

## ANÁLISE NUMÉRICA DE PULSAÇÕES NO PLASMA ICP

### Rafkat Toukhvatouline

Departamento de Física, Estatística e Matemática. Universidade de Ijuí - UNIJUÍ,  
DeFEM, Rua São Francisco, 501, CP 560-987000-000-Ijuí-RS-Brasil  
[rafkat@unijui.tche.br](mailto:rafkat@unijui.tche.br)

### Gerson Feldmann

Departamento de Física, Estatística e Matemática. Universidade de Ijuí - UNIJUÍ,  
DeFEM, Rua São Francisco, 501, CP 560-987000-000-Ijuí-RS-Brasil  
[feldmann@unijui.tche.br](mailto:feldmann@unijui.tche.br)

### Helio Bonadiman

Departamento de Física, Estatística e Matemática. Universidade de Ijuí - UNIJUÍ,  
DeFEM, Rua São Francisco, 501, CP 560-987000-000-Ijuí-RS-Brasil  
[helio@unijui.tche.br](mailto:helio@unijui.tche.br)

### Roseli Adriana Blümke

Departamento de Física, Estatística e Matemática. Universidade de Ijuí - UNIJUÍ,  
DeFEM, Rua São Francisco, 501, CP 560-987000-000-Ijuí-RS-Brasil  
[roselib@detec.unijui.tche.br](mailto:roselib@detec.unijui.tche.br)

**Resumo.** Com base em resultados experimentais foi proposto um modelo matemático não estacionário do plasma com simetria cilíndrica. Neste modelo o plasma é estacionário no espaço, mas cada ponto dele participa simultaneamente em dois tipos de pulsações temporais: a) oscilação aleatória que segue a distribuição Gaussiana e b) oscilação harmônica. Usando este modelo foram encontradas as funções de distribuição destas oscilações, a função de distribuição geral e calculadas as intensidades e temperaturas radiais para a tocha ICP (Inductively Coupled Plasma). O efeito das pulsações na temperatura foi estudado para diferentes valores de desvio-padrão e amplitude das oscilações de temperatura. Os cálculos foram feitos para a raia espectral ArI 435,8 nm. Os resultados mostram que as pulsações dentro do plasma podem interferir nos resultados experimentais e ser a causa da diferença entre cálculos teóricos e medidas experimentais da temperatura.

**Palavras chave:** Pulsações harmônicas e aleatórias, modelo do plasma ICP não-estacionário, temperatura

### 1. Introdução

Os plasmas térmicos de Argônio são utilizados largamente em diferentes áreas da ciência e da tecnologia, tais como metalurgia, medicina, espectroscopia, análise espectral de diferentes materiais, entre outras. Para justificar e ampliar as aplicações do plasma é preciso conhecer seus processos físicos e químicos fundamentais. Um dos mais importantes parâmetros do plasma é a temperatura. Conhecendo-se a temperatura e sua distribuição espacial pode-se determinar as características do plasma, tais como os coeficientes de condutividade, de calor, de viscosidade, as concentrações de elétrons, de íons e de átomos, as velocidades de reação dos diferentes processos físico-químicos, as propriedades termodinâmicas, entre outras. Os cálculos teóricos e as determinações experimentais da temperatura são realizados supondo que o plasma é estacionário no tempo e espaço. No entanto, observa-se diferenças entre os cálculos teóricos da distribuição radial da temperatura e as medidas experimentais (Montaser et al, 1992). Para estas diferenças existem explicações, como o desvio do equilíbrio térmico local etc. Outra causa para as diferenças entre os resultados teóricos e experimentais, que ainda não foi suficientemente estudada, é a instabilidade do plasma. Numerosas medidas das pulsações de arcos elétricos estabilizados em geradores de plasma mostram que o plasma não é estacionário. Ele apresenta pulsações de tocha, de corrente, de tensão e de intensidade de radiação (Toukhvatouline, 1975). Pulsações da ordem de 15% na tensão, velocidade e sinal óptico foram observadas (Planche et al, 1998) em plasmas de corrente contínua. Em plasmas de arco elétrico estabilizado foram observadas pulsações espaciais e de intensidade da radiação (Toukhvatouline, 1975). No caso de fluxo laminar foi mostrado que estas pulsações são aleatórias e seguem uma distribuição Gaussiana com desvio-padrão relativo variando entre 7 e 38 %. Estas oscilações podem influir significativamente na precisão dos resultados de investigações das propriedades do plasma. Para os fluxos turbulentos de gás a amplitude das pulsações é maior e o caráter das pulsações não é Gaussiano (Garapova et al, 1977).

Na Fig. (1) é mostrado o registrograma típico de oscilações espaciais do arco elétrico para  $I = 200$  A e  $G = 6$  g/s. Pode-se ver, nesta figura, que as oscilações são quase harmônicas e elas superpõem as oscilações aleatórias.

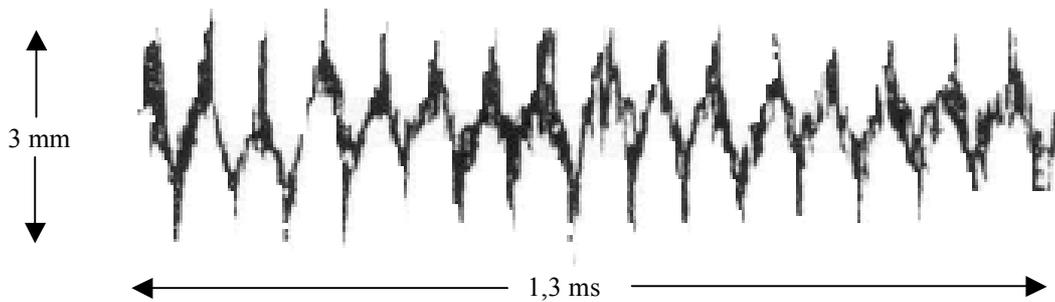


Figura 1. Registrograma típico das oscilações do arco elétrico estabilizado

A tocha do plasma indutivamente acoplado (ICP-Inductively Coupled Plasma) também pode apresentar um comportamento não-estacionário. Os resultados do estudo anteriores no plasma ICP (Toukhvatoulline et al., 2000) mostram que as pulsações espaciais estão praticamente ausentes mas existem pulsações de intensidade da radiação. O oscilograma típico de oscilações de intensidade da radiação é mostrado na Fig. (2).

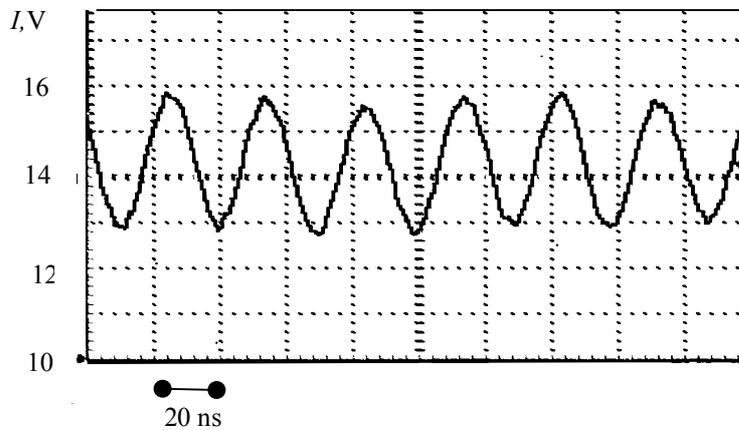


Figura 2. Oscilograma da intensidade de radiação para o plasma ICP-AES

Pode-se ver nesta figura que as oscilações são quase harmônicas com a frequência de aproximadamente 27 MHz, ou seja, possuem a mesma frequência do gerador de plasma ICP. A amplitude destas pulsações atinge 10%.

No trabalho (Toukhvatoulline et al., 2001) foi proposto um modelo matemático para estudo das pulsações do plasma considerando o caso em que o eixo da tocha realiza ao mesmo tempo dois tipos de movimento: rotação ao redor do sistema de coordenadas imóvel e oscilação aleatória do eixo da tocha. No presente trabalho apresentamos um modelo matemático para estudo de pulsações considerando o outro caso limite em que a tocha de plasma é estacionária no espaço, mas a temperatura em cada ponto flutua de acordo com dois tipos de oscilações: a) harmônicas e b) aleatórias.

## 2. Modelo da tocha

Consideremos a tocha do plasma ICP estacionária no espaço, na qual a temperatura em cada ponto varia simultaneamente de acordo com dois tipos de oscilações: a) oscilações harmônicas e b) oscilações aleatórias. Para encontrar a função de distribuição destas pulsações harmônicas admitimos que cada ponto do plasma faz oscilações da temperatura ao redor da temperatura média  $T_m$ . Estas pulsações são descritas pela relação:

$$T = T_m + a \cos \omega t, \tag{1}$$

onde  $\omega$  é a frequência de pulsações e  $a$  é a amplitude. A função de distribuição da Eq. (1) é

$$\varphi_1(\xi) = \frac{1}{\pi \sqrt{a^2 - \xi^2}}, \tag{2}$$

onde  $\xi = T - T_m$ .

As oscilações aleatórias são descritas pela distribuição Gaussiana

$$\varphi_2(\xi) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left(-\frac{\xi^2}{2\sigma^2}\right), \quad (3)$$

onde  $\sigma$  é desvio-padrão da temperatura. Consideração as Eq. (2) e Eq. (3) a função de distribuição geral pode ser escrita como:

$$\varphi(\xi) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi^3}} \int_{-a}^{+a} \frac{1}{\sqrt{a^2 - \zeta^2}} \cdot \exp\left[-\frac{(\zeta - \xi)^2}{2\sigma^2}\right] d\zeta. \quad (4)$$

Neste trabalho nós calculamos a Eq. (4) para os seguintes valores de  $\sigma = 0, 1000, 2000, 3000$  K e de  $a = 0, 500, 1000, 2000$  e  $3000$  K. Na Fig. (3a) são apresentados os gráficos da Eq. (4) para  $a = 1000$  e  $\sigma = 1000$  (1),  $2000$  (2) e  $3000$  (3) K e na Fig. (3b) para  $\sigma = 1000$  K,  $a = 1000$  (1),  $2000$  (2) e  $3000$  (3) K. Pode-se ver deste gráfico que a forma de curva depende de  $\sigma$ . O máximo não fica no eixo. A distância entre o eixo da tocha e o máximo da curva depende da amplitude  $a$ . Com o aumento de  $a$  aumenta esta distância.

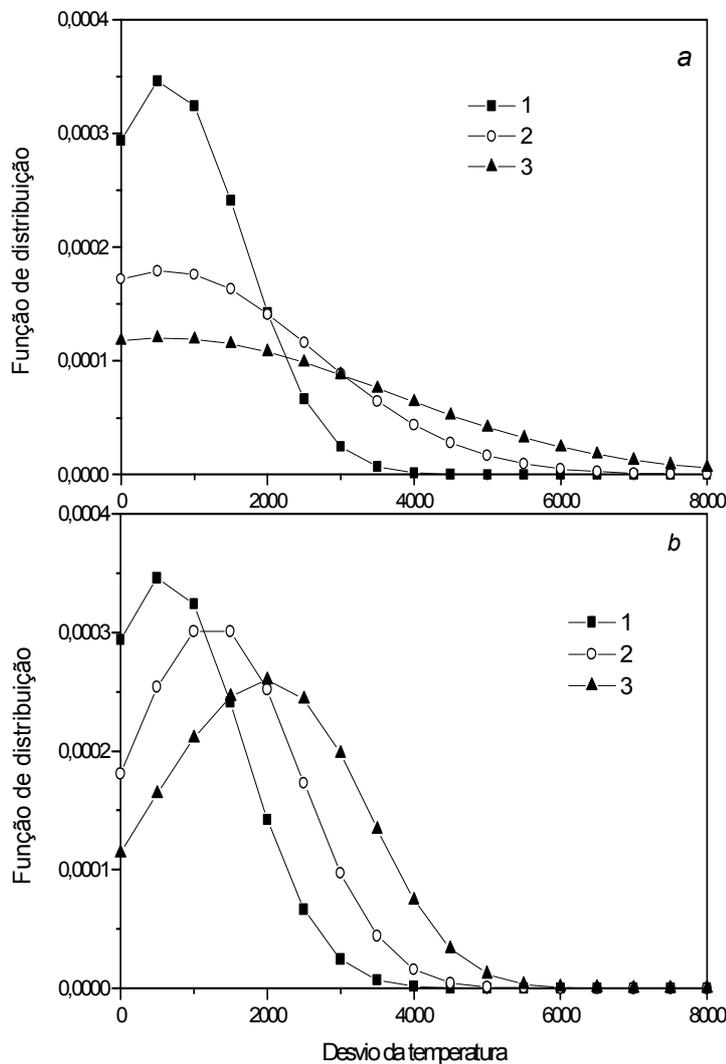


Figura 3. Função de distribuição da temperatura para para  $a = 1000, \sigma = 1000$  (1),  $2000$  (2) e  $3000$  (3) K, Fig. (3a) e  $\sigma = 1000, a = 1000$  (1),  $2000$  (2) e  $3000$  (3) K, Fig. (3b).

### 3. Intensidade local

As pulsações que são descritas pela Eq. (4) influem sobre a intensidade da radiação que sai do plasma e na temperatura radial que esta ligado com esta radiação. Vamos encontrar esta influência. A intensidade local do plasma é ligada com a temperatura pela relação

$$\varepsilon(T) = \frac{1}{4\pi} A_n^m \frac{g_m}{Z} n_a e^{-\frac{E_m}{kT}} h\nu \quad (5)$$

onde  $\varepsilon$  é a intensidade local da raia,  $A_n^m$  é a probabilidade de passagem do nível energético  $m$  ao nível energético  $n$ ,  $g_m$  é o peso estatístico do nível  $m$ ,  $Z$  é a soma estatística,  $n_a$  é a concentração de átomos no plasma,  $E_m$  é a energia do nível  $m$ ,  $k$  é constante de Boltzmann,  $T$  é a temperatura,  $h$  é a constante de Planck,  $\nu$  é a frequência. O cálculo da Eq. (5), no intervalo de temperaturas 3000 – 26000 K, para a raia espectral Ar I 415,8 nm é apresentado em (Toukhvatoulline e Feldmann, 2000). A intensidade local média em presença de pulsações do tipo (4) pode ser calculada através da relação

$$\varepsilon(T_m) = \int_{1000}^{26000} \varepsilon(T) f(T - T_m) dT \quad (6)$$

Na Eq. (6),  $\varepsilon(T)$  é dado pela Eq. (5) e  $f(T - T_m)$  é pela Eq. (4). Os cálculos da Eq. (6) para a raia espectral Ar I 415,8 nm no intervalo de temperaturas 2000 – 26000 K foram feitos para as seguintes valores de  $\sigma = 1000, 2000, 3000$  K e  $a = 500, 1000, 2000$  e  $3000$  K. Os resultados destes cálculos no intervalo de temperaturas 8000 – 16000 K são apresentados na Fig. (4). Nesta figura, a curva 1 apresenta o gráfico da Eq. (5) e as demais curvas são as intensidades em presença de pulsações para  $a = 1000$  K,  $\sigma = 1000$  (2),  $2000$  (3),  $3000$  (4) K, Fig. (4a) e  $\sigma = 1000$  K,  $a = 1000$  (2),  $2000$  (3),  $3000$  (4) K, Fig. (4b).

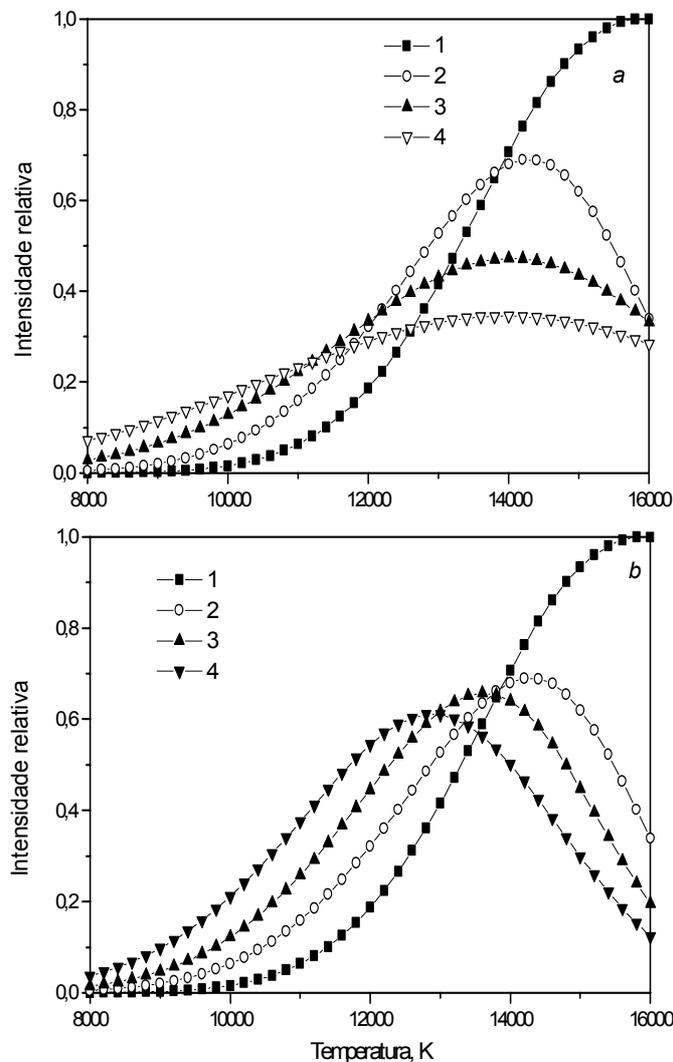


Figura 4. Intensidade local da raia espectral Ar I 415,8 nm em função da temperatura em ausência de pulsações (1) e em presença delas para  $a = 1000$  K,  $\sigma = 1000$  (2),  $2000$  (3) e  $3000$  (4) K, Fig. (4a) e  $\sigma = 1000$  K,  $a = 1000$  (2),  $2000$  (3),  $3000$  (4) K, Fig. (4b).

Pode-se ver, da Fig. (4), que as pulsações influem bastante na forma da dependência entre a intensidade local e a temperatura. A forma da curva depende de  $\sigma$  e de  $a$ . Com o aumento de  $\sigma$  o máximo diminui e a intensidade para as pequenas temperaturas aumenta. O aumento de  $a$  segue o deslocamento do máximo para baixas temperaturas.

#### 4. A intensidade e temperatura radiais

No diagnóstico do plasma com simetria cilíndrica, representado na Fig. (5), pelos métodos espectrométricos, como regra, é determinada experimentalmente a intensidade lateral  $I(x)$ , que ligada com a intensidade radial  $\varepsilon(r)$  através da equação integral de Abel

$$I(x) = 2 \int_x^R \frac{\varepsilon(r) r dr}{\sqrt{r^2 - x^2}}, \quad x \leq r \leq R \quad (7)$$

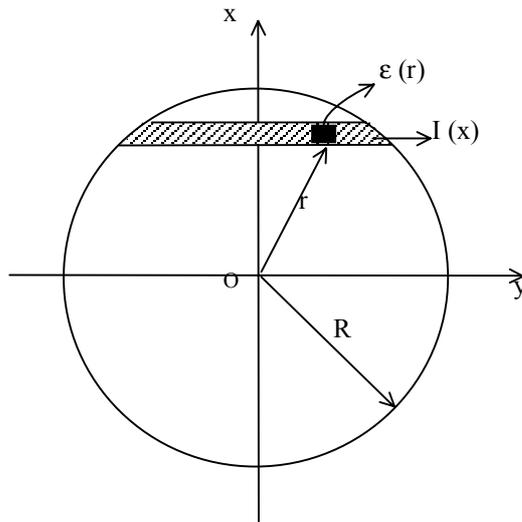


Figura 5. Sessão transversal da tocha do plasma

A solução desta equação integral é

$$\varepsilon(r) = -\frac{1}{\pi} \int_r^R \frac{dI(x)}{dx} \frac{dx}{\sqrt{x^2 - r^2}} \quad (8)$$

A partir da intensidade radial e a da dependência entre a temperatura e a intensidade local (5) determina-se a temperatura radial. Para determinar a distribuição radial da temperatura, escolheu-se a distribuição lateral da intensidade  $I(x)$ , observada pelo espectrômetro, da seguinte forma:

$$I(x) = I(0) \exp(-kx^2) \quad (9)$$

onde  $I(0)$  é a intensidade no eixo da tocha,  $k$  é um coeficiente. Para encontrar intensidade radial  $\varepsilon(r)$ , a Eq.(8) foi apresentado em forma de sistema de equações lineares

$$\varepsilon(r_j) = \sum_{i=k}^N b_{ik} I(y_k) \quad (10)$$

e resolvido numericamente. Os coeficientes  $b_{ik}$  para resolver a equação Abel foram tomados em (Lokhte-Holtgreven, 1968).

A intensidade radial foi calculada para  $k = 10$  e  $k = 5$  e diferentes valores de  $\sigma$  e  $a$ . Na Fig. (6) são apresentados os resultados de cálculo das intensidades radiais para  $k=10$ ,  $a=1000$  K,  $\sigma = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (6a) e para  $\sigma=1000$  K e  $a = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (6b).

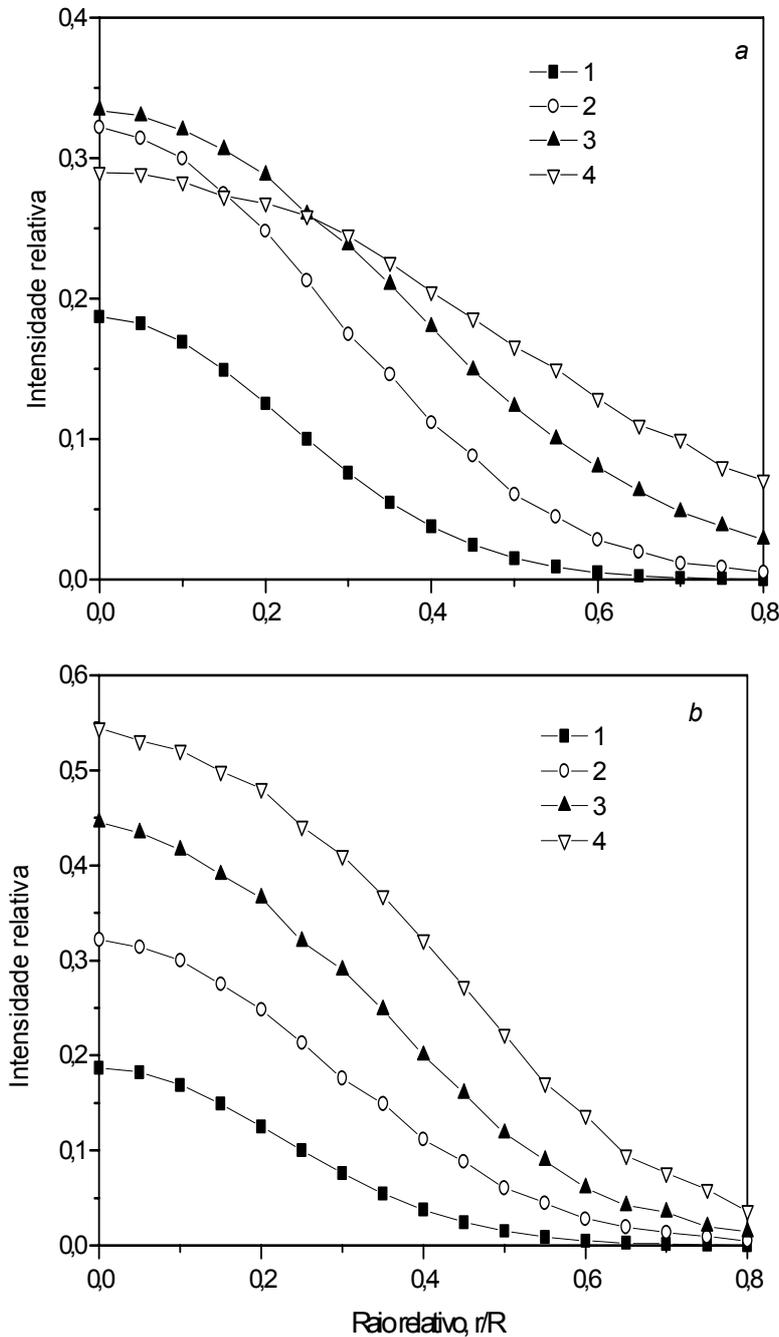


Figura 6. As intensidades radiais em ausência de pulsações (1) e em presença delas para  $a = 1000$  K e  $\sigma = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (6a) e para  $\sigma = 1000$  K e  $a = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (6b)

Pode-se ver deste gráfico que as pulsações influem bastante sobre a intensidade radial. Esta influência depende de  $\sigma$  e  $a$ . O desvio-padrão  $\sigma$  influi na inclinação da curva da Fig. (6b). Com o aumento de  $a$  aumenta também a intensidade de radiação.

Para encontrar a temperatura radial foram utilizados os resultados de cálculos de intensidades radiais, Fig. (7), e as dependências entre a intensidade local e a temperatura, Fig. (4). Os cálculos foram feitos para a temperatura no eixo da tocha de 8000, 10000 e 12000 K e para os diferentes valores de  $\sigma$  e  $a$ . Os resultados dos cálculos para a temperatura no eixo de 12000 K e 8000 K são mostrados nas Figs. (7) e (8), correspondentemente.

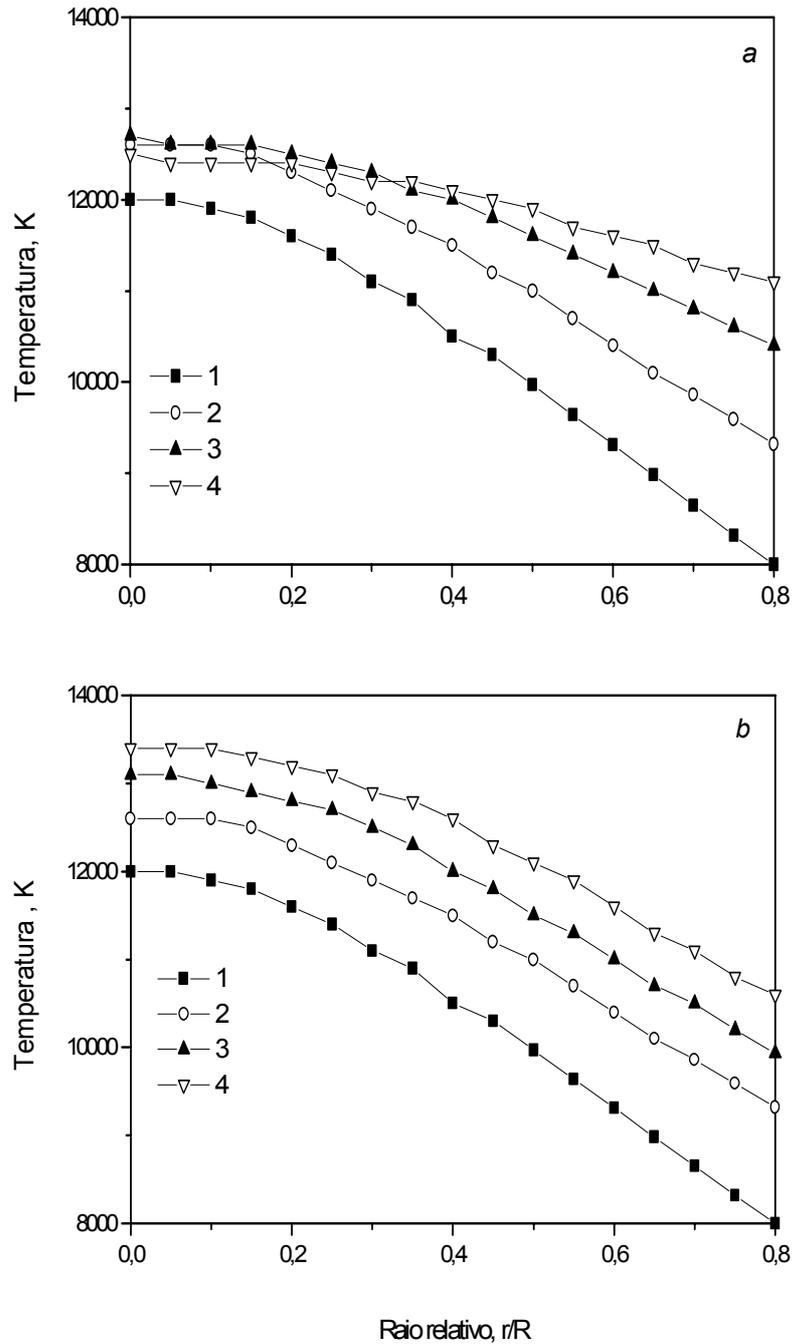


Figura 7. Temperaturas radiais para temperatura no eixo de 12000 K em ausência de pulsações (1) e em presença delas para  $a = 1000$  K e  $\sigma = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (7a), e para  $\sigma = 1000$  K e  $a = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (7b).

Nestas figuras a curva 1 corresponde a temperatura radial para o plasma estacionário e as curvas 2 – 4 em presença de pulsações. Pode se ver das Figs. (7) e (8) que as pulsações aumentam a temperatura do plasma em toda a região do raio. A influência das pulsações dependem da combinação dos parâmetros: do desvio-padrão  $\sigma$  e da amplitude das pulsações harmônicas  $a$ .

Da Fig. (7a) pode-se ver, para  $a$  fixo e com o aumento de  $\sigma$ , a temperatura radial diminui mais lentamente com o aumento do raio e a temperatura no eixo não varia muito. Com o aumento do  $a$  para  $\sigma$  fixo aumenta a temperatura radial em todo intervalo do raio. A comparação das Figs. (7) e (8) mostra que para a temperatura no eixo de 8000 K a influência dos parâmetros  $\sigma$  e  $a$  é mais significativa

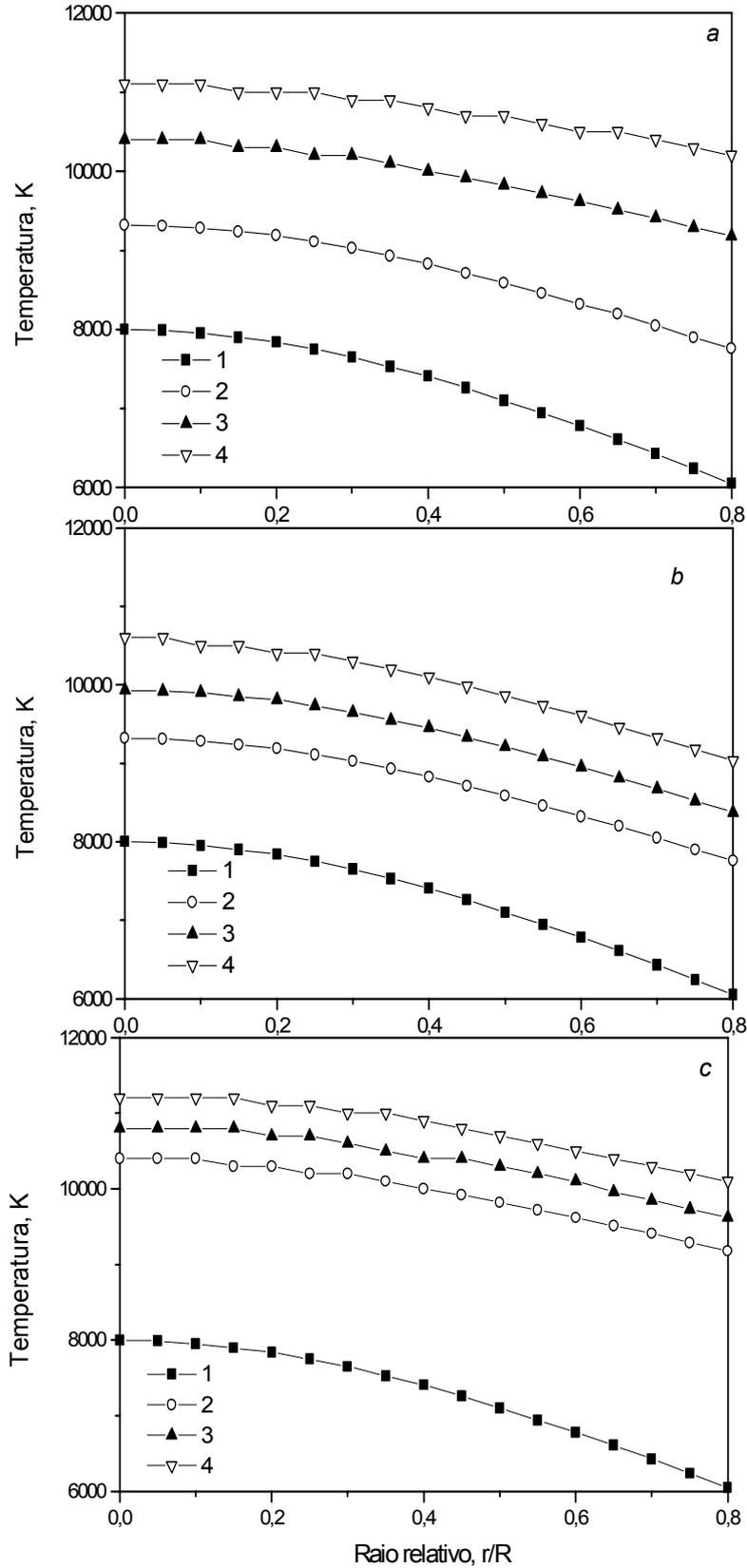


Figura 8. Temperaturas radiais para temperatura no eixo de 2000 K em ausência de pulsações (1) e em presença delas para  $a=1000$  K e  $\sigma = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (8a), para  $\sigma=1000$  K e  $a = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (8,b) e  $\sigma=2000$  K e  $a = 1000$  (2), 2000 (3), 3000 (4) K, Fig. (8c).

## 5. Conclusões

A análise dos resultados experimentais do plasma ICP mostrou que praticamente estão ausentes as oscilações espaciais mas presentes as oscilações temporais da intensidade de radiação. Neste trabalho foi proposto o modelo da tocha de plasma com simetria cilíndrica. Neste modelo, a tocha de plasma é estacionária no espaço mas cada ponto participa, ao mesmo tempo, em dois tipos de oscilações temporais: a) oscilações harmônicas e b) oscilações aleatórias. Foi encontrada a função de distribuição destas oscilações e a partir desta função de distribuição foram calculadas as intensidades de radiação em função da temperatura em presença destas pulsações, as intensidades e as temperaturas radiais. Os resultados dos cálculos mostraram que as pulsações temporais presentes no plasma ICP podem influir bastante nas temperaturas radiais. Esta influência depende da combinação de dois parâmetros: do desvio-padrão  $\sigma$  e da amplitude de pulsações harmônicas  $a$ . Na presença de pulsações, a temperatura radial é maior em toda região da tocha. Para  $\alpha$  fixo e com o aumento de  $\sigma$  as curvas de temperatura ficam mais ampliadas, a temperatura no eixo praticamente não muda mas na periferia a temperatura aumenta. Para  $\sigma$  fixo, com o aumento de  $\alpha$ , a temperatura aumenta em todo intervalo do raio. Os resultados mostram que a influência de pulsações depende da temperatura no eixo do plasma.

## 6. Referências

- Garapova, I., Dautov, A., Sabitova, N., Toukhvatoulline, R., 1977, “Física i chimia obrabotki materialov”. Vol. 5, pp. 50 - 55. ( in Russian).
- Lochte-Holtgreven, W.L., 1968, “Plasma Diagnostics”, North-Holland, Amsterdam.
- Montaser, A and Golightly, 1992, “Inductively Coupled Plasmas in Analytical Atomic Spectrometry”, 2 nd Edition, VCH Publishers, New York Weinheim Cambridge.
- Planche, M.P., Coudert, J.F. and Fauchais, P., 1998, Plasma chem. Plasma Process., Vol.18, pp. 263-283.
- Toukhvatoulline, R., 1975, Investigation of radial ditribution of the temperature in DC plasma torch. PhD Thesis. Kazan Tecnical University (in Russian).
- Toukhvatoulline, R. and Feldmann, G., 2000, J.Phys.D: Appl. Phys., Vol.33, pp. 2420 –2424.
- Toukhvatoulline, R., Bonadiman, H. and Pieniz, M., 2000, “Estudo experimental e teórico dos processos no plasma ICP-AES não-estacionário”, Tema - Tendências em Matemática Aplicada e Computacional. Vol. 1, pp. 223-232, SBMAC, São Carlos – Santos, RS.
- Toukhvatoulline, R., Feldmann, G., Bonadiman, H., Pieniz, M., 2001, Modelo da tocha do plasma não-estacionário com simetria cilíndrica. XXII Cilamce. 22 Iberian Latin-American Congress on Computacional Methods in Engineering. São Paulo, USP, pp. CIL114.1 – 114.10.

### NUMERIC ANALYSIS OF PULSATIONS IN ICP PLASMA

#### Rafkat Toukhvatoulline

Departamento de Física, Estatística e Matemática. Universidade de Ijuí - UNIJUÍ,  
DeFEM, Rua São Francisco, 501, CP 560-987000-000-Ijuí-RS-Brasil.  
[rafkat@unijui.tche.br](mailto:rafkat@unijui.tche.br)

#### Gerson Feldmann

Departamento de Física, Estatística e Matemática. Universidade de Ijuí - UNIJUÍ,  
DeFEM, Rua São Francisco, 501, CP 560-987000-000-Ijuí-RS-Brasil.  
[feldmann@unijui.tche.br](mailto:feldmann@unijui.tche.br)

#### Helio Bonadiman

Departamento de Física, Estatística e Matemática. Universidade de Ijuí - UNIJUÍ,  
DeFEM, Rua São Francisco, 501, CP 560-987000-000-Ijuí-RS-Brasil.  
[helio@unijui.tche.br](mailto:helio@unijui.tche.br)

#### Roseli Adriana Blümke

Departamento de Física, Estatística e Matemática. Universidade de Ijuí - UNIJUÍ,  
DeFEM, Rua São Francisco, 501, CP 560-987000-000-Ijuí-RS-Brasil.  
[roselib@detec.unijui.tche.br](mailto:roselib@detec.unijui.tche.br)

**Abstract.** *On the basis of experimental results a mathematical model for the non-stationary plasma with cylindrical symmetry was proposed. In this model the plasma is stationary in the space, but each point of the torch participates simultaneously in two types of temporal pulsations: a) random oscillations following a Gaussian distribution and b) harmonic oscillation. In this model the distribution functions of the oscillations were found and radial intensities and temperature for the torch ICP (Inductively Coupled Shapes) were calculated. The calculations were done for both the stationary and non-stationary cases. The effect of the pulsations in the temperature was studied for different standard deviation values and amplitude of the temperature oscillations. The calculations were made for the spectral line Ar I 435.8 nm. The results show that the pulsations can affect the experimental measurements.*

**Keywords.** *Harmonic and random pulsations, model of the non-stationary ICP plasma, temperature*

