

CHARACTERIZATION OF SUPERSONIC LOW PRESSURE PLASMA JETS

THÈSE N° 3120 (2004)

PRÉSENTÉE À LA FACULTÉ SCIENCES DE BASE

CRPP Association Euratom

SECTION DE PHYSIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

PAR

Malko GINDRAT

ingénieur physicien diplômé EPF
de nationalité suisse et originaire de Tramelan (BE)

acceptée sur proposition du jury:

Dr Ch. Hollenstein, directeur de thèse
Dr J.-L. Dorier, rapporteur
Prof. H. Hofmann, rapporteur
Prof. B. Jodoin, rapporteur
Dr M. Loch, rapporteur

Lausanne, EPFL
2004

Abstract

Low Pressure Plasma Spraying (LPPS) processes use a DC plasma jet expanding at low pressure for fast deposition of dense coatings in a controlled atmosphere. The LPPS technology is widely used industrially in particular in the aeronautics and medical industries among others. Unlike atmospheric pressure plasma jets, which have been extensively studied experimentally and theoretically, the interest in low pressure DC plasma jets only occurred recently. However, the process development has been mainly based on empirical methods and the basics of the physical mechanisms that govern them still remain to be investigated. Further improvement of the processes requires, in particular, the knowledge of physical properties of the plasma jet such as the temperature, flow velocity and plasma density. Low pressure plasma jets present unconventional properties such as low collisionality, large dimensions and supersonic flow. Therefore specific diagnostics have to be adapted to these conditions. In this study, argon plasma jets at pressures between 2 and 100 mbar are investigated.

Imaging has been used to allow a qualitative description of the plasma jet topology for different pressures and torch parameters. Low pressure plasma jets are most of the time supersonic, compressible and in an aerodynamic non-equilibrium, which results in visible successive compression and expansion zones corresponding to a variation of the local pressure, temperature and density. Imaging, combined with pressure measurements inside the plasma torch, has evidenced three different types of flow regimes with respect to the chamber pressure. For chamber pressures below 45 mbar, the flow is under-expanded and is characterized by an exit pressure higher than the chamber pressure. For pressures above 45 mbar, the plasma jet is over-expanded, in this case the exit pressure is lower than the chamber pressure. When the exit pressure is equal to the chamber pressure, the plasma jet is in the so-called design pressure regime.

A diagnostic tool, extensively applied on atmospheric plasma jets, the enthalpy probe system, has been modified in order to allow gas sampling from the plasma jet at low pressures. A shock wave appears in front of the probe when it is immersed in a supersonic plasma jet, making the interpretation of enthalpy measurements more difficult. The free-stream properties, like the Mach number, temperature and free-stream enthalpy have to be inferred from stagnation measurements. Two interpretations of enthalpy probe measurements are described in this study. The first method uses the energy conservation equation and LTE assumptions with calorically perfect gas and neglecting the aerodynamic non-equilibrium, whereas the second method, uses a complementary measurement of the static pressure just after the shock using a specially developed tool: the Post Shock Static Pressure Probe (PSSPP). This allows the use of the conservation equations to de-

termine the free-stream properties of the plasma jet without the assumption of calorically perfect gas and aerodynamic non-equilibrium. Determination of the free-stream enthalpy, Mach number and temperature were possible on over-expanded jets for pressures higher than 40 mbar. At 100 mbar with torch parameters of 400 A and 40 SLP argon flow, the temperature of the plasma jet reaches 10000 K and the velocity is about 3000 m/s on axis.

Measurement of plasma jet properties such as the Mach number, electron density and temperature, were performed using double Langmuir probes and Mach probes. In particular, under-expanded jets are studied in detail by performing complete mappings of plasma jet properties at 10 and 2 mbar chamber pressure. These results show that the measured physical properties are consistent with the jet flow phenomenology such as the presence of periodic expansion and compression zones, the effect of the pressure and the location of the shocks. It is shown in particular that for highly under-expanded jets at 2 mbar, the Mach number reaches 2.8 in the first expansion zone followed by a strong drop to subsonic flow revealing the presence of a Mach reflection. The flow is accelerated further and a periodic structure of compression/expansion cells is observed until the local static pressure is in equilibrium with the surrounding pressure.

Another diagnostic often used in plasma spraying is optical emission spectroscopy (OES) which is non-intrusive and gives information about the plasma excited species. However, the determination of the excitation temperature, obtained by the Boltzmann plot method, relies on the assumption of local thermodynamic equilibrium (LTE), which is no longer satisfied at low working pressures. The result of the deviation from LTE is that the heavy particle, electron and excitation temperatures are different. In this study, Boltzmann plots have been used to evaluate the deviation from LTE as a function of the working pressure and the location in the plasma jet. It has been shown that the plasma jet is closer to LTE in the compression zones and close to the axis. Measurements of spectral line broadening due to the Stark effect allowed to determine the electron density for under-expanded jets and give results similar than with electrostatic probe measurements. On the other hand, excitation temperatures are systematically lower than the electron temperature for the same plasma conditions. For a 10 mbar plasma jet, the excitation temperature of argon is between 0.73 and 0.78 eV whereas the electron temperature is between 0.7 and 1.2 eV. This shows that at low pressure the plasma jets are not in LTE.

These results contribute to the understanding of the supersonic plasma jet behavior at low pressure and can be used to quantify the deviation from local thermodynamic equilibrium (LTE). The extensive mapping of the measured physical properties of the jet will also serve as input for modeling.

Version abrégée

Les procédés de projection par plasma à basse pression utilisent des jets de plasma DC pour la déposition rapide de couches denses dans une atmosphère contrôlée. La technologie LPPS (Low Pressure Plasma Spraying) est largement employée dans l'industrie dans des domaines aussi variés que l'aéronautique et le médical, entre autres. Contrairement aux jets de plasmas atmosphériques, qui ont été largement étudiés expérimentalement et théoriquement, l'intérêt des jets de plasmas opérés à basse pression n'est apparu que récemment. Cependant, le développement des procédés a été essentiellement basé sur des méthodes empiriques, les bases des mécanismes physiques qui les gouvernent restent encore à être étudiés. Pour approfondir l'étude des procédés, il est nécessaire de connaître les propriétés physiques du jet de plasma, telles que la température, la vitesse ainsi que la densité. Les jets de plasmas opérés à basse pression présentent des propriétés non conventionnelles telles que leur grandes dimensions, leur flux supersonique ainsi que la réduction des collisions. Par conséquent, des diagnostics spécifiques doivent être adaptés à ces conditions. L'étude a été effectuée sur des jets de plasma d'argon opérés à des pressions comprises entre 2 et 100 mbar.

L'imagerie a permis de faire une description qualitative de la topologie des jets de plasmas, ceci pour différentes pressions et paramètres d'opération de la torche. La plupart du temps, les jets sont supersoniques, compressibles ainsi que dans un déséquilibre aérodynamique. Ce qui résulte en une succession de zones de compression et expansion visibles qui correspondent à une variation de la pression locale, de la température ainsi que de la densité. L'imagerie, combinée avec des mesures de pression à l'intérieur de la torche à plasma, a permis de mettre en évidence l'existence de trois types de flux par rapport à la pression de chambre. Pour des pressions en dessous de 45 mbar, le jet est *under-expanded*, qui est caractérisé par une pression à la sortie de buse plus haute que la pression de chambre. Pour des pressions plus grandes que 45 mbar, le flux est *over-expanded*, dans ce cas la pression en sortie de buse est plus basse que la pression de chambre. Lorsque la pression à la sortie de la torche est égale à la pression de chambre, le jet de plasma est dans un régime de pression que l'on appelle *design pressure*.

Un diagnostic largement utilisé sur des jets de plasmas atmosphériques, le système de sonde d'enthalpie, a été modifié afin de permettre l'échantillonnage de jets de plasma opérés à des pressions réduites. Une onde de choc apparaît devant la sonde lorsqu'elle est immergée dans le jet supersonique, ce qui rend l'interprétation des mesures d'enthalpie plus difficile. Les propriétés du jet libre, comme le nombre de Mach, la température et l'enthalpie doivent être déduites à partir des mesures de stagnation. Pour cela, deux méthodes d'interprétation des mesures de sonde enthalpie sont décrites dans cette étude.

La première méthode utilise l'équation de conservation d'énergie en faisant les hypothèses suivantes: le jet de plasma est à l'équilibre thermodynamique et caloriquement parfait, tout en négligeant le fait qu'il n'est pas à l'équilibre aérodynamique. Tandis que la deuxième méthode, comprend la mesure complémentaire de la pression statique juste après le choc en utilisant un objet spécialement développé dans ce but: une sonde de pression statique post-choc (PSSPP). Ceci permet de résoudre les équations de conservation pour déterminer les propriétés de jet de plasma libre, sans faire d'hypothèses telles que le jet est caloriquement parfait et en équilibre aérodynamique. La détermination de l'enthalpie du jet libre, du nombre de Mach et de la température a été possible pour des jets *over-expanded* pour des pressions au dessus de 40 mbar. A 100 mbar, avec les paramètres de torche de 400 A ainsi qu'un flux d'argon de 40 SLPM, la température du jet peut atteindre 10000 K et la vitesse est à peu près de 3000 m/s sur l'axe.

Les propriétés du jet, comme le nombre de Mach, la densité électronique ainsi que la température électronique, ont été mesurées en utilisant des doubles sondes de Langmuir ainsi que des sondes de Mach. En particulier, les jets *under-expanded* ont été étudiés en détail en établissant un *mappage* complet des propriétés du jet de plasma à des pressions de 10 et 2 mbar. Ces résultats montrent que les propriétés physiques mesurées sont consistantes avec la phénoménologie du jet, telle que la présence de zones périodiques d'expansion et de compression, l'effet de la pression ainsi que la position des chocs. Il a été montré, en particulier, que pour des jets hautement *under-expanded* à 2 mbar, le nombre de Mach peut atteindre 2.8 dans la première zone d'expansion, suivi d'une brutale chute du flux, révélant la présence d'une réflexion de Mach. Le flux est ensuite ré-accélééré plus loin et l'on peut observer une succession de cellules de compression/expansion jusqu'à ce que la pression soit en équilibre avec la pression environnante.

Un autre diagnostic qui est souvent utilisé dans la projection par jet de plasma est la spectroscopie optique d'émission qui est un diagnostic non intrusif et qui donne des informations sur les espèces excitées du plasma. Cependant, la détermination de la température d'excitation, obtenue par la méthode des diagrammes de Boltzmann, est basée sur l'hypothèse que le jet est à l'équilibre thermodynamique, ce qui n'est plus le cas à des basses pressions. L'écart à l'équilibre thermodynamique local (ETL) fait que la température des particules lourdes, des électrons ainsi que la température d'excitation sont différentes. Dans cette étude, les diagrammes de Boltzmann sont utilisés pour évaluer l'écart à l'équilibre thermodynamique par rapport à la pression et la position dans le jet. Il a été montré que le jet est plus proche à l'ETL dans les zones de compression et proches de l'axe. Les mesures de l'élargissement des lignes spectrales, par effet Stark, ont permis de déterminer la densité électronique pour des jets *under-expanded*. Ces mesures donnent des résultats identiques que les mesures des sondes électrostatiques. Par contre, la température d'excitation est systématiquement plus basse que la température électronique pour les mêmes conditions plasmas. Ceci montre que les jets de plasmas à basse pression ne sont pas à l'équilibre thermodynamique local.

Ces résultats contribuent à la compréhension du comportement d'un jet de plasma supersonique à basse pression. Ils peuvent être utilisés pour quantifier l'écart à l'équilibre thermodynamique local. Le *mappage* extensif des propriétés physiques vont également servir à la modélisation numérique.

Contents

I	Introduction	1
1	Introduction	3
1.1	Thermal plasmas	3
1.2	Plasma spraying	4
1.2.1	Low pressure plasma spraying	4
1.3	Purpose and organization of the work	5
1.3.1	Industrial issues	5
1.3.2	Purpose of the work	5
1.3.3	Organization of the work	6
II	Experimental arrangement and diagnostics	7
2	Experimental arrangement	9
2.1	DC arc plasma torch	9
2.2	Sulzer Metco Multicoat TM system	10
	Power supply and cooling circuit	10
	Gas management center	11
	Junction and monitoring box	11
	Process control center and computer	11
2.3	The vacuum chamber	11
2.4	Pumping system	12
3	Imaging	15
3.1	Experimental arrangement	15
3.2	Plasma light emission	17
3.3	Abel inversion	18
3.3.1	Application on plasma jet images	19
4	Enthalpy probe	21
4.1	Principles	22
4.2	Experimental arrangement	24
4.2.1	Enthalpy probe tip	25
4.2.2	Enthalpy probe sensitivity	26
4.3	Application of the enthalpy probe to low pressure supersonic plasma jets	27

4.3.1	Limitations of the apparatus	27
4.3.2	Determination of the Mach number and flow velocity	27
	Subsonic compressible flow	28
	Supersonic compressible flow	29
4.3.3	Determination of the type of flow	29
4.3.4	Thermodynamic tables	30
4.4	Iterative method	30
4.4.1	Description of the method	31
4.4.2	Limitations of the method	32
	Calorically perfect gas hypothesis	32
	Aerodynamic non-equilibrium	33
	Sensitivity of the Mach number with respect to γ and p_{02}/p_1	33
	Simulated local static pressure profiles	34
4.5	New interpretation method	34
4.5.1	Principles	34
4.5.2	The Post Shock Static Pressure Probe	35
4.5.3	Equations and hypothesis	36
	From stagnation to post-shock (02) \rightarrow (2)	36
	From post-shock to free-stream (2) \rightarrow (1)	37
4.5.4	Limitations	38
5	Electrostatic probes	41
5.1	Principles	41
5.2	Experimental arrangement	42
	5.2.1 Double Langmuir probe	42
	5.2.2 Mach probe	43
	5.2.3 Data acquisition	43
5.3	Double probe	44
5.4	Mach Probe	45
5.5	Domain of validity	46
6	Optical emission spectroscopy	49
6.1	Local thermodynamic equilibrium	50
6.2	Deviation from the local thermodynamic equilibrium	51
6.3	The Boltzmann plot method	52
6.4	Stark broadening technique	53
6.5	Experimental arrangement	54
6.6	Methodology	56
	6.6.1 Selection of the spectral lines	56
	6.6.2 Calibration of the spectrometer	57
	6.6.3 Data acquisition and analysis	59

III	Results and discussion	63
7	Plasma jet flow phenomenology	65
7.1	Pressure measurements inside the nozzle	66
7.2	Effect of the chamber pressure	66
7.2.1	Over-expanded jets	68
	Mach reflection	70
7.2.2	Under-expanded jets	70
7.2.3	Rarefaction parameter	72
7.3	Effect of the torch parameters	73
7.4	Effect of the nozzle design	74
7.5	Conclusion	75
8	Enthalpy probe measurements	77
8.1	Over-expanded jets	77
8.1.1	Radial profiles at 100 mbar	77
8.1.2	Axial profiles at 40 mbar	81
8.2	Plasma jets close to the design pressure	82
8.3	Under-expanded jets	84
8.4	Shock-probe distance	86
8.5	Conclusion	87
9	Electrostatic probe measurements	89
9.1	Under-expanded jets	89
9.1.1	10 mbar chamber pressure	89
9.1.2	Radial profiles	90
9.1.3	Axial profiles	91
9.1.4	Mapping of the plasma jet properties	92
9.2	Plasma jet at lower pressure	94
9.2.1	Radial profiles	94
9.2.2	Mach number mapping	95
9.3	Effect of the plasma parameters	97
9.4	Effect of the chamber pressure	98
9.5	Effect of the double probe orientation	100
9.6	Conclusion	101
10	Optical emission spectroscopy measurements	103
10.1	Local properties of the plasma jet	103
10.1.1	Intensity and temperature profiles	104
10.1.2	Excitation temperature of hydrogen	106
10.1.3	Electron density	106
10.2	Effect of the pressure	108
10.2.1	Departure from the Boltzmann distribution	108
10.2.2	Boltzmann plot for non-LTE plasma jets	111
10.2.3	Effect of the pressure on the excitation temperature	112

10.3 pLTE as a function of the location in the plasma jet	113
10.4 Conclusion	115
IV Conclusion	117
11 Conclusion	119
Bibliography	122
A Thermodynamic properties of argon	131
A.1 Plasma composition	131
A.2 Thermodynamic properties of argon plasma	132
Acknowledgement	135