

УДК 533.9.07 533.95 535.012

## **Трехмерная нестационарная модель горелки индуктивно-связанной плазмы для оптической эмиссионной спектроскопии**

К.Ю. Нагулин, Р.А. Ибрагимов, А.Х. Гильмутдинов

### **Аннотация**

Разработана и экспериментально апробирована трехмерная нестационарная модель горелки индуктивно-связанной плазмы для оптической эмиссионной спектроскопии. Рассмотрены процессы поджига и стационарного горения плазмы. Выявлены, экспериментально подтверждены и интерпретированы такие эффекты, как формирование плазменных сгустков, пульсации плазмы и вращения плазменной струи. Результаты модельных расчетов хорошо согласуются с полученными экспериментальными данными шпирен-измерений.

### **Ключевые слова**

индуктивно-связанная плазма; трехмерная нестационарная модель, метод шпирена

Одним из наиболее перспективных путей развития практических приложений индуктивно связанной плазмы (ИСП) является совершенствование и оптимизация плазменной горелки. Современные горелки для спектроаналитической ИСП остались практически такими же, какими они были предложены 40 лет назад. Причина в том, что работа горелки является чрезвычайно сложным процессом, включающим в себя взаимосвязанные газодинамические и электромагнитные эффекты, крайне трудно поддающиеся моделированию. Наиболее совершенные из существующих моделей [1-4] учитывают все физические процессы в плазме, однако всем им присущи следующие принципиальные ограничения:

1. Даже лучшие модели основаны на предположении осевой симметрии плазмы (учитываются только осевые и радиальные зависимости параметров плазмы).
2. Плазма предполагается стационарной.

3. При расчетах рассматривается только сама плазма, а поток газа до плазмы и после нее не принимаются во внимание.

В то же самое время, прямые эксперименты указывают на вращение [5] и пульсацию [6] ИСП фактически при всех эксплуатационных режимах. Это означает, что третья пространственная координата задачи - вихревая компонента, также является важной, а плазменная пульсация добавляет к проблеме временное измерение. **Целью работы** является разработка и экспериментальная апробация трехмерной нестационарной компьютерной модели спектродиагностической ИСП.

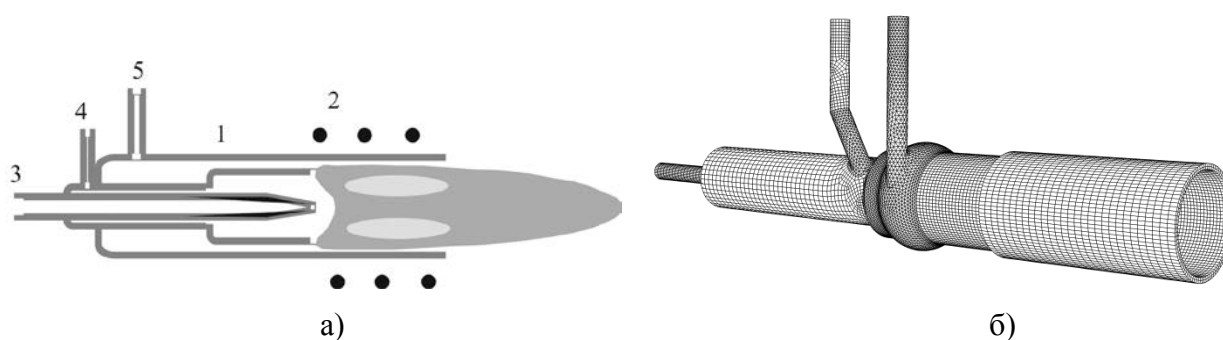


Рис. 1. а) Устройство горелки Фассела; б) Расчетная сетка ее модели

1 – кварцевая трубка горелки; 2 - катушка индуктора; 3 – внутренний поток; 4 – промежуточный поток; 5 – внешний поток

В качестве конкретного объекта моделирования использована стандартная спектродиагностическая горелка Фассела от масс-спектрометра с ИСП Elan DRC-II (ПеркинЭлмер, США) (Рис.1 а)). Горелка представляет собой три коаксиальных кварцевых цилиндра. Внутренний цилиндр имеет радиус порядка одного-двух миллиметров и служит для ввода исследуемого образца в плазму. В пространство между внешним и промежуточными цилиндрами вводится «внешний» или «охлаждающий» поток газа. Его задача – предотвратить перегрев и плавление внешних стенок горелки. Поток, вводимый в пространство между средним и внутренним цилиндрами, носит название «промежуточного» и служит для управления положением пламенного факела.

Расчетный модуль модели состоит из двух взаимосвязанных частей – газодинамической, в которой производится расчет полей скоростей и давления газа и электромагнитной, в которой происходит учет поступления энергии в плазму от индуктора. Вычисления ведутся методом контрольных объемов в программном комплексе FLUENT® последовательными итерациями: сначала считается шаг по времени в газодинамической

части, затем по рассчитанному распределению температур вычисляется распределение проводимости и на его основе рассчитывается электромагнитный нагрев, величины и направление сил. Далее эти величины как исходные данные входят в следующую итерацию расчета газодинамической части, и вычислительный цикл продолжается. Движение вязкого теплопроводящего газа в присутствии силы тяжести описывается системой уравнений Навье-Стокса. В электромагнитной части модели принято допущение, что область выделения тепловой энергии в плазме можно представить в виде частично деформированного тороида, в качестве образующей которого выступает эллипс с полуосями длиной 15 и 4 мм вдоль оси и вдоль радиуса. Удельная мощность внутри тороида квадратично возрастает от нуля на границе до максимального значения на образующей окружности. Интегральная мощность поддерживается постоянной. На рис.1 б) приведена расчетная сетка модели, полностью описывающая геометрию реальной кварцевой горелки.

Экспериментальные исследования газодинамических характеристик ИСП проводились на диагностическом комплексе, состоящей из исследовательского генератора на 27,12 МГц с колебательной мощностью до 2 кВт [7] и шлирен-системы с высокоскоростной цифровой регистрацией изображений, оптическая схема которой представлена на рис. 2. Излучение просвечивающего источника 1 с помощью конденсорной системы 2 фокусируется в плоскости ножей щели 3. Щель располагается в фокальной плоскости объектива осветителя 4 и имеет возможность вращения вокруг оптической оси системы. В качестве объектива использована скорректированная на аберрации линза диаметром 100 мм и фокусным расстоянием 500 мм. Элементы осветителя смонтированы на единой оптической плите. Осветитель формирует параллельный просвечивающий пучок в исследуемой зоне горелки 5. Камерная часть теневого прибора состоит из объектива 6, идентичному 4 и подвижного ножа Фуко 7, расположенного в фокальной плоскости объектива 6. Нож имеет возможность перемещения вдоль фокальной плоскости, а также вращения вокруг главной оптической оси системы. Регистрация теневой картины производится цифровой камерой 8. Система настраивается таким образом, чтобы на фоточувствительной поверхности матрицы изображалась исследуемое сечение 5. Синхронным вращением входной щели и ножа в плоскости, перпендикулярной оптической оси, можно выбирать исследуемое сечение. Применяемая цифровая камера Casio EX-F1 позволяет проводить высокоскоростную видеосъемку в четырех режимах: 30-300 (разрешение 512x384), 300 (разрешение 512x384), 600 (разрешение 432x192) и 1200 (разрешение 336x96) кадров в секунду, обеспечивая максимальное временное разрешение 0.83 мс. В качестве источника излучения применяли дуговую Хе лампу XBO 250 (Narva, Германия). Применение столь мощного источника

обусловлено необходимостью подавления высокоинтенсивного собственного излучения плазмы. Ось исследуемой горелки ориентирована горизонтально и расположена перпендикулярно оптической оси шлирен-системы.

В качестве плазмообразующего газа использовали аргон высокой чистоты (99,998%). Все измерения проводились без распыления в плазму анализируемого вещества.

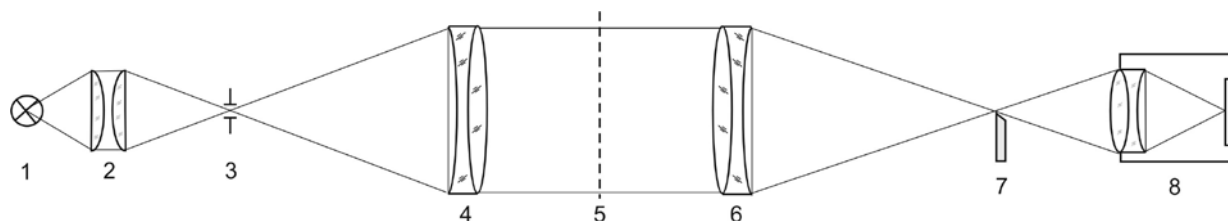
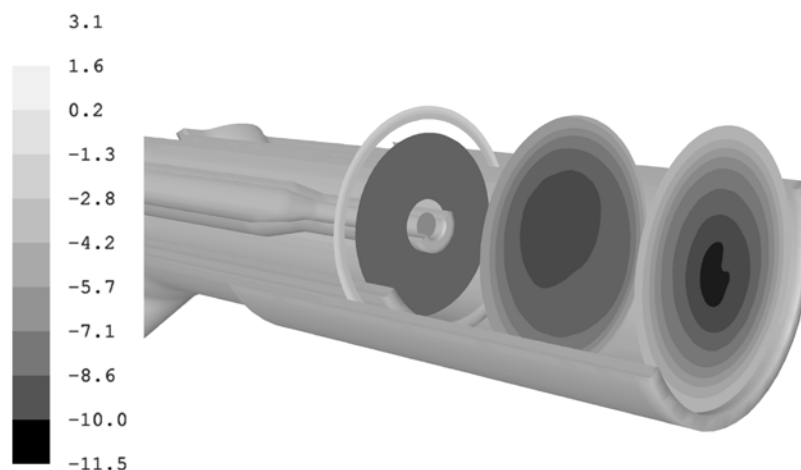


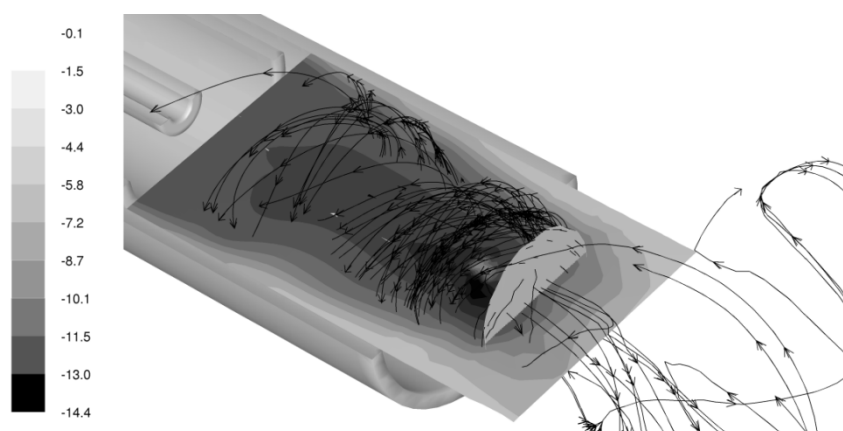
Рис.2. Оптическая схема шлирен-системы

1 – источник просвечивающего излучения; 2 – объектив конденсора; 3 – входная щель с возможностью вращения вокруг оптической оси; 4 – объектив коллиматора; 5 – предметная плоскость; 6 – камерный объектив; 7 – нож Фуко с возможностью перемещения поперек оптической оси и вращения вокруг нее; 8 – цифровая фотокамера

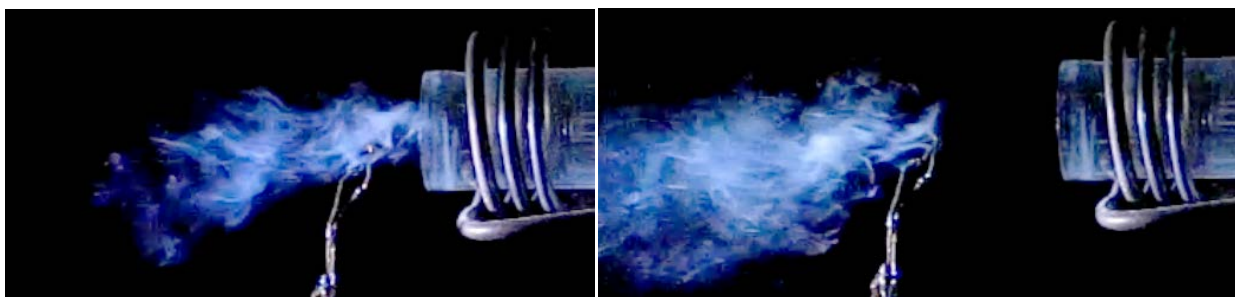
Рассмотрим динамику газовых потоков в горелке без поджига ИСП, что позволит установить причину возникновения интересного эффекта - обратного потока газа в горелке. В работе [8] в плазменной горелке с внутреннем диаметром 4 см и с осевой ламинарной подачей газа, путем прямых анемометрических измерений при помощи охлаждаемых водой трубок Пито, была обнаружена рециркуляционная зона в области разряда. Было показано, что при малых расходах Ar (0.14 г/с) возникает подсос окружающего воздуха на краю трубки горелки. При увеличении расхода Ar до 1.15 г/с подсос воздуха прекращается, хотя рециркуляционная зона сохраняется. Причину возникновения обратного потока газа в [12] связывают с градиентами статического давления Ar, образующимися в результате горения разряда. В нашем случае формирование обратного потока не является очевидным, поскольку внутри горелки диаметром 18 мм со значительной скоростью и в различных направлениях подается газ с расходом порядка 17 л/мин. Тем не менее, применение компьютерной визуализации рассчитанных потоков позволяет найти удовлетворительное объяснение наблюдаемому явлению. На рис. 3 а) представлено распределение давления газа в трех характерных поперечных сечениях горелки. Видно, что в приосевой области горелки давление аргона понижается по ходу течения газа, достигая минимального значения (на 11 Па ниже атмосферного давления) на выходе горелки.



а)



б)



в)

г)

Рис.3. а) Пространственное распределение давления газа в трех характерных поперечных сечениях горелки; б) Рассчитанные линии тока газа в приосевой зоне горелки; Визуализация потока газа дымом при нахождении его источника в области: в) возвратного; г) прямого течения

Подобное неоднородное распределение давления совместно с наличием значительной тангенциальной составляющей скорости внешнего и промежуточного потоков газа вносит ключевой вклад в формирование обратного потока в горелке. При протекании через зазор

между внешней и внутренней трубками эта тангенциальная составляющая скорости снижается с приблизительно 20 м/с на входе до 7 - 8 м/с на выходе из зазора. Попадая далее в общую область, закрученный поток прижимается к стенкам, увлекает за собой массы газа и создает тем самым область пониженного давления вблизи оси. Для выявления влияния такого распределения давления газа на траекторию движения его частиц были рассчитаны линии тока аргона в приосевой зоне горелки. Начальные точки этих линий тока находятся в пределах круга, перпендикулярного оси горелки и расположенного на расстоянии 5 мм от края трубки по ходу течения (см. рис.3 б)). Дополнительно на рис. 3 б) представлено распределение давления газа в горизонтальном сечении горелки.

Поскольку давление газа за пределами горелки оказывается выше, чем в приосевых областях внутри нее, линии тока преимущественно направлены во внутреннюю полость трубки, увлекая за собой и окружающий газ. На своем пути назад обратный поток сталкивается с промежуточным и центральным потоками, образуя зоны неустойчивости, в которых происходит интенсивное вихреобразование. Наличие обратного потока в исследуемой горелке и его рассчитанные границы были подтверждены экспериментально. При помещении в поток газа перед горелкой в зоне отрицательных давлений (обозначенных на рис. 3 б) источника дыма (нагреваемая электрическим током нихромовая спираль, покрытая пленкой минерального масла), обратный поток Ar переносил дым в сторону горелки (см. рис. 3 в)). Экспериментально найденное положение границы отрицательных давлений хорошо согласуется с результатами расчетов. Смещая проволоку по ходу течения газа в область положительных давлений (рис. 3 г)), наблюдали снос дыма турбулентным расширяющимся потоком аргона.

Рассмотрим процесс поджига разряда. На рис. 4 а) приведена рассчитанная последовательность полей температур в различные моменты времени после инициирования разряда. Первоначально происходит нагрев газа в области индуктора, причем форма нагретой области в точности повторяет форму нагревающего тороида. В последующем, в период между 1 мс и 7 мс, появляются значительные изменения в форме плазменного факела: основная масса смещается вниз по потоку, тогда как основание факела сужается. Подобные трансформации обусловлены высокими значениями скоростей газа, выходящего из зазора между внешним и промежуточным цилиндрами. Далее, за счет взаимодействия потока с неподвижной средой, за зазором образуется макроскопический вихрь, который приводит к распространению нагретой области вглубь горелки, а также к образованию перетяжек. В дальнейшем в плазменном факеле происходит формирование и отрыв области

нагретого газа размером порядка одного диаметра горелки, который сносится по ходу течения газа.

На рис. 4 б) приведена последовательность шлирен-изображений факела ИСП в начальный момент поджига плазмы. В поле зрения шлирен-системы попадает край кварцевой трубки горелки и часть витков индуктора (в правой части кадров). Истечение газа происходит в направлении справа - налево. Расход аргона на стадии поджига плазмы составлял 0 л/мин (распылитель), 0.8 л/мин (защитный газ) и 15 л/мин (плазмообразующий). На первом кадре мы не видим изображения потока холодного газа, поскольку чувствительность шлирен-системы сознательно снижена для визуализации больших градиентов показателя преломления, характерных для горячей плазмы. Диаметр поля зрения шлирен-системы составляет 80 мм. Нож Фуко и ножи щели осветительной системы расположены параллельно оси горелки.

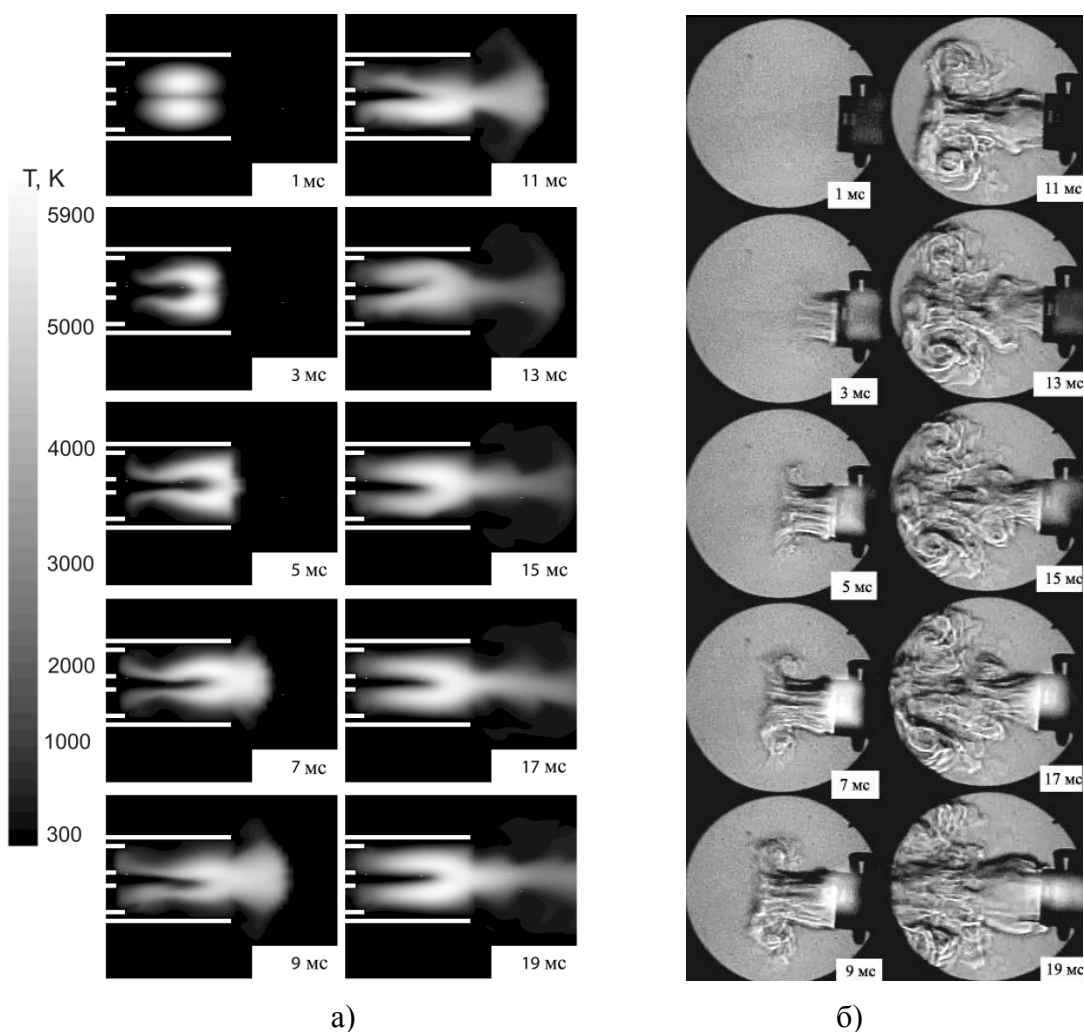


Рис. 4 а) Рассчитанная динамика температурных полей газовой фазы в продольном сечении горелки; б) Шлирен-изображение плазмы в момент поджига разряда

Кварцевая трубка горелки, прозрачная в обычных условиях, за счет своей цилиндрической формы сильно отклоняет от оптической оси лучи просвечивающего источника и, поэтому, на шлирен-изображениях отображается непрозрачной. Скорость видеорегистрации составляет 600 кадров/с. Поджиг производится на максимальной мощности генератора (2 кВт), поэтому в начальный момент времени на шлирен-изображениях хорошо видно свечение ядра плазменного факела, в который производится максимальный вклад электромагнитной энергии от индуктора. Возникновение разряда сопровождается резким расширением нагретого газа из сопла горелки с формированием ударной волны, слышимой в виде резкого щелчка (рис. 4 б), 3 мс). В дальнейшем, как и в модельных результатах, за счет взаимодействия пограничных слоев струи нагретого газа с окружающей атмосферой, на 5-й мс начинается формирование тороидального вихря. На 9-й мс на плазменной струе вблизи среза кварцевой трубки горелки начинается формирование утолщения, которое на 13-й мс преобразуется в очередной тороидальный вихрь.

По мере прогрева горелки наблюдаются качественные изменения в процессе истечения плазмы: зона вихреобразования смещается по ходу течения плазмы от края кварцевой трубки и тороидальные вихри в своем поперечном сечении трансформируются от правильных окружностей к более вытянутым в продольном направлении формам (смотри кадр, соответствующий 19-й мс). На рис. 4 б) (кадры, соответствующие интервалу времени 13-19 мс) видно, что на моделированных температурных полях газовой фазы низкотемпературная зона в правой части кадров на рис. 4 а) (15-19 мс) представляет собой турбулентную область, в которой сильно нагретый аргон из плазменной струи смешивается с окружающим холодным воздухом. Сопоставляя рис. 4 а) и рис. 4 б) можно видеть, что экспериментально зарегистрированные теневые изображения газовых потоков практически идентичны результатам численного моделирования температурных полей газовой фазы плазменной струи.

На рис. 5 представлены шлирен-изображения неоднородностей показателя преломления в плазменном факеле, зарегистрированные при расположении ножа Фуко перпендикулярно а) и параллельно б) оси горелки. Отчетливо прослеживается динамика образования тороидальных вихрей, характерных для импульсного истечения плазменной струи в окружающее пространство [9]. Частота вихреобразования, рассчитанная по периодичности процессов на рис. 5, составляет порядка 120 Гц, что хорошо согласуется с данными [10]. Различное расположение ножа Фуко позволяет визуализировать неоднородности показателя преломления газа и, следовательно, его температуру, в двух



взаимно перпендикулярных плоскостях. Зарождение тороидальных вихрей в области, приграничной с плазменной струей, начинается от края горелки на расстоянии, равном ее радиусу (рис. 5 а), б)). Образование тороидального вихря, также как и при инициализации разряда (рис. 4 б) кадр 3 мс), начинается с формирования утолщения на струе плазмы. При этом центральная часть плазменного потока остается невозмущенной на расстоянии, равном диаметру горелки, что хорошо видно по состоянию струи распылителя на последнем кадре рис. 5 б). На рис. 5 а) (кадры 6.4 - 9.6 мс) и на рис. 5 б) (кадры 4.8 – 8 мс) отчетливо прослеживается граница области турбулентности плазменного потока, расположенная на расстоянии одного диаметра трубки горелки от ее края. При дальнейшем смещении по ходу течения газа упорядоченная структура плазменной струи исчезает.

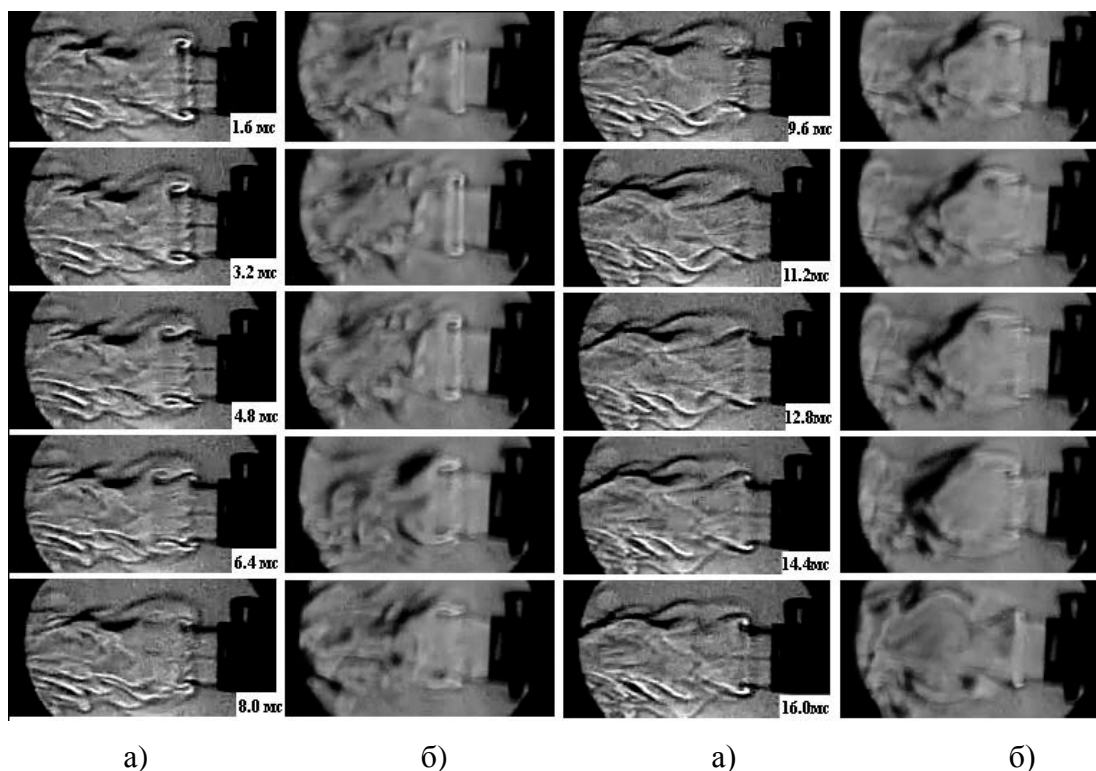


Рис.5. Шлирен-изображения неоднородностей показателя преломления в плазменном факеле; Нож Фуко расположен: а) перпендикулярно; б) параллельно оси горелки

С использованием разработанной четырехмерной компьютерной модели свободно горящей спектрохимической ИСП рассмотрены процессы ее поджига и стационарного горения. В результате проведенной серии численных экспериментов получены временная эволюция трехмерных распределений полей скоростей потоков плазмы, давления и температуры. Модель позволяет выявить и адекватно интерпретировать такие

экспериментально подтвержденные эффекты, как формирование плазменных сгустков, пульсации плазмы и вращения плазменной струи. Результаты моделирования хорошо согласуются с данными шпирен-измерений пространственной структуры газовых потоков в горелке. Визуализирован процесс формирования в плазменном факеле тороидальных вихрей, и установлены процессы, ответственные за их возникновение.

Работа выполнена при поддержке РФФИ и АН РТ, проект № 12-02-97050-р\_поволжье\_a/2012

### **Библиографический список**

1. Yang, P. Plasma modeling and computer simulation of spectrochemical ICP discharges [Text] / P. Yang, R.M. Barnes // *Spectrochimica Acta Reviews*. — 1990. — V. 13. — № 4. — P. 275-309
2. Mostaghimi, J. Mathematical Modeling of the Inductively Coupled Plasmas [Text] / J. Mostaghimi M.I. Boulos // *Inductively Coupled Plasmas in Analytical Atomic Spectrometry* / Edited by A. Montaser, D.W. Golightly. — Second Edition. — New York. — VCH Publishers. — 1998. — Chapter 20. — P. 949–983.
3. McKelliget, J. W. The effect of coil design on materials synthesis in an inductively coupled torch [Text] / J.W. McKelliget, N. El-Kaddah // *J.Appl. Phys.* — 1998. — V. 64. — № 6. — P. 2948-2954.
4. Schram, D.C. Fundamental Description of Spectrochemical ICP Discharges [Text] / D.C. Schram, J.A. Van der Mullen, J.M. de Regt, D.A. Benoy // *J. Anal. Atom. Spectrom.* — 1996. — V. 11. — № 9. — P. 623-632.
5. Winge, R.K. High speed photographic study of plasma fluctuations and intact aerosol particles in inductively coupled plasma mass spectrometry [Text] / R.K. Winge, J.S. Crain, R.S. Houk // *J. Anal. At. Spectrom.* — 1991. — V. 6. — P. 601–604.
6. Нагулин, К.Ю. Диагностический комплекс для моделирования и экспериментального исследования спектральных и газодинамических характеристик индуктивно-связанной плазмы [Text] / К.Ю. Нагулин, Р.А. Ибрагимов, И.В. Цивильский, А.Х. Гильмутдинов // *Оптический журнал*. — 2012. — №4. — с. 33-41.

7. Нагулин, К.Ю. Пространственно-временная структура газовых потоков и температурных полей в индуктивно-связанной плазме [Text] / К.Ю. Нагулин, Р.А. Ибрагимов, И.В. Цивильский, А.Х. Гильмутдинов // Оптический журнал. — 2012. — №4. — с. 42-49.
8. Клубникин, В.С. Тепловые и газодинамические характеристики индукционного разряда в потоке аргона [Text] / В.С. Клубникин // Теплофизика высоких температур. — 1975. — № 3. — с. 473-482.
9. Юсупалиев, У. Импульсное осесимметричное истечение плотной плазмы в газовую среду. Условия образования и устойчивость плазменного тороидального вихря [Text] / У. Юсупалиев, П.У. Юсупалиев, С.А. Шутеев // ЖТФ. — 2007. — Т.77. — с. 50-62.
10. Winge, R.K. Spatiotemporal characteristics of the inductively coupled plasma [Text] / R.K. Winge, D.E. Eckels, E. L. DeKalb, V. A. Fassel // J. Anal. At. Spectrom. — 1988. — V3. — pp. 849 – 855.

#### **Сведения об авторах**

Нагулин Константин Юрьевич, доцент Казанского (Приволжского) федерального университета, к.ф.-м.н.

Ул. Кремлевская, 18; г. Казань, Республика Татарстан, 420008;

тел.: (843) 233-72-20; e-mail: [knagulin@mail.ru](mailto:knagulin@mail.ru)

Ибрагимов Ринат Анасович, аспирант Казанского (Приволжского) федерального университета.

Ул. Кремлевская, 18; г. Казань, Республика Татарстан, 420008;

тел.: (843) 233-72-20; e-mail: [ibragimovrinat@mail.ru](mailto:ibragimovrinat@mail.ru)

Гильмутдинов Альберт Харисович, исполняющий обязанности ректора Казанского Национального исследовательского технического университета им. А.Н.Туполева – КАИ, д.ф.-м.н., профессор.

Ул. К.Маркса, 10; г. Казань, Республика Татарстан, 420111;

тел.: (843) 231-01-06; e-mail: [Albert.Gilmutdinov@kstu-kai.ru](mailto:Albert.Gilmutdinov@kstu-kai.ru)