



УДК 543.423

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ РЕЖИМА РАБОТЫ ДВУХСТРУЙНОГО ДУГОВОГО ПЛАЗМАТРОНА НА ТЕМПЕРАТУРУ И ЭЛЕКТРОННУЮ КОНЦЕНТРАЦИЮ ПЛАЗМЫ

Е.А. Тагильцева

Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН,  
ул. Косыгина, 19, Москва, 119991, Россия, e-mail: [tagiltseva\\_helen@mail.ru](mailto:tagiltseva_helen@mail.ru)

**Аннотация.** Экспериментально исследовано влияние всех комбинаций значений параметров, определяющих режим работы двухструйного дугового плазматрона (ДДП) на температуру и электронную концентрацию плазмы. Показано, что подставляя полученные значения  $T$  и  $n_e$  в формулу интенсивности спектральной линии можно определить оптимальный режим работы ДДП для возбуждения аналитической линии определяемого элемента. Показана слабая зависимость электронной концентрации от величины легкоионизируемой примеси в плазме двухструйного дугового плазматрона.

**Ключевые слова:** двухструйный дуговой плазматрон, температура плазмы, электронная концентрация плазмы, атомно-эмиссионный метод анализа.

Оптимальные условия возбуждения аналитических линий при анализе вещества на двухструйном дуговом плазматроне [1-4] неоднократно становились предметом исследования в работах [4, 10]. Исследовали влияние величины рабочего тока плазматрона, угла слияния плазменных струй, расходов плазмообразующего газа на интенсивность спектральных линий определяемых элементов. Неоднократно определяли и положение оптимальной области факела плазмы ДДП, проецируемой на щель спектрографа. В одних работах [4, 6, 7] утверждалось, что оптимальная аналитическая зона расположена после слияния струй плазмы, в других [8, 10] – до слияния. Во всех ранее выполненных работах при изменении параметров, определяющих условия возбуждения наблюдение велось за интенсивностью спектральной линии.

В монографии Зильберштейна Е.И. [11] приводятся формулы для расчета интенсивности атомной и ионной линий.

$$I_a = \frac{1}{4\pi} h\nu_{qp} \frac{A_{qp} g_q}{Z_a} \cdot \frac{n_e \cdot 10^{-\frac{5040}{T} \varepsilon_q}}{n_e + B \cdot 2 \frac{Z_i}{Z_a} \cdot (T^{3/2}) \cdot 10^{-\frac{5040 \varepsilon_i}{T}}} \cdot n, \quad (1)$$

$$I_i = \frac{1}{4\pi} h\nu_{qp}^{(i)} \frac{A_{qp}^{(i)} g_q^{(i)}}{Z_i} \cdot \frac{B \cdot 2 \frac{Z_i}{Z_a} \cdot (T^{3/2}) \cdot 10^{-\frac{5040}{T} (\varepsilon_i + \varepsilon_q^{(i)})}}{n_e + B \cdot 2 \frac{Z_i}{Z_a} \cdot (T^{3/2}) \cdot 10^{-\frac{5040 \varepsilon_i}{T}}} n \quad (2)$$

где  $A_{qp}$  – вероятность перехода  $q \rightarrow p$ ;  $g_q$  – статистический вес в состоянии  $q$ ;  $h$  – постоянная Планка;  $\nu_{qp}$  – частота излучения света;  $Z$  – сумма по состояниям;  $n$  – концентрация частиц элемента в источнике света;  $T$  – температура;  $n_e$  – электронная



концентрация;  $I_i$  и  $I_a$  - интенсивности ионной и атомной спектральных линий соответственно;  $\mathcal{E}_i$  - потенциал ионизации в эВ;  $\mathcal{E}_q$  - энергия возбуждения в эВ;  $V = 4,83 \cdot 10^{15}$ .

Как видно из формул (1) и (2) интенсивность спектральной линии определяется температурой в источнике возбуждения спектров и электронной концентрацией. Поэтому целесообразно исследовать влияние условий возбуждения на температуру и электронную концентрацию.

Измерения температуры плазмы проводились практически для всех известных дуговых плазматронов, применяемых для аналитических целей. Многими авторами [12, 13] подчеркивался оценочный характер получаемых данных, так для одного и того же плазматрона величины температуры, публикуемые разными авторами, могут значительно отличаться. Эти различия объясняются разными процедурами измерения температуры, используемыми разными табличными данными вероятностей переходов и т. д. Остается пока открытым вопрос о выполнении локального термодинамического равновесия (ЛТР). Наиболее детально процедура измерения температуры для разных участков осесимметричной плазмы исследовалась Кранцем [14]. По интегральным интенсивностям линий с помощью преобразования Абеля вычислялись локальные значения коэффициентов эмиссии и затем локальных температур. Для неосесимметричных струй плазмы этот метод применять нельзя и многие авторы в этом случае ограничивались измерением эффективных температур [15-17]. В работе [16] приведено поле температур плазмы двухструйного плазматрона. В струях плазмы до места слияния температура в этой работе определялась по абсолютной интенсивности континуума аргона с применением интегрального преобразования Абеля. Температура же в аналитической зоне после слияния струй измерялась по абсолютной интенсивности линий олова без учета неоднородности по лучу наблюдения, т.е. измерялась эффективная температура.

Представляет теоретический и практический интерес измерение локальных температур в аналитической зоне двухструйного плазматрона. Эти измерения приведены в работах [18, 19]. Применялся метод определения температуры плазмы по относительной интенсивности двух атомных линий. Эксперимент сложный и очень трудоемкий. Каждое сечение плазмы фотографируется с шести направлений. Далее производится расчет локальных коэффициентов эмиссии и локальных температур с помощью преобразования Радона. Получена количественная оценка температуры плазмы в четырех сечениях факела плазмы и в аналитической зоне плазматрона температура составила 8100 К.

Мы поставили задачу оптимизации условий анализа, поэтому нам не столь важна абсолютная величина температуры плазмы, сколько ее поведение (увеличение – уменьшение) при изменении параметров работы плазматрона и устройства ввода порошка. Мы решили (как большинство исследователей) измерять эффективную температуру плазмы по относительной интенсивности спектральных линий согласно известной формуле (3), заранее полагая, что величина измеренной эффективной температуры плазмы может отличаться от истинной локальной, которая и определяет величину интенсивности спектральной линии, но изменение измеренной эффективной температуры адекватно изменению истинной локальной температуры и влияет на величину интенсивности спектральной линии так же (повышает или понижает), как и изменение локальной тем-



пературы.

$$T = \frac{5040 \cdot (E_1 - E_2)}{\lg \left[ \frac{(gA)_1}{(gA)_2} \right] - \lg \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right) - \lg \left( \frac{I_1}{I_2} \right)}, \quad (3)$$

где  $I_1$  и  $I_2$  – интенсивности спектральных атомных линий двух длин волн  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$ ;  $E_1$ ,  $A_1$ ,  $g_1$  и  $E_2$ ,  $A_2$ ,  $g_2$  – энергии возбуждения в эВ, вероятности переходов и статистические веса верхних уровней соответствующих линий. Атомные константы взяты из [26].

В работах по измерению эффективной температуры неоднократно отмечалось, что результаты измерения тем точнее, чем больше разница между потенциалами возбуждения линий, выбранных в пару. С учетом этого и выбирались линии для данной работы, представленные в табл. 1.

Таблица 1

Пары линий для измерения эффективной температуры

№	Элемент	Длина вол-ны, нм	$A \cdot g$	Потенциал возб., эВ
1	Mn I	327,035	31200	8,04
	Mn I	322,476	226,8	3,85
2	Fe I	341,018	23500,00	7,05
	Fe I	339,698	125,00	4,61
3	Fe I	341,018	23500,00	7,05
	Fe I	341,726	23,40	4,64

Экспериментальная установка состояла из двухструйного дугового плазматрона ДДП -У-100, [2-4] спектрографа ДФС-8-3 с решеткой 1800 штр/мм и регистрацией на фотоэлектронную кассету производства ООО МОРС (г. Троицк). Факел плазмы проектировался 1:1 на входную щель спектрографа ДФС-8-3 с помощью однолинзовой системы ( $F=150$ ). Дифракционная решетка 1800 штр/мм, обратная линейная дисперсия 2 А/мм.

Измерения температуры проводили при всевозможных комбинациях рабочих параметров ДДП. Расстояние между основаниями струй и расстояние между торцом трубки подачи порошковой пробы (внешний диаметр 2 мм) и местом слияния струй плазмы оставляли минимально возможным для данной конструкции плазматрона 15 мм и 13 мм соответственно. Варьировали расходы транспортирующего и плазмообразующего газа, рабочий ток, угол слияния струй плазмы, угол слияния струй плазмы. При этом значения варьируемых параметров устанавливали следующие: плазмообразующий газ – 2 - 5,5 с шагом 0,5 л/мин, транспортирующий газ – 0,5-3 с шагом 0,25 л/мин, ток – 70-90 с шагом 5А, угол слияния – 50-80 с шагом 5°.

Ниже (рис. 1 и 2) приведены результаты измерений температуры плазмы в пяти точках вдоль факела при разных углах между струями плазмы и разных расходах плазмообразующего и транспортирующего газа (рабочий ток – 80А). По причине трудоемкости и больших временных затрат этой работы, вычисления проводились только для четырех-пяти точек факела плазмы.

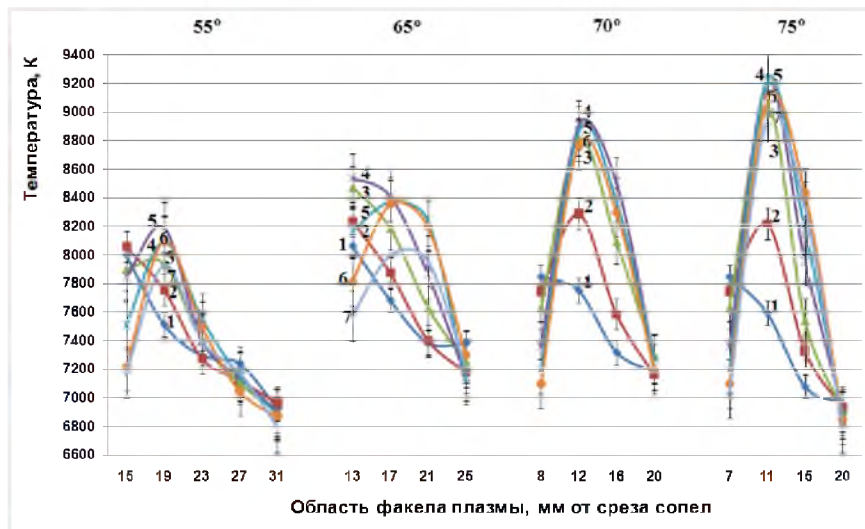


Рис. 1. Распределение эффективной температуры вдоль факела плазмы для разных углов слияния струй и при разных расходах транспортирующего газа (1 – 0,5 л/мин, 2 – 0,7 л/мин, 3 – 1 л/мин, 4 – 1,2 л/мин, 5 – 1,5 л/мин, 6 – 1,75 л/мин, 7 – 2 л/мин); расходе плазмообразующего газа – 5 л/мин; рабочий ток плазматрона – 80А.

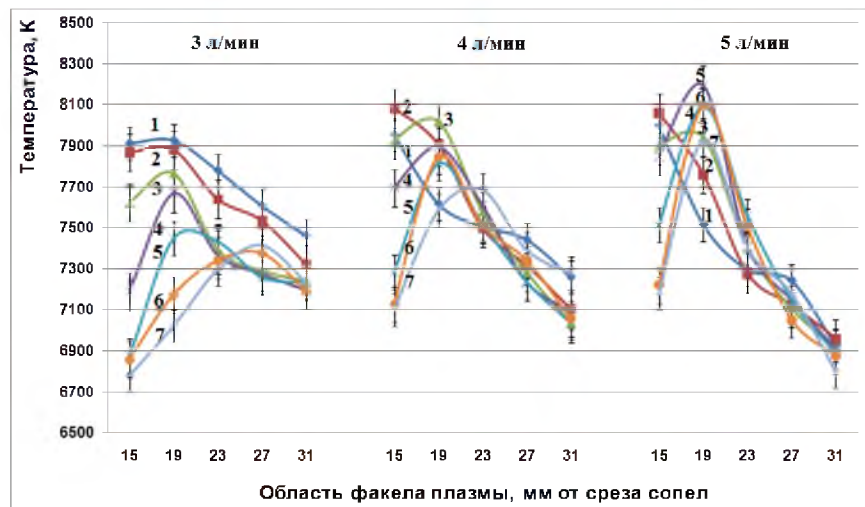


Рис. 2. Распределение эффективной температуры вдоль факела плазмы для разных расходов плазмообразующего газа (3 л/мин, 4 л/мин, 5 л/мин) и при разных расходах транспортирующего газа (1 – 0,5 л/мин, 2 – 0,7 л/мин, 3 – 1 л/мин, 4 – 1,2 л/мин, 5 – 1,5 л/мин, 6 – 1,75 л/мин, 7 – 2 л/мин); угол слияния струй – 75°; ток – 80А.

Из распределений видно, что положение максимума температур при повышении расхода транспортирующего газа перемещается вверх по факелу плазмы. При увеличении угла слияния струй величина температуры в максимуме распределения повышается (рис. 1). С увеличением расхода плазмообразующего газа (рис. 2) температура плазмы слабо зависит от расходов транспортирующего газа. При малых расходах плазмообразующего газа (2,5 – 3 л/мин) с увеличением расхода транспортирующего газа температура



снижается, но при увеличении расходов плазмообразующего и транспортирующего газа температура повышается.

Как видно из формул (1) и (2) наряду с температурой важным параметром источников света является концентрация электронов  $n_e$ . В первых работах по диагностике плазмы концентрация электронов была определена из уравнения Саха по измеренным значениям температуры (температуры возбуждения  $T_B$ ) в предположении наличия в плазме локального термодинамического равновесия (ЛТР). Использование для определения концентрации электронов уравнения Саха и отношения интенсивностей ионных и атомных линий элементов анализируемой пробы дало результаты, значительно отличающиеся друг от друга ( $2 \cdot 10^{13} \text{см}^{-3}$  [20],  $2 \cdot 10^{14} \text{см}^{-3}$  и  $1 \cdot 10^{17} \text{см}^{-3}$  [21]) вследствие большой ошибки при переходе от измеренных отношений  $I_{\text{ион}}/I_{\text{атом}}$  к вычисленным значениям  $n_i/n_a$ . Наиболее достоверными являются результаты работ [22-25], где  $n_e$  определялась по штарковскому уширению линий (как правило,  $H_\beta$ ), которое не зависит от предположения о ЛТР в плазме. Пространственное распределение  $n_e$  изучалось в плазме ИСП [22-25]. Давая оценки условий возбуждения и влияния состава плазмы на интенсивность линий определяемых элементов, весьма существенен характер корреляции между изменениями температуры и электронной концентрации.

При проведении измерения электронной концентрации использовались разные пары линий, в результате чего замечена закономерность: для пар линий, у которых потенциал возбуждения атомной линии был меньше, чем ионной значения электронной концентрации получались ниже, чем для пар линий, у которых потенциал возбуждения атомной линии больше чем ионной (рис. 3).

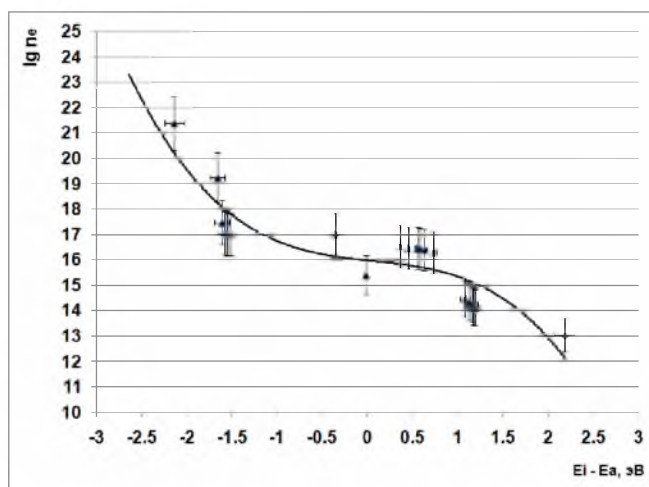


Рис. 3. Зависимость результата вычисления  $\lg n_e$  от разности потенциалов возбуждения ионной и атомной линий

Исходя из выше изложенного, можно предположить, что чем ближе друг к другу значения потенциалов возбуждения атомной и ионной линий, тем меньше погрешность измерения электронной концентрации. Поэтому для измерения были выбраны соответствующие линии, представленные в табл. 2.



Таблица 2

Пары линий для измерения электронной концентрации

№	Элемент	Длина вол-ны, нм	A·g	Потенциал возбуждения, эВ	Потенциал ионизации, эВ
1	Fe II	330,347	122	4,85	7,87
	Fe I	341,726	23,4	4,64	
2	Fe II	349,347	2400	7,69	7,87
	Fe I	341,018	23500	7,05	
3	W II	333,903	11	5,76	7,98
	W I	331,138	28	6,12	
4	Mg II	279,079	16,04	8,86	7,64
	Mg I	278,142	200	7,78	

Вычисления проводились по формуле (4)

$$\lg n_e = -\lg \frac{I_i}{I_a} + \lg \frac{A_{qp}^{(i)} g_q^{(i)} \lambda_a}{A_{qp} g_q \lambda_i} - \frac{5040}{T} (U_i + \mathcal{E}_i - \mathcal{E}_a) + 3/2 \lg T + 15,684, \quad (4)$$

где  $\mathcal{E}_i$  – потенциал возбуждения ионной линии,  $\mathcal{E}_a$  – потенциал возбуждения атомной линии,  $U_i$  – потенциал ионизации,  $T$  – температура,  $n_e$  – электронная концентрация,  $I_i$  и  $I_a$  – интенсивности ионной и атомной спектральных линий соответственно;  $\lambda$ ,  $A_{qp}$ ,  $g_q$  – длина волны, вероятность перехода, статистический вес верхних уровней соответствующих линий (1) и (2). Атомные константы взяты из [26]. Электронная концентрация измерялась при тех же рабочих режимах ДДП, что и температура, и в максимуме распределений по факелу составила  $5 \cdot 10^{16} - 5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  в зависимости от режима работы плазматрона. На рисунках 4 и 5 представлены распределения электронной концентрации вдоль факела плазмы при разных углах слияния струй, разных расходах плазмообразующего и транспортирующего газа, рабочий ток – 80 А. Из полученных распределений электронной концентрации вдоль факела плазмы можно отметить уменьшение ее максимума при увеличении угла слияния струй. При увеличении угла слияния струй и увеличении расхода плазмообразующего газа степень зависимости электронной концентрации от расхода транспортирующего газа ослабевает. При увеличении расхода транспортирующего газа максимум распределения электронной концентрации растет и при углах слияния струй  $50^\circ - 65^\circ$  принимает наибольшее значение при расходах плазмообразующего газа 3,5 – 4 л/мин, при углах  $65^\circ - 80^\circ$  убывает с увеличением плазмообразующего газа.



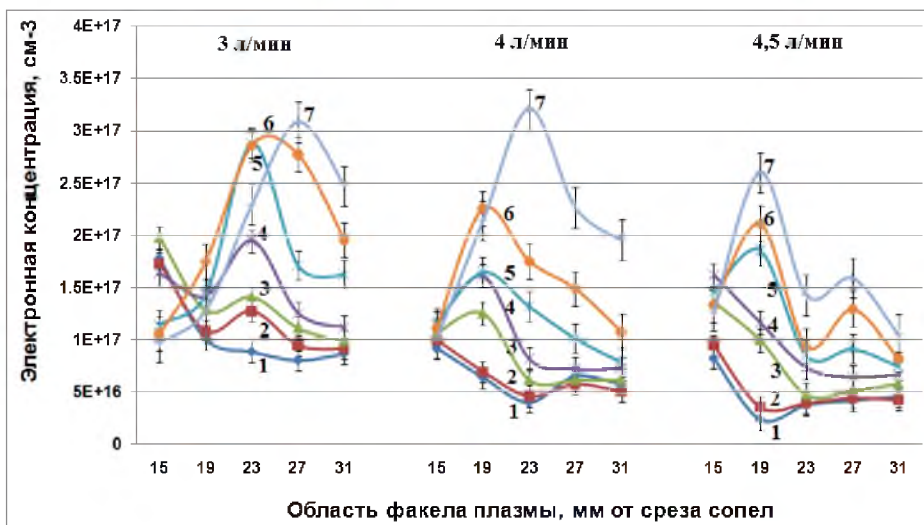


Рис. 4. Распределение электронной концентрации вдоль факела плазмы для разных расходов плазмообразующего газа и при разных расходах транспортирующего газа (1 – 0,5 л/мин, 2 – 0,7 л/мин, 3 – 1 л/мин, 4 – 1,2 л/мин, 5 – 1,5 л/мин, 6 – 1,75 л/мин, 7 – 2 л/мин); при угле слияния струй – 55°; ток – 90А.

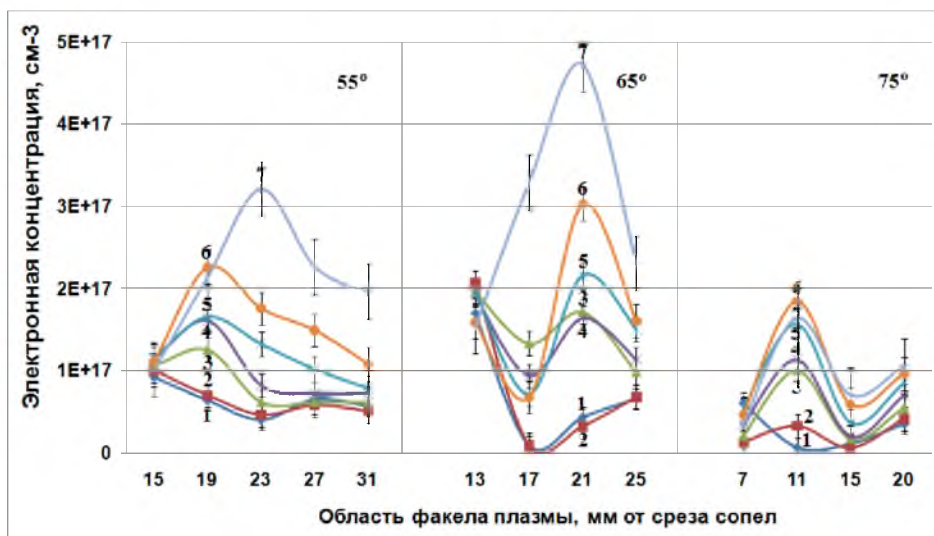


Рис. 5. Распределение электронной концентрации вдоль факела плазмы для разных углов слияния струй и при разных расходах транспортирующего газа (1 – 0,5 л/мин, 2 – 0,7 л/мин, 3 – 1 л/мин, 4 – 1,2 л/мин, 5 – 1,5 л/мин, 6 – 1,75 л/мин, 7 – 2 л/мин); при расходе плазмообразующего газа – 4 л/мин; ток – 90А.

Нами исследовано влияние присутствия легкоионизируемой примеси в плазме на концентрацию электронов. Измерения проводились в двух областях аналитической зоны плазмы – до слияния струй и после. На рис. 6 представлены результаты.

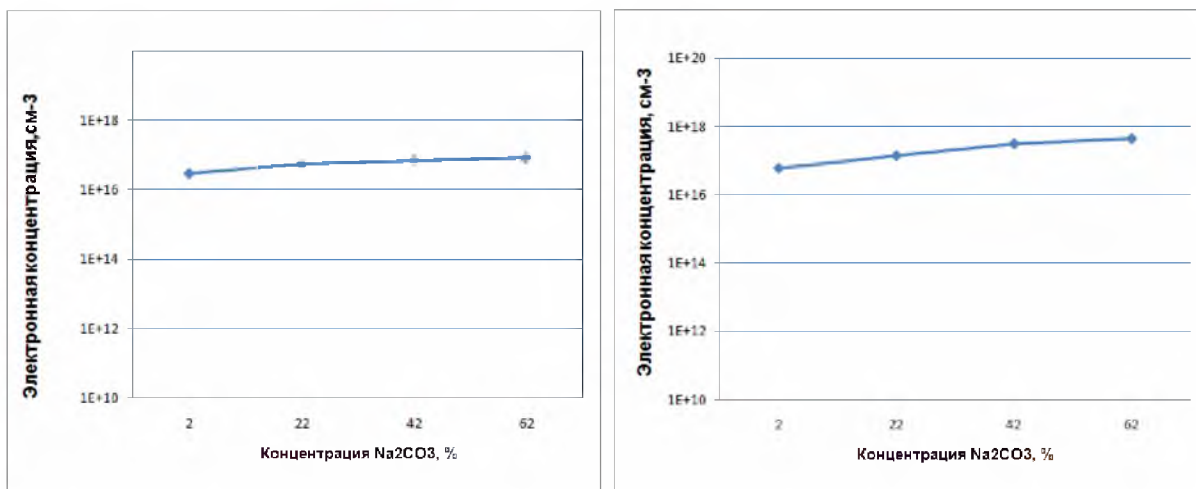


Рис. 6. Зависимость электронной концентрации от величины легкоионизируемой примеси в области факела – до слияния струй и после слияния струй соответственно

Из полученных экспериментально кривых (рис. 6) видна слабая зависимость электронной концентрации от величины легкоионизируемой примеси в плазме двухструйного дугового плазматрона.

Подставляя в формулу (1) значения температуры и электронной концентрации полученные экспериментально мы вычислили соответствующую этим значениям относительную интенсивность атомной линии в условных единицах (рис. 7 прав.) и сравнили с экспериментальными кривыми распределения линии вольфрама (рис. 7 лев.) при разных расходах транспортирующего газа – 0,7 и 1,75 л/мин.

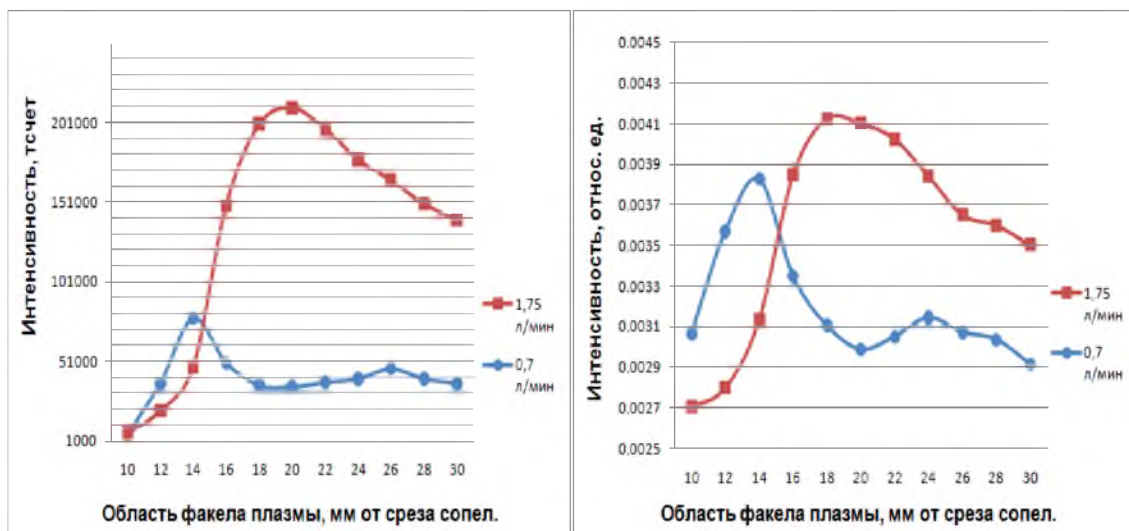


Рис. 7. Распределение экспериментальной (слева) и рассчитанной (справа) относительной интенсивности атомной линии вольфрама вдоль факела плазмы при разных расходах транспортирующего газа (расход плазмообразующего газа – 3 л/мин, угол слияния – 60 градусов, рабочий ток – 80А).





На рис. 7 видно, что распределения вдоль факела расчетной и экспериментальной интенсивности совпадают. Это говорит о разумности полученных оценок значений температуры и электронной концентрации в настоящей работе.

### Литература

1. Жеенбаев Ж., Энгельшт В.С. Двухструйный плазматрон // Фрунзе: Илим, 1983. – 200 с.
2. Тагильцев А.П., Тагильцева Е.А. Автоматический запуск двухструйного дугового плазматрона // Заводская лаборатория. – 2009. – 3. – С.23-25.
3. Тагильцев А.П., Тагильцева Е.А. Устройство подачи порошковых проб при спектральном анализе на двухструйном дуговом плазматроне // Заводская лаборатория. – 2009. – 6. – С.22-26.
4. Тагильцев А.П. Спектральные и химико-спектральные методы анализа проб сложного состава с использованием двухструйного дугового плазматрона. Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук / Новосибирск, 1986.
5. Заякина С.Б., Засыпкин И.М., Аношин Г.М. Параметры плазмы двухструйного дугового плазматрона, применяемого для прямого атомно-эмиссионного спектрального анализа твердых дисперсных геологических образцов // IV междунар. симп. по теоретической и прикладной плазмохимии, сб. трудов Т.2. / Иваново, 2005. – С.543-547.
6. Черевко А.С., Юделевич И.Г., Попова В.П., Тагильцев А.П. Атомно-эмиссионный спектральный анализ порошков с использованием дугового двухструйного плазматрона // ЖАХ. – 1988. – XLIV;3. – С.426-433.
7. Чылымов А. Некоторые аналитические характеристики двухструйного плазматрона и применение его для спектрального анализа порошков / Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук / Фрунзе, 1985.
8. Заксас Н.П. Новые аналитические возможности двухструйного дугового плазматрона / Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук / Новосибирск, 2002.
9. Таштанов Р.А., Урманбетов К., Жеенбаев Ж.Ж. Оптимизация параметров усовершенствованного двухструйного плазматрона для анализа порошковых проб // ЖАХ. – 2006. – 61;6. – С.625-631.
10. Заякина С.Б. Двухструйный дуговой плазматрон в атомно-эмиссионном анализе геологических проб и дисперсных технологических материалов / Диссертация на соискание ученой степени доктора технических наук / Москва, 2009.
11. Зильберштейн Х.И. Спектральный анализ чистых веществ / С.-Петербург: Химия, 1994.
12. Keirs C.D., Vickers T.J. d.c. Plasma Arcs for Elemental Analysis // Appl.Spectroscopy. – 1977. – 31;4. – P.273-283.
13. Merchant P., Veillon C. Characterization of a d.c. arc Plasma jet in argon as an atomization and excitation source for atomic spectroscopy // Analytica Chimica Acta. – 1974. – 70. – P.17-24.
14. Kranz E. Die anwendung eines Plasmastrahls fur spektroskopische Temperaturbestimmungen und zur Analyse von Losungen und Pulvern // XIV Colloquium Spectroscopicum Internationale, Debrecen, Hungary, 1967/ P.697-708.
15. Skogerboe R.U., Urasa I. I., Coleman G.N. Characterization of a dc Plasma as an Excitation Source for Multielement Analysis // Appl. Spectroscopy. – 1976. – 30;5. – P.500-504.
16. Конавко Р.И., Энгельшт В.С., Буранчиев Д., Жеенбаев Ж. и др. Двухструйный плазматрон // Всесоюзн. конф. по генераторам низкотемпературной плазмы / Фрунзе: ИЛИМ, 1974. – С.155-158.
17. Golightly D.W. and Harris J.L. Spectrographic Analysis of Geological Materials with an Argon Plasma Jet // Appl. Spectroscopy. – 1975. – 29. – P.233-240.
18. Черевко А.С., Пикалов В.В., Тагильцев А.П., Юделевич И.Г., Энгельшт В.С., Жеенбаев Ж. Изучение температурного поля плазменной струи двухструйного плазматрона // ЖПС. – 1983. – 36;3. – С.497-499.



19. Черевко А.С., Пикалов В.В., Тагильцев А.П., Юделевич И.Г., Энгельшт В.С., Жеенбаев Ж. Зависимость температуры плазменной струи двухструйного плазматрона от потенциала ионизации запыляющего плазму вещества // Изв. СО АН СССР, Серия хим. науки. – 1983. – 6. – С.80-85.
20. Mermet J. M. Comparaison des temperatures et des densites electroniques mesurees sur la gaz plasmagene et sur des elements excites dans un plasma n. f. // Spectrochim. Acta. – 1975. – 30 B;10/11. – P.383-396.
21. Galan L. de Some consideration on the excitation mechanism in the inductively coupled plasma // Spectrochim. Acta. – 1984. – 39 B;4. – P.537-550.
22. Kalnicky D.J., Fassel U.A., Knisely R.N. Excitation temperatures and electron number densities experienced by analyte species in inductively-coupled plasmas with presence of an easily ionized element // Appl. Spectroscopy. – 1977. – 31;2. – P.137-150.
23. Гольдфарб В.М., Дресвин С.В. Оптическое исследование распределения температуры и электронной концентрации в аргоновой плазме // Теплофизика высоких температур. – 1965. – 3;3. – С.333-339.
24. Герасимов Г.Н., Карташева М.А., Петров С.Я. Спектроскопическое исследование индуктивно-связанной плазмы // XIX Всесоюзный съезд по спектроскопии: тез. Докладов, Томск, 1983 / 4.5. – С.125-127.
25. Герасимов Г.Н., Егорова Л.В., Карташева М.А., Петров С.Я. Спектроскопическая диагностика индуктивно-связанной плазмы // Теплофизика высоких температур. – 1986. – 24;4. – С.825-827.
26. <http://www.physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/index.html>

## INFLUENCE OF TWO-JET ARC PLASMATRON MODE ON TEMPERATURE AND ELECTRON DENSITY OF PLASMA

E.A. Tagiltseva

V.I. Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry, Russian Academy of Sciences,  
Kosygina St., 19, Moscow, 119991, Russia, e-mail: [tagiltseva\\_helen@mail.ru](mailto:tagiltseva_helen@mail.ru)

**Abstract.** The effect of various combinations of parameter values that determine two-jet arc plasmatron's mode on plasma temperature and its electron density was studied. It was shown that substituting obtained values  $T$  and  $n_e$  into the formula of spectral line intensity one can determine the optimal operation mode for analytic excitation of element under study. It is shown weak dependence of electron density on concentration of easy ionizing impurities in plasma.

**Keywords:** two-jet arc plasmatron, plasma temperature, electron density in plasma, atomic emission spectral analysis.