

## Modélisation des transferts radiatifs dans les plasmas thermiques

Jean-Gaël Lacombe, Yves Delannoy, Christian Trassy

INPG-CNRS

EPM

Rue de la piscine 38402 Saint Martin d'Hères, France

jean-gael.lacombe@hmg.inpg.fr

### Résumé

*On cherche à modéliser les transferts radiatifs dans un plasma inductif d'argon pur. Un modèle spectral est développé pour les raies d'argon susceptibles d'être absorbées. Les profils d'émission et d'absorption des raies d'argon seront donc examinés. Les phénomènes radiatifs pour lesquels le plasma est transparent sont traités par un Coefficient d'Emission Nette (CEN) et les autres par un modèle diffusif spectral bien adapté aux milieux optiquement épais. On examinera les contributions relatives des différents phénomènes dans différentes configurations de torches.*

### Abstract

*The aim of our study is to model radiative heat transfer in pure argon thermal plasmas. A spectral model has been developed for argon lines which undergo absorption. Emission and absorption profiles for argon lines are thus examined. Radiative processes for which the plasma is transparent are taken into account with a Net Emission Coefficient (NEC) whereas the others are treated with a diffusive spectral model, well adapted to optically thick medias. The relative contribution of the different radiative phenomena are presented in several plasma torch configurations*

### Mots-clefs :

**Rayonnement, absorption, discrétisation spectrale**

### 1 Introduction

Les plasmas inductifs (ICP) sont utilisés comme source d'espèces excitées ou comme outil d'analyse chimique et ont été assez largement étudiés en vue de l'amélioration des diagnostics spectroscopiques. Cependant, évaluer le rôle du rayonnement dans la thermique de ces plasmas à l'échelle industrielle demande une étude plus générale. Une approche semi-empirique est envisagée pour traiter ce problème. Les phénomènes générant du rayonnement sont connus mais le traitement de l'ensemble des phénomènes radiatifs d'un point de vue numérique requiert une discrétisation spectrale poussée et implique des temps de calcul très longs Menart (2000). Des approches simplifiées ont été développées, et notamment le modèle du coefficient d'émission nette (CEN) Essoltani *et. al.* (1994), Gleizes *et. al.* (1993). Ce modèle traite les phénomènes radiatifs comme une perte nette d'énergie. L'influence de l'absorption du rayonnement sur les champs de température n'est pas prise en compte et on doit également supposer que les photons suivent un chemin isotherme pour sortir du plasma. Une approche moins restrictive quoique plus couteuse en temps de calcul est proposée ici. Il s'agit de l'extension du modèle P1 par bandes (Modest (2003)) à des cas anisothermes. On étudie des plasmas d'argon supposés axisymétriques, en équilibre thermodynamique local et à pression atmosphérique. Les hypothèses inhérentes à cette représentation seront examinées.

Il existe différents types de transitions électroniques générant du rayonnement qui dépendent de l'état libre ou lié des électrons avant et après la transition. Ces différentes transitions adoptent des comportements physiques différents selon que l'absorption ou l'émission prédomine. Les

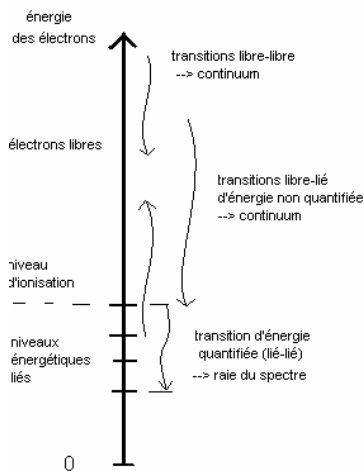


FIG. 1 - Différents processus radiatifs apparaissant dans un plasma thermique

phénomènes radiatifs dans un plasma sont tous liés à transition énergétiques des électrons, c'est-à-dire à des changements d'orbite. Les électrons peuvent être liés à l'atome ou non (état libre ou lié) et on classe les transitions radiatives correspondantes en trois types : libre-libre, lié-libre et lié-lié.

Ce dernier type de transition implique des transitions d'énergie quantifiée et génère des raies dans le spectre. Pour les deux autres types de transitions l'énergie n'est pas quantifiée et elles donnent lieu à un fond continu de rayonnement à toutes les longueurs d'onde.

Par ailleurs, pour toutes les transitions radiatives, on a observé deux comportements limites définis par l'épaisseur optique :

$$\tau_\nu = \kappa_\nu * R \quad [\text{adim}] \quad (1)$$

Avec  $\kappa_\nu$  le coefficient spectral d'absorption et  $R$  le chemin optique. Si les photons émis à une fréquence  $\nu$  donnée sont très peu absorbés, on dit que le plasma est optiquement mince à la fréquence  $\nu$  ( $\tau_\nu \ll 1$ ). A l'inverse si l'absorption est très grande, le plasma est dit optiquement épais ( $\tau_\nu \gg 1$ ). Les transferts radiatifs dans un plasma dépendent à la fois de l'émission de photons et de leur absorption. Cela est représenté par l'équation du transfert radiatif (l'ETR) Modest (2003) :

$$dI_\nu = \epsilon_\nu ds - I_\nu \kappa_\nu ds \quad [\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{Hz}^{-1}] \quad (2)$$

Avec  $I_\nu$  l'intensité radiative spectrale,  $\epsilon_\nu$  l'émissivité spectrale et  $ds$  le chemin optique.

Pour modéliser ces transferts on doit d'abord calculer le coefficient spectral d'absorption à toutes les longueurs d'onde puis se donner une méthode de résolution de l'ETR. La loi de Kirchhoff permet d'en déduire l'émission à l'aide de l'intensité radiative spectrale du corps noir :

$$\frac{\epsilon_\nu}{\kappa_\nu} = I_{\nu 0}(T) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \frac{1}{e^{\beta h\nu} - 1} \quad [\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{Hz}^{-1}] \quad (3)$$

Cette loi traduit un équilibre radiatif entre émission et absorption lorsque le gaz est en équilibre avec un corps noir de même température et découle de l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local (ETL).

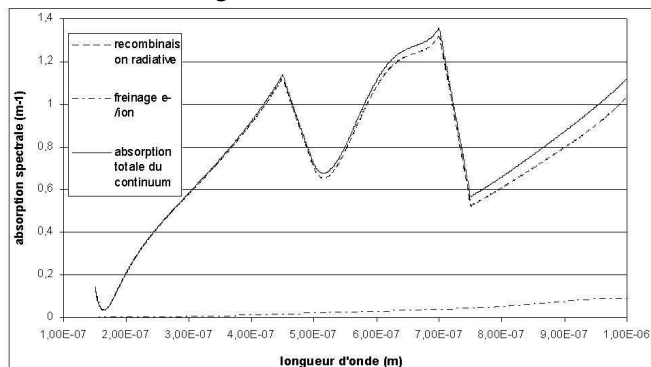
## 2 Calcul du coefficient spectral d'absorption

### 2.1 Fond continu du rayonnement

Cressault (2001) a mis évidence deux phénomènes dominants pour le fond continu du rayonnement de l'argon. Il s'agit de la recombinaison radiative :  $\text{Ar}^+ + e^- \rightarrow \text{Ar} + h\nu$ , et du rayonnement de freinage électron/ion (Brehmstrahlung). L'énergie du photon émis lors d'une recombinaison radiative dépend de l'état d'énergie de l'argon neutre produit et de l'énergie cinétique de l'électron incident. C'est une transition libre-lié. La réaction inverse qui correspond à l'absorption d'un photon est la photoionisation. La puissance spectrale émise par recombinaison radiative  $\epsilon_\nu^{\text{rec}}$  est donnée par Behringer *et al.* (1976), et fait intervenir un facteur correctif  $\xi_\nu^{\text{Ar}}(T)$ . Ce dernier, appelé facteur de Biberman, a été calculé par Hofsaess (1978) dans le cas de l'argon. Le rayonnement de freinage électron/ion correspond aux interactions entre les électrons libres du plasma et les particules lourdes. C'est une transition libre-libre.

L'émissivité spectrale correspondante est donnée par Schluter (1987) et fait également intervenir un facteur correctif, dit de Gaunt, tabulé pour l'argon par Schluter (1987).

FIG. 2 - Rayonnement du continuum en fonction de la longueur d'onde à 10000K

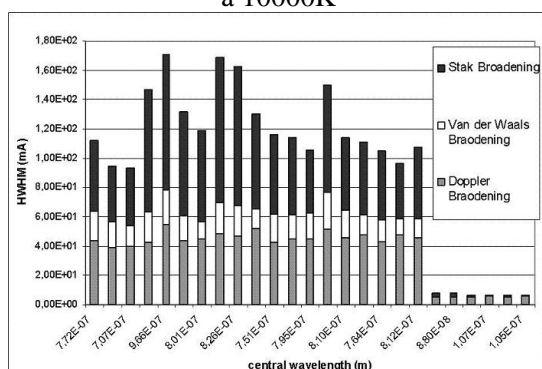


d'onde et la température. On pourra donc interpréter le fond continu du rayonnement comme une perte volumique d'énergie. La quantification de cette perte sera détaillée plus loin.

## 2.2 Raies du spectre

Les raies du spectre correspondent à des transitions énergétiques quantifiées des électrons. Si les niveaux d'énergie sont parfaitement définis, on observe un pic de Dirac. Cependant de nombreux phénomènes ont été identifiés qui perturbent ces niveaux d'énergie pour conduire à des profils variés. La prise en compte de ces profils pour les transitions susceptibles d'être absorbées joue un rôle important dans les transferts thermiques correspondant. On peut citer parmi les mécanismes d'élargissement significatifs dans un plasma d'argon à pression atmosphérique l'effet Doppler lié à l'agitation thermique, l'effet Van der Waals lié à la perturbation des niveaux énergétiques par les nuages électroniques voisins (Trassy *et al.* (1999)) et l'effet Stark du aux interactions avec les ions (Griem (1974)).

FIG. 3 - Contribution des différents phénomènes d'élargissement pour les raies absorbées de l'argon à 10000K



d'après Griem (1974) utilise des paramètres donnés par l'auteur pour certaines transitions. Pour les transitions où les paramètres ne sont pas disponibles, on a utilisé la corrélation proposée par Trassy *et al.* (1999). Cette dernière donne un ordre de grandeur de l'effet Stark. Cependant, cet effet est majoritaire d'après nos calculs, et il doit être pris en compte, même de manière approximative. La figure 3 montre les valeurs des différents élargissements pour les 26 raies de

On présente ci-dessous les coefficients spectraux d'absorptions calculés pour l'argon à 10000K, pour les différents phénomènes présentés ci-dessus. L'émission et l'absorption du continuum diminuent rapidement avec la température, et deviennent négligeables en dessous de 6000K. Pour les plasmas étudiés ici, les chemins optiques sont de l'ordre de quelques centimètres, ce qui correspond aux dimensions caractéristiques du plasma. Ainsi les épaisseurs optiques sont très petites devant 1 quelque soit la longueur

Le calcul de ces profils permet de déterminer l'épaisseur optique du plasma pour une transition donnée, et donc son comportement physique en termes de transferts thermiques. Les bases de données du National Institute of Standard and Technology recensent 430 transitions énergétiques pour l'argon. Dans un plasma d'analyse où le chemin optique caractéristique est de l'ordre du centimètre, 26 transitions apparaissent comme susceptibles d'être absorbées ( $\tau_v > 1$ ). Dans une torche procédé de dimensions doubles, 60 transitions satisfont au critère  $\tau_v > 1$ . Il faut noter que le calcul de l'effet Stark

l'argon susceptibles d'être absorbées dans un plasma d'analyse à 10000K. L'effet Stark reste majoritaire que l'on utilise une corrélation ou les théories de Griem (1974). Les raies pour lesquelles les élargissements sont très faibles sont en fait celles impliquant le niveau d'énergie fondamental de l'argon. Celui-ci servant de référence, son énergie est absolument connue (et vaut 0eV) et il peu susceptible d'être perturbé. Ce qui explique en partie les résultats obtenus. On peut noter que les effets Doppler et Stark augment avec la température car ils dépendent de l'agitation thermique et de la densité d'ions respectivement alors que l'effet Van der Waals, lié à la densité de neutres, décroît avec la température.

### 3 Méthode de résolution de l'ETR

#### 3.1 Plasma optiquement mince

Lorsque le plasma est optiquement mince, les photons émis lors de la transition ne sont pas absorbés. On ne tiendra alors compte que de l'émissivité.

Dans le cas des transitions lié-lié non absorbées, la puissance émise ne dépend pas du profil de la raie et on peut déterminer la perte radiative en W/m<sup>3</sup> à l'aide des relations d'Einstein et d'équilibres de Boltzmann entre niveaux excités : Boulos *et. al.* (1994). Les pertes radiatives pour toutes les raies non absorbées de l'argon prennent

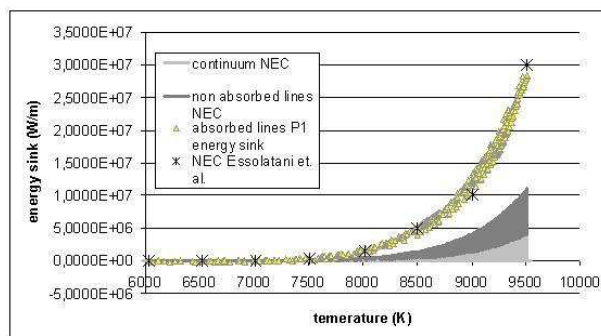
alors la forme d'une fonction de la température, et il est aisé d'en déduire en CEN en sommant les émissivités pour une température donnée (Essoltani *et. al.* (1994), Gleizes *et. al.* (1993)), qui est traité comme un terme puits de l'équation d'énergie qui dépend de T.

Dans le cas du continuum, puisque l'épaisseur optique est faible pour toutes les longueurs d'onde et toutes les températures rencontrées dans les plasmas d'argon à pression atmosphérique étudiés ici, on va se ramener à un CEN en intégrant l'émissivité du fond continu sur toutes les longueurs d'onde. Ici encore, on traitera le continuum comme un terme puits de l'équation d'énergie qui dépend de la température. Les CEN obtenus pour le fond continu et les raies du spectre sont donnés sur la figure 4. On y représente également le terme puits de l'équation d'énergie obtenu avec le modèle P1 décrit plus loin, dans le cas d'une torche d'analyse de 850W afin de comparer les pertes volumiques par rayonnement avec celles obtenues par Essoltani *et. al.* Dans l'argon pur. Nos valeurs concordent bien avec les résultats disponibles dans la littérature.

#### 3.2 Plasma optiquement épais et transitions partiellement absorbées.

Dans les cas où l'absorption est significative, un modèle est proposé pour rendre compte à la fois des pertes par émission et de l'absorption. Il s'agit du modèle P1 par bandes, exposé dans un cas isotherme par Modest (2003). C'est un modèle de type diffusif où l'inconnue est l'intensité spectrale intégrée sur tout l'angle solide. Il fait l'hypothèse d'isotropie du rayonnement, ce qui est vrai pour l'émission mais discutable pour l'absorption. Ce modèle étant spectral, il requiert une discrétisation en fréquence, ce qui devient vite prohibitif en temps de calcul. Le modèle P1 est donc intéressant lorsqu'on peut regrouper différentes zones du spectre présentant le même coefficient spectral d'absorption Modest (2003). Ce regroupement, relativement aisé dans les cas isothermes, est plus complexe dans des cas anisothermes car le coefficient spectral d'absorption n'évolue de la même manière avec la température selon la

FIG. 4 - Puissance perdue par rayonnement pour un plasma d'analyse selon le rayon et la température



longueur d'onde considérée. On propose ici des critères analytiques permettant de regrouper différentes zones du spectre dans des cas anisothermes. Soient  $d\lambda_1$  et  $d\lambda_2$  deux zones du spectre. Dans un cas isotherme, on peut les regrouper dans le cadre du modèle P1 si :

$$\kappa_\lambda(d\lambda_1) = \kappa_\lambda(d\lambda_2) \tag{4}$$

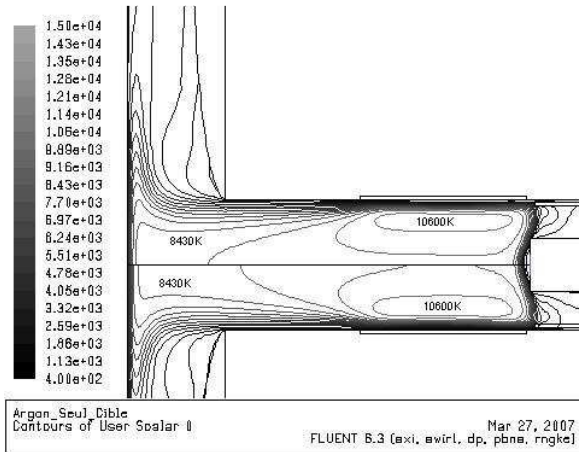


FIG. 5 - Champ de température dans une torche procédé de 12kW calculé avec le CEN exclusivement (bas) et avec le modèle P1+CEN (en haut)

Quand la température varie, on obtient en fait plusieurs critères. D'abord on doit vérifier (4) à une température donnée. Ensuite, les énergies des niveaux hauts des transitions doivent être proches, ainsi que celles des niveaux bas

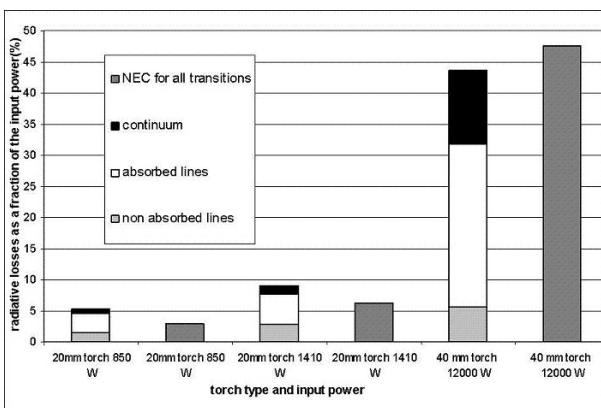
$$(E_{u1} \approx E_{u2}, E_{l1} \approx E_{l2}).$$

Enfin, les élargissements des deux raies doivent être semblables pour toutes les températures (ce qui découle en partie du critère sur les niveaux d'énergie).

L'application de ces critères à l'argon a permis de réduire la discrétisation spectrale des raies. Pour les torches d'analyse ( $R_p \approx 1cm$ ), 26 raies sont traitées avec le modèle P1 et on a pu les regrouper selon 7 groupes. Toutes les raies de chaque groupe présentent le même coefficient spectral

d'absorption entre 6000K et 10000K avec une erreur de l'ordre de 10%. Cette erreur est faible devant l'incertitude sur les probabilités de transition de l'argon (25% environ d'après le NIST). Dans le cas des torches procédé ( $R_p \approx 2cm$ ), 60 transitions ont été prises en comptes et classées en 9 groupes avec des écarts d'environ 10% sur les coefficients d'absorption.

FIG. 6 - Répartition des pertes radiatives entre les différents phénomènes pour plusieurs cas d'études



On présente sur la figure 5 les champs de températures calculés pour une torche procédé à l'aide du seul coefficient d'émission nette (en bas) et à l'aide des deux modèles (en haut). Ces calculs ont été réalisés avec le logiciel 'Fluent' auquel on a ajouté un module d'induction : Delannoy *et. al.* (2002). Les champs de températures obtenus sont assez proches de ceux trouvés par Mostaghimi *et. al.* (1985) pour un dispositif similaire. On peut observer l'effet de l'absorption sur la thermique du plasma en voisinage de zone de couplage. L'absorption a tendance à « étaler » la zone où la puissance est transmise au plasma. L'utilisation du

modèle P1 induit également quelques différences sur les bilans de puissance dans le plasma. Sur la figure 6, on a représenté la contribution des différents phénomènes radiatifs dans les pertes totales par rayonnement ainsi que les pertes obtenus en appliquant le modèle d'émission nette à toutes les transitions. Pour les dimensions des plasmas étudiés ici, les transitions absorbées minoritaires mais sont responsables d'une plus grande partie des pertes radiatives,

bien qu'une partie de l'énergie impliquée dans ces transitions soit piégée dans le plasma. Le continuum est également un phénomène significatif du point de vue de la thermique du plasma.

#### 4 Conclusions

La prise en compte de l'absorption grâce au modèle P1 a permis de rendre compte des transferts radiatifs dans un plasma d'argon sans utiliser de paramètres arbitraires. Certaines hypothèses discutables des modèles d'émission nette ont également pu être supprimées.

Les transferts radiatifs représentent à peu près 10% de la puissance injectée pour les torches d'analyse, alors que ce chiffre atteint 40 à 50% pour les torches de 40 mm.

Il reste à confronter les résultats à des expériences et à traiter le cas des mélanges Ar-O<sub>2</sub> qui sont utilisés dans les procédés de purification par plasma.

#### Références

Menart, J. 2000 Radiative transport in a two-dimensional axisymmetric thermal plasma using the S-N discrete ordinates method on a line-by-line basis. *J.Q.S.R.T.* **67**, 273-291

Essoltani, A., Proulx, P., Boulos, M.I., Gleizes, A. 1994 Effect of the presence of Iron Vapors on the Volumetric Emission of Ar/Fe and Ar/Fe/H<sub>2</sub> Plasmas. *Plasma Chem Plasma Process* **14** (3), 301-315

Gleizes, A., Gonzalez, J.J., Liani, B., Raynal, G. 1993 Calculation of net emission coefficient of thermal plasmas in mixture of gas with metallic vapour. *J. Phys D : Appl. Phys.* **26**, 1921-1927

Modest, M.F. 2003 The Method of Spherical Harmonics (P-N approximation). In *Radiative Heat Transfer* (ed. Elsevier Science), pp 465-494. Academic Press, San Diego.

Trassy, C., Tazeem, A. 1999 Simulation of atomic and ionic absorption and emission spectra for thermal plasma diagnostics: application to a volatilisation study in a plasma jet. *Spectrochim. Acta, Part B.* **54**, 581-602

Behringer, K., Thoma, P. 1976 Measurement of the argon continuum radiation in the near ultraviolet. *J.Q.S.R.T.* **16**, 671-676

Hofsaess, D. 1978 Emission continua of rare gas plasmas. *J.Q.S.R.T.* **19**, 339-352

Schluter, D. 1987 Gaunt factors for free-free transitions in the field of the first ions of rare gases, calculated in the scaled Thomas-Fermi approximation. *Z. Phys. D – Atoms, Molecules and Clusters.* **6**, 249-254

Griem, H.R. 1974 Stark Broadening Parameters and Profiles for Isolated Neutral Atom Lines. In *Spectral line broadening by plasmas* (ed. Academic Press), pp 320-364. Academic Press, New York.

Boulos, M.I., Fauchais, P., Pfender, E. 1994 Radiation Transport. In *Thermal Plasmas Fundamentals and Applications Volume 1* (ed. Plenum Press), pp 325-381. Plenum Press, New York.

Mostaghimi, J., Proulx, P., Boulos, M.I. 1985 An analysis of the computer modelling of the flow and temperature fields in an inductively coupled plasma. *Numerical Heat Transfer.* **8**, 187-201

Delannoy, Y., C., Alemany, K-I., Li, P., Proulx, C., Trassy 2002 Plasma refining process to provide solar grade silicon. *Solar Energy Materials and Solar Cells* **72/1-4**, 69-75