verilmiştir. Görüldüğü gibi gaz üzerine uygulan voltaj veya frekans arttırıldığında daha fazla iyonlaşma olması nedeni ile N_2 ve N_2^+ ve diğer pikler artmıştır. 18 kV sabit uygulama voltajında frekans değişimleri ile 15 kHz sabit frekansta voltaj değişimleri incelenmiştir.



Şekil 4.6. a) Sabit basınçta ve sabit voltajda, uygulama voltajı frekans değişimine ve b) sabit basınçta ve sabit uygulama voltajı frekansında uygulama voltaj değişimine göre azot gazı deşarjlarının optik emisyon spektrumları.

4.2. Atmosferik Basınçta Azot Gazı Deşarj Üretimi

Bu kısımda atmosferik basınç azot gazı plazmaları jet olarak üretilmiştir. Şekil 4.7.'de verildiği gibi, gaz akış hızı arttıkça oluşan jetin uzunluğu doğru orantılı olarak artmıştır. Bununla birlikte jetin aynı uzaklığından alınan spektrumlarda Şekil 4.8.'de verildiği gibi N_2 ve N_2^+ iyonları ile NO ve OH radikallerine ait piklerin arttığı görülmektedir.



Şekil 4.7. Atmosferik basınç azot gazı plazma jetin farklı gaz akış hızlarında fotoğrafları.



Şekil 4.8. Atmosferik basınç azot gazı plazma jetinin aynı noktasından farklı gaz akış hızlarında elde edilen spektrumları.

4.3. Azot Gazı Deşarjlarında Elektron Sıcaklığının Hesaplanması

Düşük basınçta ve atmosferik basınçta üretilen azot gazı deşarjlarında elektron sıcaklığı hesaplamaları da bu kısımda yapılmıştır. Non-LTD plazmalarda Boltzmann iki eğri (Boltzmann two line) metodu ile elektron sıcaklığı yaklaşık olarak hesaplanabilmektedir (Shah vd., 2013). Elektron sıcaklığı için;

$$T_e = \frac{E_2 - E_1}{k} \left[\ln \left(\frac{A_2 g_2 I_1 \lambda_1}{A_1 g_1 I_2 \lambda_2} \right) \right]^{-1}$$
(4.16)

eşitliği kullanılmaktadır. Burada T_e elektron sıcaklığını, E_1 ve E_2 iki farklı seviyenin enerjilerini, λ_1 ve λ_2 dalgaboylarını, I_1 ve I_2 seçilen dalga boylarının ölçülen şiddetlerini, g_1 ve g_2 istatistiksel ağırlıklarını, A_1 ve A_2 ise geçiş olasılıklarını ifade etmektedir. Buna göre düşük basınçta üretilen AC azot gazı deşarjlarının elektron sıcaklığı 6 kV uygulama voltajında 0,61 eV, 12 kV uygulama voltajında ise 0,78 eV olarak hesaplanmıştır. Elektron sıcaklığı hesaplamalarında 747 nm ve 870 nm'de gözlemlenen atomik azot geçişleri, National Institute of Standart Technology (NIST)'den alınan verilerle hesaplanmıştır. Deşarj üzerine uygulanan voltaj arttırıldığında elektron sıcaklığının doğru orantılı olarak arttığı görülmüştür.

Atmosferik basınçta üretilen azot gazı plazma jetin 0,5 cm altından alınan spektrum ile hesaplanan elektron sıcaklığının gaz akış miktarı ile değişimi grafiği Şekil 4.9.'da verilmektedir. Azot gazı akış hızı arttıkça, elektron sıcaklığında lineer bir değişimin olmadığı görülmüştür. Bu sonucun azot gazı atmosferik plazma jetin çeker ocak içinde üretilmesi nedeniyle ortaya çıktığı düşülmektedir. Şekil 4.7.'den de görüldüğü gibi yüksek gaz akış hızlarında jet çeker ocağın üst kısmına doğru çekildiğinden en yakın elektroda doğru eğilmektedir. Burada dışarı çıkan plazma jet, hemen üstte bulunan yüksek potansiyel kutbu ile yeni bir iyonizasyon hattı yapma eğilimindedir. Bu iyonizasyon hattı, yeni türde reaksiyonlar oluşturabileceği için sıcaklık hesaplamalarında bu tarz değişimlerin gerçekleştiği düşünülmektedir.



Şekil. 4.9. Azot gazı atmosferik basınç plazma jetin gaz akış hızına göre elektron sıcaklığı değişimi.

4.4. Azot Gazı Deşarjlarında Elektron Yoğunluğunun Hesaplanması

Düşük basınçta ve atmosferik basınçta üretilen azot plazmasının Eşitlik 4.16 sonucu elde edilen elektron sıcaklığının

$$n_e \approx 10^{18} T_e Z^{7/2} (1/n_a)^2 (2/n_b)^5$$
 (4.17)

eşitliğinde kullanılmasıyla elektron yoğunluğu hesaplanabilir. Burada T_e elektron sıcaklığı, Z atom numarası, n_a ve n_b ise sırasıyla taban durumunu ve uyarılmış durumu ifade eder (Marr, 1968). Bu eşitlikten yararlanarak hesaplanan düşük basınçta üretilen AC azot gazı deşarjlarının elektron yoğunluğu 6 kV AC uygulama voltajında 3,68x10¹⁸ cm⁻³ ve 12 kV AC uygulama voltajında ise 4,70x10¹⁸ cm⁻³ olarak hesaplanmıştır. Atmosferik basınçta üretilen azot gazı plazma jetinde elde edilen elektron yoğunluğu ise 1,14x10¹⁸ cm⁻³ ile 1,87x10¹⁸ cm⁻³ değerler arasındadır.

5. SONUÇ VE ÖNERİLER

Düşük basınçta DC voltaj kullanılarak farklı basınçlarda azot gazı deşarjları üretilmiştir. 8x10⁻¹ mbar ile 2x10⁰ mbar basınçlarda üretilen azot gazı deşarjları fotoğraflanmıştır. DC deşarjlar anot kutup bölgesinde pozitif kolon oluştururken katot ışıltısı ve anot ışıltısı oldukça net görülmüştür. Basıncın düşmesi ile plazma hacmi genişlemektedir. Anot ile katodun yer değiştirmesi sonucu pozitif kolonun cam vakum haznesi içindeki yer değiştirmesi (anoda yakın) gözlemlenmiştir.

18 kV-15 kHz AC güç kaynağı ile farklı azot gazı akış hızı ile farklı basınçlarda üretilen azot gazı deşarjları fotoğraflanmıştır. $9,5x10^{-1}$ mbar basınçta plazma tüm vakum odasını doldururken, $4,2x10^{0}$ mbar basınçtan sonra plazma pozitif kutup (yüksek potansiyel) bölgesine geçmiş ve negatif kutup (alçak potansiyel-toprak) bölgesinde plazma sönümlenmiştir. $1,0x10^{0}$ mbar basınç civarlarında pozitif kolon içinde aydınlık ve karanlık bölgeler oluşmuştur.

AC azot gazı deşarjlarının pozitif kolon bölgesinden alınan spektrumlarda, azot gazı deşarjlarında beklenen N₂, N₂⁺, N, OH ve NO pikleri gözlemlenmiştir. AC voltaj güç kaynağı ile üretilen AC azot gazı deşarjından sabit uygulama voltajı ve sabit uygulama frekansında farklı basınçlarda pozitif kolon bölgesinden optik emisyon spektrumları alınmıştır. Spektrometre deşarj bölgesinden 1 cm uzaklığa yerleştirilmiştir. Azot gazı deşarjı basıncı arttıkça 200-500 nm arasında gözlemlenen N₂ ve N₂⁺ pikleri artmıştır. Düşük basınçta plazmanın hacimsel olarak genişlediği, yüksek basınçlarda ise daraldığı tespit edilmiştir. Azot gazı deşarjlarında gözlemlenen atomik azot (N), atomik oksijen (O), NO ve OH pikleri oldukça zayıf çıkmıştır.

AC azot gazı deşarjlarda 2,5x10⁰ mbar sabit basınçtaki azot gazına farklı voltaj ve farklı frekansta AC voltaj uygulandığı zaman aynı noktadan spektrumlar alınmıştır. 18 kV sabit uygulama voltajında frekans değişimleri ile 15 kHz sabit frekansta voltaj değişimleri incelenmiştir. Sabit basınçta ve sabit uygulama voltajında uygulama frekansı arttığında daha fazla iyonlaşma olması nedeniyle azot ve diğer pikler artmıştır. Benzer şekilde sabit basınçta sabit uygulama voltajı frekansında uygulama voltajı arttıkça daha fazla iyonlaşma olması nedeni ile azot ve diğer pikler artmıştır.

Atmosferik basınç azot gazı plazmaları jet olarak üretilmiştir. Azot gazı plazma jetlerin üretimi oldukça zordur. Buna rağmen 18 kV ve 15 kHz güç kaynağı ile 2 cm'den daha uzun plazma jet üretimi gerçekleştirmiştir. Azot gazı plazma jetin uzunluğu gaz akış hızına bağlı olup, gaz akış hızının artışıyla doğru orantılı olarak artmaktadır. Azot gazı atmosferik basınç plazma jeti atmosfer ortamında üretildiğinden zararlı olabilecek gazlardan korunmak için çeker ocak içinde deneysel çalışmalar yürütülmüştür. Yüksek gaz akış hızlarında jet çeker ocağın üst kısmına doğru çekildiğinden en yakın elektroda doğru eğilmektedir. 4-5 *l*/dk gaz akış hızında en uzun jet gözlemlenmiştir. Ancak eğilme de bu akış hızlarında gerçekleşmiştir. Azot gazı jeti bu akış hızlarında yukarıya doğru eğilirken aynı zamanda yine jetin üst kısmında bulunan yüksek voltaja yönelmek istemektedir.

Atmosferik basınç azot gazı plazma jetin cam borudan çıkış noktasından yaklaşık 1 cm uzaklıktan optik emisyon spektrumu alınmıştır. Spektrumda düşük basınçta gözlemlenmekte zorlanılan N, NO ve OH pikleri daha belirgin çıkmıştır. Azot gazı jetin gaz akış hızı değiştikçe spektrum değişimleri de incelenmiştir. Gaz akış hızı arttıkça N₂, OH ve NO pikleri de orantılı olarak artmıştır.

Düşük basınçta ve atmosferik basınçta üretilen azot gazı deşarjlarında elektron sıcaklığı hesaplamaları da yapılmıştır. Buna göre düşük basınçta üretilen AC azot gazı deşarjlarının elektron sıcaklığı 6 kV uygulama voltajında 0,61 eV, 12 kV uygulama voltajında ise 0,78 eV olarak hesaplanmıştır. Deşarj üzerine uygulanan voltaj arttırıldığında elektron sıcaklığının arttığı tespit edilmiştir.

Atmosferik basınçta üretilen azot gazı plazma jetin 0,5 cm altından alınan spektrum ile elektron sıcaklığı hesaplanmıştır. Azot gazı akış hızı arttıkça elektron sıcaklığında nispeten bir artış bulunmasına rağmen, doğrusal bir artışa ulaşılamamıştır. Deneyler tekrarlandığında benzer sonuçların elde edildiği görülmüştür. Bu sonucun azot gazı atmosferik plazma jetin çeker ocak içinde üretilmesi nedeniyle oluştuğu düşünülmektedir. Yüksek gaz akış hızlarında jet çeker ocağın üst kısmına doğru çekildiğinden en yakın elektroda doğru eğilmekte. Burada aynı zamanda dışarı çıkan jet plazma, hemen üstte bulunan yüksek potansiyel kutbu ile yeni bir iyonizasyon hattı yapmaya çalışmaktadır. Bu yönelim nedeniyle elektron sıcaklığı sonuçlarında lineer bir değişimin elde edilemediği söylenebilir. Atmosferik basınç azot gazı plazma jetin çeker ocak içinden çıkarılıp atmosfer ortamında yeniden üretilmesi ile sonuçlar tekrar bulunabilir. Ancak bu çalışmada zararlı gaz oluşumundan meydana gelebilecek olumsuzluklar nedeniyle bu risk alınmamıştır.

Düşük basınçta ve atmosferik basınçta üretilen azot gazı deşarjları için elektron yoğunluğu hesapları yapılmıştır. Düşük basınçta üretilen AC azot gazı deşarjlarının elektron yoğunluğu 6 kV AC uygulama voltajında 3,68x10¹⁸ cm⁻³ ve 12 kV AC uygulama voltajında 4,70x10¹⁸ cm⁻³ olarak hesaplanmıştır. Atmosferik basınçta üretilen azot gazı deşarjında elde edilen elektron yoğunluğu ise 1,14x10¹⁸ cm⁻³ ile 1,87x10¹⁸ cm⁻³ değerleri arasındadır. Azot gazı deşarjları için hesaplanan elektron sıcaklığı ve elektron yoğunluğu değerleri literatür ortalamaları civarındadır.

Bu çalışmada azot gazı deşarjları düşük basınçta ve atmosferik basınçta DC voltaj güç kaynağı ve AC voltaj güç kaynağı kullanılarak başarı ile üretilmiştir. DC voltaj güç kaynağı ile üretilen deşarjların emisyon spektrumları ise incelenmemiştir. DC deşarjlarda ikincil elektron emisyonu olduğu için katot bölgesinden spektrum almak detaylı analizler gerektirmektedir. Bununla birlikte pozitif kolon bölgesinden spektrum ölçümleri alınabilmesine rağmen bu bölgede basınç değişimi ile pozitif kolonun boyut değiştirmesi nedeniyle sürekli aynı noktadan ölçüm alma zorluğu yaşanmıştır. AC deşarjlarda da basınç değişimi ile plazmada, yapısal değişim meydana gelmesine rağmen tüm spektrum ölçümlerinin aynı noktadan alınması sağlanmıştır. Elde edilen spektrumlarda yalnızca genel şiddet artışı inceleme konusu yapılmıştır. Belirli parametrelerde N₂ pikleri artarken, N₂⁺ piklerinde azalma meydana gelmiştir. Bu artış ve azalışın gelecekte yapılabilecek detaylı elektron sıcaklığı ve elektron yoğunluğu hesaplamaları ile yorumlanabileceği düşünülmektedir. Azot gazı deşarjları içinde N₂ ve N₂⁺ enerji geçiş reaksiyonları oldukça fazladır. Bu reaksiyonlar takip edilerek azot gazı deşarjları içindeki yalnızca bir atom ya da molekülün uyarılma işlemleri gelecekte yapılabilecek çalışmalar arasında yer almaktadır. Literatürde bu çalışmaya benzer çalışmalar yapılsa da azot gazı deşarjlarının iç reaksiyonları hakkında hala bilinmeyen açık problemlerin olduğu düşünülmektedir.

KAYNAKLAR DİZİNİ

- Ahn, H.J., Kim, K., Hoan, N.N., Kim, C.H., Moon, E., Choi, K.S., Yang, S.S., Lee, J.-S., 2014, Targeting cancer cells with reactive oxygen and nitrogen species, Generated by Atmospheric-Pressure Air Plasma, Plos One, Volume 9.
- Akan, T., 2007, Biyolojik Silahlara Karşı Soğuk Plazmalar, Bilim ve Teknik, 478, 62-64.
- Akan, T., Çabuk, A., 2014, Indirect plasma inactivation by a low temperature atmospheric pressure plasma (LTAPP) System, Journal of Electrostatics, 72,3, 218-221.
- Akan, T., 2005, Maddenin 4. Hali Plazma ve Temel Özellikleri, Elektronik Çağdaş Fizik Dergisi, 4. sayı.
- Akan, T., 2014, Plazma Teknolojileri (Editör: B. İbrahimoğlu), Ürün yayınları, Ankara, 199-213.
- Akishev, Y., Balakirev, A., Grushin, M., Karalnik, V., Kochetov, I., Napartovich, A., Petryakov, A., Trushkin, N., 2015, Long Plasma Jet Generated by DC Discharge in N2 at Atmospheric Pressure: Impact of Trace Admixtures on Composition of Reactive Species in Far Afterglow, IEEE Transactions On Plasma Science, 43, 745-752.
- Alers, G.B., Fleming, R.M., Wong, Y.H., Dennis, B., Pinczuk, A., Redinbo, G., Urdahl, R., Ong, E., Hasan, Z., 1998, Nitrogen plasma annealing for low temperature Ta2O5 films, Applied Physics Letters, 72, 11, 1308-1310.
- Anonim, 2018, Plazma Nitrürleme, http://www.ermir.com.tr/images/indir/PN_Detay.pdf erişim tarihi: 11.12.2018.
- Bang, S.-H., 2016, Improvement of NiMoNb to polyimide adhesion by inductively coupled nitrogen plasma treatment, Applied Surface Science, 360, 553-558.
- Bekeschus, S., Iséni, S., Reuter, S., Masur, K., Weltmann, K.-D., 2015, Nitrogen Shielding of an Argon Plasma Jet and Its Effects on Human Immune Cells, IEEE Transactions On Plasma Science, 43, 3, 776-781.
- Belevtsev, A. A., Kukushkin, A. M., Fedorov, A. V., Chinnov, V. F., 2004, The Rotational Temperature in High-Enthalpy Jets of Atmospheric-Pressure Nitrogen Plasma, High Temperature, 42, 3, 342-350.
- Bertoti, I., Mohai, M., Laszloa, K., 2015, Surface modification of graphene and graphite by nitrogen plasma: Determination of chemical state alterations and assignments by quantitative X-ray photoelectron spectroscopy, Carbon, 84, 185-196.
- Bogaerts, A., Neyts, E., Gijbels, R., van der Mullen, J., 2002, Review: Gas discharge plasmas and their applications, Spectrochimica Acta Part B, 57, 609-658.

- Castro-Colin, M., Durrer, W., López, J.A. Ramirez-Homs, E., 2016, Surface Modification by Nitrogen Plasma Immersion Ion Implantation on Austenitic AISI 304 Stainless Steel, Journal of Iron and Steel Research, International, 23, 4, 85-89.
- Choi J., Park, J., 2014, Interface characterization of nitrogen plasmatreated gate oxide film formed by RTP technology, Surf. Interface Anal., 46, 303-306.
- Crofton, A., Chrisler, J., Hudson, S., Inceoglu, S., Petersen, F., Kirsch, W., 2016, Effect of Plasma Sterilization on the Hemostatic Efficacy of a Chitosan Hemostatic Agent in a Rat Model, Adv Ther, 33, 268-281.
- Crookes, W., 1879, On a fourth state of matter, Proc. R. Soc., London, 30, 469–472.
- Cui, H., Ma, C., Lin, L., 2016, Synergetic antibacterial efficacy of cold nitrogen plasma and clove oil against Escherichia coli O157:H7 biofilms on lettuce, Food Control, 66, 8-16.
- Fridman, A., Friedman, G., 2012, Plasma Medicine, John Wiley & Sons, 592 pp.
- Gholampour, M., Abdollah-zadeh, A., Shekari, L., Poursalehi, R., 2015, From Nanoparticles to Nanowires of GaN with Different Hydrogen Gas Flow Rates by PDC-PECVD, Procedia Materials Science, 11, 304 – 308.
- Gomathi, N., Mishra, I., Varma, S., Neogi, S., 2015, Surface modification of poly(dimethylsiloxane) through oxygen and nitrogen plasma treatment to improve its characteristics towards biomedical applications, Surf. Topogr.: Metrol. Prop. 3.
- Grill, A., 1993, Cold Plasma in Materials Fabrication, IEEE Press, New York, 256 p.
- Guerra, V., Sa, P.A., Loureiro, J., 2001, Role played by the N2(A3 Σ + u) metastable in stationary N2 and N2–O2 discharges, J. Phys. D: Appl. Phys., 34, 1745-1755.
- Guerra, V., Sa, P.A., Loureiro, J., 2007, Nitrogen pink afterglow: the mystery continues, Journal of Physics: Conference Series., 63, 1, 012007.
- Hrycak, B., Jasiński, M., Mizeraczyk, J., 2012, Spectroscopic characterization of nitrogen plasma generated by waveguide-supplied coaxialline-based nozzleless microwave source, Journal of Physics: Conference Series 406.
- Huai, Y., Li, S., Li, H., Wu, K., Zhang, J., Wang, S., Wang, Y., 2014, Characteristic Study of an Atmospheric-Pressure Radio-Frequency Capacitive Argon/Nitrogen Plasma Discharge, IEEE Transactions On Plasma Science, 42,6, 1648-1653.
- Itatani, R., 2000, Progress of plasma physics in 20th century and future, Appl. Phys. Express, 69, 971-977.

- Ji, S. H., Kim, T., Panngom, K., Hong, Y. J., Pengkit, A., Park, D. H., Kang, M. H., Lee, S. H., Im, J. S., Kim, J. S., Uhm, H. S., Choi, E. H., Park, G., 2015, Assessment of the Effects of Nitrogen Plasma and Plasma Generated Nitric Oxide on Early Development of Coriandum sativum, Plasma Process. Polym., 12, 1164-1173.
- Jin, J., An, T., Han, S., 2016, Influence of Prior Plasma Nitriding on the Abrasive Resistance and Surface Energy of CrNiTiN Coating Formed on Cr12MoV Steel, Rare Metal Materials And Engineering, 45,12, 3325-3329.
- Karam, L., Casetta, M., Chihib, N.E., Bentiss, F., Maschke, U., Jama, C., 2016, Optimization of cold nitrogen plasma surface modification process for setting up antimicrobial low density polyethylene films, Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers, 64, 299–305.
- Khatir, S., Hirose, A., Xiao, C., 2015, Characterization of physical and biomedical properties of nitrogenated diamond-like carbon films coated on polytetrafluoroethylene substrates, Diamond & Related Materials, 58, 205–213.
- Kim, K., Kim, G., Oh, Y., Park, T., Han, D. C., Yang, S. S. 2012, Simple Atmospheric-Pressure Nonthermal Plasma-Jet System for Poly(dimethylsiloxane) Bonding Process, Japanese Journal of Applied Physics, 51.
- Lai, S., Mao, D., Ruan, Y., Xu, Y., Huang, Z., Huang, W., Chen, S., Li, C., Wang, J., Tang, D., 2016, Impact of nitrogen plasma passivation on the Al/n-Ge contact, Materials Science and Engineering B, 211, 178-184.
- Laroussi, M., 2009, Low-Temperature Plasmas for Medicine, IEEE Trans. on Plasma Science, 37, 6, 714-725.
- Laroussi, M., Akan, T. 2007, Arc-Free Atmospheric Pressure Cold Plasma Jets: A Review, Plasma Processes and Polymers, 4, 777-788.
- Laroussi, M., Haynes, W., Akan, T., Lu, X., Tendero, C., 2008, The Plasma Pencil: A Source of Hypersonic Cold Plasma Bullets for Biomedical Applications, IEEE Transactions on Plasma Science, 36, 1298-1299.
- Laroussi, M., Kong, M.G., Morfill, G., Stolz, W., 2012, Plasma Medicine, Cambridge University Press, 364 p.
- Léoment, S., Salem, D. B., Carton, O., Pulpytel, J., Arefi-Khonsari, F., 2014, "Influence of the Nozzle Material on an Atmospheric Pressure Nitrogen Plasma Jet", IEEE Transactions On Plasma Science, 42, 10, 2480-2481.
- Li, G., Lei, M.K., 2017, Microstructure and Properties of Plasma Source Nitrided AISI 316 Austenitic Stainless Steel, Journal Of Materials Engineering And Performance, 26, 1, 418-423.

- Li, L., Zhang, X., Zhang, M., Li, P., Chu, P. K., 2014, Microporous N-doped carbon film produced by cold atmospheric plasma jet and its cell compatibility, Vacuum, 108, 27-34.
- Lin, G.-W., Jiang, Y.-H., Kao, P.-K., Chiu, I-C., Wu, Y.-H., Hsu, C.-C., Cheng, I-C., Chen, J.-Z., 2015, Nitrogen Atmospheric-Pressure-Plasma-Jet Induced Oxidation of SnOx Thin Films, Plasma Chem Plasma Process, 35, 979-991.
- Loureiro, J., Sa, P. A., Guerra, V., 2001, Role of long-lived N2(X1Σg +,v) molecules and N2(A3Σu +) and N2(a'1Σu -) states in the light emissions of an N2 afterglow, J. Phys. D: Appl. Phys., 34, 1769-1778.
- Lu, X., Wu, S., 2013, On the Active Species Concentrations of Atmospheric Pressure Nonequilibrium Plasma Jets, IEEE Transactions On Plasma Science, 41, 8, 2313-2326.
- Maddi, C., Donnet, C., Loir, A.-S., Tite, T., Barnier, V., Rojas, T.C., Sanchez-Lopez, J.C., Wolski, K., Garrelie, F., 2015, High N-content a-C:N films elaborated by femtosecond PLD with plasma assistance, Applied Surface Science, 332, 346-353.
- Mahmoud, K.H., 2016, Optical properties of hydroxyethyl cellulose film treated with nitrogen plasma, Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy 157, 153–157.
- Mändl, S., Dunkel, R., Hirsch, D., Manova, D., 2014, Intermediate stages of CrN precipitation during PIII nitriding of austenitic stainless steel, Surface & Coatings Technology, 258, 722-726.
- Marr, G.V., 1968, Plasma Spectroscopy, Elsevier Publishing Company, 5.
- Modic, A., Sharma, Y.K., Xu, Y., Liu, G., Ahyi, A.C., Williams, J.R., Feldman, L.C., Dhar, S., 2014, Nitrogen Plasma Processing Of Sio2/4h-Sic Interfaces, Journal of Electronic Materials, 43, 4, 857-862.
- Morris, A., McCombs, G. B., Akan, T., Haynes, W., Laroussi, M., Tolle, S. L., 2009, Cold Plasma Technology: Bactericidal Effects On Geobacillus Stearothermophilus And Bacillus Cereus Microorganisms, Journal of Dental Hygiene, 83, 2, 55-61.
- Myung, S. W., Kim, B. H., 2016, Oxygen and nitrogen plasma etching of threedimensional hydroxyapatite/chitosan scaffolds fabricated by additive manufacturing, Japanese Journal of Applied Physics, 55, 1.
- Nagamatsu, H., Ichiki, R., Yasumatsu, Y., Inoue, T., Yoshida, M., Akamine, S., Kanazawa, S., 2013, Steel nitriding by atmospheric-pressure plasma jet using N2/H2 mixture gas, Surface & Coatings Technology, 225, 26-33.

- Pal, D., Neogi, S., De, S., 2015, Surface modification of polyacrylonitrile co-polymer membranes using pulsed direct current nitrogen plasma, Thin Solid Films, 597, 171-182.
- Pan, G., Chong, S., Yang, T.C.-K., Yang, Y., Arjun, N., 2016, Surface Modification of Amorphous SiO2 Nanoparticles by OxygenPlasma and Nitrogen-Plasma Treatments, Chemical Engineering Communications, 203, 12, 1666–1670.
- Panarin, A. A., Skakun, V. S., Sosnin, E. A., Tarasenko, V. F., 2017, Emission Properties of Apokamp Discharge at Atmospheric Pressure in Air, Argon, and Helium, Optics And Spectroscopy, 122, 2, 173.
- Panousis, E., Clément, F., Loiseau, J.-F., Spyrou, N., Held, B., Larrieu, J., Lecoq, E., Guimon, C., 2007, Titanium alloy surface treatment using an atmospheric plasma jet in nitrogen pulsed discharge conditions, Surface & Coatings Technology, 201, 16-17, 7292-7302.
- Petitpasa, G., Rolliera, J.D., Darmonb, A., Gonzalez-Aguilara, J., Metkemeijera, R., Fulcheria, L., 2007, Acomparative study of non-thermal plasma assisted reforming technologies, International Journal of Hydrogen Energy, 32, 14, 2848-2867.
- Piel, A., 2010, Plasma Physics, An Introduction to Laboratory, Space and Fusion Plasmas, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg.
- Praveen, T., Shiju, K., Predeep, P., 2015, Influence of plasma treatment on Indium Tin Oxide electrodes, Microelectronic Engineering, 131, 8-12.
- Rahman, A., Yalin, A. P., Surla, V., Stan, O., Hoshimiya, K., Yu, Z., Littlefield, E., Collins, G J., 2004, Absolute UV and VUV emission in the 110–400 nm region from 13.56 MHz driven hollow slot microplasmas operating in open air, Plasma Sources Science and Technology, 13, 3, 541-542.
- Raizer, Y.P., 1991, Gas Discharge Physics, Springer-Verlag, USSR, 449 p.
- Rankovic, D., Kuzmanovic, M., Pavlovic, M.S., Stoiljkovic, M., Savovic, J., 2015, Properties of Argon–Nitrogen Atmospheric Pressure DC Arc Plasma, Plasma Chem Plasma Process, 35, 6, 1071-1095.
- Remy, J., Biennier, L., Salama, F., 2003, Plasma Structure in a Pulsed Discharge Environment, Plasma Sources Science and Technology, 12, 295–301.
- Ricard, A., Oh, S., Guerra, V., 2013, Line-ratio determination of atomic oxygen and N2(A3 Σ +u) metastable absolute densities in an RF nitrogen late afterglow, Plasma Sources Sci. Technol., 22, 3, 9.

- Ricard, A., Oh, S., Yu, J. J., Kim, K., 2015, Quantitative evaluation of the densities of active species of N2 in the afterglow of Ar-embedded N2 RF plasma, Current Applied Physics, 15, 11, 1453-1462.
- Roth, J.R., 1995, Industrial Plasma Engineering, IOP Publishing, Bristol and Philadelphia, p.53.
- Santos, O.S., Silva, M.M., Pichon, L., Rigo, O.D., Otubo, J., 2016, Characterization of a NiTi SMA wire treated by nitrogen plasma based ion implantation (PBII), Procedia Structural Integrity, 2, 1443-1450.
- Shah, M.S., Ahmad, R., Ikhlaq U., Saleem, S., 2013, Characterization of Pulsed DC Nitrogen Plasma Using Optical Emission Spectroscopy And Langmuir Probe, Coden Jnsmac, 53, 1-12
- Shi, D.Q., Xu, W., Miao, C.Y., Ma, C. Y., Ren, C.S., Lu, W.Q., Zhang, Q.Y., 2016, A highactivity nitrogen plasma flow source for deposition of silicon nitride films, Surface & Coatings Technology, 294, 194-200.
- Subramanian, P., Cohen, A., Teblum, E., Nessimb, G.D., Bormasheko, E., Schechter, A., 2014, Electrocatalytic activity of nitrogen plasma treated vertically aligned carbon nanotube carpets towards oxygen reduction reaction, Electrochemistry Communications, 49, 42-46.
- Tendero, C., Tixier, C., Tristant, P., Desmaison, J., Leprince, P., 2006, Review: Atmospheric pressure plasmas, Spectrochimica Acta Part B, 61, 1, 2-30.
- Tonks, L., Langmuir, I., 1929, Oscillations in Ionized Gases, Physics Review, 33, 6, 195.
- Treumann, R.A., Kł;os, Z., Parrot, M., 2008, Physics of Electric Discharges in Atmospheric Gases: An Informal Introduction, Space Sci Rev, 137, 133-148.
- Ulbin-Figlewicz, N., Brychcy, E., Jarmoluk, A., 2015, Effect of low-pressure cold plasma on surface microflora of meat and quality attributes, J Food Sci Technol, 52, 2, 1228–1232.
- Vidmar, R.J. 1990, On the Use of Atmospheric Pressure Plasmas as Electromagnetic Reflectors and Absorbers, IEEE Transactions On Plasma Science, 18, 4, 733-741.
- Wagenaars, E., Gans, T., O'Connell, D., Niemi, K., 2012, Two-photon absorption laserinduced fluorescence measurements of atomic nitrogen in a radio-frequency atmospheric-pressure plasma jet, Plasma Sources Sci. Technol., 21, 4.
- Wang, D., Zhao, D., Wang, F., Yao, B., Shen, D., 2015, Nitrogen-doped ZnO obtained by nitrogen plasma treatment, Phys. Status Solidi. 212, 4, 846-850.

- Wang, J., Ye, Y., Lin, Y., 2015, Light-Addressable Potentiometric Sensor with Nitrogen-Incorporated Ceramic Sm2O3 Membrane for Chloride Ions Detection, J. Am. Ceram. Soc., 98, 2, 443-447.
- Xiao, D., Cheng, C., Lan, Y., Ni, G. H., Shen, J., Meng, Y. D., Chu, P. K., 2016, Effects of Atmospheric-Pressure Nonthermal Nitrogen and Air Plasma on Bacteria Inactivation, IEEE Transactions On Plasma Science, 44, 11, 2699-2707.
- Zhang, L., Zhao, S., Meng, X., 2008, Characterization of Nitrogen Glow Discharge Plasma via Optical Emission Spectrum Simulation, Plasma Science and Technology, 10, 4, 455.
- Zheng, J., Lv, Y., Xu, S., Han, X., Zhang, S., Hao, J., Liu, W., 2017, Nanostructured TiNbased thin films by a novel and facile synthetic route, Materials & Design, 113, 142-148.