

射频等离子体球化中钨粉颗粒加热过程的数值模拟

陈文波^{1,2}, 陈伦江², 刘川东², 程昌明², 童洪辉²

(1. 南华大学, 湖南 衡阳 421001)

(2. 核工业西南物理研究院, 四川 成都 610041)

摘要: 对射频等离子体球化中钨粉颗粒的加热过程进行研究可以为优化等离子体制备球形钨粉的工艺过程提供参考。采用了数值模拟的方法研究了线圈电流频率、粉枪位置及送粉速率等参数对钨粉颗粒在射频等离子体中的运动轨迹及加热过程的影响效应。结果表明: 线圈电流频率较低时, 等离子体炬轴线附近的温度更高, 钨粉颗粒在等离子体中运动时能够达到的温度也更高; 改变粉枪位置仅对粒径较小颗粒的运动和加热有较大的影响; 降低送粉速率可以提高颗粒从等离子体中获得的能量, 从而在一定程度上提升钨粉的球化率。

关键词: 射频等离子体; 钨粉颗粒; 加热过程; 数值模拟

中图分类号: TF123.2⁺4

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2019)03-0859-06

钨是一种有着优异的耐高温、抗腐蚀、耐磨损及良好的导电及导热性能的难熔稀有金属材料, 目前已被广泛应用于诸如航空航天、化学化工、机械制造、电气工程等尖端科技领域。在各种形状的粉末中, 球形钨粉颗粒的流动性最好, 比表面积最小, 振实密度和松装密度也最大, 能够极大的提升其制品的性能。因此, 研究球形钨粉的制备技术具有十分重要的意义。目前, 国内外的科研和工程技术人员已先后开发出了旋转电极法、喷雾造粒法等多种球形钨粉的制备方法^[1,2], 但这些方法存在着制备条件苛刻, 制备过程复杂, 所制备产品的形貌不均匀, 流动性较差等缺点。

射频等离子体粉末球化技术是一种新型的粉末材料处理技术。该技术利用热等离子体能量密度高、加热强度大的特点, 将注入其中的不规则形状粉末迅速加热至熔化, 熔融颗粒在极高的温度梯度及表面张力的作用下形成球形液滴, 并在极短时间内冷凝成具有极好球形度的粉末颗粒^[3-5]。与传统的粉末球化方法相比, 射频等离子体法所制备的粉末产品球形度高、表面光洁度好、粉末纯度也更高, 在高品质粉末, 尤其是难熔金属球形粉末的制备上更具优势, 但这种方法也存在着球化率不高, 均匀性差等缺点, 制约了该技术的工业化应用^[6-8]。在等离子体粉末球化实验过程中, 前驱体粒径、粉枪位置及送粉速率等参数直接影响到最终的球化效果。这些参数若仅通过实验方式来进行探索, 不仅成本高、耗时长, 还未必能找出最优的结果。因此, 数值模拟就成为研究射频等离子体粉

末球化过程最为经济有效的手段^[9]。

Boulo 等人于 1985 年首次对铜粉和铝粉颗粒在热等离子体流场中的行为进行了研究^[10,11]。随后, 又有多个研究组采用数值模拟的方式研究了不同性质的粉末颗粒在等离子体中的运动轨迹及加热历程^[12-16]。Shigeta 等人在考虑了颗粒受热蒸发对气相场反影响的前提下, 对颗粒在等离子体中的受力与传热规律进行了探索^[17]。Ye 研究小组^[18]在考虑了等离子体与颗粒间相互作用的前提下, 对射频等离子体合成氧化铝纳米颗粒的过程进行了数值模拟。Colombo 等人^[19]则建立了射频等离子体炬的三维模型, 数值研究了工作参数的变化分别对氧化铝、钨及镍粉颗粒运动行为的影响效应。但是, 上述研究均未考虑线圈电流频率的变化对射频等离子体球化实验过程中颗粒行为的影响效应。而实际上, 电流频率的改变会影响等离子体温度及流场的空间分布, 进而对颗粒在等离子体中运动轨迹及加热过程产生较大的影响。此外, 目前有关钨粉颗粒在射频等离子体中加热过程的理论研究也还非常少见。

因此, 本研究将以核工业西南物理研究院自行研制的射频等离子体球化装置为研究对象, 在考虑颗粒与等离子体相互作用的基础上, 利用数值模拟方法考查颗粒粒径、线圈电流频率以及粉枪位置、送粉速率等工作参数的改变对钨粉颗粒在热等离子体中运动轨迹及加热过程的影响效应, 以期对射频等离子体制备球形钨粉工艺的改进提供理论指导。

收稿日期: 2018-03-16

基金项目: 国家自然科学基金(11535003)

作者简介: 陈文波, 男, 1983 年生, 博士, 讲师, 南华大学电气工程学院, 湖南 衡阳 421001, E-mail: snipers2004@163.com

1 数值模拟方法

1.1 等离子体流场模型及控制方程组

为简化计算模型，在对射频热等离子体的流场进行模拟时，先做如下假设：(1) 射频等离子体装置为二维轴对称模型；(2) 装置内热等离子体处于局域热力学平衡态；(3) 等离子体处于定常、层流流动状态；(4) 忽略位移电流及能量方程的粘滞损耗项。则描述射频热等离子体物理行为的控制方程组可以写为^[20]：

连续性方程：

$$\frac{\partial(\rho u)}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial(\rho r v)}{\partial r} = 0 \quad (1)$$

轴向(x)动量方程：

$$\rho u \frac{\partial u}{\partial z} + \rho v \frac{\partial u}{\partial r} = \mu \nabla^2 u - \frac{\partial p}{\partial z} + F_z \quad (2)$$

径向(r)动量方程：

$$\rho u \frac{\partial v}{\partial z} + \rho v \frac{\partial v}{\partial r} = \mu \nabla^2 v - \frac{\partial p}{\partial r} + F_r \quad (3)$$

能量方程：

$$\rho c_p (u \frac{\partial T}{\partial z} + v \frac{\partial T}{\partial r}) = \frac{\partial}{\partial z} (\lambda \frac{\partial T}{\partial z}) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \lambda \frac{\partial T}{\partial r}) + Q_j - Q_R \quad (4)$$

电磁场方程：

$$B_r = \frac{1}{i\omega} \frac{\partial E_\theta}{\partial z}, \quad B_z = -\frac{1}{i\omega} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r E_\theta) \quad (5)$$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \frac{\partial E_\theta}{\partial r}) + \frac{\partial^2 E_\theta}{\partial z^2} - \frac{E_\theta}{r^2} = i\omega \mu_0 (\sigma E_\theta + J_c) \quad (6)$$

上述方程组中的 u 和 v 分别表示轴向及径向的速度分量， μ 代表粘度， ρ 为等离子体密度， P 为压力。能量守恒方程中的 T 为等离子体温度， λ 为热导率， c_p 为比热容。 μ_0 为真空的磁导率， $\omega = 2\pi f$ (f 为工作频率)， J_c 为线圈内的射频电流密度。 Q_R 为辐射热损耗， Q_j 、 F_z 和 F_r 分别为焦耳热项、轴向及径向的洛伦兹力分量，它们与角向电场 E_θ 、轴向磁场 B_z 及径向磁场 B_r 之间满足如下关系：

$$Q_j = \frac{\sigma(T)}{2} |E_\theta|^2 \quad (7)$$

$$F_r = \frac{\sigma(T)}{2} Re(E_\theta B_z^*), \quad F_z = -\frac{\sigma(T)}{2} Re(E_\theta B_r^*) \quad (8)$$

1.2 颗粒运动及受热模型

由于颗粒相占总体积分数很小，因此可采用 DPM 来模拟钨粉颗粒在等离子体中的运动轨迹。若在追踪颗粒轨迹时仅考虑自身重力和等离子体流体曳力作用，并忽略颗粒间相互作用以及因颗粒蒸发作用而对等离子体的输运特性所造成的影响效应，则颗粒在射频等离子体内运动时的受力平衡方程表述如下：

$$\frac{dU_p}{dt} = \left(\frac{3\rho C_D}{4d_p \rho_p} \right) (U - U_p) |U - U_p| + g \quad (9)$$

式中， ρ 和 U 分别为等离子体密度和等离子体速度， d_p 及 U_p 分别为颗粒粒径及颗粒的运动速度； ρ_p 为颗粒密度； C_D 为阻力系数， g 为重力加速度。在忽略固体颗粒内部导热热阻及颗粒间接触热阻对颗粒碰撞传热的影响下，颗粒在等离子体内部温度变化过程可通过求解下述能量平衡方程来获得：

$$Q = \begin{cases} \frac{\pi}{6} \cdot \rho_p d_p^3 c_p \cdot \frac{dT_p}{dt} & (T_p > T_b, T_m < T_p < T_b) \\ \frac{\pi}{6} \cdot \rho_p d_p^3 H_m \cdot \frac{dx}{dt} & (T_m = T_p) \\ -\frac{\pi}{6} \cdot \rho_p d_p^2 H_b \cdot \frac{dd_p}{dt} & (T_b = T_p) \end{cases} \quad (10)$$

式中， T_m 表示颗粒熔点， T_b 表示颗粒沸点， H_m 表示颗粒的相变潜热， x 表示颗粒熔化组分分数， H_b 表示颗粒的蒸发潜热， c_p 表示颗粒的比热。 Q 为颗粒从等离子体中获得的热量，它可由下式给出：

$$Q = \pi d_p^2 [h_f (T - T_p) - \varepsilon_p \sigma_s (T_p^4 - T_a^4)] \quad (11)$$

式中， h_f 是热传导系数， T 为等离子体温度， T_p 是颗粒温度， T_a 为环境温度。

1.3 计算区域及边界条件

本研究将利用 CFD 软件 FLUENT 来模拟射频等离子体的流场分布及钨粉颗粒在等离子体中的加热过程。数值模拟时采用的射频等离子体粉末球化装置结构。模拟时的工作条件为：线圈电流强度 $I=150$ A，线圈电流频率 f 则在 3~5 MHz 范围内取值。

装置以外的区域温度设置为 $T=300$ K，装置内壁面设置为无滑移边界条件；出口边界处压强采用默认值 101 325 Pa；等离子体炬入口处所有的进气喷口均设置为速度入口边界，沿炬外管内壁面送入的冷却气流速为 1.04 m/s、反应气流速率为 0.065 m/s、送粉气由等离子体炬中心处的粉枪送入炬中，其流速为 3.849 m/s。钨粉颗粒同样通过粉枪沿轴向注入到等离子体炬中，颗粒的初速度与冷却气流速相同。颗粒表面的初始温度则设置为 300 K。钨粉材料的物理性质见表 1。

2 结果与讨论

表 1 钨粉材料的物理性质

Density/ kg·m ⁻³	Specific heat/ J·(kg·K) ⁻¹	Melting point/ K	Fusion enthalpy/ J·kg ⁻¹	Boiling point/ K	Vaporization enthalpy/ J·kg ⁻¹
102.8	250	2896	3.94×10 ⁵	4912	6.233×10 ⁶

2.1 射频等离子体炬内温度及流场的空间分布

由于颗粒的加入会对射频等离子体炬装置内的温度与速度场产生影响，反过来又会影响到粉末颗粒的运动及加热。因此，首先对线圈电流频率 $f=3\text{ MHz}$ 时，钼粉颗粒加入前后，装置内氩气热等离子体温度及轴向速度的空间分布进行计算，其计算结果见图 1~图 3。

从图 1a 给出的钼粉颗粒尚未进入等离子体球化装置之前，装置内温度分布的计算结果可以看出：炬内温度最高可达 9960 K，且总体呈现出线圈覆盖区的外管壁附近温度最高，中轴线上温度略低的“凹形”分布趋势。图 1b 中等离子体速度幅值及流线分布的计算结果则表明，等离子体速度峰值主要集中于等离子体炬下游的轴线上，等离子体炬入口下方的粉枪出口位置附近的速度则很小；此外，受洛仑兹力的影响，在第一匝线圈覆盖区附近还形成了回流区。

而当粒径为 $30\text{ }\mu\text{m}$ 的钼粉颗粒以 24 g/min 的速率沿轴向送入等离子体炬中时，炬内的等离子体温度，尤其是在颗粒运动轨迹附近的温度下降明显（图 2a）；同时，等离子体速度峰值及首匝线圈附近的回流区尺寸均略有减小，下游轴线上的速度峰值区还出现了向炬中心轴两侧分离的现象（图 2b）。

2.2 电流频率及粉枪位置对钼粉颗粒加热过程的影响

粉枪位置是影响射频等离子体钼粉球化效果的一个重要的工艺参数：如前文所述，首匝线圈覆盖区附近有回流现象存在。所以在等离子体球化实验过程中，通常需要将粉枪置于回流区下方位置，以减小回流对颗粒运动的影响。但是，若粉枪插入等离子体内的位

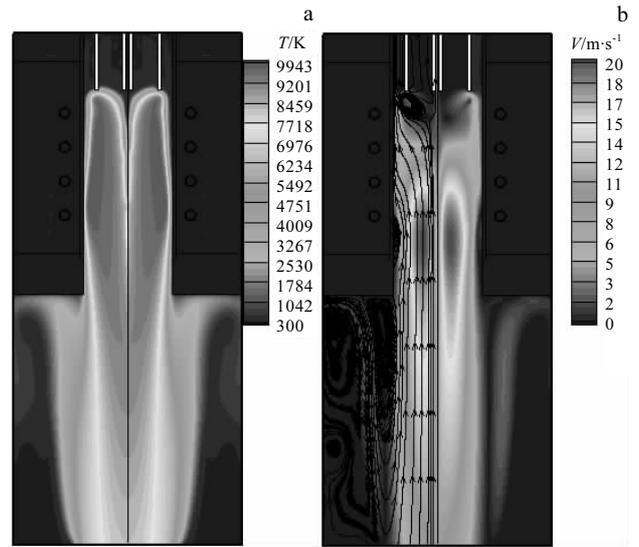


图 2 颗粒注入后射频等离子体温度及流场的空间分布
Fig.2 Spatial distribution of temperature (a) and flow fields (b) after molybdenum particle injection in plasma

置过深，则可能使颗粒无法从等离子体高温区内获得足够的能量。因此，下面将重点研究在不同电流频率（分别为 $f=3\text{ MHz}$ 和 $f=5\text{ MHz}$ ）下，粉枪处于不同位置处时，对不同粒径 ($D_p=30\sim 100\text{ }\mu\text{m}$) 的钼粉颗粒在热等离子体中运动轨迹及加热过程的影响效应。

从图 3 中的钼粉颗粒运动轨迹（颗粒所在的径向位置 P_R 随轴向距离变化的曲线）可以看出，若粉枪的位置更靠近装置出口——比如从第一匝线圈处 ($P_{in}=50\text{ mm}$) 向第 2 匝线圈处 ($P_{in}=70\text{ mm}$) 移动时，进入等离子体中的颗粒受回流现象的影响较小，其运动轨迹也有向炬中轴线靠近的趋势。并且注入的颗粒粒径越小，这种趋势就越明显。此外，在电流频率较高时，钼粉颗粒的运动轨迹也更加靠近等离子体炬的中轴线位置。

图 4 给出的颗粒温度 T_p 随轴向距离变化的曲线则表明，当粉枪被移动至第 2 匝线圈处时，粒径为 $30\text{ }\mu\text{m}$ 的钼粉颗粒将沿等离子体炬中轴线附近温度较低的区域飞离高温弧区。因此，在单位时间内，颗粒从等离子体中吸收到的热量较少，被加热至完全熔化所需的时间也更长。而对于粒径较大 ($65\text{ }\mu\text{m}$ 以上) 的钼粉颗粒，其在等离子体中的加热过程几乎不受粉枪的位置变化的影响。另外，当线圈电流频率较高时，钼粉颗粒所能达到最高温度却更低。这主要是由于趋肤深度会随着电流频率的升高而减小，焦耳热将会集中于等离子体炬外管壁附近更窄的区域中，而炬中轴线附近温度的提高则只能通过外层放电区等离子体的热传

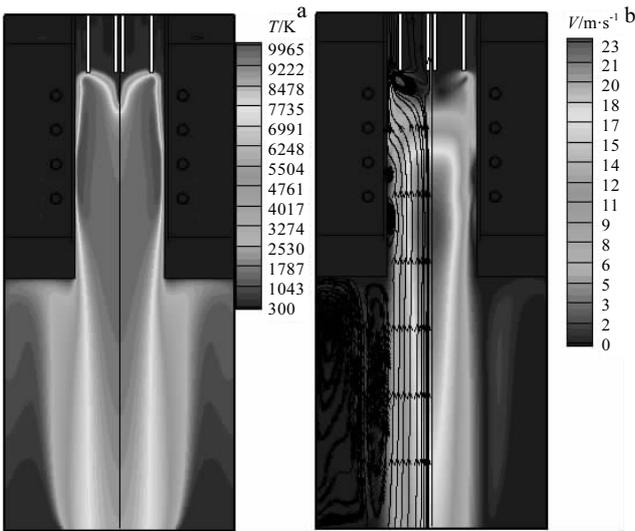


图 1 颗粒注入前射频等离子体温度及流场的空间分布
Fig.1 Spatial distribution of temperature (a) and flow fields (b) before molybdenum particle injection in plasma

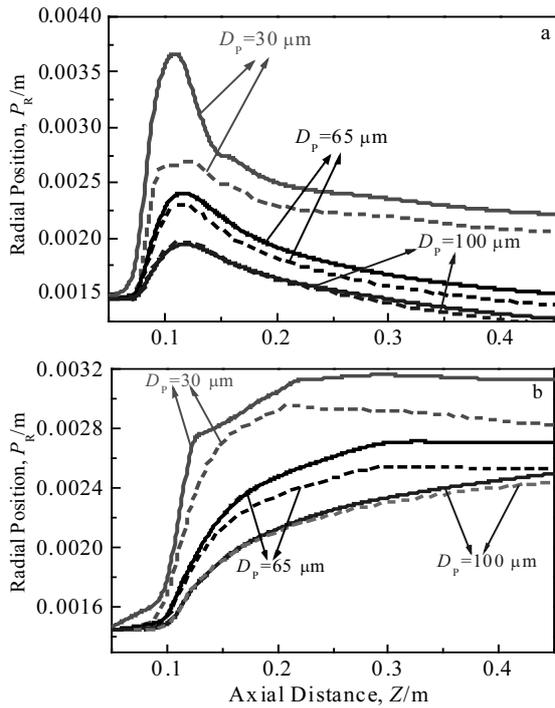


图 3 粉枪位置 P_{in} 分别为 50 mm (实线) 和 70 mm (虚线) 时钨粉颗粒位置 P_R 随轴向距离 Z 变化的曲线

Fig.3 Particle position with probe tip at 50 mm (continuous line) and 70 mm (dashed line) as a function of distance in axial direction: (a) $f=3$ MHz and (b) $f=5$ MHz

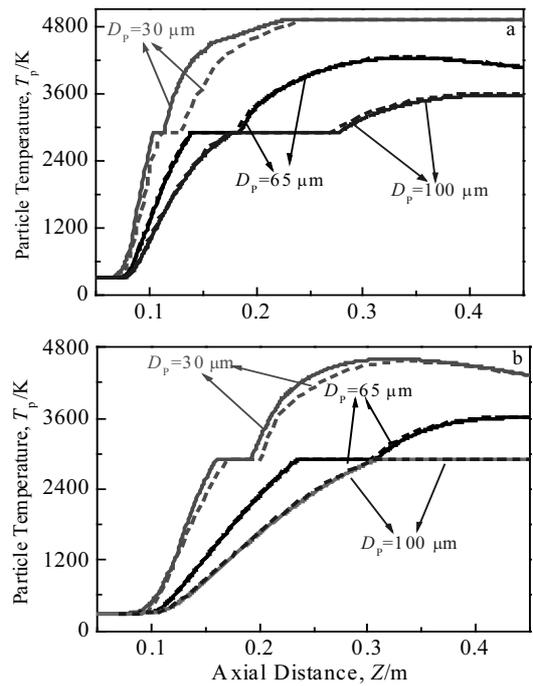


图 4 粉枪位置 P_{in} 分别为 50 mm (实线) 和 70 mm (虚线) 时钨粉颗粒温度 T_p 随轴向距离 Z 变化的曲线

Fig.4 Particle temperature with probe tip at 50 mm (continuous line) and 70 mm (dashed line) as a function of distance in axial direction: (a) $f=3$ MHz and (b) $f=5$ MHz

导和对流传热来实现, 因此电流频率的提升将使等离子体炬壁附近的温度升高, 轴线附近的温度降低 (图 5)。而此时钨粉颗粒的运动轨迹主要集中于等离子体炬轴线附近的区域内 (如图 3 所示, P_R 小于 0.004 m), 所以在运动过程中, 能够从等离子体中获得的能量也更少, 颗粒温度也更低。

2.3 电流频率及送粉速率对颗粒加热过程的影响效应

送粉速率是优化等离子体球化处理过程中的另一个重要工艺参数。此处将对线圈电流频率分别为 3 和 5 MHz, 送粉速率在 24~72 g/min 范围内变化时, 粒径分别为 65 和 100 μm 的钨粉颗粒在射频等离子体的运动轨迹及加热过程进行数值模拟。模拟时粉枪均处于第一匝线圈位置 ($P_{in}=50$ mm) 处。

从图 6 给出的在不同的送粉速率 (FR) 下, 炬内等离子体温度沿轴向变化的曲线可以看出, 对于相同尺寸的颗粒, 当送粉速率增加时, 沿颗粒轨迹附近的等离子体温度明显下降, 即文献[8]提到的等离子体冷却效应。并且在线圈电流频率较高的情况下, 这种由送粉速率增大所引起的等离子体冷却效应更为明显。

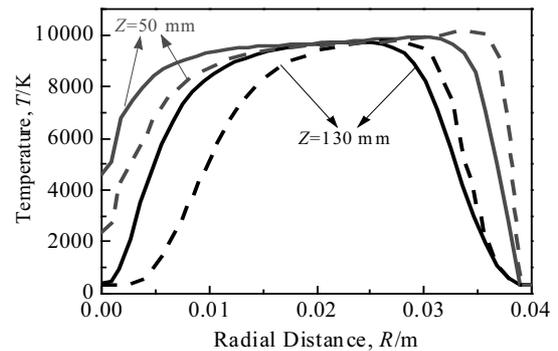


图 5 线圈电流频率 f 分别为 3 MHz (实线) 和 5 MHz (虚线) 时钨粉颗粒注入等离子体后等离子体径向温度沿第 1 匝线圈 ($Z=50$ mm) 及炬出口 ($Z=130$ mm) 处的分布曲线

Fig.5 Distribution of radial temperature along the first coil ($Z=50$ mm) and at plasma torch outlet ($Z=130$ mm) with coil current frequency $f=3$ MHz (continuous line) and $f=5$ MHz (dashed line) after molybdenum particle injection

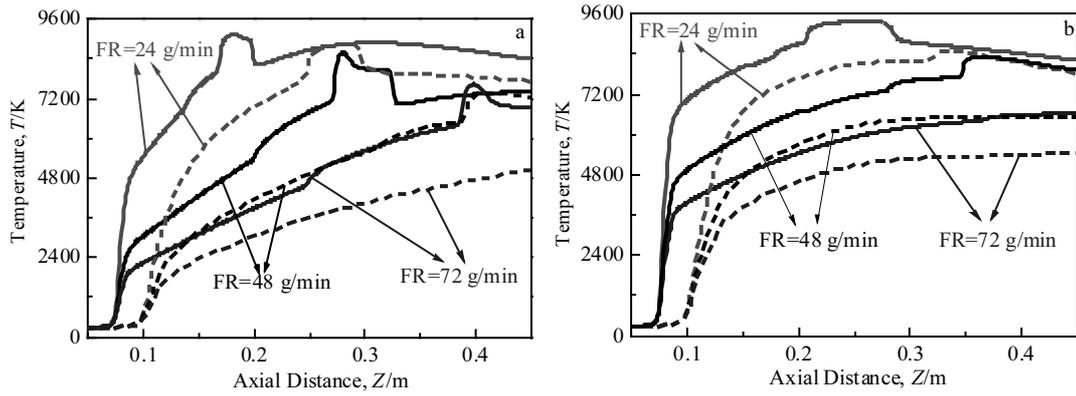


图 6 线圈电流频率 f 分别为 3 MHz (实线) 和 5 MHz (虚线) 时钨粉颗粒以不同送粉速率 FR 进入等离子体装置后等离子体轴向温度的分布曲线

Fig.6 Distribution of axial temperature T with different feed rates FR as coil current frequency f is 3 MHz (continuous line) and 5 MHz (dashed line): (a) $D_p=65 \mu\text{m}$ and (b) $D_p=100 \mu\text{m}$

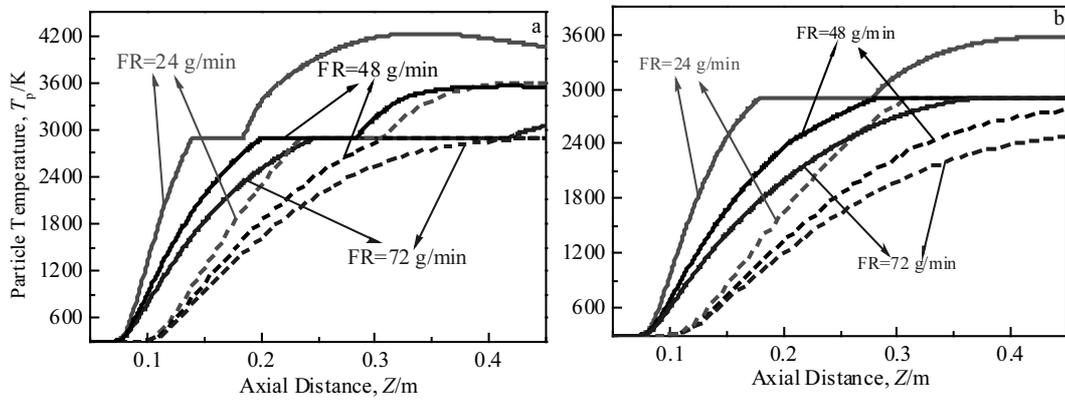


图 7 线圈电流频率 f 分别为 3 MHz (实线) 和 5 MHz (虚线) 时钨粉颗粒以不同送粉速率 FR 进入等离子体装置后颗粒温度 T_p 随轴向距离 Z 变化的分布曲线

Fig.7 Variations of particle temperature with different feed rates FR as coil current frequency f is 3 MHz (continuous line) and 5 MHz (dashed line): (a) $D_p=65 \mu\text{m}$ and (b) $D_p=100 \mu\text{m}$

从图 7 可知，钨粉颗粒注入所引起的等离子体温度分布变化反过来又对颗粒的加热产生了较大的影响：钨粉颗粒在等离子体中运动时所能达到的最高温度将随着送粉速率的增加而降低。当线圈电流频率为 3 MHz，且送粉速率 FR 在 72 g/min 以下时，粒径小于 100 μm 的钨粉颗粒均可被加热至熔化状态。而当电流频率升至 5 MHz 时，由于颗粒运动轨迹附近的等离子体温度更低，粒径大于 100 μm 的颗粒以较高的速率送入等离子体高温区时，无法吸收到足够多的热量，颗粒温度达不到材料的熔点，从而导致粉末的球化效果不佳。

3 结 论

1) 当线圈电流频率较高时，钨粉颗粒在等离子体

炬内的运动轨迹更加靠近轴线位置，沿颗粒轨迹附近的等离子体温度下降的更快；颗粒从等离子体中获得的能量更少，所能达到的最高温度也更低。

2) 当粉枪的位置向装置出口移动时，粒径较小的颗粒的运动轨迹更加靠近炬中轴线位置，颗粒被加热至完全熔化所需的时间也更长。但对于粒径大于 65 μm 的钨粉颗粒，其加热过程几乎不受粉枪位置变化的影响。

3) 当钨粉颗粒以较大的速率送入等离子体炬时，会对装置内的等离子体温度产生较强的冷却效应，从而使颗粒无法被加热至完全熔化，导致粉末球化率下降。因此在射频等离子体球化实验过程中，需要通过合理的调整送粉速率来提高钨粉的球化率。

参考文献 References

- [1] Liu Xiaoping (刘晓平), Wang Kuaishe (王快社), Hu Ping(胡平) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2016, 45(5): 1325
- [2] Liu Xiaoping, Wang Kuaishe, Hu Ping *et al. International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials*[J], 2015, 12(11): 1212
- [3] Dai Zhen, Cao Yongge, Ma Chaoyang *et al. Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2017, 46(2): 333
- [4] Zhu Hailong, Tong Honghui, Yang Fazhang *et al. Advanced Materials Research*[J], 2014, 58(10): 221
- [5] Li Baoqiang, Sun Zhiqiang, Jin Huacheng *et al. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2016, 59: 105
- [6] Zhu Hailong, Tong Honghui, Cheng Changming *et al. Int Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2017, 66: 72
- [7] Lu Xin, Zhu Langping, Zhang Bing *et al. Computational Materials Science*[J], 2012, 65: 13
- [8] Zhu Langping (朱郎平), Lu Xin(路新), Liu Chengcheng(刘程程) *et al. Journal of Aeronautical Materials* (航空材料学报)[J], 2017, 37(3): 16
- [9] Chen Xi(陈熙). *Heat Transfer and Flow of Thermal Plasma* (热等离子体传热与流动)[M]. Beijing: Science Press, 2009: 551
- [10] Proulx P, Mostaghimi J, Boulos M I. *International Journal of Heat and Mass Transfer*[J], 1985, 28 (7): 1327
- [11] Ye R, Ishigaki T, Jurewicz J *et al. Plasma Chemistry and Plasma Processing*[J], 2004, 24(4): 555
- [12] Tong J B, Lu X, Liu C C *et al. Applied Thermal Engineering*[J], 2016, 100: 1198
- [13] Hossain M M, Alam M R, Watanabe T. *Japanese Journal of Applied Physics*[J], 2013, 52 (1) : 219
- [14] Colombo V, Ghedini E, Gherardi M *et al. Plasma Sources Science & Technology*[J], 2012, 21(21): 025 001
- [15] He J P, Bai L Y, Jin H C *et al. Powder Technology* [J], 2016, 302: 288
- [16] Hossain M M, Yao Y, Watanabe T. *Thin Solid Films*[J], 2008, 516(19): 6634
- [17] Shigeta M, Sato T, Nishiyama H. *International Journal of Heat and Mass Transfer*[J], 2004, 47: 707
- [18] Ye R, Li J G, Ishigaki T. *Thin Solid Films*[J], 2007, 515: 4251
- [19] Bernardi D, Colombo V, Ghedini E *et al. The European Physical Journal D*[J], 2004, 28: 423
- [20] Chen Wenbo(陈文波), Chen Lunjiang(陈伦江), Liu Chuandong(刘川东) *et al. Chinese Journal of Vacuum Science and Technology* (真空科学与技术学报)[J], 2017, 37(6) : 49

Numerical Simulation of Heating Process of Molybdenum Powder in Radio Frequency Plasma Spheroidization

Chen Wenbo^{1,2}, Chen Lunjiang², Liu Chuandong², Cheng Changming², Tong Honghui²

(1. University of South China, Hengyang 421001, China)

(2. Southwestern Institute of Physics, Chengdu 610041, China)

Abstract: Study on heating process of molybdenum particles in radio frequency plasma can provide theoretical guidelines for improving preparation process of plasma spheroidization. The effect of coil current frequency, position of injection probe tip and powder feeder rate on motion trajectories and heating process of molybdenum particles in plasma was studied by a numerical simulation method. The results show that molybdenum particles can be heated to higher temperature during the spheroidization process when coil current frequency is lower because of higher plasma temperature; Changing of injection probe tip position has great effect on motion and heating of smaller particles; Decreasing of powder feeder rate can increase the energy from plasma, thus improving the spheroidization effect.

Key words: radio frequency plasma; molybdenum particles; heating process; numerical simulation

Corresponding author: Chen Wenbo, Ph. D., Lecturer, College of Electrical Engineering, University of South China, Hengyang 421001, P. R. China, E-mail: snipers2004@163.com