ISSN 0040-3644

Том 62, Номер 1 Январь - Февраль 2024

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР

НАУКА
1727

Журнал публикует оригинальные статьи и обзоры по всем вопросам теплофизических свойств веществ и тепломассообмена, низкотемпературной плазмы и плазменных технологий, физической газодинамики, по методам экспериментальных исследований и измерений в теплофизике, высокотемпературным аппаратам и конструкциям

300 лет Российская Академия Наук

СОДЕРЖАНИЕ

Том 62, номер 1, 2024

ИССЛЕДОВАНИЕ ПЛАЗМЫ

Влияние внешнего потока на характеристики поверхностного барьерного разряда
И. В. Селивонин, И. А. Моралев 3

Влияние электронных комплексов на ток коронного разряда в криогенном гелии
N. Bonifaci, Z.-L. Li, A. Denat, В. М. Атражев 12

Механизм лазерно-индуцированного широкополосного излучения поликристаллического графита
С. Ш. Рехвиашвили, Д. С. Гаев, З. Ч. Маргушев 18

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ВЕЩЕСТВ

Удельное сопротивление циркония в окрестности плавления: эксперимент и первопринципный расчет
А. В. Дороватовский, М. А. Шейндлин, В. Б. Фокин, Д. В. Минаков 24

Фазовые превращения и критические свойства системы $C_3H_7OH–C_7H_{16}$
Э. А. Базаев, А. Р. Базаев, И. М. Абдулагатов, Т. А.-Г. Джапаров, Б. К. Османова 29

Уравнение состояния околокритической бинарной смеси на основе гипотезы перемешивания
М. Ю. Беляков 38

Влияние добавки олова на теплофизические свойства и термодинамические функции алюминиевого сплава AlFe5Si10
И. Н. Ганиев, Ф. Холмуродов, А. Г. Сафаров, Н. Р. Нуров, У. Ш. Якубов, К. Ботуров 48

ТЕПЛОМАССООБМЕН И ФИЗИЧЕСКАЯ ГАЗОДИНАМИКА

Разработка и результаты испытаний длинной контурной тепловой трубы с элементами гибкости
Ю. Ф. Майданик, С. В. Вершинин, М. А. Чернышева 56

Влияние изменения состава фаз при течении двухфазных зеотропных смесей на перепад давления
А. С. Шамирзаев 67

Естественная конвекция псевдопластичной наножидкости в замкнутой полости при наличии источника энергии объемного тепловыделения и теплопроводной подложки
Д. С. Лоенко, М. А. Шеремет 72

Конвективный и кондуктивный режимы горения гранулированных смесей Ti–C–B. Определение коэффициента теплообмена фильтрующегося газа с гранулами
Р. А. Кочетков, Б. С. Сеплярский, Д. С. Васильев 83

О решении задач электростатики и теплопроводности для двухпленочных плоскослоистых сред
А. Б. Петрин 95

НОВАЯ ЭНЕРГЕТИКА И СОВРЕМЕННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ

Механизмы формирования поверхностного нанорельефа при лазерной абляции
П. С. Кулешов, С. И. Миколуцкий, Ю. В. Хомич 112

Определение оптимальных параметров воздействия при микродиссекции блестящей оболочки эмбриона с помощью инфракрасных фемтосекундных лазерных импульсов
Д. С. Ситников, Д. Е. Мухдина, М. А. Филатов, Ю. Ю. Силаева 121

Численный анализ теплообмена в тканях печени при СВЧ-абляции с использованием одной, двух, трех и четырех щелей
E. Poorreza 131

КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ

Распределение температуры в области контактной электрической поверхности графита
А. В. Костановский, М. Г. Зеодинов, М. Е. Костановская, А. А. Пронкин 143

Акустические волны в смеси воздуха с полидисперсными частицами алюминия
Д. А. Губайдуллин, Р. Р. Зарипов 147

Самовозбуждение колебаний газа в трубе с закрученным пламенем
В. М. Ларионов, А. О. Малахов, О. В. Иовлева, Е. В. Семенова, И. В. Ларионова 150

Тематический указатель тома 61, 2023 г. 154

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 3–11

ИССЛЕДОВАНИЕ ПЛАЗМЫ

УДК 537.523.9

ВЛИЯНИЕ ВНЕШНЕГО ПОТОКА НА ХАРАКТЕРИСТИКИ ПОВЕРХНОСТНОГО БАРЬЕРНОГО РАЗРЯДА

© 2024 г. И. В. Селивонин*, И. А. Моралев

Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

**E-mail: inock691@ya.ru*

Поступила в редакцию 28.09.2023 г.
После доработки 29.11.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

Проведено исследование влияния вынужденной конвекции газа в разрядной области на рассеиваемую в поверхностном барьерном разряде мощность и динамику зарядки поверхности барьера ионным током. Продемонстрировано, что вследствие конвективного охлаждения разрядной области наблюдается снижение рассеиваемой в разряде мощности, которое может достигать 50% от значений в неподвижном воздухе. Показано, что вследствие переноса облака ионов потоком происходит зарядка дальних областей поверхности барьера конвективным ионным током, что приводит к изменению распределения плотности среднего заряда поверхности.

DOI: 10.31857/S0040364424010013

ВВЕДЕНИЕ

Поверхностный барьерный разряд (ПБР) – это импульсно-периодический разряд, питаемый низкочастотным напряжением поля, который развивается в газе вдоль поверхности диэлектрического барьера. В большинстве исследований электрическое поле создается парой электродов, один из них имеет острую кромку и расположен в плазмообразующей среде, а второй находится под поверхностью диэлектрика. Интерес к этому типу разряда обусловлен перспективами его применения для задач плазменной аэродинамики [1–3], плазменного воспламенения и управления горением [4, 5], обработки поверхностей [6, 7], для конверсии различных газов [8], генерации озона [9, 10] и т.д.

Разряд развивается от кромки открытого электрода вдоль диэлектрической поверхности, заряжая ее. Зарядка поверхности барьера и накопление объемного ионного заряда приводят к снижению напряженности поля в зазоре, в результате чего ток разряда прекращается. При дальнейшем росте потенциала электрода вновь создаются условия для возникновения разряда. Таким образом, разряд существует в виде последовательности слабых токовых импульсов, соответствующих отдельным микроразрядам различных поколений [11, 12]. Следует отметить, что зарядка поверхности приводит к искажению структуры электрического поля у кромки, что также влияет на развитие барьерного разряда [13]. Поверхностный заряд накапливается как в течение токового импульса, так и после него в результате дрейфа ионного облака.

При движении газа как целого на зарядку влияют как дрейф, так и конвекция ионов. Распределение заряда по поверхности может влиять на скорость и структуру индуцированного разрядом ионного ветра, что может быть важно в ряде приложений. В некоторых работах было продемонстрировано, что вследствие конвективного переноса ионного заряда внешним потоком наблюдаются существенные изменения напряжения зажигания и тока разряда, а также характеристик отдельных микроразрядов [14], распределения интенсивности свечения разряда [15] и индуцируемой им объемной силы [16].

Кроме того, внешний поток влияет на температуру газа в зоне горения разряда. Было продемонстрировано [17], что под действием внешнего потока происходит изменение распределения температуры газа и барьера, что должно влиять на структуру разряда и его электрические характеристики. Конвективное охлаждение разрядной области может приводить к заметному снижению рассеиваемой в разряде мощности, что снижает эффективность устройств на основе ПБР вплоть до 30% [18].

Исследование влияния течения газа в газоразрядной области на свойства разряда и эксплуатационные характеристики устройств на его основе является актуальной задачей для плазменной аэродинамики, решение которой позволит более точно предсказывать поведение ПБР-актуаторов при условиях работы, максимально приближенных к реальным.

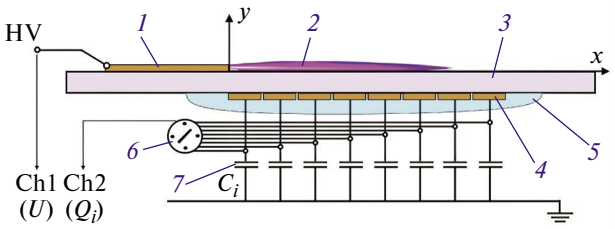

Рис. 1. Схема разрядной ячейки: *1* – коронирующий электрод, *2* – поверхностный барьерный разряд, *3* – диэлектрический барьер, *4* – подстилающий секционированный электрод, *5* – силиконовый компаунд, *6* – коммутатор, *7* – измерительные емкости.

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Барьерный разряд исследовался в асимметричной конфигурации кромка-плоскость (рис. 1). В качестве диэлектрического барьера использовалась алундовая керамика толщиной 1 мм с диэлектрической проницаемостью 10.4. Электродами служила самоклеящаяся алюминиевая фольга толщиной 20 мкм. На коронирующий электрод подавалось высокое напряжение, ответный электрод был изготовлен в виде полос шириной 1 мм и подключался к земле через измерительные емкости номиналом 470 пФ. Для предотвращения развития барьерного разряда вдоль нижней поверхности барьера ответный электрод изолировался с помощью силиконового заливочного компаунда. Измерения перенесенного заряда могли осуществляться как со всей площади ответного электрода, так и с каждой измерительной секции по отдельности с помощью физического коммутатора, что позволяло получить одномерные распределения плотности поверхностного заряда барьера.

Питание разряда осуществлялось синусоидальным напряжением с частотой $f = 200$ кГц и амплитудой U_a от 3.2 до 5 кВ. Для получения зависимостей мощности от амплитуды напряжения разряд запитывался в режиме радиоимпульсов длительностью 300 мс, в течение которых амплитуда питающего напряжения U_a менялась с 3.2 до 5 кВ (рис. 2). Рассеиваемая в разряде мощность при максимальном значении амплитуды приложенного напряжения составляла около 25 Вт или 0.8 Вт с 1 мм кромки.

Параметры высокого напряжения измерялись с помощью высоковольтного щупа Tektronix P6015A с полосой пропускания 75 МГц и погрешностью 2%. Для регистрации токовых сигналов использовался цифровой запоминающий осциллограф

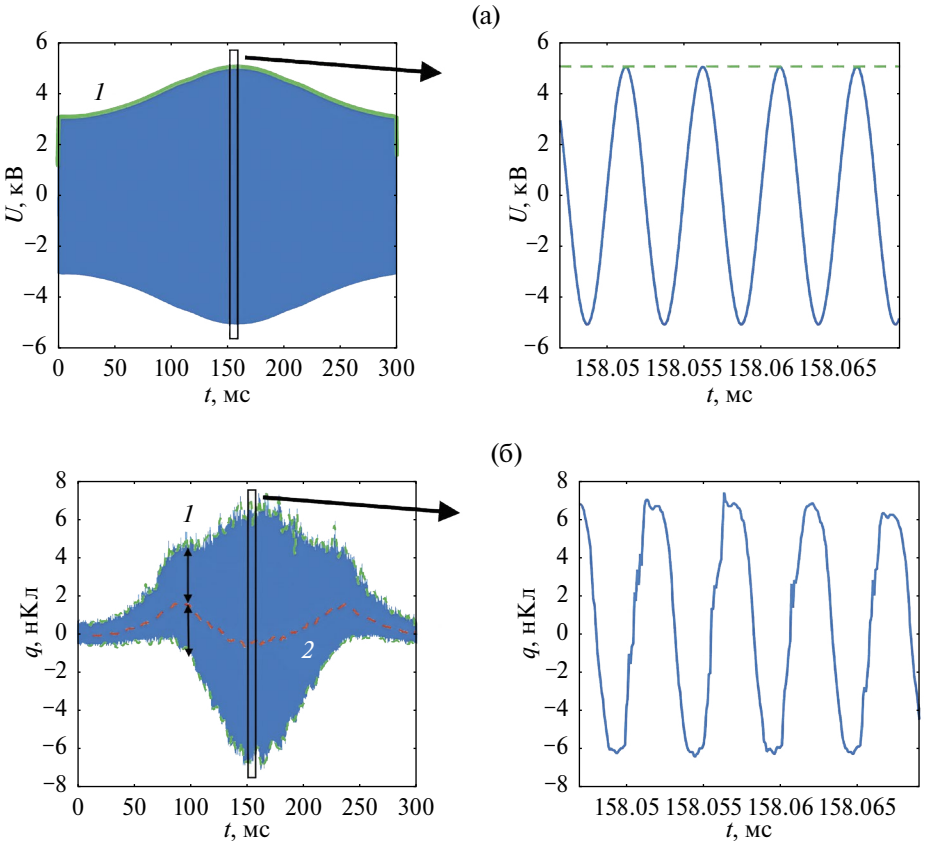

Рис. 2. Осциллограммы приложенного напряжения (а) и переносимого в барьерном разряде заряда (б) при питании разряда в режиме радиоимпульсов: *1* – огибающие осциллограмм, показывающие амплитудные значения величин; *2* – среднее значение перенесенного заряда за период питающего напряжения.

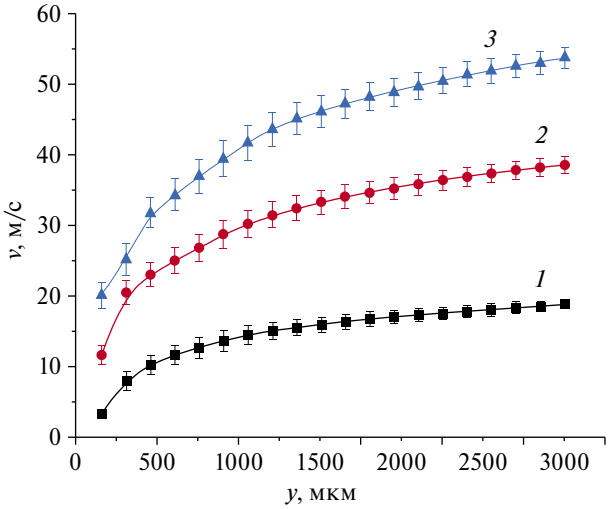

Рис. 3. Профили скорости потока в пограничном слое в точке установки электродов: *1* – 20 м/с, *2* – 40, *3* – 60.

Tektronix DPO7054C с полосой пропускания 500 МГц, частотой дискретизации до 2×10^{10} выборок в секунду и длиной записи до 5×10^7 точек.

Исследования проводились в воздухе атмосферного давления при комнатной температуре. Нагрев модели и влажность воздуха не контролировались.

Влияние внешнего потока на разряд исследовалось путем установки актуатора в турбулентный пограничный слой у обтекаемой плоской пластины. Эксперимент проводился при скоростях набегающего потока 10–60 м/с и числах Рейнольдса до 60 000. Для фиксации условий в пограничном слое на передней кромке пластины устанавливался турбулизатор. В качестве него использовалась наждачная бумага с зерном 200 мкм. Турбулизатор располагался на расстоянии 10 мм от передней кромки модели, расстояние от турбулизатора до электрода – 200 мм. В эксперименте сравнивалось влияние потока в трех вариантах расположения разряда в нем: поперек потока, вдоль навстречу потоку и вдоль по потоку.

Профили скорости в пограничном слое при скоростях набегающего потока 20–60 м/с, полученные с помощью термоанемометра (пространственное разрешение – 10 мкм, погрешность – 5%), представлены на рис. 3. Предполагая, что объемный заряд сосредоточен в слое не более 500 мкм от поверхности барьера, можно сделать вывод, что при скорости газа в ядре потока 20, 40 и 60 м/с скорость газа в разрядной области составляет около 7, 15, 25 м/с соответственно.

МЕТОДЫ ОБРАБОТКИ ДАННЫХ

Основной измеряемой величиной являлся переносимый заряд (плотность поверхностного заряда барьера). Рассеиваемая в разряде мощность вычислялась методом вольт-кулонных циклограмм (ВКЦ) [19–23]. Суть метода заключается в анализе циклической зависимости заряда q измерительной емкости $C_m = C_i$ (или суммарной емкости $C_m = \sum C_i$, к которой подключается ответный электрод, см. рис. 1) от мгновенного значения разности потенциалов между электродами u (рис. 4). Энергию, рассеиваемую в разряде за один

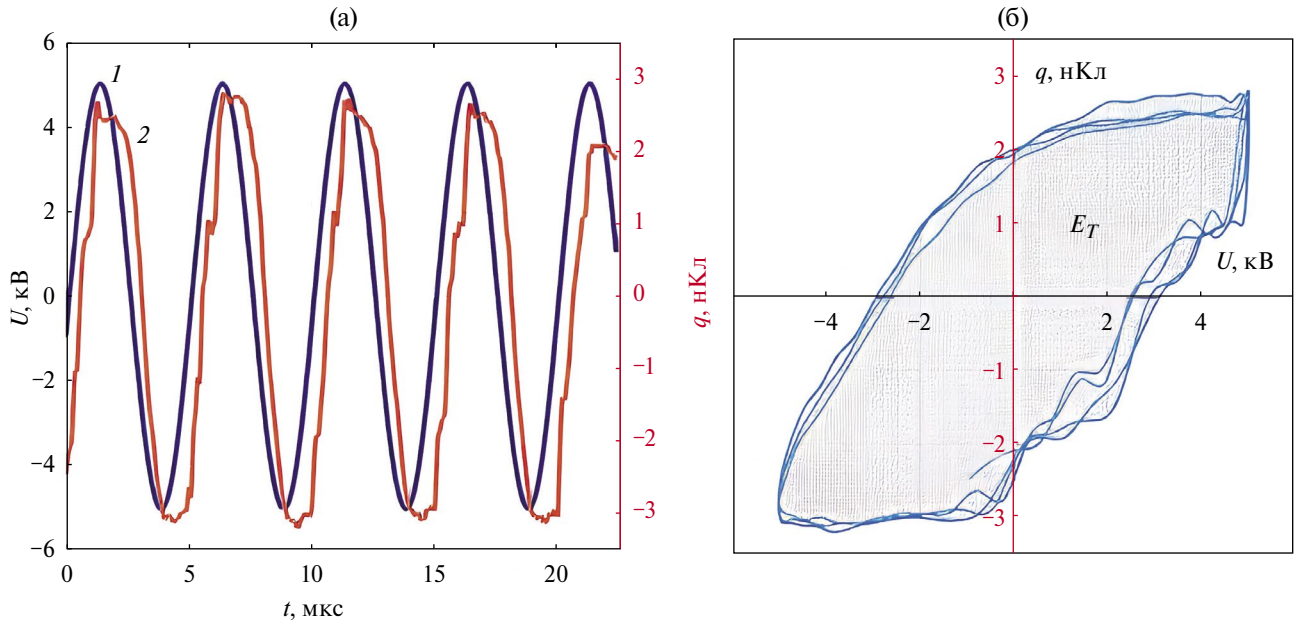

Рис. 4. Осциллограммы приложенного напряжения – *1* и перенесенного заряда – *2* (а) и вольт-кулонная характеристика разряда (б): заштрихованная область – энерговклад в разряд за период приложенного напряжения.

период приложенного напряжения, можно определить, оценив площадь ВКЦ:

$$E_T = \int_t^{t+T} iudt = \oint udq, P = E_T f,$$

где f – частота приложенного напряжения.

Зависимость $U_a(t)$ вычислялась как огибающая осциллограммы $U(t)$. Изменения среднего значения переносимого заряда были определены наложением фильтра низких частот с частотой среза $f_c = 10f$ на исходную осциллограмму заряда.

Распределения плотности поверхностного заряда получены методом секционированного электрода на основе эквивалентной электротехнической схемы замещения поверхностного барьерного разряда [24, 25].

Измеряемый на емкостях C_i заряд создается током разряда, а также паразитным током смещения через емкость электродной системы. Для компенсации паразитного тока смещения при обработке данных переносимый барьерным разрядом заряд вычислялся как $q_i = C_i U_{ci} - a_i U$, где U_{ci} – напряжение на измерительной емкости, a_i – заряд на измерительной секции при приложенном напряжении 1 кВ, недостаточном для развития разряда, U – приложенное напряжение в кВ. Погрешность метода измерения заряда при цифровом методе компенсации составляет около 10%. Реализация этого метода детально описана в [26–28].

РЕЗУЛЬТАТЫ

Влияние внешнего потока на рассеиваемую в разряде мощность. Зависимость мощности от амплитуды приложенного напряжения изучалась для трех ориентаций разряда: при распространении каналов разряда по потоку, навстречу потоку и для случая, когда кромка электрода была ориентирована вдоль направления внешнего течения.

На рис. 5 представлены зависимости рассеиваемой в разряде мощности от амплитуды U_a приложенного напряжения и ориентации разряда. Результаты приведены для радиоимпульса питающего напряжения, в котором амплитуда напряжения сначала растет, затем падает (см. рис. 2), поэтому представляют собой замкнутые кривые. Можно видеть, что внешняя конвекция приводит к снижению мощности ПБР. Эффект сильнее проявляется при увеличении амплитуды приложенного напряжения и наиболее заметен при распространении разряда поперек потока. Снижение мощности при скорости потока 60 м/с может достигать 50% от мощности разряда, зажигаемого в неподвижном воздухе. При распространении разряда вдоль потока вниз по течению влияние потока наименее значительно и при скорости 60 м/с мощность снижается не более чем на 25%. Кроме того, на графиках можно отметить особенности в виде гистерезиса и изломов, которые свидетельствуют о смене режимов горения разряда. При постепенном росте амплитуды приложенного напряжения в разряде возникают тепловые неустойчивости в виде филаментов с высокой плотностью тока и проводимостью. При постепенном снижении энерговклада в разряд распад филаментов происходит при меньших значениях амплитуды напряжения, и наблюдается тепловой гистерезис: зависимости $P(U_a)$ не совпадают при росте и падении U_a [29, 30].

Влияние потока на динамику зарядки поверхности. Важным параметром, отвечающим за величину и структуру объемной силы, создаваемую ПБР, является плотность заряда, который оседает на поверхности барьера. В данной работе анализировалась величина среднего за период питающего напряжения заряда.

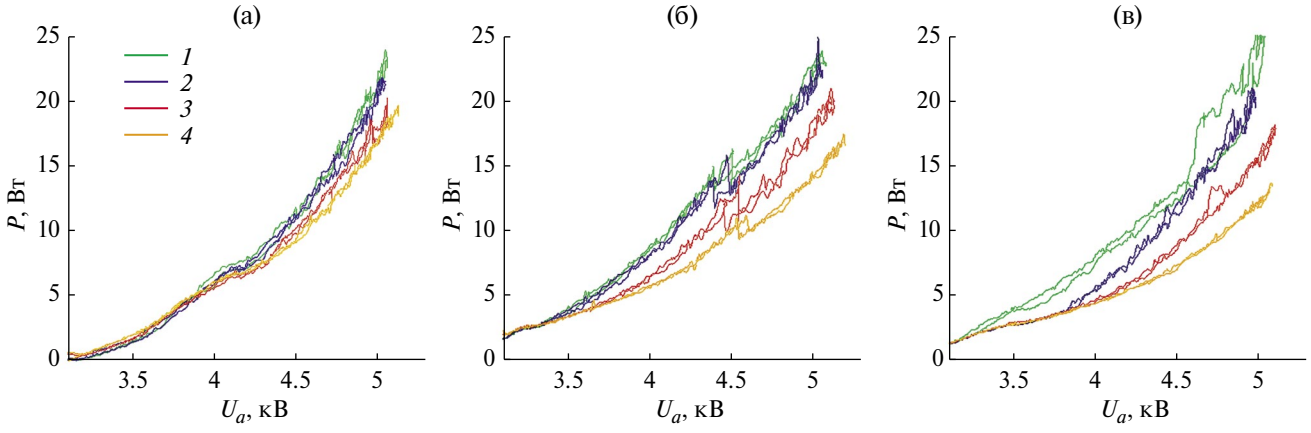

Рис. 5. Зависимость рассеиваемой в разряде мощности от амплитуды U_a приложенного напряжения при различных скоростях потока (*1* – 0 м/с, *2* – 20, *3* – 40, *4* – 60) и ориентациях разряда в нем: (а) – по течению, (б) – против течения, (в) – поперек течения.

Необходимо отметить, что поскольку измерения в данном разделе проводятся *in situ*, измеренные значения заряда включают как заряд поверхности диэлектрика, так и объемный заряд, сосредоточенный в разрядной области.

На рис. 6 представлены зависимости среднего заряда барьера от времени. Общий заряд поверхности всегда положительный. Можно видеть, что зарядка диэлектрика до некоторого значения происходит быстро, в течение нескольких периодов питающего напряжения, независимо от ориентации разряда по отношению к потоку.

Динамика зарядки на временах, много больших периода питающего напряжения, зависит от ориентации внешнего течения. В случае развития разряда по потоку наблюдается постепенный рост среднего заряда за времена порядка десятков миллисекунд. Эффект проявляется сильнее при увеличении скорости потока. При распространении разряда навстречу потоку либо поперек потока влияния скорости течения на зарядку поверхности не выявлено.

Влияние потока на структуру распределения поверхностного заряда. С использованием метода секционированного электрода (см. рис. 1) также было получено одномерное распределение среднего заряда по поверхности диэлектрика. Зависимость плотности заряда поверхности от расстояния до кромки электрода ($x = 0$) в различные моменты времени приведено на рис. 7а, изображение разряда показано на рис. 7б. Наиболее близкие к кромке области оказываются в среднем практически незаряженными. На небольших удалениях от кромки происходит быстрая перезарядка поверхности в результате пробоя между кромкой электрода и диэлектриком, в связи с чем долгоживущего ионного заряда в этих областях не формируется. Подобные особенности распределений плотности

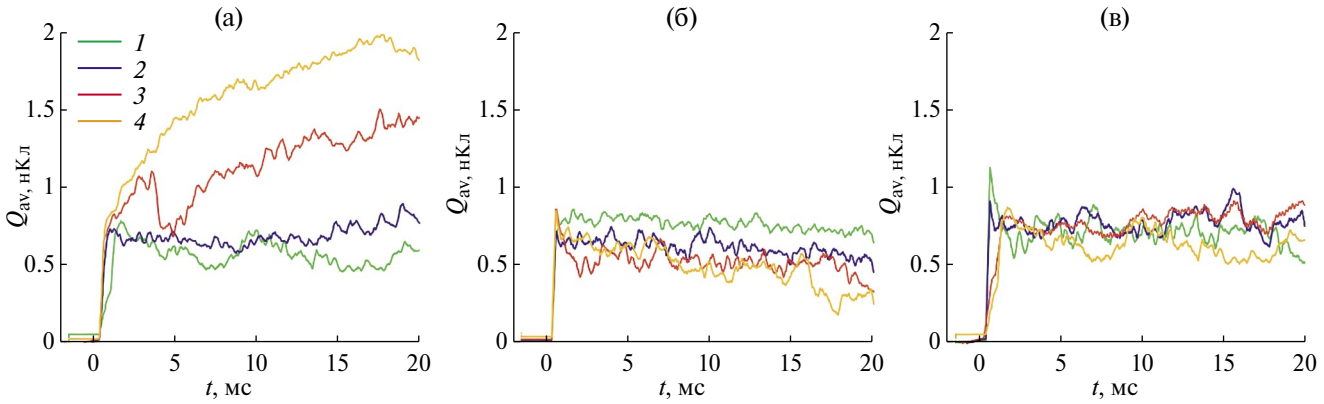

Рис. 6. Динамика среднего по периоду заряда Q_{av} поверхности барьера при различных скоростях потока (*1* – 0 м/с, *2* – 20, *3* – 40, *4* – 60) и ориентациях разряда в нем: (а) – по течению, (б) – против течения, (в) – поперек течения; момент $t = 0$ мс соответствует включению разряда; амплитуда питающего напряжения – 5 кВ.

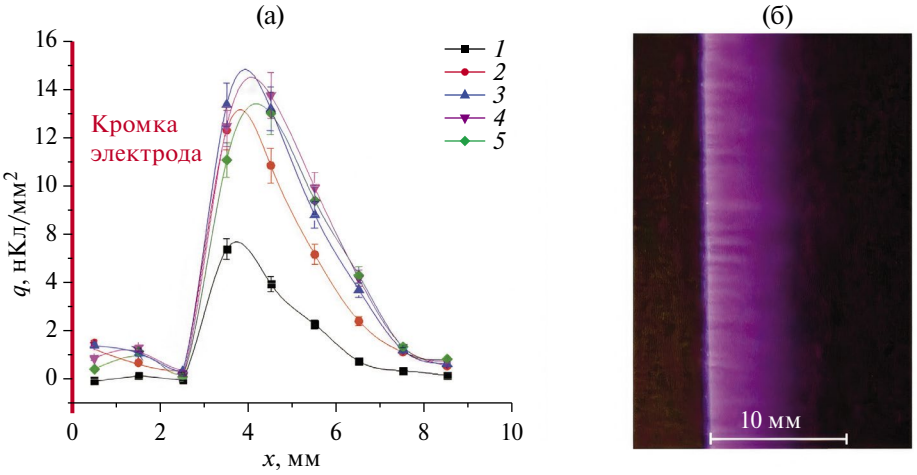

Рис. 7. Распределение заряда, индуцированного на поверхности диэлектрика, в различные моменты времени после инициации разряда (*1* – 50 мкс, *2* – 100, *3* – 150, *4* – 250, *5* – 30 мс) при амплитуде приложенного напряжения 5 кВ в неподвижном воздухе (а); (б) – изображение разряда при этих параметрах, полученное с экспозицией 30 мс.

поверхностного заряда были также продемонстрированы другими исследователями при помощи методов электростатических зондов [31, 32] и электрографии [33]. Далее плотность среднего заряда сначала резко возрастает при удалении от электрода, затем плавно снижается до нуля. Распределение устанавливается за время порядка 100 мкс и практически не меняется со временем.

На рис. 8а показано распределение заряда по поверхности в различные моменты времени при скорости в ядре потока 60 м/с при зажигании разряда по потоку. В приэлектродных областях установление распределения происходит по-прежнему за времена менее 10 мс. Однако для расстояний, удаленных от кромки более чем на 5 мм, наблюдается рост среднего заряда поверхности в течение более 25–30 мс.

Распределение заряда на момент 30 мс по поверхности при различных скоростях набегающего потока показаны на рис. 8б. При увеличении скорости внешнего потока наблюдается процесс постепенной зарядки удаленных от кромки коронирующего электрода областей.

При зажигании разряда против и поперек потока полученные распределения плотности заряда не имеют видимых отличий от полученных для случая разряда в неподвижном газе.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Конвективное охлаждение разрядной области. Как уже упоминалось ранее, ПБР существует в виде последовательности индивидуальных микроразрядов, соответствующих токовым импульсам с амплитудой порядка 1–100 мА и длительностью 10–100 нс. Токовые импульсы следуют со скважностью, которая при неизменных условиях зажигания разряда определяется инкрементом разности потенциалов на электродах и приблизительно линейно зависит от частоты и амплитуды приложенного напряжения. При параметрах питающего напряжения U_a = 5 кВ и f = 200 кГц наблюдается около 30–50 токовых импульсов за полупериод питающего напряжения [34]. Микроразряды существуют в течение активной фазы разряда, которая длится примерно 1/4 периода питающего напряжения, что составляет 1.25 мкс. Таким образом, задержка между последовательными токовыми импульсами составляет около 40 нс, что сравнимо с длительностью протекания тока в импульсе. Тепловая релаксация области нагретого микроразрядом газа, очевидно, происходит за существенно бóльшие времена, вследствие чего каждый последующий микроразряд в течение активной фазы развивается при большей температуре.

На основании полученных результатов можно предположить, что одним из основных механизмов воздействия потока на разряд является охлаждение разрядной области в результате вынужденной конвекции. Нагрев газа в разрядной области ведет к локальному росту его проводимости и соответствующему увеличению плотности тока что в свою очередь приводит к еще большему нагреву, т.е. возникает перегревная неустойчивость [29]. Кроме того, вследствие снижения плотности газа при нагреве происходит увеличение приведенного поля E/n, что может снижать необходимую для инициации микроразряда напряженность электрического поля у электродной кромки и

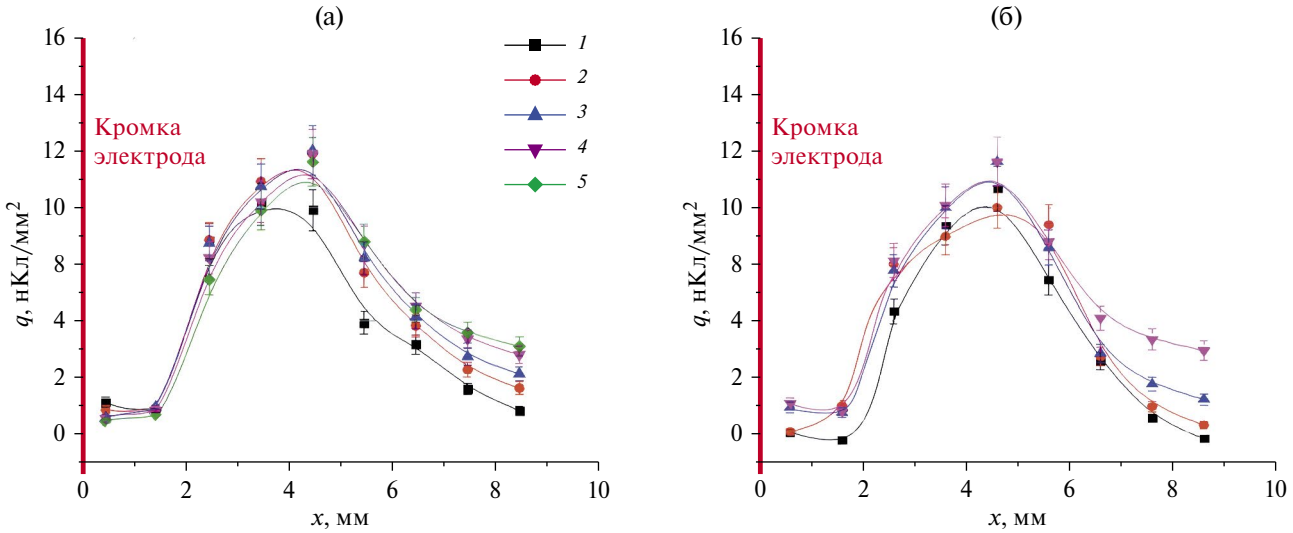

Рис. 8. Распределение заряда, индуцированного на поверхности диэлектрика, в различные моменты времени (*1* – 50 мкс, *2* – 10 мс, *3* – 15, *4* – 25, *5* – 30) при скорости набегающего потока 60 м/с (а) и при различных скоростях потока (*1* – 0 м/с, *2* – 20, *3* – 40, *4* – 60) в момент времени 30 мс после зажигания разряда (б): разряд ориентирован вниз по потоку, амплитуда приложенного напряжения – 5 кВ.

способствовать росту количества микроразрядов при тех же параметрах приложенного напряжения [35].

В случае размещения разряда во внешнем потоке включается механизм вынужденной конвекции. В течение активной фазы разряда нагретый микроразрядами газ успевает сместиться потоком со скоростью 60 м/с (25 м/с в разрядной области) на расстояние около 30 мкм, что сравнимо с диаметром канала микроразряда. Таким образом, при зажигании разряда поперек потока нагретый микроразрядом первого поколения газ успевает полностью покинуть область, занимаемую первыми микроразрядами в активной фазе разряда.

При развитии разряда вдоль потока нагретый газ не покидает области развития канала микроразряда, и разряд развивается в собственном тепловом следе, вследствие чего механизм конвективного охлаждения разрядной области работает не столь эффективно.

Также следует отметить тот факт, что при поперечном расположении относительно потока разряд на длительных временах более однороден, чем в случае продольного расположения. Это приводит к ослаблению положительной обратной связи между нагревом газа разрядом и плотностью энерговклада в нем, что также отражается на снижении рассеиваемой в разряде мощности.

Конвективный перенос заряда и ионный ток. Поскольку внешний поток очевидным образом влияет на распределения среднего заряда, логично предположить, что за формирование заряда ответственны ионы. При наличии внешнего потока в процессе зарядки поверхности участвует не только дрейфовый, но и конвективный механизм переноса ионов. При этом механизмами релаксации ионного заряда на поверхности барьера можно пренебречь ввиду малой ее проводимости и, соответственно, большой длительности протекания процессов релаксации (порядка 0.1–1 с).

При напряженности электрического поля $E =$ $= 5$ кВ/см скорость дрейфа положительных ионов N_2^+ и O_2^+ имеет верхнюю оценку 6×10^4 см/с [36]. Очевидно, что скорость дрейфа ионов в этом случае оказывается существенно выше скорости потока в разрядной области. В первом приближении можно принять, что $I_{\text{др}}/I_{\text{к}} \sim v_{\text{др}}/v_{\text{к}}$, тогда в случае потока со скоростью в ядре 60 м/с (25 м/с в разрядной области) получаем $v_{\text{др}}/v_{\text{к}} \approx 600/25 = 24$.

Рассчитаем ионный ток зарядки поверхности как $i(t) = dq(t)/dt$. Полученный для скорости потока 60 м/с результат показан на рис. 9 красным цветом.

Можно видеть, что зарядка поверхности на больших временах представляет собой двухфазный процесс. Первая фаза соответствует относительно быстрой (менее 1 мс) зарядке поверхности барьера ионным током при дрейфе ионов в электрическом

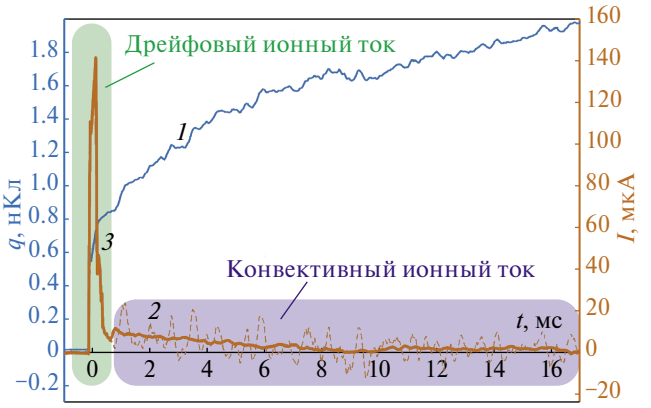

Рис. 9. Динамика осредненного по периоду приложенного напряжения заряда поверхности барьера и ток зарядки при скорости потока 60 м/с: разряд ориентирован по потоку, амплитуда приложенного напряжения – 5 кВ; начало отчета – момент включения разряда; *1* – заряд, *2* – ионный ток (dq/dt), *3* – ионный ток (сглажено).

поле у кромки электрода и поверхности барьера. В данном эксперименте дрейфовый ионный ток мог достигать значений 140 мкА. Вторая фаза соответствует длительной зарядке поверхности барьера (более 10 мс) конвективным ионным током, величина которого в среднем приблизительно равна 7 мкА. Таким образом, можно оценить полученное в эксперименте отношение вкладов дрейфового и конвективного механизмов зарядки поверхности ионным током, которое составляет около 20, что хорошо согласуется с результатами теоретической оценки.

Следует отметить, дрейфовый и конвективный механизмы переноса ионов являются согласованными процессами: унос заряда внешним потоком приводит к изменению структуры электрического поля и, как следствие, изменению скорости дрейфа ионов.

Влияние конвективного механизма переноса ионов наиболее заметно при зарядке удаленных от кромки областей барьера, которые практически не заряжаются дрейфовым ионным током (7–9 мм от кромки, см. рис. 8). При инициировании разряда в неподвижном воздухе плотность заряда в этих областях мала. Поэтому предполагаемого дополнительного снижения плотности заряда при развитии разряда против течения газа не наблюдается вследствие погрешностей используемых в работе методов. По этой причине заметные искажения распределения плотности поверхностного заряда имеют место только при развитии разряда по направлению течения.

В [31] было отмечено увеличение среднего заряда поверхности, формируемого положительными ионами при длительном горении разряда и в неподвижном воздухе. В этом случае физическим

механизмом, ответственным за накопление заряда на поверхности, является положительная обратная связь между плотностью заряда поверхности и напряженностью результирующего электрического поля в различные полупериоды приложенного напряжения. Положительный заряд поверхности дополнительно увеличивает напряженность поля в зазоре в отрицательную фазу приложенного напряжения и снижает в положительную. Этот эффект также приводит к увеличению тяги, создаваемой разрядом. Однако характерное время протекания этих процессов составляет порядка 10^5 периодов приложенного напряжения, что на два порядка превышает наблюдаемый в случае конвективного переноса ионов эффект.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено исследование влияния внешнего потока на рассеиваемую в ПБР мощность и динамику зарядки поверхности барьера ионным током. Выявлено, что существует два основных механизма воздействия потока на разряд: конвективное охлаждение разрядной зоны и конвективный перенос ионов.

Вследствие конвективного охлаждения разрядной области наблюдается снижение рассеиваемой в разряде мощности во всем исследуемом диапазоне напряжений. Эффект сильнее проявляется при увеличении амплитуды приложенного напряжения и наиболее заметен при ориентации разряда поперек потока. Снижение мощности при скорости потока 60 м/с может достигать 50% от мощности разряда, зажигаемого в неподвижном воздухе. Влияние ориентации разряда в потоке на интенсивность вынужденной конвекции объясняется тем, что зажигаемый вдоль потока разряд развивается в собственном тепловом следе, а в случае поперечного расположения нагретый газ в течение полупериода приложенного напряжения успевает покинуть занимаемую каналами микроразрядов область.

В результате конвективного ионного тока, возникающего при зажигании разряда вдоль направления потока, происходит зарядка дальних областей поверхности диэлектрика. При этом процесс зарядки явным образом разделяется на две фазы: фазу дрейфового ионного тока, которая длится менее 1 мс, и фазу конвективного ионного тока, которая длится более 20 мс. Отношение скоростей дрейфа и конвекции ионов совпадает с отношением величин дрейфового ионного тока и конвективного, что подтверждает гипотезу о конвективном переносе заряда потоком. При зажигании разряда поперек потока либо навстречу потоку заметного влияния скорости течения на динамику зарядки и структуру распределений плотности заряда не выявлено.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (госзадание № 075-01129-23-00).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Corke T.C., Jumper E.J., Post M.L., Orlov D., McLaughlin T.E.* Application of Weakly-ionized Plasmas as Wing Flow-control Devices // 40th AIAA Aerosp. Sci. Meet. Exhib. 2002. P. 0350.
2. *Moreau E.* Airflow Control by Non-thermal Plasma Actuators // J. Phys. D. Appl. Phys. 2007. V. 40. № 3. P. 605.
3. *Kriegseis J., Simon B., Grundmann S.* Towards In-flight Applications? A Review on Dielectric Barrier Discharge-based Boundary-layer Control // Appl. Mech. Rev. 2016. V. 68. № 2. P. 020802.
4. *Starikovskiy A., Aleksandrov N.* Plasma-assisted Ignition and Combustion // Prog. Energy Combust. Sci. 2013. V. 39. № 1. P. 61.
5. *Starikovskaia S.M.* Plasma Assisted Ignition and Combustion // J. Phys. D. Appl. Phys. 2006. V. 39. № 16. P. 265.
6. *Gherardi N., Gouda G., Gat E., Ricard A., Massines F.* Transition from Glow Silent Discharge to Micro-discharges in Nitrogen Gas // Plasma Sources Sci. Technol. 2000. V. 9. № 3. P. 340.
7. *Massines F., Rabehi A., Decomps P., Gadri R.B., Ségur P., Mayoux C.* Experimental and Theoretical Study of a Glow Discharge at Atmospheric Pressure Controlled by Dielectric Barrier // J. Appl. Phys. 1998. V. 83. № 6. P. 2950.
8. *Маланичев В.Е., Малашин М.В., Хомич В.Ю.* Конверсия природного газа импульсным барьерным разрядом при атмосферном давлении // ТВТ. 2020. Т. 58. № 1. С. 25.
9. *Yagi S., Tanaka M.* Mechanism of Ozone Generation in Air-fed Ozonisers // J. Phys. D. Appl. Phys. 1979. V. 12. № 9. P. 1509.
10. *Eliasson B., Hirth M., Kogelschatz U.* Ozone Synthesis from Oxygen in Dielectric Barrier Discharges // J. Phys. D. Appl. Phys. 1987. V. 20. № 11. P. 1421.
11. *Brandenburg R.* Dielectric Barrier Discharges: Progress on Plasma Sources and on the Understanding of Regimes and Single Filaments // Plasma Sources Sci. Technol. 2017. V. 26. № 5. P. 053001.
12. *Kogelschatz U., Eliasson B., Egli W.* Dielectric-barrier Discharges. Principle and Applications // J. Phys. IV Fr. 1997. V. 7. P. C4–47.
13. *Кривов С.А., Ларин В.С., Соколова М.В., Черненский Л.Л., Егорова М.А.* О распределении электрического поля у края электрода при поверхностном разряде // ПЖТФ. 2010. Т. 36. № 3. С. 68.
14. *Höft H., Becker M.M., Kettlitz M.* Impact of Gas Flow Rate on Breakdown of Filamentary Dielectric

Barrier Discharges // Phys. Plasmas. 2016. V. 23. № 3. P. 033504.

15. *Pereira R., Ragni D., Kotsonis M.* Effect of External Flow Velocity on Momentum Transfer of Dielectric Barrier Discharge Plasma Actuators // J. Appl. Phys. 2014. V. 116. № 10. P. 103301.
16. *Поливанов П.А., Вишняков О.И., Кисловский В.А., Сидоренко А.А.* Исследование влияния скорости набегающего потока на течение, индуцируемое диэлектрическим барьерным разрядом // ЖЭТФ. 2023. Т. 163. № 5. С. 717.
17. *Rodrigues F.F., Pascoa J.C., Trancossi M.* Experimental Analysis of Dielectric Barrier Discharge Plasma Actuators Thermal Characteristics under External Flow Influence // J. Heat Transfer. 2018. V. 140. № 10. P. 1.
18. *Kriegseis J., Grundmann S., Tropea C.* Airflow Influence on the Discharge Performance of Dielectric Barrier Discharge Plasma Actuators // Phys. Plasmas. 2012. V. 19. № 7. P. 073509.
19. *Kriegseis J., Grundmann S., Tropea C.* Power Consumption, Discharge Capacitance and Light Emission as Measures for Thrust Production of Dielectric Barrier Discharge Plasma Actuators // J. Phys. D. Appl. Phys. 2011. V. 110. P. 013305.
20. *Kriegseis J., Möller B., Grundmann S., Tropea C.* Capacitance and Power Consumption Quantification of Dielectric Barrier Discharge (DBD) Plasma Actuators // J. Electrostat. 2011. V. 69. № 4. P. 302.
21. *Manley T.C.* The Electric Characteristics of the Ozonator Discharge // J. Electrochem. Soc. 1943. V. 84. P. 83.
22. *Pipa A.V., Koskulics J., Brandenburg R., Hoder T.* The Simplest Equivalent Circuit of a Pulsed Dielectric Barrier Discharge and the Determination of the Gas Gap Charge Transfer // Rev. Sci. Instrum. 2012. V. 83. № 11. P. 115112.
23. *Пашин М.М., Лысов Н.Ю.* Измерение энергозатрат в озонаторах с объемным барьерным разрядом // Электричество. 2011. № 12. С. 21.
24. *Orlov D.M., Font G.I., Edelstein D.* Characterization of Discharge Modes of Plasma Actuators // AIAA J. 2008. V. 46. № 12. P. 3142.
25. *Orlov D.M.* Modelling and Simulation of Single Dielectric Barrier Discharge Plasma Actuators. Dis. ... by Graduate Program in Aerospace and Mechanical Engineering. Notre Dame, Indiana, 2006. 205 p.
26. *Selivonin I., Lazukin A., Moralev I., Krivov S., Roslyakov I.* Erosion of the Sputtered Electrodes in the Surface Barrier Discharge // J. Phys. Conf. Ser. 2019. V. 1394. P. 012027.
27. *Селивонин И.В.* Влияние деградации коронирующего электрода на характеристики поверхностного барьерного разряда. Дис. ...канд. физ.-мат. наук. М.: ОИВТ РАН, 2022. 162 с.
28. *Selivonin I.V., Lazukin A.V., Moralev I.A., Krivov S.A.* Effect of Electrode Degradation on the Electrical Characteristics of Surface Dielectric Barrier Discharge // Plasma Sources Sci. Technol. 2018. V. 27. № 8. P. 085003.
29. *Akishev Y., Aponin G., Balakirev A. et al.* Stepwise Expansion of a Surface Dielectric Barrier Discharge as a Result of Alternation in Formation of Streamers and Leaders // J. Phys. D. Appl. Phys. 2013. V. 46. P. 135204.
30. *Moralev I., Sherbakova V., Selivonin I., Bityurin V., Ustinov M.* Effect of the Discharge Constriction in DBD Plasma Actuator on the Laminar Boundary Layer // Int. J. Heat Mass Transfer. 2018. V. 116. P. 1326.
31. *Cristofolini A., Borghi C., Neretti G.* Charge Distribution on the Surface of a Dielectric Barrier Discharge Actuator for the Fluid-dynamic Control // J. Appl. Phys. 2013. V. 113. № 14. P. 143307.
32. *Cristofolini A., Neretti G., Borghi C.* Effect of the Charge Surface Distribution on the Flow Field Induced by a Dielectric Barrier Discharge Actuator // J. Appl. Phys. 2013. V. 114. № 7. P. 073303.
33. *Gibalov V.I., Pietsch G.J.* The Development of Dielectric Barrier Discharges in Gas Gaps and on Surfaces // J. Phys. D. Appl. Phys. 2000. V. 33. № 20. P. 2618.
34. *Selivonin I.V., Moralev I.A.* Microdischarges Properties in SDBD: the Role of the Exposed Electrode Oxidation // Plasma Sources Sci. Technol. 2021. V. 30. № 3. P. 035005.
35. *Соколова М.В., Кривов С.А., Скуратов М.В.* Поверхностный разряд при повышенных температурах воздуха // ПЖТФ. 2010. Т. 36. № 11. С. 24.
36. *Райзер Ю.П.* Физика газового разряда. М.: Интеллект, 2009. 736 с.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 12–17

УДК 533.922; 538.935

ВЛИЯНИЕ ЭЛЕКТРОННЫХ КОМПЛЕКСОВ НА ТОК КОРОННОГО РАЗРЯДА В КРИОГЕННОМ ГЕЛИИ

© 2024 г. N. Bonifaci[1], Z.-L. Li[1], A. Denat[1], В. М. Атражев[2, *]

[1]*Laboratoire G2Elab CNRS & Joseph Fourier University, Grenoble, France*

[2]*Институт высоких температур РАН, Москва, Россия*

**E-mail: atrazhev@yandex.ru*

Поступила в редакцию 07.07.2023 г.
После доработки 07.07.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

Сверхкритический газообразный гелий при температуре 7 и 11 K возбуждался коронным разрядом при отрицательных высоких напряжениях. Разряд поддерживался электронами, созданными у катода и движущимися к аноду через плотный газ. Проведены измерения тока коронного разряда при фиксированной температуре газа с изменением его давления. При низкой плотности газа ток разряда был бóльшим. В этом режиме электроны свободны и обладают высокой подвижностью. По мере увеличения давления ток коронного разряда резко уменьшался. При высокой плотности газа измерен слабый ток 100 нА в результате низкой подвижности электронов из-за их локализации. Такое резкое уменьшение тока разряда наблюдалось при температурах 7 и 10 K и давлениях 0.2–0.4 МПа. Были измерены и проанализированы вольт-амперные характеристики разряда. Показано, что в этих условиях подвижность электронов уменьшается на три порядка. Переход от разряда со свободными электронами в состояние с локализованными электронами происходит в сверхкритическом газе в узком диапазоне давлений и объясняется квантово-механической природой электронов.

DOI: 10.31857/S0040364424010025

ВВЕДЕНИЕ

Изучение локализованных состояний электронов в газообразном гелии началось с экспериментов [1–3] по измерению скорости дрейфа электронов. Использовался метод измерения времени полета. Зависимость подвижности электронов μ_e от температуры и давления газа была необычной. При низком давлении p (или малой плотности N) газа μ_e имеет значения порядка 1000 см^2/(В с), что соответствует подвижности свободных электронов. При высоком давлении – значения μ_e порядка 0.1 см^2/(В с) и близки к низкой подвижности электронов в жидком гелии. Резкое изменение подвижности происходит в узкой области изменения давления газа. При увеличении давления всего в два раза значения подвижности уменьшаются на четыре порядка величины (рис. 1). Сначала такое резкое изменение $\mu_e(p, N)$ наблюдалось в гелии на линии насыщения [4]. Позже такое изменение подвижности было обнаружено и в сверхкритическом гелии [5] при температурах выше критической T_{cr} = 5.2 K.

Настоящая работа посвящена другому методу определения подвижности электронов в газообразном гелии высокой плотности — измерению тока коронного разряда, которое возможно в такой среде при очень остром катоде. Отрицательный коронный

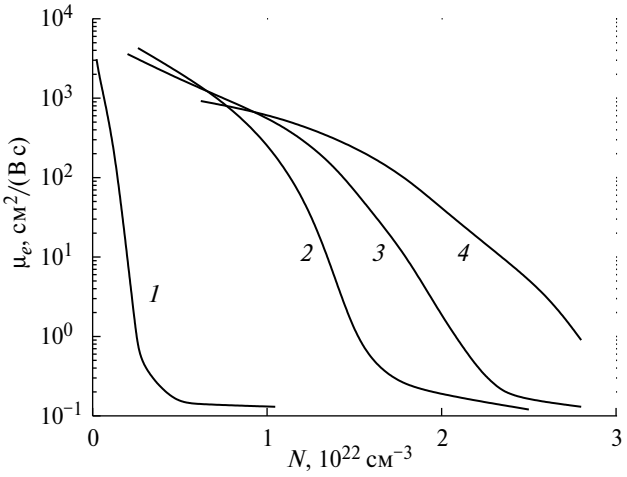

Рис. 1. Подвижность электронов в гелии в зависимости от плотности газа на линии насыщения [4] (*1*) и при температурах [5]: *2* – 4.2 K, *3* – 7.3, *4* – 11.6.

разряд – это простой метод введения электронов в плотную среду, такую как жидкий гелий. Разряд был создан вблизи острого катода с микронным радиусом и напряжением в кВ. Был измерен электрический ток разряда, а его зависимость от напряжения дала информацию о свойствах носителей заряда, создаваемых короной.

Анализ коронных разрядов в газообразном, жидком и твердом диэлектриках проводился в течение последних десятилетий (см. обзор работ в [6, 7]). Явления проводимости (образование и перенос зарядов, процессы предварительного разрушения и пробоя) зависят от плотности среды, ее природы и конфигурации электродов. Коронный разряд возникает вблизи острого электрода, который находится под высоким напряжением и концентрирует электрическое поле вблизи него. В данных экспериментах для запуска коронного разряда используются острые вольфрамовые катоды с радиусом кривизны наконечника в несколько микрометров. Если напряжение V на электроде превышает напряжение зажигания короны V_0, в окружающей среде вблизи острого электрода возможна ударная ионизация атомов среды быстрыми электронами, ускоренными этим полем. Электроны, созданные вблизи катода, движутся к аноду под действием приложенного электрического поля. В среде возникает коронный разряд, и через межэлектродный промежуток протекает электрический ток.

Электроны создаются в среде, в области ионизации с высокой напряженностью поля, вблизи острого катода. Затем при движении к аноду электроны попадают в пространство со слабым электрическим полем (область дрейфа). Ионизация здесь невозможна. Неоднородное электрическое поле коронного разряда вдоль его оси $E(r)$ создается заряженными электродами и пространственным зарядом электронов разряда. Оно зависит от их концентрации $n_e(r)$ в соответствии с уравнением Пуассона

$$\varepsilon \mathrm{div}\mathbf{E} = 4\pi e n(r). \qquad (1)$$

Здесь ε – диэлектрическая проницаемость среды, e – заряд электрона. В случае стационарного потока электронов плотность электрического тока сохраняется (уравнение непрерывности плотности тока)

$$\mathrm{div}\,\mathbf{j} = 0, \quad \mathbf{j}(\mathbf{r}) = e\mu_e \mathbf{E}(\mathbf{r}) n_e(\mathbf{r}). \qquad (2)$$

Уравнения (1) и (2) решены в [8] для случая $\mu_e = \mathrm{const}$. Были рассчитаны плотность пространственного заряда $n_e(r)$, напряженность поля $E(r)$ и ток разряда $I(V)$ в зависимости от напряжения V на остром электроде. Было показано, что электрический ток разряда пропорционален квадрату напряжения и подвижности электронов μ_e в области дрейфа [9]:

$$I = 0.32\frac{\varepsilon\mu_e}{d}V^2. \qquad (3)$$

Здесь d – расстояние между электродами. Для получения уравнения (3) предполагалось, что распределение плотности тока по плоскому аноду равномерно внутри пятна тока площадью πd^2. На самом деле оно определяется законом Варбурга [9], и с учетом этого получается численный коэффициент 0.32 в правой части уравнения (3). Уравнение (3) и измеренная зависимость тока от напряжения $I(V)$ были использованы в [10] для определения подвижности электронов μ_e.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Измерения тока коронного разряда в криогенном гелии были начаты в нормальной (не сверхтекучей) жидкости He (LHe) при температуре $T = 4.2$ K (рис. 2) с последующим повышением [11, 12]. Использовался вольфрамовый игольчатый катод с радиусом острия 2.5 мкм. Расстояние от иглы катода до плоского анода находилось в диапазоне 0.65–0.8 см. Исходным материалом среды разряда служил газообразный гелий (N60, чистота – 99.9999%), в котором концентрация примесей составляла около 0.1 промилле кислорода. После дополнительной очистки газ сжижается в камере, помещенной в криостат. Температура в экспериментальной ячейке измерялась с помощью германиевого резистора. Специальное оборудование позволяло повышать температуру и поддерживать ее постоянной во время измерений при различных давлениях газа. Ячейка выдерживала давление до 11 МПа. К острому вольфрамовому электроду было подано отрицательное постоянное напряжение (до

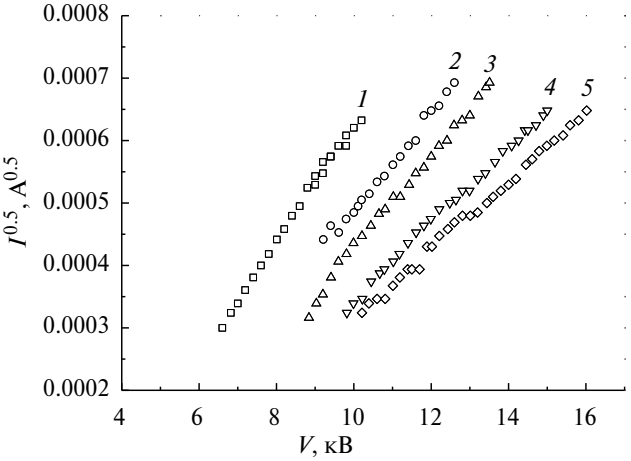

Рис. 2. Зависимость тока от напряжения как $I^{1/2}(V)$ коронного разряда в жидком гелии при 4.2 K, радиусе острия катода 2.5 мкм и давлениях: *1* – 1 МПа, *2* – 2, *3* – 4, *4* – 8, *5* – 10.

20 кВ). К плоскому аноду был подключен осциллограф Tektronix TDS540 или измеритель тока Keithley 610C.

Коронный разряд (ионизация вещества) происходит вблизи острия катода под действием сильного электрического поля. Эта область разряда имеет размер меньше, чем межэлектродное пространство (область дрейфа), и расположена вблизи острия (область ионизации с большим электрическим полем). Электроны, созданные в области ионизации, движутся через область дрейфа к плоскому аноду. Электрический ток короны создается электронным дрейфом. В экспериментах был измерен ток разряда, ограниченный пространственным зарядом короны при различных температурах и давлениях гелия. Этот режим характеризуется электрическим током разряда, квадратично зависящим от приложенного напряжения V (3), или линейной зависимостью $I^{1/2}(V)$ с наклоном соответствующего графика, пропорциональным подвижности электронов μ_e. Таким образом, подвижность электронов может быть извлечена из экспериментальных данных по электрическому току отрицательной короны.

Значения тока, измеренные в коронном разряде в жидком гелии при температуре 4.2 K и различных давлениях p, показаны в зависимости от напряжения на рис. 2 в виде линейной зависимости $I^{1/2}(V)$. Наклон этих прямых линий к оси абсцисс пропорционален подвижности электронов μ_e(4.2 K, p) в жидком гелии. Линии $I^{1/2}(V)$ на рис. 2 имеют почти один и тот же наклон. Это означает небольшое изменение подвижности электронов с давлением в жидком гелии при температуре 4.2 K.

Слабое изменение подвижности электронов в жидком Не нарушается при коронном разряде в газообразном гелии при температурах выше критической. Измеренные токи коронного разряда в гелии при различных температурах и фиксированном давлении 0.4 МПа представлены на рис. 3 в виде линейной зависимости $I^{1/2}(V)$. Наклон этих прямых линий к оси абсцисс пропорционален подвижности электронов. Он заметно меняется при переходе от температуры 7 к 10 K. Это указывает на большое изменение подвижности электронов.

Подвижность электронов в сверхкритическом гелии при температурах от 4.2 K (жидкий Не) до 10 K (сверхкритический газ гелий) и давлении 0.4 МПа, полученная в результате измерений тока короны и рассчитанная по (3), показана на рис. 4. Подвижность электронов увеличивается при этом в пять раз, и это нельзя объяснить уменьшением плотности гелия.

Подвижность электронов, рассчитанная по формуле (3) с использованием измеренного тока коронного разряда при 7 и 10 K и различных давлениях, показана на рис. 5. При фиксированной температуре подвижность электронов зависит от давления газа, в котором реализуется разряд. Обе зависимости $I(p)$ и $\mu_e(p)$ необычны и имеют области сильных изменений в узком диапазоне давления 0.1–0.4 МПа. При низком давлении подвижность составляет 100 см^2/(В с), что близко к кинетической подвижности свободных электронов в газе [13]. При увеличении давления подвижность уменьшается на несколько порядков. При высоком давлении подвижность электронов очень мала, и ее величина близка к низкой подвижности электронов в жидком Не. Этот переход из режима с высокой подвижностью электронов в состояние разряда с низкой подвижностью происходит при разных давлениях для разных температур. Чем выше температура газа, тем при более высоком давлении происходит переход. Зависимости

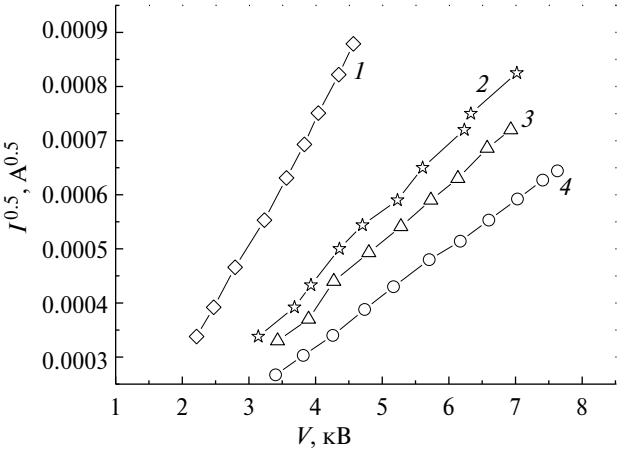

Рис. 3. Линейная зависимость $I^{1/2}(V)$, полученная в экспериментах для короны в закритическом гелии при давлении p = 0.4 МПа и различных температурах: *1* – 10 K, *2* – 7, *3* – 6, *4* – 4.2.

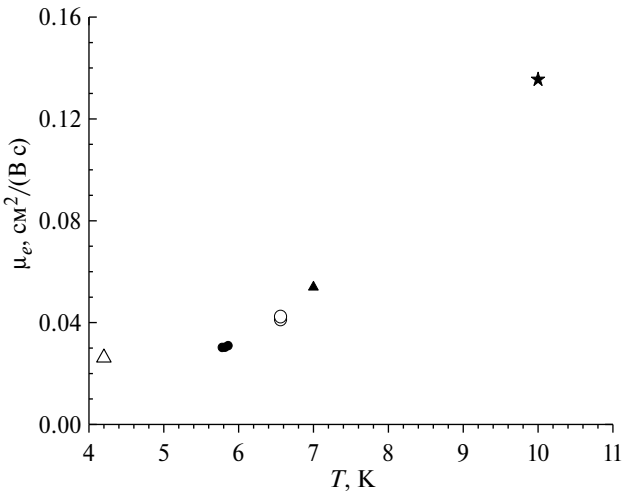

Рис. 4. Подвижность электронов $\mu_e(T)$ при p = 0.4 МПа, рассчитанная по вольт-амперной характеристике короны (рис. 3), в зависимости от температуры сверхкритического гелия.

переходов $\mu_e(p, T)$ для различных температур явно схожи и смещены вдоль оси давления. Для этого перехода существует параметр подобия.

Резкое изменение электрического тока коронного разряда и подвижности электронов в гелии происходит при плотности газа 2.8×10^{21} см$^{-3}$. На рис. 6 представлены зависимости плотности гелия от давления при температурах 7 и 10 K. Стрелками показан диапазон давлений гелия (0.2–0.36 МПа), при которых происходит переход между разрядами с высоким и низким токами. На изотермах он соответствует примерно одному значению плотности газа для обеих температур. В гелии меньшей плотности реализуется сильноточный разряд с электронами, обладающими высокой подвижностью. В гелии более высокой плотности реализуется слаботочный разряд с электронами, имеющими низкую подвижность. Граница между этими режимами лежит при плотности газа 2.8×10^{21} см$^{-3}$.

Если температура гелия низкая, а его плотность высокая, электроны, дрейфующие от катода к аноду, обладают низкой подвижностью, сравнимой с подвижностью ионов. Уменьшение плотности за счет повышения температуры либо за счет снижения давления переводит разряд в состояние с бóльшим током и высокой подвижностью электронов. Здесь можно говорить о двух режимах разряда в гелии, разделенных узкой переходной областью, где часть электронов обладает высокой подвижностью, а часть – низкой.

ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Впервые низкая скорость дрейфа электронов в жидком гелии наблюдалась в [4]. Результаты экспериментов подтверждают это [10–12]. Ток коронного разряда в жидком гелии мал (~10^{-7} А), и электроны движутся медленно в области дрейфа. Подвижность электронов при 4.2 K и различных давлениях, рассчитанная при известном токе разряда по уравнению (3), менее 0.1 см^2/(В с) – на три порядка ниже значения 260 см^2/(В с), предсказанного кинетической теорией для свободных электронов, движущихся в веществе той же плотности $N = 2.2 \times 10^{22}$ см$^{-3}$.

Объяснение малой подвижности электронов в жидком гелии было дано в рамках “пузырьковой модели” [4, 5]. В результате обменного отталкивания электрона и атомов ^{4}He вокруг электрона образуется пустая область в виде электронного пузырька. Электроны локализуются в этих “микропузырьках”. Они движутся через жидкость вместе с пузырьками с малой скоростью. Движение пузырьков тормозится вязкостью жидкости. Скорость дрейфа электронных микропузырьков определяется в гидродинамическом режиме по закону Стокса. Их подвижность очень мала по сравнению с кинетической подвижностью свободных электронов. Радиус пузырьков $R_b(p, T)$ и вязкость $\eta(T)$ жидкости определяют подвижность комплекса “электрон внутри пузырька”. Его

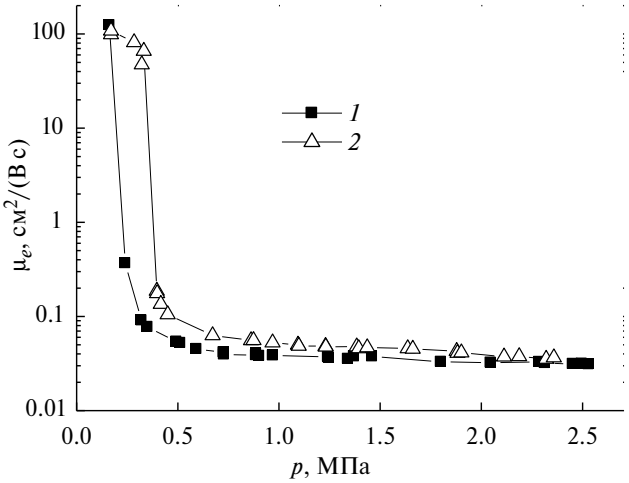

Рис. 5. Подвижность электронов в гелии в зависимости от давления при сверхкритических температурах: *1* – 7 K, *2* – 10.

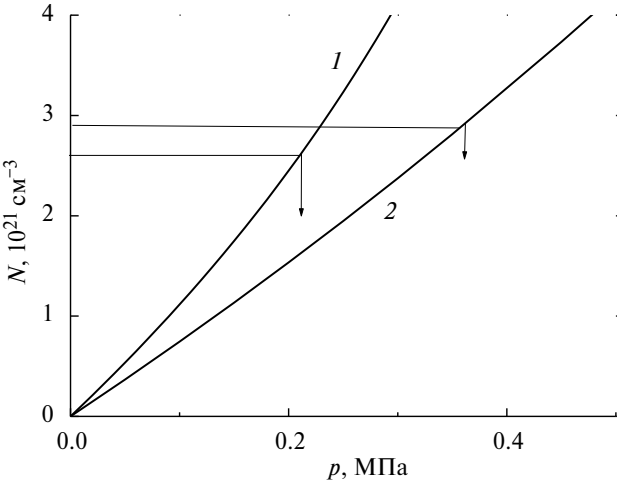

Рис. 6. Закритические изотермы гелия 7 (*1*) и 10 K (*2*) [14], переход между режимами разряда с высокой и низкой подвижностью электронов происходит при 0.2 и 0.36 МПа соответственно.

подвижность зависит от давления p и температуры T посредством поверхностного натяжения $\sigma(p)$ и вязкости жидкости $\eta(p)$. Поэтому повышение давления в жидком гелии приводит к незначительному снижению подвижности на 30%.

Позже зависимость скорости дрейфа электронов от плотности сверхкритического газа гелия была изучена в более широком диапазоне температур (до 160 K) и плотностей (до 6.6×10^{21} см$^{-3}$) [3, 13]. Эти времяпролетные эксперименты показали значительное снижение скорости дрейфа с увеличением плотности.

Такое поведение электронов в газообразном гелии описывается в рамках модели, в которой электрон захватывается областью газа с пониженной плотностью. Электрон отталкивается от атома гелия.

Поэтому электроны, инжектированные из вакуума в гелий с плотностью N, преодолевают потенциальный барьер $V_0(N) = 2\neq\hbar^2 NL/m$, где $L = 6.4 \times \times 10^{-9}$ см – длина рассеяния электрона на атоме He [13], m – масса электрона, $\hbar$ – постоянная Планка. Локальная область в гелии (флуктуация) с меньшей плотностью газа является потенциальной ямой для электрона, в которой возможно его стационарное (локализованное) состояние. Если глубина потенциальной ямы порядка V_0, то стационарное состояние электрона в ней возможно, если диаметр потенциальной ямы (флуктуации плотности гелия) $0.44(NL)^{-0.5} \approx \approx 10^{-7}$ см. Попав в такую ловушку, электрон движется вместе с ней, обладая подвижностью меньшей, чем подвижность "свободного" электрона. Локализация электронов флуктуациями плотности гелия происходит в дрейфовой области разряда. Это объясняет резкое уменьшение тока коронного разряда при увеличении плотности гелия.

Теория этого явления оперирует понятием "вероятности" электрона находиться в свободном или локализованном состояниях. Оно используется при рассмотрении чисел свободных $n_{\rm fr}$ и локализованных $n_{\rm loc}(p, T)$ электронов, пропорциональных вероятностям этих состояний. Электроны свободны при давлении газа $p < 0.2$ МПа и температуре 7 K и локализованы при более высоких давлениях. Число локализованных электронов резко увеличивается с ростом давления. В газе плотностью $N_{\rm loc} \approx 2.8 \times \times 10^{21}$ см$^{-3}$ существуют как локализованные, так и свободные электроны. Измеренная подвижность имеет значение между высокой подвижностью $\mu_{\rm fr} \approx 100$ см^2/(В с) свободных электронов и низкой подвижностью $\mu_{\rm loc} = 0.04$ см^2/(В с) локализованных электронов. Ток коронного разряда

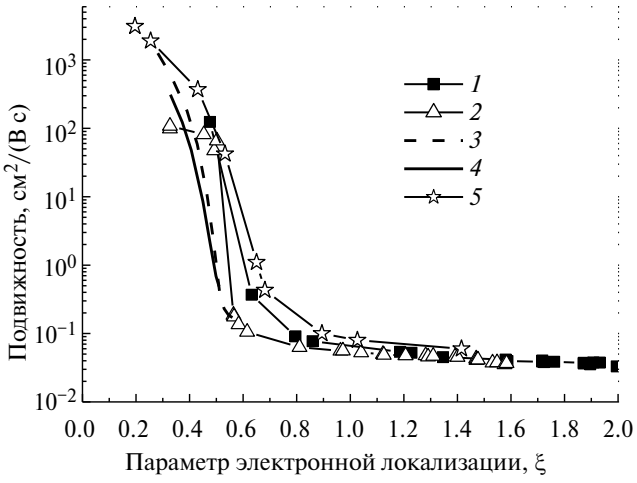

Рис. 7. Закон подобия для перехода от состояния с высокой подвижностью электронов к состоянию с низкой подвижностью по модели [20]: *1* – 7 K; *2* – 10, данная работа; *3* – 7.3 K; *4* – 11.6 [3]; *5* – насыщенный пар [2].

определяется средней подвижностью всех (локализованных и свободных) электронов, которая вычисляется по формуле

$$\mu(N) = \frac{\mu_{\rm fr} n_{\rm fr} + \mu_{\rm loc} n_{\rm loc}(N,\ p)}{n_{\rm fr} + n_{\rm loc}(N,\ p)} \approx$$

$$\approx \frac{\mu_{\rm fr} + \mu_{\rm loc}\, n_{\rm loc}(N,\ p)/n_{\rm fr}}{1 + n_{\rm loc}(N,\ p)/n_{\rm fr}}.$$

Здесь $n_{\rm fr}$ и $n_{\rm loc}(p, T)$ – плотности свободных и локализованных электронов, а значение $n_{\rm loc}(p, T)$ резко возрастает с увеличением плотности газа. Все электроны локализованы при $p > 0.2$ МПа и $T = 7$ K.

Явление локализации электронов в плотном газе является результатом их квантово-механической природы. Переход между локализованными и нелокализованными состояниями электронов происходит, когда квантово-механические свойства электрона учитываются при расчете плотности электронных состояний с энергиями, бóльшими и меньшими, чем V_0 [15, 16]. Энергия локализованных электронов ниже V_0. Плотность электронных состояний в энергетическом пространстве не ограничивается только классически разрешенным спектром с энергией электронов больше V_0, но также включает состояния с энергиями ниже V_0. Плотность этих состояний была получена с помощью метода оптимальных флуктуаций [17–19]. В [20] показано, что отношение $n_{\rm loc}(p, T)/n_{\rm fr}$ растет экспоненциально при $N > N_{\rm loc}$ в зависимости от безразмерного параметра

$$\xi = \lambda_e^{\,0.8} L N^{0.6}.$$

Параметрами этой модели являются длина волны электрона $\lambda_e = \hbar/(2mT)^{0.5}$, плотность газа N и параметр взаимодействия электрона с атомом He – длина рассеяния L электрона на атоме He.

Подвижность электронов в области ее сильного изменения является универсальной функцией параметра ξ. Переход между режимами разряда с разными величинами подвижности электронов происходит для разных плотностей газа и разных температур при одном значении этого параметра. Экспериментальные значения подвижности электронов в области ее сильного изменения для различных N и T, построенные в зависимости от параметра ξ, расположены на универсальном графике, как показано на рис. 7. Там же приведены данные, полученные в [2, 3].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В экспериментах коронный разряд зажигался между очень острым катодом и плоским анодом в плотном криогенном гелии при температурах выше критической 5.2 K и при разных давлениях выполнялись измерения тока разряда. Разряд зажигался вследствие ионизации электрическим

полем атомов гелия вблизи острого катода. Ток разряда переносился электронами, дрейфующими к аноду через газ, и определялась их подвижность в плотном газе.

В газе малого давления ток разряда был велик и соответствовал току, создаваемому электронами, движущимися через газ и сталкивающимися с атомами. Это – режим разряда при дрейфе свободных электронов через газ.

При большем давлении газа ток разряда уменьшался на несколько порядков. Такому режиму разряда соответствует движение через газ зарядов с очень малой подвижностью. Низкая подвижность электронов характерна для жидкого гелия. Это объясняется образованием микропузырька вокруг электрона – пустой полости в жидкости с электроном в центре. Электрический ток – движение через жидкость комплексов "электрон в пузырьке". Такая локализация электронов во флуктуациях с меньшей плотностью газа возможна и в плотном газообразном гелии. Подвижность электронов, локализованных в микрообластях, заполненных газом с малой плотностью, мала и близка к подвижности электронов в жидком гелии. Об этом свидетельствуют результаты экспериментов в однородном электрическом поле и данные измерения тока коронного разряда.

Удалось создать разряд и измерить его ток в газе с давлением, граничным между этими режимами. В узком диапазоне изменения давления газа регистрировались токи разряда, которые отличались друг от друга на порядки. В случае, когда температура газа была выше, этот переход между режимами разряда происходил при более высоком давлении (рис. 5). При этом плотность газа, при котором происходит этот переход, одна и та же.

Состояния как свободных, так и локализованных электронов возможны в гелии этой плотности. При движении к аноду через такой газ электрон пребывает в этих состояниях с вероятностью, доступной вычислениям. Их результатом [20] является нахождение закона подобия по параметру $\xi = \lambda_e^{0.8} LN^{0.6}$, описывающему переход между режимами разряда в гелии с различными температурами и при различных давлениях.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 08-08-00694 и № 09-08-01063).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Храпак А.Г., Якубов И.Т.* Электроны в плотных газах и плазме. М.: Наука, 1981. 282 с.
2. *Атражев В.М., Якубов И.Т.* Электроны в плотных газах и жидкостях // ТВТ. 1980. Т. 18. № 6. С. 1292.
3. *Levine J., Sanders T.M.* Anomalous Electron Mobility and Complex Negative Ion Formation in Low-temperature Helium Vapor // Phys. Rev. Lett. 1962. V. 8. № 4. P. 159.
4. *Levine J., Sanders T.M.* Mobility of Electrons in Low-temperature Helium Gas // Phys. Rev. 1967. V. 154. № 1. P. 138.
5. *Harrison H.R., Sander L.M., Springett B.E.* Electron Mobility and Localization in Dense ^{4}He Gas // J. Phys. B. 1973. V. 6. № 4. P. 908.
6. *Sigmond R.S.* The Unipolar Corona Space Charge Flow Problem // J. Electrostatics. 1986. V. 18. P. 249.
7. *Goldman M., Goldman A., Sigmond R.S.* The Corona Discharge, Its Properties and Specific Uses // Pure and Applied Chemistry. 1985. V. 57. № 9. P. 1353.
8. *Coelho R., Debeau J.* Properties of the Tip-plane Configuration // J. Phys. D. 1971. V. 4. P. 1266.
9. *Sigmond R.S.* Simple Approximate Treatment of Unipolar Space Charge Dominated Coronas: The Warburg Law and the Saturation Current // J. Appl. Phys. 1982. V. 53. P. 891.
10. *Bonifaci N., Denat A.* Negative Corona Discharge in Supercritical Helium // Conf. Records of the 12th Int. Conf. on Conduction and Breakdown in Diel. Liquids. Rome, July 15–19, 1996. P. 37.
11. *Li Z., Bonifaci N., Denat A., Atrazhev V.M.* Negative Corona Discharge in Liquid Helium // IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. 2006. V. 13. № 3. P. 624.
12. *Li Z., Bonifaci N., Denat A., Atrazhev V.M., Atrazhev V.V.* Ionization and Charge Transport Phenomena in Liquid Helium Induced by Corona Discharge // J. Electrostatics. 2008. V. 66. № 5–6. P. 263.
13. *Borghesani A.F.* Accurate Electron Drift Mobility Measurements in Moderately Dense Helium Gas at Several Temperatures // Atoms. 2021. № 9. P. 52.
14. NIST. http://webbook.nist.gov/chemistry/
15. *Jahnke J., Silver M., Hermandes J.P.* Mobility of Excess Electrons and O_2^- Formation in Dense Fluid Helium // Phys. Rev. B. 1975. V. 12. № 8. P. 3420.
16. *Fermi E.* Sopra lo spostamento per pressione delle rigne elevate delle rigne elevate delle serie specttrali // Nuovo Cim. 1934. V. 11. № 2. P. 157.
17. *Hernandez J.P.* Self-trapped States of an Electron in a Structurally Disorder Systems // Phys. Rev. A. 1973. V. 7. № 5. P. 1755.
18. *Храпак А.Г., Якубов И.Т.* К теории пузырькового состояния электрона в плотных газах // ТВТ. 1973. Т. 11. № 5. С. 1115.
19. *Лифшиц И.М.* Теория флуктуационных уровней в неупорядоченных системах // ЖЭТФ. 1968. Т. 53. № 2. С. 743.
20. *Atrazhev V.M.* Delocalization of Electrons in Dense Helium Gas by External Electric Field // J. Phys. D: Appl. Phys. 1984. V. 17. № 5. P. 889.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 18–23

УДК 544.032.65, 53.03, 53.043

МЕХАНИЗМ ЛАЗЕРНО-ИНДУЦИРОВАННОГО ШИРОКОПОЛОСНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ПОЛИКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ГРАФИТА

© 2024 г. С. Ш. Рехвиашвили[1, *], Д. С. Гаев[2], З. Ч. Маргушев[3]

[1]Институт прикладной математики и автоматизации КБНЦ РАН, Нальчик, Россия

[2]Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х.М. Бербекова, Нальчик, Россия

[3]Институт информатики и проблем регионального управления КБНЦ РАН, Нальчик, Россия

**E-mail: rsergo@mail.ru*

Поступила в редакцию 02.02.2023 г.
После доработки 29.06.2023 г.
Принята к публикации 03.10.2023 г.

Под воздействием ИК лазерного излучения на поликристаллический графит в видимой области спектра появляется вторичное широкополосное излучение. С целью выяснения природы этого явления проведено сравнение с излучением при резистивном нагреве и дуговом разряде. Сделан вывод о том, что широкополосное излучение поликристаллического графита можно отнести к антистоксовой люминесценции, которая возникает за счет вынужденного комбинационного рассеяния фотонов при высоких температурах. Предложена и реализована имитационная модель, в рамках которой спектр излучения качественно воспроизводится последовательным включением апериодических звеньев второго порядка.

DOI: 10.31857/S0040364424010036

ВВЕДЕНИЕ

Широкополосное (“белое”) излучение возникает в видимой части спектра у некоторых материалов с диэлектрическими и полупроводниковыми свойствами в результате воздействия на них ИК лазерного излучения. Максимум спектра чаще всего приходится на интервал длин волн 590–650 нм. В ряде работ утверждается, что данное излучение представляет собой тепловое излучение, аналогичное по своим свойствам излучению абсолютно черного тела, и описывается законом Планка [1–5]. В данном случае рассчитываемая температура излучения, как правило, превышает температуру плавления материала. В других работах тепловое равновесное излучение частично или даже полностью исключается из числа возможных причин появления широкополосного излучения [6–10]. При этом обсуждается роль многофотонной ионизации, электронных переходов и люминесценции атомов, генерации свободных носителей заряда, плазменных колебаний, фононного спектра и др. В целом общепринятое объяснение широкополосного излучения до сих пор отсутствует.

В работах [11–14] предприняты попытки не только качественно, но и количественно описать физику широкополосного излучения. В [11, 12] рассмотрена феноменологическая модель, в которой излучение определяется двумя факторами: поляризацией материала и размерной зависимостью теплового излучения. Обращено внимание на то, что высокоинтенсивное свечение может быть связано не с реальной высокой температурой, а со специфическими диэлектрическими свойствами материала и размерным эффектом для газа фотонов. Спектры широкополосного излучения углеродных материалов изучались в [13, 14]. Выявлены следующие свойства: 1) наблюдаются широкополосные спектры, которые помимо основного пика содержат эквидистантно расположенные гармоники; 2) положение максимума вторичного излучения в спектре и его ширина почти не зависят от интенсивности возбуждающего лазерного ИК-излучения; 3) имеет место красный сдвиг спектров излучения дисперсного углерода относительно спектра излучения массивного образца; 4) в пределах точности измерений интегральная добротность, равная отношению собственной частоты колебаний системы к ширине испускаемой спектральной полосы, для всех углеродных материалов остается неизменной; 5) спектральные свойства широкополосного излучения в общих чертах схожи между собой для различных материалов (в том числе для фуллеренов, графена, кремния, германия и др. [15–18]). Перечисленные свойства позволяют с высокой степенью уверенности сделать вывод

о высокотемпературной люминесценции углеродных материалов под действием лазерного ИК-излучения. В итоге в [13, 14] сформулировано предположение о комбинационном рассеянии фотонов как о механизме люминесценции, суть которого заключается в следующем. Сначала поглощается первичный фотон и образуется промежуточный экситон, который поглощает фонон и переходит в более высокое квантовое состояние. Затем происходит рекомбинация электрона и дырки с испусканием фотона, частота которого выше частоты первичного фотона.

Методологически наиболее оправданный способ установить природу ИК лазерно-индуцированного широкополосного излучения заключается в сравнении этого излучения с другими видами излучения в единых экспериментальных условиях и с использованием одних и тех же материалов. В настоящей работе для поликристаллического графита проводится сравнение ИК лазерно-индуцированного широкополосного излучения с излучениями, которые возникают при резистивном нагреве и дуговом разряде. На данной основе формулируется описание физического механизма широкополосного излучения поликристаллического графита.

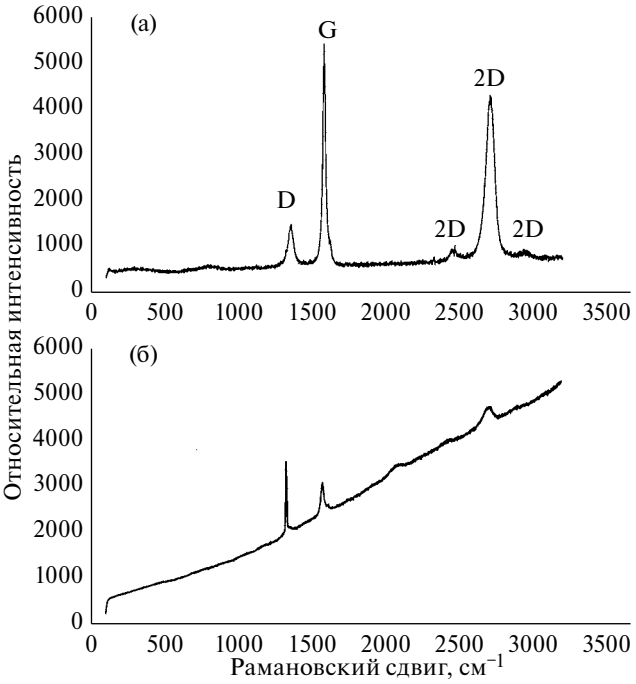

Рис. 1. Спектры комбинационного рассеяния поликристаллического графита (а) и искусственного алмаза (б).

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Все эксперименты проводились в воздушной атмосфере. В качестве исследуемого материала использовались графитированные электроды марки ЭГСП-1 цилиндрической формы. Параметры электродов: поликристаллический графит, удельное электрическое сопротивление – 5.5×10^{-6} Ом м, плотность – 1.65 г/см^3. Измерялись спектры комбинационного рассеяния с помощью конфокального рамановского микроскопа inVia Raman Microscope с длиной волны возбуждающего излучения 514.5 нм. На рис. 1 представлены спектры для графитированного электрода и искусственного алмаза. В спектре графитированного электрода содержатся три линии D, G и 2D, но наиболее интенсивная линия G соответствует графиту. Для алмаза, как и должно быть, наиболее интенсивной является линия D.

В качестве источника ИК-излучения использовался фемтосекундный лазерный комплекс Fusion, работающий в непрерывном режиме генерации, с длиной волны 800 нм, диаметром пучка 2 мм. Выходная мощность сигнала контролировалась измерителем мощности излучения S142C и составляла 0.3 Вт. Лазерный пучок фокусировался на исследуемый образец с помощью асферической линзы Thorlabs C240TME-B (фокусное расстояние – 8 мм, числовая апертура $NA = 0.5$, диаметр фокального пятна для длины волны 800 нм приблизительно равен 4 мкм). В результате интенсивность излучения в фокальном пятне составляла 2.4 МВт/см^2. Спектры рассеянного от образцов излучения измерялись под фиксированным острым углом 30°–40° относительно направления падающего излучения.

Для резистивного нагрева и поддержания дугового разряда использовался регулируемый автотрансформатор (напряжение и ток до 25 В и 8 А). Расстояние между электродами при дуговом разряде составляло 100–200 мкм. Резистивный нагрев проводился при различных мощностях тепловыделения на образце вплоть до предельной температуры перегорания электродов.

Спектры рассеянного излучения регистрировались спектрометром HR4000 с волоконным входом в режиме “High-Speed Acquisition”, при котором непрерывно снимается набор спектров, время одного сканирования – 20 мс. Осуществлялось сглаживание всех спектров по распределению Гаусса. Параметр, определяющий ширину окна сглаживания, равнялся пяти. Полученные результаты приведены на рис. 2.

ИНТЕРПРЕТАЦИЯ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Резистивный нагрев поликристаллического графита сопровождается виновским смещением спектра (полосы *3–5* на рис. 2), что свидетельствует о тепловом механизме этого излучения. Лазерно-индуцированное широкополосное излучение

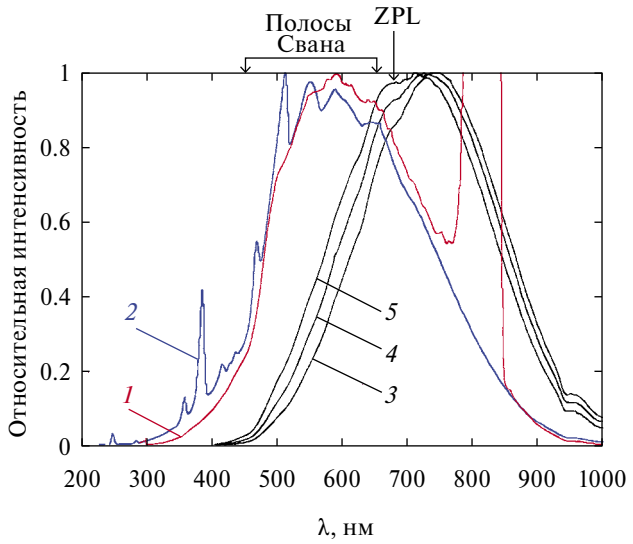

Рис. 2. Спектры излучения поликристаллического графита: *1* – лазерно-индуцированное излучение, *2* – излучение при дуговом разряде, *3–5* – излучение в результате резистивного нагрева при различных температурах.

(спектр *1* на рис. 2) обладает свойствами люминесценции [13, 14]: изменение интенсивности возбуждающего лазерного воздействия в пределах трех порядков величины не влияет на положение спектра вторичного излучения, центр которого приходится на ~590 нм. Спектр излучения при электродуговом разряде (спектр *2* на рис. 2) является типичным для углеродной плазмы с интенсивными полосами Свана C_2 и CI [19–21].

На рис. 2 спектры *1* и *2* имеют общие характерные особенности, поэтому возникает вопрос об их взаимосвязи. В случае ИК лазерного воздействия в графите происходит бестоковое возбуждение экситонов [22], и вторичное широкополосное излучение, по-видимому, создается вследствие экситон-фононного взаимодействия. В антистоксовом процессе экситон поглощает фонон и рекомбинирует, испуская рассеянный фотон. Минимальная энергия рассеянного фотона, таким образом, оказывается выше экситонной ширины запрещенной зоны: $E = E_{gx} + \hbar\omega_{LO}$, где E_{gx} – экситонная ширина запрещенной зоны, ω_{LO} – частота оптического фотона. При дуговом разряде через промежуток между электродами протекает электрический ток. Напряженность электрического поля в экспериментах ~10^5 В/м. В данном случае электроны уже способны покидать материал, преодолевая потенциальный барьер, высота которого определяется работой выхода электрона (для графита 4.7 эВ) и силой электростатического изображения. В результате в дуговом промежутке формируется подвижная плазма, состоящая из электронов, ионов углерода и заряженных частиц воздуха. В качестве аналогии для описанных процессов в некотором смысле можно привести внутренний и внешний фотоэффекты в полупроводнике.

Вывод о конструктивной роли фононов для широкополосного излучения следует из экспериментально установленных фактов. Во-первых, увеличение температуры при резистивном нагреве приводит не только к виновскому смещению, но и к появлению бесфононной линии ZPL (Zero Phonon Line), которая проявляется в виде дополнительной устойчивой гармоники с длиной волны 681 нм (1.82 эВ), см. спектры *3–5* на рис. 2. Аналогичная линия встречается в спектрах фотолюминесценции алмазов [23, 24]. Интенсивное испарение углерода и поверхностная ионизация при этом, очевидно, исключены, но спектры по своей форме становятся похожими на спектры лазерно-индуцированного широкополосного излучения. Хорошо, однако, известно, что при увеличении тока и температуры электрон-фононное взаимодействие усиливается, что отражается и на спектрах излучения. Максимумы бесфононной линии и планковского распределения совпадают при температуре 3982°C. При такой температуре графит уже испаряется, что следует из данных работы [25]. Во-вторых, имеет место красный сдвиг спектров широкополосного излучения при переходе от массивной к мелкодисперсной форме образца [13, 14]. Величина сдвига ~50 нм равна расстоянию между двумя ближайшими гармониками. По мнению авторов, этот размерный эффект объясняется увеличением суммарной свободной поверхности и “размягчением” фононных мод; при диспергировании материала число слабосвязанных атомов увеличивается, поэтому спектр атомных колебаний смещается в низкочастотную область. Подобный сдвиг регистрируется для 2D-полосы комбинационного рассеяния, что обусловлено изменением электрон-фононного взаимодействия [26–28]. В связи с этим следует обязательно отметить, что интенсивность широкополосного излучения углеродных материалов отчетливо коррелирует с амплитудой и шириной 2D-полосы. Так, наиболее яркое излучение наблюдается у графена [29–31], менее яркое излучение – у поликристаллического графита и технического углерода (carbon black) [13, 14], излучение очень слабое или практически отсутствует у искусственных алмазов и высоко ориентированного пиролитического графита. Согласно спектру на рис. 1а, использованные в настоящей работе графитированные электроды имеют свойства турбостратного графита. Сходство спектров комбинационного рассеяния для графена и турбостратного графита заключается прежде всего в наличии интенсивных двухфононных полос 2D, что позволяет сделать вывод о своеобразной двумерности турбостратного графита [28].

При высокой интенсивности лазерного излучения спектры генерируемого широкополосного излучения приобретают хорошо выраженную модовую структуру, которая раскрывается после превышения энергии лазерного воздействия некоторого значения (более 10 кВт/см^2). То же самое имеет место и для графена [29–31], для которого получаются спектры с отчетливыми фононными повторениями. Помимо этого, вторичное излучение может быть результативно зафиксировано только под вполне определенными углами к направлению распространения возбуждающего излучения. В общем контексте все это указывает на процесс вынужденного комбинационного рассеяния (ВКР) фотонов [32]. Достаточная для вынужденного излучения заселенность высоких экситонных уровней достигается в данном случае за счет фононной подсистемы. При подкачке с участием фононов возникают существенно неравновесные электроны и дырки, энергия которых намного больше экситонной ширины запрещенной зоны. Их излучательная рекомбинация создает условия для повторения процесса ВКР, т.е. генерация на одной линии служит подкачкой для генерации на второй линии и т.д.

Таким образом, вырисовывается следующая физическая картина. В результате непрерывного ИК лазерного облучения поликристаллического графита в течение короткого промежутка времени образуются экситонный газ и тепловой резервуар с газом фононов. Благодаря взаимодействию экситонов с тепловым резервуаром в системе устанавливается квазистационарное состояние. Поскольку число экситонов не сохраняется, то такое состояние достигается за счет поглощения лазерного излучения, рождения и уничтожения экситонов с испусканием рассеянных фотонов. Как следствие, в поликристаллическом графите экситоны в антистоксовом процессе распределяются по люминесцентным состояниям (центральная линия 2.1 эВ), которые, в частности, соответствуют полосам Свана.

В [33] предложена наглядная модель динамики электрон-фононного взаимодействия в виде апериодического звена второго порядка. Данный подход можно расширить применительно к лазерно-индуцированному широкополосному излучению. Авторами предлагается имитационная модель излучения, суть которой состоит в том, что с каждой отдельной спектральной линией увязывается апериодическое звено второго порядка с коэффициентом передачи k. Это звено описывается дифференциальным уравнением затухающих колебаний вида:

$$T^2x''(t) + 2\beta Tx'(t) + x(t) = 0,$$

где T – постоянная времени (период незатухающих колебаний, поделенный на 2π), $x(t)$ – смещение осциллятора, β – коэффициент демпфирования. Предполагается, что входной сигнал – лазерное излучение – действует одновременно на все звенья. Вместе с этим также учитывается, что звено, относящееся к сильной линии, служит подкачкой для звеньев, моделирующих соседние слабые линии. На рис. 3 показаны результаты

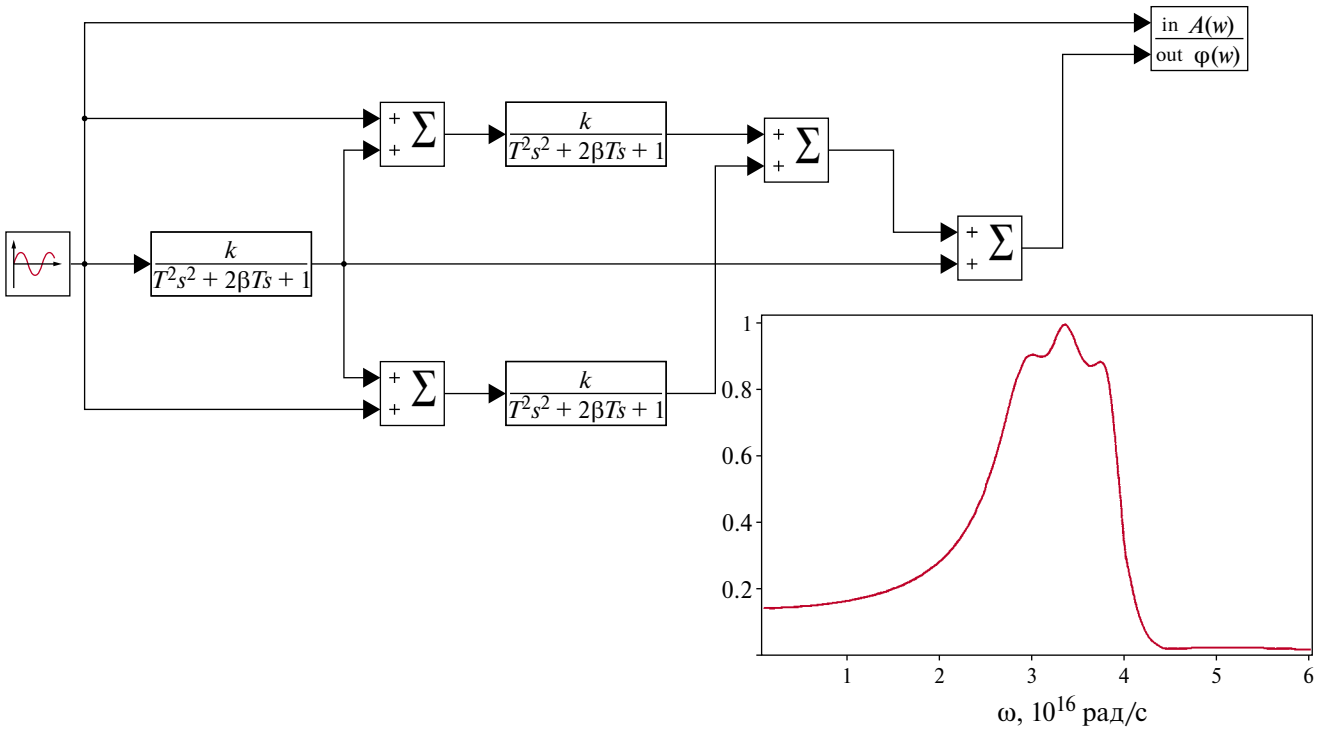

Рис. 3. Имитационная модель широкополосного излучения.

моделирования с применением среды динамического моделирования SimInTech [34]. Имитационная модель качественно воспроизводит наблюдаемую форму широкополосного спектра. Известно, что неравновесное излучение всегда носит синергетический характер [35, с. 264]. Поэтому не исключается, что посредством фононной подсистемы слабые линии могут влиять друг на друга и даже оказывать возвратное действие на сильные линии, т.е. элементарные осцилляторы-излучатели в системе могут быть связаны между собой более сложным образом. В рассмотренной имитационной модели это будет описываться обратными связями. Подробное изучение данного вопроса является предметом отдельного исследования.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе экспериментально исследовано ИК лазерно-индуцированное широкополосное излучение массивного поликристаллического графита. Проведено сравнение спектров этого излучения со спектрами излучения при резистивном нагреве и дуговом разряде. Поскольку характерная длина волны широкополосного излучения (~590 нм) меньше длины волны возбуждающего ИК-излучения (800 нм), то процесс является разновидностью антистоксовой люминесценции. Увеличение энергии рассеянного фотона происходит из-за экситон-фононного взаимодействия. Установлено, что при высоких температурах энергия экситонных возбуждений достигает значений, которые соответствуют люминесцентным атомным и молекулярным (вероятно, C_2, C_3, карбин) уровням углерода. Предложена и программно реализована имитационная модель широкополосного излучения, которая позволяет качественно описать наблюдаемые спектры.

Для изучения широкополосного излучения диэлектрических и полупроводниковых материалов представляется перспективной техника лазерно-искровой эмиссионной спектрометрии, которая в настоящее время активно развивается [36].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Redmond S.M., Rand S.C., Oliveira S.L.* Bistable Emission of a Black-body Radiator // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 85. P. 5517.
2. *Lui C.H, Mak K.F., Shan J., Heinz T.F.* Ultrafast Photoluminescence from Graphene // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 105. P. 127404.
3. *Qin F., Zhao H., Zheng Y., Cheng Z., Wang P., Zheng C., Yu Y., Zhang Z., Cao W.* Pressure-sensitive Blackbody Point Radiation Induced by Infrared Diode Laser Irradiation // Opt. Lett. 2011. V. 36. № 10. P. 1806.
4. *Хрущалина С.А., Рябочкина П.А., Кяшкин В.М., Ванецев А.С., Гайтко О.М., Табачкова Н.Ю.* Широкополосное излучение белого света в наноразмерных кристаллических порошках ортофосфатов иттрия, легированных ионами Yb^{3+} и Er^{3+}, при воздействии лазерным излучением с длиной волны 972 нм // Письма в ЖЭТФ. 2016. Т. 103. № 5. С. 342.
5. *Рябочкина П.А., Хрущалина С.А., Кяшкин В.М., Ванецев А.С., Гайтко О.М., Табачкова Н.Ю.* Особенности взаимодействия лазерного излучения ближнего ИК-диапазона с наноразмерными Yb-содержащими диэлектрическими частицами // Письма в ЖЭТФ. 2016. Т. 103. № 12. С. 836.
6. *Zhu Y., Xu W., Li C., Zhang H., Dong B., Xu L., Xu S., Song H.* Broad White Light and Infrared Emission Bands in YVO_4:Yb^{3+}, Ln^{3+} (Ln^{3+} = Er^{3+}, Tm^{3+}, or Ho^{3+}) // Appl. Phys. Express. 2012. V. 5. № 9. P. 092701.
7. *Marciniak L., Strek W., Hreniak D., Guyot Y.* Temperature of Broadband Anti-Stokes White Emission in $LiYbP_4O_{12}$: Er Nanocrystals // Appl. Phys. Lett. 2014. V. 105. P. 173113.
8. *Strek W., Tomala R., Marciniak L., Lukaszewicz M., Cichy B., Stefanski M., Hreniak D., Kedziorski A., Krosnicki M., Seijo L.* Broadband Anti-Stokes White Emission of Sr_2CeO_4 Nanocrystals Induced by Laser Irradiation // Phys. Chem. Chem. Phys. 2016. V. 18. P. 27921.
9. *Zhu S., Wang C., Li Z., Jiang W., Wang Y., Yin H., Wu L., Chen Z., Zhang G.* High-efficiency Broadband Anti-Stokes Emission from Yb^{3+}-doped Bulk Crystals // Opt. Lett. 2016. V. 41. № 10. P. 2141.
10. *Dornsiepen E., Dobener F., Chatterjee S., Dehnen S.* Controlling the White-Light Generation of $[(RSn)_4E_6]$: Effects of Substituent and Chalcogenide Variation // Angew. Chem. Int. Ed. 2019. V. 58. № 47. P. 17041.
11. *Рехвиашвили С.Ш.* Широкополосное излучение малых диэлектрических частиц // Опт. и спектр. 2020. Т. 128. № 9. С. 1323.
12. *Рехвиашвили С.Ш., Strek W.* Тепловое излучение графена // Опт. и спектр. 2021. Т. 129. № 10. С. 1301.
13. *Рехвиашвили С.Ш., Гаев Д.С., Маргушев З.Ч.* Антистоксова люминесценция в углеродных материалах // Опт. и спектр. 2021. Т. 129. № 12. С. 1589.
14. *Рехвиашвили С.Ш., Гаев Д.С., Маргушев З.Ч.* Широкополосное излучение поликристаллического графита // Квантовая электроника. 2022. Т. 52. № 4. С. 382.
15. *Feldmann J., Fischer R., Guss W., Gobel E.O., Schmitt-Rink S., Kratschmer W.* White Luminescence from Solid C60 // Europhys. Lett. 1992. V. 20. № 6. P. 553.
16. *Bayramov A.I., Mamedov N.T., Dzhafarov T.D., Aliyeva Y.N., Ahmadova Kh.N., Alizade E.H., Asadullayeva S.Q., Sadigov M.S., Ragimov Sh.Kh.* Photoluminescence and Optical Transitions in C_{60}

Fullerene Thin Films Deposited on Glass, Silicon and Porous Silicon // Thin Solid Films. 2019. V. 690. P. 137566.

17. *Canning J., Sceats M.G.* Spatial Distribution of 650-nm Luminescence in UV-processed Germanosilicate Preforms // Opt. Lett. 1994. V. 19. № 15. P. 1119.
18. *Olejniczak A., Tomala R., Zemojtel P., deAraujo Maia A.F., Bezkrovnyi O., Macalik B., Игнатенко О., Beben D., Strek W.* Структурные и оптические характеристики синтетических алмазов в нано-, микро- и миллиметровом масштабе // Опт. и спектр. 2022. Т. 130. № 1. С. 192.
19. *Li J., Kundrapu M., Shashurin A., Keidar M.* Emission Spectra Analysis of Arc Plasma for Synthesis of Carbon Nanostructures in Various Magnetic Conditions // J. Appl. Phys. 2012. V. 112. P. 024329.
20. *Vekselman V., Feurer M., Huang T., Stratton B., Raitses Y.* Complex Structure of the Carbon Arc Discharge for Synthesis of Nanotubes // Plasma Sources Sci. Technol. 2017. V. 26. P. 065019.
21. *Шавелкина М.Б., Амиров Р.Х., Кавыршин Д.И., Чиннов В.Ф.* Спектроскопическое исследование плазменной струи гелия с добавками углеводородов // ТВТ. 2020. Т. 58. № 3. С. 327.
22. *Yang L., Deslippe J., Park C.-H., Cohen M.L., Louie S.G.* Excitonic Effects on the Optical Response of Graphene and Bilayer Graphene // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 103. P. 186802.
23. *Osvet A., Palm V., Sildos I.* Spectral Hole Burning and Uniaxial Stress Study of Radiation-Induced Defects in Diamond // J. Appl. Phys. 1996. V. 79. P. 8290.
24. *Зиенко С.И., Слабковский Д.С.* Особенности фононного крыла люминесценции алмаза // Письма в ЖТФ. 2019. Т. 45. № 11. С. 9.
25. *Savvatimskiy A.I.* Measurements of the Melting Point of Graphite and the Properties of Liquid Carbon (A Review for 1963–2003) // Carbon. 2005. V. 43. № 6. P. 1115.
26. *Ferrari A.C.* Raman Spectroscopy of Graphene and Graphite: Disorder, Electron–Phonon Coupling, Doping and Nonadiabatic Effects // Solid State Commun. 2007. V. 143. P. 47.
27. *Saito R., Hofmann M., Dresselhaus G., Jorio A., Dresselhaus M.S.* Raman Spectroscopy of Graphene and Carbon Nanotubes // Adv. Phys. 2011. V. 60. № 3. P. 413.
28. *Зиатдинов А.М.* Спектроскопия комбинационного рассеяния наноразмерных сотовидных углеродных структур // Вестник ДВО РАН. 2020. № 6. С. 27.
29. *Strek W., Tomala R., Lukaszewicz M., Cichy B., Gerasymchuk Y., Gluchowski P., Marciniak L., Bednarkiewicz A., Hreniak D.* Laser Induced White Lighting of Graphene Foam // Sci. Rep. 2017. V. 7. P. 41281.
30. *Strek W., Tomala R.* Laser Induced Broadband Emission Spectra of Graphene Foam // Phys. B. 2020. V. 579. P. 411840.
31. *Chaika M., Tomala R., Oleszko M., Strek W.* Influence of Low Temperature on White Light Emission from Graphene-based Microchip // Low Temp. Phys. 2023. V. 49. № 3. P. 330.
32. *Зубов В.А., Сущинский М.М., Шувалов И.К.* Стимулированное комбинационное рассеяние света // УФН. 1964. Т. 83. № 6. С. 197.
33. *Зиенко С.И.* Динамика решетки в фононном крыле спектра люминесценции алмаза // Успехи прикл. физики. 2019. Т. 7. № 6. С. 586.
34. *Хабаров С.П., Шилкина М.Л.* Основы моделирования технических систем. Среда Simintech. М.: Лань, 2022. 120 с.
35. *Хакен Г.* Синергетика. М.: Мир, 1980. 405 с.
36. Laser-induced Breakdown Spectroscopy / Eds. Singh J.P., Thakur S.N. Amsterdam: Elsevier Sci., 2020. 604 p.

В статье «Поперечная диэлектрическая проницаемость невырожденной электронной плазмы со столкновениями» Маслова С.А., Боброва В.Б., Тригера С.А. (ТВТ. 2023. Т. 61. № 4. С. 492–496) на с. 494 в левой колонке левую часть формулы

$$\Phi_0^{(dd)}(k,\omega) = k^2 \sum_a \frac{n_a \Lambda_a^3 s_a (s_a+1)}{6} \left(\frac{\mu_a c}{s_a}\right)^2 \int \frac{dp_1}{(2\pi)^2 \left(\hbar\omega + i\nu - \hbar^2 \mathbf{p}_1 k / m_Z\right)} \times$$

$$\times \left[\exp\left(-\frac{\hbar^2 (p_1 - k/2)^2}{2 m_a T} \right) - \exp\left(-\frac{\hbar^2 (p_1 + k/2)^2}{2 m_a T} \right) \right]$$

следует читать как $\Phi_0^{(pp)}(k,\omega)$.

На с. 495 в левой колонке в подписи к рис. 2 вместо $Y = 0.1$ следует читать $Y = 1$.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 24–28

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ВЕЩЕСТВ

УДК 536.71

УДЕЛЬНОЕ СОПРОТИВЛЕНИЕ ЦИРКОНИЯ В ОКРЕСТНОСТИ ПЛАВЛЕНИЯ: ЭКСПЕРИМЕНТ И ПЕРВОПРИНЦИПНЫЙ РАСЧЕТ

© 2024 г. А. В. Дороватовский, М. А. Шейндлин, В. Б. Фокин, Д. В. Минаков*

Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

**E-mail: minakovd@jiht.ru*

Поступила в редакцию 08.06.2023 г.
После доработки 17.11.2023 г.
Принята к публикации 03.10.2023 г.

Представлены данные об удельном электрическом сопротивлении циркония в твердом и жидком состояниях в окрестности плавления, полученные в экспериментах по импульсному нагреву проволочек, а также в расчетах методом квантовой молекулярной динамики с использованием формулы Кубо–Гринвуда. Проанализировано влияние примеси гафния на результаты расчетов и измерений.

DOI: 10.31857/S0040364424010041

ВВЕДЕНИЕ

Цирконий является одним из основных конструкционных материалов ядерных энергетических установок и используется в качестве оболочек тепловыделяющих элементов водо-водяных реакторов благодаря низкому сечению поглощения нейтронов и устойчивости к коррозии. Высокая температура плавления ($T_{пл}$ = 2128 K [1]), высокая реакционная способность и риск загрязнения жидкого Zr затрудняют измерение его теплофизических свойств в окрестности плавления стационарными методами. Интенсивное развитие динамических методов исследования [2] теплофизических свойств веществ позволяет решить проблему получения данных в высокотемпературной области [3]. Однако трудности в интерпретации результатов таких экспериментов и сопутствующие физические явления [4] приводят к тому, что измерения, выполненные разными авторами, часто не согласуются между собой. В настоящее время появилась возможность произвести так называемый численный эксперимент с помощью первопринципных расчетов методом квантовой молекулярной динамики, который может помочь устранить такую неопределенность [5–8]. Тем не менее при описании транспортных свойств теоретическими методами все еще имеются проблемы [9, 10].

В случае циркония, в отличие от большинства металлов, присутствует дополнительный источник расхождения экспериментальных результатов – это чистота образцов Zr, используемых разными авторами [11]. В образцах циркония практически всегда присутствуют примеси гафния, которые могут достигать 4.5%, и следовательно, достоверно оценить степень влияния примеси Hf на результаты измерений довольно сложно, особенно если измерения выполняются на разных экспериментальных установках.

В настоящей работе использовались образцы циркония двух видов: йодидного циркония высокой чистоты российского производства и широко используемого в большинстве исследований циркония производства компании Alfa Aesar с заявленными примесями Hf до 4.5%. В связи с этим представляется возможность исследовать влияние примесей в Zr на получаемые результаты в ходе исследования, выполненного на одной экспериментальной установке.

В данной работе используется метод импульсного нагрева током высокой плотности со скоростью нагрева около 10^8 K/c. В таком эксперименте обычно исследуется ряд термодинамических свойств электропроводного вещества: энтальпия (теплоемкость) [11–15], электрическое сопротивление [16–18] и плотность [19–21]. Причем указанным методом удается провести измерения как в твердом, так и в жидком состояниях в широком диапазоне температур. Регистрация зависимостей тока и напряжения позволяет рассчитать количество джоулева тепла, выделяющегося в образце, при одновременной регистрации температуры с помощью пирометра.

Целью работы являются получение новых данных об удельном электрическом сопротивлении циркония в твердом и жидком состояниях

в окрестности температуры плавления и анализ возможного влияния примеси гафния в образцах. Также выполнено сравнение результатов, полученных экспериментально и первопринципными расчетами методом квантовой молекулярной динамики с использованием формулы Кубо–Гринвуда (КМД + КГ).

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Для измерений теплофизических свойств металлов используется установка импульсного нагрева, изображенная на рис. 1. Энтальпия образца в определенный момент времени и, соответственно, при определенной температуре определялась как интеграл произведения тока на напряжение. При этом потери тепла, связанные с теплопроводностью, конвекцией и излучением, оказываются пренебрежимо малыми из-за высокой скорости нагрева. Оценки показывают, что при используемой скорости нагрева суммарные теплопотери составляют менее 1% от введенной энергии [22]. Так как в работе используется аппаратура, предназначенная для экспериментов в весьма широком диапазоне давлений (до 7 кбар), измерение напряжения возможно только на электровводе в камеру высокого давления, как схематично показано на рис. 1. Поэтому для получения величины падения напряжения на исследуемом образце необходима соответствующая поправка на сопротивление самого электроввода и индуктивность сборки электроввода с образцом. Ток через образец регистрируется трансформатором тока. Конструкция электроввода рассчитана

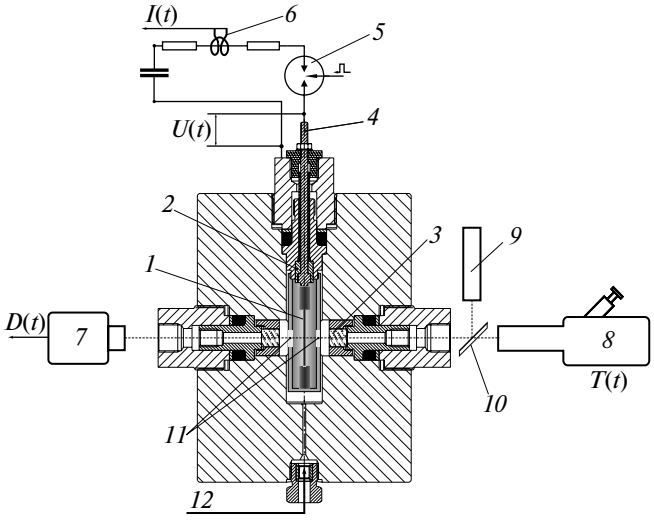

Рис. 1. Схема экспериментальной установки по импульсному нагреву: *1* – образец в камере высокого давления; *2* – керамический изолятор; *3* – сапфировое окно; *4* – электроввод (бронза); *5* – управляемый разрядник; *6* – трансформатор тока; *7* – камера теневой съемки; *8* – пирометр; *9* – лазер подсветки 660 нм; *10* – дихроическое зеркало; *11* – сменные защитные стекла; *12* – подача газа, гелий 1–7000 бар.

на напряжение на образце не более 1 кВ и ток до 10 кА. Коммутация осуществляется ваккумным разрядником. Для того чтобы изменение электросопротивления исследуемого образца слабо влияло на форму импульса тока, использовались балластный резистор и дополнительная индуктивность, обеспечивающая плавное нарастание тока в начале импульса нагрева. Для измерения яркостной температуры использовался специально сконструированный широкодиапазонный микропирометр с высокоскоростным логарифмическим усилителем и временем отклика менее 1 мкс, позволяющий выполнять измерения в диапазоне температур не менее 1300–6000 K с допустимыми темпами нагрева до 2×10^8 K/с. Такие характеристики необходимы в связи с требованиями надежных измерений яркостной температуры на “полочке” плавления и уверенной оценки излучательной способности при температуре плавления. Эффективная длина волны пирометра составляет 885 нм. Пирометр калибруется по высокотемпературной модели абсолютно черного тела, температура которой, в свою очередь, измеряется прецизионным пирометром Chino IR-RST90H.

ПЕРВОПРИНЦИПНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Для расчетов удельного электросопротивления на основе данных первопринципного моделирования методом квантовой молекулярной динамики, основанном на теории функционала плотности, используется код GreeKuP [23]. Данный программный модуль позволяет выполнять расчеты действительной части динамической электропроводности в рамках формализма Кубо–Гринвуда (КГ) [24]:

$$\sigma(\omega) = \frac{2\pi e^2\hbar^2}{3m_e^2\omega\Omega}\sum_{\mathbf{k}} W(\mathbf{k}) \times$$

$$\times \sum_{j=1}^{N}\sum_{i=1}^{N}\sum_{\alpha=1}^{3}\left[F\left(\varepsilon_{i,\mathbf{k}}\right) - F\left(\varepsilon_{j,\mathbf{k}}\right)\right]\left|\left\langle\Psi_{j,\mathbf{k}}\left|\nabla_\alpha\right|\Psi_{i,\mathbf{k}}\right\rangle\right|^2 \times$$

$$\times \delta\left(\varepsilon_{j,\mathbf{k}} - \varepsilon_{i,\mathbf{k}} - \hbar\omega\right).$$

Здесь ω – частота; e, m_e – заряд и масса электрона; $W(\mathbf{k})$ – вес $\mathbf{k}$-точки в зоне Бриллюэна при использовании схемы Монкхорста–Пака; $F(\varepsilon_{i,\mathbf{k}})$ – функция Ферми–Дирака; $\Psi_{i,\mathbf{k}}$, $\varepsilon_{i,\mathbf{k}}$ – собственное значение (уровень энергии) состояния i в заданной и собственная волновая функция $\mathbf{k}$-точке. Суммирование выполняется по всем начальным (i) и конечным (j) состояниям среди N дискретных уровней, которые учитываются в расчете кубической суперячейки объемом Ω. Матричные элементы оператора скорости ∇_α вдоль каждого направления ($\alpha = x, y, z$) рассчитываются в программном пакете VASP [25] на основе метода

функционала плотности. После расчета динамической электропроводности в некотором диапазоне частот величина статической электропроводности определяется путем экстраполяции к нулевой частоте. КМД-моделирование выполнялось для 250 атомов. Использовались обобщенно-градиентное приближение в параметризации PBE (Perdew–Burke–Ernzerhof) для обменно-корреляционного функционала и PAW-потенциал [26] с 12 валентными электронами для описания электрон-ионного взаимодействия.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Содержание примесей в образцах определялось с помощью электронно-микроскопического анализа (СЭМ-ЭДС). В образцах проволоки из йодидного циркония диаметром 0.87 мм наличие примеси гафния не детектировалось. Вторым типом образцов являлись циркониевые проволоки Alfa Aesar диаметром 1 мм. Эти образцы имели матовую поверхность и были заметно менее пластичными, чем образцы из йодидного циркония. Согласно паспорту на проволоку Alfa Aesar доля циркония с примесями гафния в ней составляет не менее 99.2%, при этом доля гафния – не более 4.5% и неметаллических примесей – не более 0.8%. Выполненный анализ показал наличие 1.5% гафния в этих образцах. Количество и состав неметаллических примесей в образцах обоих типов достоверно установить не удалось.

Эксперименты по импульсному нагреву выполнялись при давлении около 1 бар в атмосфере гелия, образцы нагревались со скоростями от 5×10^7 до 1.5×10^8 K/с. Для оценки нормальной спектральной излучательной способности образца циркония на эффективной длине волны пирометра 885 нм наблюдаемая яркостная температура плавления сопоставлялась с известной справочной температурой плавления 2128 K [1]. При этом сам факт плавления образца регистрировался на термограммах по ярко выраженному плато. В экспериментах с проволокой Alfa Aesar было получено значение излучательной способности 0.45, а также электросопротивление при комнатной температуре 50 ± 1 мкОм см, более чем на 10% превышающее справочное значение для циркония. Для образцов йодидного циркония диаметром 0.87 мм измеренная величина удельного электросопротивления при комнатной температуре была равна 45 ± 1 мкОм см. Эти образцы имели почти зеркальную поверхность. Их излучательная способность составила около 0.35, что хорошо согласуется с результатами первопринципных расчетов [27], выполненных ранее.

Энтальпии плавления образцов первого и второго типов совпали в пределах экспериментальной погрешности, данные по теплоемкости в жидком состоянии также сопоставимы, эти результаты будут представлены отдельно. Полученные зависимости удельного сопротивления, отнесенного к начальному объему, от молярной энтальпии для образцов первого и второго типов представлены на рис. 2. Для Zr от Alfa Aesar наблюдается более высокое удельное сопротивление во всем диапазоне измерений, чем для чистого йодидного Zr. Здесь разница составляет от 3 до 5 мкОм см или от 2 до 3%. Полученные результаты для йодидного циркония хорошо согласуются с измерениями [19], при этом результаты работы [12] превышают значения, полученные в настоящей работе для циркония в β-фазе и жидком состоянии. Все показанные на рисунке экспериментальные данные отнесены к исходным размерам. Из графика также видно, что расчет КМД + КГ предсказывает систематически более низкое удельное сопротивление для Zr, чем наблюдается в экспериментах. Для удобства сравнения на рис. 2 также нанесены данные моделирования, отнесенные к расчетной плотности Zr при нормальных условиях. Можно отметить, что в этом случае наклоны расчетной и экспериментальных кривых хорошо согласуются. Заметим, что выполнены дополнительные расчеты КМД + + КГ с добавлением атомов Hf в расчетную систему, чтобы численно оценить влияние примесей Hf. При добавлении 1.5% Hf расчет в кристаллической фазе предсказывает рост удельного сопротивления на 0.5%, при увеличении количества Hf до 4.5% различие составляет 1.3%, а в жидкой фазе

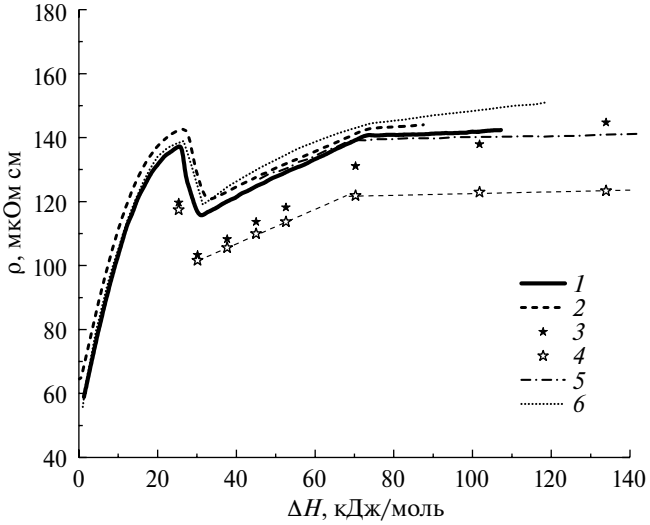

Рис. 2. Удельное сопротивление циркония в зависимости от молярной энтальпии (данная работа): *1* – йодидный цирконий; *2* – цирконий марки Alfa Aesar (1.5% Hf); *3* – результаты расчета КМД + КГ; *4* – результаты расчета КМД + КГ, отнесенные к начальному объему; штриховая линия – линейная аппроксимация расчетных точек для β-Zr и жидкости; *5* – [19], *6* – [12].

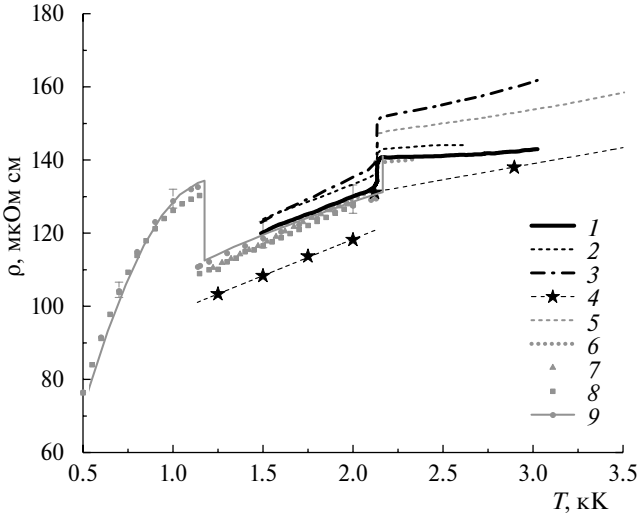

Рис. 3. Удельное сопротивление циркония в зависимости от температуры (данная работа): *1* – йодидный цирконий; *2* – цирконий марки Alfa Aesar (1.5% Hf); *3* – йодидный цирконий с коррекцией на объем из первопринципных расчетов; *4* – расчеты КМД + КГ; *5* – [19], *6* – [17], *7* – [29], *8* – [30], *9* – [28].

предсказывается сдвиг на 0.3 и 1% соответственно. Таким образом, можно сделать вывод, что примеси гафния действительно приводят к увеличению удельного сопротивления, однако существенная разница между двумя образцами, по-видимому, обусловлена не только металлическими, но и неметаллическими примесями.

Зависимости удельного сопротивления от температуры представлены на рис. 3. Наклон кривой удельного сопротивления, полученной в расчете КМД + КГ, для β-Zr находится в отличном согласии с данными из обзора [28] и данными других экспериментов для кристаллического Zr [29, 30]. Величина скачка удельного сопротивления при плавлении из расчета КМД + КГ также хорошо согласуется с экспериментальными данными. Наклон кривой КМД + КГ для удельного сопротивления в жидкой фазе согласуется с данными работы [19], которые скорректированы на измеренный в эксперименте объем. Измеренное сопротивление для йодидного циркония отлично согласуется с результатами работы [17]. На графике также изображена кривая, соответствующая данным для йодидного циркония, скорректированным на изменение плотности от температуры из КМД-расчета. Данная кривая находится выше, чем экспериментальная кривая [19].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Получены новые данные о температурной зависимости удельного электрического сопротивления кристаллического циркония в β-фазе и жидкого циркония в окрестности плавления. Проанализировано влияние металлических и неметаллических примесей в исследуемых образцах и выполнено сравнение с результатами первопринципных расчетов методом квантовой молекулярной динамики с использованием формулы Кубо–Гринвуда. Наклон кривой удельного сопротивления, полученной методом КМД + КГ, согласуется с экспериментальными данными. Однако первопринципный расчет предсказывает систематически более низкое удельное сопротивление для Zr, чем наблюдаемое в эксперименте. Впервые зависимость плотности от температуры, полученная в КМД-расчете, использована для учета влияния термического расширения на зависимость удельного сопротивления от температуры.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (соглашение № 20-79-10398, https://rscf.ru/en/project/20-79-10398/).

Авторы выражают благодарность Межведомственному суперкомпьютерному центру РАН и Центру коллективного пользования “Дальневосточный вычислительный ресурс” ИАПУ ДВО РАН за предоставленное вычислительное время.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. CRC Handbook of Chemistry and Physics. 89th ed. / Ed. Lide D.R. Boca Raton: CRC Press, 2008–2009. 2736 p.
2. *Минцев В.Б.* Динамические методы в физике неидеальной плазмы. Начало // ТВТ. 2021. Т. 59. № 6. С. 885.
3. *Ломоносов И.В., Фортова С.В.* Широкодиапазонные полуэмпирические уравнения состояния вещества для численного моделирования высокоэнергетических процессов // ТВТ. 2017. Т. 55. № 4. С. 596.
4. *Ткаченко С.И., Хищенко К.В., Воробьев В.С., Левашов П.Р., Ломоносов И.В., Фортов В.Е.* Метастабильные состояния жидкого металла при электрическом взрыве // ТВТ. 2001. Т. 39. № 5. С. 728.
5. *Minakov D.V., Paramonov M.A., Levashov P.R.* Consistent Interpretation of Experimental Data for Expanded Liquid Tungsten near the Liquid–Gas Coexistence Curve // Phys. Rev. B. 2018. V. 97. № 2. P. 024205.
6. *Minakov D.V., Paramonov M.A., Levashov P.R.* Thermophysical Properties of Liquid Molybdenum in the Near-critical Region Using Quantum Molecular Dynamics // Phys. Rev. B. 2021. V. 103. № 18. P. 184204.
7. *Minakov D.V., Paramonov M.A., Levashov P.R.* Interpretation of Pulse-heating Experiments for Rhenium by Quantum Molecular Dynamics // High Temp. – High Press. 2020. V. 49. № 1–2. P. 211.

8. *Minakov D.V., Paramonov M.A., Levashov P.R. Ab Initio* Inspection of Thermophysical Experiments for Molybdenum near Melting // AIP Adv. 2018. V. 8. № 12. P. 125012.
9. *Paramonov M.A., Minakov D.V., Fokin V.B., Knyazev D.V., Demyanov G.S., Levashov P.R.* Ab Initio Inspection of Thermophysical Experiments for Zirconium near Melting // J. Appl. Phys. 2022. V. 132. № 6. P. 065102.
10. *Knyazev D.V., Levashov P.R.* Ab Initio Calculation of Transport and Optical Poperties of Aluminum: Influence of Simulation Parameters // Comput. Mater. Sci. 2013. V. 79. P. 817.
11. *Савватимский А.И., Коробенко В.Н.* Высокотемпературные свойства металлов атомной энергетики (цирконий, гафний и железо при плавлении и в жидком состоянии). М.: Изд-во МЭИ, 2012. 216 с.
12. *Коробенко В.Н., Савватимский А.И.* Свойства твердого и жидкого циркония // ТВТ. 1991. Т. 29. № 5. С. 883.
13. *Коробенко В.Н., Савватимский А.И.* Измерение температуры циркония от температуры плавления до 4100 K с применением моделей черного тела в жидком состоянии // ТВТ. 2001. Т. 39. № 3. С. 518.
14. *Костановский А.В., Костановская М.Е.* Определение теплоемкости в экспериментах импульсного электрического нагрева // ТВТ. 2021. Т. 59. № 5. С. 790.
15. *Коробенко В.Н., Савватимский А.И.* Удельная теплоемкость жидкого циркония до 4100 K // ТВТ. 2001. Т. 39. № 5. С. 712.
16. *Савватимский А.И.* Теплоемкость и электросопротивление металлов Ta и W от точки плавления до 7000 K при импульсном нагреве током // ТВТ. 2021. Т. 59. № 5. С. 686.
17. *Korobenko V.N., Savvatimski A.I., Sevostyanov K.K.* Experimental Investigation of Solid and Liquid Zirconium // High Temp. – High Press. 2001. V. 33. № 6. P. 647.
18. *Савватимский А.И., Онуфриев С.В., Вальяно Г.Е., Киреева А.Н., Патрикеев Ю.Б.* Электрическое сопротивление жидкого гадолиния (с содержанием углерода 29 ат. %) для температур 2000–4250 K // ТВТ. 2020. Т. 58. № 1. С. 148.
19. *Коробенко В.Н., Савватимский А.И.* Температурная зависимость плотности и удельного электросопротивления жидкого циркония до 4100 K // ТВТ. 2001. Т. 39. № 4. С. 566.
20. *Korobenko V.N., Agranat M.B., Ashitkov S.I., Savvatimski A.I.* Zirconium and Iron Densities in a Wide Range of Liquid States // Int. J. Thermophys. 2002. V. 23. P. 307.
21. *Коробенко В.Н., Савватимский А.И.* Свойства жидкого циркония до 4100 K // ЖФХ. 2003. Т. 77. № 10. С. 1742.
22. *Беликов Р.С.* Экспериментальное исследование теплофизических свойств системы Mo–C эвтектического состава и графита при высоких температурах. Дис. ... канд. физ.-мат. наук. М.: ОИВТ РАН, 2018.
23. *Knyazev D.V., Levashov P.R.* Thermodynamic, Transport, and Optical Properties of Dense Silver Plasma Calculated Using the Greekup Code // Contrib. Plasma Phys. 2019. V. 59. № 3. P. 345.
24. *Demyanov G.S., Knyazev D.V., Levashov P.R.* Continuous Kubo–Greenwood Formula: Theory and Numerical Implementation // Phys. Rev. E. 2022. V. 105. № 3. P. 035307.
25. *Kresse G., Hafner J.* Ab Initio Molecular Dynamics for Liquid Metals // Phys. Rev. B. 1993. V. 47. № 1. P. 558.
26. *Blöchl P.E.* Projector Augmented-wave Method // Phys. Rev. B. 1994. V. 50. № 24. P. 17953.
27. *Fokin V., Minakov D., Levashov P.* Ab Initio Calculations of Transport and Optical Properties of Dense Zr Plasma Near Melting // Symmetry. 2022. V. 15. № 1. P. 48.
28. *Desai P.D., James H.M., Ho C.Y.* Electrical Resistivity of Vanadium and Zirconium // J. Phys. Chem. Ref. Data. 1984. V. 13. № 4. P. 1097.
29. *Milošević N.D., Maglić K.D.* Thermophysical Properties of Solid Phase Zirconium at High Temperatures // Int. J. Thermophys. 2006. V. 27. P. 1140.
30. *Пелецкий В.Э., Бельская Э.А.* Электрическое сопротивление тугоплавких металлов. Справ. М.: Энергоиздат, 1981.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 29–37

УДК 536.763: 536.764: 544.344.2

ФАЗОВЫЕ ПРЕВРАЩЕНИЯ И КРИТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СИСТЕМЫ C_3H_7OH–C_7H_{16}

© 2024 г. Э. А. Базаев*, А. Р. Базаев, И. М. Абдулагатов, Т. А.-Г. Джапаров, Б. К. Османова

Институт проблем геотермии и возобновляемой энергетики – филиал ФГБУН ОИВТ РАН, Махачкала, Россия

**E-mail: emilbazaev@gmail.com*

Поступила в редакцию 14.09.2023 г.
После доработки 24.11.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

Приведены экспериментальные значения (p, ρ, T)$_x$-зависимостей системы 1-пропанол–*н*-гептан состава x (0.2, 0.38, 0.5 и 0.8 мольных долей *н*-гептана) при фазовых превращениях (жидкость–пар) ⇄ жидкость и (жидкость–пар) ⇄ пар, определенные по фигуративным точкам изломов (изгибов) изохор фазовой диаграммы в (p, T)-координатах, и значения ее критических параметров, оцененные на основе анализа кривизны изохор и изотерм фазовых диаграмм в критической области. Зависимость давления насыщенных паров смесей $p_s = f(\rho_s, T_s)_x$ вдоль кривой сосуществования фаз описана термическим уравнением состояния вириального вида – разложением фактора сжимаемости $Z_s = p_s/(RT_s\rho_{ms})$ в ряды по степеням приведенной плотности и приведенной температуры. Средняя относительная погрешность отклонений рассчитанных значений давления от экспериментальных составляет 1%. Температурная зависимость плотности системы вдоль кривой равновесия фаз жидкость–пар описана двумя степенными функциями: во всем диапазоне параметров и в симметричной части кривой ($0 < \tau < 0.01$) при значении критического показателя $\beta_0 = 0.370 \pm 0.002$. Средняя относительная погрешность составляет 0.8% и 0.6% соответственно.

DOI: 10.31857/S0040364424010059

ВВЕДЕНИЕ

Жидкости 1-пропанол (полярная) и *н*-гептан (неполярная) характеризуются близкими температурами кипения (370.55, 371.57 K), незначительно отличающимися критическими температурами (536.85, 540.13 K), но существенно различными критическими давлениями (5.1, 2.736 МПа) и разными молекулярными структурами. При нормальных условиях эти жидкости растворяются друг в друге в любых соотношениях концентраций, образуя гомогенную смесь с одинаковыми химическим составом и физическими свойствами во всех частях, подобно бинарным системам *н*-пентана и *н*-гексана с 1-пропанолом [1, 2]. Смесь 1-пропанол–*н*-гептан в зависимости от состава при определенных температурах и давлениях может проявлять азеотропизм. Так, например, азеотропизм наблюдается при x = 0.46 мол. доли *н*-гептана в области температур 278.15–303.17 K и давлений 0.0025–0.01017 МПа [3]; при x = 0.62 мол. доли и T = 258.15 K и p = 0.1013 МПа [4]; при x = 0.38 мол. доли в областях T = 423.15–521.15 K и p = 0.5–4 МПа (данная работа).

Фазовые превращения (ФП) и критическое состояние (КС) 1-пропанола и *н*-гептана изучены в [5, 6]. Надежные экспериментальные данные о параметрах ФП и КС, а также (p, ρ, T, x)-зависимости системы 1-пропанол–*н*-гептан в широком диапазоне компонентного состава важны для суждения о структурных изменениях компонентов при смешении, о силах взаимодействия полярных молекул с неполярными, для разработки моделей потенциалов межмолекулярного взаимодействия смесей спирт–углеводород, для построения единого взгляда на фазовые равновесия жидкость–пар и критическое состояние сложных систем [7]. Знание фазового и объемного поведения этой системы нужно также для технологий химической и нефтехимической отраслей промышленности [8–10], для оптимизации октанового числа автомобильного топлива [8, 9] и т.д.

Из известных авторам работ, посвященных исследованию параметров ФП и КС системы 1-пропанол–*н*-гептан, близки по (p, T)-условиям исследований к данной работе публикации [12–14]. В [9] определены значения параметров КС и получена критическая кривая системы 1-пропанол–*н*-гептан.

Применялись оптический метод с использованием горизонтальной рабочей ячейки из титанового сплава в форме цилиндра с сапфировыми окошками на торцах и электронагревателем на наружной поверхности и наблюдение за исчезновением и появлением границы, разделяющей фазы. Измерения p_s, T_s, x и p, T, ρ, x для системы 1-пропанол–*н*-гептан проводились для девяти значений состава в диапазоне температур 513.15–573.15 K. Температура в ходе эксперимента измерялась термопарами, установленными на концах цилиндра, и поддерживалась с помощью регулятора температуры WEST6100 с погрешностью ±0.6 K. Перемешивание исследуемого вещества не было предусмотрено. Погрешности определения $T_к$ и $p_к$ авторами оценены соответственно в ±1.2 K и ±0.015 МПа. Значения параметров ФП данной системы в работе не приводятся. В [10] тем же методом с рабочей ячейкой из термостойкого стекла в форме трубки, установленной вертикально в жидкостном термостате, определены значения параметров ФП и КС системы 1-пропанол–*н*-гептан. Измерения p_s, T_s, x и p, T, ρ, x проводились для составов 0.3080, 0.4658, 0.6709 и 1 мол. доли *н*-гептана в диапазоне температур 423.15–573.15 K и давлений 0.2–5.066 МПа. Также выполнялись наблюдения за исчезновением границы между фазами. Приводится критическая кривая системы, полученная по четырем экспериментальным критическим точкам. Показано, что зависимость $T_к$ от x проходит через минимум, соответствующий значению состава смеси ~0.4 мол. доли *н*-гептана, а зависимость $p_к$ от x близка к линейной. Погрешности измерения температуры эксперимента термометрами сопротивления (± 0.5 K) и давления грузопоршневым манометром (±0.012 МПа) авторами [13] приняты за погрешности определения параметров КС системы, хотя, как правило, погрешности расчета больше измеряемых. Авторы [13] предполагают существование азеотропной точки данной смеси состава 0.38 мол. доли *н*-гептана в области температур 423.15–523.15 K и давлений 1–4 МПа. Однако смесь 1-пропанол–*н*-гептан с 0.38 мол. доли *н*-гептана в работе [10] не исследована. В [11] на установке проточного типа с использованием рабочей ячейки с оптическими окошками путем наблюдения за появлением критической опалесценции и мениска определены значения критических температуры и давления системы 1-пропанол–*н*-гептан для девяти составов в диапазоне 0.0625–0.8437 мол. долей *н*-гептана. Погрешности определения значений критических параметров оценены в [14] следующим образом: $T_к$ = ±0.04 K, $p_к$ = ±0.01 МПа и x = 0.012 мол. доли.

Значения критических параметров системы 1-пропанол–*н*-гептан, определенные в [12–14], различаются. Это связано с тем, что метод исследования ФП и КС жидких систем наблюдением за исчезновением (появлением) мениска – границы между фазами – и критической опалесценцией реализован в [12–14] на разных экспериментальных установках со своими особенностями и метрологическими возможностями. В [9] на точности определения давления должно сказываться отсутствие перемешивания исследуемой смеси, уменьшающее влияние гравитации. Измерение температуры термопарами снижает точность определения значений параметров КС системы. В [10] хорошо термостатирована рабочая ячейка, предусмотрено перемешивание исследуемого вещества. Однако вертикальное положение трубчатой рабочей ячейки, в нижней части которой находится столбик ртути, запирающей исследуемую смесь и передающей давление ее на измерительный прибор, влияет на точность измерения давления из-за гравитационного эффекта и испарения ртути. При температурах 473.15 K и выше ртуть испаряется, и содержание ее в исследуемой смеси, особенно в паровой фазе, может быть значительным. Установлено, что растворимость ртути в бутане, сжатом до 400 атм, и при температурах 473.15–673.15 K больше растворимости при давлении насыщенного пара в 4 раза [12]. Может быть, с этим фактом связаны повышенные значения давления паровой фазы, полученные в [10]. Конструкция экспериментальной установки и методика измерений в [11] отличаются от использованных в [9, 10] тем, что исследуемая смесь из сосуда с определенной постоянной скоростью поступает в автоклав, где она предварительно нагревается до нужной температуры, далее – в термостатируемую рабочую ячейку и сбрасывается. Температура камеры измерялась термометром сопротивления и термопарой, а давление – тензопреобразователем. Появление (исчезновение) критической опалесценции и мениска достигается изменением температуры и давления. Измерения проводились несколько раз для разных скоростей потока. За критические значения температуры и давления принимались осредненные значения. Значения критической плотности системы в работе не приводятся.

Определение количества исследуемого вещества в рабочей ячейке проводилось только при заполнении [12, 13], т.е. без отбора вещества после измерений с последующим взвешиванием для уточнения его количества. Опыт показывает, что определяемое по отбору количество исследуемого вещества, как правило, не совпадает с его количеством при заполнении рабочей ячейки.

Для уточнения достоверности полученных в [12–14] данных о ФП и КС системы 1-пропанол–*н*-гептан визуальным методом ранее [15] были исследованы (p, ρ, T, x)-данные этой системы методом пьезометра постоянного объема в суб- и сверхкритическом состояниях для различных значений состава. Результаты исследования в околокритической и сверхкритической областях приведены в [15]. Сравнение полученных в [15] значений ФП и КС с

Таблица 1. Экспериментальные значения параметров фигуративных точек ФП и фактора сжимаемости Z_s системы 1-пропанол–*н*-гептан в зависимости от состава x

T_s, K	p_s, МПа	ρ_s, кг/м^3	Z_s	T_s, K	p_s, МПа	ρ_s, кг/м^3	Z_s
$x = 0.2$				$x = 0.5$			
463.15	1.32	29.57	0.789	521.75	3.73	181.14	0.380
484.15	1.97	47.18	0.706	522.50	3.78	196.27	0.356
498.15	2.57	65.46	0.647	522.95	3.82	212.27	0.332
511.15	3.35	94.01	0.571	523.12	3.84	230.98	0.307
520.65	3.99	132.43	0.474	523.15	3.85	244.53	0.290
525.85	4.36	172.22	0.394	523.15	3.85	246.00	0.288
527.90	4.51	217.80	0.321	523.14	3.85	250.60	0.283
528.15	4.54	255.28	0.276	523.05	3.85	261.59	0.271
528.15	4.54	258.00	0.273	522.95	3.84	274.79	0.258
527.95	4.53	296.34	0.237	522.70	3.84	290.30	0.244
527.00	4.48	326.02	0.213	522.05	3.81	308.40	0.228
524.85	4.33	360.33	0.188	521.45	3.78	319.04	0.219
521.65	4.13	391.72	0.165	519.15	3.66	344.08	0.197
512.15	3.58	433.97	0.132	513.85	3.38	381.52	0.166
501.15	2.95	473.42	0.102	508.15	3.10	407.32	0.144
489.15	2.41	507.01	0.080	496.95	2.57	442.89	0.113
480.15	2.05	527.56	0.066	484.65	2.11	473.59	0.089
460.15	1.43	563.79	0.045	474.70	1.79	495.89	0.073
446.25	1.10	586.25	0.034	459.60	1.39	521.49	0.056
430.15	0.79	611.11	0.025	442.75	1.01	548.94	0.040
420.65	0.65	624.95	0.020	418.25	0.58	584.12	0.023
$x = 0.38$				395.95	0.35	608.52	0.014
456.15	1.22	30.73	0.788	383.85	0.25	621.50	0.010
479.15	1.88	50.85	0.700	$x = 0.8$			
497.15	2.62	77.13	0.620	458.15	0.83	25.02	0.801
514.95	3.56	130.63	0.480	478.15	1.22	38.50	0.734
522.00	4.04	196.70	0.356	507.15	2.05	73.49	0.610
522.55	4.09	238.45	0.297	521.15	2.61	107.35	0.518
522.60	4.10	250.00	0.284	526.15	2.87	132.35	0.457
522.50	4.09	275.00	0.258	529.65	3.05	159.34	0.401
522.20	4.08	294.30	0.240	531.85	3.20	199.48	0.334
518.85	3.84	350.00	0.192	532.12	3.22	222.58	0.301
513.65	3.53	388.36	0.160	532.15	3.22	237.38	0.283
495.15	2.56	459.18	0.102	532.05	3.22	256.13	0.262
477.65	1.87	503.87	0.070	531.50	3.20	287.85	0.232
466.15	1.52	526.50	0.056	529.15	3.09	320.02	0.202
446.15	1.04	558.50	0.038	525.15	2.93	352.53	0.175
$x = 0.5$				516.65	2.60	390.79	0.142
433.15	0.73	19.06	0.853	489.65	1.77	463.11	0.086
458.15	1.18	32.06	0.775	469.15	1.30	498.14	0.061
478.15	1.67	47.65	0.707	442.15	0.81	535.47	0.038
491.15	2.11	63.13	0.656	429.75	0.65	551.46	0.030
506.15	2.79	93.48	0.567	408.15	0.45	576.02	0.021
514.65	3.26	122.36	0.499	395.15	0.36	590.63	0.017
519.85	3.59	156.45	0.426	384.15	0.29	603.15	0.014

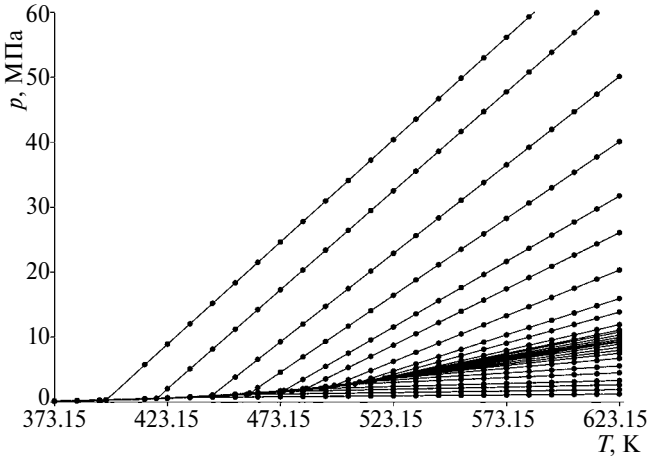

Рис. 1. Изохоры 19.06–608.52 кг/м^3 (снизу вверх) зависимостей давления от температуры системы 1-пропанол–*н*-гептан состава $x = 0.5$ мол. доли компонентов.

данными из работ [12–14] показывает, что в целом расхождение связано как с реализацией визуального метода на разных установках с использованием разных средств измерений (регулирования) температуры и давления, так и с использованием разных методик заполнения рабочей ячейки исследуемым веществом, его чистотой и т.д.

Данная работа дополняет содержание работы [15] подробным анализом экспериментальных данных о (p, T)-зависимости системы в двухфазной области. Здесь приведены отсутствующие в [15] уравнение состояния, описывающее кривую равновесия фаз жидкость–пар ⇄ пар, уравнения, описывающие зависимость плотности от температуры вдоль кривой равновесия и в симметричной части, диаграммы в различных сечениях термодинамической поверхности и т.д. Работа является продолжением исследований ФП и КС класса смесей спирт–углеводород [1, 2].

ЭКСПЕРИМЕНТ

Описание экспериментальной установки, методики проведения измерений p, ρ, T, x и определения параметров ФП и КС дано в [1, 2]. Отметим только главные особенности установки. В отличие от известных аналогов, в конструкции используемой рабочей ячейки (пьезометра) в форме цилиндра из жаропрочного коррозионностойкого сплава марки ХН77ТЮР-ВД отсутствуют “балластные объемы”, т.е. все количество исследуемого вещества находится при температуре эксперимента, что необходимо для точного определения параметров ФП и КС. Для регулирования температуры воздуха в термостате используется цифровой регулятор РТП-8.3 (ООО “ИзТех”, г. Москва) в комплекте с эталонным термометром сопротивления ПТС-10М (завод “Эталон”, г. Владимир), которые обеспечивают точность поддержания температуры эксперимента ±0.01 K. Для измерения температуры воздуха и пьезометра используются также эталонные термометры сопротивления в связке с цифровым микроомметром HIOKI RM3545 (Япония, точность – 0.0001 Ом). Разность температур воздуха и пьезометра, а также воздуха и стенок термостата контролируется дифференциальными термопарами. Давление измеряется грузопоршневыми манометрами типа МП-60 и МП-600 (Шатковский приборостроительный завод, Россия) класса точности 0.01 и 0.02 соответственно. Для визуального контроля стабильности температуры и давления эксперимента используется 24-разрядный АЦП (LCARD, Россия) с выводом параметров измерения на экран компьютера. Исследуемое вещество перемешивается с помощью шарика внутри пьезометра раскачиванием термостата вокруг горизонтальной оси. Количество подаваемой в пьезометр под вакуумом смеси состава x подготавливается на аналитических весах AND (Япония, точность – 0.001 г) и уточняется после выпуска смеси при высокой температуре под вакуумом в пробоотборник из титанового сплава, помещаемый в сосуд Дьюара с жидким азотом, с последующим взвешиванием на весах при нормальных условиях.

Для измерений использованы 1-пропанол для спектроскопии и *н*-гептан марки ХЧ (“Компонент-Реактив”, г. Москва).

Для определения параметров ФП и особенно КС системы 1-пропанол–*н*-гептан методом пьезометра постоянного объема по фигуративным точкам изломов и изгибов необходимо проведение измерений p, ρ, T, x в диапазоне температур,

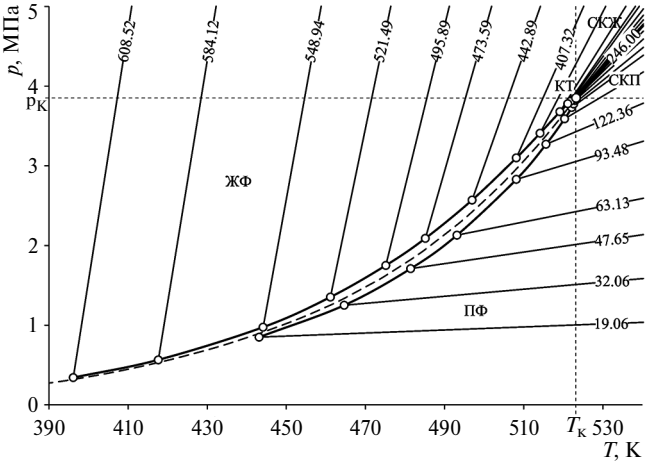

Рис. 2. Изохоры 19.06–608.52 кг/м^3 зависимостей давления от температуры системы 1-пропанол–*н*-гептан состава $x = 0.5$ мол. доли компонентов: ЖФ – жидкая фаза, ПФ – паровая фаза, СКЖ – сверхкритическая жидкость, СКП – сверхкритический пар, КТ – критическая точка ($T_к = 523.15 \pm 0.3$ K, $p_к = 3.85 \pm 0.03$ МПа, $\rho_к = 246.00 \pm \pm 2$ кг/м^3).

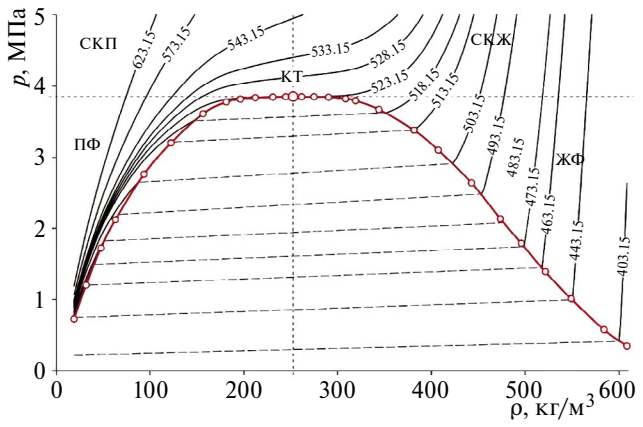

Рис. 3. Изотермы зависимости давления от плотности системы 1-пропанол–*н*-гептан состава $x = 0.5$ мол. долей компонентов.

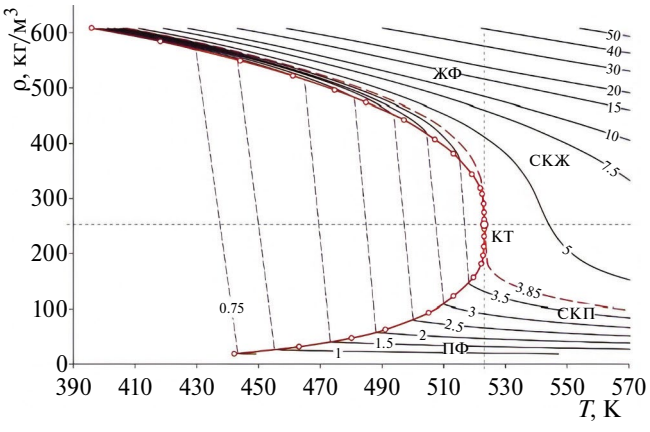

Рис. 4. Изобары зависимости плотности от температуры системы 1-пропанол–*н*-гептан состава $x = 0.5$ мол. долей компонентов.

включающем двухфазную, однофазную (жидкую, паровую), околокритическую и сверхкритическую области. Фазовая диаграмма в (p, T)- координатах системы 1-пропанол–*н*-гептан состава 0.5 мол. долей компонентов, полученная в эксперименте в диапазоне температур 393.15–623.15 K и давлений до 60 МПа, приведена на рис. 1. Такой же вид имеют фазовые диаграммы системы составов 0.2, 0.38 и 0.8 мол. долей *н*-гептана. Значения параметров ФП жидкость–пар → жидкость, жидкость–пар → пар, определенные по фигуративным точкам изломов (изгибов) изохор фазовых диаграмм в (p, T)-координатах, и фактора сжимаемости $Z_s = p_s V_{ms}/(RT_s) = p_s/(\rho_{ms} RT_s)$ приведены в табл. 1 [15].

АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТА

На рис. 2–4 приведены диаграммы кривых сосуществования фаз (жидкость–пар ⇄ жидкость, жидкость–пар ⇄ пар) смеси 1-пропанол–*н*-гептан

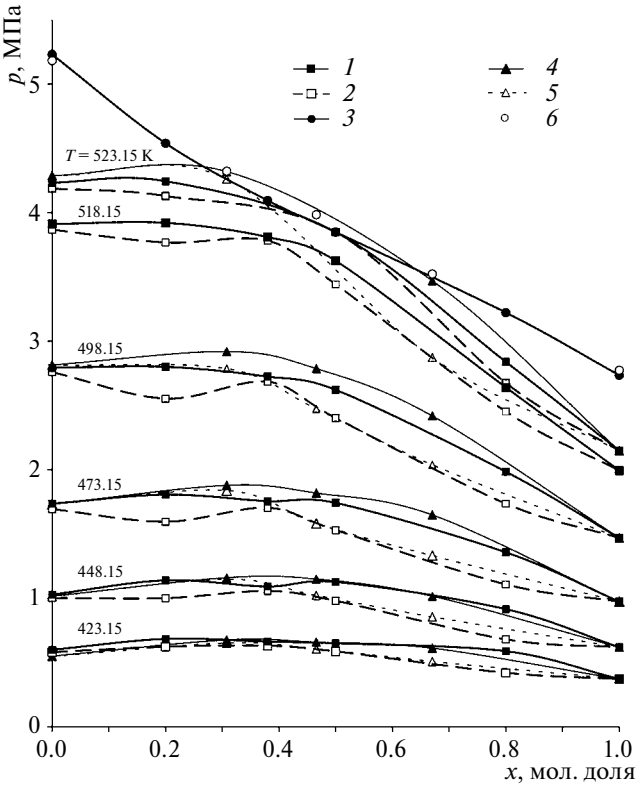

Рис. 5. Фазовая диаграмма изотерм зависимости давления от состава системы 1-пропанол–*н*-гептан по данным настоящей работы (*1*–*3*) и [13] (*4*–*6*): *1*, *4* –жидкость; *2*, *5* – пар; *3*, *6* – критическая кривая.

состава 0.5 мол. долей компонентов в виде $p = f(T)_{\rho,x}$, $p = f(\rho)_{T,x}$, $\rho = f(T)_{p,x}$. Аналогичный вид имеют диаграммы ФП смесей и для составов 0.2, 0.38 и 0.8 мол. долей *н*-гептана. Фазовая диаграмма изотерм зависимости давления насыщенного пара от состава $p_s = f(x)_{T_s}$ (рис. 5), построенная по данным табл. 1 и работы [10], иллюстрирует положительное отклонение p_s от закона Рауля. Это объясняется изменением структур 1-пропанола и *н*-гептана после их смешения и изменением связей как между однородными, так и между разнородными молекулами и возникновением относительно слабого индукционного взаимодействия между разнородными молекулами раствора [16, 17]. При этом переход компонентов в пар сопровождается эндотермическим процессом ($\Delta H > 0$) и увеличением объема системы ($\Delta V > 0$), т.е. энергетически более выгодным эффектом [18]. Изотермы зависимости давления от состава вдоль кривых фазовых равновесий жидкость–пар ⇄ жидкость, по данным настоящей работы и [10], близки между собой и имеют гладкое максимальное положительное отклонение от идеальности в диапазоне составов 0.2–0.5 (рис. 5). Кривые давления вдоль равновесий жидкость–пар ⇄ пар при температурах 423.15 и 448.15 K этой работы и [10] не совпадают во всем диапазоне

составов, а при температурах 473.15 и 498.15 K и в диапазоне составов 0.5–0.8, наоборот, близки. Расхождение в данных зависимости давления от состава вдоль равновесий (жидкость–пар ⇄ пар) данной работы и [10] связано с испарением ртути при температурах 423.15–523.15 K, вследствие чего увеличивается давление паровой фазы исследуемой смеси [19].

При исследовании ФП смеси состава 0.38 мол. доли *н*-гептана обнаружены локальные максимальные отклонения кривых давления пара при переходе жидкость–пар ⇄ пар в диапазоне температур 423.15–521.15 K, достигающие почти кривых давления насыщенного пара при переходе жидкость–пар ⇄ жидкость (см. рис. 5). Можно предположить, что компоненты смеси данного состава при температурах 423.15–521.15 K и давлениях 0.5–4.0 МПа кипят приблизительно с одинаковой скоростью,

Таблица 2. Значения критических параметров системы 1-пропанол–*н*-гептан

Источник	*x*, мол. доли *н*-гептана	$T_к$, K	$p_к$, МПа	$\rho_к$, кг/м^3	$Z_к$
Данная работа	0.2	528.15	4.54	258.0	0.2730
	0.38	522.60	4.10	250.0	0.2840
	0.5	523.15	3.85	246.0	0.2883
	0.8	532.15	3.22	237.4	0.2829
[13]	0.308	523.92	4.32	241.7	0.2974
	0.466	522.66	3.98	247.7	0.2915
	0.670	528.13	3.52	236.2	0.2954
[12]	0.10	529.60	4.80	–	–
	0.20	524.40	4.47		
	0.30	522.50	4.25		
	0.40	521.40	4.02		
	0.50	522.30	3.82		
	0.60	524.30	3.63		
	0.70	528.10	3.43		
	0.81	532.20	3.21		
	0.91	536.70	2.99		
[14]	0.8437	533.72	3.116		
	0.7058	528.63	3.401		
	0.5832	525.02	3.623		
	0.4736	523.08	3.837		
	0.3749	523.05	4.039		
	0.2856	524.22	4.237		
	0.2045	526.26	4.464		
	0.1304	529.48	4.710		
	0.0625	533.13	4.918		

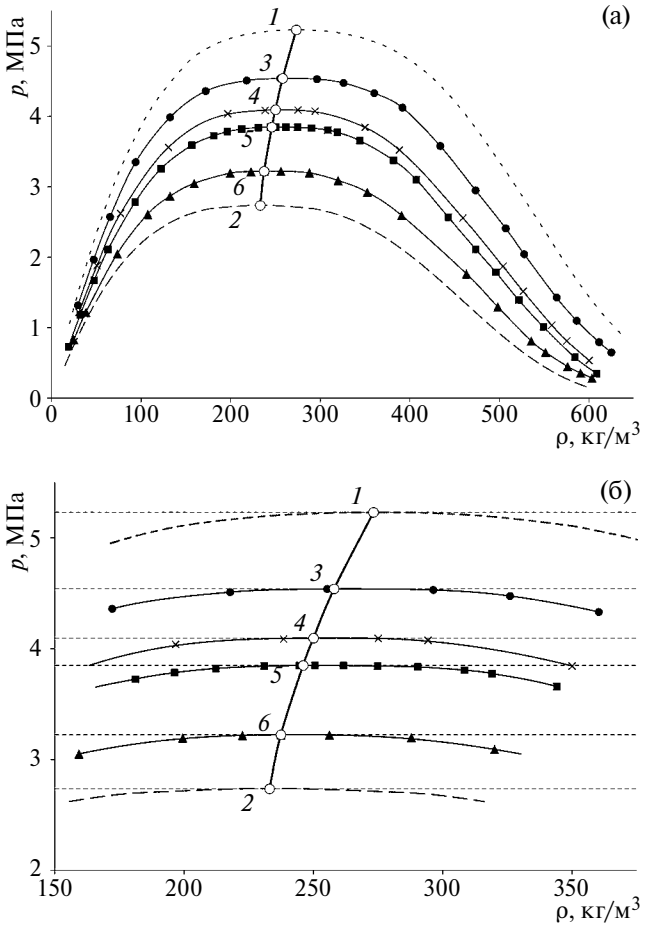

Рис. 6. Кривые сосуществования фаз (а): *1* – 1-пропанола [5], *2* – *н*-гептана [6], *3* – смесь при $x = 0.2$, *4* – 0.38, *5* – 0.5, *6* – 0.8 мол. доли; *1–2* – критическая линия; (б) – увеличенная часть графика.

т.е. смесь 1-пропанол–*н*-гептан в этих условиях является азеотропной.

Кривые сосуществования фаз 1-пропанола, *н*-гептана и их смесей имеют одинаковый вид (рис. 6а). Это хорошо видно на рис. 6б, где кривые равновесий индивидуальных жидкостей и их смесей в диапазоне температур $(T_к - 3)–T_к$ K симметричны относительно критических точек. Система 1-пропанол–*н*-гептан, в том числе и ранее исследованные бинарные системы ($C_nH_{2n+1}OH–C_nH_{2n+2}$) [1, 2], характеризуются свойством индивидуальной жидкой системы в критическом состоянии – соответствием критической температуры и критического давления максимуму кривой фазового равновесия (рис. 6). Этим экспериментальным фактом объясняется возможность использования математических критериев критического состояния индивидуальной жидкости

$$\left(\partial p \,/\, \partial \rho\right)_T^{К} = 0,\ \left(\partial^2 p \,/\, \partial \rho^2\right)_T^{К} = 0,$$

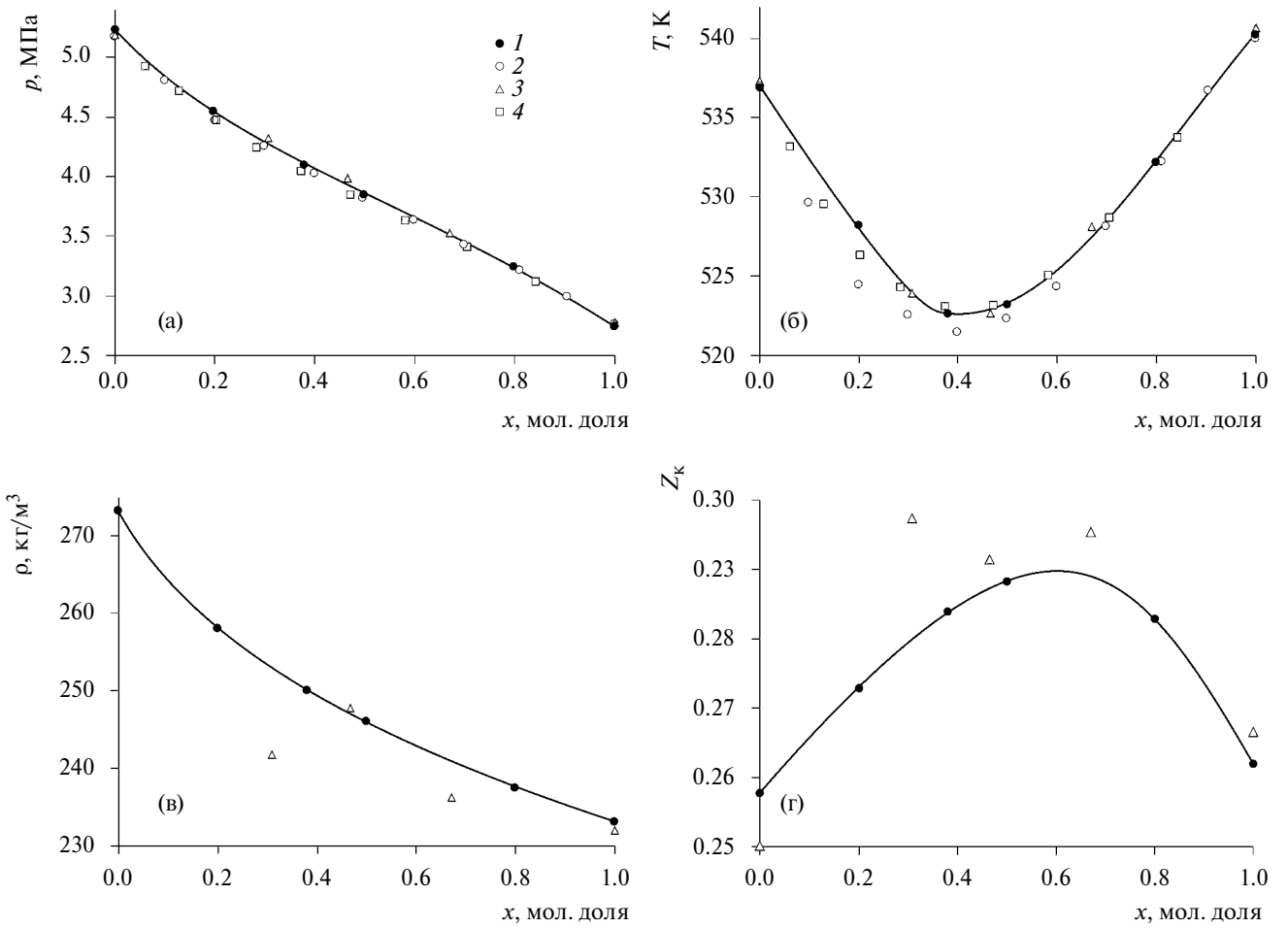

Рис. 7. Зависимости критических давления (а), температуры (б), плотности (в), фактора сжимаемости (г) от состава системы 1-пропанол–*н*-гептан: *1* – данная работа, *2* – [9], *3* – [10], *4* – [11].

$$\left(dp\ /\ dT\right)^{К}_{\rho_к} = \left(\partial p\ /\ \partial T\right)^{К}_{\rho_к},$$

для оценки критических параметров гомогенных смесей. Графоаналитический анализ кривизны изохор и изотерм фазовых диаграмм системы 1-пропанол–*н*-гептан в критической области подтверждает выполнение этих критериев.

В табл. 2 для сравнения приведены значения критических параметров системы 1-пропанол–*н*-гептан, определенные в настоящей работе и взятые из работ [12–14]. Как видно из рис. 7а, значения $T_к$ в зависимости от состава системы, по данным этой работы и работы [10], близки между собой, но заметно отличаются от данных [9]. Значения $p_к$, по данным настоящей работы и [9, 10], близки и линейно уменьшаются с ростом x

Таблица 3. Значения β и B в зависимости от состава x

x, мол. доля *н*-гептана	β_0	β_1	β_2	β_3	B_0	B_1	B_2	B_3
0	0.370	0.925	0.740	1.110	2.528	1.005	0.217	0.913
0.2	0.370	0.925	0.740	1.110	2.610	0.851	0.000	1.227
0.38	0.370	0.925	0.740	1.110	2.577	0.859	0.065	0.966
0.5	0.370	0.925	0.740	1.110	2.533	0.812	0.014	1.057
0.8	0.370	0.925	0.740	1.110	2.549	0.872	0.000	1.055
1	0.370	0.925	0.740	1.110	2.319	0.612	0.286	0.765

(рис. 7б). Что касается зависимости $\rho_к$ от x, данные работы [10] явно не согласуются с полученными здесь (рис. 7в), что говорит о большой погрешности определения количества смеси при заполнении рабочей ячейки. В работе [9] значения $\rho_к$ не приводятся.

Критическое состояние индивидуальной жидкости характеризуется максимальным значением фактора сжимаемости $Z_к = p_к/(RT_к\rho_{mк})$ – безразмерной величины, характеризующей влияние сил межмолекулярного взаимодействия на объемные свойства вещества [13]. Как видно из рис. 7г, величина $Z_к$ смеси 1-пропанол–*н*-гептан растет с увеличением концентрации *н*-гептана и проходит через максимум при $x = 0.55$, а далее с ростом x уменьшается. Это необходимо учитывать при разработке моделей уравнения для описания критического состояния смесей спирт–углеводород.

Зависимость давления насыщенных паров смесей $p_s = f(\rho_s, T_s)_x$ вдоль кривой сосуществования фаз при $x = \text{const}$ описывает термическое уравнение состояния вириального вида – разложение фактора сжимаемости Z_s в ряд по степеням приведенной плотности $\omega = \rho/\rho_к$, приведенной температуры $\tau = T/T_к$ [14]:

$$Z_s = p_s/RT_s\rho_{ms} = 1 + \sum_{i=1}^{m}\sum_{j=0}^{n} a_{ij}\omega^i \Big/ \tau^j, \qquad (1)$$

откуда

$$p_s = RT_s\rho_{ms}\left[1 + \sum_{i=1}^{m}\sum_{j=0}^{n} a_{ij}\omega^i \Big/ \tau^j\right].$$

Здесь a_{ij} – коэффициенты уравнения, определенные методом наименьших квадратов; ρ_m – молярная плотность, моль/м^3; $R = 8.314$ – универсальная (молярная) газовая постоянная, Дж/(моль K). Средняя относительная погрешность отклонений рассчитанных значений давления от экспериментальных составляет 1%.

Зависимости плотности жидкой $\rho_ж$ и паровой $\rho_п$ фаз системы состава $x = \text{const}$ от температуры вдоль кривой сосуществования описываются степенными функциями [15, 16]:

$$\rho_{ж,п} = \rho_к\left(1 \pm B_0\tau^{\beta_0} + B_1\tau^{\beta_1} \pm B_2\tau^{\beta_2} + \cdots\right), \quad (2)$$

а в симметричной части ($0 < \tau < 0.01$) функцией

$$\left(\rho_ж - \rho_п\right) / 2\rho_к = B_0\tau^{\beta_0} + B_2\tau^{\beta_2} + B_4\tau^{\beta_4} + \cdots. \quad (3)$$

Значения критических показателей β_i и амплитуд B_i приведены в табл. 3. Средние относительные погрешности рассчитанных значений плотности от экспериментальных не превышают 0.8% (2) и 0.6% (3).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Смешение 1-пропанола и *н*-гептана при равновесиях жидкость–пар ⇄ жидкость, жидкость–пар ⇄ пар в диапазоне температур 423.15–513.15 K характеризуется положительным отклонением кривой давления пара от закона Рауля ($\Delta H > 0$ и $\Delta V > 0$), т.е. энергетически наиболее выгодным эффектом.

Результаты исследований ФП жидкость–пар ⇄ жидкость, жидкость–пар ⇄ пар системы 1-пропанол–*н*-гептан, полученные в данной работе методом определения параметров фигуративных точек изломов (изгибов) изохор экспериментальной фазовой диаграммы $p = f(T)_{\rho,x}$, в пределах погрешностей эксперимента согласуются с данными работы [10], полученными визуальным методом.

Значения $T_к$ системы 1-пропанол–*н*-гептан для составов $x > 0.2$ мол. доли данной работы согласуются с результатами работ [10, 11] и отличаются от значений, полученных в [9]. Зависимости $\rho_к$ от x, полученные в настоящей работе и в [12–14], хорошо согласуются между собой. Зависимости $\rho_к$ от x из данной работы и из [10] не согласуются, что говорит о большой погрешности определения количества смеси при заполнении рабочей ячейки. В работах [9, 11] значения $\rho_к$ не приведены.

Полученные экспериментальные $(p_s, T_s)_x$- и $(p, \rho, T)_x$-данные системы 1-пропанол–*н*-гептан и определенные на их основе значения параметров ФП (жидкость–пар ⇄ жидкость, жидкость–пар ⇄ пар), КС и Z дают фундаментальную информацию для суждения о структурных изменениях при смешении полярной и неполярной неограниченно растворяющихся друг в друге жидкостей и о структуре раствора, о взаимодействиях разнородных молекул. Полученные результаты могут использоваться при построении моделей потенциалов межмолекулярного взаимодействия и единой теории ФП, при расчете технологического процесса разделения азеотропных смесей спирт–углеводород, оптимизации октанового числа автомобильного топлива и т.д.

Термическое уравнение состояния вириального вида (1) может применяться для аппроксимации ограниченных экспериментальных данных о p_s, ρ_s, T_s вдоль кривой сосуществования фаз бинарных гомогенных жидких систем, состоящих из соединений различных гомологических рядов.

Экспериментально подтверждено, что смесь 1-пропанол–*н*-гептан состава 0.38 мол. доли *н*-гептана при температурах 423.15–521.15 K и давлениях 0.5–4 МПа является азеотропной.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Базаев Э.А., Базаев А.Р.* Фазовые превращения и критические свойства системы $C_3H_7OH–C_5H_{12}$ // ТВТ. 2020. Т. 60. № 1. С. 38.
2. *Базаев Э.А., Базаев А.Р.* Фазовые превращения жидкость–пар и критические свойства системы $C_3H_7OH–C_6H_{14}$ // ТВТ. 2019. Т. 57. № 3. С. 390.
3. *Sipowska J., Wieczorek S.* Vapour Pressures and Excess Gibbs Free Energies of (Propan-1-ol + *n*-Heptane) between 278.164 and 303.147 K // J. Chem. Thermodyn. 1980. V. 12. № 5. P. 459.
4. *Розенгарт М.И.* Техника лабораторной перегонки и ректификации. М.: Госхимиздат, 1951. 194 с.
5. *Abdulagatov I.M., Bazaev A.R., Bazaev E.A., Dzhapparov T.A. PVT* Properties of 1-Propanol in the Critical and Supercritical Regions // J. Supercritical Fluids. 2016. V. 117. P. 172.
6. Thermophysical Properties of Fluid Systems. NIST Chemistry WebBook. SRD 69. https://webbook.nist.gov/chemistry/fluid/
7. *Jacobsen R.T., Penoncello S.G., Lemmon E.W.* Multiparameter Equation of State. In: Equation of State for Fluids and Fluid Mixtures. Experimental Thermodynamics / Eds. Sengers J.V., Kayser R.F., Peters C.J., White H.J. Jr. 2000. V. 5. P. 849.
8. *Уэйлес С.* Фазовые равновесия в химической технологии. Ч. 2. М.: Мир, 1989. 360 с.
9. *Гумеров Ф.М., Сабирзянов А.Н., Гумерова Г.И.* Суб- и сверхкритические флюиды в процессах переработки полимеров. Казань: ФЭН, 2007. 336 с.
10. *Залепутин Д.Ю., Тилькунова Н.А., Чернышева И.В., Поляков В.С.* Развитие технологий, основанных на использовании сверхкритических технологий // Сверхкритические флюиды: теория и практика. 2006. Т. 1. № 1. С. 27.
11. *Карпов С.А., Кунашев Л.Х., Царев А.В., Капустин В.М.* Применение алифатических спиртов в качестве экологически чистых добавок в автомобильные бензины // Нефтегазовое дело. 2006. № 2.
12. *Wang L., Han K., Xia S., Ma P., Yan F.* Measurement and Correlation of Critical Properties for Binary Mixtures and Ternary Mixtures Containing Gasoline Additives // J. Chem. Thermodyn. 2014. V. 74. P. 161.
13. *Zawisza A., Vejrosta J.* High-pressure Liquid-vapour Equilibria, Critical State, and $p(V, T, x)$ up to 573.15 K and 5.066 MPa for (Heptane + Propanol-1) // J. Chem. Thermodyn. 1982. V. 14. P. 239.
14. *Xin N., Liu Y., Guo X., Liu X., Zhang Y., He M.* Determination of Critical Properties for Binary and Ternary Mixtures Containing Propanol and Alkanes Using a Flow View-type Apparatus // J. Supercrit. Fluids. 2016. V. 108. P. 35.
15. *Bazaev A.R., Bazaev E.A., Dzhapparov T.A., Osmanova B.K., Abdulagatov I.M.* Critical, Supercritical and Phase-transition Properties of Binary 1-Propanol + *n*-Heptane Mixtures // J. Mol. Liquids. 2023. V. 379. 121543.
16. *Бэкингем Э.* Основы теории межмолекулярных сил. М.: Мир, 1981.
17. *Стромберг А.Г., Семченко Д.П.* Физическая химия. М.: Высшая школа, 2001.
18. *Васильева И.А., Волков Д.П., Заричняк Ю.П.* Термодинамика химических и фазовых превращений. СПб.: Ун-т ИТМО, 2015.
19. *Циклис Д.С.* Техника физико-химических исследований при высоких и сверхвысоких давлениях. Изд. 4-е, пер. и доп. М.: Химия, 1976. 432 с.
20. *Анисимов М.А., Рабинович В.А., Сычев В.В.* Термодинамика критического состояния индивидуальных веществ. М.: Энергоатомиздат, 1990. 190 с.
21. *Карабекова Б.К., Базаев А.Р.* Уравнение состояния для смесей вода–спирт в широком диапазоне параметров состояния // ЖФХ. 2015. Т. 89. № 9. С. 1386.
22. *Шиманский Ю.И., Шиманская Е.Т.* Расширенное масштабное уравнение для параметра порядка бензола в области фазового равновесия жидкость–пар // ЖФХ. 1996. Т. 70. № 3. С. 443.
23. *Базаев А.Р., Базаев Э.А.* Расчет критических показателей уравнения кривой фазовых равновесий жидкость–пар водных растворов алифатических спиртов // ЖФХ. 2013. Т. 87. № 6. С. 973.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 38–47

УДК 536.71

УРАВНЕНИЕ СОСТОЯНИЯ ОКОЛОКРИТИЧЕСКОЙ БИНАРНОЙ СМЕСИ НА ОСНОВЕ ГИПОТЕЗЫ ПЕРЕМЕШИВАНИЯ

© 2024 г. М. Ю. Беляков*

Институт проблем нефти и газа РАН, Москва, Россия

**E-mail: belyakov@ogri.ru*

Поступила в редакцию 29.06.2023 г.
После доработки 28.08.2023 г.
Принята к публикации 03.10.2023 г.

В работе представлена и проанализирована общая (стандартная) схема построения уравнения состояния околокритической бинарной смеси при постоянном среднем составе. Показано, что уравнение состояния, построенное в рамках стандартной схемы, предсказывает нефизическое поведение некоторых теплофизических характеристик, в частности подробно разобрано поведение критической изохоры смеси. Для устранения проблемы требуется коррекция стандартной схемы. Предложен способ коррекции, состоящий в переходе от гипотезы перемешивания термодинамических полей к перемешиванию термодинамических величин. В результате получено уравнение состояния околокритической бинарной смеси, которое совпадает с уравнением состояния многокомпонентной жидкости.

DOI: 10.31857/S0040364424010066

ВВЕДЕНИЕ

Расчеты теплофизических характеристик жидкостей необходимы для многих научных и технических приложений. Обычно расчеты производятся с использованием уравнения состояния. Поскольку жидкости чрезвычайно разнообразны, для их описания предложено большое количество моделей. В зависимости от практических потребностей часто используются различные модификации кубических [1, 2] и многоконстантных [3–5] уравнений состояния. Однако такие модели не описывают специфические особенности в окрестности критической точки жидкость–пар. В окрестности критической точки свойства жидкости существенно меняются вследствие развитых флуктуаций плотности жидкости, или концентрации жидкой смеси. Поведение околокритических систем становится универсальным, т.е. характерные особенности теплофизических характеристик различных жидкостей становятся одинаковыми. Для описания этих особенностей разработаны уравнения состояния околокритических жидкостей [6–8]. Применительно к жидкостям такие уравнения практически совпадают в непосредственной окрестности критической точки и различаются при удалении от нее. В рамках предложенных моделей получены уравнения состояния конкретных жидких систем [9–11], которые позволяют рассчитывать различные теплофизические характеристики и фазовые диаграммы однокомпонентных жидкостей и жидких смесей. При этом результаты расчетов хорошо согласуются с данными экспериментальных исследований [10, 11].

До последнего времени считалось, что теория околокритических жидкостей в основном построена. Однако в работе [12] было показано, что предсказания теории о поведении некоторых теплофизических характеристик бинарной смеси в общем случае не согласуются с формой фазовых диаграмм. В частности, если критическая точка расположена между точками максимального давления и максимальной температуры, производная от давления по плотности вдоль критической изотермы смеси не может обращаться в ноль в точке перехода, как это следует из теории. Кроме того, в существующей теории производная от давления по температуре вдоль критической изохоры в точке перехода совпадает с производной вдоль пограничной линии. Это может приводить к ситуации, когда при равновесном термодинамическом процессе рост температуры сопровождается снижением давления. Указанные особенности поведения изотермы и изохоры бинарной смеси проявляются в очень узкой окрестности критической точки, которая плохо доступна эксперименту, однако сложность экспериментальной проверки не освобождает от необходимости исключения из теории нефизических предсказаний.

В работе [12] был предложен способ устранения дефектов теории, состоящий в занулении одного коэффициента уравнения состояния. Было показано, что зануление данного коэффициента меняет характер критических аномалий некоторых термодинамических величин. Например, изохорная теплоемкость становится расходящейся. Но проблема не в этом. Оказывается, что наложение такого условия для уравнения состояния приводит к появлению нефизической особенности на фазовой диаграмме смеси. Это не обсуждалось в работе [12]. Заметим, что появление нефизических особенностей непосредственно связано с формой уравнения состояния и со схемой его построения. Поскольку разные схемы построения теоретической модели бинарной смеси основывались на схожих предположениях и давали близкие результаты, сложилось представление об общем (стандартном) подходе. Ниже будет показано, что для устранения проблем в теории необходима коррекция стандартного подхода, и предложен способ такой коррекции.

Цель работы – описание стандартной схемы построения уравнения состояния околокритической бинарной смеси с фиксированным средним составом, анализ уравнения состояния смеси, коррекция стандартной схемы и построение уравнения состояния, которое не дает нефизических результатов.

СТАНДАРТНАЯ СХЕМА ПОСТРОЕНИЯ УРАВНЕНИЯ СОСТОЯНИЯ

Уравнение состояния околокритических жидких систем строится вокруг базовой модели. Базовая модель описывает фазовый переход второго рода, частным случаем которого является критическая точка. Данная модель формулируется на основе флуктуационной теории фазовых переходов [13, 14]. Для этого используется три интенсивные характеристики (поля) h_1, h_2 и h_3, которые обращаются в ноль в точке перехода. Поля h_1 и h_2 рассматриваются как независимые величины, а поле h_3 является потенциалом базовой модели. Дифференциал потенциала имеет вид

$$dh_3 = \varphi_1 dh_1 + \varphi_2 dh_2, \qquad (1)$$

где φ_1 и φ_2 – величины, сопряженные полям (плотности). Существуют разные формулировки базовой модели [7, 10, 11, 15]. Эти формулировки одинаково описывают фазовый переход второго рода и отличаются способом представления. Здесь будем использовать феноменологическую линейную модель [15], где близость к критической точке определяется безразмерным параметром r. Полевые характеристики и плотности в линейной модели зависят от параметра r степенным образом, в частности $h_1 \propto r^{\gamma+\beta}$ $h_2 \propto r$ и $h_3 \propto r^{2-\alpha}$. Кроме того, вблизи критической точки $\varphi_1 \propto r^{\beta}$ и $\varphi_2 \propto r^{1-\alpha}$. Значения критических показателей α, β и γ одинаковы в рамках одного класса универсальности. Жидкости относятся к классу универсальности трехмерной модели Изинга, где критические показатели имеют значения $\alpha \approx 0.11$, $\beta \approx 0.325$, $\gamma = 2 - \alpha - 2\beta \approx 1.24$ [16, 17].

Первоначально теория разрабатывалась для однокомпонентных жидкостей, и базовая модель является основой именно для них. Позднее с помощью идеи изоморфизма удалось обобщить теорию на бинарные смеси. Изоморфные модели [10, 18] хорошо описывают фазовое поведение околокритических смесей во всем диапазоне концентраций компонентов. Однако создать изоморфные модели многокомпонентных смесей не удалось. Для описания свойств многокомпонентных систем был предложен метод, основанный на постоянстве среднего состава компонентов смеси [8, 19]. Этот метод позволяет построить уравнение состояния околокритической жидкой системы с произвольным составом. Для бинарных смесей модели, полученные разными способами, предсказывают одинаковое поведение термодинамических характеристик в окрестности критической точки. Поскольку неизоморфный подход формулируется проще, будем использовать е

Если средний состав смеси не изменяется, то положение критической точки фиксированно. Тогда в качестве термодинамических переменных можно выбрать безразмерные отклонения интенсивных характеристик от их значений в критической точке. Для бинарной смеси такими величинами будут температура $\tau = \dfrac{T}{T_c} - 1$, давление $\Delta\bar{P} = \dfrac{P - P_c}{\rho_c R T_c}$ и химические потенциалы компонентов $\Delta\bar{\mu}_1 = \dfrac{\mu_1 - \mu_{1c}}{R T_c}$ и $\Delta\bar{\mu}_2 = \dfrac{\mu_2 - \mu_{2c}}{R T_c}$, где R – универсальная газовая постоянная, а индекс с обозначает значения в критической точке. В качестве потенциала удобно рассматривать давление

$$d\Delta\bar{P} = \bar{s} d\tau + \bar{\rho} x_1 d\Delta\bar{\mu}_1 + \bar{\rho} x_2 d\Delta\bar{\mu}_2. \qquad (2)$$

Здесь $\bar{s} = \dfrac{s}{\rho_c R}$ – объемная плотность энтропии; $\bar{\rho} = \dfrac{\rho}{\rho_c}$ – средняя плотность; x_1 и x_2 – концентрации компонентов смеси.

Чтобы сформулировать уравнение состояния, необходимо установить соответствие между термодинамическими величинами и характеристиками базовой модели. Такое соответствие обычно устанавливалось с помощью гипотезы перемешивания независимых термодинамических полей τ и $\Delta\bar{\mu}_i$ [20]. При этом вблизи критической точки термодинамический потенциал представляется

в виде суммы сингулярной и регулярной частей: $\Delta\overline{P} = h_3(h_1, h_2) + \overline{P}_{\text{reg}}(\tau, \Delta\overline{\mu}_1, \Delta\overline{\mu}_2)$. С появлением концепции "полного" скейлинга [21, 22] возникла идея рассматривать поля базовой модели с помощью аналитических функций всех термодинамических полей, включая $\Delta\overline{P}$, т.е. в окрестности критической точки поля h_k ($k = 1, 2, 3$) могут быть разложены в степенные ряды

$$h_k = h^c_{k\tau}\tau + h^c_{k1}\Delta\overline{\mu}_1 + h^c_{k2}\Delta\overline{\mu}_2 + h^c_{kP}\Delta\overline{P} + \cdots, \quad (3)$$

где $h^c_{k\ldots}$ – неуниверсальные коэффициенты. Разложения (3) определяют связь между модельными и термодинамическими полями, что позволяет сформулировать уравнение состояния околокритической бинарной смеси.

Из условия связи (3) между полевыми характеристиками определяем плотностные переменные. Подставляя выражения для дифференциалов $dh_k\left(\tau, \Delta\overline{\mu}_1, \Delta\overline{\mu}_2, \Delta\overline{P}\right)$ в соотношение (1) и сравнивая результат с выражением (2), для термодинамических плотностей нетрудно получить

$$\begin{aligned}
\overline{s} &= -\frac{h_{3\tau} - h_{1\tau}\varphi_1 - h_{2\tau}\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}\varphi_1 - h_{2P}\varphi_2},\\
\overline{\rho}x_1 &= -\frac{h_{31} - h_{11}\varphi_1 - h_{21}\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}\varphi_1 - h_{2P}\varphi_2},\\
\overline{\rho}x_2 &= -\frac{h_{32} - h_{12}\varphi_1 - h_{22}\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}\varphi_1 - h_{2P}\varphi_2}.
\end{aligned} \quad (4)$$

Частные производные $h_{kx} = \left(\partial h_k/\partial x\right)$ в формулах (4) также являются аналитическими функциями термодинамических полей и могут быть представлены в виде рядов по степеням аргументов. Используя разложения величин $h_{kx}\left(\tau, \Delta\overline{\mu}_1, \Delta\overline{\mu}_2, \Delta\overline{P}\right)$ вблизи критической точки, для плотностей находим

$$\begin{aligned}
\Delta\overline{\rho}x_1 &= \overline{\rho}x_1 - x_1 = a_{1\varphi_1}\varphi_1 + a_{1\varphi_2}\varphi_2 + a_{1\tau}\tau +\\
&+ a_{11}\Delta\overline{\mu}_1 + a_{12}\Delta\overline{\mu}_2 + a_{1P}\Delta\overline{P} + \cdots,\\
\Delta\overline{\rho}x_2 &= \overline{\rho}x_2 - x_2 = a_{2\varphi_1}\varphi_1 + a_{2\varphi_2}\varphi_2 + a_{2\tau}\tau +\\
&+ a_{21}\Delta\overline{\mu}_1 + a_{22}\Delta\overline{\mu}_2 + a_{2P}\Delta\overline{P} + \cdots,\\
\Delta\overline{s} &= \overline{s} - \overline{s}_c = a_{s\varphi_1}\varphi_1 + a_{s\varphi_2}\varphi_2 + a_{s\tau}\tau +\\
&+ a_{s1}\Delta\overline{\mu}_1 + a_{s2}\Delta\overline{\mu}_2 + a_{sP}\Delta\overline{P} + \cdots,
\end{aligned} \quad (5)$$

где коэффициенты h^c_{3x} определены как $h^c_{3P} = 1$, $h^c_{31} = -x_1$, $h^c_{32} = -x_2$ и $h^c_{3\tau} = -\overline{s}_c$. Параметры $a_{x\ldots}$ представляют собой комбинации коэффициентов $h^c_{k\ldots}$ из разложений аналитических функций $h_k\left(\tau, \Delta\overline{\mu}_1, \Delta\overline{\mu}_2, \Delta\overline{P}\right)$ и $h_{kx}\left(\tau, \Delta\overline{\mu}_1, \Delta\overline{\mu}_2, \Delta\overline{P}\right)$.

Теперь можно построить уравнение состояния околокритической бинарной смеси. Для этого будем рассматривать выражения (3) и (5) как систему уравнений относительно термодинамических величин τ, $\Delta\overline{\mu}_1$, $\Delta\overline{\mu}_2$, $\Delta\overline{P}$, $\Delta\overline{\rho}$ и $\Delta\overline{s}$. В общем случае это нелинейная система, решение которой вблизи критической точки может быть получено с любой точностью по теории возмущений. Если ограничиться главным приближением, то система уравнений (3) и (5) будет линейной, и ее решение имеет вид

$$\begin{aligned}
\Delta\overline{\mu}_1 &= c_1\Delta\overline{P} + b_{1h_1}h_1 + b_{1h_2}h_2 + b_{1h_3}h_3 + \cdots,\\
\Delta\overline{\mu}_2 &= c_2\Delta\overline{P} + b_{2h_1}h_1 + b_{2h_2}h_2 + b_{2h_3}h_3 + \cdots,\\
\tau &= c_\tau\Delta\overline{P} + b_{\tau h_1}h_1 + b_{\tau h_2}h_2 + b_{\tau h_3}h_3 + \cdots,\\
\Delta\overline{P} &= b_{P\varphi_1}\varphi_1 + b_{P\varphi_2}\varphi_2 + b_{Ph_1}h_1 +\\
&+ b_{Ph_2}h_2 + b_{Ph_3}h_3 + \cdots,\\
\Delta\overline{\rho} &= c_{\rho\varphi_1}\varphi_1 + c_{\rho\varphi_2}\varphi_2 + c_{\rho h_1}h_1 +\\
&+ c_{\rho h_2}h_2 + c_{\rho h_3}h_3 + \cdots,\\
\Delta\overline{s} &= b_{s\varphi_1}\varphi_1 + b_{s\varphi_2}\varphi_2 + b_{sh_1}h_1 +\\
&+ b_{sh_2}h_2 + b_{sh_3}h_3 + \cdots.
\end{aligned} \quad (6)$$

Выражения (6) определяют уравнение состояния околокритической бинарной смеси. Заметим, что в таком виде уравнение применимо только в однофазной области. Чтобы получить уравнение состояния в двухфазной области, следует учесть соотношения баланса. Как показано в Приложении, использование балансовых соотношений эквивалентно подстановке плотности φ_1, рассчитанной по уравнению для средней плотности: $\varphi_1 = \Delta\overline{\rho}/c_{\rho\varphi_1} + \cdots$. В результате уравнение состояния приобретает окончательный вид

$$\begin{aligned}
\Delta\overline{\mu}_1 &= c_1\left(c_{P\varphi_1}\Delta\overline{\rho} + c_{P\varphi_2}\varphi_2\right) +\\
&+ c_{1h_1}h_1 + c_{1h_2}h_2 + c_{1h_3}h_3 + \cdots,\\
\Delta\overline{\mu}_2 &= c_2\left(c_{P\varphi_1}\Delta\overline{\rho} + c_{P\varphi_2}\varphi_2\right) +\\
&+ c_{2h_1}h_1 + c_{2h_2}h_2 + c_{2h_3}h_3 + \cdots,\\
\tau &= c_\tau\left(c_{P\varphi_1}\Delta\overline{\rho} + c_{P\varphi_2}\varphi_2\right) +\\
&+ c_{\tau h_1}h_1 + c_{\tau h_2}h_2 + c_{\tau h_3}h_3 + \cdots,\\
\Delta\overline{P} &= \left(c_{P\varphi_1}\Delta\overline{\rho} + c_{P\varphi_2}\varphi_2\right) +\\
&+ c_{Ph_1}h_1 + c_{Ph_2}h_2 + c_{Ph_3}h_3 + \cdots,\\
\Delta\overline{\rho} &= c_{\rho\varphi_1}\varphi_1 + c_{\rho\varphi_2}\varphi_2 + c_{\rho h_1}h_1 +\\
&+ c_{\rho h_2}h_2 + c_{\rho h_3}h_3 + \cdots,\\
\Delta\overline{s} &= c_{s\varphi_1}\Delta\overline{\rho} + c_{s\varphi_2}\varphi_2 + c_{sh_1}h_1 +\\
&+ c_{sh_2}h_2 + c_{sh_3}h_3 + \cdots.
\end{aligned} \quad (7)$$

Данная формулировка применима как в однофазной, так и в двухфазной областях. Коэффициенты c_x и $c_{x\ldots}$ являются неуниверсальными параметрами и зависят от конкретной жидкой системы. Из выражений (7) видно, что термодинамические поля содержат плотности в виде комбинации $c_{P\varphi_1}\Delta\bar{\rho} + c_{P\varphi_2}\varphi_2$. Эта особенность отличает уравнение состояния бинарной смеси (7) от уравнения состояния многокомпонентной жидкости [8, 11, 19], где плотности $\Delta\bar{\rho}$ и φ_2 представлены независимо. Как следствие, предсказания о критическом поведении бинарных смесей, сделанные на основе (7), отличаются от многокомпонентных систем. При этом оказывается, что некоторые теоретические результаты не согласуются с формой фазовых диаграмм.

ПРОБЛЕМЫ СТАНДАРТНОЙ СХЕМЫ

Уравнение состояния (7) позволяет воспроизвести специфические особенности поведения характеристик околокритической бинарной смеси. Эти особенности полностью совпадают с существующими теоретическими представлениями [23]. Однако для некоторых характеристик предсказывается нефизическое поведение. Рассмотрим, например, критическую изотерму и критическую изохору смеси. Используя уравнение состояния (7), можно получить выражения для производных вдоль этих линий

$$\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_{T,x} = RT_c\left(\frac{\partial \Delta\bar{P}}{\partial \Delta\bar{\rho}}\right)_{\tau,x} = RT_c\left(\frac{c_{P\varphi_1}\left(c_{\tau h_2} - c_\tau c_{Ph_2}\right) + \cdots}{c_\tau c_{P\varphi_2}\chi_2^{(1,2)} + c_{\tau h_2} + \cdots}\right),$$
$$\left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_{\rho,x} = \rho_c R\left(\frac{\partial \Delta\bar{P}}{\partial \tau}\right)_{\Delta\bar{\rho},x} = \rho_c R\left(\frac{c_{P\varphi_2}\chi_2^{(1,2)} + c_{Ph_2} + \cdots}{c_\tau c_{P\varphi_2}\chi_2^{(1,2)} + c_{\tau h_2} + \cdots}\right), \quad (8)$$

где обозначение $\chi_2^{(1)} = \chi_2 - \chi_{12}^2/\chi_1$ относится к однофазной, а $\chi_2^{(2)} = \chi_2$ к двухфазной области. Величины $\chi_1 = \left(\partial\varphi_1/\partial h_1\right)_{h_2} \propto r^{-\gamma}$, $\chi_{12} = \left(\partial\varphi_1/\partial h_2\right)_{h_1} = \left(\partial\varphi_2/\partial h_1\right)_{h_2} \propto r^{\beta-1}$ и $\chi_2 = \left(\partial\varphi_2/\partial h_2\right)_{h_1} \propto r^{-\alpha}$ определяют обобщенные восприимчивости базовой модели, расходящиеся в критической точке смеси, причем $\chi_2^{(1,2)} \propto r^{-\alpha}$.

Заметим, что из уравнения состояния (7) можно определить тип особенности (например, наличие или отсутствие расходимости), а также воспроизвести эффект перенормировки критических показателей [24], который возникает на конкретном термодинамическом пути. В данной работе рассматривается именно принципиальный тип особенности. Важно, что обобщенные восприимчивости $\chi_2^{(1,2)}$ в выражениях (8) расходятся в критической точке. Привлечение линейной модели дает наглядность и позволяет контролировать характер расходимости.

Кроме того, вблизи критической точки из уравнений (7) нетрудно получить P–T, P–ρ и T–ρ пограничные линии бинарной смеси:

$$\Delta\bar{P} = \frac{1}{c_\tau}\tau + \cdots,$$
$$\Delta\bar{P} = c_{P\varphi_1}\Delta\bar{\rho} + \cdots, \quad (9)$$
$$\tau = c_\tau c_{P\varphi_1}\Delta\bar{\rho} + \cdots.$$

На рис. 1 схематически представлены пограничные линии смеси в случае, когда критическая точка CP находится между точками максимального давления CCP и максимальной температуры CCT [25]. Пограничные линии разделяют области однофазного и двухфазного состояний. Легко видеть, что изображенная на рисунке ситуация описывается правильно, если в выражениях (9) $c_\tau < 0$, а $c_{P\varphi_1} > 0$. Такой вид фазовых диаграмм характерен для многих жидких смесей, имеющих непрерывные критические линии при условии $dP_c/dT_c < 0$. Например, это различные смеси углеводородов, смеси на основе CO_2 и т.п. Заметим также, что в P–T-координатах линия критических точек $P_c\left(T_c\right)$ является огибающей полного набора пограничных линий [25]. Поэтому в критической точке выполняется условие $\left(dP_c/dT_c\right) = \left(\partial P/\partial T\right)_{\text{DBC}}^{(c)}$, где индекс DBC обозначает производную вдоль пограничной линии.

В работе [12] показано, что при таком расположении критической точки на фазовых диаграммах бинарной смеси возникают проблемы с некоторыми предсказаниями флуктуационной теории. В частности, производная вдоль критической изотермы не может обращаться в ноль в точке перехода, как это следует из выражения (8): $\left(\partial P/\partial\rho\right)_{T,x} \propto 1/\chi_2^{(1,2)} \propto r^\alpha$. Кроме того, для критической изохоры из выражений (8) и (9) легко видеть, что $\left(\partial\Delta\bar{P}/\partial\tau\right)_{\Delta\bar{\rho},x}^{(c)} = \left(\partial\Delta\bar{P}/\partial\tau\right)_{\text{DBC}}^{(c)} = 1/c_\tau$, т.е. производная вдоль изохоры в критической точке совпадает с производной вдоль пограничной линии. Если коэффициент c_τ меньше нуля, то $\left(\partial\Delta\bar{P}/\partial\tau\right)_{\Delta\bar{\rho},x}^{(c)} < 0$. Значит, в окрестности критической точки бинарной смеси при изохорном процессе рост

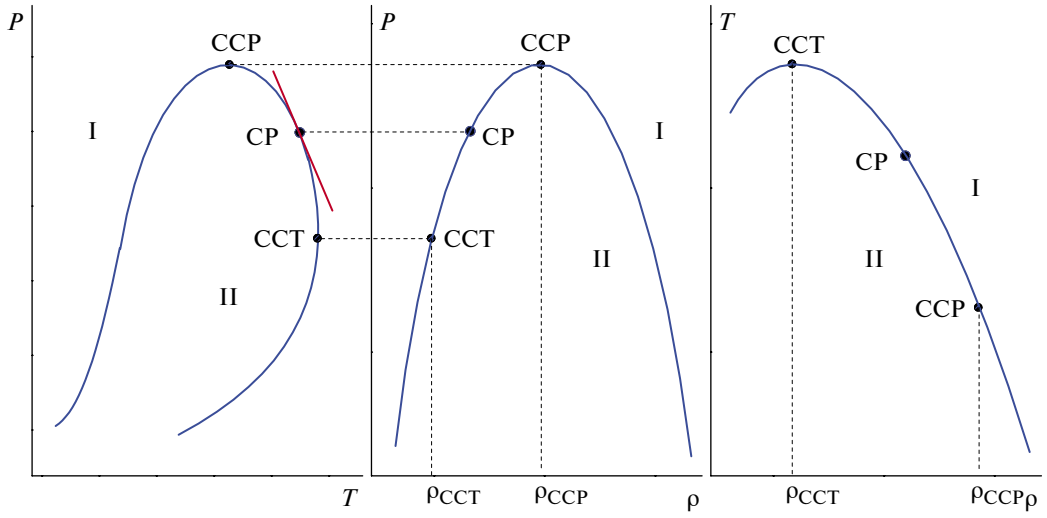

Рис. 1. Соответствие между пограничными линиями бинарной смеси на P–T-, P–ρ- и T–ρ-плоскостях: кривые ограничивают область двухфазного состояния при заданной концентраций компонентов смеси; точки ССР и ССТ – максимальные давление и температура, при которых существует двухфазное равновесие; СР – возможное положение критической точки.

температуры должен сопровождаться снижением давления. Такая особенность поведения изохоры была отмечена в работах [12, 19]. Однако в случае, представленном на рис. 1, описанное поведение критической изохоры оказывается невозможным.

На рис. 2 показан возможный вид изохоры A и B вблизи критической точки при наличии общей касательной с пограничной линией, а также изображена критическая изохора в P–ρ-координатах. Если изохора проходит по пути A, возникает проблема, связанная с неоднозначностью состояния физической системы. На участке C_1–СР в P–T-координатах система находится в двухфазном состоянии, а в P–ρ-координатах – в однофазном. Аналогичная неоднозначность имеется на участке между точками C_2 и СР. Значит, прохождение критической изохоры по пути A невозможно. Кажется, что для пути B проблемы не возникает. На рис. 3 путь B представлен в T–P-координатах вместе с критической изохорой на T–ρ-плоскости. Несмотря на разные координаты, легко видеть, что ситуации на рис. 2, 3 полностью эквивалентны и вариант B для критической изохоры также невозможен. Таким образом, совпадение производных вдоль изохоры и пограничной линии в точке перехода не согласуется с фазовыми диаграммами, изображенными на рис. 1.

Описанное поведение критической изохоры бинарной смеси следует непосредственно из уравнения состояния (7). В среднеполевых моделях данная особенность не возникает. Проблема отсутствует и для многокомпонентных систем, поскольку производные вдоль изохоры и пограничной линии не совпадают. Экспериментально подтвердить утверждение о касании критической изохоры и пограничной линии бинарной смеси достаточно сложно. На практике для производной вдоль околокритической изохоры имеет место аномалия типа пик при условии $(\partial P/\partial T)_{\rho,x} \geqslant 0$. Такое поведение наблюдалось для различных жидких систем [8, 19]. С учетом проблемы с поведением критической изотермы бинарной смеси возникает необходимость коррекции существующей теории.

Чтобы устранить обозначенные проблемы, в работе [12] было предложено наложить на коэффициенты уравнения состояния (7) условие

$$c_{P\varphi_2} = 0. \qquad (10)$$

В этом случае из выражений (8) и (9) следует, что $\left(\partial P/\partial \rho\right)^{(c)}_{T,x} \neq 0$ и $\left(\partial P/\partial T\right)^{(c)}_{\rho,x} \neq \left(\partial P/\partial T\right)^{(c)}_{\text{ДВС}}$. Так, условие (10) формально устраняет противоречия из теории околокритических бинарных смесей. Однако возможность зануления коэффициента $c_{P\varphi_2}$ ранее не обсуждалась. Заметим, что для построения уравнения состояния определен набор коэффициентов $h^c_{k\ldots}$ в разложениях (3). Остальные неуниверсальные параметры модели выражаются через эти коэффициенты. Значит, параметры c_x в уравнениях (7) представляют собой комбинации коэффициентов $h^c_{k\ldots}$. При этом параметры $c_{P\varphi_2}$ и c_τ оказываются пропорциональными одинаковой комбинации $h^c_{k\ldots}$, поэтому наложение условия (10) означает также зануление параметра c_τ. Но тождественное зануление параметра c_τ невозможно. Как видно из уравнений (9), если $c_\tau = 0$, в критической

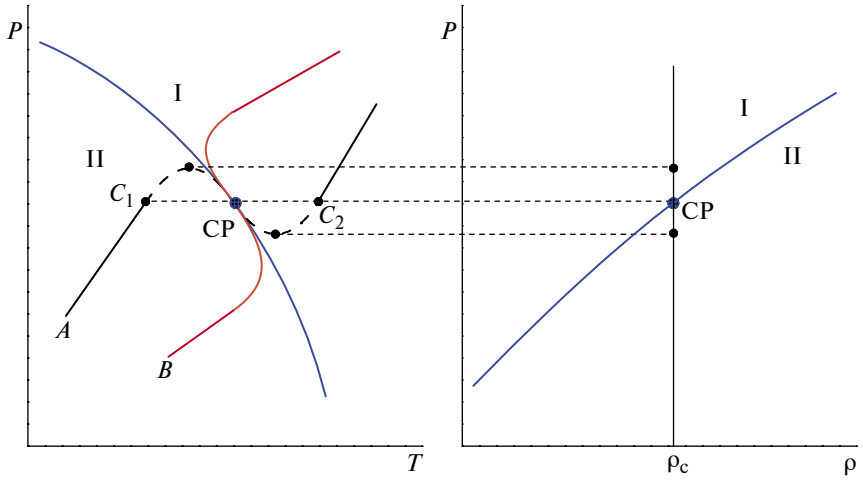

Рис. 2. Качественная иллюстрация возможного поведения критической изохоры бинарной смеси (кривые *A*, *B*) при условии $\left(\partial P/\partial T\right)^{(c)}_{\rho,x} = \left(\partial P/\partial T\right)^{(c)}_{\mathrm{DBC}}$ в точке перехода CP; наклонные кривые – пограничные линии.

точке P–T пограничной линии появляется особенность $\left(\partial T/\partial P\right)^{(c)}_{\mathrm{DBC}} = 0$. Такая особенность должна существовать при произвольной концентрации смеси. Это не согласуется с тем, что линия критических точек $P_c\left(T_c\right)$ является огибающей семейства P–T пограничных линий бинарной смеси [25].

Таким образом, для устранения проблем, связанных с утверждениями теории о поведении критической изотермы и изохоры бинарной смеси, необходимо зануление коэффициента $c_{P\varphi_2}$ в уравнении состояния (7). При наложении условия (10) в рамках стандартной схемы построения уравнения состояния происходит обязательное зануление коэффициента c_τ. Однако зануление коэффициента c_τ невозможно, так как в этом случае возникает противоречие с общими представлениями о форме фазовых диаграмм бинарной смеси. Получается замкнутый круг, для выхода из которого требуется модификация стандартной схемы построения уравнения состояния.

КОРРЕКЦИЯ СТАНДАРТНОЙ СХЕМЫ

Стандартная схема построения уравнения состояния околокритической бинарной смеси основана на гипотезе перемешивания термодинамических полей (3). Сначала эта гипотеза была предложена для учета асимметрии чистых веществ [20, 21]. Позднее идея была перенесена на смеси [22]. Уравнение состояния в форме (7) получается в результате использования этой гипотезы. Таким образом, коррекция схемы построения уравнения состояния предполагает изменение представления о перемешивании (3). Заметим, что термодинамические поля $\Delta\bar{\mu}_1$, $\Delta\bar{\mu}_2$, τ и $\Delta\bar{P}$ в выражениях (7) зависят от плотностей $\Delta\bar{\rho}$ и φ_2. Это принципиально отличает уравнение состояния околокритической смеси от уравнения состояния чистого вещества, где термодинамические поля зависят только от полей базовой модели h_k. Как следствие, отличаются теоретические предсказания о форме фазовых диаграмм. В данной связи предположим, что поля h_k являются функциями не только термодинамических полей, но и плотностей: $h_k\left(\tau,\Delta\bar{\mu}_1,\Delta\bar{\mu}_2,\Delta\bar{P}\right) \to h_k\left(\tau,\Delta\bar{\mu}_1,\Delta\bar{\mu}_2,\Delta\bar{P},\Delta\bar{\rho},\Delta\bar{s}\right)$.

Тогда вместо разложений (3) вблизи критической точки имеем

$$\begin{aligned} h_k &= h^c_{k\tau}\tau + h^c_{k1}\Delta\bar{\mu}_1 + h^c_{k2}\Delta\bar{\mu}_2 + \\ &+ h^c_{kP}\Delta\bar{P} + h^c_{k\rho}\Delta\bar{\rho} + h^c_{ks}\Delta\bar{s} + \cdots. \end{aligned} \tag{11}$$

Дальнейшее построение аналогично построению стандартной схемы. Используя дифференциалы функций $h_k\left(\tau,\Delta\bar{\mu}_1,\Delta\bar{\mu}_2,\Delta\bar{P},\Delta\bar{\rho},\Delta\bar{s}\right)$ и соотношения (1) и (2), можно воспроизвести выражения (4). Отметим, что при получении этих выражений появляются два дополнительных условия

$$\begin{aligned} h_{3\rho} &= h_{1\rho}\varphi_1 + h_{2\rho}\varphi_2, \\ h_{3s} &= h_{1s}\varphi_1 + h_{2s}\varphi_2, \end{aligned} \tag{12}$$

где, как и раньше, $h_{kx} = \left(\partial h_k/\partial x\right)$. Условия (12) накладывают ограничения на коэффициенты разложений (11). В частности, из них следует, что $h^c_{3\rho} = h^c_{3s} = 0$. Подставляя теперь разложения величин $h_{kx}\left(\tau,\Delta\bar{\mu}_1,\Delta\bar{\mu}_2,\Delta\bar{P},\Delta\bar{\rho},\Delta\bar{s}\right)$ в выражения (4), для термодинамических плотностей в окрестности критической точки бинарной смеси формулируем три уравнения:

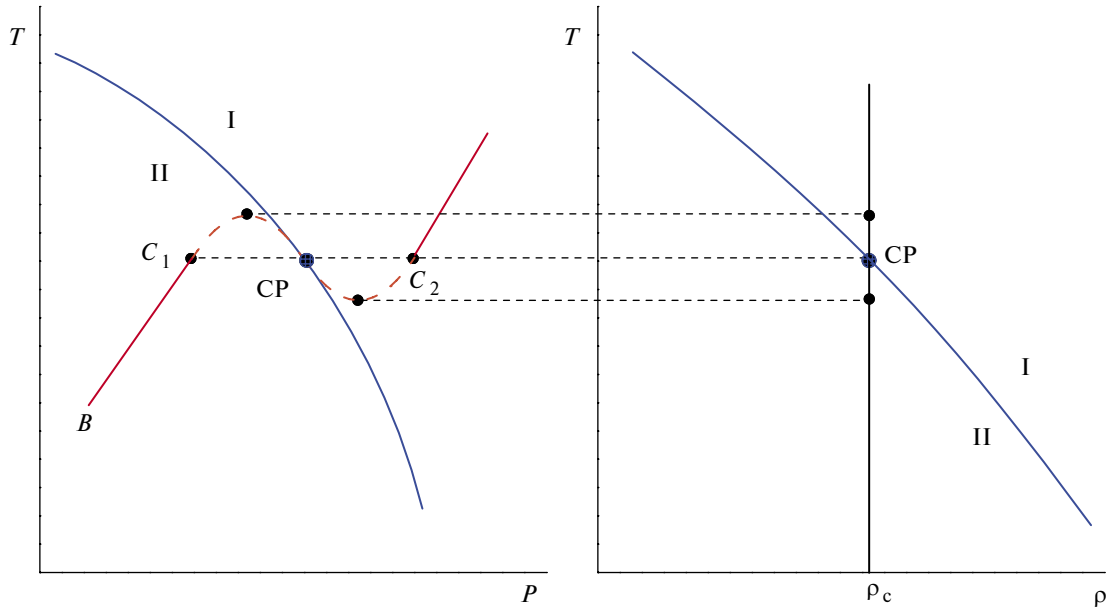

Рис. 3. Поведение критической изохоры на траектории B при условии $\left(\partial P/\partial T\right)^{(c)}_{\rho,x} = \left(\partial P/\partial T\right)^{(c)}_{\text{DBC}}$ в точке перехода CP; наклонные кривые – пограничные линии.

$$a_{n\rho}\Delta\bar{\rho} + a_{ns}\Delta\bar{s} = a_{n\varphi_1}\varphi_1 + a_{n\varphi_2}\varphi_2 + a_{n\tau}\tau + \\ + a_{n1}\Delta\bar{\mu}_1 + a_{n2}\Delta\bar{\mu}_2 + a_{nP}\Delta\bar{P} + \cdots, \tag{13}$$

где $n = 1, 2, 3$. Неуниверсальные параметры $a_{x\ldots}$ являются комбинациями коэффициентов $h^c_{k\ldots}$, причем $h^c_{3P} = 1$, $h^c_{31} = -x_1$, $h^c_{32} = -x_2$ и $h^c_{3\tau} = -\bar{s}_c$.

Уравнения (13) аналогичны выражениям (5) и вместе с разложениями полей (11) определяют систему уравнений относительно термодинамических величин τ, $\Delta\bar{\mu}_1$, $\Delta\bar{\mu}_2$, $\Delta\bar{P}$, $\Delta\bar{\rho}$ и $\Delta\bar{s}$. Общее решение системы (11), (13) может быть получено по теории возмущений. В главном порядке это нетрудно сделать, поскольку система линейная. Учитывая соотношения баланса в двухфазной области, окончательно имеем:

$$\Delta\bar{\mu}_1 = c_{1\varphi_1}\Delta\bar{\rho} + c_{1\varphi_2}\varphi_2 + \\ + c_{1h_1}h_1 + c_{1h_2}h_2 + c_{1h_3}h_3 + \cdots, \\ \Delta\bar{\mu}_2 = c_{2\varphi_1}\Delta\bar{\rho} + c_{2\varphi_2}\varphi_2 + \\ + c_{2h_1}h_1 + c_{2h_2}h_2 + c_{2h_3}h_3 + \cdots, \\ \tau = c_{\tau\varphi_1}\Delta\bar{\rho} + c_{\tau\varphi_2}\varphi_2 + c_{\tau h_1}h_1 + \\ + c_{\tau h_2}h_2 + c_{\tau h_3}h_3 + \cdots, \tag{14}$$

$$\Delta\bar{P} = c_{P\varphi_1}\Delta\bar{\rho} + c_{P\varphi_2}\varphi_2 + \\ + c_{Ph_1}h_1 + c_{Ph_2}h_2 + c_{Ph_3}h_3 + \cdots, \\ \Delta\bar{\rho} = c_{\rho\varphi_1}\varphi_1 + c_{\rho\varphi_2}\varphi_2 + c_{\rho h_1}h_1 + \\ + c_{\rho h_2}h_2 + c_{\rho h_3}h_3 + \cdots, \\ \Delta\bar{s} = c_{s\varphi_1}\Delta\bar{\rho} + c_{s\varphi_2}\varphi_2 + c_{sh_1}h_1 + \\ + c_{sh_2}h_2 + c_{sh_3}h_3 + \cdots.$$

Эти разложения представляют собой обобщенное уравнение состояния околокритической бинарной смеси, полученное на основе предположения о перемешивании всех термодинамических величин. Данная формулировка отличается от уравнения состояния (7) тем, что коэффициенты $c_{x\ldots}$ независимы и выражения (14) не содержат одинаковой комбинации плотностей $\Delta\bar{\rho}$ и φ_2. Такая форма совпадает с общим уравнением состояния многокомпонентной смеси [8, 11]. Соответственно, критические аномалии будут такими же, как в многокомпонентных системах, что исключает нефизическое поведение для бинарной смеси.

Например, из формул (14) для производных вдоль критической изотермы и изохоры можно получить

$$\left(\frac{\partial\Delta\bar{P}}{\partial\Delta\bar{\rho}}\right)_{\tau,x} = \frac{\left(c_{P\varphi_1}c_{\tau\varphi_2} - c_{P\varphi_2}c_{\tau\varphi_1}\right)\chi_2^{(1,2)} + c_{P\varphi_1}c_{\tau h_2} - c_{Ph_2}c_{\tau\varphi_1} + \cdots}{c_{\tau\varphi_2}\chi_2^{(1,2)} + c_{\tau h_2} + \cdots},$$

$$\left(\frac{\partial\Delta\overline{P}}{\partial\tau}\right)_{\Delta\overline{\rho},x} = \frac{c_{P\varphi_2}\chi_2^{(1,2)} + c_{Ph_2} + \cdots}{c_{\tau\varphi_2}\chi_2^{(1,2)} + c_{\tau h_2} + \cdots},$$

где $\chi_2^{(1,2)} \propto r^{-\alpha}$. Кроме того, нетрудно получить выражения для пограничных линий вблизи критической точки

$$\begin{gathered}\Delta\overline{P} = \frac{c_{P\varphi_1}}{c_{\tau\varphi_1}}\tau + \cdots,\\ \Delta\overline{P} = c_{P\varphi_1}\Delta\overline{\rho} + \cdots,\\ \tau = c_{\tau\varphi_1}\Delta\overline{\rho} + \cdots.\end{gathered} \qquad (15)$$

При этом никаких принципиальных противоречий не возникает. В критической точке производная вдоль изотермы не обращается в ноль – $\left(\partial\Delta\overline{P}/\partial\Delta\overline{\rho}\right)_{\tau,x}^{(c)} \neq 0$, а производные вдоль изохоры и P—T пограничной линии не совпадают: $\left(\partial\Delta\overline{P}/\partial\tau\right)_{\Delta\overline{\rho},x}^{(c)} \neq \left(\partial\Delta\overline{P}/\partial\tau\right)_{\text{DBC}}^{(c)}$. Все ограничивается общими неравенствами для возможных значений коэффициентов $c_{x\ldots}$.

Таким образом, представлены две формы уравнения состояния (7) и (14), полученные на основе различных предположений о соответствии термодинамических величин и параметров базовой модели. Хотя оба уравнения предсказывают сходные фазовые диаграммы околокритической бинарной смеси (9) и (15), предсказания о поведении теплофизических характеристик смеси в окрестности критической точки принципиально различаются. Возникает вопрос о выборе правильной формы уравнения состояния. На основании гипотезы о перемешивании выбор сделать нельзя, но уравнение состояния (14) выглядит предпочтительнее. В данной формулировке не возникает противоречий между поведением теплофизических характеристик и фазовыми диаграммами смеси. Кроме того, уравнение состояния (14) имеет более симметричную структуру и может воспроизводить результаты уравнения (7). Наконец, фазовые диаграммы на рис. 1 выглядят одинаково для любых (бинарных и многокомпонентных) жидких смесей при фиксированном среднем составе.

Ответить на вопрос о форме уравнения состояния околокритической бинарной смеси мог бы эксперимент. К сожалению, область, где проявляются нефизические особенности уравнения (7), очень узка. Например, для критической изотермы в системе метан–этан это происходит при плотностях $\Delta\overline{\rho} < 10^{-5}$, поэтому, чтобы прояснить ситуацию, нужны специальные исследования.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе рассмотрены проблемы описания бинарной жидкости в окрестности критической точки жидкость–пар. Традиционно построение уравнения состояния основывалось на гипотезе перемешивания термодинамических полей (3). При этом для бинарной смеси получается уравнение состояния (7). Уравнение сформулировано в виде разложений термодинамических величин по характеристикам базовой модели, которая определяет особенности поведения околокритической жидкости. Для бинарных смесей уравнения (7) содержат в правых частях одинаковую линейную комбинацию плотностей $\Delta\overline{\rho}$ и φ_2, что отличает их от уравнений для однокомпонентных и многокомпонентных систем. Как следствие, предсказания об особенностях поведения теплофизических характеристик бинарных жидкостей отличаются от предсказаний для чистых веществ и многокомпонентных смесей.

Эти особенности хорошо известны [23] и до последнего времени не вызывали сомнений. Однако в работе [12] было показано, что некоторые предсказания, сделанные в рамках уравнения состояния (7), не согласуются с формой фазовых диаграмм. Например, это особенности, возникающие в точке фазового перехода на критической изотерме и изохоре. Подробный анализ показывает, что для устранения проблемы необходим пересмотр общей схемы построения уравнения состояния.

В работе представлена модификация способа построения теоретической модели, которая приводит к другой форме уравнения состояния околокритической бинарной смеси. Это обеспечивается переходом от перемешивания полей (3) к перемешиванию термодинамических величин (11). В результате получается уравнение состояния (14). Новое уравнение состояния бинарной смеси совпадает с уравнением состояния многокомпонентной жидкости, вследствие чего изменяются предсказания для критических аномалий. В частности, уравнение состояния (14) не предсказывает нефизических особенностей на изотерме и изохоре бинарной смеси, которые следуют из уравнения (7).

Работа поддержана в рамках программы финансирования РАН НИИР FMME-2022-0008 (№ 122022800364-6).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Влияние соотношений баланса на термодинамические плотности. Рассмотрим двухфазную область N-компонентной жидкой смеси. Прежде всего, определим общие характеристики системы. Пусть n_i – число молей i-го компонента смеси,

V – полный объем системы, $n = \sum_{i=1}^{N} n_i$ – общее число молей. Тогда $\rho = n/V$ – средняя мольная плотность смеси, а $\rho_i = n_i/V$ – средняя мольная плотность i-го компонента. Заметим, что в двухфазной области сосуществуют жидкая L и газовая G фазы, причем общее количество вещества в системе предполагается неизменным. Это позволяет написать

$$\rho_i = \frac{n_i}{V} = \frac{n_{iL} + n_{iG}}{V} = \\ = \frac{n_{iL}}{V_L}\frac{V_L}{V} + \frac{n_{iG}}{V_G}\frac{V_G}{V} = \rho_{iL}\,\bar{V}_L + \rho_{iG}\,\bar{V}_G, \tag{16}$$

где $\bar{V}_{L,G} = V_{L,G}/V$. Для средней плотности ρ также можем написать

$$\rho = \frac{n}{V} = \frac{n_L + n_G}{V} = \\ = \frac{n_L}{V_L}\frac{V_L}{V} + \frac{n_G}{V_G}\frac{V_G}{V} = \rho_L\,\bar{V}_L + \rho_G\,\bar{V}_G. \tag{17}$$

Поскольку $\bar{V}_L + \bar{V}_G = 1$, из уравнений (16) и (17) нетрудно получить нормированную плотность i-го компонента смеси $\bar{\rho}_i = \rho_i/\rho_c$, учитывающую соотношения баланса

$$\bar{\rho}_i = \frac{\bar{\rho}\left(\bar{\rho}_{iL} - \bar{\rho}_{iG}\right) + \left(\bar{\rho}_L\,\bar{\rho}_{iG} - \bar{\rho}_G\,\bar{\rho}_{iL}\right)}{\bar{\rho}_L - \bar{\rho}_G}. \tag{18}$$

Кроме того, для безразмерной энтропии единицы объема имеем

$$\bar{s} = s/\rho_c R = \frac{\bar{S}}{V} = \frac{\bar{S}_L}{V_L}\frac{V_L}{V} + \frac{\bar{S}_G}{V_G}\frac{V_G}{V} = \\ = \bar{s}_L\,\bar{V}_L + \bar{s}_G\,\bar{V}_G = \frac{\bar{\rho}\left(\bar{s}_L - \bar{s}_G\right) + \bar{\rho}_L\bar{s}_G - \bar{\rho}_G\,\bar{s}_L}{\bar{\rho}_L - \bar{\rho}_G}. \tag{19}$$

Помимо соотношений, полученных на основе баланса, можно получить выражения, связывающие термодинамические плотности и плотности базовой модели. В случае околокритической бинарной смеси это выражения (4). Для N-компонентной смеси такие выражения имеют вид [8]

$$\bar{\rho}_i = -\frac{h_{3i} - h_{1i}\varphi_1 - h_{2i}\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}\varphi_1 - h_{2P}\varphi_2}, \\ \bar{s} = -\frac{h_{3\tau} - h_{1\tau}\varphi_1 - h_{2\tau}\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}\varphi_1 - h_{2P}\varphi_2}, \tag{20}$$

где производные $h_{kx} = \partial h_k/\partial x$ являются аналитическими функциями аргументов $\Delta\bar{\mu}_i$, τ и $\Delta\bar{P}$. Из уравнений (20) нетрудно получить соотношение для средней плотности

$$\bar{\rho} = \sum_{i=1}^{N}\bar{\rho}_i = -\frac{H_3 - H_1\varphi_1 - H_2\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}\varphi_1 - h_{2P}\varphi_2}, \tag{21}$$

где $H_k = \sum_{i=1}^{N} h_{ki}$. В двухфазной области выражения (20) и (21) могут быть сформулированы для жидкой и газовой фаз. При этом функции h_{kx} и H_k одинаковы в сосуществующих фазах, поскольку зависят только от интенсивных характеристик. Единственное отличие в знаке модельной плотности φ_1 ($\varphi_1 > 0$ в жидкой фазе и $\varphi_1 < 0$ в газовой фазе). Значит, в двухфазной области можем написать

$$\bar{\rho}_L = -\frac{H_3 - H_1|\varphi_1| - H_2\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}|\varphi_1| - h_{2P}\varphi_2}, \\ \bar{\rho}_{iL} = -\frac{h_{3i} - h_{1i}|\varphi_1| - h_{2i}\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}|\varphi_1| - h_{2P}\varphi_2}, \\ \bar{s}_L = -\frac{h_{3\tau} - h_{1\tau}|\varphi_1| - h_{2\tau}\varphi_2}{h_{3P} - h_{1P}|\varphi_1| - h_{2P}\varphi_2}, \\ \bar{\rho}_G = -\frac{H_3 + H_1|\varphi_1| - H_2\varphi_2}{h_{3P} + h_{1P}|\varphi_1| - h_{2P}\varphi_2}, \\ \bar{\rho}_{iG} = -\frac{h_{3i} + h_{1i}|\varphi_1| - h_{2i}\varphi_2}{h_{3P} + h_{1P}|\varphi_1| - h_{2P}\varphi_2}, \\ \bar{s}_G = -\frac{h_{3\tau} + h_{1\tau}|\varphi_1| - h_{2\tau}\varphi_2}{h_{3P} + h_{1P}|\varphi_1| - h_{2P}\varphi_2}.$$

Подставляя данные выражения в уравнения (18) и (19), находим

$$\bar{\rho}_i = \frac{\bar{\rho}\left(h_{3P}h_{1i} - h_{1P}h_{3i} + \left(h_{1P}h_{2i} - h_{2P}h_{1i}\right)\varphi_2\right) + H_3h_{1i} - H_1h_{3i} + \left(H_1h_{2i} - H_2h_{1i}\right)\varphi_2}{H_1h_{3P} - H_3h_{1P} + \left(H_2h_{1P} - H_1h_{2P}\right)\varphi_2}, \\ \bar{s} = \frac{\bar{\rho}\left(h_{3P}h_{1\tau} - h_{1P}h_{3\tau} + \left(h_{1P}h_{2\tau} - h_{2P}h_{1\tau}\right)\varphi_2\right) + H_3h_{1\tau} - H_1h_{3\tau} + \left(H_1h_{2\tau} - H_2h_{1\tau}\right)\varphi_2}{H_1h_{3P} - H_3h_{1P} + \left(H_2h_{1P} - H_1h_{2P}\right)\varphi_2}. \tag{22}$$

Таким образом, выражения (22) представляют термодинамические плотности, учитывающие соотношения баланса и связь с базовой моделью в двухфазной области N-компонентной околокритической

жидкости. В связи с этим заметим, что из уравнения (21) можно выразить плотность φ_1 через среднюю плотность $\overline{\rho}$

$$\varphi_1 = \frac{\overline{\rho}\left(h_{3P} - h_{2P}\varphi_2\right) + H_3 - H_2\varphi_2}{H_1 + \overline{\rho}h_{1P}}. \qquad (23)$$

Нетрудно убедиться, что подстановка (23) в выражения (20) приводит к результату, полностью совпадающему с выражениями (22) для плотностей $\overline{\rho}_i$ и $\overline{s}$. То есть замена (23) в формулах (20) эквивалентна учету балансовых соотношений в двухфазной области N-компонентной смеси.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Economou I.G.* Cubic and Generalized van der Waals Equations of State // Appl. Thermodyn. Fluids. 2010. P. 53.
2. *Diamantonis N.I., Boulougouris G.C., Mansoor E., Tsangaris D.M., Economou I.G.* Evaluation of Cubic, SAFT, and PC-SAFT Equations of State for the Vapor–Liquid Equilibrium Modeling of CO_2 Mixtures with Other Gases // Ind. Eng. Chem. Res. 2013. V. 52. P. 3933.
3. *Lemmon E.W., Span R.* Multi-parameter Equations of State for Pure Fluids and Mixtures // Appl. Thermodyn. Fluids. 2010. P. 53.
4. *Kunz O., Wagner W.* The GERG-2008 Wide-range Equation of State for Natural Gases and Other Mixtures: An Expansion of GERG-2004 // J. Chem. Eng. Data. 2012. V. 57. P. 3032.
5. *Thol M., Richter M., May E.F., Lemmon E.W., Span R.* EOS-LNG: a Fundamental Equation of State for the Calculation of Thermodynamic Properties of Liquefied Natural Gases // J. Phys. Chem. Ref. Data. 2019. V. 48 (36). P. 033102.
6. *Moldover M.R., Rainwater J.C.* Interfacial Tension and Vapor-liquid Equilibria in the Critical Region of Mixtures // J. Chem. Phys. 1988. V. 88. P. 7772.
7. *Agayan V.A., Anisimov M.A., Sengers J.V.* Crossover Parametric Equation of State for Ising-like Systems // Phys. Rev. E. 2001. V. 64 (19). P. 026125.
8. *Belyakov M.Yu., Kulikov V.D., Muratov A.R., Voronov V.P.* Crossover Equation of State of a Multicomponent Fluid Mixture in the Vicinity of Liquid–Vapor Critical Points // Chem. Phys. 2018. V. 513. P. 149.
9. *Kiselev S.B.* Cubic Crossover Equation of State // Fluid Phase Equilib. 1998. V. 147. P. 7.
10. *Rainwater J.C.* Vapor–Liquid Equilibrium and the Modified Leung Griffiths Model // Supercritical Fluid Technology: Reviews in Modern Theory and Applications / Eds. Bruno T.J., Ely J. Boca Raton: CRC Press, 1991. P. 57.
11. *Belyakov M.Yu., Kulikov V.D., Muratov A.R., Sharipov A.F.* Thermodynamic Properties of a Model Hydrocarbon Ternary Mixture in the Vicinity of Critical Point: Measurements and Modeling with Crossover Equation of State // Fluid Phase Equil. 2020. V. 518. P. 112630.
12. *Беляков М.Ю.* Критические аномалии и фазовые диаграммы бинарной смеси // ТВТ. 2023. Т. 61. № 2. С. 198.
13. *Ма Ш.* Современная теория критических явлений. М.: Мир, 1980. 296 с.
14. *Паташинский А.З., Покровский В.Л.* Флуктуационная теория фазовых переходов. М.: Наука, 1982. 381 с.
15. *Hohenberg P.C., Barmatz M.* Gravity Effects near Gas–Liquid Critical Point // Phys. Rev. A. 1972. V. 6. P. 289.
16. *Liu A.J., Fisher M.E.* The Three-dimensional Ising Model Revised Numerically // Phys. A. 1989. V. 156. P. 35.
17. *Guida R., Zinn-Justin J.* Critical Exponents of the N-vector Model // J. Phus. A. 1998. V. 31. P. 8103.
18. *Anisimov M.A., Sengers J.V.* Critical Region // Equations of State for Fluids and Fluid Mixtures. 2000. V. 5(II). P. 381.
19. *Belyakov M.Yu., Voronov V.P., Gorodetskii E.E., Kulikov V.D.* Phase Behavior and Anomalies of Thermodynamic Properties in a Multi-component Near-critical Fluid Mixture // Chem. Phys. 2009. V. 362. P. 85.
20. *Покровский В.Л.* О возможности экспериментальной проверки гипотезы конформной инвариантности // Письма в ЖЭТФ. 1973. Т. 17. С. 219.
21. *Kim Y.C., Fisher M.E., Orkoulas G.* Asymmetric Fluid Criticality. I. Scaling with Pressure Mixing // Phys. Rev. E. 2003. V. 67. P. 61506.
22. *Wang J., Cerdeirina C.A., Anisimov M.A., Sengers J.V.* Principle of Isomorphism and Complete Scaling for Binary-fluid Criticality // Phys. Rev. E. 2008. V. 77. P. 031127.
23. *Sengers Y.V., Levelt Sengers J.M.H.* Thermodynamic Behavior of Fluids near the Critical Point // Ann. Rev. Phys. Chem. 1986. V. 37. P. 189.
24. *Fisher M.E.* Renormalization of Critical Exponents by Hidden Variables // Phys. Rev. 1968. V. 176. P. 237.
25. *Van Konynenberg P.H., Scott R.L.* Critical Lines and Phase Equilibria in Binary van der Waals Mixtures // Philos. Trans. R. Soc. London. 1980. V. 298. P. 495.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 48–55

УДК 004.942.001.57

ВЛИЯНИЕ ДОБАВКИ ОЛОВА НА ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА И ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИЕ ФУНКЦИИ АЛЮМИНИЕВОГО СПЛАВА AlFe5Si10

© 2024 г. И. Н. Ганиев[1, *], Ф. Холмуродов[2], А. Г. Сафаров[2], Н. Р. Нуров[2], У. Ш. Якубов[1], К. Ботуров[2]

[1]*Институт химии им. В.И. Никитина НАН Таджикистана, Душанбе, Республика Таджикистан*

[2]*Физико-технический институт им. С.У. Умарова НАН Таджикистана, Душанбе, Республика Таджикистан*

**E-mail: ganievizatullo48@gmail.com*

Поступила в редакцию 29.08.2022 г.
После доработки 31.12.2022 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

В режиме охлаждения исследована температурная зависимость удельной теплоемкости и изменения термодинамических функций алюминиевого сплава AlFe5Si10 с оловом в интервале температур 300–800 K. Показано, что с увеличением концентрации олова теплоемкость, коэффициент теплоотдачи алюминиевого сплава AlFe5Si10 уменьшаются, а с увеличением температуры растут. Установлено, что с возрастанием температуры энтальпия и энтропия сплавов увеличиваются, энергия Гиббса уменьшается, а при повышении содержания олова в сплаве наблюдается обратная зависимость.

DOI: 10.31857/S0040364424010075

ВВЕДЕНИЕ

В современных материалах должны сочетаться высокие значения свойств и качество для обеспечения необходимого ресурса и надежности работы изделий авиационно-космической техники, машиностроения, атомной энергетики, радиотехники, электроники и т.д. В связи с этим особое значение приобретают производство и использование сплавов алюминия, обладающих высокой коррозионной стойкостью, механической прочностью и другими специфическими свойствами.

Особый интерес для современного машиностроения представляют высокопрочные литейные алюминиевые сплавы со свойствами идентичных деформируемых сплавов. Основным фактором, определяющим механические и технологические свойства литейного сплава, является состав, в том числе и содержание вредных примесей и газов, зависящее от технологии плавки, а также состава исходных материалов и флюсов [1, 2].

К настоящему времени значительно возросли требования к новым конструкционным материалам с высокими эксплуатационными характеристиками, в частности коррозионной устойчивостью. Следовательно, разработка таких материалов на основе сплавов алюминия с малыми добавками модифицирующих элементов, обладающих повышенными показателями коррозионной устойчивости, является требованием времени и новой техники. Большой интерес к сплавам системы Al–Fe связан с высоким содержанием во вторичном алюминии железа (5–6%) и с тем, что он не находит широкого применения из-за низких прочностных характеристик [3].

Примеси железа в алюминии оказывают существенное влияние на качество алюминия. С увеличением их количества значительно ухудшается коррозионная стойкость. При этом уменьшаются электропроводность и пластичность, повышается прочность металла. Такой металл по примесям не укладывается в рамки требований ГОСТ Р 55375–2012 на первичный алюминий и не находит потребителя, за исключением использования для раскисления и дегазации стали [4, 5].

Следовательно, разработка прецизионных сплавов на основе некондиционного алюминия путем его легирования третьим элементом является актуальной задачей. Подобный подход позволяет превратить некондиционный металл в нужный и полезный продукт для техники. Иногда для блокировки отрицательного влияния железа сплавы легируют марганцем в количествах 0.5–1.0%. В фазе до 1/10 часть атомов железа может замещаться

атомами марганца. В результате образуется новая фаза (Fe, Mn)Al_3. Кристаллы указанной фазы отличаются более компактной формой, в отличие от игольчатой структуры фазы $FeAl_3$ [6, 7].

Для изменения формы кристаллов интерметаллида в эвтектике α-Al + $FeAl_3$, т.е. ее модификации, в качестве модифицирующего элемента выбрано металлическое олово как поверхностно активный компонент тройного сплава. Подобный подход позволяет разработать новые композиции сплавов на основе алюминия. Выбор исходного сплава Al + 5 мас. % Fe + + 10 мас. % Si объясняется тем, что состав данного сплава включает эвтектики α-Al + $FeAl_3$ и α-Al + Si + $FeSiAl_5$, которые примыкают к алюминиевому углу системы Al–Fe–Si и плавятся при температуре 670–727°C [6, 7].

Одной из важнейших характеристик сплавов является теплоемкость. Данные о теплоемкости дают возможность решать насущные задачи фундаментальной термодинамики конденсированных сред, особенно если учесть их исключительную важность с научно-технической точки зрения [8–14].

Эти сведения позволяют определить области практического использования новых материалов на основе алюминия с улучшенными физическими свойствами [15–17].

Цель работы заключается в исследовании влияния добавок олова на температурную зависимость теплоемкости и термодинамических функций алюминиевого сплава AlFe5Si10, предназначенного для использования в качестве анодного материала при литье протекторов для защиты от коррозии стальных конструкций.

МАТЕРИАЛЫ, ТЕОРИЯ МЕТОДА И ОПИСАНИЕ УСТАНОВКИ

Сплав алюминия AlFe5Si10 (Al + 5 мас. % Fe + + 10 мас. % Si) с оловом был получен в шахтной лабораторной печи сопротивления типа СШОЛ при температуре 750–800°C путем добавления в расплав алюминия расчетного количества ингредиентов и олова марки 03 (98.49% Sn, ГОСТ 860-75). Полученные сплавы подвергались химическому анализу в Центральной заводской лаборатории Таджикской алюминиевой компании ГУП “ТАлКо” (г. Турсунзаде, Республика Таджикистан). Взвешиванием контролировались массы шихты и полученных сплавов. В случае отклонения массы сплавов более чем на 2% (отн.) синтез сплавов проводился заново.

Из полученных таким образом расплавов в металлический кокиль отливались цилиндрические образцы диаметром 16 мм и длиной 30 мм заданной формы для исследования теплоемкости.

Один из методов определения теплоемкости материалов заключается в сравнении кривых охлаждения двух образцов, один из которых является эталоном с известной теплоемкостью [18].

Физические основы предлагаемого метода измерения состоят в следующем. Механизм теплопередачи образцов при охлаждении обусловлен теплопроводностью окружающей среды, конвекцией и излучением. Для первых двух процессов (теплопроводности среды и конвекции) считается, что тепловой поток J от нагретого тела пропорционален разности между температурой поверхности образца T и температурой окружающей среды T_0 (закон Ньютона–Рихмана):

$$J = \alpha\left(T - T_0\right).$$

Коэффициент теплопередачи α зависит от большого количества параметров, и для него невозможно дать общую формулу. Поэтому на практике коэффициент теплоотдачи определяется экспериментально.

Температура при охлаждении тела спадает по экспоненте, если теплоемкость и коэффициент теплопередачи постоянны, а окружающая среда бесконечна и однородна. Действительно, уравнение теплового баланса

$$dQ = -Jdt$$

здесь имеет вид

$$C_p^{\circ} m\,dT = -\alpha\left(T - T_0\right)dt,$$

где C_p° – удельная теплоемкость тела; m – его масса. Решением данного уравнения является выражение

$$T\left(t\right) = \left(T - T_0\right)\mathrm{e}^{-\frac{t}{\tau}} + T_0,$$

где T – начальная температура, $\tau = mc/(\alpha S)$ – время тепловой релаксации.

При условии выполнения всех вышеуказанных требований теплоемкость материала образца определяется из измеренного по термограмме параметра релаксации τ. Поскольку величина α неизвестна, параллельные измерения необходимо выполнять и с эталонным образцом с известной теплоемкостью и теми же размерами. При этом условия охлаждения должны быть идентичными. Допуская, что коэффициент α у обоих образцов одинаков, теплоемкость измеряемого материала можно найти по формуле

$$C_x^{\circ} = C_{\text{э}}^{\circ}\frac{m_{\text{э}}\tau_x}{m_x\tau_{\text{э}}},$$

где $C_{\text{э}}^{\circ}$ – теплоемкость эталонного материала; m_x, $m_{\text{э}}$ – массы исследуемого и эталонного образцов;

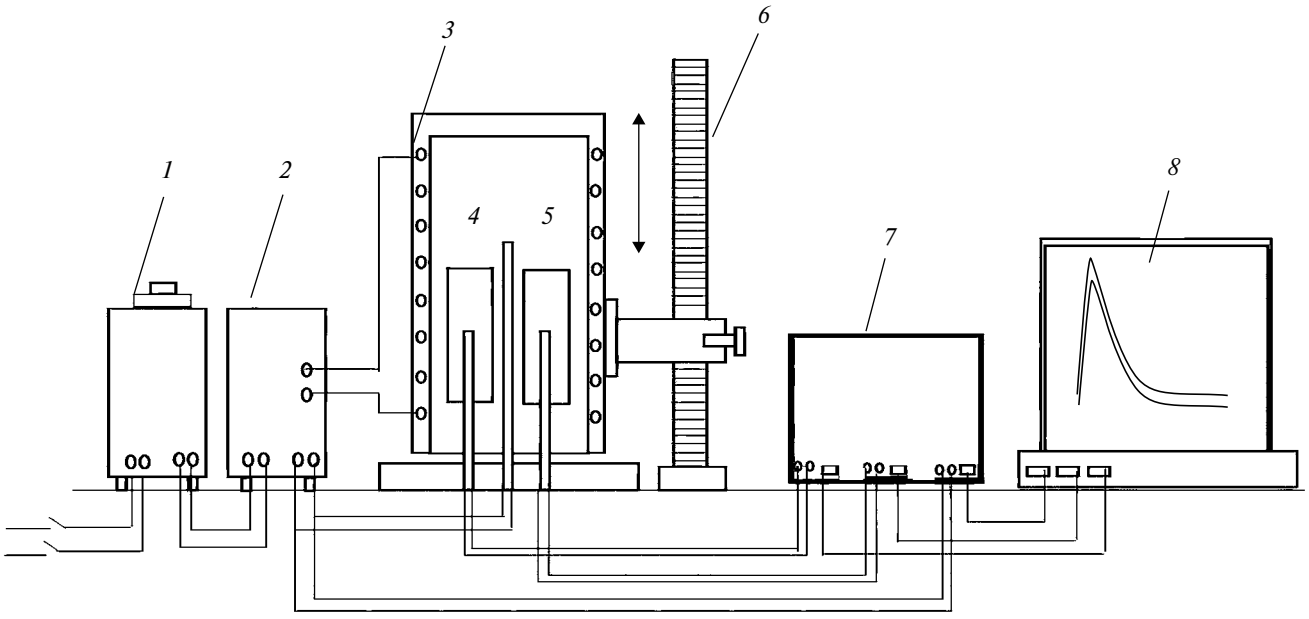

Рис. 1. Схема установки для определения теплоемкости твердых тел в режиме охлаждения.

$\tau_x, \tau_э$ – измеренное время тепловой релаксации для этих образцов:

$$\tau_э = (dT/d\tau)_1, \tau_x = (dT/d\tau)_2.$$

Данный метод допускает:

– постоянство C_x, $C_э$ и α при изменении температуры;

– охлаждение в бесконечной среде;

– температуры образцов, при которых излучением можно пренебречь по сравнению с теплопроводностью и конвекцией.

Разбив термограмму на узкие интервалы температур, в которых теплоемкости и коэффициент α предполагаются постоянными, можно определить зависимости C_x, $C_э$ от температуры. При этом для каждого температурного интервала находятся свои параметры тепловой релаксации $\tau_x(T)$ и $\tau_э(T)$, которые и используются для расчета $C_x(T)$ [19].

В данной работе определены средние теплоемкости по всему измеряемому интервалу температур. Для всех образцов коэффициенты теплопередачи α предполагаются одинаковыми.

Далее строятся кривые охлаждения эталона и исследуемых образцов, которые используются для определения скоростей охлаждения. Кривая охлаждения, т.е. термограмма, представляет собой зависимость температуры образца от времени при его охлаждении в неподвижном воздухе.

Измерение теплоемкости проводилось по методике, описанной в работах [20–23]. Схема установки представлена на рис. 1. Она включает в себя электропечь *3*, которая смонтирована на стойке *6* и может перемещаться вверх и вниз (стрелкой показано направление перемещения). Образец *4* и эталон *5* (которые тоже могут перемещаться). С одного конца образцов высверлены каналы, в которые вставляются термопары. К цифровым многоканальным термометрам *7*, подсоединенным к компьютеру *8*, подведены концы термопар.

Теплоемкость сплава алюминия AlFe5Si10 с оловом измерялась в режиме охлаждения. В качестве эталона использовалась медь особой степени чистоты марки М00 (99.999% Cu), полученная зонной очисткой. Построение графиков и обработка результатов измерений производились с помощью программ MS Excel и SigmaPlot. Величина коэффициента корреляции составила $R_{корр} = 0.998$. Временной интервал фиксации температуры выбран равным 10 с. Относительная погрешность измерения температуры в интервале от 40 до 400°С составляла ±1%, при более высоких температурах (>400°С) – ±2.5%. В данной работе погрешность измерения теплоемкости не превышала 1%.

Предварительно для определения погрешности метода измерялась теплоемкость меди марки М00 по отношению к алюминию марки А7 и наоборот. Результаты измерения для трех параллельных экспериментов представлены в табл. 1, 2. Установленное значение погрешности измерений теплоемкости меди марки М00 не превышает 1%. Далее в качестве эталона взята медь марки М00. С этой точки зрения именно медь является более надежным металлом, поскольку она характеризуется более высокой температурой плавления и достоверными

Таблица 1. Экспериментальные значения скоростей охлаждения ($dT/d\tau$, K/c) образцов из меди марки M00 и эталона (Al марки A7)

T, K	Cu марки M00			Эталон (Al марки A7)		
	первое измерение	второе измерение	третье измерение	первое измерение	второе измерение	третье измерение
300	0.0289	0.0063	0.0141	0.5911	0.0345	0.0442
400	0.2236	0.0728	0.1116	0.8817	0.0130	0.0124
500	0.3938	0.1852	0.2183	0.9975	0.0275	0.0262
600	0.5444	0.3443	0.3052	1.0033	0.0443	0.0896
700	0.6804	0.5512	0.3717	0.9639	0.0639	0.1956
800	0.8066	0.8069	0.4172	0.9441	0.0868	0.3628

Таблица 2. Теплоемкость (кДж/(кг K)) меди марки M00 и эталона (Al марки A7)

T, K	Cu марки M00 по данным [24]	Cu марки M00			Эталон (Al марки A7) по данным [25]
		первое измерение	второе измерение	третье измерение	
300	0.3850	0.3759	0.3699	0.3678	0.9032
400	0.3977	0.3883	0.3820	0.3800	0.9472
500	0.4080	0.3984	0.3919	0.3899	0.9879
600	0.4169	0.4070	0.4004	0.3984	1.0306
700	0.4251	0.4151	0.4083	0.4064	1.0803
800	0.4336	0.4234	0.4164	0.4146	1.1424

значениями теплоемкости, определенными многими авторами разными методами [24].

Сравнение экспериментально полученных значений теплоемкости меди по отношению к Al марки A7 показывает почти 99%-ную сходимость с данными [24].

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Экспериментально полученные кривые охлаждения образцов из сплава алюминия AlFe5Si10 с оловом представлены на рис. 2а. Термограммы $T=f(\tau)$ образцов из сплавов описываются уравнением вида

$$T = a\mathrm{e}^{-b\tau} + p\mathrm{e}^{-k\tau}, \qquad (1)$$

где a, b, p, k – постоянные для данного образца, τ – время охлаждения.

Дифференцируя (1) по τ, получаем уравнение, с помощью которого можно определить скорости охлаждения образцов из сплавов:

$$dT/d\tau = ab\mathrm{e}^{-b\tau} + pk\mathrm{e}^{-k\tau}. \qquad (2)$$

Экспериментально полученные термограммы (рис. 2а) и графики скорости охлаждения образцов из сплавов (рис. 2б) описываются полиномами (1), (2). Компьютерная обработка уравнения (2) позволила установить значения коэффициентов a, b, p, k (табл. 3) для исследованных сплавов.

С использованием рассчитанных значений скоростей охлаждения образцов по уравнению (2) вычислена удельная теплоемкость сплава алюминия AlFe5Si10 с оловом. Результаты расчета свидетельствуют о том, что температурные зависимости удельной теплоемкости сплавов и эталона (Cu марки M00) описываются уравнением вида

$$C_p^{\mathrm{o}} = f + gT + cT^2 + dT^3. \qquad (3)$$

Значения коэффициентов в уравнении температурной зависимости теплоемкости (3) для алюминиевого сплава AlFe5Si10 с оловом представлены в табл. 4.

В табл. 5 и на рис. 3а приведены результаты расчета температурных зависимостей удельной теплоемкости алюминиевого сплава AlFe5Si10 с оловом и эталона (Cu марки M00) с шагом 100 K.

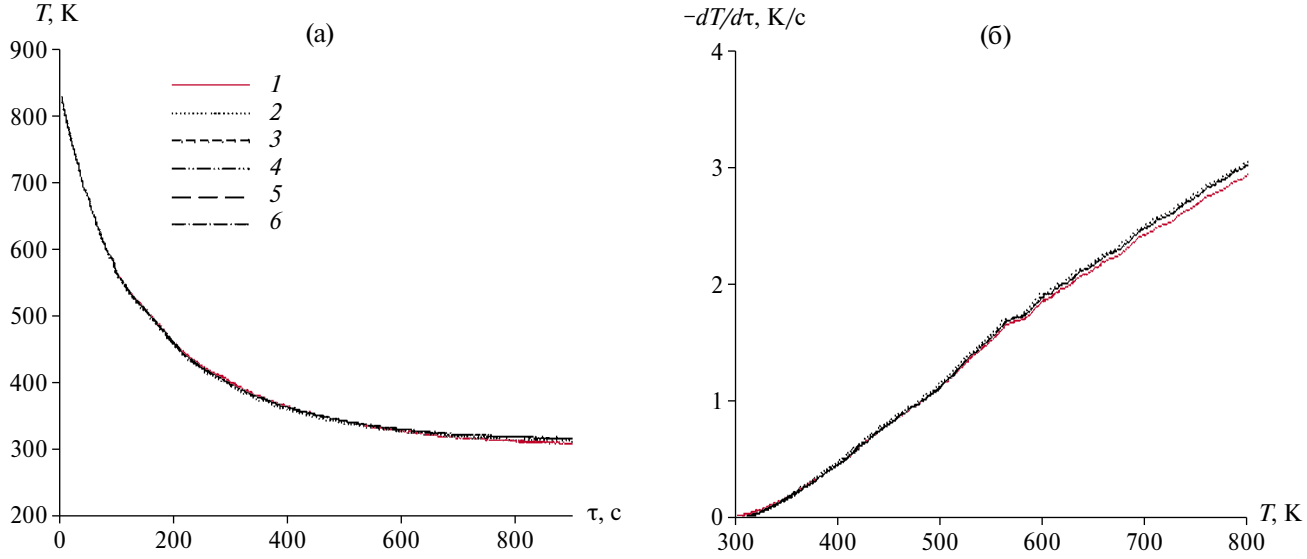

Рис. 2. Зависимости температуры от времени (а) и скорости охлаждения от температуры (б) образцов эталона (*1*) и алюминиевого сплава AlFe5Si10 с оловом: *2* – AlFe5Si10, *3* – AlFe5Si10 + 0.05% Sn, *4* – 0.1%, *5* – 0.5%, *6* – 1.0%.

Таблица 3. Значения коэффициентов *a*, *b*, *p*, *k* в уравнении (2) для алюминиевого сплава AlFe5Si10 с оловом и эталона (Cu марки М00)

Содержание олова в сплаве, мас. %	*a*, K	$b \times 10^{-3}$, c^{-1}	*p*, K	$k \times 10^{-5}$, c^{-1}
0.0	488.57	6.64	309.43	5.30
0.05	485.38	6.64	332.15	4.91
0.1	485.38	6.64	331.25	4.91
0.5	485.38	6.64	331.85	4.91
1.0	485.38	6.64	331.05	4.91
Эталон	481.34	6.48	329.32	8.12

Видно, что в исследованном температурном интервале с ростом температуры теплоемкость сплава AlFe5Si10, легированного оловом, растет, а с увеличением содержания олова уменьшается.

Используя вычисленные данные по теплоемкости сплава AlFe5Si10 с оловом и экспериментально полученные скорости охлаждения образцов, можно рассчитать коэффициент теплоотдачи для сплава AlFe5Si10 с оловом и эталона по следующей формуле

$$\alpha = \frac{C_p^o m \dfrac{dT}{d\tau}}{(T - T_0)S}.$$

Для сплава AlFe5Si10 с оловом температурная зависимость коэффициента теплоотдачи представлена на рис. 3б. С ростом температуры коэффициент теплоотдачи увеличивается, а с увеличением содержания олова в сплаве – уменьшается.

Для расчета температурных зависимостей изменений энтальпии, энтропии и энергии Гиббса для сплава AlFe5Si10, легированного оловом, используются интегралы от удельной теплоемкости по уравнению (3):

$$H^0(T) - H^0(T_0) = a(T - T_0) + \frac{b}{2}\left(T^2 - T_0^2\right) + \frac{c}{3}\left(T^3 - T_0^3\right) + \frac{d}{4}\left(T^4 - T_0^4\right),$$

$$S^0(T) - S^0(T_0) = a\ln\frac{T}{T_0} + b(T - T_0) + \frac{c}{2}\left(T^2 - T_0^2\right) + \frac{d}{3}\left(T^3 - T_0^3\right),$$

$$G^0(T) - G^0(T_0) = \left(H^0(T) - H^0(T_0)\right) - T\left(S^0(T) - S^0(T_0)\right).$$

Результаты расчета термодинамических функций сплавов представлены в табл. 6. С ростом температуры энтальпия и энтропия увеличиваются, значение энергии Гиббса уменьшается. Указанные характеристики сплавов имеют обратную зависимость от содержания олова.

Таблица 4. Значения коэффициентов f, g, c, d в уравнении (3) для алюминиевого сплава AlFe5Si10 с оловом и эталона (Cu марки М00)

Содержание олова в сплаве, мас. %	f, Дж/(кг К)	g, Дж/(кг К^2)	$c \times 10^{-2}$, Дж/(кг К^3)	$d \times 10^{-5}$, Дж/(кг К^4)	Коэффициент корреляции $R_{корр}$
0.0	–4049.29	29.50	–5.33	3.13	0.999
0.05	–4049.31	29.50	–5.33	3.13	0.998
0.1	–4049.49	29.50	–5.33	3.13	0.998
0.5	–4048.32	29.49	–5.33	3.13	0.998
1.0	–4048.35	29.49	–5.33	3.13	0.998
Эталон	324.45	0.275	–0.03	0.01	1.00

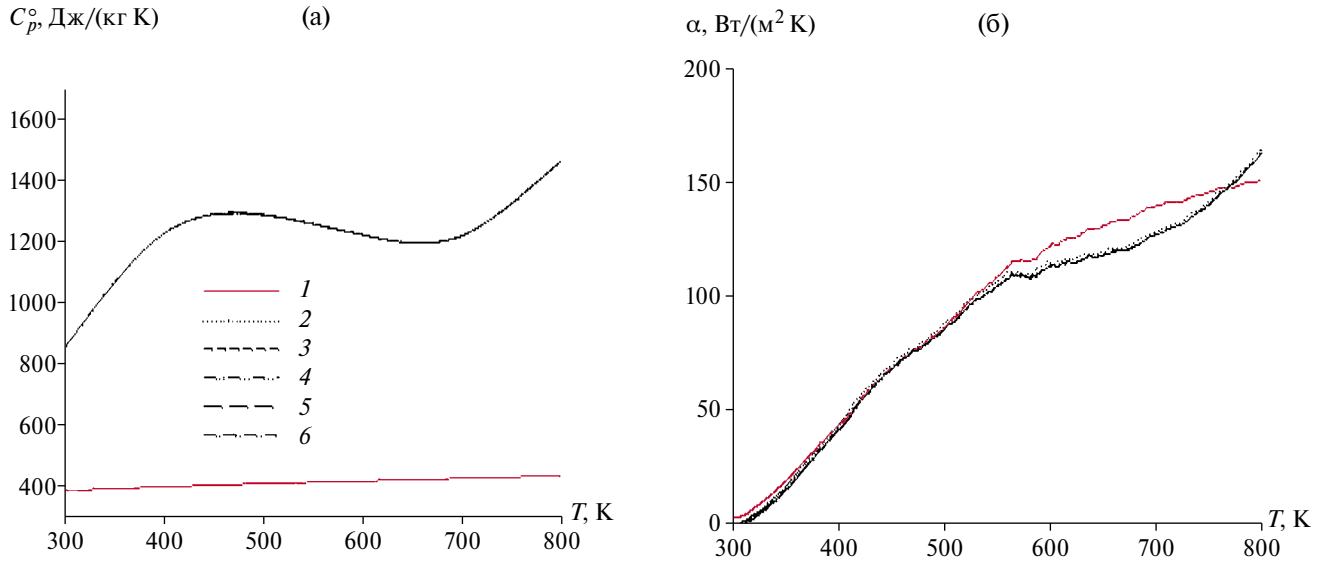

Рис. 3. Температурные зависимости удельной теплоемкости (а) и коэффициента теплоотдачи (б) образцов: *1* – эталона, *2* – AlFe5Si10, *3* – AlFe5Si10 + 0.05% Sn, *4* – 0.1%, *5* – 0.5%, *6* – 1.0%.

Таблица 5. Температурные зависимости удельной теплоемкости (Дж/(кг К)) сплава AlFe5Si10 с оловом и эталона (Cu марки М00)

Содержание олова в сплаве, мас. %	T, K					
	300	400	500	600	700	800
0.0	848.81	1225.91	1288.21	1223.51	1219.61	1464.31
0.05	848.78	1225.88	1288.18	1223.48	1219.58	1464.28
0.1	848.61	1225.71	1288.01	1223.31	1219.41	1464.11
0.5	848.58	1225.28	1287.18	1222.08	1217.78	1462.08
1.0	848.55	1225.25	1287.15	1222.05	1217.75	1462.05
Эталон	384.98	397.66	408.00	416.86	425.100	433.55

Таблица 6. Температурные зависимости изменений термодинамических функций сплава AlFe5Si10 с оловом и эталона (Cu марки М00)

Содержание олова в сплаве, мас. %	$H^0(T) - H^0(T_0^*)$, кДж/кг					
	300 K	400 K	500 K	600 K	700 K	800 K
0.0	1.56	108.70	236.25	362.11	482.98	614.32
0.05	1.56	108.70	236.24	362.10	482.97	614.31
0.1	1.56	108.68	236.21	362.05	482.90	614.22
0.5	1.56	108.66	236.12	361.86	482.57	613.71
1.0	1.56	108.66	236.12	361.85	482.55	613.69
Эталон	0.71	39.87	80.17	121.42	163.52	206.44
	$S^0(T) - S^0(T_0^*)$, кДж/(кг K)					
0.0	0.005	0.31	0.59	0.83	1.01	1.19
0.05	0.005	0.31	0.59	0.83	1.01	1.19
0.1	0.005	0.31	0.59	0.83	1.01	1.19
0.5	0.005	0.31	0.59	0.82	1.01	1.18
1.0	0.005	0.31	0.59	0.82	1.01	1.18
Эталон	0.002	0.12	0.21	0.28	0.35	0.40
	$G^0(T) - G^0(T_0^*)$, кДж/кг					
0.0	–0.005	–15.64	–61.35	–132.81	–224.86	–334.66
0.05	–0.005	–15.63	–61.35	–132.80	–224.86	–334.65
0.1	–0.005	–15.63	–61.35	–132.78	–224.82	–334.60
0.5	–0.005	–15.63	–61.33	–132.74	–224.73	–334.43
1.0	–0.005	–15.63	–61.32	–132.74	–224.72	–334.42
Эталон	–0.002	–6.11	–22.24	–46.59	–77.90	–115.31

Примечание. $T_0^* = 298.15$ K.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. В режиме охлаждения по известной теплоемкости эталонного образца из меди марки М00 установлена температурная зависимость теплоемкости алюминиевого сплава AlFe5Si10 с оловом.

2. Определены полиномы, описывающие температурные зависимости теплоемкости и изменений термодинамических функций (энтальпия, энтропия, энергия Гиббса) сплава AlFe5Si10 с оловом в интервале температур 300–800 K.

3. Показано, что с ростом температуры теплоемкость, коэффициент теплоотдачи, энтальпия и энтропия сплавов увеличиваются, а энергия Гиббса уменьшается. В изученном концентрационном интервале (0.05–1.0 мас. %) добавки олова снижают теплоемкость, энтальпию и энтропию алюминиевого сплава и увеличивают энергию Гиббса.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Белецкий В.М., Кривов Г.А.* Алюминиевые сплавы (состав, свойства, технология, применение). Киев: Комитех, 2005. 365 с.
2. *Луц А.Р., Суслина А.А.* Алюминий и его сплавы. Самара: Самарск. гос. техн. ун-т, 2013. 81 с.
3. *Умарова Т.М., Ганиев И.Н.* Коррозия двойных алюминиевых сплавов в нейтральных средах. Душанбе: Дониш, 2007. 258 с.
4. *Дриц М.Е.* Алюминиевые сплавы. Свойства, обработка, применение. М.: Металлургия, 1979. 679 с.
5. *Chen X.G.* Growth Mechanisms of Intermetallic Phases in DC Cast AA1XXX Alloys // Essential Readings in Light Metals. Cast Shop for Aluminum Production. 2013. V. 3. P. 460.
6. *Grange D.A.* Microstructure Control in Ingots of Aluminum Alloys with an Emphasis on Grain Refinement // Essential Readings in Light Metals.

Cast Shop for Aluminum Production. 2013. V. 3. P. 354.

7. *Geoffrey K.S.* Fundamentals of Solidification in Aluminum Castings // Int. J. Metalcasting. 2014. V. 8. P. 7.
8. *Бергман Г.А., Вейц И.В., Медведов В.А., Хачкурузов Г.А., Юнгман В.С.* Термодинамические свойства индивидуальных веществ. М.: Наука, 1981. 472 с.
9. *Исмаилов Н.Ш., Ибрагимов Х.А.* Разработка малолегированного алюминиевого сплава для электротехнических изделий // Успехи современной науки. 2017. Т. 1. № 6. С. 236.
10. *Мальцев М.В.* Модифицирование структуры металлов и сплавов. М.: Металлургия, 1984. 280 с.
11. *Гуреева М.А., Овчинников В.В., Манаков И.Н.* Металловедение: макро- и микроструктуры литейных алюминиевых сплавов: учеб. пособ. М., 2019. 250 с.
12. *Сетюков О.А.* Влияние железа и кремния на литейные свойства алюминиевых сплавов с марганцем // Технология легких сплавов. 2010. № 1. С. 32.
13. *Stanford N., Atwell D., Beer A., Daviesc C., Barnett M.R.* Effect of Microalloying with Rare-earth Elements on the Texture of Extruded Magnesium-based Alloys // Scripta Mater. 2008. V. 59. № 7. P. 772.
14. *Иброхимов Н.Ф., Ганиев И.Н., Одинаев Х.О.* Физикохимия сплава АМг2 с редкоземельными металлами. Душанбе: Тадж. техн. ун-т им. М.С. Осими, 2016. 153 с.
15. *Иванцов Г.П.* Нагрев металла (теория и методы расчета). Свердловск; М.: Гос. науч.-техн. изд-во лит. по черной и цветной металлургии, 1948. 191 с.
16. *Багницкий В.Е.* Обратные связи в физических явлениях. Германия: LAP Lambert Acad. Publ., 2014. 196 с.
17. *Киров С.А., Козлов А.В., Салецкий А.М., Харабадзе Д.Э.* Измерение теплоемкости и теплоты плавления методом охлаждения: учеб. пособ. М.: ООП Физфак МГУ им. М.В. Ломоносова, 2012. 52 с.
18. *Еремина Р.М., Скворцов А.И., Мутыгуллина А.А.* Экспериментальные задачи общего физического практикума по молекулярной физике и термодинамике. Процессы переноса. Жидкости и твердые тела. Казань: Казан. ун-т, 2015. 42 с.
19. *Рогачев Н.М., Гусева С.И.* Определение удельной теплоемкости твердых тел: метод. указ. к лаб. работе № 1–23. Самара: Самарский. гос. аэрокосм. ун-т им. акад. С.П. Королева, 2012. 14 с.
20. *Ганиев И.Н., Сафаров А.Г., Одинаев Ф.Р., Якубов У.Ш., Кабутов К.* Температурная зависимость теплоемкости и изменение термодинамических функций сплава АЖ4.5 с оловом // Изв. вузов. Цветная металлургия. 2019. № 1. С. 50.
21. *Ганиев И.Н., Рашидов А.Р., Одиназода Х.О., Сафаров А.Г., Джайлоев Дж.Х.* Влияние добавок меди на теплоемкость и термодинамические функции алюминия марки А7Е // Изв. вузов. Цветная металлургия. 2020. № 3. С. 4.
22. *Ганиев И.Н., Абдулаков А.П., Джайлоев Д.Х., Якубов У.Ш., Сафаров А.Г., Абулхаев В.Д.* Влияние добавок висмута на теплофизические и термодинамические свойства алюминиевого проводникового сплава Е-AlMgSi (“алдрей”) // Изв. вузов. Материалы электронной техники. 2020. Т. 23. № 1. С. 86.
23. *Ганиев И.Н., Назарова М.Т., Якубов У.Ш., Сафаров А.Г., Курбонова М.З.* Влияние лития на удельную теплоемкость и изменения термодинамических функций алюминиевого сплава АБ1 // ТВТ. 2020. Т. 58. № 1. С. 55.
24. *Зиновьев В.И.* Теплофизические свойства металлов при высоких температурах. М.: Металлургия, 1989. 384 с.
25. *Низомов З., Гулов Б.Н., Ганиев И.Н., Саидов Р.Х., Обидов Ф.У., Эшов Б.Б.* Исследование температурной зависимости удельной теплоемкости алюминия марок ОСЧ и А7 // Докл. АН Республики Таджикистан. 2011. Т. 54. № 1. С. 53.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 56–66

ТЕПЛОМАССООБМЕН И ФИЗИЧЕСКАЯ ГАЗОДИНАМИКА

УДК 536.24; 621.396.69

РАЗРАБОТКА И РЕЗУЛЬТАТЫ ИСПЫТАНИЙ ДЛИННОЙ КОНТУРНОЙ ТЕПЛОВОЙ ТРУБЫ С ЭЛЕМЕНТАМИ ГИБКОСТИ

© 2024 г. Ю. Ф. Майданик*, С. В. Вершинин, М. А. Чернышева

Институт теплофизики УрО РАН, Екатеринбург, Россия

**E-mail: lhtd@itpuran.ru*

Поступила в редакцию 05.06.2023 г.
После доработки 13.10.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

В статье представлены результаты разработки, гидродинамического анализа и тепловых испытаний контурной тепловой трубы из нержавеющей стали длиной 4.56 м с цилиндрическим капиллярным насосом-испарителем диаметром 12 мм, снабженным мелкопористым фитилем. Паропровод и конденсатопровод устройства диаметром 2 мм имели вставки в виде трубчатых спиралей, обеспечивающих дополнительную гибкость и позволяющих изменять эффективную длину контурной тепловой трубы. В качестве теплоносителя использовался аммиак. Тепловые испытания проводились при нормальных внешних условиях в горизонтальном положении, а также при неблагоприятном положении, когда испаритель располагался на 1.1 и 2 м выше конденсатора. Конденсатор тепловой трубы охлаждался проточной термостатируемой жидкостью с температурой 20°C. Номинальная тепловая нагрузка 100 Вт достигалась при всех положениях устройства. Температура источника тепла при этом оставалась в пределах 46.5–48.7°C, а термическое сопротивление системы “источник тепла–охлаждающая жидкость” изменялось от 0.26 до 0.28°C/Вт.

DOI: 10.31857/S0040364424010088

ВВЕДЕНИЕ

Контурные тепловые трубы (КТТ) являются пассивными двухфазными теплопередающими устройствами, работающими по замкнутому испарительно-конденсационному циклу и использующими капиллярное давление для прокачки теплоносителя [1]. Изначально КТТ создавались как устройства, способные эффективно передавать тепло на расстояние до 1 м и более при любом расположении, в частности при наиболее неблагоприятном, когда испаритель размещается выше конденсатора и движение жидкой фазы теплоносителя происходит снизу вверх против действия сил гравитации [2]. Для обычных тепловых труб [3], которые также являются пассивными двухфазными теплопередающими устройствами, такая возможность до сих пор является недоступной. Для работы в наиболее тяжелом “антигравитационном” режиме созданы КТТ с аммиаком в качестве теплоносителя, способные передавать до 1000 Вт на расстояние около 5 м и до 2000 Вт на расстояние около 2 м [4]. Таких характеристик удалось достичь за счет использования инновационной схемы теплопередающего устройства, включающей капиллярный насос-испаритель и конденсатор, сообщающиеся раздельными гладкостенными паропроводом и конденсатопроводом с относительно малыми диаметрами. Для такого устройства была специально разработана мелкопористая капиллярная структура (фитиль), определенным образом размещенная в испарителе, которая позволяет создавать высокое капиллярное давление и в то же время обладает относительно низким собственным гидравлическим сопротивлением. Такая схема дает возможность распределить капиллярное давление таким образом, что наибольшая его часть может быть использована на компенсацию потерь давления в транспортных участках КТТ, даже если их гидравлический диаметр мал, включая также и компенсацию гидростатического сопротивления, возникающего при работе против сил тяжести.

Принципиальная схема КТТ представлена на рис. 1.

Дополнительные преимущества, которые позволяет реализовать данная схема, включают возможность достаточно легко конфигурировать паровую и жидкостную линии или делать их гибкими. Испаритель и конденсатор могут иметь различную форму и размеры, адаптированные к условиям практического применения этих устройств. Возможно также создание разветвленных устройств, включающих несколько испарителей и конденсаторов. Кроме того, при более благоприятном горизонтальном

Рис. 1. Принципиальная схема КТТ.

положении КТТ продемонстрировали способность передавать тепло на расстояние, измеряемое десятками метров. Такие устройства могут использоваться, например, в системах утилизации низкопотенциального тепла и солнечной энергии [5, 6], в системах обогрева помещений [7], в системах охлаждения мощной электроники [8, 9]. В [10] представлены результаты разработки и испытаний КТТ для эффективной утилизации энергии с длиной паровой линии 10 м и конденсатором длиной 3 м, которые имели диаметр 10 мм. В качестве теплоносителя использовался этанол. При горизонтальном расположении максимальная мощность устройства составила 160 Вт. Еще одна КТТ с такой же паровой линией и конденсатором длиной 8 м при горизонтальном расположении продемонстрировала максимальную мощность 340 Вт [11]. При работе в "антигравитационном" режиме, когда испаритель был расположен на 1 м выше конденсатора, максимальная мощность достигала 220 Вт. Весьма успешным является применение длинных КТТ в энергоэффективных системах терморегулирования космических аппаратов, где экономия энергии и массы имеет критическое значение [12–15]. В частности, была представлена информация о КТТ длиной 14 м с паровой линией диаметром 3 мм и пропиленом в качестве теплоносителя, которая была разработана для космической программы "Марс-96" [12]. Пропиленовые и аммиачные КТТ с длиной паровой линии 3 м и диаметром 3 мм также разрабатывались для системы терморегулирования космических аппаратов "Ямал-200" [13], один из которых успешно работает на орбите около 20 лет. Максимальная мощность 500 Вт была продемонстрирована здесь при наземных испытаниях КТТ с аммиаком в качестве теплоносителя. Среди аналогичных устройств с большой дистанцией передачи тепла следует отметить также КТТ с длиной паропровода 16 м и диаметром 4 мм, которая продемонстрировала максимальную мощность 100 Вт с аммиаком в качестве теплоносителя при благоприятной ориентации, когда испаритель был расположен ниже конденсатора на 0.68 м [16].

При прочих равных условиях расстояние теплопереноса у длинных КТТ, работающих в нейтральном горизонтальном положении, в значительной мере зависит от диаметра паропровода, где, как правило, имеют место самые большие потери давления, создаваемого фитилем, который выполняет функцию "капиллярного насоса". Вместе с тем, если КТТ работает в неблагоприятном "антигравитационном" режиме, когда испаритель расположен выше конденсатора и тепло передается в направлении сверху вниз, а жидкость движется снизу вверх, то при достаточно больших углах наклона превалирующими могут стать гидростатические потери давления, создаваемые столбом жидкости в конденсатопроводе. Поэтому понятие "длинная" по отношению к КТТ является весьма условным. Для того чтобы как-то систематизировать это понятие, можно использовать, например, критерий в виде отношения длины паропровода L_{vl} к его диаметру D_{vl}. В табл. 1 представлены значения этого критерия для КТТ с длиной паропровода около 2 м и более, которые могут быть условно отнесены к категории "длинная".

Анализ данных табл. 1 показывает, что наиболее эффективным теплоносителем для длинных КТТ является аммиак, поскольку благодаря его теплофизическим свойствам можно обеспечивать

Таблица 1. Значения критерия L_{vl}/D_{vl}

Источник	L_{vl}/D_{vl}	L_{vl}, мм	D_{vl}, мм	Теплоноситель	Мощность, Вт
[12]	4666	14000	3	пропилен	90
[16]	4000	16000	4	аммиак	100
[10]	1563	10000	6.4	этанол	160
[11]	1000	10000	10	этанол	310
[13]	1000	3000	3	аммиак	500
[14]	485	1940	4	аммиак	200
[15]	409	2598	6.35	аммиак	600

наиболее эффективный теплоперенос на большое расстояние при относительно малом диаметре паропровода. Однако применение аммиака, например, в системах терморегулирования космических аппаратов имеет ограничение, связанное с температурой замерзания, которая равна –78°C. Поэтому здесь, когда не требуется высокой мощности, может быть использован пропилен, температура замерзания которого составляет –185°C. Применение этанола и других теплоносителей в длинных КТТ также возможно, но при этом необходимо существенно увеличивать диаметр паровой линии.

Целью данной работы являются разработка и испытания гибкой КТТ с номинальной мощностью 100 Вт, эффективно работающей при различном расположении в гравитационном поле, которая необходима для обеспечения тепловой связи между источником и удаленным стоком тепла с изменяющимся расстоянием между ними.

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА

Экспериментальная КТТ из нержавеющей стали имеет цилиндрический испаритель диаметром 12 мм с компенсационной полостью, размещенной в одном корпусе с испарителем, и конденсатор, выполненный в виде плоского змеевика. Компенсационная полость играет роль гидроаккумулятора, принимающего жидкую фазу теплоносителя, вытесняемого из паропровода и конденсатора при запуске и работе КТТ. Испаритель и конденсатор снабжены медными интерфейсами, обеспечивающими тепловой контакт с источником и стоком тепла. Их размеры 50 × 50 × 18 и 96 × 65 × 3 мм^3 соответственно [17]. Наружный диаметр паропровода и конденсатопровода составлял 2 мм, что допускало возможность достаточно легко их конфигурировать. Для обеспечения дополнительной гибкости трубопроводы включали по три трубчатые спирали на каждом из них, которые позволяли при необходимости изменять длину КТТ путем их растяжения или сжатия. В испарителе размещен фитиль, спеченный из мелкодисперсного никелевого порошка, который имел пароотводные каналы, формирующие зону испарения и расположенные по периферии у стенки испарителя, и центральный канал – подпитку зоны испарения жидкостью. В качестве теплоносителя выбран аммиак. Схема экспериментальной КТТ и испарителя представлена на рис. 2. Здесь же показаны точки измерения температуры. На рис. 3 показан внешний вид КТТ на испытательном стенде в горизонтальном положении. В табл. 2 представлены основные конструктивные параметры устройства.

Величина параметра L_{vl}/D_{vl} для данной КТТ, которая равна 2250, соответствовала бы третьей позиции в табл. 1, что дает основание отнести ее к категории “длинная”.

ГИДРОДИНАМИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ КТТ

Разработка и проектирование КТТ начинаются с определения ее основных геометрических размеров,

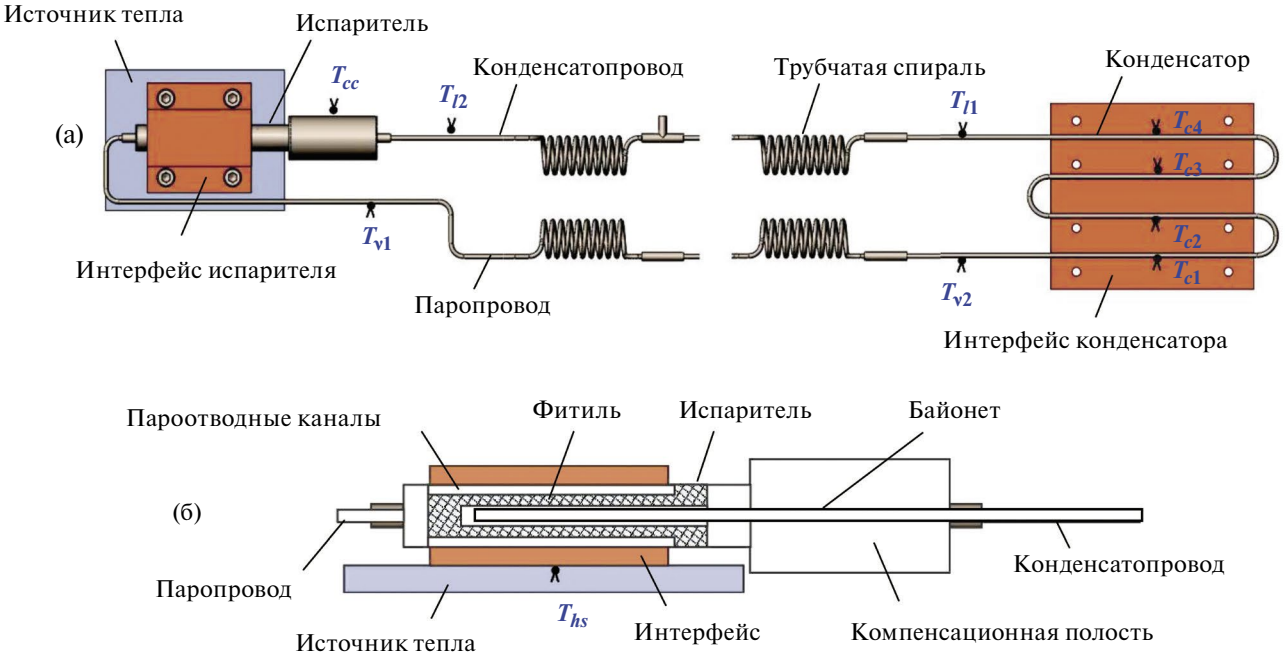

Рис. 2. Схема КТТ (а) и испарителя с расположением термопар (б).

Таблица 2. Основные конструктивные параметры КТТ

Компонент	Параметр	Значение
Испаритель	длина	75 мм
	диаметр	12 мм
	площадь зоны нагрева	15.82 см^2
Паропровод	длина	4499 мм
	диаметр	2.0 мм
Конденсатопровод	длина	4322 мм
	диаметр	2.0 мм
Конденсатор	длина	468 мм
	диаметр	2.0 мм
Трубчатые спирали	количество витков	10
	диаметр витка	18 мм
	длина сжатой спирали	70 мм
Фитиль	длина	61 мм
	диаметр	10.8 мм
	радиус пор	1.49 мкм
	пористость	51.7%

Рис. 3. Внешний вид КТТ.

а также параметров пористой структуры, при которых КТТ может отводить тепло от охлаждаемого объекта с мощностью тепловыделения Q к стоку тепла, находящемуся на некотором расстоянии L. С учетом этого формулируется основное требование к теплопередающей способности КТТ:

$$Q \le Q_{\max}, \qquad (1)$$

где $Q_{\max}$ – максимальная тепловая нагрузка, которую способна передавать КТТ. Величина $Q_{\max}$ является одной из основных рабочих характеристик КТТ. Выполнение условия (1) означает способность КТТ обеспечить заданный тепловой режим источника тепла при любой его мощности тепловыделения, не превышающей значения $Q_{\max}$.

В основе расчета максимальной тепловой нагрузки КТТ лежит принцип функционирования теплопередающих устройств с капиллярной прокачкой теплоносителя, согласно которому капиллярное давление ΔP_{cap}, создаваемое менисками фитиля, должно компенсировать все потери давления ΔP_{tot} при движении теплоносителя в этом устройстве:

$$\Delta P_{\text{cap}} \geqslant \Delta P_{\text{tot}}. \qquad (2)$$

Капиллярное давление, развиваемое пористой структурой, определяется, согласно уравнению Лапласа, как

$$\Delta P_{\text{cap}} = \frac{2\sigma\cos\theta}{r_{\text{cap}}},$$

где σ – поверхностное натяжение, Н/м; θ – краевой угол смачивания, который для хорошо смачивающих жидкостей можно считать равным нулю. Потери давления в КТТ складываются из гидравлических потерь в пароотводных каналах ΔP_{vg}, паропроводе ΔP_{vl}, конденсаторе ΔP_{cond}, конденсатопроводе ΔP_{ll}, фитиле ΔP_{w}, а также гидростатического давления столба жидкости в конденсатопроводе ΔP_{g}:

$$\Delta P_{\text{tot}} = \Delta P_{vg} + \Delta P_{vl} + \Delta P_{\text{cond}} + \Delta P_{ll} + \Delta P_{w} + \Delta P_{g}. \qquad (3)$$

Первые четыре члена уравнения (3) описывают гидравлические потери давления при движении теплоносителя на внешних относительно фитиля транспортах участка. В общем виде формула для потерь давления в трубопроводе в зависимости от скорости потока имеет вид

$$\Delta P_{\text{pipe}} = \Psi\frac{\rho v^2}{2},$$

где Ψ – коэффициент пропорциональности; ρ – плотность среды потока; v – средняя скорость потока, которая определяется массовым расходом теплоносителя G и площадью поперечного сечения трубопровода в соответствии с формулой

$$v = \frac{G}{\rho S_{\perp}}.$$

Массовый расход теплоносителя, в свою очередь, связан с тепловой нагрузкой Q, подводимой к испарителю, следующим образом:

$$G = \frac{Q}{h_{ev}},$$

где h_{ev} – скрытая теплота парообразования, Дж/кг. Таким образом, скорость движения теплоносителя и соответствующие потери давления на каждом участке КТТ, включая потери давления в паровой и жидкостной линиях, зависят от тепловой нагрузки. Общий вид этой зависимости представлен формулой

$$\Delta P_{pipe} = \frac{1}{2}\frac{\Psi}{\rho\left(h_{ev} S_{\perp}\right)^2} Q^2. \qquad (4)$$

Потери давления при движении жидкости в фитиле определяются по закону Дарси. Предполагается, что в цилиндрическом испарителе с центральным каналом жидкость движется через фитиль преимущественно в радиальном направлении, т.е. от внутренней впитывающей поверхности фитиля к его внешней поверхности, где находится зона испарения. С учетом особенностей геометрии цилиндрической пористой стенки потери давления в фитиле в зависимости от тепловой нагрузки определяются по формуле

$$\Delta P_w = \frac{\mu_l Q}{2\pi L_{az} h_{ev} \rho_l K} \ln\left(\frac{D_{OD}}{D_{ID}}\right), \qquad (5)$$

где μ_l – вязкость жидкости, Па с; L_{az} – длина активной зоны фитиля, равная длине продольных пароотводных каналов; D_{OD} и D_{ID} – внешний и внутренний диаметры фитиля соответственно. На перепад давления в фитиле в значительной степени влияет проницаемость пористого материала, которая для спеченных мелкопористых материалов определяется согласно эмпирической формуле [18]:

$$K = \frac{\varepsilon r_{cap}^2}{20},$$

где ε – пористость, %. Гидростатическое давление, входящее в формулу (3), является единственным слагаемым, не зависящим напрямую от тепловой нагрузки. Оно рассчитывается по формуле

$$\Delta P_g = \rho_l g H = \rho_l g L_{ll} \sin\varphi,$$

где H – высота столба жидкости, которая определяется углом наклона жидкостной линии относительно горизонтальной плоскости; g – ускорение свободного падения, м/с^2; L_{ll} – длина конденсатопровода, м. Так, при вертикальной ориентации КТТ, когда испаритель находится над конденсатором, угол наклона $\varphi = 90°$ и, соответственно, $\sin\varphi = 1$, величина ΔP_g принимает наибольшее значение. При горизонтальной ориентации КТТ, когда $\varphi = 0°$, высота столба жидкости $L_{ll}\sin\varphi = 0$, и соответственно, вклад гидростатического давления в полное падение давления ΔP_{tot} отсутствует. Такое положение КТТ можно рассматривать как нейтральное.

Из уравнений (4), (5) следует, что чем выше тепловая нагрузка Q, тем больше гидравлические потери давления на каждом транспортном участке КТТ. Вместе с тем условие (2) накладывает ограничение на повышение тепловой нагрузки до некоторого его наибольшего значения, которое определяется из равенства левой и правой его частей. Таким образом, можно говорить о том, что предельный случай выполнения условия (2) связывает капиллярное давление с полным падением давления в КТТ при максимальной передаваемой тепловой нагрузке:

$$\Delta P_{cap} = \Delta P_{tot}(Q_{max}),$$

или

$$\frac{2\sigma}{r_{cap}} = \Delta P_{vg}(Q_{max}) + \Delta P_{vl}(Q_{max}) + \Delta P_{cond}(Q_{max}) + \Delta P_{ll}(Q_{max}) + \Delta P_{wick}(Q_{max}) + \Delta P_g. \qquad (6)$$

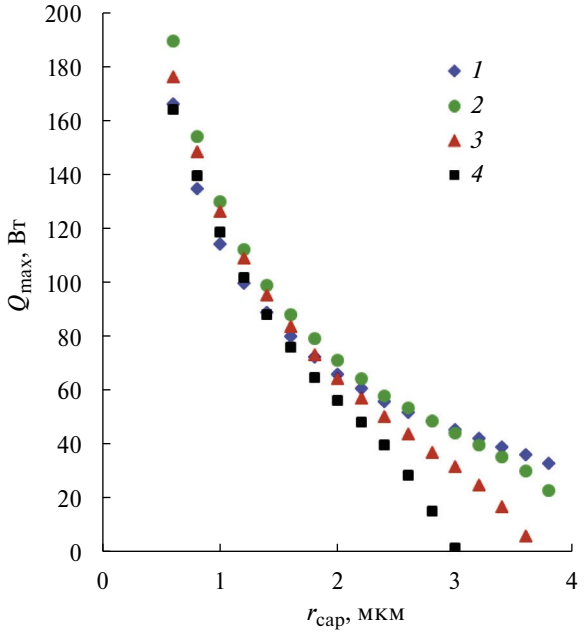

Рис. 4. Зависимости максимальной тепловой нагрузки от радиуса пор при различных температурах пара: *1* – $T_v = 0°$C, *2* – 20, *3* – 40, *4* – 50.

Это уравнение лежит в основе методики расчета максимальных значений тепловой нагрузки, передаваемой КТТ в зависимости от радиуса пор фитиля. Для решения этого уравнения необходимо рассчитать полный перепад давления в КТТ. Что касается первых четырех слагаемых в правой части уравнения (6), то они рассчитываются согласно рекомендациям и формулам из справочной литературы для гидравлических сопротивлений трубопроводов [19]. Потери давления на каждом из этих участков включают в себя как вязкостные потери ΔP_{μ}, так и местные потери давления ΔP_{loc}, которые возникают в местах изгибов, поворотов, сужений трубопровода:

$$\Delta P_{\text{pipe}} = \Delta P_{\mu} + \Delta P_{\text{loc}},$$

$$\Delta P_{\text{pipe}} = \frac{1}{2}\left(\zeta \frac{L_{\text{pipe}}}{D_{\text{pipe}}} + \lambda\right)\frac{Q^2}{\rho h_{\text{ev}}^2 S_{\perp}^2}, \qquad (7)$$

где L_{pipe}, D_{pipe} – длина и гидравлический диаметр трубопровода. Расчетные соотношения для коэффициента трения Дарси ζ и коэффициента местного сопротивления λ представлены в Приложении. Необходимо отметить, что имеет место зависимость потерь давления от температуры теплоносителя, поскольку в соответствующие уравнения для расчета ΔP входят теплофизические параметры рабочей жидкости, зависящие от температуры. Для КТТ с большой длиной транспортных линий прежде всего следует учитывать влияние температуры пара T_v на потери давления в паровой линии. С учетом вышесказанного можно заключить, что имеют место следующие функциональные зависимости, представленные в общем виде:

$$Q_{\max} = f(r_{\text{cap}}, T_v),$$

или

$$T_v = f(r_{\text{cap}}, Q_{\max}).$$

На рис. 4 показаны расчетные зависимости максимальной тепловой нагрузки от радиуса пор для КТТ, геометрические параметры которой представлены в табл. 2, для самой неблагоприятной ориентации КТТ, когда испаритель расположен на 2 м выше конденсатора. Пористость фитиля составляла 51%. Расчеты выполнены для четырех значений температуры пара T_v из температурного диапазона от 0 до 50°C. На основании этих данных определен диапазон приемлемых значений радиуса пор фитиля для номинальной тепловой нагрузки 100 Вт. Для обеспечения работы КТТ нужны поры с радиусом около 1.5 мкм (рис. 4), поскольку более крупные поры не могут создать необходимый капиллярный напор, чтобы компенсировать все потери давления в данном устройстве. В соответствии с этим фитиль экспериментальной КТТ с учетом условия (1) изготовлен с пробойным радиусом пор r_{cap} = 1.49 мкм.

Результаты гидродинамического анализа КТТ для трех различных положений и тепловых нагрузок представлены в виде диаграмм. Видно, что при горизонтальном положении КТТ (рис. 5а) самые большие потери давления имеют место в паровой линии, которые увеличиваются с ростом тепловой нагрузки и достигают 78.8% при нагрузке 100 Вт. При H = 1.1 м их доля снижается до 59.9% (рис. 5б). При самой неблагоприятной ориентации КТТ, когда испаритель находится выше конденсатора на

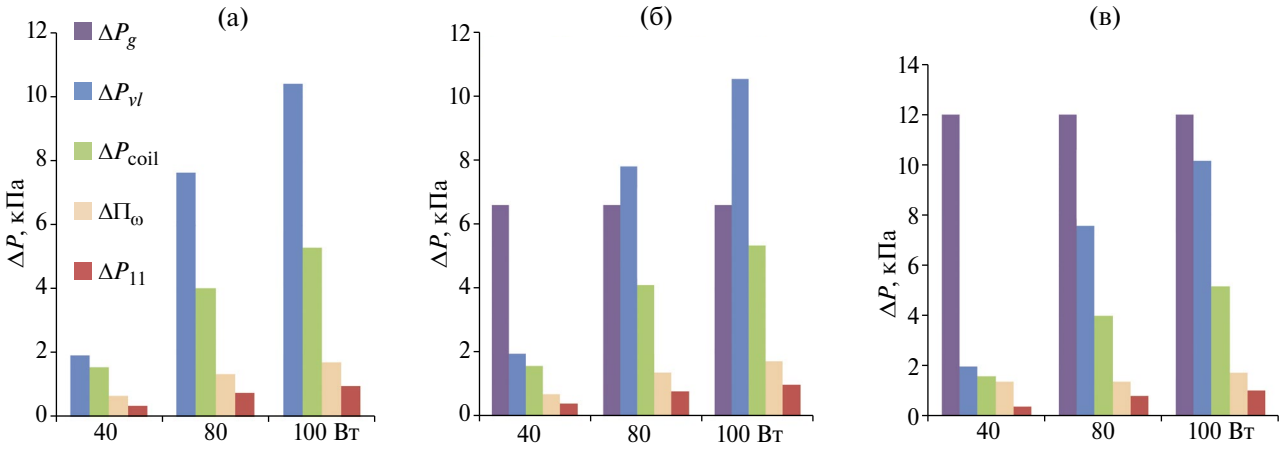

Рис. 5. Потери давления в КТТ при H = 0 м (а), 1.1 (б), 2 (в).

2 м, превалирующими становятся гидростатические потери давления, величина которых является постоянной, и их вклад при тепловой нагрузке 100 Вт составляет 48.8% (рис. 5в). Следует отметить также, что суммарные потери давления в трубчатых спиралях паровой линии также весьма существенны. При их отсутствии максимальная мощность КТТ может быть увеличена приблизительно до 150 Вт при горизонтальном расположении устройства. Гибкость устройства при этом практически сохраняется, но теряется возможность изменять его длину.

ПРОЦЕДУРА ИСПЫТАНИЙ

Испытания КТТ проводились при температуре воздуха 17–18°C в горизонтальной позиции и при работе в “антигравитационном” режиме, когда испаритель размещался выше конденсатора на 1.1 и 2 м. В качестве имитатора реального источника тепла использовалась обогреваемая алюминиевая пластина размером 86 × 64 × 6 мм^3, которая прижималась к одной из двух бóльших сторон интерфейса испарителя. Для измерения величины тепловой нагрузки, которая изменялась от 10 до 110 Вт, использовался измерительный комплекс “Gwinstek APS-95-01”. Интерфейс конденсатора прижимался к плоскому алюминиевому теплообменнику, через который прокачивался 55%-ный раствор этиленгликоля в воде при температуре на входе 20°C. Температура и расход охлаждающей жидкости 4 л/мин обеспечивались рециркуляционным криостатом “LOIP FT-31640-U2”. Кроме точек измерения температуры (рис. 2), измерялась также температура T_e в центре греющей поверхности источника тепла, совмещенного с центром активной зоны испарителя. Для измерений использовались медь-константановые термопары “OMEGA T-TT-30” диаметром 0.2 мм. Для сбора, обработки и регистрации показаний термопар применялось устройство сбора данных “Agilent 34970A” в комплекте с персональным компьютером. Исследовались зависимости от тепловой нагрузки температуры источника тепла на его поверхности, контактирующей с интерфейсом испарителя, а также термических сопротивлений испарителя R_j, конденсатора R_c, полного термического сопротивления контурной тепловой трубы R_{LHP} и термического сопротивления системы R_{sys}. Расчет термических сопротивлений осуществлялся по формулам:

$$R_j = \frac{\left(T_{hs} - T_{v1}\right)}{Q},$$

$$R_c = \frac{\left(T_{v2} - \overline{T}_c\right)}{Q},$$

где

$$\overline{T}_c = \frac{T_{c1} + T_{c2} + T_{c3} + T_{c4}}{4},$$

$$R_{LHP} = \frac{\left(T_{hs} - \overline{T}_c\right)}{Q}.$$

Расчет полного термического сопротивления системы “источник тепла–сток тепла” производился по формуле

$$R_{\text{sys}} = \frac{\left(T_{hs} - T_{\text{cool}}\right)}{Q},$$

где T_{hs}, T_{cool} – температуры источника тепла и охлаждающей жидкости.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИСПЫТАНИЙ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты испытаний представлены в виде графических зависимостей рабочей температуры и термического сопротивления КТТ от величины тепловой нагрузки, которые являются основными тепловыми характеристиками устройств подобного типа.

На рис. 6, в частности, показана зависимость температуры источника тепла, который в данном случае моделирует реальный охлаждаемый объект,

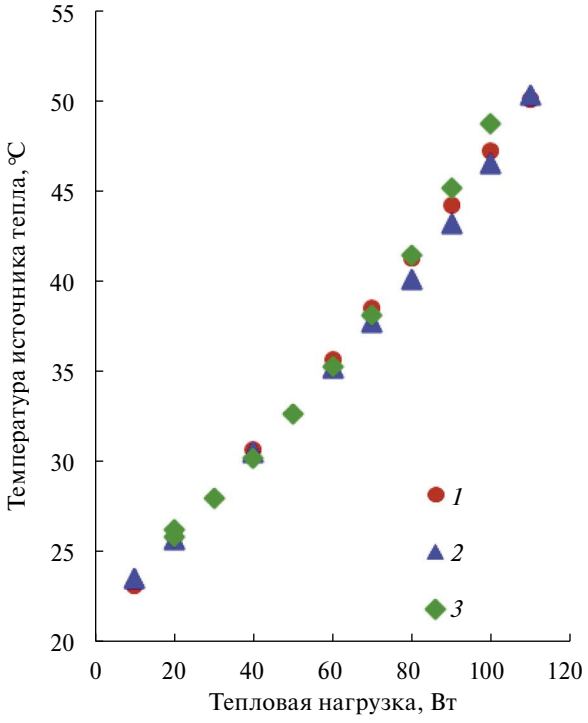

Рис. 6. Зависимости температуры источника тепла от тепловой нагрузки при H = 0 м (*1*), 1.1 (*2*), 2 (*3*).

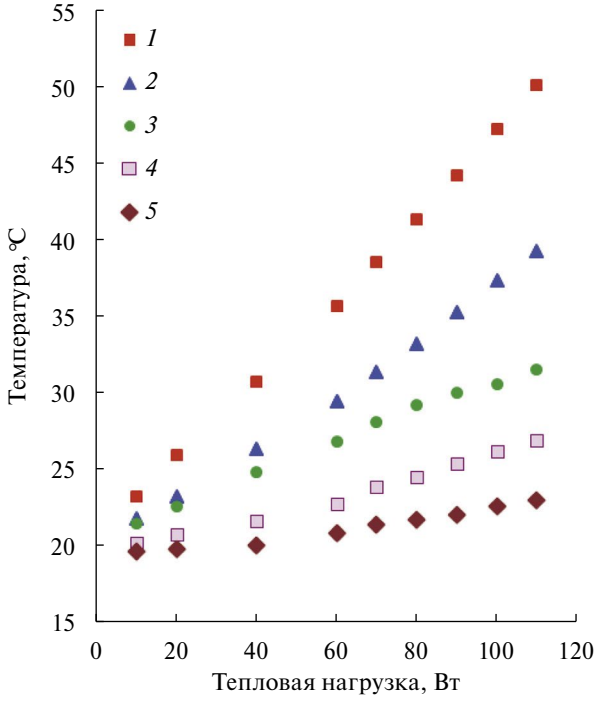

Рис. 7. Распределения температуры в КТТ в зависимости от тепловой нагрузки при $T_{cool} = 20°C$ и $H = 0$ м: *1* – T_{hs}, *2* – T_{v1}, *3* – T_c, *4* – T_{cc}, *5* – T_{l2}.

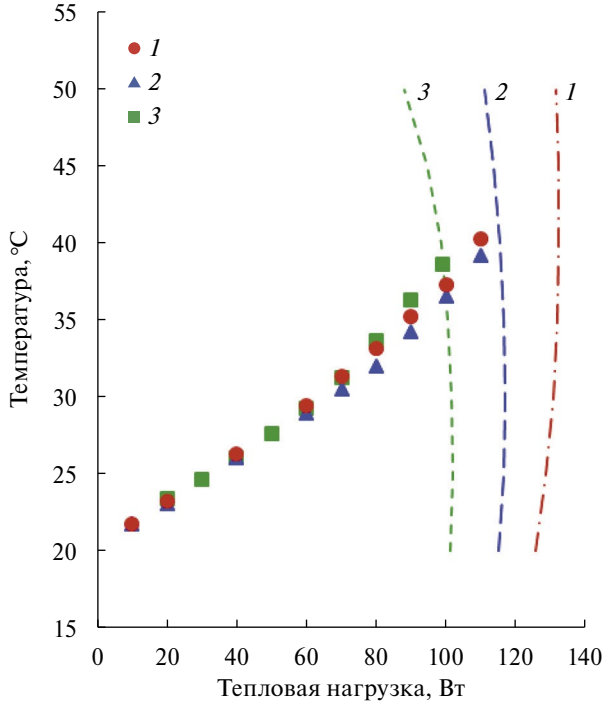

Рис. 8. Зависимости температуры пара от тепловой нагрузки при $H = 0$ м (*1*), 1.1 (*2*), 2 (*3*); маркеры – эксперимент, кривые – расчет.

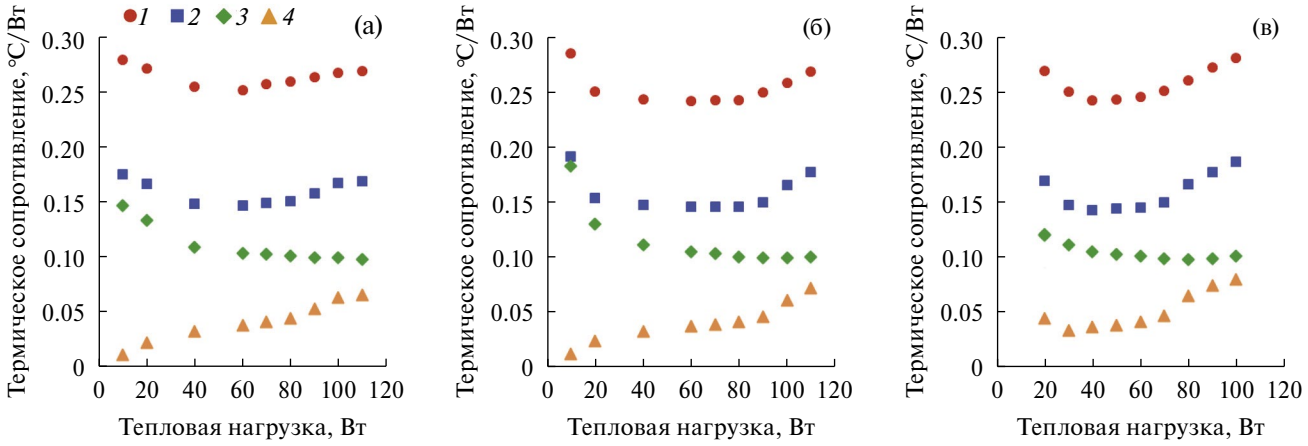

Рис. 9. Зависимости термического сопротивления от тепловой нагрузки при $H = 0$ м (а), 1.1 (б), 2 (в): *1* – R_{sys}, *2* – R_{LHP}, *3* – R_j, *4* – R_c.

от величины тепловой нагрузки при различных положениях КТТ. Температура источника тепла слабо зависит от изменения ориентации устройства в гравитационном поле, что, как отмечалось выше, является одним из основных преимуществ контурных тепловых труб. При номинальной тепловой нагрузке 100 Вт температура источника тепла изменяется в пределах 46.5–48.7°C.

На рис. 7 представлено типичное распределение температуры на основных участках КТТ при горизонтальном расположении устройства. Температура пара T_{v1}, которая наиболее представительно характеризует тепловое состояние КТТ, изменялась в диапазоне от 21.8 до 39.3°C при увеличении тепловой нагрузки от 10 до 110 Вт. Соответствующие значения температуры источника тепла при

этом увеличивались от 23.2 до 47.2°C. Аналогичный характер изменения температуры имел место и при других ориентациях устройства. Для $H = 1.1$ м температура источника тепла увеличивалась от 23.6 до 46.5°C, а при $H = 2$ м, где тепловая нагрузка изменялась от 20 до 100 Вт, эти значения равны 25.9 и 47.8°C.

Достоверность расчетов для выбора радиуса пор и максимальных тепловых нагрузок подтверждается данными на рис. 8. Здесь представлены экспериментальные зависимости температуры пара от тепловой нагрузки, а также расчетные зависимости $T_v = f(Q_{\max})$, полученные на основании уравнения (6) и системы уравнений, описывающей перепады давления на всех транспортных участках КТТ. Результаты представлены для трех ориентаций КТТ. Каждая расчетная кривая условно разделяет область рисунка на две части. Левая часть относится к области допустимого соответствия между тепловой нагрузкой Q и температурой пара T_v, при которых выполняется условие (2). Соответственно, в правой части рисунка находится область нереализуемых рабочих параметров Q и T_v из-за ограниченной величины капиллярного давления, создаваемого фитилем. Таким образом, расчетные кривые $T_v = f(Q_{\max})$ являются пограничными линиями, определяющими верхнюю границу диапазона рабочих тепловых нагрузок при определенной температуре пара и ориентации КТТ. Здесь видно, что экспериментальные точки достаточно близко приближаются к расчетным кривым, при этом не заходя за них в область нереализуемых значений параметров Q и T_v.

На рис. 9 представлены экспериментальные зависимости термических сопротивлений от тепловой нагрузки. Кривые имеют практически одинаковый характер независимо от ориентации КТТ. При этом минимальное различие имело место для величины R_j, которая при номинальной тепловой нагрузке 100 Вт варьировалась от 0.099 до 0.101°C Вт. Термическое сопротивление конденсатора R_c при увеличении H до 1.1 м оставалось без изменения на уровне 0.068°C/Вт и возрастало до 0.085°C/Вт при $H = 2$ м. Это связано с увеличением степени заполнения конденсатора жидкостью, которую теряли более крупные поры фитиля при сильном увеличении высоты подъема испарителя относительно конденсатора, когда увеличивалось гидростатическое сопротивление. Соответственным образом формировались и величины R_{LHP} и R_{sys}, которые изменялись в диапазоне от 0.166 до 0.186°C/Вт и от 0.259 до 0.281°C/Вт соответственно.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые разработана длинная гибкая КТТ с диаметром паропровода и конденсатопровода 2 мм, способная изменять длину и эффективно работать как при горизонтальной, так и при сильно неблагоприятной ориентации в гравитационном поле, когда испаритель располагается на 2 м выше конденсатора.

Предложен критерий L_{vl}/D_{vl}, величина которого позволяет условно определять понятие “длинная КТТ”.

Гидродинамический анализ устройства показал, что наибольшие потери давления при горизонтальном положении имеют место в паровой линии, когда они достигают 78.8%. При самой неблагоприятной ориентации превалирующим становится гидростатическое сопротивление столба теплоносителя в жидкостной линии, величина которого составляет 48.8% и не зависит от тепловой нагрузки.

Тепловые испытания при температуре стока тепла 20°C продемонстрировали, что рабочая температура и термическое сопротивление КТТ слабо зависят от ориентации устройства в гравитационном поле. При номинальной тепловой нагрузке 100 Вт изменение температуры источника тепла находилось в пределах 2°C, а термическое сопротивление КТТ – в пределах 0.02°C/Вт.

ПРИЛОЖЕНИЕ

Согласно справочным данным [19], формула для расчета коэффициента трения для трубы произвольного поперечного сечения может быть записана как

$$\zeta = \zeta_{\text{cir}} K_{\text{cor}},$$

где ζ_{cir} – коэффициент трения для круглой трубы; K_{cor} – поправочный коэффициент, учитывающий форму поперечного сечения некруглой трубы и, соответственно, для круглой трубы $K_{\text{cor}} = 1$. Коэффициенты трения для различных режимов течения в круглой трубе представлены в табл. 3. Параметр Δ – это абсолютная шероховатость внутренней поверхности трубы, d – внутренний диаметр трубы, отношение Δ/d – относительная шероховатость (табл. 3). Абсолютная шероховатость нержавеющих труб принята равной 0.02 мм.

Коэффициенты сопротивления при течении внутри трубчатой спирали с относительным диаметром $D_{\text{coil}}/D_{\text{pipe}} > 4$ также рассчитываются по формуле (7), где ζ_{cir} – коэффициент трения в прямой трубе такого же диаметра, что и труба спирали. Коррекционный коэффициент K_{cor} в зависимости от режима течения и критерия Дина определяется согласно табл. 4. Формула для критерия Дина:

Таблица 3. Коэффициент трения для различных режимов течения теплоносителя в круглой трубе

Режим течения теплоносителя	Коэффициент трения
Ламинарный поток, Re < 2300	$\zeta_{cir} = \dfrac{64}{\mathrm{Re}}$
Переходный режим течения потока: ни полностью ламинарный, ни полностью турбулентный (критическая область чисел Re), формула Френкеля, $2300 \leqslant \mathrm{Re} \leqslant 4000$	$\zeta_{cir} = 0.00063\sqrt{\mathrm{Re}}$
Турбулентный поток, Re > 4000	
Для турбулентного потока в гладких трубах: уравнение Блазиуса ($4000 < \mathrm{Re} < 10^5$)	$\zeta_{cir} = \dfrac{0.3164}{\mathrm{Re}^{0.25}}$
Для турбулентного потока в шероховатой трубе: уравнение Коулбрука–Уайта (переходная область на диаграмме Муди), $20\dfrac{D}{\Delta} \leqslant \mathrm{Re} \leqslant 500\dfrac{D}{\Delta}$	$\zeta_{cir} = \left[2\lg\left(\dfrac{2.51}{\mathrm{Re}\sqrt{\zeta}} + \dfrac{\Delta}{3.7D}\right)\right]^{-2}$
Для полностью шероховатой области: уравнение Шифринсона, $500\dfrac{d}{\Delta} < \mathrm{Re}$	$\zeta_{cir} = 0.11\left(\dfrac{\Delta}{D}\right)^{0.25}$

Таблица 4. Коррекционный коэффициент K_{cor} для трубчатой спирали в зависимости от режима течения и критерия Дина (De)

Режим течения теплоносителя	Коррекционный коэффициент
Ламинарный поток, Re < 2300, $\mathrm{De} \leqslant 11.6$	$K_{cor} = 1$
Ламинарный поток с микровихрями, Re < 2300, 11.6 < De	$K_{cor} = \left(1 - \left[1 - \left(\dfrac{11.6}{\mathrm{De}}\right)^{0.51}\right]^{2.9}\right)^{-1}$
Турбулентный поток, $2300 \leqslant \mathrm{Re}$	$K_{cor} = 1 + 1.68\left(\dfrac{D}{D_{coil}}\right)^{0.65}$

Таблица 5. Значения коэффициента B_1 при различных углах поворота трубы или канала φ

Угол поворота	$\varphi < 70°$	$\varphi = 90°$	$\varphi > 100°$
B_1	$0.9\sin\varphi$	1	$0.7 + 0.35\dfrac{\varphi}{90°}$

Таблица 6. Выражения для коэффициента B_2 при различных соотношениях R_{bend}/D_{pipe}

R_{bend}/D_{pipe}	$0.5 \leqslant R_{bend}/D_{pipe} \leqslant 1.0$	$1.0 < R_{bend}/D_{pipe}$
B_2	$0.21\left(\dfrac{R_{bend}}{D_{pipe}}\right)^{-2.5}$	$0.21\left(\dfrac{R_{bend}}{D_{pipe}}\right)^{-0.5}$

$$\mathrm{De} = \mathrm{Re}\sqrt{\frac{D_{\mathrm{pipe}}}{D_{\mathrm{coil}}}},$$

где D_{pipe} – гидравлический диаметр трубки спирали, D_{coil} – диаметр витка спирали.

Локальный коэффициент трения для изгиба трубки (см. уравнение (7)) можно записать в виде

$$\lambda = B_0 B_1 B_2,$$

где коэффициент $B_0 = f\left(\frac{b}{d}\right)$ учитывает характерные размеры поперечного сечения трубы или канала (b и d). Для круглых и квадратных труб этот коэффициент, согласно справочным данным [19], равен 1. Значения B_1 и B_2 приведены в табл. 5 и 6 соответственно.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Герасимов Ю.Ф., Щеголев Г.Т., Майданик Ю.Ф., Филиппов Г.А., Стариков Л.Г.* Низкотемпературная тепловая труба с раздельными каналами для пара и жидкости // ТВТ. 1974. Т. 12. № 5. С. 1131.
2. *Maydanik Yu.F.* Loop Heat Pipes // Appl. Therm. Eng. 2005. V. 25. № 5–6. P. 635.
3. *Дан П.Д., Рей Д.А.* Тепловые трубы. М.: Энергия, 1976. 272 с.
4. *Maidanik Yu.F., Pastukhov V.G.* Loop Heat Pipes – Resent Developments, Test Results, and Applications // 34th Intersociety Energy Conversion Engineering Conf. 1999. SAE Tech. Paper 1999-01-2530.
5. *Гончаров К.А., Майданик Ю.Ф., Двирный В.В.* Система солнечного теплоснабжения. Патент РФ № 1776937. Кл. МПК-F24J 2/42. 23.11.1992.
6. *Liao Z., Xu C., Ren Y., Gao F., Ju X., Du X.* Thermal Analysis of a Conceptual Loop Heat Pipe for Solar Central Receivers // Energy. 2018. V. 158. P. 709.
7. *Майданик Ю.Ф., Чернышева М.А.* Устройство для обогрева. Патент РФ на полезную модель № 7182 U1. МПК-F24D. 16.07.1998.
8. *Xiao B., Deng W., Ma Z., He S., He L., Li X., Yuan F., Liu W., Liu Z.* Experimental Investigation of Loop Heat Pipe with a Large Squared Evaporator for Multi-heat Sources Cooling // Renewable Energy. 2020. V. 147. Part 1. P. 239.
9. *Zhang Z., Zhao R., Liu Z., Liu W.* Application of Biporous Wick in Flat-plate Loop Heat Pipe with Long Heat Transfer Distance // Appl. Therm. Eng. 2021. V. 184. 116283.
10. *Mitomi M., Nagano H.* Long-distance Loop Heat Pipe for Effective Utilization of Energy // Int. J. Heat Mass Transfer. 2014. V. 77. P. 777.
11. *Nakamura K., Odagiri K., Nagano H.* Study on a Loop Heat Pipe for a Long-distance Heat Transport under Anti-gravity Condition // Appl. Therm. Eng. 2016. V. 107. P. 167.
12. *Maydanik Y.F., Fershtater Y.G., Pastukhov V.G., Vershinin S.V., Goncharov K.A.* Some Results of Loop Heat Pipe Development, Tests and Application in Engineering // 5th Int. Heat Pipe Symp. Melbourne, Australia, 1996. P. 406.
13. *Goncharov K., Kolesnikov V.* Development of Propylene LHP for Spacecraft Thermal Control Systems // 12th Int. Heat Pipe Conf. Moscow, Russia, 2002. P. 171.
14. *Ku J., Ottenstein L., Rogers P., Cheung K.* Effect of Pressure Drop on Loop Heat Pipe Operating Temperature // 12th Int. Heat Pipe Conf. Moscow, Russia, 2002. P. 153.
15. *Jasvanth V.S., Adoni A.A., Jaikumar V., Ambirajan A.* Design and Testing of an Ammonia Loop Heat Pipe // Appl. Therm. Eng. 2017. V. 111. P. 1655.
16. *Zhao Ya., Yan T., Liang J.* Experimental Investigation on Thermal Characteristics of Long Distance Loop Heat Pipes // J. Therm. Sci. 2022. V. 31. P. 741.
17. *Чернышева М.А., Майданик Ю.Ф.* Моделирование тепломассопереноса в цилиндрическом испарителе контурной тепловой трубы с прямоугольным интерфейсом // ТВТ. 2021. Т. 59. № 3. С. 362.
18. *Кусков Г.В.* Структура, свойства и получение высокопористых материалов для антигравитационных тепловых труб. Дис. ... канд. техн. наук. Свердловск, 1986. 181 с.
19. *Идельчик И.Е.* Справочник по гидравлическим сопротивлениям. М.: Машиностроение, 1992. 672 с.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 67–71

УДК 532.529

ВЛИЯНИЕ ИЗМЕНЕНИЯ СОСТАВА ФАЗ ПРИ ТЕЧЕНИИ ДВУХФАЗНЫХ ЗЕОТРОПНЫХ СМЕСЕЙ НА ПЕРЕПАД ДАВЛЕНИЯ[1]

© 2024 г. А. С. Шамирзаев*

Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск, Россия

**E-mail: alisham@itp.nsc.ru*

Поступила в редакцию 09.09.2022 г.
После доработки 13.11.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

В данной работе построена система уравнений, описывающих влияние трения, фазового перехода, теплового расширения и сжимаемости фаз на изменение паросодержания и градиент давления. Определены критерии, учитывающие влияние изменения массы, сжимаемости и теплового расширения фаз. В качестве дополнительного условия использовалось допущение о локальном равновесии фаз и о том, что трение при течении парожидкостных зеотропных потоков описывается по тем же законам, что и для однокомпонентных сред. Верификация модели показала хорошее соответствие рассчитанных значений экспериментальным данным.

DOI: 10.31857/S0040364424010096

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в соответствии с концепцией продвижения озонобезопасных рабочих тел с низкими потенциалами усиления глобального потепления при создании высокоэффективных и экологически безопасных охлаждающих систем большое внимание уделяется использованию смесевых хладагентов. При проектировании и оптимизации тепломассообменного оборудования важнейшим аспектом анализа является точная оценка падения давления в системе. Параметры течения пленок жидкости, формируемых напряжением межфазного трения на границе парожидкостного течения, являются существенным фактором, определяющим условия тепломассообмена при фазовых переходах: как при испарении (кипении), так и при конденсации. Несмотря на множество корреляций, предсказывающих падение давления парожидкостных потоков, существующие формулы хорошо применимы к конкретным условиям, для которых они были разработаны, и требуют верификации в разных условиях [1].

Еще одной причиной, по которой в настоящее время большое внимание уделяется исследованию перепада давления при течении зеотропных смесей, является задача оптимизации устройств, работающих на основе термодинамических циклов. Термодинамические свойства смесей хорошо изучены, но термическое поведение смесей в теплообменниках еще не изучено подробно, и современные методы оптимизации не всегда обеспечивают наилучшую производительность систем. Анализ, проведенный в работе [2], подчеркивает проблемы оптимизации систем на базе цикла Джоуля–Томсона. При проектировании и оптимизации теплообменного оборудования важнейшим аспектом анализа является точная оценка падения давления в системе.

Современные методы численного моделирования парожидкостных течений, таких как решеточные уравнения Больцмана [3, 4] или гидродинамика сглаженных частиц [5], могут успешно решать такие задачи, но требуют больших вычислительных затрат, особенно при крупномасштабном численном моделировании. При использовании методов прямого численного моделирования для зеотропных смесей возникают дополнительные трудности, связанные с тем, что в условиях фазового перехода в зеотропных смесях изменяется состав компонентов в фазах, что может приводить к заметному изменению теплофизических свойств по потоку. В таких условиях возникает необходимость учета сжимаемости не только для паровой, но и для жидкой фаз из-за изменения плотности жидкой фазы по мере изменения компонентного состава.

В настоящее время проводятся многочисленные экспериментальные исследования, направленные на понимание особенностей течения зеотропных смесей. В работе [6] получен большой набор данных по перепаду давления при кипении

[1] По материалам Восьмой Российской национальной конференции по теплообмену (РНКТ-8). Москва. 17–22 октября 2022 г.

зеотропных смесей с большим температурным глайдом (от 135 до 53°C) в каналах диаметром 0.5 и 1.5 мм в диапазоне массовых скоростей до 250 кг/(м^2 с) и тепловых потоков до 120 кВт/м^2. Проведено сравнение с большим количеством моделей. Показано, что существующие модели, используемые в инженерной практике, плохо описывают сопротивление при течении смесей с большим температурным глайдом. Отклонение экспериментальных данных от расчетных зависимостей, наилучшим образом описывающих экспериментальные данные, может превышать 100% в области сильных изменений концентраций компонентов в фазах. Использование искусственных нейросетей для расчета перепада давления при кипении сильно зеотропных смесей при скоростях течения до 250 кг/(м^2 с), проведенное в Ливерморской лаборатории США [7], позволило уменьшить среднюю относительную ошибку расчета до 10%, при этом максимальные отклонения в расчетах достигают 40%. В то же время использование такого подхода требует большой экспериментальной базы для обучения и не может гарантировать правильного расчета при заметном изменении граничных условий.

В данном исследовании представлен приближенный метод расчета перепада давления при течении парожидкостного потока зеотропной смеси, учитывающий изменения теплофизических свойств жидкой и паровой фаз, по длине нагреваемого канала с использованием уравнения состояния.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Задача об определении перепада давления при течении парожидкостного потока зеотропной смеси рассматривается в рамках модели раздельного течения. Градиент давления в канале представлен в виде суммы потерь давления на трение и на ускорение потока, как в [8]:

$$-\left(\frac{dP}{dz}\right) = -\left(\frac{dP}{dz}\Big|_{\mathrm{Fr}}\right) + \left(\frac{dP}{dz}\Big|_{\mathrm{Acc}}\right),$$
$$\left(\frac{dP}{dz}\Big|_{\mathrm{Acc}}\right) = G^2\,\frac{d}{dz}\left[\frac{x^2\upsilon_V}{\alpha} + \frac{(1-x)^2\,\upsilon_L}{(1-\alpha)}\right]. \quad (1)$$

Здесь G – массовая скорость; x – массовое паросодержание; α – объемное газосодержание; υ_V и υ_L – удельные плотности пара и жидкости соответственно; z – продольная координата, мм. Гравитационная составляющая перепада давления не учитывается, рассматривается только горизонтальное течение.

В ходе течения парожидкостного потока зеотропной смеси изменение давления и температуры вдоль течения приводит к изменению состава, следовательно, и плотности как паровой, так и жидкой фаз, что необходимо учитывать при расчете ускорения потока в формуле (1).

Используется допущение, что жидкость находится в равновесии с паровой фазой. В условиях фазового равновесия зеотропных смесей давление и температура определяют концентрацию компонентов и зависимость потерь на ускорение потока зеотропной смеси можно представить в виде

$$\left.\frac{dP}{dz}\right|_{\mathrm{Acc}} = G^2\,|_x\,\frac{dx}{dz} + G^2\,|_P\,\frac{dP}{dz} + G^2\,|_T\,\frac{dT}{dz},$$

$$\Omega_x = \left(\frac{2x}{\alpha}\upsilon_V - \frac{2(1-x)}{(1-\alpha)}\upsilon_L\right) + \left(\frac{(1-x)^2}{(1-\alpha)^2}\upsilon_L - \frac{x^2}{\alpha^2}\upsilon_V\right)\left(\frac{\partial\alpha}{\partial x}\right)_{P,T},$$

$$\Omega_P = \frac{x^2}{\alpha}\left(\frac{\partial\upsilon_V}{\partial P}\right)_T + \left(\frac{(1-x)^2}{(1-\alpha)^2}\upsilon_L - \frac{x^2}{\alpha^2}\upsilon_V\right)\times \left(\frac{\partial\alpha}{\partial P}\right)_{x,T} + \frac{(1-x)^2}{(1-\alpha)}\left(\frac{\partial\upsilon_L}{\partial P}\right)_T,$$

$$\Omega_T = \frac{x^2}{\alpha}\left(\frac{\partial\upsilon_V}{\partial T}\right)_P + \left(\frac{(1-x)^2}{(1-\alpha)^2}\upsilon_L - \frac{x^2}{\alpha^2}\upsilon_V\right)\times \left(\frac{\partial\alpha}{\partial T}\right)_{x,P} + \frac{(1-x)^2}{(1-\alpha)}\left(\frac{\partial\upsilon_L}{\partial T}\right)_P.$$

Для расчета частных производных от удельного объема газа используется вириальное уравнение состояния до второго члена в виде

$$PV = ZRT,$$
$$Z = 1 + \frac{BP}{RT}.$$

В случае, когда приведенное давление в системе больше 0.4, необходимо учитывать следующие члены вириального разложения. Для расчета частных производных от удельного объема жидкости, используя тот факт, что рассматривается жидкость в состоянии равновесия с паром, можно использовать уравнение состояния, предложенное в работе [9]:

$$V_{L,\mathrm{sat}} = \left(\frac{RT_{\mathrm{cr}}}{P_{\mathrm{cr}}}\right)Z_{\mathrm{cr}}^{\,1+(1-T_r)^{2/7}},$$

где V – молярный объем (индекс sat подразумевает условие фазового равновесия); $Z_{\mathrm{cr}} = (P_{\mathrm{cr}}V_{\mathrm{cr}})/(RT_{\mathrm{cr}})$; T_r – приведенная температура. Так как по потоку происходит изменение состава фаз,

производную от удельного объема жидкости по давлению в общем случае нельзя полагать равной нулю.

Следует отметить, что вследствие изменения состава фаз по потоку изменение локального паросодержания не прямо пропорционально изменению энтальпии потока. Изменение паросодержания по длине рассчитывается как

$$\frac{dx}{dz} = \frac{1}{GA}\sum \frac{dn_{V,i}}{dz} M_i, \qquad (2)$$

где A – площадь сечения канала, $n_{V,i}$ – количество испарившегося вещества для i-го компонента в молях, M_i – молярная масса i-го компонента.

Изменение энтальпии потока H вдоль обогреваемого канала прямо пропорционально количеству тепла, поступившему в поток:

$$\frac{dH}{dz} = q\Pi.$$

Здесь q – тепловой поток на стенке канала, Π – обогреваемый периметр. В то же время для двухфазного парожидкостного течения изменение энтальпии потока можно рассчитать по изменению температуры и давления следующим образом:

$$\begin{aligned}\frac{dH}{dz} = GA\Bigg(&\Big[(1-x)C_{P,L} + xC_{P,V}\Big]\frac{dT}{dz} + \\ &+\Bigg[x\left(\upsilon_V - \frac{T}{\overline{M_V}}\left(\frac{\partial\left(\overline{M_V}\upsilon_V\right)}{\partial T}\right)_P\right) + \\ &+(1-x)\left(\upsilon_L - \frac{T}{\overline{M_L}}\left(\frac{\partial\left(\overline{M_L}\upsilon_L\right)}{\partial T}\right)_P\right)\Bigg]\frac{dP}{dz}\Bigg) + \\ &+\sum\frac{dn_{V,i}}{dz}\Delta\tilde{H}_{V.L},\end{aligned} \qquad (3)$$

где $\Delta\tilde{H}_{V.L}$ – разница молярных энтальпий газа и жидкости. Здесь использовано допущение об отсутствии теплоты смешения, что вполне правомерно для смесей недиссоциирующих веществ.

Решая систему уравнений (1), (3), получаем распределение температуры и давления по длине канала. В качестве модели для расчета потерь давления на трения необходимо выбрать модель, описывающую перепад давления для газожидкостного потока без фазовых переходов в исследуемых условиях. Расчет члена, учитывающего влияние ускорения потока, сделан в предположении, что течение квазиравновесно. Предполагается, что изменение градиента температуры по сечению канала не оказывает существенного влияния на изменение плотности фаз по длине канала, и течение можно рассматривать в одномерном приближении:

$$\int_0^h \frac{d}{dy}\left(\frac{d\upsilon_{i,\mathrm{sat}}}{dz} - \frac{d\upsilon_i}{dz}\right)dy \Bigg/ \frac{d\upsilon_{i,\mathrm{sat}}}{dz} \ll 1.$$

Здесь y – направление, ортогональное направлению течения, а пределы интегрирования определяются поперечными размерами канала. Фазы также не должны находиться в метастабильном состоянии.

ВЕРИФИКАЦИЯ

Для верификации вышеизложенного метода проведен расчет перепада давления для бинарной смеси “метан–этан” в условиях, соответствующих данным из работы [6], и проведено сравнение с экспериментальными данными по полному перепаду давления для канала диаметром 0.506 мм с необогреваемой длиной на концах канала 25.37 мм и обогреваемой длиной 17.5 мм. Общая длина канала – 68.24 мм, параметры потока взяты из прилагаемого к [10] файла.

Для бинарной смеси при расчете изменения паросодержания по длине канала количество испарившегося вещества для каждого компонента для уравнения (2) можно рассчитать из условия фазового равновесия следующим образом:

$$\frac{dn_{V,j}}{dz} = \frac{n_L y_j \dfrac{dx_j}{dz} + n_V x_j \dfrac{dy_j}{dz}}{x_1 y_2 - x_2 y_1}.$$

Здесь x_j (j = 1, 2) – молярные содержания метана и этана в жидкой фазе; y_j (j = 1, 2) – молярные содержания в паровой фазе. Молярные содержания компонентов определяются как функция температуры и давления в равновесных условиях.

На рис. 1 представлен пример расчета распределения температуры потока по длине экспериментального участка. В расчете отдельно рассмотрены адиабатические участки и участок с обогревом.

Результаты, полученные в конце входного адиабатического участка, использованы как граничные условия для обогреваемого участка. Аналогично для выходного адиабатического участка. В условиях, когда рассчитанный перепад давления отклоняется от экспериментального менее чем на 0.3 кПа, отклонение измеренных значений температуры от расчетных не превышает точности измерения. Максимальное отклонение рассчитанной температуры от измеренной по всей обработанной базе данных не превышало 1.3°C.

Рассчитанное распределение градиента давления по длине канала для условий, представленных на рис. 1, показано на рис. 2. В зоне подвода

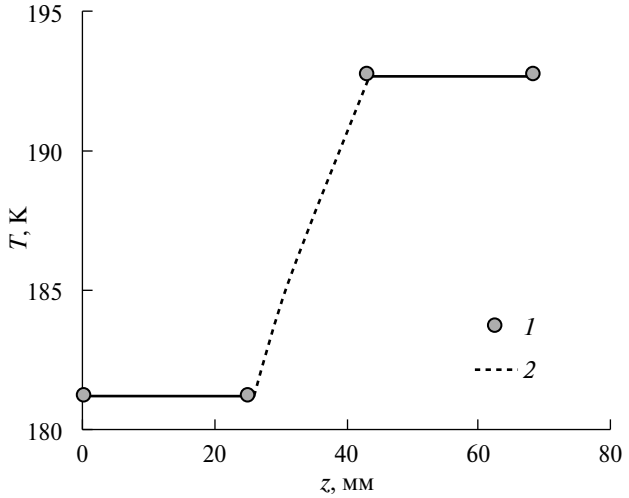

Рис. 1. Распределение температуры потока по длине канала для смеси 45% метана + 55% этана при $G = 145$ кг/(м^2 с), $q = 53$ кВт/м^2, среднем паросодержании потока 0.3: *1* – эксперимент, *2* – расчет.

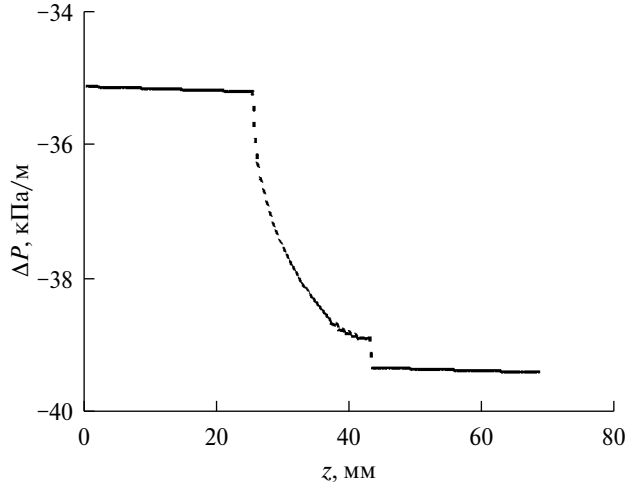

Рис. 2. Рассчитанное распределение градиента давления по длине канала.

теплового потока наблюдается существенная нелинейность градиента давления, вызванная изменением состава паровой и газовой фаз.

Сравнение зависимости полного перепада давления на экспериментальном участке с расчетом представлено на рис. 3. Данные получены в широком диапазоне паросодержаний (от 0 до 1). При таких условиях в системе наблюдаются различные режимы течения: от снарядного до кольцевого. Использовать одинаковую модель для расчета потери давления на трение при различных режимах течения некорректно, поэтому при расчете использованы две модели: гомогенная модель из работы [11], рекомендованная в [6], как показывающая наилучшее соответствие данным эксперимента, и

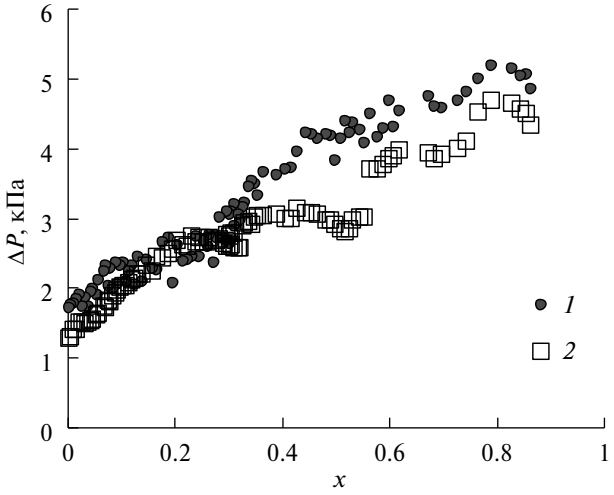

Рис. 3. Зависимости полного перепада давления от массового паросодержания потока для смеси 41–45% метана + 59–55% этана при $P_{вход} \approx 788$ кПа, $G \approx 145$ кг/(м^2 с), $q \approx 53$ кВт/м^2: *1* – эксперимент, *2* – расчет.

модель раздельного течения с учетом влияния пузырькового кипения на перепад давления из [12]. При расчете используется максимальное значение из полученных по двум предложенным моделям.

В расчете на рис. 3 гомогенная модель соответствует данным при паросодержании менее 0.6, а модель раздельного течения соответствует данным при паросодержании больше 0.6. Расчет объемного паросодержания зависит от режима течения и рассчитывается по уравнению

$$\alpha = \left[1 + \left(\frac{1-x}{x}\right)\left(\frac{\upsilon_L}{\upsilon_V}\right)^k\right]^{-1},$$

где коэффициент k определяется как $k = 2/3$ для кольцевого течения, как в [13], $k = 1$ для подхода в рамках гомогенной модели для пузырькового и переходного течений. Результаты расчета хорошо соответствуют экспериментальным данным. Среднее абсолютное отклонение расчета от экспериментальных данных для обработанного эксперимента составляет 14%.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведен анализ влияния изменения состава фаз на перепад давления при течении зеотропных смесей. Предложена методика расчета перепада давления в таких условиях. Проведена верификация предложенной методики по экспериментальным данным для сильно зеотропной смеси “метан–этан” для частично обогреваемого канала диаметром 0.506 мм при абсолютном давлении около 790 кПа в широком диапазоне паросодержаний. Расчет проведен в предположении, что корреляция, используемая для определения потерь давления на

трение, определяется режимом течения в канале. Гомогенная модель соответствует снарядному и переходному режимам течения, модель раздельного течения соответствует кольцевому режиму течения. В качестве условия перехода между режимами выбрано условие равенства сопротивления трению по обеим моделям. Использовано допущение, что паровая и жидкостная фазы в обогреваемом канале находятся в равновесии. Сравнение результатов расчета с экспериментом показало хорошее соответствие рассчитанных значений экспериментальным данным.

Исследование выполнено в Институте теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН за счет гранта Российского научного фонда № 22-29-00168 (https://rscf.ru/project/22-29-00168/).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Adams D.C., Burr J., Hrnjak P., Newell T.* Two Phase Pressure Drop of CO_2, Ammonia, and R245fa in Multiport Aluminum Microchannel Tubes // Proc. Int. Refrigeration and Air Conditioning Conf. Purdue, 2006. Paper 742. https://docs.lib.purdue.edu/iracc/742
2. *Barraza R.S., Schwartz F.J., Klein S.A., Nellis G.F., Reindl D.T.* Experimental Facility to Measure Heat Transfer and Pressure Drop of Boiling Zeotropic Multi-component Mixtures in a Horizontal Tube // Sci. Technol. Built Environment. 2016. V. 22. P. 2.
3. *Купершток А.Л.* Моделирование течений с границами раздела фаз жидкость–пар методом решеточных уравнений Больцмана // Вестн. НГУ. Сер.: Матем., мех., информ. 2005. Т. 5. № 3. С. 29.
4. *Купершток А.Л., Альянов А.В.* Испарение и конденсация чистого пара на поверхности жидкости в методе решеточных уравнений Больцмана // Вычисл. методы и программирование. 2022. Т. 23. № 4. С. 311.
5. *Zhao Z.X., Liu H., Gong Z.X.* A High-efficiency Smoothed Particle Hydrodynamics Model with Multi-cell Linked List and Adaptive Particle Refinement for Two-phase Flows // Phys. Fluids. 2021. V. 33. P. 064102.
6. *Barraza R., Nellis G., Klein S., Reindl D.* Measured and Predicted Frictional Pressure Drop for Boiling Zeotropic Mixed Refrigerants in Horizontal Tubes // Int. J. Heat Mass Transfer. 2016. V. 98. P. 285.
7. *Barroso-Maldonado J.M., Montañez-Barrera J.A., Belman-Flores J.M., Aceves S.M.* ANN-based Correlation for Frictional Pressure Drop of Non-azeotropic Mixtures During Cryogenic Forced Boiling // Appl. Therm. Eng. 2019. V. 149. P. 492.
8. *Collier J.G., Thome J.R.* Convective Boiling and Condensation. Oxford: Clarendon Press, 1996. 596 p.
9. *Rackett H.G.* Equation of State for Saturated Liquids // J. Chem. Eng. Data. 1970. V. 15. P. 514.
10. *Barraza R.* Thermal-fluid Behavior of Mixed Refrigerants for Cryogenic Applications (Experimental Data). Ph.d. Medison: Univ. Wisconsin, 2015. http://sel.me.wisc.edu/publications-theses.shtml
11. *Awad M.M., Muzychka Y.S.* Effective Property Models for Homogeneous Two-phase Flows // Exp. Therm. Fluid Sci. 2008. V. 33. P. 106.
12. *Kim S.M., Mudawar I.* Universal Approach to Predicting Two-phase Frictional Pressure Drop for Mini/Micro-channel Saturated Flow Boiling // Int. J. Heat Mass Transfer. 2013. V. 58. P. 718.
13. *Zivi S.M.* Estimation of Steady-state Steam Void-fraction by Means of the Principle of Minimum Entropy Production // ASME J. Heat Transfer. 1964. V. 86. P. 247.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 72–82

УДК 519.6:536.24

ЕСТЕСТВЕННАЯ КОНВЕКЦИЯ ПСЕВДОПЛАСТИЧНОЙ НАНОЖИДКОСТИ В ЗАМКНУТОЙ ПОЛОСТИ ПРИ НАЛИЧИИ ИСТОЧНИКА ЭНЕРГИИ ОБЪЕМНОГО ТЕПЛОВЫДЕЛЕНИЯ И ТЕПЛОПРОВОДНОЙ ПОДЛОЖКИ[1]

© 2024 г. Д. С. Лоенко*, М. А. Шеремет

Национальный исследовательский Томский государственный университет, Томск, Россия

**E-mail: d.s.loenko@mail.tsu.ru*

Поступила в редакцию 20.10.2022 г.
После доработки 20.09.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

Данное исследование посвящено анализу возможности интенсификации охлаждения источника энергии, расположенного на теплопроводной подложке, в замкнутой полости, заполненной псевдопластичной наножидкостью, в режиме естественно-конвективного теплообмена. Рабочая среда представляла собой суспензию “карбоксилметилцеллюлоза–вода с наночастицами меди”. Задача описывается дифференциальными уравнениями в приближении Обербека–Буссинеска, которые решаются методом конечных разностей. В ходе решения оценивалось влияние определяющих параметров (числа Рэлея, объемной доли наночастиц, толщины теплопроводной подложки и положения источника) на структуру течения и интенсивность теплообмена. Установлено, что наиболее интенсивное охлаждение происходит, когда источник энергии расположен максимально близко к охлаждающим стенкам, при этом объемная доля наночастиц не должна превышать 1%.

DOI: 10.31857/S0040364424010101

ВВЕДЕНИЕ

Использование наножидкостей помогает улучшить характеристики теплопереноса в полостях благодаря их составу. Наножидкость представляет собой форму теплоносителя с высокой теплопроводностью, состоящую из частиц металлов или неметаллов нанометрового размера (диаметр частицы <100 нм), диспергированных в традиционных средах, таких как вода, спирт и масло. Естественно-конвективный теплоперенос наножидкостями в различных геометрических конфигурациях встречается в технических приложениях, связанных, например, с охлаждением электронного оборудования, солнечной дистилляцией, литьем металлов, жидкометаллическими охлаждающими покрытиями для термоядерных реакторов, а также с конструкциями современных теплообменников.

Большой популярностью пользуются кольцевые полости. В [1] проведено численное исследование естественной конвекции в кольцевой полости, заполненной наножидкостью “вода с наночастицами оксида алюминия”, для определения характеристик колебательных режимов конвекции. Обнаружено, что увеличение объемной доли наночастиц не только усиливает конвективный теплообмен, но и улучшает условия стабилизации течения и симметрию его структуры. Авторы [2] провели математическое моделирование охлаждения кремниевого чипа в полукруглой наклонной полости в режиме естественно-конвективного теплообмена в наножидкости “вода с многостенными углеродными нанотрубками”. Результаты показали, что увеличение угла наклона полости приводит к интенсификации циркуляции жидкости, а влияние наличия твердых нанодобавок проявляется в интенсификации теплообмена. Цель исследования [3] заключалась в изучении возможности интенсификации теплообмена в круглой трубе, заполненной наножидкостью “вода с наночастицами оксида алюминия”, в условиях естественной конвекции. Для этого было проведено математическое моделирование описываемого процесса в холодном полуэллиптическом корпусе, в центре которого располагалась горячая полутруба. В ходе исследования установлено, что при больших числах Рэлея оптимальная объемная доля наночастиц оксида алюминия составляет 1%.

[1] По материалам Восьмой Российской национальной конференции по теплообмену (РНКТ-8). Москва. 17–22 октября 2022 г.

Авторы [4] исследовали режимы естественной конвекции наножидкости “вода с наночастицами меди” в кольцевом пространстве. Исследуемая область представляла собой бесконечно длинные горизонтальные эллиптические цилиндры, пространство между которыми заполнялось рабочей средой. Поверхность внутреннего цилиндра была горячей и погружалась в пористый материал. Моделирование показало, что увеличение числа Дарси и пористости среды приводит к интенсификации конвективного теплообмена. Вертикальный кольцевой канал, заполненный наножидкостью “вода с наночастицами меди”, использовался для исследования естественной конвекции под воздействием двух нагревателей в [5]. Результаты численных экспериментов показали, что снижению температуры способствует увеличение числа Рэлея и объемной доли наночастиц.

Расчеты для прямоугольных областей также проводятся во многих работах. Например, естественная конвекция наножидкости “вода с наночастицами меди” под действием однородного магнитного поля в полости с криволинейной границей моделируется в [6]. Вертикальная и горизонтальная стенки считаются изотермическими, а криволинейная граница – адиабатической. В результате моделирования получены рост среднего числа Нуссельта с увеличением объемной доли наночастиц, а также повышение скорости теплообмена с уменьшением угла раствора полости. Численное исследование в [7] проведено для оценки влияния размера квадратной дифференциально-обогреваемой полости, числа Рэлея и объемной доли наночастиц на режимы естественной конвекции гибридной наножидкости “вода с наночастицами оксида железа и многостенными углеродными нанотрубками”. Установлено, что конвективный теплообмен усиливается с увеличением объемной доли наночастиц и числа Рэлея, а увеличение геометрического параметра полости приводит к ослаблению теплообмена. В [8] изучалась естественная конвекция неньютоновской наножидкости в прямоугольном дифференциально-обогреваемом корпусе под действием наклонного однородного магнитного поля. В ходе исследования максимальное значение среднего числа Нуссельта получено при $n = 1$, что соответствует ньютоновской среде. Моделирование конвективного теплообмена наножидкости “вода с наночастицами меди” в квадратной пористой полости проведено в [9]. Обнаружено, что интенсивность конвективного механизма теплообмена снижается с увеличением объемной доли наночастиц и числа Гартмана. В [10] проведен численный анализ свободной конвекции наножидкости “вода с наночастицами оксида титана” в замкнутой квадратной полости с охлаждаемой стенкой. Моделирование показало, что при малых числах Рэлея и объемной доле наночастиц 6% средний коэффициент конвективного теплообмена увеличился на 21% по сравнению со случаем чистой базовой жидкости.

Иногда исследователи выбирают полости со сложной геометрией и нерегулярными границами. Например, работа [11] посвящена анализу свободно-конвективного тепломассопереноса в гибридной наножидкости “вода с наночастицами меди и оксида титана” в С-образной полости с двумя волнистыми перегородками. Результаты показали, что скорость теплообмена растет с увеличением амплитуды волнистых перегородок и числа Рэлея. Анализ влияния внутреннего тепловыделения и теплопоглощения на режимы естественной конвекции наножидкости “вода с наночастицами меди” в условиях воздействия однородного магнитного поля проведен в [12]. Исследуемая область представляет собой полость с волнистыми холодными стенками, в центре которой расположен горячий цилиндр. Установлено, что при больших числах Рэлея увеличение числа Гартмана приводит к ослаблению конвективного теплообмена. В [13] исследование посвящено возможности описания задач естественно-конвективного теплообмена в наножидкостях “вода с наночастицами меди” и “вода с наночастицами серебра” вдоль бесконечной пластины с использованием подхода, основанного на применении производных дробных порядков. Установлено, что интенсивность конвективного теплообмена ослабевает с увеличением дробного параметра. В [14] проведено численное исследование естественной конвекции в наножидкости “вода с наночастицами меди” в U-образной пористой полости. Нижняя стенка имела температуру, изменяющуюся по синусоидальному закону. Обнаружено, что увеличение чисел Рэлея и Дарси, а также объемной доли наночастиц интенсифицирует конвективный теплообмен. Естественная конвекция наножидкости “вода с частицами оксида алюминия” в трапециевидной полости численно изучена в [15]. Анализ показал, что увеличение угла наклона боковых стенок в двумерном случае приводит к снижению значений числа Нуссельта. Работа [16] посвящена исследованию обтекания усеченного конуса тремя видами наножидкостей. Авторы выявили, что использование рабочей жидкости “вода с частицами меди” интенсифицирует теплообмен на 31.74% по сравнению с другими наножидкостями.

Представленный краткий обзор опубликованных работ иллюстрирует актуальность и практическую значимость исследований конвективного теплопереноса в наножидкостях. Однако многие аспекты, отражающие неньютоновский характер базовой жидкости, возможное наличие теплопроводной подложки и источника энергии объемного тепловыделения, освещены не в полной мере. Исходя из этого, целью настоящей работы является математическое моделирование естественно-конвективного теплопереноса в замкнутой квадратной

полости, заполненной псевдопластичной наножидкостью, при наличии локального источника объемного тепловыделения и теплопроводной подложки.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Псевдопластичная наножидкость “карбоксилметилцеллюлоза–вода” (КМЦ–вода) с наночастицами меди” заполняет замкнутую квадратную полость размером L, вертикальные и верхняя горизонтальная стенки которой являются охлаждающими с постоянной температурой T_c (рис. 1). На нижней стенке расположена теплопроводная медная подложка толщиной h. Внешние границы подложки являются адиабатическими. На подложке расположен источник с постоянной плотностью объемного тепловыделения Q. Расстояние от левой стенки полости до левой границы источника – a. Сила тяжести, определяемая ускорением свободного падения **g**, направлена вертикально вниз. Теплофизические свойства использованных материалов (теплоемкость c, плотность ρ, теплопроводность λ и термический коэффициент объемного расширения β) представлены в таблице.

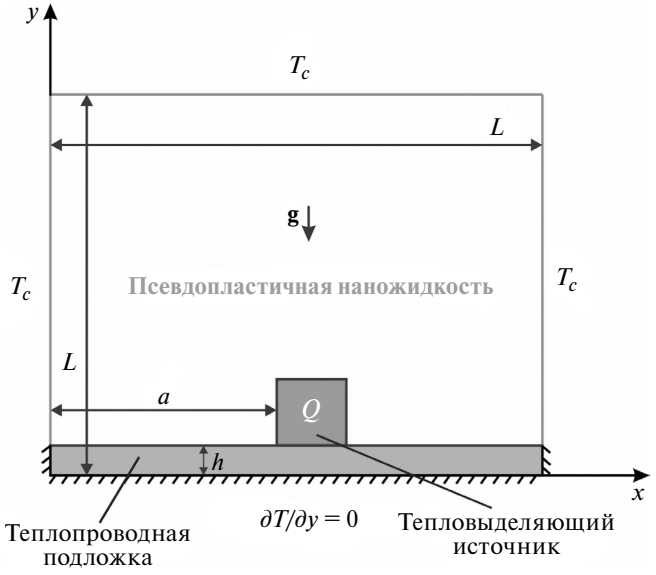

Рис. 1. Область решения.

Дифференциальные уравнения, описывающие процесс нестационарного конвективного теплопереноса, в приближении Обербека–Буссинеска в преобразованных безразмерных переменных “функция тока–завихренность” имеют следующий вид:

$$\frac{\partial^2\Psi}{\partial X^2}+\frac{\partial^2\Psi}{\partial Y^2}=-\Omega, \tag{1}$$

$$\frac{\partial\Omega}{\partial\tau}+\frac{\partial\Psi}{\partial Y}\frac{\partial\Omega}{\partial X}-\frac{\partial\Psi}{\partial X}\frac{\partial\Omega}{\partial Y}= \\ =H_1(\phi)\left(\frac{\mathrm{Ra}}{\mathrm{Pr}}\right)^{\frac{n-2}{2}}\left[\nabla^2\left(\bar{M}\Omega\right)+S_\Omega\right]+H_2(\phi)\frac{\partial\Theta}{\partial X}, \tag{2}$$

$$\frac{\partial\Theta}{\partial\tau}+\frac{\partial\Psi}{\partial Y}\frac{\partial\Theta}{\partial X}-\frac{\partial\Psi}{\partial X}\frac{\partial\Theta}{\partial Y}= \\ =\frac{H_3(\phi)}{\sqrt{\mathrm{RaPr}}}\left[\frac{\partial}{\partial X}\left(\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{bf}}\frac{\partial\Theta}{\partial X}\right)+\frac{\partial}{\partial Y}\left(\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{bf}}\frac{\partial\Theta}{\partial Y}\right)\right]. \tag{3}$$

Здесь Ψ – безразмерная функция тока; X, Y – безразмерные декартовы координаты; Ω – безразмерная завихренность; τ – безразмерное время; $\mathrm{Ra}=\dfrac{g\beta_{bf}\Delta TL^3}{\tilde{\nu}_{bf}\alpha_{bf}}$ – число Рэлея; $\mathrm{Pr}=\dfrac{\tilde{\nu}_{bf}}{\alpha_{bf}}$ – число Прандтля; ∇^2 – безразмерный оператор Лапласа; Θ – безразмерная температура; ϕ – объемная доля наночастиц меди; λ_{bf}, λ_{nf} – коэффициенты теплопроводности базовой жидкости и наножидкости; β_{bf} – термический коэффициент объемного расширения базовой жидкости; ΔT – температурный напор; α_{bf} – коэффициент температуропроводности базовой жидкости; $\tilde{\nu}_{bf}=\left(\dfrac{K_{bf}}{\rho_{bf}}\right)^{\frac{1}{2-n}}L^{\frac{2-2n}{2-n}}$ – кинематический коэффициент эффективной вязкости базовой жидкости, K_{bf} – коэффициент плотности потока базовой жидкости, n – показатель поведения базовой жидкости.

Уравнения теплопроводности для источника энергии и внутри нижней теплопроводной подложки:

$$\frac{\partial\Theta_{hs}}{\partial\tau}=\frac{\alpha_{hs}/\alpha_{bf}}{\sqrt{\mathrm{RaPr}}}\left(\frac{\partial^2\Theta_{hs}}{\partial X^2}+\frac{\partial^2\Theta_{hs}}{\partial Y^2}+1\right), \tag{4}$$

Свойства материалов [13, 17, 18]

Свойства	c, Дж/(кг K)	ρ, кг/м^3	λ, Вт/(м K)	β, 1/K
Базовая жидкость КМЦ (0.1%)–вода	4179	997.1	0.613	21×10^{-5}
Наночастицы меди	385	8933	400	16.7×10^{-6}
Тепловыделяющий элемент (кремний)	710	2330	150	–

$$\frac{\partial\Theta_w}{\partial\tau} = \frac{\alpha_w/\alpha_{bf}}{\sqrt{\mathrm{RaPr}}}\left(\frac{\partial^2\Theta_w}{\partial X^2} + \frac{\partial^2\Theta_w}{\partial Y^2}\right), \qquad (5)$$

где Θ_{hs} – безразмерная температура источника энергии; Θ_w – безразмерная температура внутри теплопроводной подложки; α_{hs}, α_w – коэффициенты температуропроводности материала источника энергии и материала подложки.

Вспомогательные функции:

$$\bar{M} = \left[4\left(\frac{\partial^2\Psi}{\partial X\partial Y}\right)^2 + \left(\frac{\partial^2\Psi}{\partial Y^2} - \frac{\partial^2\Psi}{\partial X^2}\right)^2\right]^{\frac{n-1}{2}},$$

$$S_\Omega = 2\left[\frac{\partial^2\bar{M}}{\partial X^2}\frac{\partial^2\Psi}{\partial Y^2} + \frac{\partial^2\bar{M}}{\partial Y^2}\frac{\partial^2\Psi}{\partial X^2} - 2\frac{\partial^2\bar{M}}{\partial X\partial Y}\frac{\partial^2\Psi}{\partial X\partial Y}\right],$$

$$H_1(\phi) = \frac{\mu_{nf}}{\mu_{bf}}\frac{\rho_{bf}}{\rho_{nf}} = \frac{\mu_{nf}/\mu_{bf}}{\left(1-\phi+\phi\rho_p/\rho_{bf}\right)},$$

$$H_2(\phi) = \frac{(\rho\beta)_{nf}}{(\rho\beta)_{bf}}\frac{\rho_{bf}}{\rho_{nf}} = \frac{1-\phi+\phi(\rho\beta)_p/(\rho\beta)_{bf}}{1-\phi+\phi\rho_p/\rho_{bf}},$$

$$H_3(\phi) = \frac{(\rho c)_{bf}}{(\rho c)_{nf}} = \frac{1}{1-\phi+\phi(\rho c)_p/(\rho c)_{bf}}.$$

Здесь μ_{nf}, μ_{bf} – динамические коэффициенты вязкости наножидкости и базовой жидкости; ρ_{nf}, ρ_{bf}, ρ_p – плотности наножидкости, базовой жидкости, меди; β_{nf}, β_p – термические коэффициенты объемного расширения наножидкости и меди; c_{nf}, c_{bf}, c_p – теплоемкости наножидкости, базовой жидкости, меди.

Для обезразмеривания уравнений использовались следующие безразмерные параметры: $\sqrt{g\beta L\Delta T}$ – масштаб скорости, $\sqrt{L/g\beta\Delta T}$ – масштаб времени, $\sqrt{g\beta L^3\Delta T}$ – масштаб функции тока, $\sqrt{g\beta\Delta T/L}$ – масштаб завихренности; $\Theta = (T-T_c)/\Delta T$ – безразмерная температура, где $\Delta T = T_h - T_c$.

Псевдопластичный характер течения жидкости описывается степенным законом Оствальда–де Виля [19]

$$\tau_{ij} = 2\mu_{nf}D_{ij}.$$

Здесь τ_{ij} – компоненты тензора напряжений; $D_{ij} = 0.5\left(\partial u_i/\partial x_j + \partial u_j/\partial x_i\right)$ – компоненты тензора скоростей деформации; u_i, u_j – компоненты вектора скорости, соответствующие координатам x_i, x_j.

Эффективный коэффициент вязкости наножидкости вычисляется с помощью соотношения [20]:

$$\frac{\mu_{nf}}{\mu_{bf}} = \left(1+2.5\phi+6.5\phi^2\right)\left(1+350\frac{\phi}{d_p}\right),$$

где d_p – диаметр наночастиц.

Вязкость базовой жидкости в соответствии со степенным законом определялась следующим соотношением:

$$\mu_{bf} = K_{bf}\left(2D_{\mathrm{kl}}D_{\mathrm{kl}}\right)^{\frac{n-2}{2}}.$$

Здесь K – коэффициент плотности потока; D_{kl} – компоненты тензора скорости деформации; n – индекс степенного закона, или показатель поведения жидкости, характеризующий взаимосвязь вязкости жидкости и скорости деформации. Если $n = 1$, то жидкость является ньютоновской и имеет линейную зависимость вязкости и скорости деформации. Случай $n > 1$ описывает поведение дилатантной жидкости, у которой вязкость возрастает при увеличении скорости деформации. При $n < 1$ описано поведение псевдопластичной жидкости, у которой вязкость уменьшается при увеличении скорости деформации. В данном исследовании используется именно псевдопластичная базовая среда, показатель поведения которой равен 0.91 [17].

Эффективная теплопроводность наносуспензии вычислялась с помощью экспериментальной корреляции [21]

$$\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{bf}} = (1-\phi) + 0.01\frac{\lambda_p}{\lambda_{bf}}\phi + \left(18\times10^6\right)\frac{d_{bf}}{d_p}\mathrm{Re}^2\mathrm{Pr}\,\phi.$$

Здесь λ_p – коэффициент теплопроводности меди; d_{bf} – размер молекулы базовой жидкости; $\mathrm{Re} = \dfrac{D_0 d_p}{l_{bf}\tilde{\nu}_{bf}}$ – число Рейнольдса, D_0 – коэффициент диффузии, l_{bf} – длина свободного пробега молекулы базовой жидкости.

Начальные и граничные условия для системы уравнений (1)–(5) в безразмерном виде выглядят следующим образом (где $\delta_1 = h/L$ – безразмерная толщина подложки):

$$\tau = 0 \quad \Psi = \Omega = 0,\ \Theta = 0.0;$$

$$\tau > 0 \quad X = 0 \text{ и } X = 1,\ 0 \le Y \le \delta_1,\ \frac{\partial\Theta}{\partial X} = 0;$$

$$X = 0 \quad X = 1,\ \delta_1 \le Y \le 1,\ \Psi = 0,\ \frac{\partial\Psi}{\partial X} = 0,\ \Theta = 0;$$

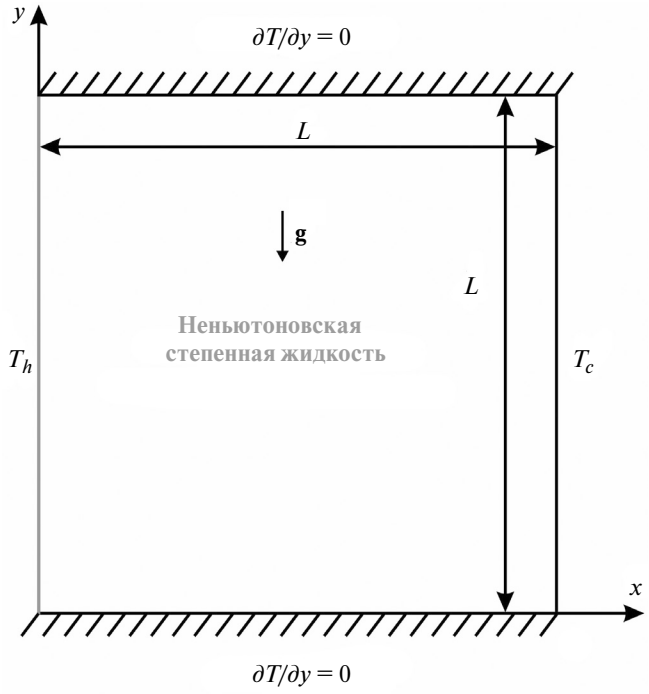

Рис. 2. Область решения тестовой задачи.

$$Y = 0,\ 0 \le X \le 1,\ \frac{\partial \Theta}{\partial Y} = 0;$$

$$Y = 1,\ 0 \le X \le 1,\ \Psi = 0,\ \frac{\partial \Psi}{\partial Y} = 0,\ \frac{\partial \Theta}{\partial Y} = 0.$$

На поверхности источника энергии:

$$\Psi = 0,\ \Omega = -\frac{\partial^2 \Psi}{\partial \overline{n}^2},\ \begin{cases} \Theta_{hs} = \Theta_{nf}, \\ \dfrac{\lambda_{hs}}{\lambda_{nf}} \dfrac{\partial \Theta_{hs}}{\partial \overline{n}} = \dfrac{\partial \Theta_{nf}}{\partial \overline{n}}. \end{cases}$$

На поверхности подложки:

$$\Psi = 0,\ \Omega = -\frac{\partial^2 \Psi}{\partial Y^2},\ \begin{cases} \Theta_{w} = \Theta_{nf}, \\ \dfrac{\lambda_{w}}{\lambda_{nf}} \dfrac{\partial \Theta_{w}}{\partial Y} = \dfrac{\partial \Theta_{nf}}{\partial Y}. \end{cases}$$

Для решения описанной системы нестационарных дифференциальных уравнений (1)–(5) с соответствующими начальными и граничными условиями применялись различные схемы на основе метода конечных разностей. Метод последовательной нижней релаксации был применен для решения разностного уравнения Пуассона для функции тока (1). Известно, что в случае псевдопластичной среды существует особенность в виде “бесконечной” величины эффективной вязкости. Для сохранения устойчивости расчетной схемы проводилась регуляризация степенной модели на основе подхода Берковера и Инглемана [22]. Локально-одномерная схема А.А. Самарского применялась для сведения двумерной задачи к системе одномерных задач. Далее конвективные слагаемые были дискретизованы на основе схемы с донорными ячейками, диффузионные – с помощью центральных разностей. Полученная система линейных алгебраических уравнений решалась методом прогонки.

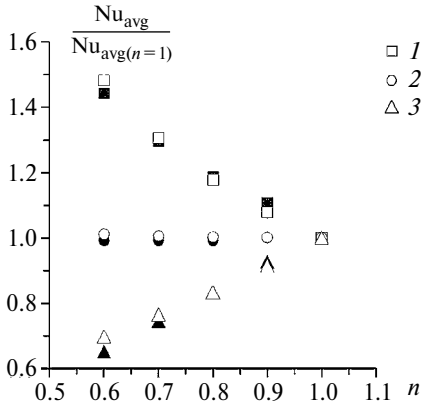

Рис. 3. Апробация вычислительного комплекса на основе сравнения с данными [23] при Ra = 10^5: *1* – Pr = 10^2, *2* – 10^3, *3* – 10^4.

Разработанный алгоритм решения задачи и написанный программный код были апробированы на более простых задачах. На рис. 2 представлена геометрическая постановка тестовой задачи. Неньютоновская жидкость заполняет замкнутую квадратную дифференциально-обогреваемую полость. Горизонтальные стенки теплоизолированы. Сравнение результатов проводилось на основе нормированных значений среднего числа Нуссельта, вычисленного на горячей стенке, в зависимости от времени и показателя поведения жидкости n, по формуле

$$\mathrm{Nu}_{\mathrm{avg}} = \int_0^1 \left(-\frac{\partial \Theta}{\partial X} \right) dY.$$

Результаты данной работы обозначены белыми фигурами, работы [23] – черными фигурами. Сравнение, показанное на рис. 3, отражает работоспособность разработанного программного кода.

Отдельно проведен анализ влияния сеточных параметров (рис. 4) на профили температуры и скорости в горизонтальном сечении $Y = 0.5$ при Ra = 10^5, $\phi = 0.01$, $\delta_1 = 0.1$, $\delta_2 = 0.4$. Здесь $\delta_2 = a/L$ – безразмерное расстояние между левой стенкой полости и левой стенкой источника энергии. Видно, что сетки размерностей 300 × 300 и 400 × 400 элементов не привели к заметным расхождениям, поэтому последующие вычисления проводились на равномерной прямоугольной сетке размерностью 300 × 300 элементов для оптимизации времени вычислений.

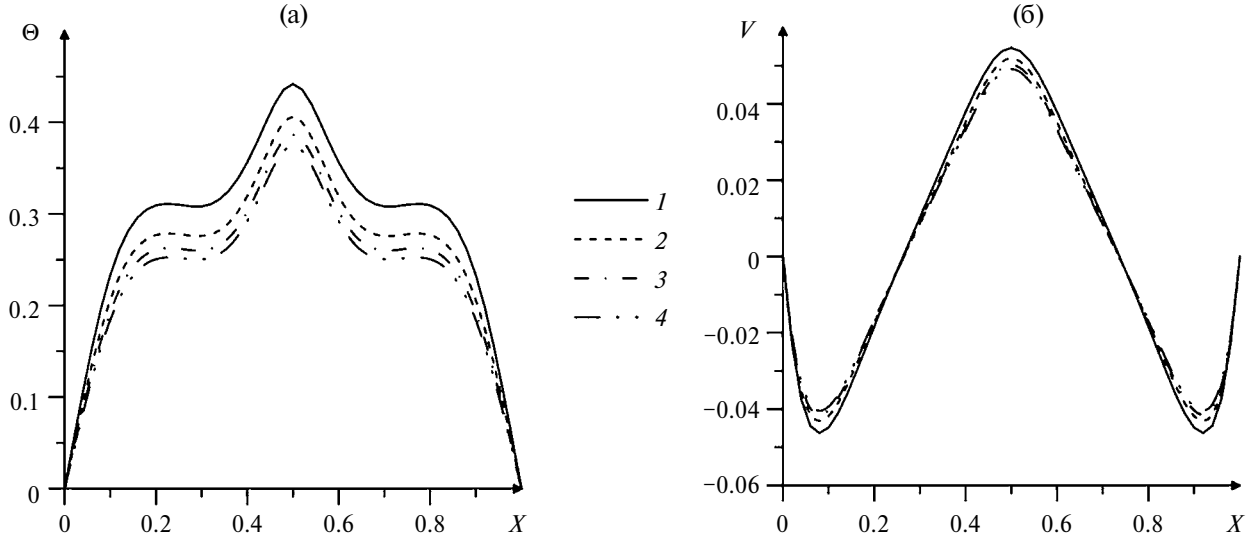

Рис. 4. Влияние сеточных параметров на профили температуры (а) и скорости (б) в горизонтальном сечении $Y = 0.5$: *1* – 100 × 100, *2* – 200 × 200, *3* – 300 × × 300, *4* – 400 × 300.

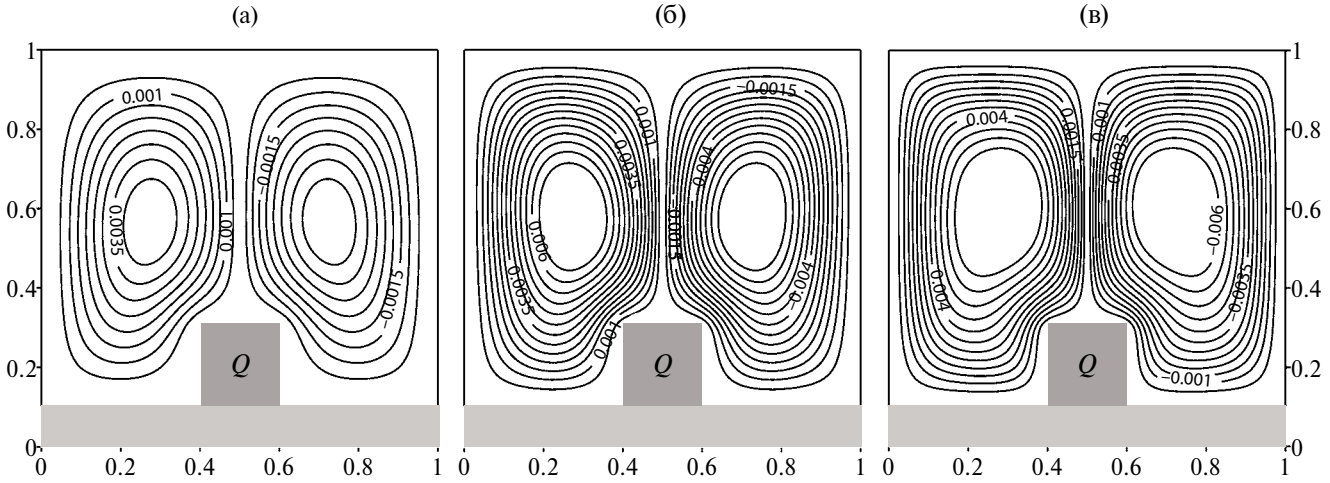

Рис. 5. Влияние числа Рэлея на изолинии функции тока Ψ при $\phi = 0.01$, $\delta_1 = 0.1$, $\delta_2 = 0.4$: (а) – $Ra = 10^3$, (б) – 10^4, (в) – 10^5.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЧИСЛЕННОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

В ходе исследования естественно-конвективного теплопереноса псевдопластичной наножидкостью в замкнутой полости с источником объемного тепловыделения и теплопроводной подложкой оценено влияние определяющих параметров, таких как число Рэлея, объемная доля наночастиц, толщина подложки и положение источника, на структуру течения, теплоперенос и интенсивность транспортных процессов. На следующих рисунках представлены результаты моделирования в зависимости от перечисленных параметров.

Влияние числа Рэлея на структуру течения псевдопластичной наножидкости в полости показано на рис. 5. Над источником образовалось восходящее течение за счет нагрева жидкости, которое достигает верхней стенки, разделяется и ниспадает вдоль охлаждающих вертикальных границ. Таким образом, в полости сформировались две конвективные ячейки. Течение в правой ячейке происходит по часовой стрелке, а в левой – против. Отметим, что изменение Ra существенно не влияет на структуру течения – во всех случаях присутствуют две циркуляционные зоны. Однако можно заметить, что с ростом числа Рэлея плотность линий тока и размер ядер ячеек увеличиваются, что характеризует интенсификацию конвективного течения в полости. Также заметно изменение формы зон циркуляции жидкости внутри полости.

В ходе исследования оценено влияние объемной доли наночастиц на интегральные характеристики,

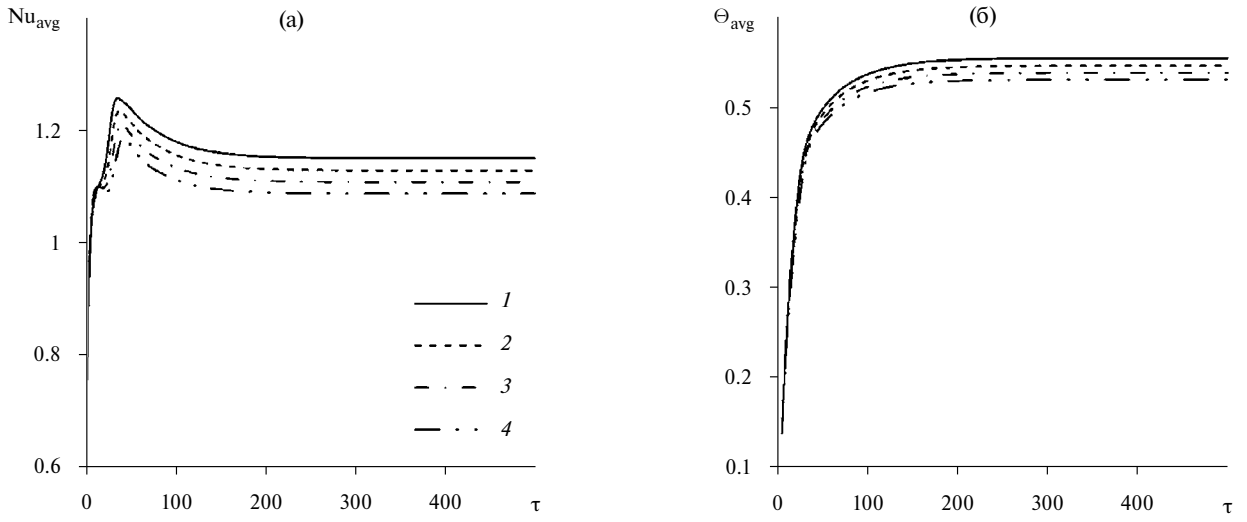

Рис. 6. Влияние объемной доли наночастиц на среднее число Нуссельта (а) и среднюю температуру (б) источника при $Ra = 10^5$, $\delta_1 = 0.1$, $\delta_2 = 0.4$: *1* – 0, *2* – 0.01, *3* – 0.02, *4* – 0.03.

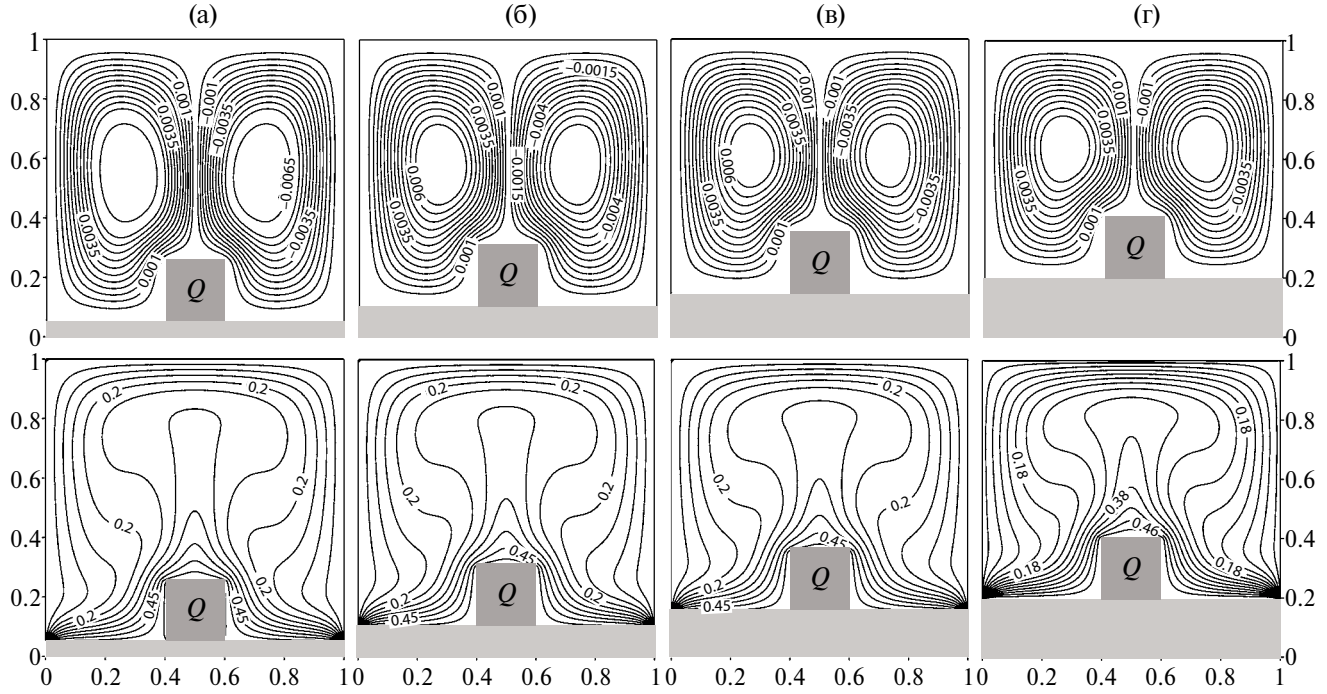

Рис. 7. Влияние толщины теплопроводной подложки на изолинии функции тока Ψ (верх) и температуры Θ (низ) при $Ra = 10^5$, $\phi = 0.01$, $\delta_2 = 0.4$: (а) – $\delta_1 = 0.05$, (б) – 0.1, (в) – 0.15, (г) – 0.2.

которые показаны на рис. 6. Среднее число Нуссельта вычислялось на поверхности источника энергии по следующей формуле:

$$\mathrm{Nu}_{\mathrm{avg}} = \frac{1}{0.6}\int_0^{0.6}\left(-\frac{\lambda_{nf}}{\lambda_{bf}}\frac{\partial\Theta}{\partial\bar{n}}\right)d\varsigma,$$

где ς является естественной координатой вдоль поверхности источника. С увеличением ϕ значения среднего числа Нуссельта уменьшаются, что означает ослабление конвективного теплообмена и преобладание кондуктивного механизма переноса тепла. За счет улучшенной теплопроводности базовой жидкости вследствие добавления наночастиц меди средняя температура в источнике снижается с ростом ϕ. Данный результат подтверждает эффективность использования наножидкостей с псевдопластичной базовой средой в системах пассивного охлаждения тепловыделяющих элементов.

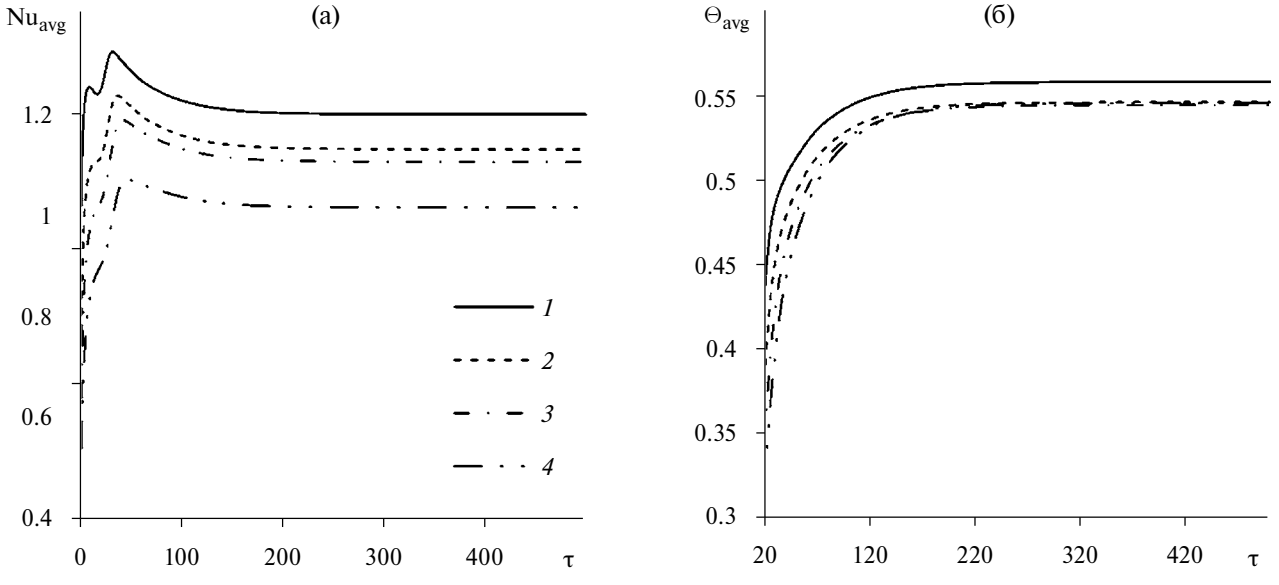

Рис. 8. Влияние толщины теплопроводной подложки на среднее число Нуссельта (а) и среднюю температуру (б) источника при $Ra = 10^5$, $\phi = 0.01$, $\delta_2 = 0.4$: *1* – $\delta_1 = 0.05$, *2* – 0.1, *3* – 0.15, *4* – 0.2.

Влияние толщины $\delta_1 = h/L$ теплопроводной медной подложки на распределение изолиний функции тока и температуры отражено на рис. 7. С изменением δ_1 структура течения не меняется, сохраняются две конвективные ячейки с противоположными направлениями циркуляции жидкости. Отметим только уменьшение размера циркуляционных зон с учетом уменьшения пространства, свободного для течения наножидкости. Изотермы также не имеют существенных изменений. С увеличением толщины подложки заметны более равномерный прогрев полости и незначительное расширение теплового факела, которое также связано с уменьшением свободного пространства.

На рис. 8 показано влияние толщины теплопроводной медной подложки на среднее число Нуссельта и среднюю температуру источника при $Ra = 10^5$, $\phi = 0.01$, $\delta_2 = 0.4$. Видно, что увеличение δ_1 приводит к ослаблению конвективного теплообмена в полости, заполненной наножидкостью. Интересный результат также показывают кривые средней температуры внутри источника энергии в случаях $\delta_1 = 0.1$, 0.15, 0.2, так как они практически совпадают после выхода на стационар. В то же время случай самой тонкой подложки соответствует самой высокой средней температуре источника.

Выполнены оценки влияния положения источника энергии на естественно-конвективный теплоперенос. На рис. 9 представлена зависимость распределения линий тока и изотерм от δ_2. Стоит отметить, что поля распределяются симметрично относительно центрального положения источника. Видно, что структура течения жидкости в полости терпит изменения. Так, например, в случаях $\delta_2 = 0.1$ и 0.7 в полости формируются две ячейки, из которых меньшим размером обладает ближайшая к охлаждающей стенке и расположенная прямо над источником. Восходящее течение также образуется над источником, но оно направлено не к верхней границе, а к центру полости.

В случаях $\delta_2 = 0.2$ и 0.6 существенно уменьшилась плотность линий тока, а также у меньшей конвективной ячейки внешняя линия тока изогнулась в пространство между левой стенкой полости и источником. Этот изгиб увеличился при $\delta_2 = 0.3$ и 0.5, что привело к формированию симметрии при центральном расположении источника энергии. Изотермы на рис. 9 отражают сформированный тепловой факел, который направлен к центру полости, независимо от перемещения нагревателя вдоль нижней стенки полости. Сначала факел расширяется до случая центрального положения нагретого элемента, затем сужается. Это явление можно проследить по изотерме со значением 0.28.

Рис. 10 отражает влияние положения нагревателя на среднее число Нуссельта и среднюю температуру в источнике энергии. Заметим, что кривые для $\delta_2 = 0.1$ и 0.7, $\delta_2 = 0.2$ и 0.6 и $\delta_2 = 0.3$ и 0.5 наложились друг на друга, поэтому на рисунках приведены только случаи $\delta_2 = 0.1$, 0.2, 0.3 и 0.4. В результате самые высокие значения Nu_{avg} достигаются при расположении источника вблизи боковых охлаждающих стенок, что говорит об интенсивном конвективном теплообмене. При $\delta_2 = 0.2$,

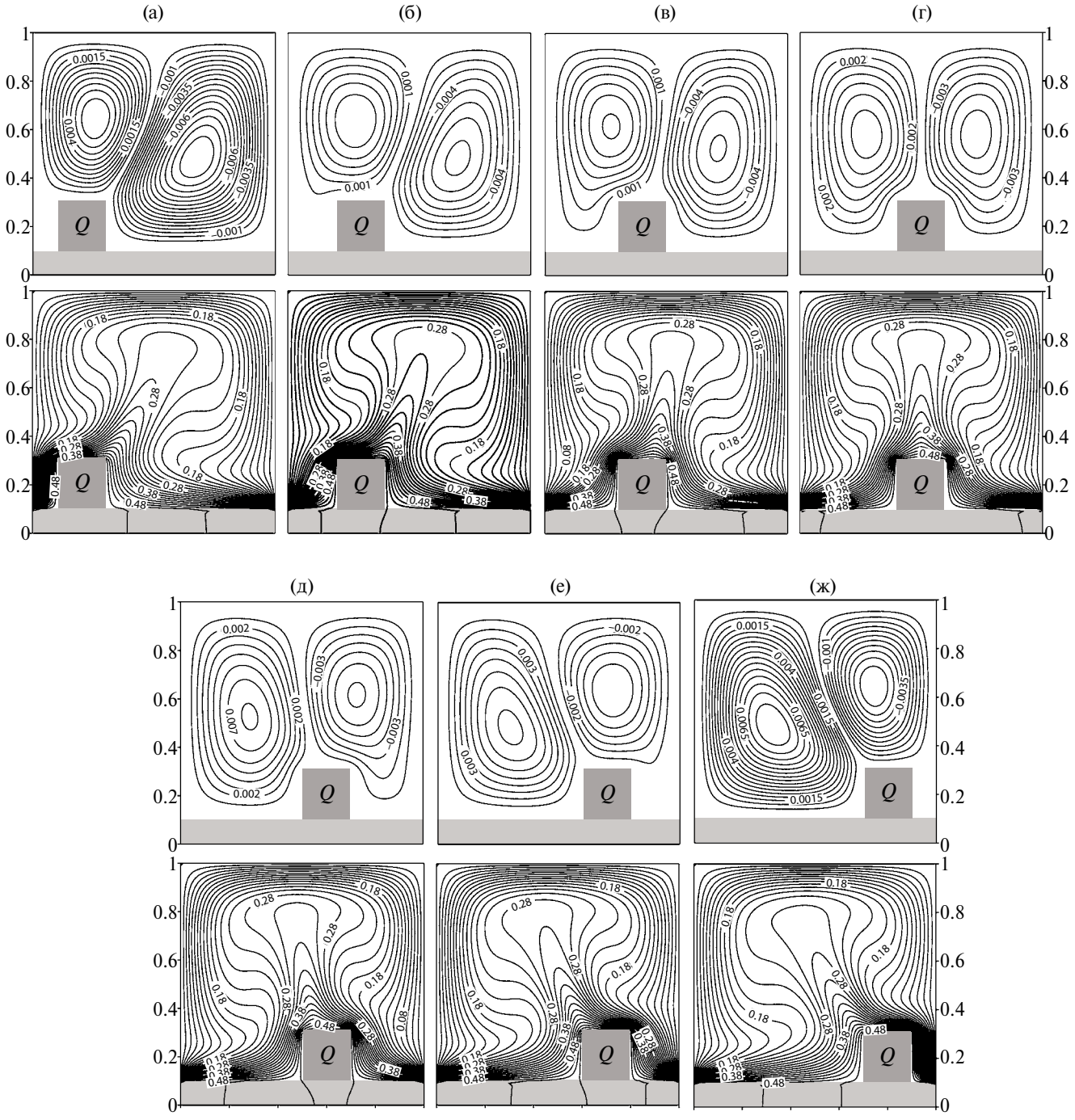

Рис. 9. Влияние положение источника энергии на изолинии функции тока Ψ (верх) и температуры Θ (низ) при $Ra = 10^5$, $\phi = 0.01$, $\delta_1 = 0.1$: (а) – $\delta_2 = 0.1$, (б) – 0.2, (в) – 0.3, (г) – 0.4, (д) – 0.5, (е) – 0.6, (ж) – 0.7.

0.6 и $\delta_2 = 0.3$, 0.5 кривые Nu_{avg} имеют меньшие значения. Случай центрального положения нагревателя соответствует самому слабому конвективному теплообмену в полости и самым низким значениям Nu_{avg}. В то же время средняя температура источника не является самой высокой, как при $\delta_2 = 0.2$, 0.6 и $\delta_2 = 0.3$, 0.5. Меньшая средняя температура нагретого элемента достигается при $\delta_2 = 0.1$ и 0.7, что также объясняется близостью охлаждающих вертикальных стенок.

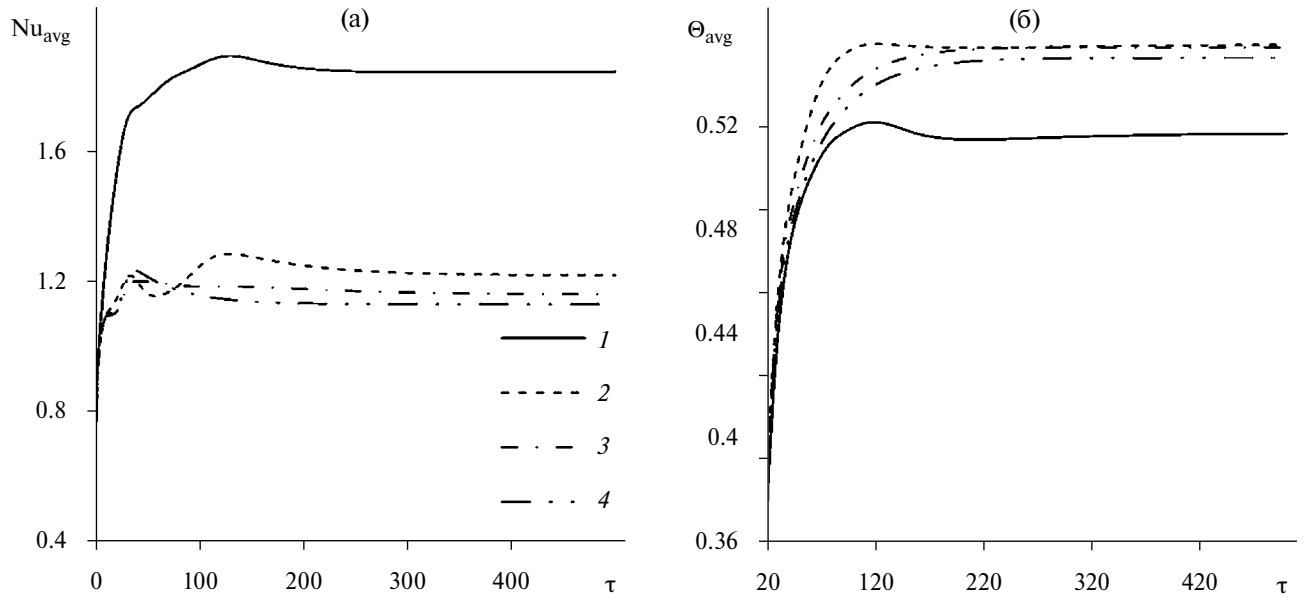

Рис. 10. Влияние положения источника энергии на среднее число Нуссельта (а) и среднюю температуру (б) источника при $Ra = 10^5$, $\phi = 0.01$, $\delta_1 = 0.1$: *1* – $\delta_2 = 0.1$, *2* – 0.2, *3* – 0.3, *4* – 0.4.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе исследовано влияние псевдопластичной наножидкости “карбоксилметилцеллюлоза–вода с наночастицами меди” на интенсивность теплоотвода от источника объемного тепловыделения в замкнутой квадратной полости при наличии теплопроводной подложки и охлаждающих стенок в условиях свободно-конвективного теплообмена. Проведена оценка влияния определяющих параметров: числа Рэлея $Ra = 10^4–10^6$, объемной доли наночастиц $\phi = 0.0–0.03$, толщины медной подложки $\delta_1 = 0.1–0.2$, расположения источника энергии по отношению к левой вертикальной стенке $\delta_2 = 0.1–0.7$ на структуру течения и теплоперенос. Исследование проводилось с помощью анализа изолиний функции тока и температуры внутри полости, а также среднего числа Нуссельта на поверхности тепловыделяющего элемента и средней температуры внутри источника энергии.

В ходе анализа полученных результатов сделаны следующие выводы.

Увеличение числа Рэлея приводит к интенсификации конвективного теплообмена в полости.

Увеличение объемной доли наночастиц ослабляет конвективный теплообмен, но позволяет снизить среднюю температуру тепловыделяющего элемента.

Увеличение высоты подложки от 5 до 10% от размера полости приводит к снижению средней температуры источника энергии. При этом наибольшие изменения средней температуры имеют место на начальном временном этапе, а в стационарном режиме изменения δ_1 в диапазоне от 0.1 до 0.2 не проявляются в существенном снижении средней температуры.

Наиболее эффективное охлаждение нагретого элемента происходит, когда источник расположен максимально близко к охлаждающим стенкам. При этом увеличение δ_2 от 0.2 до 0.4 характеризует неравномерное изменение средней температуры источника энергии, что связано с наличием взаимодействия между тепловыми пограничными слоями, формирующимися вблизи изотермических вертикальных стенок, и тепловым факелом над источником энергии.

Исследование выполнено при поддержке Программы развития Томского государственного университета (“Приоритет-2030”).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Hu Y.-P., Wang F.-J., Zhang Y.-Ch., Li Y.-R., Li M.-H.* Oscillatory Natural Convection of Al_2O_3-Water Nanofluid near its Density Maximum in a Narrow Horizontal Annulus // Int. Commun. Heat Mass Transfer. 2020. V. 136. 106207.
2. *Yousefzadeh Sh., Eskandari M., Montazerifar F., Akbari O.A., Kahbandeh F., Khalili M., Baghaei Sh.* Natural Convection of Water/MWCNT Nanofluid Flow in an Enclosure for Investigation of the First and Second Laws of Thermodynamics // Alexandria Eng. J. 2022. V. 61. № 12. P. 11687.
3. *Wu Y., Mansir I.B., Althobaiti A., Cao Y., Dahari M., Nguyen D.T., Mohamed A., Huynh Ph.H., Waehayee M.* Employing Numerical Method for Evaluating the Heat Transfer Rate of a Hot Tube by

Nanofluid Natural Convection // Case Studies in Thermal Engineering. 2020. V. 35. № 11. 102006.

4. *Tayebi T., Chamkha A.J.* Analysis of The Effects of Local Thermal Non-Equilibrium (LTNE) on Thermo-Natural Convection in an Elliptical Annular Space Separated by a Nanofluid-Saturated Porous Sleeve // Int. Commun. Heat Mass Transfer. 2021. V. 129. 105725.
5. *Мебарек-Удина Ф., Бессаи Р.* Численное моделирование естественного конвективного теплообмена в вертикально ориентированном цилиндрическом кольцевом канале с источниками тепла для наножидкости на основе воды с наночастицами меди // Теплофизика и аэромеханика. 2019. Т. 26. № 3. С. 351.
6. *Dutta Sh., Pati S., Baranyi L.* Numerical Analysis of Magnetohydrodynamic Natural Convection in a Nanofluid Filled Quadrantal Enclosure // Case Studies in Thermal Engineering. 2021. V. 28. 101507.
7. *Khan N.H., Paswan M.K., Hassan M.A.* Natural Convection of Hybrid Nanofluid Heat Transport and Entropy Generation in Cavity by Using Lattice Boltzmann Method // J. Ind. Chem. Society. 2022. V. 99. № 3. 100344.
8. *Rahman A., Redwan D.A., Thohura Sh., Kamrujjaman Md., Molla M.* Natural Convection and Entropy Generation of Non-newtonian Nanofluids with Different Angles of External Magnetic Field Using GPU Accelerated MRT-LBM // Case Studies in Thermal Engineering. 2022. V. 30. 101769.
9. *Reddy P.B.A., Salah T., Jakeer Sh., Mansour M.A., Rashad A.M.* Entropy Generation Due to Magneto-Natural Convection in a Square Enclosure with Heated Corners Saturated Porous Medium Using Cu/Water Nanofluid // Chin. J. Phys. 2022. V. 77. P. 1863.
10. *Cao Y., Mansir I.B., Mouldi A., Gepreel Kh.A., Dahari M., Le T.H., Badran M.F., Nguyen V.N., Wae-Hayee M.* Using Natural Convection Mechanism of Nanofluid for Cooling an Embedded Hot Plate in Corner of a Square Enclosure: A Numerical Simulation // Case Studies in Thermal Engineering. 2022. V. 33. 101926.
11. *Nayak M.K., Karimi N., Chamkha A.J., Dogonchi A.S., El-Sapa Sh., Galal A.M.* Efficacy of Diverse Structures of Wavy Baffles on Heat Transfer Amplification of Double-Diffusive Natural Convection Inside a C-Shaped Enclosure Filled with Hybrid Nanofluid // Sustainable Energy Technologies and Assessments. 2022. V. 52. № B. 102180.
12. *Abdulkadhim A., Hamzah H.K., Ali F.H., Yıldız Ç., Abed A.M., Abed E.M., Arici M.* Effect of Heat Generation and Heat Absorption on Natural Convection of Cu-Water Nanofluid in a Wavy Enclosure Under Magnetic Field // Int. Commun. Heat Mass Transfer. 2021. V. 120. 105024.
13. *Geridonmez B.P., Oztop H.F.* The Effect of Inclined Periodic Magnetic Field on Natural Convection Flow of Al_2O_3–Cu/Water Nanofluid Inside Right Isosceles Triangular Closed Spaces // Eng. Analysis Boundary Elements. 2022. V. 141. P. 222.
14. *Raza A., Khan I., Farid S., My A., Khan A., Alotaibi H.* Non-singular Fractional Approach for Natural Convection Nanofluid with Damped Thermal Analysis and Radiation // Case Studies in Thermal Engineering. 2021. V. 28. 101373.
15. *Акбарзаде П., Фарди А.Х.* Теплоперенос при естественной конвекции в замкнутых двумерных и трехмерных камерах, заполненных наножидкостью // ПМиТФ. 2018. Т. 59. № 2. С. 121.
16. *Ghozlani B., Hadj-Salah S., Bezi S., Souayeh B.* Интенсификация теплообмена и характеристики потока наножидкости при обтекании усеченного конуса в неограниченной полости // ТВТ. 2023. Т. 61. № 2. С. 265.
17. *Maleki H., Safaei M.R., Alrashed A.A., Kasaeian A.* Flow and Heat Transfer in Non-Newtonian Nanofluids Over Porous Surfaces // J. Thermal Analysis Calorimetry. 2019. V. 135. № 3. P. 1655.
18. *Astanina M., Sheremet M., Mahabaleshwar U.S., Singh J.* Effect of Porous Medium and Copper Heat Sink on Cooling of Heat-Generating Element // Energies. 2020. V. 13. № 10. 2538.
19. *Khezzar L., Siginer D., Vinogradov I.* Natural Convection of Power Law Fluids in Inclined Cavities // Int. J. Therm. Sci. 2012. V. 53. P. 8.
20. *Guo S.S., Luo Z.Y., Tao W., Zhao J.F., Cen K.F.* Viscosity of Monodisperse Silica Nanofluids // Bull. Chin. Ceram. Soc. 2006. V. 25. № 5. P. 52.
21. *Jang S.P., Choi S.U.S.* Effects of Various Parameters on Nanofluid Thermal Conductivity // J. Heat Transfer. 2007. V. 129. № 5. P. 617.
22. *Bercovier M., Engleman M.A.* A Finite-Element Method for Incompressible Non-Newtonian Flows // J. Comput. Phys. 1980. V. 36. № 3. P. 313.
23. *Turan O., Sachdeva A., Poole R.J., Chakraborty N.* Laminar Natural Convection of Power-Law Fluids in a Square Enclosure with Differentially Heated Side Walls Subjected to Constant Temperatures // J. Non-Newtonian Fluid Mechanics. 2011. V. 166. № 17–18. P. 1049.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 83–94

УДК 536.24; 536.46

КОНВЕКТИВНЫЙ И КОНДУКТИВНЫЙ РЕЖИМЫ ГОРЕНИЯ ГРАНУЛИРОВАННЫХ СМЕСЕЙ Ti–C–B. ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА ТЕПЛООБМЕНА ФИЛЬТРУЮЩЕГОСЯ ГАЗА С ГРАНУЛАМИ

© 2024 г. Р. А. Кочетков, Б. С. Сеплярский*, Д. С. Васильев**

Институт структурной макрокинетики и проблем материаловедения им. А.Г. Мержанова РАН, Черноголовка, Россия

**E-mail: seplb1@mail.ru*

***E-mail: d.s.vasilyev@mail.ru*

Поступила в редакцию 06.07.2023 г.
После доработки 06.07.2023 г.
Принята к публикации 03.10.2023 г.

Проведены исследования закономерностей горения системы $(100 - x)(\mathrm{Ti} + \mathrm{C}) - x(\mathrm{Ti} + 2\mathrm{B})$ насыпной плотности в порошковом и гранулированном виде. Показано, что зависимость скорости горения порошковой смеси от содержания Ti + 2B имеет немонотонный характер, что связано с влиянием примесного газовыделения на процесс горения. Для гранулированной смеси получена монотонная зависимость, имеющая два характерных участка. Увеличение скорости горения при содержании (Ti + 2B) >60 мас. % позволило сделать вывод о смене кондуктивного режима горения на конвективный. Для конвективного режима горения показано, что уменьшение содержания газифицирующейся добавки в смеси (грануляция этиловым спиртом) приводит к неожиданному результату: увеличению скорости горения системы для составов $x = 90$ и 100 мас. %. Для составов с содержанием (Ti + 2B) >60 мас. % впервые определена скорость горения при отводе примесного газа через боковую поверхность образца. Это позволило исключить влияние конвективного теплопереноса и определить скорость горения вещества внутри гранул. Совокупность имеющихся экспериментальных данных и результаты проведенных расчетов показали, что критическим условиям перехода горения в конвективный режим для гранул диаметром 1.7 мм отвечает состав при $x = 60$ мас. %, а для гранул диаметром 0.6 мм – при $x = 80$ мас. %. Установлено значительное различие расчетных и экспериментальных коэффициентов теплообмена газового потока с гранулами в конвективном режиме горения. Основной причиной отличия является химически активная среда исследуемых составов.

DOI: 10.31857/S0040364424010117

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время широко развивается направление получения функциональных керамоматричных композиционных порошков. К перспективным, с точки зрения совокупности физико-механических свойств и эксплуатационных характеристик, относится система $TiC–TiB_2$ [1–4]. Однако существует множество технологических трудностей получения сложных композиционных составов традиционными методами порошковой металлургии. К одному из многообещающих методов, позволяющих получать сложные композиционные порошковые материалы, относится самораспространяющийся высокотемпературный синтез (СВС) [5–6].

По мере развития теоретических представлений о механизмах горения конденсированных СВС-смесей сформировалось устойчивое мнение о “безгазовой” природе “твердопламенного горения” [7–10]. Отметим, что термин “безгазовое горение” в литературе трактуется по-разному. Во-первых, “безгазовым горением” называется горение, при котором выделяющийся примесный и адсорбированный газ (ПГ) не участвует в химической реакции с исходными реагентами [5]. Во-вторых, считается, что из-за небольшого массового содержания ПГ в порошковых смесях (1–2 мас. %), в соответствии с теоретическими представлениями, ПГ не оказывает влияния на скорость распространения видимого фронта горения, а следовательно, и на фазовый состав конечных продуктов [8].

В соответствии с классической теорией “безгазового горения” скорость фронта экспоненциально зависит от температуры, а механизм передачи тепла в волне горения является кондуктивным [7–10]. Эта теория никак не учитывает влияние ПГ на процесс горения. Однако экспериментальные данные различных исследователей показали, что ПГ может оказывать существенное влияние на скорость фронта горения [11–13].

Объяснить влияние ПГ в процессе СВС позволила конвективно-кондуктивная модель горения (ККМГ). В рамках этой модели скорость горения определяется скоростью перемещения слоя расплава под действием капиллярных сил и разности давлений примесных газов перед и за слоем расплава [11, 14, 15]. ККМГ расширила понимание роли и механизмов действия ПГ на процесс горения. В соответствии с ККМГ грануляция порошковой шихты позволяет снизить (нивелировать) влияние ПГ на скорость фронта горения [16, 17]. Неожиданным результатом исследований горения гранулированных смесей стало обнаружение конвективного режима горения в Ti-содержащих смесях, вызванного примесным газом [17–19]. В настоящее время остаются малоизученными необходимые и достаточные условия для реализации конвективного режима горения, его закономерности и механизмы.

Скорость фронта волны горения в потоке газа принято рассчитывать по теории фильтрационного горения (ТФГ) с однотемпературной или двухтемпературной моделью [9, 20]. По ТФГ предполагаются полный прогрев конденсированной фазы в волне горения и отсутствие распределения температуры по объему частиц с кондуктивным механизмом передачи тепла между гранулами. Конвективный режим горения имеет качественно другой механизм – горячий спутный поток “активного” газа нагревает/поджигает только поверхность гранулы, что способствует более высокой скорости распространения видимого фронта горения. Точные теоретические расчеты коэффициента теплообмена горячего газа в гранулированной среде весьма сложны из-за динамической природы процесса горения и быстрого изменения теплофизических параметров системы. Несмотря на эти трудности, авторы работы [19], используя экспериментальные данные для смесей Ti + xC, провели расчет коэффициента теплообмена. Было установлено, что полученные значения на порядок превышают результаты расчетов по формулам из существующей литературы [21]. Аналогичные результаты представлены в [22].

Анализ научной литературы показал, что работ по изучению закономерностей горения системы Ti–C–B немного [23, 24]. В [23] изучались химический и фазовый состав продуктов горения $(100 - x)$(Ti + C) – x(Ti + 2B) в широком диапазоне изменения x, а также зависимость скорости горения от состава. Зависимость имеет выраженный минимум в точке 70%(Ti + C) – 30%(Ti + + 2B). В рамках теоретических представлений, основанных на кондуктивном механизме передачи тепла в волне горения, объяснить наличие минимума скорости горения авторам не удалось.

В [24] исследовались закономерности той же системы $(100 - x)$(Ti + C) – x(Ti + 2B). Наблюдался минимум значения скорости фронта горения, но уже на составе 60%(Ti + C) – 40%(Ti + + 2B). Чтобы объяснить такой результат, в ряде экспериментов авторы заменяли аморфный углерод (сажу) и бор на их кристаллические модификации. Исследователи пришли к выводу, что важный вклад при горении этой системы вносит стадийность процесса тепловыделения взаимодействия Ti + C и Ti + 2B. Предполагалось, что одна из реакций происходит за видимым фронтом горения, поэтому скорость определялась не суммарным тепловыделением двух реакций, а только той, которая являлась ведущей, из-за чего скорость горения падала. Однако остался невыясненным вопрос, как добавка более быстрогорящего состава Ti + 2B к Ti + C приводила к уменьшению скорости горения.

Авторы работы [25] выдвинули гипотезу о существовании универсального эффекта снижения скорости горения (минимума) для систем 2M + + aX + bY = MX_a + MY_b, где M – металлический реагент (Ti, Zr, Hf, N и т.д.), а X и Y – реагенты, которые образуют прочную связь с M и обладают слабой реакционной способностью по отношению друг к другу (например, C–Si, C–B, C–Al, Si–B, B–Al и др.). Однако экспериментальная проверка этой гипотезы в научной литературе отсутствует.

Целями настоящей работы являются:

– установление зависимости скорости горения от состава для порошковых и гранулированных смесей $(100 - x)$(Ti + C) – x(Ti + 2B) насыпной плотности;

– установление границ реализации кондуктивного и конвективного режимов горения гранулированной смеси путем анализа результатов экспериментальных данных и теоретических расчетов;

– верификация полученных значений примесного газовыделения с использованием экспериментальных данных;

– объяснение причины несоответствия значений коэффициентов межфазового теплообмена в химически активных средах, определенных на основе экспериментальных данных и рассчитанных по известным из литературы формулам.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

В работе использовались полидисперсный порошковый титан марки ПТМ-1 (размер частиц: <105 мкм – 50 мас. %, <169 мкм – 90 мас. %), сажа П-803 (1–2 мкм), бор аморфный Б-99А (<2.35 мкм – 50 мас. %, <13 мкм – 90 мас. %).

Методика гранулирования исходной порошковой смеси выглядит следующим образом: сначала исходная порошковая смесь составов $(100 - x)(\mathrm{Ti} + \mathrm{C}) - x(\mathrm{Ti} + 2\mathrm{B})$ при x = 20, 30, 40, 60, 80, 90, 100 мас. % в течение 4 ч перемешивалась в гравитационном смесителе, после чего подготовленная шихта смешивалась с 4%-ным раствором поливинилбутираля (ПВБ) в этиловом спирте. Полученная масса протиралась через лабораторное сито с ячейкой 1.6 мм. Затем сформированные гранулы высушивались на воздухе в течение 10–12 ч и рассеивались на вибросите для получения гранул необходимых размеров. Содержание поливинилбутираля в сухой смеси не превышало 1 мас. %. Для смеси $(100 - x)(\mathrm{Ti} + \mathrm{C}) - x(\mathrm{Ti} + 2\mathrm{B})$ при x = 60, 80, 90, 100 мас. % также изготавливались гранулы без добавления ПВБ с использованием только этилового спирта. В работе использовались гранулы двух фракций: мелкие 0.4–0.8 мм и крупные 1.4–2 мм. Для проведения расчетов за характерный размер гранул принималось среднее арифметическое значение границ фракций 0.6 и 1.7 мм. Эксперименты по изучению закономерностей горения проводились на оригинальной установке (рис. 1).

Методика проведения экспериментов была следующая. Порошковая или гранулированная смесь засыпалась в кварцевую трубку (внешний диаметр – 20 мм, высота – 90 мм, толщина стенок – 2 мм, высота засыпки – 40–50 мм), в один конец которой предварительно была вставлена подложка (металлическая сетка со слоем минеральной ваты (Al_2O_3) толщиной 10–12 мм). Далее трубка закреплялась между двух уплотнительных элементов из вакуумной резины, что позволяло избежать попадания воздуха в кварцевую трубку в процессе горения. Инициирование процесса горения осуществлялось сверху тепловым импульсом от вольфрамовой спирали. Для исключения усадки несгоревшей части засыпки и получения стабильных результатов перед каждым экспериментом образец продувался потоком аргона при перепаде давления 1 атм.

Эксперименты по горению гранулированной смеси проводились двумя различными способами: в спутном режиме фильтрации ПГ и при отводе ПГ через боковую поверхность образца. При спутном режиме фильтрации выделяющийся в процессе горения примесный газ движется через несгоревшую часть образца по направлению фронта волны горения и обеспечивает конвективный теплоперенос потоком газа. Для отвода ПГ через боковую поверхность образца гранулированная смесь помещалась внутрь вставки из

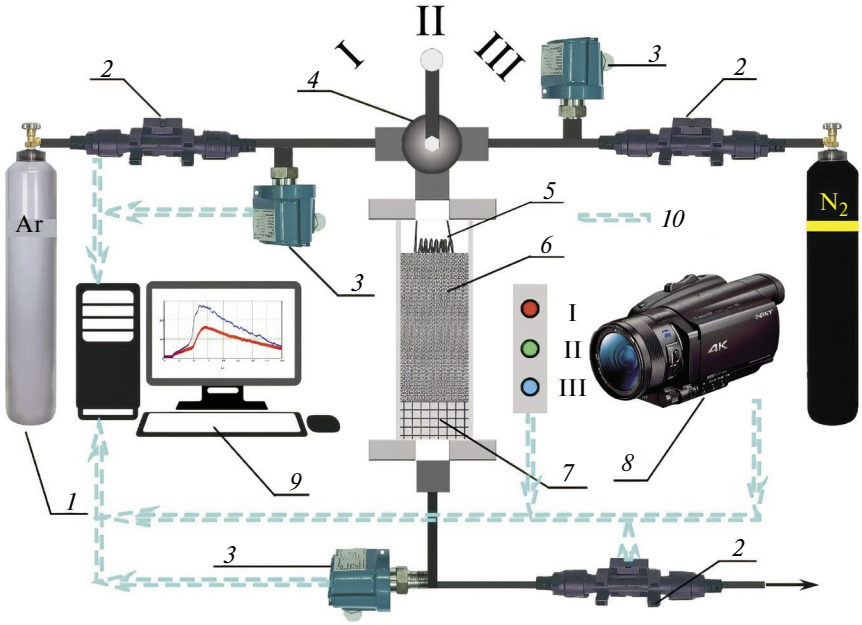

Рис. 1. Схема экспериментальной установки: *1* – баллон с аргоном, *2* – датчики расхода аргона, *3* – датчики давления газа, *4* – переключатель газа (I – азот, II – аргон, III – подача перекрыта), *5* – вольфрамовая спираль, *6* – шихта, *7* – подложка, *8* – цифровая видеокамера, *9* – персональный компьютер для записи данных с датчиков и видеокамеры, *10* – шина передачи данных.

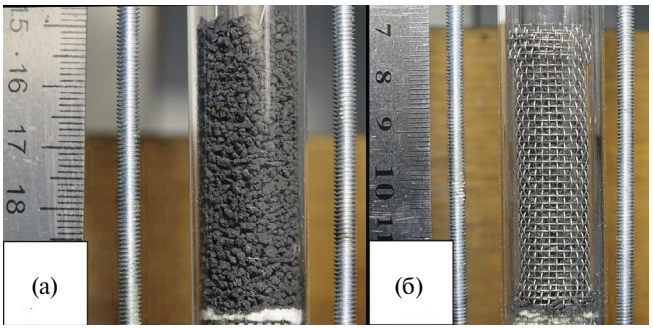

Рис. 2. Внешний вид кварцевой трубки: с гранулированной шихтой (а) и с гранулированной шихтой внутри вставки из металлической сетки (б).

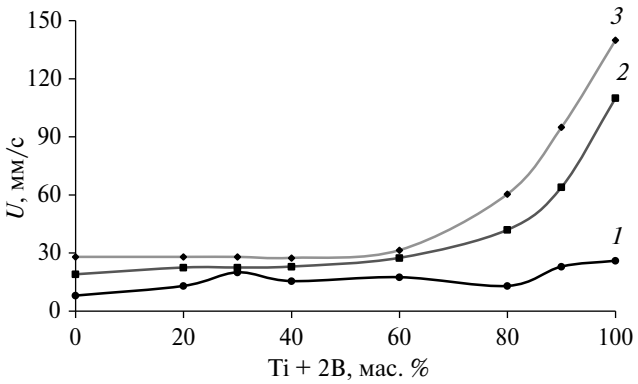

Рис. 3. Зависимости скорости горения порошковых (*1*) и гранулированных смесей фракций $d = 0.6$ (*2*) и 1.7 мм (*3*) от массового содержания Ti + 2B.

металлической сетки, которая создавала зазор около 1.5 мм между стенкой кварцевой трубки и шихтой (рис. 2), что обеспечивало отвод ПГ в зазор. При такой организации процесса сжигания можно не учитывать конвективный теплоперенос потоком газа при анализе распространения волны горения.

Процесс горения записывался на цифровую видеокамеру SONY FDR AX-700 (скорость съемки – 100–250 кадр/с). При последующей покадровой обработке видеозаписей рассчитывалась скорость видимого фронта горения. Значения скоростей горения являются средними по данным 3–4 экспериментов. Отклонение экспериментальных данных от их средних значений не превышает 10%.

Распределение по размеру используемых порошковых материалов определялось на лазерном анализаторе Microsizer-201C. Рентгенофазовый анализ (РФА) продуктов синтеза горением выполнялся на дифрактометре ДРОН-3М с использованием монохроматического CuK_α-излучения. Дифрактограммы были получены в режиме ступенчатого сканирования в диапазоне углов 20°–80°. Результаты анализировались по базе данных PDF-2. Адиабатическая температура горения смесей рассчитывалась с использованием программного комплекса THERMO[1].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для краткости изложения исходные составы характеризуются по массовому содержанию Ti + 2B, исключения составляют лишь составы 100%(Ti + C) и 100%(Ti + 2B), которые обозначены Ti + C и Ti + + 2B. Например, состав 40%(Ti + C) – 60%(Ti + + 2B) имеет обозначение 60(Ti + 2B).

На рис. 3 представлен график зависимостей скоростей горения порошковых и гранулированных смесей насыпной плотности от массового содержания Ti + 2B в исследуемом диапазоне.

Для порошковой смеси (кривая *1*) увеличение содержания Ti + 2B способствует повышению скорости горения относительно смеси Ti + C во всем изученном диапазоне. Однако зависимость имеет немонотонный характер. Из литературных данных известно, что скорость горения смеси Ti + 2B в разы выше скорости горения Ti + C [23, 24]. Также экспериментально установлено, что при горении смеси Ti + C выделяется 20–40 $см^3/г$ ПГ [10], а в системе Ti + 2B – около 80–100 $см^3/г$ [26], при этом более 90% объема ПГ – водород [27]. При повышении содержания Ti + 2B количество ПГ в общей смеси увеличивается. Учесть влияние примесного газа на скорость горения в порошковой смеси не представляется возможным, так как оно в соответствии с ККМГ зависит от перепада давления перед и за фронтом горения, величина которого неизвестна. Поэтому описать с единых позиций зависимость скорости горения для порошковых смесей не удается.

Зависимости скорости горения гранулированной смеси от массового содержания Ti + 2B имеют кардинально другой характер (кривые *2* и *3*). Во-первых, скорость растет монотонно при увеличении содержания Ti + 2B в смеси. Во-вторых, весь диапазон изменения массового содержания Ti + 2B можно разделить на два участка: $x < 60$ мас. %, $x \geqslant 60$ мас. %. Объяснить полученные результаты в рамках классической кондуктивной теории “безгазового горения” [10] невозможно, так как экспериментальные температуры T_c горения изучаемых смесей различаются незначительно: T_c для составов Ti + C, 60(Ti + + 2B) и Ti + 2B составляет 2720, 2630, 2800 K соответственно. Результаты РФА показали, что продукты горения для всех исследуемых смесей состоят из двух фаз – TiC и TiB_2, что соответствует результатам термодинамических расчетов по программе THERMO. В работе [20] установлено, что гранулированная

[1] http://www.ism.ac.ru/

смесь состава Ti + C, полученная при аналогичных условиях (т.е. при использовании таких же порошков титана и сажи, по той же методике получения гранул и в тех же условиях проведения эксперимента) горит по кондуктивному механизму. Можно допустить, что и гранулированные составы $x < 60$ мас. % имеют аналогичный механизм распространения фронта, как и Ti + C, поскольку скорости для этих составов отличаются незначительно. Следовательно, для гранулированных смесей состав 60(Ti + 2B) является пограничным для кондуктивного режима, поскольку дальнейшее увеличение содержания Ti + 2B приводит к значительному росту скорости горения, что может свидетельствовать об изменении механизма горения на конвективный [17].

Помимо увеличения скорости горения для смесей 80(Ti + 2B), 90(Ti + 2B) и Ti + 2B в процессе синтеза, наблюдался еще один экспериментально установленный факт вероятной смены механизма горения с кондуктивного на конвективный. Отмечено, что в нижнем торце установки уплотнительный элемент из вакуумной резины воспламенялся через несколько секунд после завершения синтеза, чего не происходило с составами $x \leqslant 60$ мас. %. Воспламенение уплотнительного элемента возможно только при наличии достаточного количества горячего примесного газа, выделяющегося за видимым фронтом горения.

Для того чтобы проверить, является ли примесный газ причиной резкого увеличения скорости горения составов $x > 60$ мас. %, для гранулированной смеси проведены дополнительные эксперименты с использованием металлической сетки для отвода ПГ (см. рис. 2). Предполагается, что отвод газа из фронта горения через боковую поверхность образца с последующим его течением вдоль стенок кварцевой трубки минимизирует влияние спутного потока ПГ. Это позволит определить кондуктивную скорость горения, т.е. скорость горения без влияния теплопереноса спутным потоком газа. Результаты экспериментов показали, что в данных условиях скорость горения смесей для обеих фракций гранул значительно снизилась (рис. 4).

Объяснить причину увеличения скорости горения составов 80(Ti + 2B) и Ti + 2B в условиях спутной фильтрации ПГ можно, если подробнее рассмотреть процесс нагрева гранулы потоком ПГ во фронте горения при конвективном режиме (рис. 5). В масштабе каждой гранулы структура фронта горения является двумерной: видимый фронт горения идет по поверхности гранулы, а фронт прогрева гранулы распространяется от поверхности к центру. Одновременно происходят разложение ПВБ и выделение примесного газа в прогретом слое гранулы. Толщина этого слоя h к моменту воспламенения зависит от скорости горения вещества внутри гранулы u_{com}. По известной методике [28, 29], зная экспериментальные скорости горения гранулированной смеси для двух фракций разного размера в кондуктивном режиме (т.е. по значениям скоростей горения смесей во вставке из металлической сетки), можно найти скорость горения вещества внутри гранулы u_{com} и время воспламенения гранулы от гранулы τ_{ig}. Результаты расчета представлены в табл. 1.

Механизм выделения примесного газа именно за видимым фронтом горения становится более понятным, если провести численные оценки времени воспламенения t_{ig} и времени тепловой релаксации гранулы t_h. Время воспламенения гранулы в конвективном режиме можно оценить (оценка сверху) как

$$t_{\text{ig}} = \frac{d}{U},$$

где U – экспериментальная скорость горения гранулы, d – диаметр гранулы.

Время воспламенения для 80(Ti + 2B) при $d = 1.7$ мм составило 0.028 с, а для Ti + 2B – 0.012 с. При $d = 0.6$ мм время воспламенения для 80(Ti + + 2B) составило 0.014 с, а для Ti + 2B – 0.0055 с.

Время тепловой релаксации гранул можно оценить по формуле

$$t_h = \frac{r^2}{a},$$

Таблица 1. Сводная таблица экспериментальных данных и результатов расчетов

Состав	U, мм/с		U_0, мм/с		u_{com}, мм/с	τ_{ig}, мс	c_s, Дж/кг K	V, см^3/г	G, кг/м^2 с		$w_{\text{H}} \times 10^{-3}$
	d, мм								d, мм		
	0.6	1.7	0.6	1.7					0.6	1.7	
60(Ti + 2B)	27.5	31.5	22	24	27	3.5	630	90	0.2	0.23	8.2
80(Ti + 2B)	42	60.5	29	35	42	5.5	650	111	0.37	0.53	9.7
Ti + 2B	110	140	50	75	100	6.2	675	130	1.14	1.45	12

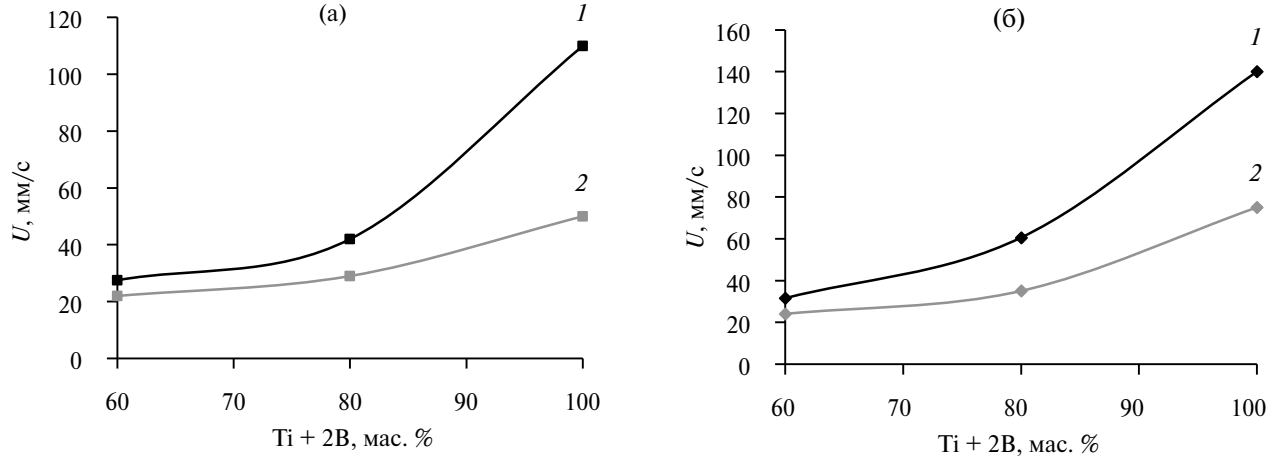

Рис. 4. Зависимости скорости горения гранулированных смесей двух фракций при изменении содержания Ti + 2B в спутном режиме ПГ (*1*) и с отводом ПГ (*2*): (а) – $d = 0.6$ мм, (б) – 1.7.

где $r = d/2$, a – коэффициент температуропроводности гранулы ($a = 10^{-6}$ м^2/с [30]).

Для $d = 1.7$ мм время тепловой релаксации составляет 0.72 с, а для $d = 0.6$ мм – 0.09 с. Оценки показывают, что для исследуемых смесей $t_h \gg t_{ig}$, следовательно, к моменту воспламенения прогревается только поверхностный слой гранулы. Таким образом, необходимое условие для реализации конвективного режима выполняется. Также отсюда следует, что основная масса ПВБ внутри гранулы не успевает разложиться в видимом фронте горения.

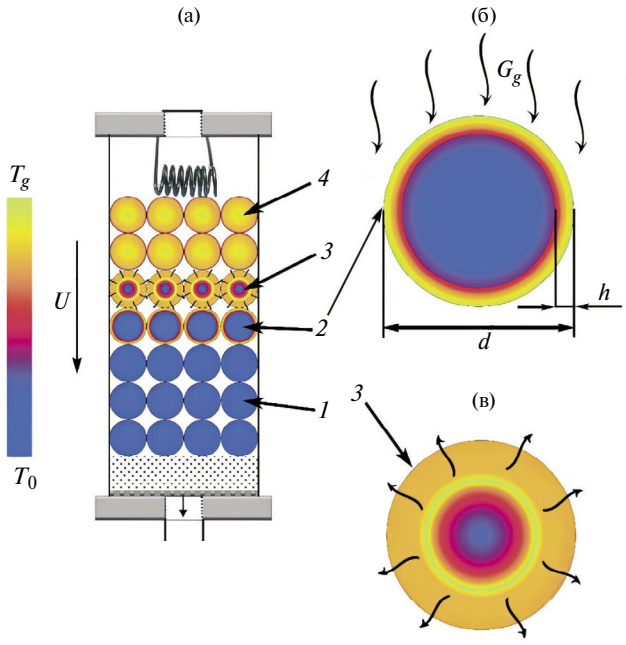

Рис. 5. Схематичное представление осевого сечения образца в процессе горения в конвективном режиме (а), разреза гранулы на стадии воспламенения (б) и горения (в): *1* – исходные гранулы, *2* – гранулы во фронте воспламенения, *3* – горящие гранулы, *4* – сгоревшие гранулы; стрелки – направления движения примесного газа.

Возникает вопрос, может ли конвективный режим горения, наблюдаемый в смесях 80(Ti + 2B) и Ti + 2B, быть обусловлен газообразными продуктами разложения поливинилбутираля, как указано в работе [18]. Для проверки этой гипотезы подготовлены гранулы составов 60(Ti + 2B), 80(Ti + 2B), 90(Ti + 2B) и Ti + 2B без использования ПВБ (гранулирование этиловым спиртом).

Оказалось, что в отсутствие ПВБ скорость горения составов 80(Ti + 2B) возросла незначительно: с 42 до 49 мм/с и с 60.5 до 61 мм/с для гранул размером $d = 0.6$ и 1.7 мм соответственно. А для гранулированного состава 90(Ti + 2B) скорость горения существенно возросла: с 64 до 87 мм/с для гранул размером $d = 0.6$ мм и с 95 до 125 мм/с для $d = 1.7$ мм. Аналогичные результаты получены для смеси Ti + 2B: скорость горения возросла с 110 до 195 мм/с и с 140 до 220 мм/с для гранул размером $d = 0.6$ и 1.7 мм соответственно (рис. 6).

Такой неожиданный эффект увеличения скорости горения при уменьшении количества выделяющегося ПГ может быть связан с более длительным процессом зажигания гранул, содержащих ПВБ. В этом случае необходимо потратить некоторое количество времени и тепла на процесс разложения ПВБ в поверхностном слое гранулы, и только после этого происходит воспламенение вещества гранул.

Совокупность полученных результатов показывает, что основной причиной реализации конвективного режима горения является именно примесный газ, основная масса которого приходится на водород [27]. В дальнейших расчетах

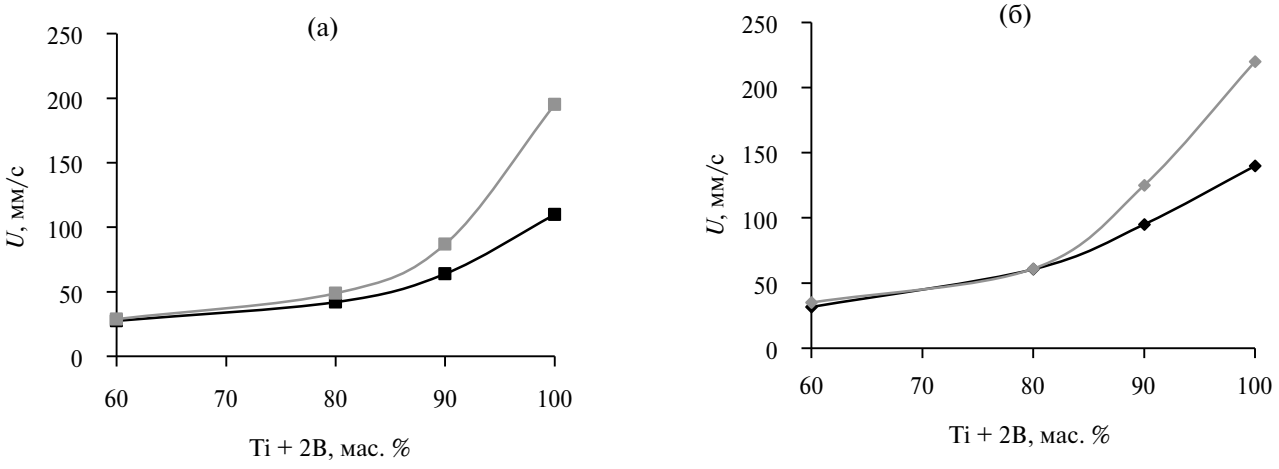

Рис. 6. Зависимости скорости горения гранулированных смесей при изменении содержания Ti + 2B: *1* – грануляция без ПВБ, *2* – с добавкой ПВБ; (а) – $d = 0.6$ мм, (б) – 1.7.

считается, что весь примесный газ приходится на водород.

Определим критическое значение содержания Ti + 2B, при котором происходит переход в конвективный режим горения, что позволит рассчитать содержание примесного водорода на грамм смеси.

Логика выбора критического значения содержания Ti + 2B в смеси и размера гранул, для которых ведется расчет примесного газовыделения на грамм смеси, обосновывается следующим образом. Во-первых, необходимо определить критическое значение перехода в конвективный режим в смеси в диапазоне от 60(Ti + 2B) до 80(Ti + 2B). Во-вторых, необходимо определить минимальное количество газа в смеси, которое бы позволило объяснить имеющиеся экспериментальные результаты. Этим условиям отвечает нахождение массовой доли газа в смеси w_{H} в критических условиях по экспериментальным данным для крупных гранул.

Действительно, в критических условиях, согласно [18], имеет место следующее балансное соотношение для определения количества примесного газа на грамм смеси, которое необходимо для реализации прогрева горячим газом до температуры воспламенения слоя толщиной h:

$$\left(T_g - T_{\text{ig}}\right) U w_{\text{H}} \rho_s c_g = \left(T_{\text{ig}} - T_0\right) U \rho_s c_s \frac{3h}{r}, \quad (1)$$

где T_g – температура газа; T_{ig} – температура воспламенения гранулы; T_0 – начальная температура; U – экспериментальная скорость горения гранул; h – глубина слоя, который необходимо нагреть до температуры воспламенения потоком ПГ ($h = a/u_{\text{com}}$); w_{H} – массовая доля водорода в исходной смеси; c_g – теплоемкость газа; ρ_s – насыпная плотность; c_s – удельная теплоемкость пористого вещества.

Как видно из (1), количество газа для смесей одинакового состава, т.е. при одинаковом значении h для использованных в экспериментах размеров гранул (1.7 и 0.6 мм), отличается почти в три раза.

Оценим минимальный объем водорода на грамм смеси, необходимый для нагрева поверхностного слоя гранулы толщиной h до температуры воспламенения при содержании Ti + 2B в смеси, соответствующем переходу в конвективный режим горения.

Проведенные эксперименты показали (см. рис. 3), что состав 60(Ti + 2B) предположительно соответствует критическим условиям перехода горения в конвективный режим. Для этого состава $u_{\text{com}} = 27$ мм/с (см. табл. 1), а толщина прогретого слоя, необходимого для воспламенения гранулы, составила $h = 37$ мкм.

Известно, что взаимодействие титана с водородом не приводит к воспламенению смеси Ti + C [31], поэтому в качестве температуры воспламенения гранулы T_{ig} возьмем температуру плавления титана [32]. Удельная теплоемкость смесей c_s рассчитывалась по удельной теплоемкости составляющих компонентов Ti, C, B [32] и их содержаниям в смесях, насыпная плотность гранулированных смесей ρ_s определена экспериментально. Примем следующие значения величин, необходимых для расчета: $T_g = 3190$ K, $T_{\text{ig}} = 1933$ K, $T_0 = 300$ K, $c_s = 630$ Дж/(кг K), $\rho_s = 0.9$ г/см^3, $c_g = 15 \times 10^3$ Дж/(кг K), $r = 0.85$ мм, $h = 37 \times 10^{-3}$ мм.

По (1) вычисляется массовая доля газа в смеси w_{H} по отношению к насыпной плотности гранулированной смеси ($w_{\text{H}} = 8.2 \times 10^{-3}$). Определим

объем водорода на грамм смеси в критических условиях $V_{кр} = w_H/\rho_H$, (где ρ_H – плотность водорода при нормальных условиях, $\rho_H = 0.09$ кг/м^3 [32]): $V_{кр} = 90.5$ см^3/г.

Известно, что в процессе горения из Ti + 2B выделяется в четыре раза больше газа, чем из Ti + C [10, 26], тогда объем примесного газа V в зависимости от массовой доли x(Ti + 2B) в смеси представим выражением:

$$V(x) = k3x/(100 + 1).$$

Используя значение объема газа на грамм смеси в критических условиях, можно определить k ($k = 32.3$ см^3/г) и затем вычислить содержание водорода на грамм смеси для остальных значений x. Результаты вычислений представлены в табл. 1.

С учетом рассчитанных значений содержания водорода в смеси покажем, что ТФГ не дает удовлетворительного объяснения причины значительного увеличения скорости горения смесей 80(Ti + 2B) и Ti + 2B. Это позволит обосновать реализацию конвективного режима горения в этих смесях.

В соответствии с ТФГ максимальная скорость горения U_f при спутном потоке газообразных продуктов достигается, если весь примесный газ выделится за фронтом реакции [10]. В этом случае

$$U_f = U_0 + \frac{G_g c_g}{c_s \rho_s},$$

где U_0 – кондуктивная скорость фронта горения в отсутствие потока газа, G_g – массовый расход газа.

Если весь примесный газ выделяется за фронтом реакции, то массовый поток газа можно выразить формулой $G_g = U_f w_H \rho_s$. Тогда выражение для U_f принимает вид

$$U_f = \frac{U_0}{1 - \dfrac{w_H c_g}{c_s}}. \qquad (2)$$

Результаты расчета по формуле (2), приведенные на рис. 7, показали, что для 60(Ti + 2B) при $d = 1.7$ мм (см. рис. 7б) выполняются необходимые условия реализации как конвективного, так и кондуктивного режимов горения, следовательно, критические условия перехода из одного режима горения в другой определены верно. Для составов 80(Ti + 2B) и Ti + 2B рассчитанные по ТФГ скорости горения U_f существенно меньше полученных в экспериментах U, поэтому можно считать, что для этих составов реализуется конвективный режим горения.

Проведем дополнительную проверку правильности выбранного размера гранул $d = 1.7$ мм для определения критических условий по соотношению (1). Для этого вычислим массовую долю водорода w_H^* для $d = 0.6$ мм того же состава, оставив остальные параметры неизменными: тогда $w_H^* = 23.2 \times 10^{-3}$. Рассчитаем скорости горения по ТФГ (2) с $w_H^* = 23.2 \times 10^{-3}$ для обоих размеров гранул и сравним с экспериментальными данными. Для $d = 1.7$ мм состава 60(Ti + 2B) экспериментально определенное значение скорости горения за счет потока ПГ (в спутном режиме горения) составляет 31.5 мм/с, а по результатам расчета по ТФГ – 53.3 мм/с. Для $d = 0.6$ этого же состава скорость в спутном режиме горения – 27.5 мм/с, а по результатам расчета по ТФГ – 48.8 мм/с. Следовательно, количество примесного газа в шихте, определенное по формуле (1) при использовании гранул с $d = 0.6$ мм, не соответствует полученным экспериментальным данным и критическим условиям, так как $U_f > U$. Поэтому в дальнейших расчетах для

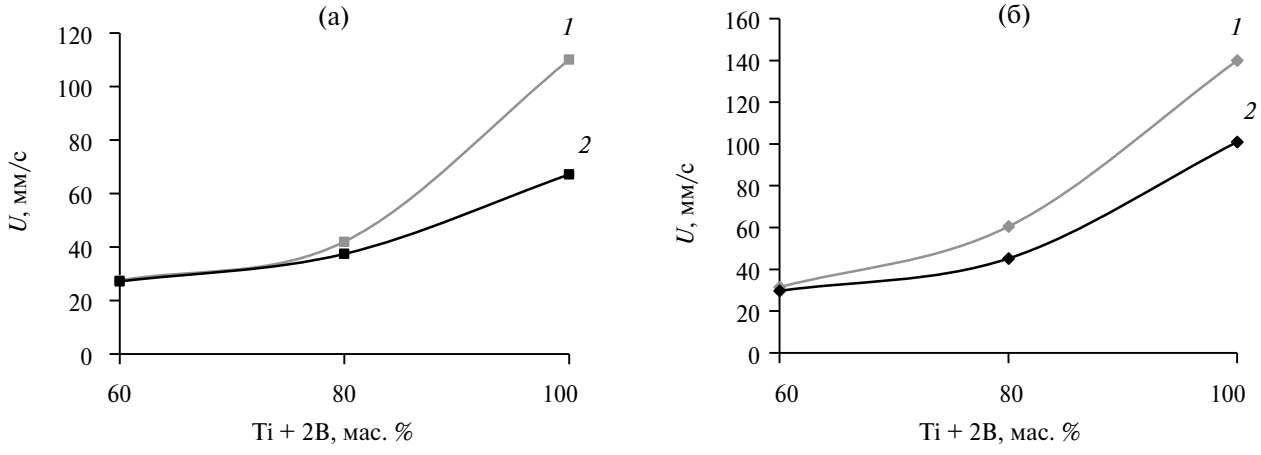

Рис. 7. Экспериментальные зависимости скоростей горения гранулированных смесей при изменении содержания Ti + 2B в спутном режиме (*1*) и рассчитанные по ТФГ (*2*): (а) – $d = 0.6$ мм, (б) – 1.7.

конвективного режима используются значения $w_{\text{Н}}$, приведенные в табл. 1.

Зная количество примесного газа на грамм смеси и экспериментально определенную скорость горения гранулированных смесей, проверим, может ли рассчитанный по известным из литературы формулам коэффициент теплообмена между потоком газа и гранулированной смесью [21] обеспечить ту скорость нагрева поверхности гранулы, которая следует из экспериментальных данных.

РАСЧЕТ КОЭФФИЦИЕНТА ТЕПЛООБМЕНА В КОНВЕКТИВНОМ РЕЖИМЕ ГОРЕНИЯ ГРАНУЛИРОВАННОЙ СМЕСИ ЗА СЧЕТ ПОТОКА ПРИМЕСНОГО ГАЗА

Согласно [21] коэффициент теплообмена пористого вещества с газовым потоком описывается соотношениями

$$\alpha_h = \text{Nu}\lambda_g/d; \tag{3}$$

$$\text{Nu} = \frac{\text{RePr}^{1/3}\Psi(\varepsilon)}{4},$$

$$\text{Re} = \frac{G_g d}{(1-\varepsilon)\mu},$$

$$\text{Pr} = \frac{c_g \mu}{\lambda_g};$$

$$\Psi(\varepsilon) = 0.508 - 0.56(1-\varepsilon), \varepsilon < 0.4; \tag{4}$$

$$\Psi(\varepsilon) = 1 - 1.164(1-\varepsilon)^{2/3}, \varepsilon > 0.4.$$

Здесь Nu – число Нуссельта, Re – число Рейнольдса, Pr – число Прандтля, λ_g – коэффициент теплопроводности водорода, μ – динамическая вязкость, $0 < \varepsilon < 1$ – открытая пористость конденсированной среды.

Подставляя выражение (4) в (3), получаем формулу для расчета коэффициента теплообмена [33]:

$$\alpha_h = \frac{1}{4}\rho_g G_g c_g \text{Pr}^{-2/3}(1-\varepsilon)^{-1}\Psi(\varepsilon). \tag{5}$$

Для результатов расчетов α_h, приведенных в табл. 2, величина ε принималась равной 0.5, что соответствует данным работы [33], число Прандтля для водорода равно 0.7.

В конвективном режиме коэффициент теплообмена α^* между фильтрующимся примесным газом и гранулированной смесью может быть оценен с помощью экспериментальных данных по скоростям горения. С учетом того, что в конвективном режиме время зажигания t_{ig} намного меньше характерного времени прогрева гранулы t_h, для описания изменения температуры поверхности во времени $T(0, t)$ становится возможным применение модели полубесконечного тела [34]:

$$\frac{T(0,t) - T_0}{T_g - T_0} = 1 - \phi\left(H\sqrt{\alpha^* t}\right), \tag{6}$$

где T_0 – начальная температура тела; T_g – температура нагретого газа; $\phi(\omega) = \exp(\omega^2)(1 - \text{erf}(\omega))$ – табличная функция; $H = \alpha^*/\lambda_c$, λ_c – коэффициент теплопроводности гранулы. В конвективном режиме перенос тепла газом происходит по направлению движения фронта горения вдоль поверхности гранулы, а прогрев гранулы с поверхности внутрь обеспечивается кондуктивным механизмом (рис. 5). Поэтому для оценки времени зажигания используем значения времени воспламенения гранулы от гранулы τ_{ig} для кондуктивного режима горения (см. табл. 1).

Воспламенение гранулы в потоке примесного газа (водорода) происходит при нагреве ее поверхности до температуры плавления титана 1955 K [31]. Для смесей в качестве T_g берем адиабатическую температуру горения, рассчитанную в программе THERMO. Важно отметить, что коэффициент теплообмена и, следовательно, скорость горения в конвективном режиме зависят не только от максимальной температуры горения, как это имеет место в классической теории [9, 10], но и от температуры воспламенения гранулы [19].

Подставив в левую часть (6) значения $T(0, t) = 1955$ K, $T_0 = 300$ K и $T_g = 3190$ K, находим

$$\phi\left(H\sqrt{\alpha^*\tau_{\text{ig}}}\right) = 0.41.$$

По данным таблиц, этому значению функции соответствует значение аргумента

$$H\sqrt{\alpha^*\tau_{\text{ig}}} = 1.06.$$

Как и при расчетах, проведенных выше, $a = 10^{-6}$ м^2/с, а коэффициент теплопроводности гранулы примем $\lambda_c = 1$ Вт/(м K) [35].

Результаты расчета теоретического коэффициента теплообмена α_h по уравнению (5) и экспериментального α^* по (6) для смесей $x \geqslant 60\%$ при $d = 1.7$ мм и для $x \geqslant 80\%$ при $d = 0.6$ мм представлены в табл. 2.

Коэффициент межфазового теплообмена α^*, рассчитанный на основе экспериментальных данных, значительно отличается от значений α_h, полученных с помощью теоретических формул. Это расхождение между расчетными значениями α^* и α_h показывает, что теоретические расчеты по формуле (5) не могут объяснить существование конвективного режима горения при высоком содержании Ti + 2B в смеси.

Таблица 2. Теоретический α_h и экспериментальный α^* коэффициенты теплообмена гранулированных смесей $x \geqslant 60$ мас. %

Состав	α_h, Вт/(м^2 K)	α^*, Вт/(м^2 K)	Поправочный коэффициент
$d = 1.7$ мм			
60(Ti + 2B)	580	17 920	30.9
80(Ti + 2B)	1353	14 290	10.5
Ti + 2B	3683	13 460	3.65
$d = 0.6$ мм			
80(Ti + 2B)	939	14 290	15.2
Ti + 2B	2890	13 460	4.6

Такое сильное отличие коэффициента теплообмена газа с гранулированной смесью от теоретического расчета может быть связано с шероховатостью поверхности гранулы и случайным характером укладки гранул смеси, что обеспечивает быстрый прогрев поверхностного слоя потоком горячего газа и зажигание гранулы. Однако, по мнению авторов, основной причиной проявления несоответствия расчетных и экспериментальных результатов является тот факт, что метод расчета коэффициента теплообмена по Гольдштику предназначен для химически инертных пористых сред [21]. При использовании инертных гранул невозможно было бы увидеть такое значительное отличие от теоретического расчета, так как процесс теплообмена инертных гранул и потока газа продолжается до достижения гранулой температуры втекающего газа и может лимитироваться скоростью теплообмена внутри гранулы. В настоящих экспериментах среда химически активна, что приводит к появлению конвективного режима горения, который невозможен в засыпке из инертных гранул. После прогрева до температуры зажигания поверхностного слоя гранулы начинается горение вещества гранулы, и стадия инертного прогрева на этом заканчивается. Следовательно, в экспериментах с активными гранулированными смесями удалось определить коэффициент теплообмена между поверхностью гранул и фильтрующимся газом в условиях, когда внутренний теплообмен не является лимитирующей стадией. Такие условия характерны для реакторов с зернистым слоем катализатора, в которых осуществляются экзотермические реакции (например, реакции окисления).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментально установлено, что зависимость скорости горения порошковой смеси от содержания Ti + 2B имеет немонотонный характер, что связано с влиянием примесного газовыделения.

Показано, что в гранулированных смесях системы $(100 - x)$(Ti + C) – x(Ti + 2B) при возрастании содержания $x \geqslant 60\%$ происходит смена кондуктивного механизма горения на конвективный.

Впервые обнаружено, что уменьшение содержания примесного газа за счет грануляции без ПВБ привело к значительному увеличению скорости горения для гранулированных составов 90(Ti + 2B) и Ti + 2B.

Совокупность имеющихся экспериментальных данных и проведенные расчеты показали, что критическим условиям перехода режима горения в конвективный отвечает состав 60(Ti + 2B).

Показано, что основной причиной реализации конвективного режима горения является именно примесный газ, основная масса которого приходится на водород.

Значения коэффициентов межфазового теплообмена, рассчитанные предложенным методом, в несколько раз превышают оценки по формулам для теплообмена газа в зернистой среде, известным из литературы.

Основной причиной отличия расчетных и экспериментальных коэффициентов теплообмена газового потока с гранулами является химически активная среда исследуемых составов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Vallauri D., Atias Adrian I.C., Chrysanthou A.* TiC–TiB_2 Composites: A Review of Phase Relationships, Processing and Properties // J. Eur. Ceram. Soc. 2008. V. 28. № 8. P. 1697.
2. *Matsuda T.* Synthesis and Sintering of TiC–TiB_2 Composite Powders // Mater. Today Commun. 2020. V. 25. 101457.

3. *Brodkin D., Kalidindi S., Barsoum M., Zavaliangos A.* Microstructural Evolution During Transient Plastic Phase Processing of Titanium Carbide-Titanium Boride Composites // J. Am. Ceram. Soc. 1996. V. 79. № 7. P. 1945.
4. *Qian J.C., Zhou Z.F., Zhang W.J. et al.* Microstructure and Tribo-mechanical Properties of Ti–B–C Nanocomposite Films Prepared by Magnetron Sputtering // Surf. Coat. Technol. 2015. V. 270. № 25. P. 290.
5. *Rogachev A.S., Mukasyan A.S.* Combustion for Material Synthesis. N.Y.: CRC Press, Taylor and Francis Group, 2015. P. 424.
6. *Levashov E.A., Mukasyan A.S., Rogachev A.S., Shtansky D.V.* Self-propagating High-temperature Synthesis of Advanced Materials and Coatings // Int. Mater. Rev. 2017. V. 62. 1243291.
7. *Merzhanov A.G.* Solid Flames: Discoveries, Concepts, and Horizons of Cognition // Comb. Sci. Technol. 1994. V. 98. P. 307.
8. *Шкадинский К.Г., Струнина А.Г., Фирсов А.Н., Демидова Л.Д., Барзыкин В.В.* Математическое моделирование горения пористых малогазовых составов // ФГВ. 1991. Т. 27. № 5. С. 84.
9. *Aldushin A.P., Martemyanova T.M., Merzhanov A.G., Khaikin B.I., Shkadinskii K.G.* Propagation of the Front of an Exothermic Reaction in Condensed Mixtures with the Interaction of the Components Through a Layer of High-melting Product // Combust. Exp. Shock Waves. 1972. V. 8. № 2. P. 159.
10. *Мержанов А.Г., Мукасьян А.С.* Твердопламенное горение. М.: Торус Пресс, 2007.
11. *Rubtsov N.M., Seplyarskii B.S., Alymov M.I.* Ignition and Wave Processes in Combustion of Solids. Switzerland: Springer Int. Publ. AG, Cham., 2017.
12. *Кочетов Н.А., Сеплярский Б.С.* Влияние примесных газов на горение механически активированной смеси Ni + Al // Хим. физика. 2022. Т. 41. № 1. С. 42.
13. *Vadchenko S.G.* Effect of Thermal Treatment in Vacuum on Ignition of Titanium Compacts in Hydrogen // Int. J. Self-Propag. High-Temp. Synth. 2010. V. 19. P. 206.
14. *Nikogosov V.N., Nersesyan G.A., Sherbakov V.A., Kharatyan S.L., Shteinberg A.S.* Influence of a Blowing Agent on Mechanism of Combustion and Degassing in a Titanium-carbon Black System // Int. J. Self-Propag. High-Temp. Synth. 1999. V. 8. № 3. P. 321.
15. *Сеплярский Б.С.* Природа аномальной зависимости скорости горения безгазовых систем от диаметра // Докл. РАН. 2004. Т. 396. № 5. С. 640.
16. *Seplyarskii B.S., Kochetkov R.A.* Granulation as a Tool for Stabilization of SHS Reactions // Int. J. Self-Propag. High-Temp. Synth. 2017. V. 26. № 2. P. 134.
17. *Сеплярский Б.С., Тарасов А.Г., Кочетков Р.А., Ковалев И.Д.* Закономерности горения смеси Ti + TiC в спутном потоке азота // ФГВ. 2014. Т. 50. № 3. С. 61.
18. *Сеплярский Б.С., Абзалов Н.И., Кочетков Р.А., Лисина Т.Г.* Влияние содержания поливинилбутираля на режим горения гранулированной смеси (Ti + C) + *x*Ni // Хим. физика. 2021. Т. 40. № 3. С. 23.
19. *Сеплярский Б.С., Кочетков Р.А.* Исследование закономерностей горения порошковых и гранулированных составов Ti + *x*C ($x > 0.5$) в спутном потоке газа // Хим. физика. 2017. Т. 36. № 9. С. 21.
20. *Алдушин А.П., Мержанов А.Г.* Распространение тепловых волн в гетерогенных средах. Новосибирск: Наука, 1988.
21. *Гольдштик М.А.* Процессы переноса в зернистом слое. Новосибирск: ИТФ СОАН СССР, 1984.
22. *Сеплярский Б.С., Кочетков Р.А., Лисина Т.Г.,* Абзалов *Н.И.* Влияние размеров гранул Ti + C на закономерности горения в потоке азота // ФГВ. 2021. Т. 57. № 1. С. 65.
23. *Акопян А.Г., Долуханян С.К., Боровинская И.П.* Взаимодействие титана, бора и углерода в режиме горения // ФГВ. 1978. № 3. С. 70.
24. *Щербаков В.А., Питюлин А.Н.* Особенности горения системы Ti–C–B // ФГВ. 1983. № 5. С. 108.
25. *Grigoryan H.E., Rogachev A.S., Sytschev A.E.* Gasless Combustion in the Ti–C–Si System // Int. J. Self-Propag. High-Temp. Synth. 1997. V. 6. № 1. P. 29.
26. *Vadchenko S.G.* Gas Release During Combustion of Ti + 2B Films: Influence of Mechanical Alloying // Int. J. Self-Propag. High-Temp. Synth. 2015. V. 24. P. 89.
27. *Nikogosov V.N., Nersesyan G.A., Shcherbakov V.A., Kharatyan S.L., Shteinberg A.S.* Influence of a Blowing Agent on Mechanisms of Combustion and Degassing in a Titanium–Carbon Black System // Int. J. Self-Propag. High-Temp. Synth. 1999. V. 8. P. 321.
28. *Сеплярский Б.С., Кочетков Р.А., Лисина Т.Г. и др.* Макрокинетический механизм горения порошковых и гранулированных смесей 5Ti + 3Si: влияние примесного газовыделения и размера частиц титана // Хим. физика. 2022. Т. 96. № 5. С. 660.
29. *Сеплярский Б.С., Кочетков Р.А., Лисина Т.Г., Васильев Д.С.* Причина увеличения скорости горения порошковой смеси Ti + C при разбавлении медью // ФГВ. 2023. № 3. С. 100.

30. *Зенин А.А., Мержанов А., Несесян Г.А.* Исследование структуры тепловой волны в СВС-процессах // ФГВ. 1981. Т. 17. № 1. С. 79.

31. *Мартиросян Н.А., Долуханян С.К., Мержанов А.Г.* Экспериментальные наблюдения неединственности стационарных режимов горения в системах с параллельными реакциями // ФГВ. 1983. № 6. С. 22.

32. *Бабичев А.П., Бабушкина Н.А., Братсковский А.М. и др.* Физические величины. Спр. М.: Энергоатомиздат, 1991. С. 1232.

33. *Сеплярский Б.С., Кочетков Р.А., Лисина Т.Г., Абзалов Н.И.* Экспериментально-теоретическое определение коэффициента межфазового теплообмена при горении гранулированной СВС-смеси в потоке газа // ТВТ. 2022. Т. 60. № 1. С. 81.

34. *Лыков А.В.* Теория теплопроводности. М.: Высшая школа, 1967.

35. *Касацкий Н.Г., Филатов В.М., Найбороденко Ю.С.* Самораспространяющийся высокотемпературный синтез. Томск: Изд-во Томск. ун-та, 1991.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 95–111

УДК 537.2, 536.2

О РЕШЕНИИ ЗАДАЧ ЭЛЕКТРОСТАТИКИ И ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ ДЛЯ ДВУХПЛЕНОЧНЫХ ПЛОСКОСЛОИСТЫХ СРЕД

© 2024 г. А. Б. Петрин*

Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

**E-mail: a_petrin@mail.ru*

Поступила в редакцию 01.10.2023 г.
После доработки 12.12.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

Предлагается метод отражений электростатики для точечного заряда, расположенного рядом с плоскослоистой средой, состоящей из двух пленок на диэлектрическом полупространстве. Метод обобщается на случай произвольной системы зарядов и применяется к решению математически аналогичных задач электростатики и стационарной теплопроводности плоскослоистых сред. В предложенном варианте метода отражений используется распределенное представление виртуальных зарядов и связанное с ним двойное интегрирование. В качестве примера применения метода решаются задачи нахождения распределений электростатического потенциала вокруг проводящей сферы и тела вращения каплевидной формы, расположенных вблизи плоскослоистой структуры из двух диэлектрических пленок на диэлектрическом полупространстве. Решаются аналогичные задачи нахождения распределения температур равномерно нагретых тел, находящихся вблизи теплопроводящей плоскослоистой структуры, состоящих из двух теплопроводящих пленок, расположенных на теплопроводящем полупространстве.

DOI: 10.31857/S0040364424010129

ВВЕДЕНИЕ

Очень часто в технических приложениях возникает необходимость анализа электромагнитных полей и теплообмена в плоскослоистых структурах. В задачах теплопроводности в плоскослоистых средах используется матричный метод [1–4], который, как правило, применяется для решения двумерных задач. Аналогичные матричные методы успешно применяются для задач излучения и распространения электромагнитных волн в плоскослоистых средах [5]. В работах [6–8] предложен оригинальный вариант строгой электромагнитной теории излучения элементарного диполя, расположенного на границе или внутри плоскослоистой структуры, который является развитием работ [9, 10]. В частности, в [6–8] предложен метод аналитического упрощения решения, имеющий потенциально важное общетеоретическое значение. Обобщение данного метода на случай произвольного количества пленок в плоскослоистой структуре [11] позволило привести формулы для излучаемых полей к одномерным интегралам, что существенно упростило анализ задачи и ускорило численные расчеты.

В [12] математические подходы работ [6–8, 11] применены к нахождению трехмерного фундаментального решения электростатики (квазиэлектростатики) в плоскослоистых средах, т.е. к нахождению поля точечного заряда в плоскослоистых средах. На основе полученных результатов предложена формулировка обобщенного метода зеркальных отражений для точечного заряда, расположенного рядом с плоскослоистой структурой, состоящей из одной пленки на полупространстве. Этот результат обобщен в [12] на случай произвольного распределения зарядов вблизи плоскослоистой структуры и произвольного количества пленок. На основе развитого обобщенного метода зеркальных отражений предложен метод решения задачи нахождения электрического поля в окрестности нановершины микроострия, расположенного вблизи плоскослоистой структуры, а также аналогичных задач теплопроводности [13].

В данной работе обобщенный метод отражений модифицирован применительно к важной частной задаче о точечном заряде, расположенном рядом с плоскослоистой средой, которая состоит из двух пленок на диэлектрическом полупространстве. В отличие от работы [13], в данной работе функция, описывающая реакцию плоскослоистой структуры, состоящей из двух пленок, на поле сторонних источников, получена в аналитическом виде. В [13] эта задача была решена численно.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ. ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ ТОЧЕЧНОГО ЗАРЯДА, РАСПОЛОЖЕННОГО В ПЛОСКОСЛОИСТОЙ СТРУКТУРЕ

Рассмотрим задачу нахождения электростатического поля от точечного заряда q, расположенного внутри плоскослоистой структуры. Пусть (для общности) этот заряд расположен внутри одной из пленок плоскослоистой структуры, состоящей из нескольких пленок и из двух окружающих полупространств. Далее задача обобщается на случай, когда заряд расположен на границе пленок или в одном из полупространств.

Пусть общее число пленок равно N_f, толщина m-й пленки d_m и полная толщина слоистой структуры $d_{\text{tot}} = \sum_{m=1}^{N_f} d_m$. Общее число границ пленок $N = N_f + 1$. Пронумеруем области пространства $j = 1, ..., (N+1)$ (на рис. 1 показана для примера задача с $N = 4$ и $N_f = 3$). Предположим, что пленки имеют абсолютные диэлектрические проницаемости ε_j, а перед и за слоистой структурой находятся однородные полупространства с проницаемостями ε_1 и ε_{N+1}. Обозначим z_j координаты N границ пленок по оси Z следующим образом: $z_1 = 0$, $z_j = \sum_{m=1}^{j-1} d_m$ при $j = 2,..., N$.

Уравнения электростатики (или квазиэлектростатики) в области с номером j можно записать через электрический потенциал φ_j в виде:

$$\Delta\varphi_j = -\rho/\varepsilon_j, \tag{1}$$

где Δ – оператор Лапласа, ρ – объемная плотность заряда, ε_j – абсолютная диэлектрическая проницаемость j-й области.

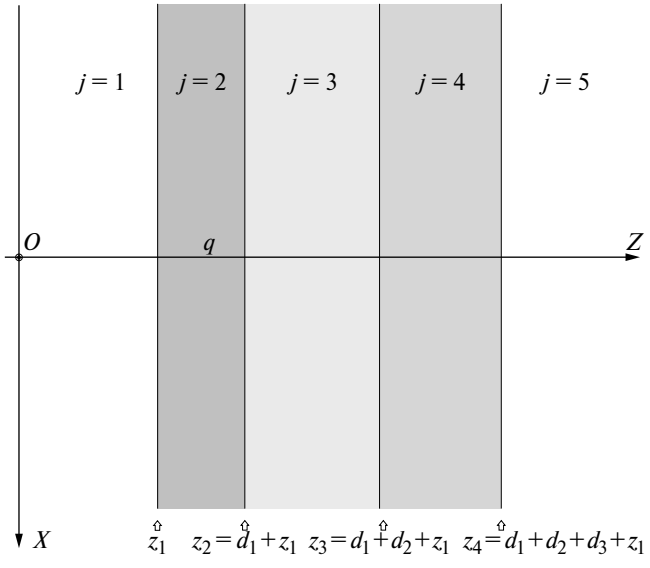

Рис. 1. Геометрия плоскослоистой структуры, состоящей из трех пленок.

Решая уравнения Лапласа в каждой области с учетом граничных условий, найдем электрическое поле во всех областях. Рассмотрим сначала вспомогательную задачу.

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ В СЛОЕ, СВОБОДНОМ ОТ ЗАРЯДОВ

Пусть в области с номером j нет сторонних зарядов между границами z_{j-1} и z_j, диэлектрическая проницаемость среды в этой пленке равна ε_j. Представим электрический потенциал в области в виде фурье-разложения:

$$\varphi_j(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\xi x + i\eta y}\, \tilde{\varphi}_j(\xi,\eta,z)\, d\xi d\eta.$$

Подставим в уравнение потенциал в виде фурье-разложения, тогда в рассматриваемой области можно записать

$$d^2\tilde{\varphi}_j / dz^2 - \gamma^2 \tilde{\varphi}_j = 0, \tag{2}$$

где $\gamma = \sqrt{\xi^2 + \eta^2}$. Уравнение при фиксированных значениях ξ и η есть обыкновенное дифференциальное уравнение относительно переменной z. Общее решение уравнений (2) в области $[z_{j-1}, z_j]$ запишем в виде [12]

$$\varphi_j(x,y,z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_j^{+} e^{-\gamma(z - z_{j-1})} e^{i(\xi x + \eta y)} \times$$
$$\times d\xi d\eta + \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_j^{-} e^{\gamma(z - z_j)} e^{i(\xi x + \eta y)} d\xi d\eta, \tag{3}$$

где $\hat{\varphi}_j^{+}$ и $\hat{\varphi}_j^{-}$ являются функциями только ξ и η. Справа в формуле первое слагаемое представляет поле от источников, находящихся слева от левой границы слоя. При этом поле уменьшается при удалении вправо (при удалении от источников слева от слоя). Второе слагаемое представляет поле от источников, находящихся справа от правой границы слоя (внутри слоя источников нет по условию). Это поле уменьшается при удалении влево (при удалении от источников справа от слоя).

Из (3) находим фурье-образ электрического потенциала и нормальную компоненту индукции электрического поля в границах области j:

$$\left.\begin{pmatrix} \tilde{\varphi}_j \\ \tilde{D}_{j,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_{j-1}} = \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma d_{j-1}} \\ \varepsilon_j\gamma & -\varepsilon_j\gamma e^{-\gamma d_{j-1}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_j^{+} \\ \hat{\varphi}_j^{-} \end{pmatrix},$$

$$\left.\begin{pmatrix} \tilde{\varphi}_j \\ \tilde{D}_{j,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_{j}} = \begin{pmatrix} e^{-\gamma d_{j-1}} & 1 \\ \varepsilon_j\gamma e^{-\gamma d_{j-1}} & -\varepsilon_j\gamma \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_j^{+} \\ \hat{\varphi}_j^{-} \end{pmatrix},$$

где $d_{j-1} = z_j - z_{j-1}$.

Вводя вектор-столбец $\hat{\mathrm{F}}_j = \hat{\mathrm{F}}_j(\xi,\eta) = \left(\hat{\varphi}_j^+;\ \hat{\varphi}_j^-\right)^{\mathrm{T}}$, запишем полученные выражения в матричном виде

$$\left.\begin{pmatrix}\tilde{\varphi}_j\\ \tilde{D}_{j,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_{j-1}} = \mathbf{L}_j \times \hat{\mathrm{F}}_j,\ \left.\begin{pmatrix}\tilde{\varphi}_j\\ \tilde{D}_{j,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_j} = \mathbf{R}_j \times \hat{\mathrm{F}}_j, \quad (4)$$

где матрицы $\mathbf{L}_j$ и $\mathbf{R}_j$ имеют вид

$$\mathbf{L}_j = \begin{pmatrix} 1 & \mathrm{e}^{-\gamma d_{j-1}} \\ \varepsilon_j\gamma & -\varepsilon_j\gamma\mathrm{e}^{-\gamma d_{j-1}}\end{pmatrix},$$

$$\mathbf{R}_j = \begin{pmatrix} \mathrm{e}^{-\gamma d_{j-1}} & 1 \\ \varepsilon_j\gamma\mathrm{e}^{-\gamma d_{j-1}} & -\varepsilon_j\gamma\end{pmatrix}. \quad (5)$$

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ В МНОГОСЛОЙНОЙ СТРУКТУРЕ БЕЗ СТОРОННИХ ЗАРЯДОВ

Исследуем теперь многослойную структуру, внутри которой нет сторонних зарядов. Рассмотрим границу $z = z_j$ между областями с номерами j и $j+1$. Тангенциальные компоненты напряженностей электрического поля $E_{j,x}$, $E_{j+1,x}$, $E_{j,y}$, $E_{j+1,y}$ и нормальные компоненты электрической индукции $D_{j,z} = -\varepsilon_j\left(\partial\varphi_j/\partial z\right)$ и $D_{j+1,z} = -\varepsilon_{j+1}\left(\partial\varphi_{j+1}/\partial z\right)$ непрерывны. Граничные условия для тангенциальных компонент электрического поля можно записать через соответствующие электрические потенциалы φ_j и φ_{j+1}, в результате получаем

$$\varphi_j\big|_{(x,y,z_j)} = \varphi_{j+1}\big|_{(x,y,z_j)},$$

$$-\varepsilon_j\left(\partial\varphi_j/\partial z\right)\big|_{(x,y,z_j)} = -\varepsilon_{j+1}\left(\partial\varphi_{j+1}/\partial z\right)\big|_{(x,y,z_j)},$$

где электрический потенциал φ_{j+1} в области $j+1$ выражается формулой (3), в которой произведена замена индексов $j \to j+1$. Так как уравнения электростатики (квазистатики) – линейные уравнения, то граничные условия должны выполняться для каждого члена фурье-разложения, т.е. граничные условия выполняются для фурье-образов соответствующих величин:

$$\tilde{\varphi}_j\big|_{(\xi,\eta,z_j)} - \tilde{\varphi}_{j+1}\big|_{(\xi,\eta,z_j)} = 0,$$

$$\tilde{D}_{j,z}\big|_{(\xi,\eta,z_j)} - \tilde{D}_{j+1,z}\big|_{(\xi,\eta,z_j)} = 0. \quad (6)$$

Записывая (6) с помощью (4), получаем матричное уравнение на границе $z = z_j$

$$\mathbf{R}_j \times \hat{\mathrm{F}}_j = \mathbf{L}_{j+1} \times \hat{\mathrm{F}}_{j+1}, \quad (7)$$

где матрицы $\mathbf{R}_j$ и $\mathbf{L}_{j+1}$ выражаются формулами (5).

Уравнение (7) можно записать для $j = 2,\ldots,(N-1)$, т.е. для всех границ, исключая первую ($j=1$) и последнюю ($j=N$) границы: z_1, $z_N = d_{\mathrm{tot}} = \sum_{m=1}^{N-1} d_m$.

Общее решение для электрического потенциала в области $j=1$, т.е. в интервале $(-\infty, z_1]$, записывается в виде:

$$\varphi_1(x,y,z) = (2\pi)^{-2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\hat{\varphi}_1^+\mathrm{e}^{-\gamma(z-z_1)} + \hat{\varphi}_1^-\mathrm{e}^{\gamma(z-z_1)}\right)\mathrm{e}^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Тогда на границе $z = z_1$ можно записать

$$\left.\begin{pmatrix}\tilde{\varphi}_1\\ \tilde{D}_{1,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_1} = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_1\gamma & -\varepsilon_1\gamma\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_1^+\\ \hat{\varphi}_1^-\end{pmatrix}.$$

С обозначением $\hat{\mathrm{F}}_1 = \left(\hat{\varphi}_1^+;\ \hat{\varphi}_1^-\right)^{\mathrm{T}}$ граничные условия на границе $z = z_1$ принимают вид

$$\begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_1\gamma & -\varepsilon_1\gamma\end{pmatrix}\times\hat{\mathrm{F}}_1 = \mathbf{L}_2\times\hat{\mathrm{F}}_2. \quad (8)$$

Аналогично общее решение для потенциала в области $j = N+1$ (в интервале $[z_N, +\infty)$) записывается в виде

$$\varphi_{N+1}(x,y,z) = (2\pi)^{-2}\times$$

$$\times\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\hat{\varphi}_{N+1}^+\mathrm{e}^{-\gamma(z-z_N)} + \hat{\varphi}_{N+1}^-\mathrm{e}^{\gamma(z-z_N)}\right)\mathrm{e}^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta$$

и на границе $z = z_N$:

$$\left.\begin{pmatrix}\tilde{\varphi}_{N+1}\\ \tilde{D}_{N+1,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_N} = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_{N+1}\gamma & -\varepsilon_{N+1}\gamma\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_{N+1}^+\\ \hat{\varphi}_{N+1}^-\end{pmatrix},$$

а граничные условия (6) на этой границе $z = z_N$ можно записать в виде

$$\mathrm{R}_N\times\hat{\mathrm{F}}_N = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_{N+1}\gamma & -\varepsilon_{N+1}\gamma\end{pmatrix}\times\hat{\mathrm{F}}_{N+1}. \quad (9)$$

Уравнения (7)–(9) позволяют связать вектор-столбцы $\hat{\mathrm{F}}_1$ и $\hat{\mathrm{F}}_{N+1}$ в первой и последней областях задачи (т.е. в полупространствах вне плоскослоистой структуры) следующим матричным уравнением:

$$\widehat{\mathrm{F}}_1 = \left(\mathbf{T}_1 \times \prod_{m=2}^{N} \mathbf{T}_m \times \mathbf{T}_{N+1}\right) \times \widehat{\mathrm{F}}_{N+1},$$

$$\mathbf{T}_1 = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_1\gamma & -\varepsilon_1\gamma \end{pmatrix}^{-1}, \quad (10)$$

$$\mathbf{T}_m = \mathbf{L}_m \times \left(\mathbf{R}_m\right)^{-1},$$

$$\mathbf{T}_{N+1} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_{N+1}\gamma & -\varepsilon_{N+1}\gamma \end{pmatrix}.$$

Легко показать, что вектор-столбцы в областях с произвольными номерами S и P, где $1 \le S < P \le (N+1)$, связаны формулой

$$\widehat{\mathrm{F}}_S = \left(\prod_{m=S}^{P} T_m\right) \times \widehat{\mathrm{F}}_P. \quad (11)$$

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ В МНОГОСЛОЙНОЙ СТРУКТУРЕ ОТ ТОЧЕЧНОГО ЗАРЯДА, РАСПОЛОЖЕННОГО В ОДНОЙ ИЗ ПЛЕНОК

Исследуем точечный заряд q, расположенный в области с номером s, в точке $(0, 0, z_q)$. Пусть этот заряд определяется распределением плотности $\rho(x,y,z) = q\delta(x)\delta(y)\delta(z - z_q)$, где $\delta(x)$ – дельта-функция Дирака. Тогда фурье-образ этого распределения определяется следующим выражением:

$$\tilde{\rho}(\xi,\eta,z) = q\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \delta(x)\delta(y) \times$$

$$\times \delta(z - z_q)\mathrm{e}^{-i(\xi x+\eta y)}dxdy = q\delta(z - z_q).$$

Пусть этот точечный заряд находится в бесконечно тонком слое $(z_q - \Delta z/2,\ z_q + \Delta z/2)$. Тогда из уравнений электростатики $\mathrm{rot}\mathbf{E} = 0$, $\mathrm{div}\mathbf{D} = \rho$ для фурье-образов полей в пределе при $\Delta z \to 0$ можно записать

$$i\eta\tilde{E}_{s,z} - \frac{\Delta\tilde{E}_{s,y}}{\Delta z} = 0, \quad \frac{\Delta\tilde{E}_{s,x}}{\Delta z} - i\xi\tilde{E}_{s,z} = 0,$$

$$i\xi\tilde{E}_{s,y} - i\eta\tilde{E}_{s,x} = 0;$$

$$i\xi\tilde{D}_{s,x} + i\eta\tilde{D}_{s,y} + \frac{\Delta\tilde{D}_{s,z}}{\Delta z} = q\delta(z - z_q).$$

Из полученных уравнений находим приращения полей в слое:

$$\Delta\tilde{E}_{s,y} = i\eta\tilde{E}_{s,z}\Delta z; \quad \Delta\tilde{E}_{s,x} = i\xi\tilde{E}_{s,z}\Delta z;$$

$$\Delta\tilde{D}_{s,z} = -\left(i\xi\tilde{D}_{s,x} + i\eta\tilde{D}_{s,y}\right)\Delta z + q\delta(z - z_q)\Delta z.$$

Откуда следует, что в пределе при $\Delta z \to 0$ скачки тангенциальных компонент напряженностей электрического поля и нормальной компоненты индукции электрического поля при переходе через бесконечно тонкий слой с зарядом равны $\Delta\tilde{E}_{s,y} \to 0$, $\Delta\tilde{E}_{s,x} \to 0$, $\Delta\tilde{D}_{s,z} \to q$. В матричном виде эти уравнения можно записать через электрический потенциал в эквивалентном виде следующим образом

$$\left.\begin{pmatrix} \tilde{\varphi}_s \\ \tilde{D}_{s,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_q+0} - \left.\begin{pmatrix} \tilde{\varphi}_s \\ \tilde{D}_{s,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_q-0} = \begin{pmatrix} 0 \\ q \end{pmatrix}. \quad (12)$$

Выразим теперь левую часть граничного условия (12) через вектор-столбцы $\widehat{\mathrm{F}}_1$ и $\widehat{\mathrm{F}}_{N+1}$ полупространств снаружи плоскослоистой структуры. Для этого разобьем область с номером s на две области и обозначим их индексами l и r (левая и правая). Введем вектор-столбцы $\widehat{\mathrm{F}}_l$ и $\widehat{\mathrm{F}}_r$ в этих областях. Тогда члены слева от знака равенства в (12) можно выразить как

$$\left.\begin{pmatrix} \tilde{\varphi}_s \\ \tilde{D}_{s,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_d-0} = \mathbf{R}_l \times \widehat{\mathrm{F}}_l \text{ и } \left.\begin{pmatrix} \tilde{\varphi}_s \\ \tilde{D}_{s,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_d+0} = \mathbf{L}_r \times \widehat{\mathrm{F}}_r. \quad (13)$$

Из (7), (11) следует, что

$$\widehat{\mathrm{F}}_1 = \left(\prod_{m=1}^{s-1} \mathbf{T}_m\right) \times \mathbf{L}_l \times \widehat{\mathrm{F}}_l, \quad (14)$$

$$\widehat{\mathrm{F}}_r = \left(\mathbf{R}_r\right)^{-1} \times \left(\prod_{m=s+1}^{N+1} \mathbf{T}_m\right) \times \widehat{\mathrm{F}}_{N+1}, \quad (15)$$

где

$$\mathbf{L}_l = \begin{pmatrix} 1 & \mathrm{e}^{-\gamma(z_q - z_{s-1})} \\ \varepsilon_s\gamma & -\varepsilon_s\gamma\mathrm{e}^{-\gamma(z_q - z_{s-1})} \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{R}_r = \begin{pmatrix} e^{-\gamma(z_s - z_q)} & 1 \\ \varepsilon_s\gamma e^{-\gamma(z_s - z_q)} & -\varepsilon_s\gamma \end{pmatrix}.$$

Подставляя (14), (15) в (13) и затем полученные выражения в (12), получаем

$$\mathbf{H}_R \times \widehat{\mathrm{F}}_{N+1} = \mathbf{H}_L \times \widehat{\mathrm{F}}_1 + \mathbf{V}, \quad (16)$$

где $\mathbf{V} = (0, q)^{\mathrm{T}}$ – вектор-столбец, характеризующий возбуждающее воздействие на плоскослоистую систему точечного заряда; матрицы $\mathbf{H}_R$, $\mathbf{H}_L$ характеризуют отклик на внешнее возбуждение слоистой структуры справа и слева от заряда и выражаются следующим образом:

$$\mathbf{H}_R = \mathbf{T}_R \times \left(\prod_{m=s+1}^{N+1} \mathbf{T}_m\right),$$

$$\mathbf{H}_L = \left(\left(\prod_{m=1}^{s-1} \mathbf{T}_m \right) \times \mathbf{T}_L \right)^{-1},$$

$$\mathbf{T}_L = \mathbf{L}_l \times (\mathbf{R}_l)^{-1}, \ \mathbf{T}_R = \mathbf{L}_r \times (\mathbf{R}_r)^{-1},$$

матрицы $\mathbf{T}_m$ определены (10).

В рассматриваемой задаче точечный заряд (источник полей) находится исключительно внутри плоскослоистой структуры. Поэтому в столбцах $\widehat{\mathrm{F}}_1$ и $\widehat{\mathrm{F}}_{N+1}$ есть только компоненты, определяющие поля, которые убывают при удалении от плоскослоистой структуры.

Чтобы получить оставшиеся, отличные от нуля, компоненты $\widehat{\mathrm{F}}_1$ и $\widehat{\mathrm{F}}_{N+1}$ разобьем матрицы $\mathbf{H}_R$ и $\mathbf{H}_L$ на элементы H_{RA}, H_{RB}, H_{RC}, H_{RD} и H_{LA}, H_{LB}, H_{LC}, H_{LD}, тогда уравнение (16) принимает вид

$$\begin{pmatrix} H_{RA} & H_{RB} \\ H_{RC} & H_{RD} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_{N+1}^{+} \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} H_{LA} & H_{LB} \\ H_{LC} & H_{LD} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 0 \\ \hat{\varphi}_1^{-} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ q \end{pmatrix}.$$

Данное уравнение можно представить следующей системой из двух матричных уравнений: $H_{RA}\hat{\varphi}_{N+1}^{+} = H_{LB}\hat{\varphi}_1^{-}$, $H_{RC}\hat{\varphi}_{N+1}^{+} = H_{LD}\hat{\varphi}_1^{-} + q$. Полученные уравнения можно снова объединить в одно матричное 2×2 уравнение:

$$\begin{pmatrix} -H_{LB} & H_{RA} \\ -H_{LD} & H_{RC} \end{pmatrix} \widehat{\mathrm{F}}_{\mathrm{out}} = \begin{pmatrix} 0 \\ q \end{pmatrix}, \qquad (17)$$

где введен вектор-столбец $\widehat{\mathrm{F}}_{\mathrm{out}} = \left(\hat{\varphi}_1^{-}; \ \hat{\varphi}_{N+1}^{+} \right)^{\mathrm{T}}$. Решая это уравнение, найдем $\hat{\varphi}_1^{-}$ и $\hat{\varphi}_{N+1}^{+}$, а значит, убывающие при удалении от плоскослоистой структуры поля:

$$\hat{\varphi}_1^{-} = qH_{RA} / (H_{RC}H_{LB} - H_{RA}H_{LD}),$$

$$\hat{\varphi}_{N+1}^{+} = H_{LB}q / (H_{RC}H_{LB} - H_{RA}H_{LD}).$$

Убывающее влево поле в полупространстве $j = 1$ находим по формуле

$$\varphi_1(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_1^{-} \mathrm{e}^{\gamma(z-z_1)} \mathrm{e}^{i(\xi x + \eta y)} d\xi d\eta, \qquad (18)$$

а убывающее вправо поле в полупространстве $j = N + 1$ – по формуле

$$\varphi_{N+1}(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_{N+1}^{+} \mathrm{e}^{-\gamma(z-z_N)} \mathrm{e}^{i(\xi x + \eta y)} d\xi d\eta. \qquad (19)$$

Наконец, при необходимости, зная $\widehat{\mathrm{F}}_1$ и $\widehat{\mathrm{F}}_{N+1}$, можно найти вектор-столбцы потенциалов $\widehat{\mathrm{F}}_j$ в любой внутренней области с номером j, так как они однозначно последовательно связаны граничными условиями. После этого электрический потенциал в любой из этих областей может быть найден по формуле (13). Таким образом, поля будут определены во всем пространстве.

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ ОТ ТОЧЕЧНОГО ЗАРЯДА, РАСПОЛОЖЕННОГО НА НЕКОТОРОМ РАССТОЯНИИ ОТ ГРАНИЦЫ ПЛОСКОСЛОИСТОЙ СТРУКТУРЫ, СОСТОЯЩЕЙ ИЗ ДВУХ ПЛЕНОК

Рассмотрим задачу нахождения электрического потенциала от точечного заряда q, расположенного в полупространстве с диэлектрической проницаемостью ε_f (рис. 2). Заряд находится на некотором расстоянии от двух пленок с диэлектрическими проницаемостями ε_{p1} и ε_{p2} и толщинами h_1 и h_2. Пленки нанесены на полупространство с диэлектрической проницаемостью ε_d (рис. 2).

В системе координат (рис. 2) заряд находится в точке с радиус-вектором $\mathbf{r}_q = (0;0;z_q)$ на расстоянии $d = (z_b - z_q)$ вдоль оси Z от первой пленки. Эту задачу можно рассмотреть как задачу нахождения электрического потенциала от точечного заряда, расположенного на поверхности вспомогательной пленки толщиной $d = (z_b - z_q)$, причем диэлектрические постоянные этой вспомогательной пленки и полупространства слева равны ε_f.

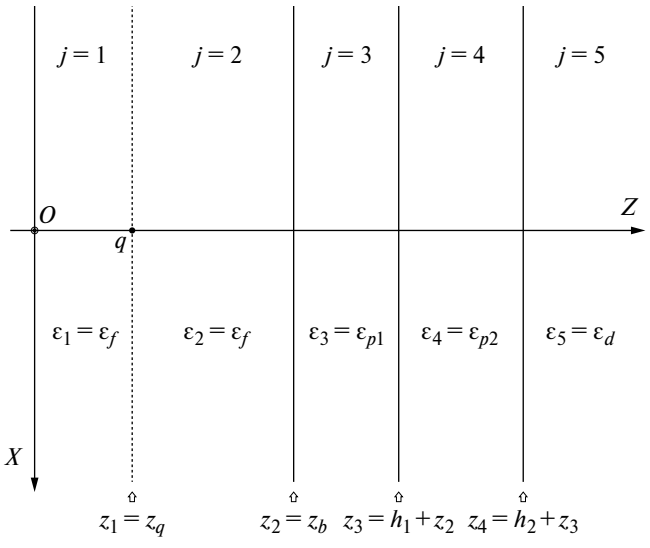

Рис. 2. Точечный заряд q, расположенный в свободном пространстве с диэлектрической проницаемостью ε_f в точке с координатой z_q на расстоянии $(z_b - z_q)$ от пленки толщиной h и диэлектрической проницаемостью ε_p, расположенной на границе полупространства с диэлектрической проницаемостью ε_d.

В такой постановке имеется пять областей. Введем следующую нумерацию областей: индекс $j = 1$ соответствует полупространству с ε_f, $j = 2$ – вспомогательной пленке с $\varepsilon_2 = \varepsilon_f$ и толщиной d, $j = 3$ – реальной пленке с $\varepsilon_3 = \varepsilon_{p1}$ толщиной h_1, $j = 4$ – реальной пленке с $\varepsilon_4 = \varepsilon_{p2}$ толщиной h_2, $j = 5$ соответствует полупространству с $\varepsilon_5 = \varepsilon_d$ (рис. 2).

Тогда

$$N = 4,\ z_1 = z_q,\ z_2 = z_b,\ z_3 = h_1 + z_2,$$
$$z_4 = h_2 + z_3,\ \mathbf{H}_R = \mathbf{T}_2 \times \mathbf{T}_3 \times \mathbf{T}_4 \times \mathbf{T}_5,\ \mathbf{H}_L = (\mathbf{T}_1)^{-1}$$

и уравнение (16) принимает вид

$$(\mathbf{T}_2 \times \mathbf{T}_3 \times \mathbf{T}_4 \times \mathbf{T}_5) \times \hat{\mathrm{F}}_5 = (\mathbf{T}_1)^{-1} \times \hat{\mathrm{F}}_1 + \mathbf{V},$$

где матрицы выражаются следующими формулами:

$$\mathbf{T}_1 = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix}^{-1},\ \mathbf{T}_5 = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_d\gamma & -\varepsilon_d\gamma \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{T}_2 = \mathbf{L}_2 \times (\mathbf{R}_2)^{-1} =$$
$$= \begin{pmatrix} 1 & \mathrm{e}^{-\gamma d} \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma\mathrm{e}^{-\gamma d} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \mathrm{e}^{-\gamma d} & 1 \\ \varepsilon_f\gamma\mathrm{e}^{-\gamma d} & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix}^{-1},$$

$$\mathbf{T}_3 = \mathbf{L}_3 \times (\mathbf{R}_3)^{-1} =$$
$$= \begin{pmatrix} 1 & \mathrm{e}^{-\gamma h_1} \\ \varepsilon_{p1}\gamma & -\varepsilon_{p1}\gamma\mathrm{e}^{-\gamma h_1} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \mathrm{e}^{-\gamma h_1} & 1 \\ \varepsilon_{p1}\gamma\mathrm{e}^{-\gamma h_1} & -\varepsilon_{p1}\gamma \end{pmatrix}^{-1},$$

$$\mathbf{T}_4 = \mathbf{L}_4 \times (\mathbf{R}_4)^{-1} =$$
$$= \begin{pmatrix} 1 & \mathrm{e}^{-\gamma h_2} \\ \varepsilon_{p2}\gamma & -\varepsilon_{p2}\gamma\mathrm{e}^{-\gamma h_2} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \mathrm{e}^{-\gamma h_2} & 1 \\ \varepsilon_{p2}\gamma\mathrm{e}^{-\gamma h_2} & -\varepsilon_{p2}\gamma \end{pmatrix}^{-1},$$

а вектор-столбец точечного заряда равен $\mathbf{V} = (0, q)^{\mathrm{T}}$.

В таком случае

$$\mathbf{H}_L = (\mathbf{T}_1)^{-1} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{H}_R = \begin{pmatrix} 1 & \mathrm{e}^{-\gamma d} \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma\mathrm{e}^{-\gamma d} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \mathrm{e}^{-\gamma d} & 1 \\ \varepsilon_f\gamma\mathrm{e}^{-\gamma d} & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix}^{-1} \times$$
$$\times \begin{pmatrix} 1 & \mathrm{e}^{-\gamma h_1} \\ \varepsilon_{p1}\gamma & -\varepsilon_{p1}\gamma e^{-\gamma h_1} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \mathrm{e}^{-\gamma h_1} & 1 \\ \varepsilon_{p1}\gamma e^{-\gamma h_1} & -\varepsilon_{p1}\gamma \end{pmatrix}^{-1} \times$$
$$\times \begin{pmatrix} 1 & \mathrm{e}^{-\gamma h_2} \\ \varepsilon_{p2}\gamma & -\varepsilon_{p2}\gamma e^{-\gamma h_2} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \mathrm{e}^{-\gamma h_2} & 1 \\ \varepsilon_{p2}\gamma\mathrm{e}^{-\gamma h_2} & -\varepsilon_{p2}\gamma \end{pmatrix}^{-1} \times$$
$$\times \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_d\gamma & -\varepsilon_d\gamma \end{pmatrix}.$$

Если вектор-столбец $\hat{\mathrm{F}}_{\mathrm{out}} = \left(\hat{\varphi}_1^-;\ \hat{\varphi}_5^+\right)^{\mathrm{T}}$, уравнение (17) для данной задачи имеет вид

$$\begin{pmatrix} -1 & H_{RA} \\ \varepsilon_f\gamma & H_{RC} \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \hat{\varphi}_1^- \\ \hat{\varphi}_5^+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ q \end{pmatrix}.$$

Отсюда следует, что

$$\hat{\varphi}_1^- = qH_{RA}/(H_{RC} + \varepsilon_f\gamma H_{RA}),$$
$$\hat{\varphi}_5^+ = q/(H_{RC} + \varepsilon_f\gamma H_{RA}). \tag{20}$$

В явном виде, можно выразить H_{RA} и H_{RC} через гиперболические синусы и косинусы

$$H_{RA} = \left[\left(\mathrm{ch}(\gamma d) + \frac{\varepsilon_d}{\varepsilon_f}\mathrm{sh}(\gamma d)\right)\mathrm{ch}(\gamma h_1) + \left(\frac{\varepsilon_{p1}}{\varepsilon_f}\mathrm{sh}(\gamma d) + \frac{\varepsilon_d}{\varepsilon_{p1}}\mathrm{ch}(\gamma d)\right)\mathrm{sh}(\gamma h_1)\right]\mathrm{ch}(\gamma h_2) +$$
$$+\left[\left(\frac{\varepsilon_{p2}}{\varepsilon_f}\mathrm{sh}(\gamma d) + \frac{\varepsilon_d}{\varepsilon_{p2}}\mathrm{ch}(\gamma d)\right)\mathrm{ch}(\gamma h_1) + \left(\frac{\varepsilon_{p2}}{\varepsilon_{p1}}\mathrm{ch}(\gamma d) + \frac{\varepsilon_{p1}\varepsilon_d}{\varepsilon_{p2}\varepsilon_f}\mathrm{sh}(\gamma d)\right)\mathrm{sh}(\gamma h_1)\right]\mathrm{sh}(\gamma h_2), \tag{21}$$

$$H_{RC} = \gamma\left[\left(\varepsilon_f\mathrm{sh}(\gamma d) + \varepsilon_d\mathrm{ch}(\gamma d)\right)\mathrm{ch}(\gamma h_1) + \left(\varepsilon_{p1}\mathrm{ch}(\gamma d) + \frac{\varepsilon_f\varepsilon_d}{\varepsilon_{p1}}\mathrm{sh}(\gamma d)\right)\mathrm{sh}(\gamma h_1)\right]\mathrm{ch}(\gamma h_2) +$$
$$+\gamma\left[\left(\varepsilon_{p2}\mathrm{ch}(\gamma d) + \frac{\varepsilon_f\varepsilon_d}{\varepsilon_{p2}}\mathrm{sh}(\gamma d)\right)\mathrm{ch}(\gamma h_1) + \left(\frac{\varepsilon_f\varepsilon_{p2}}{\varepsilon_{p1}}\mathrm{sh}(\gamma d) + \frac{\varepsilon_{p1}\varepsilon_d}{\varepsilon_{p2}}\mathrm{ch}(\gamma d)\right)\mathrm{sh}(\gamma h_1)\right]\mathrm{sh}(\gamma h_2). \tag{22}$$

Найдем потенциал φ_1 в полупространстве ($j = 1$) при $z \leqslant z_q$. Подставляя выражения (21), (22) для H_{RA} и H_{RC} в (20), после несложных преобразований получаем

$$\hat{\varphi}_1^- = \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f} + \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{-2\gamma(z_b - z_q)}\Re(\gamma, h),$$

где

$$\Re(\gamma)=\frac{\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}}{\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}}+\chi(\gamma),$$

$$\chi(\gamma)=\frac{4\varepsilon_f\varepsilon_{p1}e^{-2\gamma h_1}}{\left(\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}\right)^2}\times$$

$$\times\frac{\left(a_1+a_2e^{-2\gamma h_2}\right)}{\left(1+b_1e^{-2\gamma h_1}+b_2e^{-2\gamma h_2}+b_3e^{-2\gamma(h_1+h_2)}\right)}, \quad (23)$$

$$a_1=\frac{\left(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}\right)}{\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_{p1}\right)},\ \ a_2=\frac{\left(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d\right)}{\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d\right)},$$

$$b_1=\frac{\left(\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}\right)\left(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}\right)}{\left(\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}\right)\left(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}\right)},$$

$$b_2=\frac{\left(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d\right)}{\left(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d\right)},$$

$$b_3=\frac{\left(\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}\right)\left(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d\right)}{\left(\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}\right)\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d\right)}.$$

Аналогично для $\hat{\varphi}_5^+$ получаем

$$\hat{\varphi}_5^+=\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{-\gamma\left(z_b-z_q\right)}\vartheta(\gamma), \quad (24)$$

где $\vartheta(\gamma)=\dfrac{8\varepsilon_f\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}}{\left(\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}\right)\left(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d\right)}\times$

$$\times\frac{e^{-\gamma(h_1+h_2)}}{\left(1+b_1e^{-2\gamma h_1}+b_2e^{-2\gamma h_2}+b_3e^{-2\gamma(h_1+h_2)}\right)}. \quad (25)$$

Из выражения для потенциала (18) получаем

$$\varphi_1(x,y,z)=\frac{1}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{\gamma\left(z-z_q\right)}+\right.$$

$$\left.+\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{\gamma\left(z-\left(2z_b-z_q\right)\right)}\Re(\gamma,h)\right)e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta. \quad (26)$$

Воспользуемся математическим тождеством

$$\frac{q}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{e^{-\sqrt{\xi^2+\eta^2}\left|z-z_q\right|}}{2\varepsilon_f\sqrt{\xi^2+\eta^2}}e^{i\left(\xi\left(x-x_q\right)+\eta\left(y-y_q\right)\right)}d\xi d\eta=$$

$$=\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{\left(x-x_q\right)^2+\left(y-y_q\right)^2+\left(z-z_q\right)^2}}. \quad (27)$$

Тогда (26) можно переписать в виде

$$\varphi_1(x,y,z)=\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+\left(z-z_q\right)^2}}+\frac{\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}}{\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}}\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+\left(z-\left(2z_b-z_q\right)\right)^2}}+$$

$$+\frac{q}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\chi(\gamma)e^{\gamma\left(z-\left(2z_b-z_q\right)\right)}}{2\gamma\varepsilon_f}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta. \quad (28)$$

Потенциал φ_5 в полупространстве ($j=5$) при $z\geqslant h_1+h_2+z_b$ получим, подставляя (24) в (19):

$$\varphi_5(x,y,z)=\frac{1}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{-\gamma\left(z_b-z_q\right)}\vartheta(\gamma)\times$$

$$\times e^{-\gamma\left(z-\left(z_b+h_1+h_2\right)\right)}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta=$$

$$=\frac{1}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}\vartheta(\gamma)\times$$

$$\times e^{-\gamma\left(z-\left(z_q+h_1+h_2\right)\right)}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Найдем потенциал φ_4 при $(h_1+z_b)\leqslant z\leqslant(h_1+h_2+z_b)$, т.е. в слое $j=4$ (в пленке). Для этого запишем граничные условия (7) на граничной плоскости $z=z_4=h_1+h_2+z_b$:

$$\begin{pmatrix}e^{-\gamma h_2} & 1\\ \varepsilon_{p2}\gamma e^{-\gamma h_2} & -\varepsilon_{p2}\gamma\end{pmatrix}\times\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_4^+\\ \hat{\varphi}_4^-\end{pmatrix}=\begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_d\gamma & -\varepsilon_d\gamma\end{pmatrix}\times\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_5^+\\ 0\end{pmatrix}.$$

Решая это уравнение с учетом (24), получаем

$$\hat{\varphi}_4^+=\frac{\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}}e^{\gamma h_2}\hat{\varphi}_5^+=$$

$$=\frac{\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}}\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{-\gamma\left(z_b-z_q-h_2\right)}\vartheta(\gamma),$$

$$\hat{\varphi}_4^-=\frac{\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}}\hat{\varphi}_5^+=\frac{\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}}\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{-\gamma\left(z_b-z_q\right)}\vartheta(\gamma).$$

Полный потенциал поля внутри слоя $j = 4$ выражается из (3) формулой

$$\varphi_4(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \left(\hat{\varphi}_4^{+} e^{-\gamma(z-(z_b+h_1))} + \hat{\varphi}_4^{-} e^{\gamma(z-(z_b+h_1+h_2))} \right) e^{i(\xi x+\eta y)} d\xi d\eta.$$

Подставляя полученные выражения для $\hat{\varphi}_4^{+}$ и $\hat{\varphi}_4^{-}$, получаем

$$\varphi_4(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \times \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}} e^{-\gamma\left(z-\left(z_q+h_1+h_2\right)\right)} + \frac{\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}} \times e^{\gamma\left(z-\left(2z_b-z_q+h_1+h_2\right)\right)} \right) \times \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f} \vartheta(\gamma) e^{i(\xi x+\eta y)} d\xi d\eta.$$

Найдем теперь потенциал при $z_b \leqslant z \leqslant z_b + h_1$, т.е. в слое $j = 3$. Граничные условия (7) на плоскости $z = z_3 = z_b + h_1$ можно записать в виде

$$\begin{pmatrix} e^{-\gamma h_1} & 1 \\ \varepsilon_{p1}\gamma e^{-\gamma h_1} & -\varepsilon_{p1}\gamma \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_3^{+} \\ \hat{\varphi}_3^{-} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma h_2} \\ \varepsilon_{p2}\gamma & -\varepsilon_{p2}\gamma e^{-\gamma h_2} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_4^{+} \\ \hat{\varphi}_4^{-} \end{pmatrix}.$$

Тогда после несложных вычислений получаем

$$\hat{\varphi}_3^{+} = \frac{\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}}{2\varepsilon_{p1}} e^{\gamma h_1} \hat{\varphi}_4^{+} + \frac{\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}}{2\varepsilon_{p1}} e^{\gamma(h_1-h_2)} \hat{\varphi}_4^{-} = \frac{\left(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d\right)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \times \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f} e^{-\gamma\left(z_b-z_q-h_1-h_2\right)} \vartheta(\gamma) + \frac{\left(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d\right)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f} e^{-\gamma\left(z_b-z_q-h_1+h_2\right)} \vartheta(\gamma),$$

$$\hat{\varphi}_3^{-} = \frac{\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}}{2\varepsilon_{p1}} \hat{\varphi}_4^{+} + \frac{\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}}{2\varepsilon_{p1}} e^{-\gamma h_2} \hat{\varphi}_4^{-} = \frac{\left(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d\right)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f} e^{-\gamma\left(z_b-z_q-h_2\right)} \vartheta(\gamma) + \frac{\left(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d\right)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f} e^{-\gamma\left(z_b-z_q+h_2\right)} \vartheta(\gamma).$$

Полный потенциал поля внутри слоя $j = 3$ выражается формулой :

$$\varphi_3(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \left(\hat{\varphi}_3^{+} e^{-\gamma(z-z_b)} + \hat{\varphi}_3^{-} e^{\gamma(z-(z_b+h_1))} \right) e^{i(\xi x+\eta y)} d\xi d\eta.$$

Подставляя сюда полученные выражения для $\hat{\varphi}_3^{+}$ и $\hat{\varphi}_3^{-}$, получаем

$$\varphi_3(x,y,z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \left\{ \frac{\left(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d\right)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} e^{-\gamma\left(z-z_q-h_1-h_2\right)} + \frac{\left(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d\right)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} e^{-\gamma\left(z-z_q-h_1+h_2\right)} + \frac{\left(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d\right)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} e^{\gamma\left(z-\left(2z_b-z_q+h_1-h_2\right)\right)} + \frac{\left(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2}\right)\left(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d\right)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} e^{\gamma\left(z-\left(2z_b-z_q+h_1+h_2\right)\right)} \right\} \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f} \vartheta(\gamma) e^{i(\xi x+\eta y)} d\xi d\eta.$$

Выражения для $\hat{\varphi}_2^{+}$ и $\hat{\varphi}_2^{-}$ можно также получить из $\hat{\varphi}_1^{-}$ и граничного условия на плоскости $z = z_1 = z_q$ при учете наличия на границе заряда (см. (12)):

$$\begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma\left(z_b-z_q\right)} \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma e^{-\gamma\left(z_b-z_q\right)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_2^{+} \\ \hat{\varphi}_2^{-} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 0 \\ \hat{\varphi}_1^{-} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ q \end{pmatrix}.$$

Отсюда

$$\hat{\varphi}_2^{+} = \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}, \qquad (29)$$

$$\hat{\varphi}_2^- = \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{-\gamma(z_b-z_q)}\Re(\gamma) = \\ = \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}}{\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}}\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{-\gamma(z_b-z_q)} + \chi(\gamma)\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{-\gamma(z_b-z_q)}. \quad (30)$$

Полный потенциал поля внутри слоя $j=2$ выражается формулой (3):

$$\varphi_2(x,y,z) = (2\pi)^{-2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\hat{\varphi}_2^+\mathrm{e}^{-\gamma(z-z_q)} + \right. \\ \left. + \hat{\varphi}_2^-\mathrm{e}^{\gamma(z-z_b)}\right)\mathrm{e}^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Подставляя в последнее уравнение выражения (29), (30), получаем

$$\varphi_2(x,y,z) = \frac{1}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{q\mathrm{e}^{-\gamma(z-z_q)}}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta + \\ + \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}}{\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}}\frac{1}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{q\mathrm{e}^{\gamma(z-(2z_b-z_q))}}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta + \\ + \frac{1}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\chi(\gamma)\frac{q\mathrm{e}^{\gamma(z-(2z_b-z_q))}}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Подставляя сюда выражение (23) для $\chi(\gamma)$ и используя тождество (27), имеем

$$\varphi_2(x,y,z) = q\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-z_q)^2} + \\ + \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}}{\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}}q\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-(2z_b-z_q))^2} + \quad (31) \\ + \frac{q}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\chi(\gamma)\frac{\mathrm{e}^{\gamma(z-(2z_b-z_q))}}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Заметим, что правая часть (31) полностью совпадает с (28), поэтому $\varphi_1(x,y,z) = \varphi_2(x,y,z)$.

Для нахождения φ_{ind} – потенциала индуцированных в рассматриваемой плоскослоистой структуре зарядов – надо в области $z < z_b$ вычесть из полного потенциала в этой области потенциал исходного заряда. Тогда, обозначая $z_{\mathrm{ref}} = 2z_b - z_q$, получаем из (28), (31) выражение

$$\varphi_{\mathrm{ind}}(x,y,z) = \\ = \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}}{\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}}\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-(2z_b-z_q))^2}} + \quad (32) \\ + \frac{q}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\chi(\gamma)\frac{\mathrm{e}^{\gamma(z-(2z_b-z_q))}}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Отметим, что из (23) сразу следует $\lim\limits_{h_1\to\infty}\chi(\gamma) = 0$, поэтому интеграл в (32) исчезает и остается только первый член, который представляет потенциал индуцированных зарядов в методе зеркальных отражений для точечного заряда у границы двух диэлектрических полупространств с проницаемостями ε_f и ε_{p1} [14].

ОБОБЩЕНИЕ МЕТОДА ЗЕРКАЛЬНЫХ ОТРАЖЕНИЙ НА СЛУЧАЙ ТОЧЕЧНОГО ЗАРЯДА, РАСПОЛОЖЕННОГО ВБЛИЗИ ПЛОСКОСЛОИСТОЙ СРЕДЫ, СОСТОЯЩЕЙ ИЗ ДВУХ ПЛЕНОК

Продолжая рассмотрение задачи с двумя пленками, можно найти другую форму записи для потенциала $\varphi_{\mathrm{ind}}(x,y,z)$, индуцированного точечным зарядом q, расположенным в точке $\mathbf{r}_q = (0;0;z_q)$. Введем функцию

$$U(x,y,z) = q\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+z^2}, \quad (33)$$

которая является потенциалом точечного заряда q, расположенного в начале координат в пространстве с диэлектрической проницаемостью ε_f.

Введем функцию $\mathfrak{h}(u,v)$ обратного преобразования Фурье функции $\chi(\gamma)$ по переменным ξ и η:

$$\mathfrak{h}(u,v) = \\ = (2\pi)^{-2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\chi\left(\sqrt{\xi^2+\eta^2}\right)\mathrm{e}^{i(\xi u+\eta v)}d\xi d\eta. \quad (34)$$

Применяя теорему о свертке ко второму слагаемому в (32), можно записать

$$\varphi_{\mathrm{ind}}(x,y,z) = \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_{p1}}{\varepsilon_f+\varepsilon_{p1}}\times \\ \times\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-z_{\mathrm{ref}})^2}} + \quad (35) \\ + \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{h}(u,v)U(x-u,y-v,z-z_{\mathrm{ref}})dudv.$$

При численном нахождении φ_{ind} по формуле (35) можно устранить четырехкратное интегрирование. Это можно сделать, приводя двойное интегрирование в (34) к однократному интегрированию с помощью перехода к полярным координатам в координатных плоскостях (u,v) и (ξ,η) по формулам $u = \sigma\cos\psi$, $v = \sigma\sin\psi$ и $\xi = \lambda\cos\theta$, $\eta = \lambda\sin\theta$ и используя тождество

$$\int_0^{2\pi}\mathrm{e}^{i\sigma\lambda\cos(\psi-\theta)}d\theta = 2\pi J_0(\sigma\lambda).$$

Так получаем

$$\mathfrak{h}(\sigma) = \frac{1}{(2\pi)^2}\int_0^{+\infty}\int_0^{2\pi}\chi(\lambda)e^{i\lambda\sigma\cos(\psi-\theta)}d\theta d\lambda = \frac{1}{2\pi}\int_0^{+\infty} J_0(\sigma\lambda)\chi(\lambda)\lambda d\lambda,$$

или

$$\mathfrak{h}(u,v) = \mathfrak{h}\left(\sqrt{u^2+v^2}\right) = \frac{1}{2\pi}\int_0^{+\infty} J_0\left(\lambda\sqrt{u^2+v^2}\right)\chi(\lambda)\lambda d\lambda. \quad (36)$$

Функция $\mathfrak{h}(\sigma)$ является плавной, ее можно приблизить сплайнами и при численном интегрировании в (35) использовать эту функцию в виде сплайн-аппроксимации. Формула (35) определяет потенциал, индуцированный в слоистой структуре под действием точечного заряда q, расположенного в точке $\mathbf{r}_q = (0;0;z_q)$.

Формулу (35) нетрудно обобщить на случай точечного заряда q, расположенного в произвольной точке $\mathbf{r}_q = (x_q;y_q;z_q)$. Так, полный потенциал $\varphi_1 = \varphi_2$ в полупространстве $j=1$ и области $j=2$ можно записать в виде

$$\varphi_1(x,y,z) = \varphi_2(x,y,z) = \frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{(x-x_q)^2+(y-y_q)^2+(z-z_q)^2}} + \frac{(\varepsilon_f-\varepsilon_{p1})}{(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_f)}\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{(x-x_q)^2+(y-y_q)^2+(z-z_{\text{ref}})^2}} + \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{h}(u,v)U(x-x_q-u,y-y_q-v,z-z_{\text{ref}})dudv, \quad (37)$$

причем важно, что универсальная функция $\mathfrak{h}(u,v)$ не зависит от величины и положения заряда, а зависит от диэлектрических проницаемостей всех областей задачи и толщин всех пленок (от параметров плоскослоистой структуры).

Полученная формула дает обобщение метода зеркальных отражений в электростатике на случай, когда точечный заряд q расположен в одном полупространстве рядом с плоскослоистой структурой из двух пленок, расположенных на границе другого полупространства. Выражение (37) имеет простой физический смысл. Первый член в (37) – это потенциал исходного точечного заряда q (источника поля), второй член – это потенциал виртуального заряда величиной $q(\varepsilon_f-\varepsilon_{p1})/(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_f)$, расположенного зеркально относительно границы ближайшей пленки $z=z_b$, а третий член – это потенциал виртуальных зарядов, распределенных по плоскости $z=z_{\text{ref}}$ с плотностью $q\mathfrak{h}$, распределенных по области размером порядка суммы толщин пленок. Последний член в (37) весьма быстро убывает с ростом толщины плоскослоистой структуры (при $(h_1+h_2)\to\infty$).

Из вывода формулы (37) видно, что для случая плоскослоистой структуры, состоящей из произвольного числа пленок, можно получить подобную формулу, но с другим распределением поверхностного заряда $q\mathfrak{h}$, которое будет зависеть от всех толщин всех пленок и их диэлектрических проницаемостей, а также от параметров полупространств. Следуя предложенным выше рассуждениям, можно численно или аналитически найти

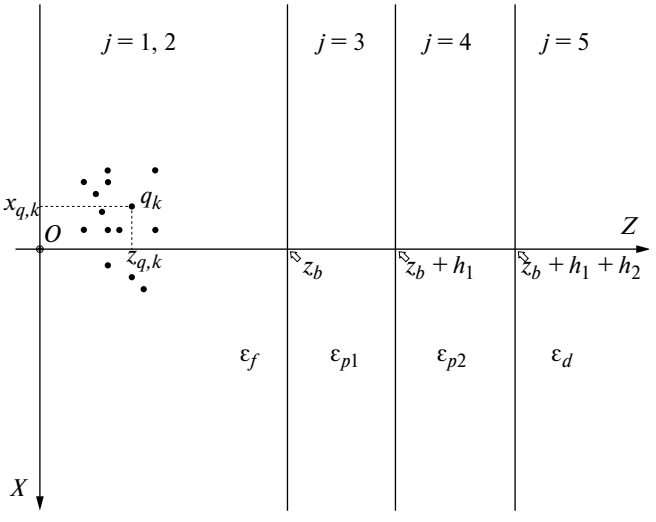

Рис. 3. Система точечных зарядов q_k у пленки, расположенной на границе полупространства.

функцию $\mathfrak{h}(u,v)$ для многопленочной структуры и использовать ее при интегрировании в (37).

Аналогично введем функцию $\mathfrak{t}(u,v)$ – функцию обратного преобразования Фурье $\vartheta(\gamma)$ по переменным ξ и η:

$$\mathfrak{t}(u,v)=\frac{1}{(2\pi)^2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\vartheta\left(\sqrt{\xi^2+\eta^2}\right)\times \tag{38}$$

$$\times e^{i(\xi u+\eta v)}d\xi d\eta=\frac{1}{2\pi}\int\limits_{0}^{+\infty}J_0\left(\lambda\sqrt{u^2+v^2}\right)\vartheta(\lambda)\lambda d\lambda.$$

Для дальнейших обобщений нетрудно получить формулы вида (37) для потенциала поля точечного заряда q, расположенного в произвольной точке $\mathbf{r}_q=(x_q;y_q;z_q)$ в областях первой пленки ($j=3$), второй пленки ($j=4$) и в полупространстве за пленкой ($j=5$). Приведем результат вычислений, используя функции $\mathfrak{h}(u,v)$, $\mathfrak{t}(u,v)$ и $U(x,y,z)$, определяющиеся (23), (25), (36), (38) и (33):

$$\varphi_3(x,y,z)=\frac{(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}}\times$$

$$\times\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{t}(u,v)U\left(x-x_q-u,y-y_q-v,z-\left(z_q+h_1+h_2\right)\right)dudv+\frac{(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}}\times$$

$$\times\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{t}(u,v)U\left(x-x_q-u,y-y_q-v,z-\left(z_q+h_1-h_2\right)\right)dudv+\frac{(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}}\times \tag{39}$$

$$\times\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{t}(u,v)U\left(x-x_q-u,y-y_q-v,z-\left(2z_b-z_q+h_1-h_2\right)\right)dudv+\frac{(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}}\times$$

$$\times\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{t}(u,v)U\left(x-x_q-u,y-y_q-v,z-\left(2z_b-z_q+h_1+h_2\right)\right)dudv,$$

$$\varphi_4(x,y,z)=\frac{\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{t}(u,v)\times$$

$$\times U\left(x-x_q-u,y-y_q-\right.$$

$$\left.-v,z-\left(z_q+h_1+h_2\right)\right)dudv+$$

$$+\frac{\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{t}(u,v)\times \tag{40}$$

$$\times U\left(x-x_q-u,y-y_q-\right.$$

$$\left.-v,z-\left(2z_b-z_q+h_1+h_2\right)\right)dudv,$$

$$\varphi_5(x,y,z)=\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\mathfrak{t}(u,v)\times$$

$$\times U\left(x-x_q-u,y-y_q-v,z-\right. \tag{41}$$

$$\left.-\left(z_q+h_1+h_2\right)\right)dudv.$$

ОБОБЩЕНИЕ МЕТОДА ЗЕРКАЛЬНЫХ ОТРАЖЕНИЙ НА СЛУЧАЙ СИСТЕМЫ ЗАРЯДОВ

Обобщим теперь полученный метод зеркальных отражений на потенциал полного поля $\Phi_{\text{tot}}(x,y,z)$ в области $z<z_b$ перед плоскослоистой структурой, состоящей из двух пленок (рис. 3), произвольной компактной системы N_q зарядов-источников q_k, расположенных в точках с радиус-векторами $\mathbf{r}_{q,k}=(x_{q,k};y_{q,k};z_{q,k})$, $k=1,2,\ldots,N_q$.

Если бы не было плоскослоистой структуры, то потенциал этой системы зарядов-источников представлялся бы формулой

$$\Phi_s(x,y,z)=\sum_{k=1}^{N_q}q_k\Big/$$

$$\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{\left(x-x_{q,k}\right)^2+\left(y-y_{q,k}\right)^2+\left(z-z_{q,k}\right)^2}.$$

Суммируя выражения (37) для каждого заряда q_k по всем N_q зарядам системы и принимая во внимание, что

$$\sum_{k=1}^{N_q}q_k\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{\left(x-x_{q,k}\right)^2+\left(y-y_{q,k}\right)^2+\left(z-\left(2z_b-z_{q,k}\right)\right)^2}=$$

$$=\sum_{k=1}^{N_q}q_k\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{\left(x-x_{q,k}\right)^2+\left(y-y_{q,k}\right)^2+\left(\left(2z_b-z\right)-z_{q,k}\right)^2}=\Phi_s(x,y,2z_b-z),$$

получаем обобщение метода зеркальных отражений в электростатике для произвольных распределений зарядов для полного потенциала системы зарядов в полупространстве перед плоскослоистой структурой из двух пленок в виде

$$\Phi_{\text{tot}}(x,y,z) = \Phi_s(x,y,z) + \frac{(\varepsilon_f - \varepsilon_{p1})}{(\varepsilon_{p1} + \varepsilon_f)}\Phi_s(x,y,2z_b - z) + \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{h}(u,v)\Phi_s(x-u,y-v,2z_b - z)\,du\,dv. \quad (42)$$

Из вывода формулы (42) следует, что потенциал индуцированных зарядов Φ_{ind}, который порождается потенциалом Φ_s распределений зарядов-источников поля, представляется формулой

$$\Phi_{\text{ind}}(x,y,z) = \frac{(\varepsilon_f - \varepsilon_{p1})}{(\varepsilon_{p1} + \varepsilon_f)}\Phi_s(x,y,2z_b - z) + \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{h}(u,v)\Phi_s(x-u,y-v,2z_b - z)\,du\,dv. \quad (43)$$

Аналогично учитывая, что

$$\sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f \sqrt{(x-x_{q,k})^2 + (y-y_{q,k})^2 + (z-(z_{q,k}+h_1+h_2))^2} =$$

$$= \sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f \sqrt{(x-x_{q,k})^2 + (y-y_{q,k})^2 + ((z-h_1-h_2)-z_{q,k})^2} = \Phi_s(x,y,z-h_1-h_2),$$

$$\sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f \sqrt{(x-x_{q,k})^2 + (y-y_{q,k})^2 + (z-(z_{q,k}+h_1-h_2))^2} =$$

$$= \sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f \sqrt{(x-x_{q,k})^2 + (y-y_{q,k})^2 + ((z-h_1+h_2)-z_{q,k})^2} = \Phi_s(x,y,z-h_1+h_2),$$

$$\sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f \sqrt{(x-x_{q,k})^2 + (y-y_{q,k})^2 + (z-(2z_b - z_{q,k}+h_1-h_2))^2} =$$

$$= \sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f \sqrt{(x-x_{q,k})^2 + (y-y_{q,k})^2 + (z-(2z_b+h_1-h_2)+z_{q,k})^2} =$$

$$= \Phi_s(x,y,2z_b+h_1-h_2-z),$$

$$\sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f \sqrt{(x-x_{q,k})^2 + (y-y_{q,k})^2 + (z-(2z_b - z_{q,k}+h_1+h_2))^2} =$$

$$= \sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f \sqrt{(x-x_{q,k})^2 + (y-y_{q,k})^2 + (z-(2z_b+h_1+h_2)+z_{q,k})^2} =$$

$$= \Phi_s(x,y,2z_b+h_1+h_2-z),$$

$$\Phi_3(x,y,z) = \frac{(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{t}(u,v)\Phi_s(x-u,y-v,z-h_1-h_2)\,du\,dv +$$

$$+ \frac{(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{t}(u,v)\Phi_s(x-u,y-v,z-h_1+h_2)\,du\,dv +$$

$$+ \frac{(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{t}(u,v)\Phi_s(x-u,y-v,2z_b+h_1-h_2-z)\,du\,dv + \quad (44)$$

$$+ \frac{(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{t}(u,v)\Phi_s(x-u,y-v,2z_b+h_1+h_2-z)\,du\,dv.$$

получаем с учетом (39) выражение для потенциала Φ_3 системы зарядов в первой пленке при $z_b \leqslant z \leqslant (z_b + h_1)$.

Точно так же с учетом (40) потенциал Φ_4 полного поля системы зарядов во второй пленке при $(z_b + h_1) \leqslant z \leqslant (z_b + h_1 + h_2)$ ($j = 4$) равен

$$\Phi_4(x,y,z) = \frac{\varepsilon_{p2} + \varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(u,v) \times \Phi_s(x-u, y-v, z-h_1-h_2)\,du\,dv + \frac{\varepsilon_{p2} - \varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(u,v) \times \Phi_s(x-u, y-v, 2z_b + h_1 + h_2 - z)\,du\,dv. \quad (45)$$

Аналогично, с учетом (41) потенциал Φ_5 полного поля системы зарядов в полупространстве при $z_b \geqslant (z_b + h_1 + h_2)$ ($j = 5$) равен

$$\Phi_5(x,y,z) = \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \tau(u,v) \times \Phi_s(x-u, y-v, z-h_1-h_2)\,du\,dv. \quad (46)$$

Отметим, что обобщение метода зеркальных отражений было получено ранее в работе [12] в другой формулировке и успешно применено при решении задачи о нанофокусировке поверхностной плазмонной волны на вершине металлического острия.

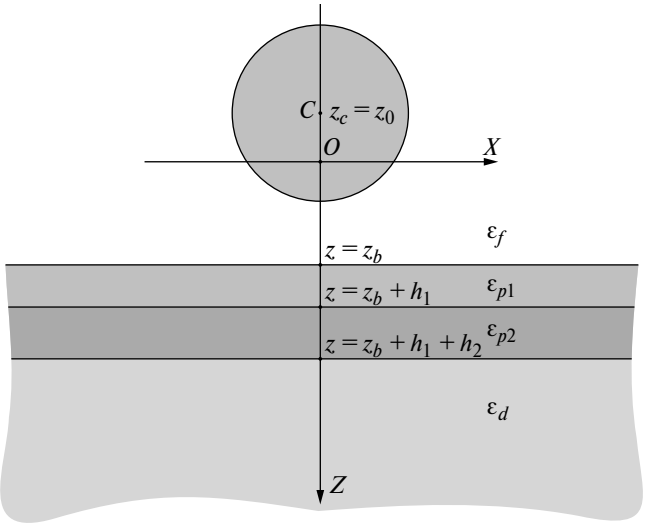

Рис. 4. Металлическая сфера у пленки, расположенной на границе полупространства; геометрия задачи.

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ПОТЕНЦИАЛА ВОКРУГ МЕТАЛЛИЧЕСКОГО ТЕЛА, РАСПОЛОЖЕННОГО ВБЛИЗИ ГРАНИЦЫ ПЛОСКОСЛОИСТОЙ СТРУКТУРЫ, СОСТОЯЩЕЙ ИЗ ДВУХ ПЛЕНОК

Рассмотрим металлическое тело, форму которого для определенности примем сферической с радиусом R. Поверхность сферы представляется формулой

$$x^2 + y^2 + (z - z_0)^2 = R^2,$$

где координаты центра $x_c = 0$, $y_c = 0$ и $z_c = z_0$ (рис. 4). Пусть вблизи сферы находятся две пленки толщинами h_1 и h_2, причем их границы выглядят так: $z = z_b$, $z = (z_b + h_1)$ и $z = (z_b + h_1 + h_2)$. Диэлектрические проницаемости внешней однородной среды, первой и второй пленок и полубесконечной среды за пленкой обозначим ε_f, ε_{p1}, ε_{p2} и ε_d соответственно.

Рассмотрим распределение электрического потенциала, которое установится в пространстве вокруг металлического тела. Как известно, потенциал электростатического поля Φ удовлетворяет в однородном веществе без сторонних зарядов уравнению Лапласа $\Delta\Phi = 0$. Будем считать, что на границе металлического тела (сферы) потенциал U_s постоянный. Кроме того, на плоских границах пленок непрерывны тангенциальные составляющие электрического поля и нормальные составляющие электрической индукции. Тогда граничные условия можно записать следующим образом:

на поверхности тела $\Phi = U_s$, (47)

на границе пленки $z = z_b$

$\varepsilon_{p1} E_{3,n} = \varepsilon_f E_{f,n}$ и $E_{3,\tau} = E_{f,\tau}$, (48)

на границе пленки $z = z_b + h_1$

$\varepsilon_{p2} E_{4,n} = \varepsilon_{p1} E_{3,n}$ и $E_{4,\tau} = E_{3,\tau}$, (49)

на границе пленки $z = z_b + h_1 + h_2$

$\varepsilon_d E_{5,n} = \varepsilon_{p2} E_{4,n}$ и $E_{5,\tau} = E_{4,\tau}$. (50)

Рассматриваемая задача имеет осевую симметрию относительно оси Z. Поэтому и решение уравнения Лапласа имеет такую же симметрию. Пусть потенциал зарядов, находящихся на эквипотенциальном металлическом теле в пространстве с проницаемостью ε_f, описывается функцией $\Phi_s(x,y,z)$.

Тогда полный потенциал $\Phi_{\mathrm{tot}}(x,y,z)$ в области, заполненной диэлектриком с ε_f, можно выразить через $\Phi_s(x,y,z)$ по формуле (42), а полный потенциал в пленках и в диэлектрическом пространстве за

ней – по формулам (44)–(46). При этом граничные условия (48)–(50) выполняются автоматически.

Таким образом, задача определения потенциала во всем пространстве состоит в том, чтобы найти такой потенциал $\Phi_s(x,y,z)$, при котором полный потенциал $\Phi_{\text{tot}}(x,y,z)$ удовлетворяет на поверхности тела граничному условию (47).

Это можно сделать, разложив потенциал $\Phi_s(x,y,z)$ по подходящим гармоническим функциям, определяя коэффициенты разложения из условия (47) для $\Phi_{\text{tot}}(x,y,z)$ на эквипотенциальной границе металла.

Имея в виду общность дальнейшего изложения, рассматривая сферическое тело, перейдем к безразмерным координатам $\tilde{x} = x/R$, $\tilde{y} = y/R$, $\tilde{z} = z/R$. Уравнение Лапласа в безразмерных координатах не изменяется. Кроме того, нормируем потенциал на его значение U_s на поверхности сферы, т.е. перейдем от размерного к безразмерному потенциалу $\tilde{\Phi}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \Phi/U_s$ в безразмерных координатах. Тогда граничное условие (47) на сфере записывается в виде $\tilde{\Phi}_{\text{tot}} = 1$.

В рассматриваемом осесимметричном случае для выполнения граничного условия на поверхности сферы достаточно удовлетворить его на линии пересечения поверхности сферы с любой плоскостью симметрии, проходящей через ось Z. В качестве такой плоскости выберем плоскость $(\tilde{x},\tilde{z})$ при $\tilde{y} = 0$. Более конкретно, достаточно удовлетворить граничному условию $\tilde{\Phi}_{\text{tot}}(\tilde{x},0,\tilde{z}) = 1$ только на границе пересечения полуплоскости $\tilde{y} = 0$ при $\tilde{x} \geqslant 0$ и поверхности сферы. В безразмерных координатах это кривая $\tilde{x}^2 + (\tilde{z} - \tilde{z}_0)^2 = 1$, при $\tilde{y} = 0$ и $\tilde{x} \geqslant 0$.

Будем искать решение, предполагая, что потенциал снаружи сферы $\tilde{\Phi}_s$ представляется в виде следующего разложения по гармоническим функциям:

$$\tilde{\Phi}_s = \sum_{j=1}^{N} A_j P_{j-1}(\cos\theta)/\tilde{r}^j, \qquad (51)$$

где A_j – постоянные коэффициенты разложения; $P_j(\cos\theta)$ – полиномы Лежандра степени j; угол θ отсчитывается от оси Z из центра сферы; $\tilde{r}$ – безразмерный радиус-вектор точки наблюдения, проведенный из центра сферы. В координатах $(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})$ выражение (51) можно представить в виде

$$\tilde{\Phi}_s(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \mathfrak{F}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}), \qquad (52)$$

где

$$\mathfrak{F}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = P_{j-1}\left((\tilde{z} - \tilde{z}_0)/\sqrt{\tilde{x}^2 + \tilde{y}^2 + (\tilde{z} - \tilde{z}_0)^2}\right)\Big/$$

$$\Big/\left(\sqrt{\tilde{x}^2 + \tilde{y}^2 + (\tilde{z} - \tilde{z}_0)^2}\right)^j.$$

Отметим, что выбор функциональных зависимостей (51) из общего решения уравнения Лапласа обусловлен тем, что снаружи сферы потенциал поля должен стремиться к нулю при удалении от ее поверхности, а на поверхности сферы полиномы Лежандра образуют полную систему функций.

Тогда потенциал индуцированных зарядов в плоскослоистой структуре $\tilde{\Phi}_{\text{ind}}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})$ можно представить, учитывая (43), в виде

$$\tilde{\Phi}_{\text{ind}}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \mathfrak{P}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}),$$

$$\text{где } \mathfrak{P}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \frac{(\varepsilon_f - \varepsilon_{p1})}{(\varepsilon_{p1} + \varepsilon_f)} \mathfrak{F}_j(\tilde{x},\tilde{y},2\tilde{z}_b - \tilde{z}) +$$

$$+ \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{h}(\tilde{u},\tilde{v}) \mathfrak{F}_j(\tilde{x} - \tilde{u}, \tilde{y} - \tilde{v}, 2\tilde{z}_b - \tilde{z})\, d\tilde{u} d\tilde{v}.$$

Так, полный потенциал в среде с ε_f (между сферой и первой пленкой) можно представить в виде

$$\tilde{\Phi}_{\text{tot}}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \left(\mathfrak{F}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) + \mathfrak{P}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})\right). \qquad (53)$$

Граничное условие на сфере $\tilde{\Phi}_{\text{tot}}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = 1$ в данной работе удовлетворялось приближенно, методом коллокаций [15]. Указанные уравнения записывались в равномерно распределенных N точках полукруга $\tilde{x}^2 + (\tilde{z} - \tilde{z}_0)^2 = 1$ при $\tilde{y} = 0$ и $\tilde{x} > 0$ на поверхности сферы. При решении N линейных алгебраических уравнений с N неизвестными находились A_j и по формулам (53) распределения потенциала в области между сферой и передней поверхностью первой пленки.

С учетом (52), (44)–(46) распределения потенциала в пленках и в полупространстве за ними определяются формулами

$$\tilde{\Phi}_3(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \left(\frac{(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(\tilde{u},\tilde{v}) \mathfrak{F}_j(\tilde{x}-\tilde{u},\tilde{y}-\tilde{v},\tilde{z}-\tilde{h}_1-\tilde{h}_2) d\tilde{u}d\tilde{v} + \right.$$
$$+ \frac{(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(\tilde{u},\tilde{v}) \mathfrak{F}_j(\tilde{x}-\tilde{u},\tilde{y}-\tilde{v},\tilde{z}-\tilde{h}_1+\tilde{h}_2) d\tilde{u}d\tilde{v} +$$
$$+ \frac{(\varepsilon_{p1}-\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(\tilde{u},\tilde{v}) \mathfrak{F}_j(\tilde{x}-\tilde{u},\tilde{y}-\tilde{v},2\tilde{z}_b+\tilde{h}_1-\tilde{h}_2-\tilde{z}) d\tilde{u}d\tilde{v} + \tag{54}$$
$$\left. + \frac{(\varepsilon_{p1}+\varepsilon_{p2})(\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d)}{4\varepsilon_{p1}\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(\tilde{u},\tilde{v}) \mathfrak{F}_j(\tilde{x}-\tilde{u},\tilde{y}-\tilde{v},2\tilde{z}_b+\tilde{h}_1+\tilde{h}_2-\tilde{z}) d\tilde{u}d\tilde{v} \right),$$

$$\tilde{\Phi}_4(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \left(\frac{\varepsilon_{p2}+\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(\tilde{u},\tilde{v}) \mathfrak{F}_j(\tilde{x}-\tilde{u},\tilde{y}-\tilde{v},\tilde{z}-\tilde{h}_1-\tilde{h}_2) d\tilde{u}d\tilde{v} + \right.$$
$$\left. + \frac{\varepsilon_{p2}-\varepsilon_d}{2\varepsilon_{p2}} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(\tilde{u},\tilde{v}) \mathfrak{F}_j(\tilde{x}-\tilde{u},\tilde{y}-\tilde{v},2\tilde{z}_b+\tilde{h}_1+\tilde{h}_2-\tilde{z}) d\tilde{u}d\tilde{v} \right), \tag{55}$$

$$\tilde{\Phi}_5(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{t}(\tilde{u},\tilde{v}) \mathfrak{F}_j(\tilde{x}-\tilde{u},\tilde{y}-\tilde{v},\tilde{z}-\tilde{h}_1-\tilde{h}_2) d\tilde{u}d\tilde{v}. \tag{56}$$

Формулы (53)–(56) решают задачу нахождения нормированного потенциала в нормированных координатах снаружи сферы, в слоистой структуре и в полупространстве за ней при известных значениях A_j.

Важное свойство полученных решений – они зависят от отношений диэлектрических проницаемостей. Таким образом, если увеличить все диэлектрические проницаемости в k раз, то распределение нормированного потенциала не изменится. Отметим, что для разложения искомого потенциала можно использовать и другие системы гармонических функций. Так, для нахождения решения задачи в случае осесимметричного тела сложной формы отлично зарекомендовал себя метод работы [16].

ПРИМЕРЫ ВЫЧИСЛЕНИЯ ПОТЕНЦИАЛА ВОКРУГ ЗАРЯЖЕННЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ ТЕЛ ВРАЩЕНИЯ, РАСПОЛОЖЕННЫХ РЯДОМ С ПЛОСКОСЛОИСТОЙ СТРУКТУРОЙ ИЗ ДВУХ ПЛЕНОК

В качестве примера применения изложенной выше теории были проведены численные расчеты распределения нормированного потенциала металлической заряженной сферы, находящейся вблизи плоскослоистой структуры, состоящей из двух пленок. Сфера с центром в точке $(\tilde{x}_0,\tilde{y}_0,\tilde{z}_0) = (0,0,-0.5)$ находилась в вакууме с $\varepsilon_f = 1$, рядом с пленками с толщинами $\tilde{h}_1 = 0.5$ и $\tilde{h}_2 = 0.5$ (в нормированных на радиус кривизны сферы единицах). Диэлектрические проницаемости пленок были выбраны равными $\varepsilon_{p1} = 2$ и $\varepsilon_{p2} = 5$. Полупространство за пленкой имело диэлектрическую проницаемость $\varepsilon_d = 3$. Границы пленки определялись уравнениями $\tilde{z} = \tilde{z}_b = 1$, $\tilde{z} = \tilde{z}_b + \tilde{h}_1 = 1.5$ и $\tilde{z} = \tilde{z}_b + \tilde{h}_1 + \tilde{h}_2 = 2$ (рис. 4). Кратчайшее расстояние от сферы до первой пленки было равно $\Delta\tilde{z} = 0.5$.

На рис. 5а показано распределение нормированного потенциала в плоскости $(\tilde{x},\tilde{z})$ при выбранных параметрах. Видна естественная экранировка электрического поля в диэлектрике, возникающая за счет индуцированных зарядов. Чем больше диэлектрическая проницаемость, тем сильнее экранировка. Важное свойство полученного распределения – оно одинаково для всех подобных геометрий и одинаковых соотношений диэлектрических проницаемостей.

Кроме задачи о сфере, аналогично была рассмотрена задача нахождения нормированного потенциала металлического заряженного тела каплевидной формы, которое представляет собой полуэллипс, наложенный на полусферу. Тело располагалось вблизи той же плоской слоистой структуры из двух пленок, что и в предыдущем

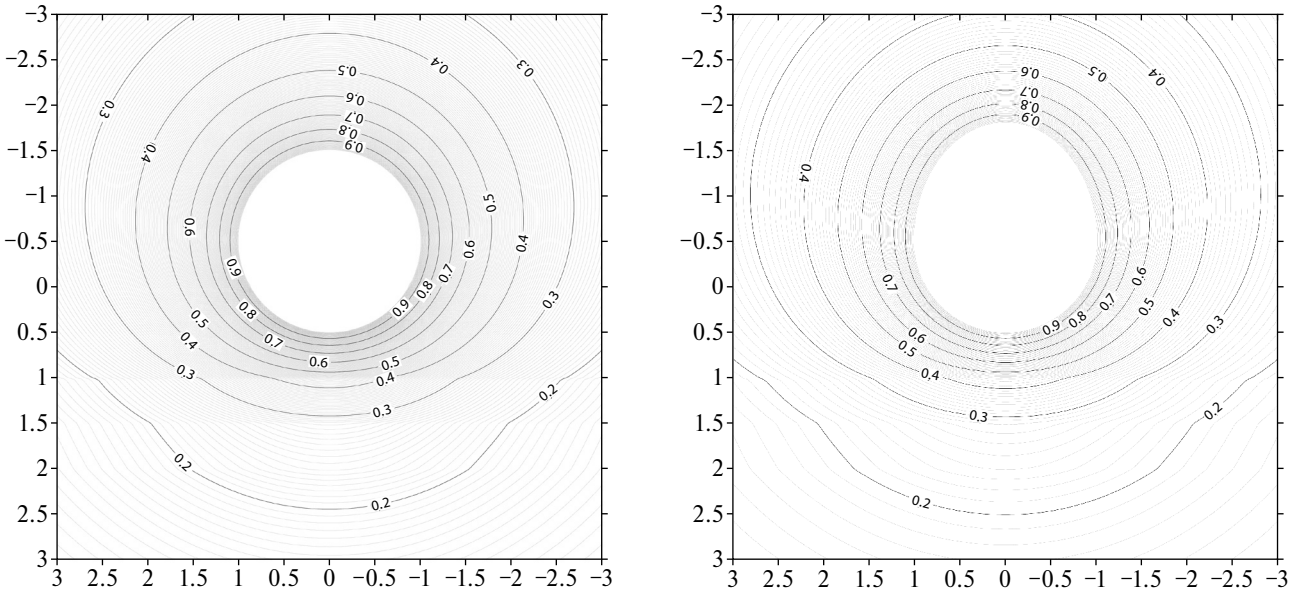

Рис. 5. Распределение в нормированных координатах нормированного потенциала вокруг металлических заряженных тел: сферы (а) и каплеобразного тела вращения (б).

примере. Нормирование координат проводилось по отношению к радиусу полусферы. Нормированная длина большой полуоси полуэллипса была равна 0.3. Центр кривизны полусферы находился в точке $(\tilde{x}_0, \tilde{y}_0, \tilde{z}_0) = (0,0,-0.5)$. Вытянутый полуэллипс был направлен от слоистой структуры. Кратчайшее расстояние от полусферической части тела до первой пленки равно $\Delta\tilde{z} = 0.5$. Нормированное распределение потенциала в плоскости $(\tilde{x}, \tilde{z})$ показано на рис. 5б. Разложение $\tilde{\Phi}_s$ производилось по тем же функциям, что и в предыдущем случае (52).

Следует отметить, что с увеличением эксцентриситета полуэллипса сходимость численного метода падает. Проблема наилучшей аппроксимации $\tilde{\Phi}_s$ для тел сложной формы требует дополнительного исследования.

ПРИМЕНЕНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ К ЗАДАЧАМ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ ПЛОСКОСЛОИСТЫХ СРЕД

Как известно, существует аналогия между задачами электростатики и стационарными задачами теплопроводности [17] (гл. 12). Аналогичны не только соответствующие уравнения, но и граничные условия [13, 18, 19]. Если в задачах, рассмотренных в предыдущих разделах, заменить одновременно: 1) потенциал φ на температуру $(T - T_0)$, где T_0 – температура на бесконечности; 2) диэлектрическую проницаемость ε на коэффициент теплопроводности K; 3) вектор электрической индукции $\mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E} = -\varepsilon\nabla\varphi$ на плотность потока тепла $\mathbf{h} = -K\nabla T$; 4) точечный заряд q – на мощность тепловыделения точечного источника Q_h, то получатся уравнения и граничные условия, возникающие при решении задач стационарной теплопроводности с равномерно нагретым телом, расположенным рядом с аналогичной теплопроводящей плоскослоистой структурой. Такие задачи, очевидно, можно решить рассмотренным методом.

Например, чтобы решить задачу распределения температуры вокруг тела, нагретого до постоянной температуры T_m, можно сначала решить соответствующую электростатическую задачу распределения потенциала в окрестности тела с постоянным потенциалом поверхности. Нормированное решение электростатической задачи будет также решением аналогичной нормированной задачи теплопроводности в нормированных координатах (при указанной замене величин и обозначений). Результат расчетов распределения температуры (точнее, превышения температуры над внешней температурой T_0, выраженного в единицах $(T_m - T_0)$) в задачах о нагретых сфере и каплевидном теле будет идентичен распределениям на рис. 5.

Нормированные температурные распределения так же, как и в случае распределений нормированных электростатических потенциалов, обладают следующим свойством: они зависят от отношений коэффициентов теплопроводности областей. Если увеличить все коэффициенты в k раз, то нормированное распределение температуры не изменится в нормированных координатах. Таким образом, на рис. 5 показаны нормированные температурные распределения при значениях

коэффициентов теплопроводности $K_f = k$, $K_{p1} = 2k$, $K_{p2} = 5k$, $K_d = 3k$, где k – произвольное число.

Особо отметим, что аналогия между электростатической и теплопроводной задачами не означает, что распределение электрического потенциала в вакууме аналогично распределению температуры в вакууме. В рассмотренном случае аналог вакуума – среда с некоторым конечным коэффициентом теплопроводности K_f, а коэффициенты K_{p1}, K_{p2} и K_d соотносятся с K_f так же, как диэлектрические проницаемости аналогичной электростатической задачи.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана матричная техника нахождения фундаментального решения оператора Лапласа для плоскослоистых сред на примере электростатической задачи. Предложена новая формулировка обобщенного метода зеркальных отражений для двух пленок, расположенных на полупространстве, включающая двойное интегрирование по виртуальным зарядам.

Продемонстрировано применение метода для нахождения электростатических полей от симметричных тел вращения, расположенных рядом с двумя пленками. Показана применимость предложенного теоретического метода к аналогичным задачам стационарной теплопроводности. Рассмотрен пример решения задачи нахождения температурного поля вблизи равномерно нагретого тела, расположенного у плоскослоистой структуры, состоящей из двух теплопроводящих пленок на теплопроводящем полупространстве. Особо отметим, что развитые методы можно с некоторыми изменениями применить и для решения аналогичных задач нестационарной теплопроводности [20].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Pollack H.N.* Steady State Heat Conduction in Layered Mediums: The Half-space and Sphere // J. Geophys. Research. 1965. V. 70. № 22. P. 5645.
2. *Negi J.G., Singh R.N.* A Matrix Method for Heat Conduction in Multi-layered Media // Pure and Applied Geophysics. 1969. V. 73. № 1. P. 143.
3. *Negi J.G., Singh R.N.* Heat Transfer in Multi-layered Media with Temperature Dependent Sources // Pure and Applied Geophysics. 1968. V. 69. № 1. P. 110.
4. *Matysiak S.J., Perkowski D.M.* Temperature Distributions in a Periodically Stratified Layer with Slant Lamination // Heat and Mass Transfer. 2014. V. 50. № 1. P. 75.
5. *Chew W.C.* Waves and Fields in Inhomogeneous Media. N.Y.: IEEE Press, 1995.
6. *Петрин А.Б.* Элементарный излучатель, расположенный на границе или внутри слоистой структуры // Оптика и спектроскопия. 2020. Т. 128. № 11. С. 1676.
7. *Петрин А.Б.* Излучение в дальней зоне элементарного излучателя, расположенного на границе плоскослоистой структуры // Оптика и спектроскопия. 2020. Т. 128. № 12. С. 1874.
8. *Петрин А.Б.* Элементарный излучатель на границе плоскослоистой структуры // ЖЭТФ. 2021. Т. 159. № 1. С. 35.
9. *Кинг Р., Смит Г.* Антенны в материальных средах: в 2-х кн. Пер. с англ. М.: Мир, 1984.
10. *King R.W.P.* The Propagation of Signals along a Three-layered Region // IEEE Trans. Microwave Theory Tech. 1988. V. 36. № 6. P. 1080.
11. *Петрин А.Б.* О теории плоской линзы из материала с отрицательным преломлением // Оптика и спектроскопия. 2021. Т. 129. № 1. С. 55.
12. *Петрин А.Б.* Фокусировка поверхностной плазмонной волны на нановершине сканирующего металлического микроострия у плоскослоистой структуры // Оптика и спектроскопия. 2022. Т. 130. № 9. С. 1436.
13. *Петрин А.Б.* О фундаментальном решении задач электростатики и теплопроводности для плоскослоистых сред // ТВТ. 2022. Т. 60. № 5. С. 740.
14. *Сивухин Д.В.* Общий курс физики. Учеб. пособие для вузов. В 5 т. Т. III. Электричество. 4-е изд., стереот. М.: Физматлит; Изд-во МФТИ, 2004.
15. Численные методы теории дифракции. Математика. Новое в зарубежной науке. Вып. 29. Сб. статей. Пер. с англ. М.: Мир, 1982.
16. *Петрин А.Б.* Развитие методов решения задач электростатики и теплопроводности плоскослоистых сред // Успехи прикладной физики. 2023. Т. 11. № 1. С. 3.
17. *Фейнман Р., Лейтон Р., Сэндс М.* Фейнмановские лекции по физике. Т. 5. Электричество и магнетизм. М.: Мир, 1965.
18. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теоретическая физика. Т. VI. Гидродинамика. М.: Наука, 1986.
19. *Карташов Э.М.* Аналитические методы в теории теплопроводности твердых тел. М.: Высшая школа, 2001.
20. *Петрин А.Б.* Развитие методов решения задач нестационарной теплопроводности плоскослоистых сред // Успехи прикладной физики. 2023. Т. 11. № 2. С. 93.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 112–120

НОВАЯ ЭНЕРГЕТИКА И СОВРЕМЕННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ

УДК 669:532.6

МЕХАНИЗМЫ ФОРМИРОВАНИЯ ПОВЕРХНОСТНОГО НАНОРЕЛЬЕФА ПРИ ЛАЗЕРНОЙ АБЛЯЦИИ

© 2024 г. П. С. Кулешов[1, 2, *], С. И. Миколуцкий[3, **], Ю. В. Хомич[3]

[1]Центральный институт авиационного моторостроения им. П.И. Баранова, Москва, Россия

[2]Московский физико-технический институт (национальное исследовательское учреждение), Москва, Россия

[3]Институт электрофизики и электроэнергетики РАН, Санкт-Петербург, Россия

**E-mail: kuleshovps@yandex.ru*

***E-mail: mikolserg@mail.ru*

Поступила в редакцию 11.08.2023 г.
После доработки 18.10.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

Рассмотрены два механизма формирования поверхностного нанорельефа на металлической подложке при лазерной абляции, в основе которых лежат теория зародышеобразования при кристаллизации и резонансно-волновая теория капиллярно-деформационных процессов. С помощью экспериментальных примеров показано, что оба этих механизма не только не противоречат, но и дополняют друг друга. На основе иерархии характерных времен проанализировано влияние энергетических параметров лазерных импульсов на размеры образовавшихся наноструктур.

DOI: 10.31857/S0040364424010135

ВВЕДЕНИЕ

Последние десятилетия характеризуются интенсивным развитием нанотехнологий, в том числе методов формирования металлических микро- и наноструктур при помощи лазерной абляции [1–11]. Например, наноструктуры, состоящие из гладких гребней и впадин с одним или двумя характерными пространственными периодами, можно генерировать на поверхности мишеней при определенных параметрах лазерного излучения [4–6].

Области применения наноразмерных структур чрезвычайно разнообразны. Лазерное наноструктурирование поверхностей металлов приводит к увеличению их эффективной площади, что позволяет интенсифицировать процессы диффузии, химического катализа, повысить их окислительную способность. На выступах металлического нанорельефа может происходить усиление электромагнитного поля, индуцированного дипольными молекулами газа или жидкости, что повышает скорость молекулярного осаждения. Эти эффекты могут найти применение при создании новых высокоэффективных топливных ячеек, аккумуляторов для гибридных и электрических силовых установок летательных аппаратов [12]. Например, в твердополимерных топливных элементах присутствует мембрана из диоксида циркония, которая может быть подвергнута лазерному воздействию для улучшения ее свойств [6, 7].

Лазерная абляция металла в тонком слое деионизированной воды используется не только для внешнего наноструктурирования мишени, но и для нано- и микроструктурирования ее внутренних приповерхностных кристаллических слоев. Эта технология находит широкое применение в авиапромышленности при лазерной ударной обработке металлических деталей со сложной поверхностью с целью их упрочнения [2, 3].

Характерные масштабы и формы наноструктур задаются параметрами периодических лазерных импульсов [13–17]. В качестве управляющих параметров выступают длина волны излучения, энергия и длительность лазерного импульса, частота повторения импульсов и скорость сканирования мишени лазерным лучом.

В научной литературе известен ряд механизмов, позволяющих для определенных условий объяснить возникновение нанорельефа при лазерной абляции и предсказать его характерные размеры. Например, в рамках модели термокапиллярного механизма образования нанорельефа в линейном приближении на базе решения гидродинамического уравнения Курамото–Сивашинского в статье [18] приводится характерный размер поверхностной структуры в зависимости от средней глубины,

температурного градиента и температурной производной коэффициента поверхностного натяжения расплава металла. В [4] из баланса капиллярного давления и критического парового давления при условиях плавления металла дана оценка для характерного размера поверхностной структуры, растущей с максимальным инкрементом.

В [19, 20] для изучения лазерной абляции в жидкости применяется молекулярно-динамическое моделирование, включающее двухтемпературную модель для ионов и электронов кристаллической решетки. Такой подход позволяет достаточно подробно численно смоделировать смену процессов лазерной абляции после одиночного импульса, построить временные профили температур, давлений и плотностей в жидком расплаве и паре. В [19] при воздействии пикосекундными лазерными импульсами изучаются режимы образования нанопены, ее разрушение, факельный распыл из кратера, конденсация частиц из пара и т.п. В отличие от [19] в настоящей работе аналитически изучается абляция с точки зрения последствий взаимодействия металлической мишени с лазерными наносекундными импульсами при сильном перекрытии последних в пространстве. Результатом такого взаимодействия является образование наноструктур – застывших капиллярных волн. В обоих случаях применены элементы теории капиллярных волн.

В данной статье более детально анализируются механизм зародышеобразования кристаллов при остывании металлической мишени после быстрого нагрева [14, 21] и механизм резонансно-деформационного возбуждения капиллярных волн на поверхности расплава металла [13, 22, 23] с целью оценки экспериментальных данных [2, 7] по лазерному наноструктурированию металлических поверхностей.

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

В [2] описываются эксперименты по лазерной абляции поверхности стали и бронзы. В качестве источника излучения использовался импульсно-периодический Nd:YAG-лазер на третьей гармонике с длиной волны излучения $\lambda = 0.355$ мкм. Энергия в импульсе достигала 8 мДж при длительности $\tau = 10$ нс и частоте повторения $f = 100$ Гц. В основном для экспериментов в качестве мишени использовались образцы цилиндрической формы высотой 10 мм и диаметром 15 мм. Обработанные лазером поверхности образцов из хромированной бронзы и нержавеющей стали исследовались с помощью профилометра (NewView 7300, ZYGO Corp., США), сканирующего электронного микроскопа (Phenom Pro, Thermo Fisher Scientific, США) и атомно-силового микроскопа (Alpha 300, WITec, Германия).

Обработка образцов проводилась лазерным пучком диаметром около 200 мкм при сканировании пучком поверхности со скоростью перемещения по горизонтали около 1 мм/с. Так как частота следования импульсов излучения составляла 100 Гц, то смещение лазерного пятна за время между импульсами приблизительно равно 10 мкм. Плотность энергии в импульсе варьировалась от 0.2 до 1.7 Дж/см^2.

Из [2] известно, что при скорости сканирования лазерным лучом стальной поверхности 0.25 мм/с и частоте следования импульсов 100 Гц (т.е. при шаге смещения $s = 2.5$ мкм) радиус образовавшейся капли, застывшей на подложке, составляет $r \approx 0.5$ мкм. В этом случае поперечный масштаб образовавшегося нанорельефа на стальной подложке в виде борозд и валов – 4–6 мкм. На поверхности с самого начала присутствовали борозды шириной 10 мкм, которые в процессе облучения плавились и разбивались, образуя круглые холмообразные островки с поперечными размерами от 5 до 10 мкм и высотой приблизительно 500 нм. Из приведенных в [2] данных видно, что сами островки обладают структурой в виде прожилок толщиной около 1 мкм.

Кроме того, по экспериментальным данным [2] при сканировании лазером с шагом 10–20 мкм на бронзовой поверхности появлялись капли диаметром $2r = 600$ нм (при плотности энергии 0.85 Дж/см^2) на “ножках” высотой 1 мкм и диаметром их оснований 350–600 нм с характерным расстоянием между ножками капель 2–3 мкм. Пространственная плотность таких структур растет от нескольких единиц до 20 на 100 мкм^2 поверхности при увеличении плотности лазерной энергии соответственно от 0.3 до 0.85 Дж/см^2 [2]. При дальнейшем повышении плотности энергии поверхностная плотность структур начинает снижаться.

В [7] экспериментальные исследования лазерной абляции ZrO_2 в воздухе под действием импульсов твердотельного YAG:Nd^{3+}-лазера с помощью атомно-силового и электронных микроскопов выявили следующие закономерности: диаметр фрагмента диспергации обратно пропорционален интенсивности импульса I (для длительности импульса 150 мкс – 200 нм при 10^9 Вт/м^2 и 20 нм при 10^{10} Вт/м^2), но не зависит от его длительности в диапазоне 0.1–1.0 мс; глубина кратера, образовавшегося после действия импульса, пропорциональна его длительности (стационарный режим абляции); фронт абляции движется вглубь мишени со скоростью $\sim I^{0.4}$.

КАПИЛЛЯРНО-ВОЛНОВОЙ МЕХАНИЗМ

Приведем вывод формул для размера нанорельефа, образовавшегося на металлической мишени при лазерном сканировании, для описания

экспериментов [2], как это сделано ранее в [13] при описании экспериментов [4]. В процессе плавления верхнего слоя мишени под действием лазерного излучения возникают волны деформации в зоне расплава шириной s. Их причиной может быть схлопывание кавитационных пузырей в жидкости над расплавом, а также быстрое изменение плотности вещества мишени в процессе расплава. В [24] рассматривается другая причина быстрого образования зоны расплава и возбуждения в ней волн деформаций, а именно: переход через ударную волну. Под действием волн деформации на поверхности расплава возбуждаются капиллярные волны длиной λ_H, где при достаточной интенсивности колебаний образуются нанокапли с радиусом (показано ниже) $r < \lambda_H$, которые могут застыть на "ножках".

Отталкиваясь от механизма резонансной диспергации жидкой частицы, изложенного в [22, 23], будем считать, что при взаимодействии ударных волн деформации широкого спектра с границами ванны расплава шириной s в ней образуются и усиливаются стоячие волны на определенных частотах, при которых отражение бегущих волн происходит в фазе (узел) или в противофазе (пучность). В случае симметричных граничных условий (узел–узел или пучность–пучность) на масштабе s стоячие волны деформации с собственной минимальной круговой частотой возбуждают капиллярные волны на поверхности расплава:

$$\omega = \pi c/s. \qquad (1)$$

Вдоль направления s укладывается полволны, и выполняется $s = 0.5cT$, где T – период деформационной волны, c – скорость ее распространения (приблизительно скорость звука).

На поверхности маловязкого слоя расплава толщиной x, согласно [25], могут возбуждаться гравитационно-капиллярные волны с круговой частотой

$$\omega^2 = \left(\frac{2\pi}{\lambda}g + \frac{\sigma}{\rho}\left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^3\right)\mathrm{th}\left(\frac{2\pi}{\lambda}x\right). \qquad (2)$$

Если слой расплава настолько тонкий (приближение "мелкой" воды), что пространственный период образующихся на его поверхности волн λ_H гораздо больше его глубины $x \ll \lambda_H$, и если сами волны настолько короткие, что их можно считать полностью капиллярными, то выражение для ω упрощается (см. [25]) до

$$\omega^2 = \frac{\sigma x}{\rho}\left(\frac{2\pi}{\lambda_H}\right)^4. \qquad (3)$$

В условиях резонанса капиллярных волн на поверхности расплава и стоячих деформационных волн из равенства частот (1), (3) получаем

Таблица 1. Теплофизические данные металлов вблизи температуры плавления

Материал	ρ, г/см^3	σ, Дж/м^2	c, м/с	a_m, 10^6 м^2/с
Медь	8.6	1.35	3900	(81)
Нержавеющая сталь	7.9	1.9	3800	7.18 (6.01)

$$\lambda_H \sim \left(\frac{\sigma}{\rho}\sqrt{a_m\tau}\right)^{1/4}\left(\frac{8\pi s}{(2n-1)c}\right)^{1/2}. \qquad (4)$$

В формулах (1)–(4) и в табл. 1 c, ρ, σ – скорость звука, плотность и коэффициент поверхностного натяжения расплава металла при температуре плавления соответственно; $x \approx \sqrt{a_m\tau}$ – глубина расплава, определяемая радиусом диффузии тепла, ограниченного длительностью лазерного импульса τ и коэффициентом температуропроводности твердого металла a_m.

В [2] в качестве размера s можно выбрать сдвиг фокального пятна лазерного импульса на металлической подложке за один период следования импульсов (как в [13]) или сам диаметр лазерного пятна D (рис. 1). Замену s на D нельзя было предположить в [13], так как в работе рассматривалась диспергация тонких нанопленок из эксперимента [1], и пленки удалялись полностью на всю их толщину 20–60 нм за один лазерный импульс, т.е. при повторном облучении той же области (зона перекрытия лазерных пятен >90%) диспергироваться уже было бы нечему, в отличие от условий в [2].

Будем считать, что в [2] объем ванны расплава представляет собой резонатор, поперек которого формируется стоячая ударная волна (см. рис. 1). Из-за отличий волновых импедансов на внешней (по направлению сканирования) границе расплава с твердым металлом должен формироваться узел, а на внутренней границе из-за частичного уноса или перераспределения массы поверхностного слоя (вследствие действия предыдущего импульса) – пучность. Поэтому в [2] при возбуждении первой гармоники ($n = 1$) поперек резонатора в горизонтальном направлении в одномерном приближении укладывается четверть волны деформации $s/c = 0.25T$. Для второй гармоники ($n = 2$) $s/c = 0.75T$ и т.д. Эти рассуждения могут быть справедливы как для сдвига пятна при сканировании между соседними импульсами, так и для самого лазерного пятна ($s = D$). В итоге формула (4) скорректирована и обобщена на n-ю гармонику, аналогично [13].

Чтобы найти радиус образовавшейся капли r на "ножке", приравняем частоты основного тона колебаний жидкой капли [25] $\omega_{\min}^2 = 8\sigma/(\rho r^3)$

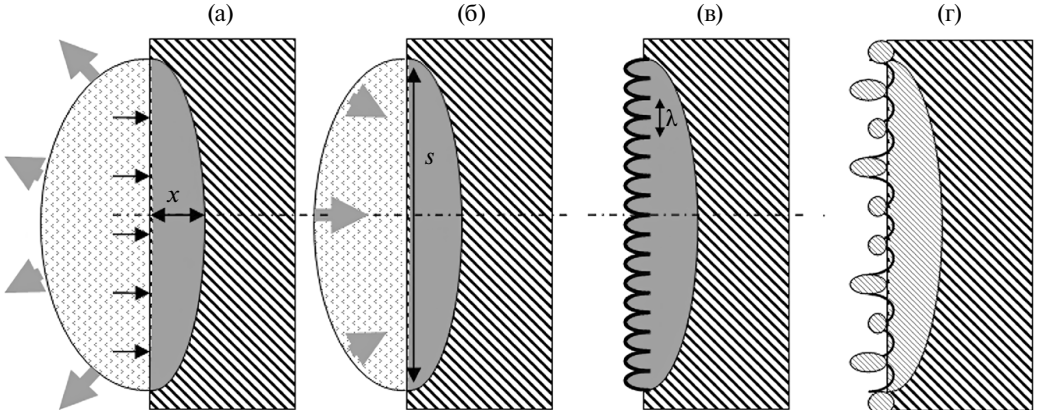

Рис. 1. Схема капиллярного механизма взаимодействия лазерного импульса с металлической подложкой и выбор масштаба резонатора s (длины ванны расплава): (а) – образование газовой каверны и расплава металла глубиной $x \sim \sqrt{a\tau}$ под действием лазерного импульса, (б) – формирование стоячих деформационных волн под действием схлопывающейся газовой каверны, (в) – усиление деформационными волнами стоячих капиллярных волн на поверхности расплава, (г) – застывание капиллярных волн и формирование поверхностного рельефа.

и капиллярных волн в мелкой жидкости из (3) с учетом длины последних из (4). Тогда получаем

$$r = \frac{4}{\pi}\left(\frac{\sigma}{2\rho}\right)^{1/3}\left(\frac{s}{\pi(2n-1)c}\right)^{2/3}, \quad n = 1,2,3\ldots. \quad (5)$$

Кроме того, известно из [13, 22–24], что наиболее вероятный радиус капли обратно пропорционален подведенной энергии согласно формуле

$$r_p = 6^{1/2}\,\sigma V/W, \quad (6)$$

где $V = xS \sim \tau^{-1/2}$ – диспергируемый объем; $W = ZIS\tau \sim I\tau$ – энергия, затраченная на диспергацию объема V; $Z < 1$ – КПД преобразования лазерного излучения в энергию диспергации (учитывает потери); I и S – интенсивность и площадь сечения поглощения лазерного излучения. В формуле (5) эффект уменьшения радиуса, следующий из (6) ($r \sim I^{-1}$, $r \sim \tau^{-1/2}$), проявляется через увеличение номера возбуждаемой гармоники n.

МЕХАНИЗМ ЗАРОДЫШЕОБРАЗОВАНИЯ ПРИ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ

В работе [14] исследуется механизм формирования наноструктур на поверхности твердых тел при воздействии наносекундными лазерными импульсами. Данная задача включает две части. В первой части рассматривается процесс оплавления материала при лазерном воздействии и решается задача Стефана с соответствующими граничными условиями, во второй – процесс охлаждения расплавленного слоя за счет теплоотвода в глубь твердой фазы совместно с теорией образования кристаллических зародышей. В результате получается выражение для характерного размера наноструктур в зависимости от длительности и энергии импульса. Для сопоставления расчетных и экспериментальных данных в [14] исследуется воздействие импульсов ArF-лазера с длиной волны 193 нм на поверхность материалов, таких как никель, титан, германий, нержавеющая сталь.

Пусть на поверхность металла падает тепловой поток импульсного лазерного излучения и происходит фазовый переход твердое тело–жидкость. Граница перехода $y(t)$ подвижна. Температурные поля в жидкой $T_1(x, t)$ и твердой $T_2(x, t)$ фазах описываются уравнениями теплопроводности с соответствующими граничными условиями, координата x отсчитывается от поверхности мишени. Предполагается, что на поверхности мишени температура фазового перехода (плавления) достигается практически мгновенно за время, гораздо меньшее длительности лазерного импульса, и в ходе дальнейшего процесса меняется незначительно. Решение уравнений первой части задачи позволяет рассчитать глубину плавления различных материалов под действием лазерных импульсов разной длительности и мощности. Например, оплавленный слой толщиной 1 мкм для меди получается при длительности импульса 10^{-8} с и поглощенной энергии $Q(t) = 1$ Дж/см^2, слой в 0.2 мкм имеет место при той же длительности импульса и $Q(t) = 0.5$ Дж/см^2. Для германия при $Q(t) = 1$ Дж/см^2 и $\tau = 10^{-7}$ с толщина оплавленного слоя получается $l = 2$ мкм, а для никеля при тех же условиях $l = 0.05$ мкм.

По окончании действия импульса начинается процесс перехода жидкой фазы в твердую. Затвердевание с образованием наноструктур может идти только при достаточно высоких скоростях охлаждения расплава [14]. Чтобы определить скорость охлаждения, необходимо решить задачу об охлаждении расплавленного слоя за счет теплоотвода вглубь твердой фазы. При этом начальное

распределение температур задается выражением для T_2, взятым в момент окончания действия импульса. Если глубина расплава мала и перегрев жидкой фазы $(T_0 - T_k)/T_k \ll 1$, температуру жидкости можно считать постоянной и равной T_k. Нестационарное во времени распределение температуры в твердом теле в [14], нормированное на температуру плавления T_k, аппроксимировалось отношением толщин расплавленного и нагретого твердого слоев вещества в данный момент времени. Подвижные границы фазового перехода и нагретого твердого тела определялись из вариационного принципа в обобщенных координатах.

Кристаллизацию в [14] обусловливали появление и рост зародышей кристаллической структуры в расплаве. Характерное время роста зародышей определялось как время, по истечении которого практически перестают меняться размеры центров новой фазы. За это время средняя температура по толщине расплавленного слоя становится равной $T_k - \Delta_0$, где Δ_0 – переохлаждение, при котором рост зародышей фактически прекращается. Характерное время этого процесса τ_0 определяется по характерной толщине расплавленного слоя. Средняя скорость охлаждения расплава в [14] была определена как $\varepsilon = \Delta_0/\tau_0$, изменение средней температуры по толщине слоя $T(t) = T_k - \varepsilon t$. Размер кристаллического зародыша $r(t)$ стремится к своему предельному значению за время релаксации $\tau_0 = kT_k^2/(\varepsilon U)$, которое, согласно первоначальному определению, является характерным временем данного процесса. С другой стороны, характерное время связано со скоростью охлаждения соотношением $\tau_0 = \Delta_0/\varepsilon$, поэтому $\Delta_0 = kT_k^2/U$, где U – энергия активации перемещения атома. Тогда из характерной толщины расплавленного слоя можно найти τ_0, а затем определить предельный размер зародыша:

$$r(t) \approx R_z\left[1 - \exp\left(-\frac{U\varepsilon t}{kT_k^2}\right)\right],$$

$$R_z = \frac{\nu_0 d \exp(-U/kT_k) kT_k^2 h}{\varepsilon U(U+h)}. \qquad (7)$$

Здесь ν_0 – дебаевская частота колебаний атома в переохлажденной жидкости; d – характерное расстояние, приходящееся на один атом; h – теплота фазового превращения на один атом.

Итак, в [14] предложена теоретическая модель для оценки характерных размеров наноструктур, формирующихся на поверхности твердых тел при оплавлении в результате импульсного лазерного воздействия. Решение задачи Стефана для оплавления и кристаллизации поверхностного слоя совместно с применением теории образования кристаллических зародышей указывает на зависимость характерных размеров зародышей от длительности и энергии импульса. При длительности 10^{-8} с и плотности энергии 4 Дж/см^2 расчет дает характерные размеры структур порядка межатомных расстояний (5×10^{-10} м), при длительности 10^{-6} с и энергии 6 Дж/см^2 характерный размер составляет ~100 нм. Исследования с помощью атомно-силового микроскопа [14] подтвердили формирование нанорельефа на поверхностях никеля, титана, германия, нержавеющей стали после воздействия наносекундными импульсами ArF-лазера с длиной волны 193 нм. Расчет параметров формирующейся наноструктуры в [14] на примере титана дает величину примерно 60 нм, что согласуется с результатами эксперимента. Установлена зависимость параметров образующейся поверхностной наноструктуры от плотности падающей энергии в лазерном пучке, что указывает на возможность управления процессами формирования таких структур.

СОПОСТАВЛЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ РАСЧЕТОВ И ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Сформулируем необходимые условия одновременного существования двух механизмов формирования наноструктур при лазерной абляции. Чтобы объяснить генерацию гладкого волнообразного нанорельефа, наблюдаемого, например, в экспериментах [4, 5], будем предполагать, что механизм на основе зародышеобразования кристаллов отвечает за генерацию значительно более мелких деталей нанорельефа, в отличие от капиллярного механизма. Другими словами, для обеспечения гладкости рельефа необходимо, чтобы размеры зародышей кристаллов R_z, образовавшихся в приповерхностном слое при его застывании, были бы гораздо меньше длин капиллярных волн λ_H (рис. 2). Чтобы капиллярные волны на поверхности расплава застыли, сохраняя свой профиль, характерное время формирования приповерхностного слоя из зародышей кристаллов t_z должно быть гораздо меньше периода капиллярных колебаний t_k (рис. 3а). Таким образом, для сохранения гладкого нанорельефа необходимо, чтобы успела сформироваться твердая корка из кристаллов над расплавом, а размеры кристаллов были бы гораздо меньше размеров нанорельефа.

Теплофизические данные стали и меди вблизи их точек плавления собраны в табл. 1. По ним глубина расплава оценивается как $x \sim \sqrt{a_m\tau}$, и при длительности лазерного импульса $\tau = 10$ нс составляет $x = 245$ нм для стали и $x = 900$ нм для меди.

Как видно из [2], поперечный масштаб нанорельефа на поверхности стали (длина капиллярной волны λ_H) должен составлять 4–6 мкм. Следовательно, глубина расплава стали гораздо меньше значения λ_H, что обосновывает применение формул (2)–(5). Из (4), когда в качестве ширины резонатора используется сдвиг пятна при сканировании $s = 10$ мкм, при номере гармоники $n = 1$ получаем $\lambda_H = 0.7$ мкм. Если же в качестве s выбрать диаметр лазерного луча 200 мкм, то при

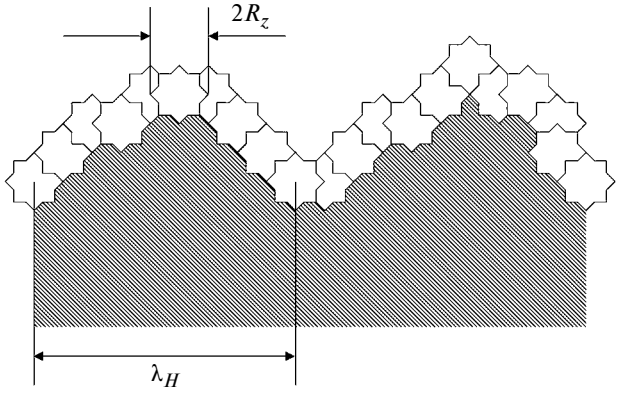

Рис. 2. Схема формирования капиллярного нанорельефа с характерным пространственным периодом λ_H при образовании твердой корки из кристаллов радиусом R_z над расплавом.

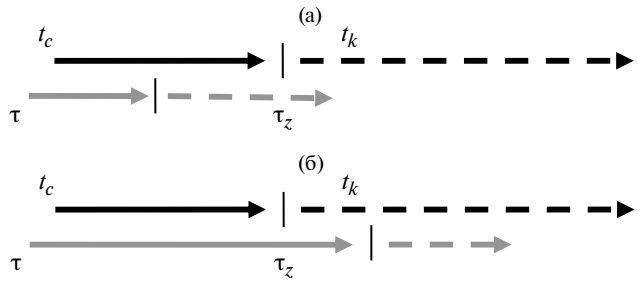

Рис. 3. Схематичная иерархия характерных времен при образовании нанорельефа на подложке методом лазерной абляции в случае одинакового диаметра лазерных лучей: (а) – для короткого лазерного импульса [2], (б) – для длинного лазерного импульса [7]; t_c – время схлопывания каверны, t_k – время капиллярного колебания, τ – время подвода лазерного излучения, t_z – время образования кристаллического зародыша.

$n = 1$ получается близкое к экспериментальному размеру (4–6 мкм) значение $\lambda_H = 3.1$ мкм (табл. 2). Возможно, при многократном воздействии лазера реализуются оба периода нанорельефа: на малом масштабе резонатора – благодаря первым импульсам, а на крупном масштабе – вследствие последующих. Тогда после окончания воздействия лазера в застывшем виде будет наблюдаться только крупный нанорельеф, а мелкий сотрется, что согласуется с результатами [2].

Для скорости сканирования стальной подложки 0.25 мм/с и частоте следования импульсов 100 Гц (когда шаг смещения $s = 2.5$ мкм) радиус застывшей на подложке капли составляет $r = 0.5$ мкм [2], а в расчетах по формуле (5) при номере гармоники $n = 1$ получаем $r = 0.02$ мкм (для стали), что сильно занижает результаты [2]. Если в качестве размера резонатора s выбрать диаметр лазерного луча 200 мкм, то из (5) при $n = 1$ получим $r = 0.37$ мкм, что хорошо совпадает с экспериментом [2].

Таблица 2. Сопоставление экспериментальных данных с расчетными

Источник	Поперечный масштаб λ_H нанорельефа (сталь), мкм	Радиус r застывшей нанокапли (сталь), мкм	Поперечный масштаб λ_H нанорельефа (CuCr–бронза, 0.85 Дж/см^2), мкм	Радиус r застывшей нанокапли (CuCr–бронза, 0.85 Дж/см^2), мкм
Данные эксперимента [2]	4–6	0.5	2–3	0.3
Расчет по механизму [13, 22, 23] при $n = 1$ (ширина резонатора s равна сдвигу пятна)	0.7 по (4) при $s = 10$ мкм	0.02 по (5) при $s = 2.5$ мкм	1.24 по (4) при $s = 10$ мкм	0.075 по (5) при $s = 20$ мкм
Расчет по механизму [13, 22, 23] (ширина резонатора s равна диаметру пятна)	3.1 ($n = 1$) по (4) при $s = 200$ мкм	0.37 ($n = 1$) по (5) при $s = 200$ мкм	4 ($n = 1$) по (4), 2.3 ($n = 2$) по (4) при $s = 200$ мкм	0.35 ($n = 1$) по (5), 0.17 ($n = 2$) по (5) при $s = 200$ мкм
Оценка [4] $\lambda_H = 2\pi(\sigma x/P_k)^{1/2}$	4.5	–	7.3	–
Оценка [18] $\lambda_H = \frac{4}{3}\pi\left(\frac{\sigma x}{\dot{\sigma}_T \dot{T}_x}\right)^{1/2}$	1.6	–	7.3	–

Как отмечено в [2], при сканировании лазером с шагом 10–20 мкм на бронзовой поверхности появлялись застывшие капли диаметром $2r = 600$ нм (при 0.85 Дж/см^2) на “ножках” высотой 1 мкм и диаметром их оснований 350–600 нм. Амплитуда застывших колебаний сопоставима с длиной волны, т.е. они нелинейны. В этом случае расстояние между ножками капель составило 2–3 мкм. Глубина расплава меди (в силу схожих с бронзой физических параметров) $x = 900$ нм. Из (4), когда в качестве характерного размера резонатора принимается сдвиг лазерного пятна ($s = 20$ мкм), получаем $\lambda_H \sim 1.24$ мкм ($n = 1$), а если диаметр лазерного пятна $s = 200$ мкм, то $\lambda_H \sim 4$ мкм ($n = 1$) и $\lambda_H \sim 2.3$ мкм ($n = 2$). Последнее значение близко к экспериментальному (см. табл. 2).

Пространственная плотность застывших капель на ножках растет от нескольких единиц до 20 шт. на 100 мкм^2 поверхности при повышении плотности лазерной энергии от 0.3 до 0.85 Дж/см^2 [2]. При дальнейшем повышении плотности энергии поверхностная плотность структур начинает снижаться. Из (6) видно, что с увеличением энергии в 2.8 раза радиус капли должен уменьшаться во столько же раз. В формуле (5) это объясняется переходом от номера гармоники $n = 1$ к $n = 2$ или $n = 3$ и приводит к уменьшению радиуса капли в 2.1 раза или в 2.9 раза соответственно. Увеличение энергии или уменьшение радиуса капли, по данным эксперимента, в 2.8 раза должно вызывать уменьшение размера поперечного рельефа в 2.16 раза ($r \sim \lambda_H^{4/3}$), т.е. пространственная плотность пучностей возрастает в 2.16 раза (с 9 до 20 шт. на 100 мкм^2). Далее по формуле (4) при переходе от номера гармоники $n = 1$ к $n = 2$ или $n = 3$ длина волны λ_H уменьшается в 1.7 или в 2.24 раза. Однако переход к $n = 3$ дает слишком большую ошибку в размерах нанокапель бронзы по сравнению с экспериментальным значением, поэтому предпочтительнее допустить переход к $n = 2$ (табл. 2). Дальнейшее увеличение энергии свыше 0.85 Дж/см^2 приводит не только к росту пространственной плотности пучностей капиллярных волн, но и к росту вероятности срыва с них капель, поэтому пространственная плотность капель, застывших на ножках, может падать, что и зафиксировано в экспериментах [2]. Можно также допустить, что при низких энергиях из пучностей не всегда образуется застывшая капля, а при повышенных энергиях (но менее 0.85 Дж/см^2) вероятность ее образования увеличивается. Поэтому пространственная плотность застывших капель при увеличении энергии в 2.8 раза должна возрастать больше, чем в 2.16 раза, что не противоречит эксперименту [2].

Расчетный диаметр капли бронзы (при выборе шага сканирования в качестве характерного размера резонатора $s = 20$ мкм и с учетом данных из табл. 1 для Cu вместо бронзы) по формуле (5) составляет 150 нм ($n = 1$), что в четыре раза меньше экспериментального результата 600 нм из [2] (при 0.85 Дж/см^2). Если в качестве s взять диаметр лазерного луча 200 нм, то диаметр капли составит 700 нм ($n = 1$) или 336 нм ($n = 2$), что удовлетворительно совпадает с экспериментом. Тем не менее если для стали ($n = 1$) расчет дает незначительное занижение результата, то для бронзы ($n = 1$), против ожиданий, заметно незначительное завышение результата (см. табл. 2). Поэтому разумно предположить, что для бронзы надо выбирать $n = 2$, чтобы ошибки для обоих материалов были одного знака. Возможно, источником этой ошибки как со сталью, так и с бронзой являются недостаточная строгость выполнения приближений $x \ll \lambda_H$ в формулах (2)–(5) или нелинейные эффекты при больших амплитудах капиллярных волн. Кроме того, дополнительной причиной ошибок именно для бронзы являлась замена ее свойств на свойства меди. Наконец, источником ошибок для обоих материалов может служить тот факт, что лазерное пятно круглое, а при выводе формул рассматривалась теория одномерного резонатора, которая справедлива для параллельных противоположных границ пятна. Однако надо отметить, что в [2] на исходной поверхности мишени наблюдалась череда параллельных борозд, возникших при изготовлении мишени. Поэтому те борозды, которые располагались вблизи противоположных границ лазерного пятна, могли формировать параллельные стенки резонатора ванны жидкого расплава. Также при многократном воздействии лазерными импульсами волны деформации могут взаимодействовать уже с ранее возникшими и застывшими параллельными гребнями капиллярных волн вблизи противоположных краев пятна. Причем самые первые (затравочные) гребни могли возникнуть на мелком масштабе резонатора, обусловленном эффектом сканирования, а следы от них потом стерлись.

В [7] радиус фрагмента диспергации обратно пропорционален интенсивности импульса (для $\tau = 150$ мкс $r = 100$ нм при $I = 10^9$ Вт/м^2 и 10 нм при 10^{10} Вт/м^2), но не зависит от его длительности. В своей первой части это утверждение согласуется с формулой (6), где $r \sim I^{-1}$, а во второй части противоречит (6), где $r \sim t^{-1/2}$. Дело в том, что в [7] длительность лазерного импульса τ превышает характерное время образования и схлопывания газовой каверны t_c над локальным местом нагрева мишени $\tau \gg t_c$ (рис. 3б). Каверну или полость порождает плазменное образование при лазерном пробое [26]. Действительно, характерное время t_c оценивается формулой Рэлея [26, 27], из которой для пустой полости радиусом R_l (R_l не меньше типичного размера лазерного пятна 100 мкм [2]) при внешнем давлении $P_0 = 1$ атм и плотности воздуха вокруг каверны $\rho_0 = 1.2$ кг/м^3 время схлопывания составляет $t_c \approx (0.915\text{–}1.83)R_l\sqrt{\rho_0/P_0} \sim 1$ мкс. Даже если учесть, что полость перед схлопыванием сначала расширяется, то и в этом случае ее линейный

размер превысит исходный R_{l0} лишь на порядок – $R_{l\max} = R_{l0}\left[\left(P_0 + c_0\sqrt{\rho_c E_b / 8\pi R_{l0}^3}\right)\Big/P_0\right]^{1/3\gamma}$ [26], т.е. $t_c \sim 10$ мкс. Здесь c_0 и ρ_c – скорость звука и критическая плотность окружающей среды; E_b – энергия кавитационной полости (около 3% от энергии плазмы); $\gamma = 5/3$ – показатель адиабаты атмосферы внутри полости. Таким образом, в [7] процесс диспергации запускается еще до окончания подвода энергии излучения (рис. 3б). Напротив, формула (6) описывает случай, когда длительность импульса (например, как в [2], где $\tau = 10$ нс) намного меньше t_c, т.е. когда вся энергия перед схлопыванием каверны уже подведена к объему расплава (см. рис. 3а).

Согласно сформулированным ранее условиям, характерное время застывания нанокапель на ножках t_z должно быть меньше времени их колебания: $t_z \ll r/c \sim 10^{-10}$ с. Также для застывания капиллярных волн в виде нанорельефа на поверхности мишени необходимо, чтобы их характерный период $t_k \sim \lambda_H/c$ был гораздо больше характерного времени t_z застывания расплава в гребне капиллярной волны: $t_k \gg t_z$ (см. рис. 3). Для сохранения нанорельефа вовсе не обязательно, чтобы расплав застыл на всю глубину, а достаточно, чтобы сформировалась твердая аморфная корка на его поверхности (см. рис. 2). Толщина корки определяется размером зародыша кристалла. По данным [14], для схожих с [2] параметров лазерного излучения размер зародыша кристаллизации, согласно формуле (7), для бронзы и для стали равен $R_z \sim 0.05$ и 0.24 нм соответственно. Это гораздо меньше характерных масштабов капиллярных волн (около 1 мкм) и радиусов капель (около 300 нм) в [2], т.е. первое необходимое условие выполняется с большим запасом. Характерное время t_z оценивается по преобладающему виду теплопередачи и может быть обусловлено теплопроводностью твердой корки в окружающую атмосферу, а также тепловым излучением расплава. Оценки показывают, что самая интенсивная теплопередача происходит посредством теплопроводности, поэтому ее характерное время $t_z = (R_z)^2/a_m$ является лимитирующим. Данная оценка получена по аналогии между радиусом диффузии и распространением потока тепла, отводимого от застывающего расплава. Итак, вместо $t_k \gg t_z$ имеем $\lambda_H/c \gg R_z^2/a_m$, тогда даже при самых малых волнах $\lambda_H \sim 1$ мкм получим равносильное неравенство $10^{-10} \gg 10^{-13}$ с, т.е. второе необходимое условие выполняется также с большим запасом (см. рис. 3а).

Для сравнения в табл. 2 приводятся результаты расчетов периода нанорельефа, сделанных с помощью оценки [4] при критическом давлении паров $P_k \sim 10$ атм. Кроме того, в табл. 2 даны результаты расчетов λ_H по оценочной формуле [18], где производная $d\sigma/dT$ заменялась на отношение приращений σ и T, а производная $dT/dx \approx (T_2 - T_1)/x$ оценивалась между верхней и нижней границами расплава соответственно для температур кипения T_2 (2870 и 2543°C) и плавления T_1 (1550 и 1150°C) металлов (Fe и Cu) по данным [28]. Видно, что эти формулы из [18] и [4] хуже описывают эксперимент [2] (плохо согласуются между собой для стали и с экспериментом для бронзы) по сравнению с формулами [13, 22, 23] (при $s = 200$ мкм). Кроме того, формулы [18] и [4] не могут объяснить изменений масштаба нанорельефа при изменении интенсивности или длительности лазерного импульса.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты расчетов, выполненных с помощью капиллярно-волнового механизма, дают удовлетворительное сопоставление с экспериментами [2] при выборе диаметра ванны расплава, ограниченного лазерным пятном, в качестве линейного масштаба резонатора. В то же время это не противоречит возможности образования наноструктур на более мелких масштабах по механизму образования кристаллических зародышей, поскольку подтвердилось выполнение необходимых для этого условий. В самом деле, в условиях экспериментов [2] (и сопоставимых с ними [14]) размеры кристаллических зародышей и время их образования оказались на несколько порядков меньше характерных размеров и времен застывания капиллярных волн. Расчеты размеров структур по формулам других механизмов образования нанорельефа из [18] и [4] показали значительно худшее совпадение с экспериментальными данными для бронзы и плохое согласование между собой для стали.

В рамках капиллярно-волнового механизма с учетом иерархии характерных времен удалось объяснить эволюцию пространственных характеристик наноструктур как для коротких лазерных импульсов $\tau \sim 10$ нс [2], так и для длинных $\tau \sim 0.1$ мс [7] в зависимости от их энергетических параметров. Основными временами, определяющими характер эволюционной зависимости, являются время схлопывания газовой каверны в окружающей среде и длительность лазерного импульса. В обоих случаях размеры наноструктур уменьшаются при увеличении подведенной энергии, но для длинных импульсов размеры наноструктур не зависят от длительности τ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Настулявичус А.А., Смирнов Н.А., Кудряшов С.И. и др.* Получение наночастиц из тонких пленок серебра при воздействии лазерных импульсов в воздухе // Квантовая электроника. 2018. Т. 48. № 3. С. 251.
2. *Миколуцкий С.И., Хомич Ю.В.* Влияние лазерного УФ-излучения наносекундной длительности на структуру и адгезионные свойства металлов и сплавов // ФММ. 2021. Т. 122. № 2. С. 159.

3. *Новиков И.А., Ножницкий Ю.А., Шибаев С.А.* Мировой опыт в исследовании и применении технологического процесса лазерной ударной обработки металлов (обзор) // Авиационные двигатели. 2022. № 2(15). С. 59.
4. *Ионин А.А., Кудряшов С.И., Левченко А.О. и др.* Гидродинамическая неустойчивость и самоорганизация субмикронного рельефа поверхности металлов при фемтосекундном лазерном облучении в жидкости // Письма в ЖЭТФ. 2017. Т. 106. Вып. 4. С. 247.
5. *Kirichenko N.A., Barmina E.V., Shafeev G.A.* Theoretical and Experimental Investigation of the Formation of High Spatial Frequency Periodic Structures on Metal Surfaces Irradiated by Ultrashort Laser Pulses // Phys. Wave Phenom. 2018. V. 26. № 4. P. 264.
6. *Ганин Д.В., Миколуцкий С.И., Токарев В.Н., Хомич В.Ю., Шмаков В.А., Ямщиков В.А.* Образование микронных и субмикронных структур на поверхности диоксида циркония при наносекундном лазерном воздействии // Квантовая электроника. 2014. Т. 44. № 4. С. 317.
7. *Пячин С.А., Пугачевский М.А.* Новые технологии получения функциональных наноматериалов: лазерная абляция, электроискровое воздействие. Хабаровск, 2013. 38 с.
8. *Струлева Е.В., Комаров П.С., Аширков С.И.* Поведение тантала вблизи критической точки при фемтосекундном лазерном нагреве // ТВТ. 2021. Т. 59. № 1. С. 148.
9. *Струлева Е.В., Комаров П.С., Ромашевский С.А., Евлашин С.А., Аширков С.И.* Фемтосекундная лазерная абляция железа // ТВТ. 2021. Т. 59. № 5. С. 663.
10. *Хомич В.Ю., Ямщиков В.А.* Основы создания систем электроразрядного возбуждения мощных CO_2-, N_2- и F_2-лазеров. М.: Физматлит, 2014. 168 с.
11. *Хомич В.Ю., Шмаков В.А. Механизмы и модели прямого лазерного наноструктурирования материалов // УФН. 2015. Т. 185. С. 489.*
12. *Варюхин А.Н., Захарченко В.С., Рахманкулов Д.Я. и др.* Традиционные, гибридные и электрические силовые установки самолетов местных воздушных линий // Авиационные двигатели. 2022. № 1(14). С. 19.
13. *Кулешов П.С., Кузнецов А.М., Кулешова Ю.Д.* Диспергация металлических нанопленок при лазерном сканировании // Вестн. МГОУ. Сер. Физика–математика. 2022. № 1. С. 41.
14. *Миколуцкий С.И., Шмаков В.А., Хомич В.Ю., Ямщиков В.А.* Зарождение и рост наноструктур на поверхности твердого тела, оплавленного лазерным импульсом // Российские нанотехнологии. 2011. Т. 6. № 11–12. С. 65.
15. *Токарев В.Н., Хомич В.Ю., Шмаков В.А., Ямщиков В.А.* Возможность прямого лазерного наноструктурирования поверхности без оплавления материала // ФХОМ. 2008. № 4. С. 15.
16. *Хомич В.Ю., Шмаков В.А.* Образование периодических наноразмерных структур на поверхности твердых тел при фазовых и структурных превращениях // Докл. РАН. 2012. Т. 446. № 3. С. 276.
17. *Лапшин К.Э., Обидин А.З., Токарев В.Н., Хомич В.Ю., Шмаков В.А., Ямщиков В.А.* Прямое лазерное наноструктурирование поверхности алмазных пленок и керамики нитрида кремния наносекундными импульсами излучения F_2-лазера // Российские нанотехнологии. 2007. № 11–12. С. 50.
18. *Emel'yanov V.I.* Kuramoto-Sivashinsky Equation for Modulation of Surface Relief of Molten Layer and Formation of Surface Periodic Microstructures under Pulsed Laser Irradiation of Solids // Las. Phys. 2011. V. 21. Is. 1. P. 222.
19. *Иногамов Н.А., Жаховский В.В., Хохлов В.А.* Динамика абляции золота в воду // ЖЭТФ. 2018. Т. 154. № 1(7). С. 92.
20. *Inogamov N.A., Khokhlov V.A., Petrov Yu.V., Zhakhovsky V.V. Hydrodynamic and Molecular-dynamics Modeling of Laser Ablation in Liquid: from Surface Melting Till Bubble Formation // Opt. Quantum Electron. 2020. V. 52. № 2. Art. 63. 24 pp.*
21. *Хомич В.Ю., Шмаков В.А.* Образование наноструктур на поверхности твердых тел при лазерном плавлении // Докл. РАН. 2011. Т. 438. № 4. С. 460.
22. *Кулешов П.С.* О диспергировании наночастиц алюминия // Горение и взрыв. 2019. Т. 12. № 3. С. 118.
23. *Кулешов П.С., Кобцев В.Д.* Распределение кластеров алюминия и их воспламенение в воздухе при диспергации наночастиц алюминия в ударной волне // ФГВ. 2020. Т. 56. № 5. С. 80.
24. *Гуренцов Е.В., Кулешов П.С., Михеева Е.Ю.* К вопросу об аномальном поведении оптической плотности железных наночастиц при их нагреве ударной волной // ТВТ. 2022. Т. 60. № 2. С. 213.
25. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теоретическая физика. Учеб. пособ. Т. 6. Гидродинамика. 3-е изд., перераб. М.: Наука, 1986. 738 с.
26. *Серков А.А., Кузьмин П.Г., Раков И.И., Шафеев Г.А.* Влияние лазерного пробоя на фрагментацию наночастиц золота в воде // Квантовая электроника. 2016. Т. 46. № 8. С. 713.
27. *Красильников В.А., Крылов В.В.* Введение в физическую акустику: учеб. / Под ред. Красильникова В.А. М.: Наука, 1984. 400 с.
28. Физические величины. Спр. / Под ред. Григорьева И.С., Мейлихова Е.З. М.: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 121–130

УДК 544.032.65; 57.017.642

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ОПТИМАЛЬНЫХ ПАРАМЕТРОВ ВОЗДЕЙСТВИЯ ПРИ МИКРОДИССЕКЦИИ БЛЕСТЯЩЕЙ ОБОЛОЧКИ ЭМБРИОНА С ПОМОЩЬЮ ИНФРАКРАСНЫХ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ

© 2024 г. Д. С. Ситников[1, *], Д. Е. Мухдина[1], М. А. Филатов[1, 2], Ю. Ю. Силаева[1, 2]

[1]ФГБУН Объединенный институт высоких температур РАН (ОИВТ РАН) Москва, Россия

[2]ФГБУН Институт биологии гена РАН (ИБГ РАН), Москва, Россия

**E-mail: Sitnik.ds@gmail.com*

Поступила в редакцию 25.10.2023 г.
После доработки 05.12.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

В настоящей работе диссекция блестящей оболочки эмбриона мыши осуществлялась с использованием фемтосекундных лазерных импульсов инфракрасного диапазона спектра (длина волны излучения – 1028 нм, длительность – 280 фс, частота следования импульсов – 2.5 кГц). Работа посвящена исследованию с помощью оптической микроскопии зависимости ширины надреза D, формируемого лазерным излучением, от энергии E лазерных импульсов и скорости υ перемещения луча. Впервые показано, что одно и то же значение ширины надреза может быть получено при различном сочетании указанных параметров. Предложено аналитическое выражение для описания зависимости ширины формируемого надреза на блестящей оболочке $D(E, \upsilon)$ при заданной частоте следования лазерных импульсов 2.5 кГц. Определены границы применимости функционала $D(E, \upsilon)$, которые охватывают значительный диапазон скорости лазерного луча $0.25 \leqslant \upsilon \leqslant 100$ мкм/с, а также перекрывают диапазон энергий от минимальных значений, соответствующих началу появления надреза, вплоть до возникновения оптического пробоя водной среды $115 \leqslant E \leqslant 190$ нДж. Полученные результаты позволяют получить быструю оценку ширины планируемого надреза для любой комбинации параметров E и υ при микрохирургии блестящей оболочки эмбриона в рамках различных вспомогательных репродуктивных технологий.

DOI: 10.31857/S0040364424010147

ВВЕДЕНИЕ

Для борьбы с бесплодием, значительно распространенной проблемой в современном мире, применяется весь арсенал вспомогательных репродуктивных технологий (ВРТ): от культивирования эмбрионов *in vitro* до процедуры экстракорпорального оплодотворения, включая введение сперматозоида в цитоплазму ооцита (метод ИКСИ, от англ. ICSI – intra cytoplasmic sperm injection) сквозь защитную оболочку. Данная оболочка, называемая блестящей оболочкой эмбриона (*zona pellucida*, ZP), представляет собой гликопротеиновую структуру, окружающую ооцит на ранних стадиях развития, и выполняет роль барьера для защиты эмбриона от микроорганизмов, вирусов и иммунных клеток, которые могут присутствовать в яйцеводе [1, 2]. Важнейшим этапом развития, необходимым для имплантации эмбриона в эндометрий матки, является его хетчинг, или вылупление, т.е. высвобождение эмбриона из блестящей оболочки. Существует ряд факторов, при наличии которых эмбрион может испытывать затруднение с самостоятельным вылуплением. В клиниках репродуктивной медицины для минимизации рисков невылупления эмбриона была разработана технология вспомогательного хетчинга, когда целостность оболочки эмбриона нарушается искусственным образом (химически, механически либо с помощью лазерного излучения). В последнее десятилетие широкое распространение получил метод микрохирургии ZP с использованием инфракрасных лазерных диссекторов миллисекундной длительности – вспомогательный лазерный хетчинг (ВЛХ). Обзор всей совокупности методов, применяемых во вспомогательных репродуктивных технологиях, можно найти в работе [3]. В результате поглощения лазерного импульса происходит локальное разрушение белков

блестящей оболочки вследствие нагрева области воздействия до температур в несколько сотен градусов [4]. Одним из вариантов исполнения данной процедуры является локальное истончение блестящей оболочки (рис. 1а); также возможно формирование сквозного отверстия в ней (рис. 1б).

Размер области диссекции в результате воздействия одиночным миллисекундным лазерным импульсом составляет от 5 до 20 мкм, что существенно превышает размер сфокусированного лазерного луча (~3 мкм). Это обусловлено теплопроводностью водной среды, в которую помещен эмбрион, и большой длительностью лазерного импульса. Технология ВЛХ несет риск термического повреждения клеток эмбриона, прилегающих к его оболочке, и предполагает возможность диссекции на ранних стадиях развития эмбриона, когда перивителлиновое пространство (расстояние между прозрачной оболочкой и клетками эмбриона) достаточно велико (~20 мкм) [6].

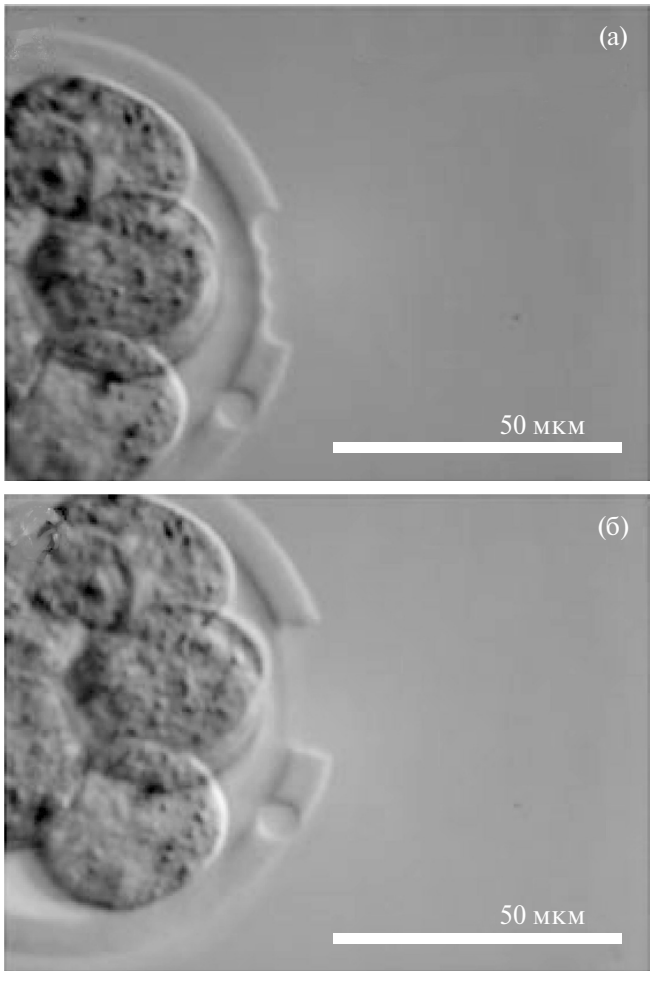

Рис. 1. Примеры истончения (а) и формирования (б) сквозного отверстия в блестящей оболочке [5]: система Fertilase™ (MTM, Germany), 1.48 мкм, мощность – 100 мВт, длительность импульса – 5 мс, размер одиночной перфорации – 5 мкм.

Для решения данной проблемы в настоящей работе предлагается использовать фемтосекундный лазерный источник излучения. Такие лазеры применяются в различных областях науки: от создания источников ТГц-излучения и проведения исследований с их использованием [7–10] до изучения прочностных свойств материалов [11–15] и процессов сверхбыстрого переноса энергии в веществе в сильно неравновесном состоянии [16, 17], а также от инъекций на клеточном уровне [18–20] до офтальмологии [21, 22]. Фемтосекундные лазеры нашли также широкое применение в биологии развития в целом и вспомогательных репродуктивных технологиях в частности (см. обзоры [23–26]). Они представляют перспективную альтернативу миллисекундным диссекторам, позволяющую устранить указанные выше недостатки благодаря фундаментальным особенностям взаимодействия с веществом. Нелинейные механизмы поглощения фемтосекундного лазерного излучения (например, многофотонное поглощение) в водной среде [27, 28] позволяют локализовать область воздействия. В результате размер формируемого надреза на блестящей оболочке может быть меньше геометрического размера области фокусировки лазерного луча, что значительно повышает точность микрохирургических процедур. Кроме того, предельно короткая длительность в совокупности с высокой мощностью импульса обеспечивают минимальный нагрев среды в области воздействия [29]. Это, в свою очередь, позволяет повысить безопасность лазерной микрохирургии эмбриона и расширить область применения фемтосекундных лазеров в ВРТ. Так, технологии управляемого ВЛХ [30] и бесконтактной лазерной маркировки преимплантационного эмбриона с целью исключения риска перепутывания [31] являются примерами их успешного применения.

Возможность применения фемтосекундных лазерных импульсов как видимого, так и инфракрасного диапазонов спектра была продемонстрирована ранее [32, 33]. Однако вопрос влияния параметров лазерного излучения на формируемый надрез блестящей оболочки был рассмотрен только для импульсов видимого диапазона ($\lambda = 514$ нм) [34]. Было показано, что надрез заданной ширины может быть получен при различном сочетании таких параметров, как энергия фемтосекундных импульсов E и скорость перемещения лазерного луча υ. Целью настоящей работы является изучение влияния данных параметров на ширину формируемого надреза при использовании фемтосекундных импульсов инфракрасного диапазона, а также выбор оптимальных значений для выполнения микрохирургических

процедур на блестящей оболочке эмбриона в рамках вспомогательных репродуктивных технологий.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Микрохирургия эмбрионов выполнялась на установке “Фемтосекундный лазерный скальпель–оптический пинцет”, представленной на рис. 2 [35, 36]. В качестве лазерного скальпеля использовалось излучение фемтосекундного лазерного источника ТЕТА (ООО “Авеста Проект”), генерирующего лазерные импульсы со следующими параметрами: длительность $\tau = 280$ фс, энергия $E = 330$ мкДж, длина волны излучения $\lambda = 1028$ нм, частота следования импульсов $f \leqslant 2.5$ кГц. Отличие от установки, использованной в предыдущих исследованиях [35–37], состоит в том, что из схемы был изъят кристалл, преобразующий излучение во вторую гармонику (514 нм). На выходе из лазера был собран узел поляризационного ослабителя, состоящий из полуволновой пластинки и призменного поляризатора. Полуволновая пластина была закреплена на моторизованном поворотном столике 8MR151 (Standa), подключенном к персональному компьютеру, обеспечившему возможность удаленной регулировки энергии лазерных импульсов. Для контроля значений энергии лазерных импульсов использовался фотодиод DET36A2 (Thorlabs Inc.), часть лазерного пучка на который ответвлялась тонкой стеклянной пластинкой (отражение Френеля). Сигнал с фотодиода оцифровывался с помощью осциллографа Tektronix TDS 5054. Лазерное излучение заводилось в правый боковой порт инвертированного микроскопа Olympus IX–71 и фокусировалось микрообъективом 20×UPlanFL (Olympus) с числовой апертурой $NA = 0.5$. Узел телескопа, установленный на пути лазерного излучения до заведения в микроскоп, служил для согласования диаметра лазерного пучка с апертурой микрообъектива. Задняя линза телескопа была закреплена на линейном моторизованном столике 8MT173-25 (Standa). Вторая функция телескопа заключалась в регулировке расходимости лазерного излучения за счет изменения расстояния между линзами. Для калибровки амплитуды сигнала фотодиода на предметный столик микроскопа SCAN IM 120 × 80 (Märzhäuser Wetzlar) устанавливался измеритель мощности, регистрирующий лазерное излучение на выходе микрообъектива микроскопа. Измеритель состоял из фотодиодного детектора S120VC и консоли PM100D (Thorlabs Inc.).

Микрохирургия эмбрионов выполнялась в специальных чашках Петри со стеклянным дном (кат. № 200350, SPL Lifesciences). Эмбрионы помещались в каплю питательной среды и покрывались слоем минерального масла, препятствовавшего испарению. Чашка устанавливалась на моторизованном предметном столике микроскопа. Диссекция ZP эмбриона осуществлялась перемещением

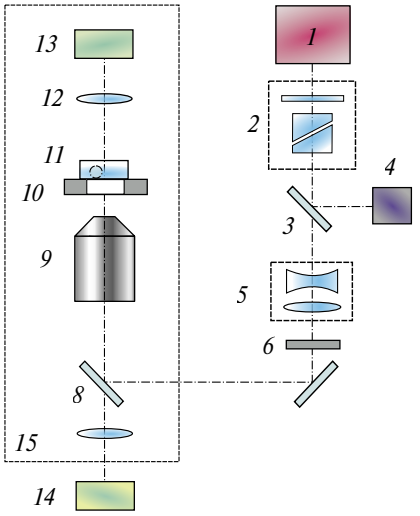

Рис. 2. Схема экспериментальной установки: *1* – фемтосекундный лазер; *2* – узел ослабления лазерного излучения; *3* – стеклянная пластина; *4* – фотодиод; *5* – узел телескопа; *6* – механический прерыватель лазерного излучения; *7*, *8* – зеркала на длину волны лазерного излучения; *9* – микрообъектив; *10* – моторизованный предметный столик; *11* – чашка Петри с эмбрионами; *12* – конденсор микроскопа; *13* – осветитель; *14* – видеокамера; *15* – инвертированный микроскоп.

последнего относительно неподвижного лазерного луча. Излучение фокусировалось с помощью микрообъектива в плоскости максимального сечения эмбриона – в “экваториальной” плоскости. Изображение эмбриона регистрировалось КМОП-камерой (КМОП – комплементарная структура на транзисторах металл–оксид–полупроводник; англ. CMOS) DFK 72AUC02 (the Imaging Source). Масштаб переноса изображения был предварительно оценен с помощью оптической меры ГОСТ 7513-56, установленной на предметный столик микроскопа, и составил $K = 0.1082$ мкм/пиксель.

Для автоматизации процедуры микрохирургии использовалось программное обеспечение, написанное в среде LabView (National Instruments). Оно позволяло оператору управлять такими параметрами, как энергия, частота следования импульсов и расходимость лазерного излучения, а также задавать траекторию движения лазерного луча поверх изображения эмбриона, регистрируемого КМОП-камерой. С помощью программного обеспечения осуществлялось управление включением/выключением лазерного излучения, синхронизованного с движением моторизованного предметного столика.

ОЦЕНКА РАЗМЕРА ЛАЗЕРНОГО ПУЧКА

Для оценки плотности энергии и интенсивности сфокусированного лазерного излучения

необходимо знать радиус перетяжки лазерного пучка r_0. Пространственное распределение плотности энергии на поверхности мишени определяется функцией Гаусса

$$F(r) = \frac{E}{\pi r_0^2} e^{-(r/r_0)^2},$$

где E – энергия лазерного импульса, r – радиальная координата. Когда плотность энергии F превышает пороговое значение абляции материала F_{abl}, происходит унос материала мишени с последующим формированием кратера радиусом r_{abl}:

$$F(r_{abl}) = \frac{E}{\pi r_0^2} e^{-\left(\frac{r_{abl}}{r_0}\right)^2} = F_{abl},$$

откуда зависимость квадрата радиуса кратера абляции r_{abl}^2 представляет собой линейную регрессию по переменной $\ln(E)$ [38]:

$$r_{abl}^2(E) = r_0^2 \ln E - \ln\left(\pi r_0^2 F_{abl}\right). \quad (1)$$

Измерив размеры кратеров r_{abl} для серии лазерных импульсов с различной энергией E и вычислив коэффициенты регрессии $\alpha_1 = r_0^2$ и $\alpha_2 = \ln\left(\pi r_0^2 F_{abl}\right)$, можно определить радиус перетяжки лазерного пучка r_0 и пороговое значение плотности энергии абляции материала мишени F_{abl}. Мишень полированного монокристаллического арсенида галлия является удобным образцом для исследования, поскольку кратеры на его поверхности при превышении порогового значения $F_{abl} > 0.2$ Дж/см^2 хорошо различимы.

Среда для культивации эмбриона представляет собой водную среду с небольшим добавлением солей и компонентов, поддерживающих требуемую кислотность и осмолярность. Поскольку значение показателя преломления среды не отличается существенно от значения для воды (1.336 против 1.333; рефрактометр ИРФ 454Б2М), определение параметра лазерного пучка r_0 было выполнено в воде. Мишень GaAs была установлена на дне чашки Петри на проставки-спейсеры толщиной ~100 мкм и покрыта дистилированной водой (рис. 3а). Далее выполнялась фокусировка микрообъектива для достижения резкого изображения поверхности мишени на экране персонального компьютера с последующей настройкой лазерного телескопа для получения на поверхности мишени кратера круглой формы. Полученная зависимость размера кратера абляции от энергии лазерных импульсов вида $r_{abl}^2 = f\left(\ln(E)\right)$ представлена на рис. 3б. Сфокусированный пучок лазерного излучения имел слегка эллиптическую форму, а его размеры, вычисленные на основе коэффициентов регрессии, вдоль большой и малой осей составили $r_{0x} = 1.6$ и $r_{0y} = 1.5$ мкм соответственно.

ОБЪЕКТ ИССЛЕДОВАНИЯ И МЕТОДИКА ОЦЕНКИ ШИРИНЫ НАДРЕЗА

Лазерной микрохирургии блестящей оболочки подвергались эмбрионы мыши, находящиеся на двух- или четырехклеточной стадии развития (процесс подготовки эмбрионов стандартен и изложен подробно в [39]). Морфология эмбрионов обеспечивала достаточно большое расстояние (около 10–15 мкм) между клетками эмбриона и его оболочкой, облегчая проведение микрохирургических

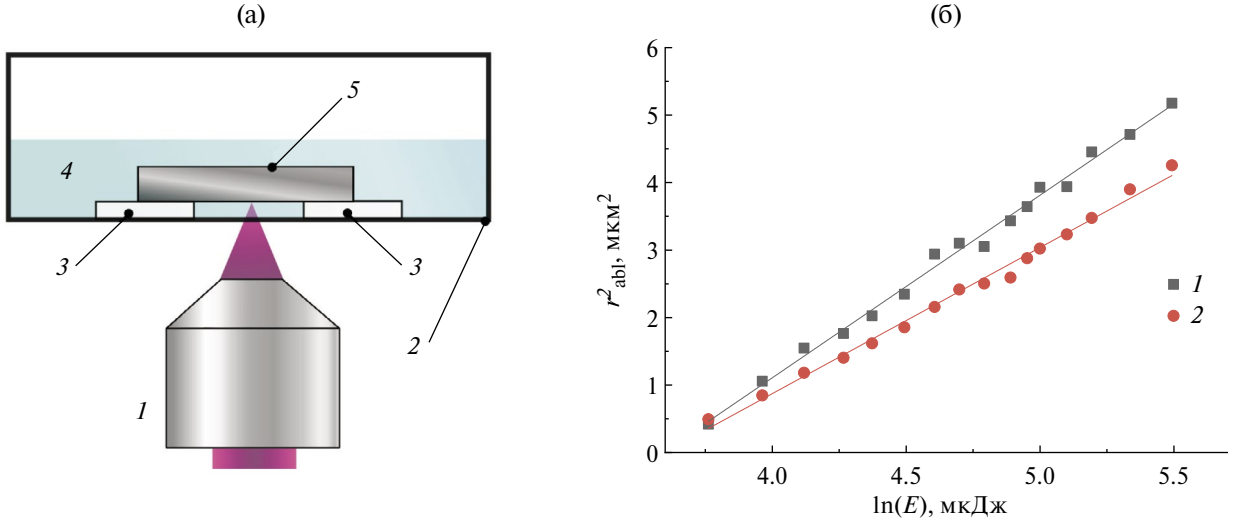

Рис. 3. Измерение размера лазерного пятна: (а) мишенный узел: *1* – микрообъектив, *2* – чашка Петри со стеклянным дном, *3* – проставки, *4* – вода, *5* – мишень; (б) – зависимость квадрата размера кратера r_{abl}^2 от логарифма энергии $\ln(E)$: *1*, *2* – размеры вдоль большой и малой осей кратера.

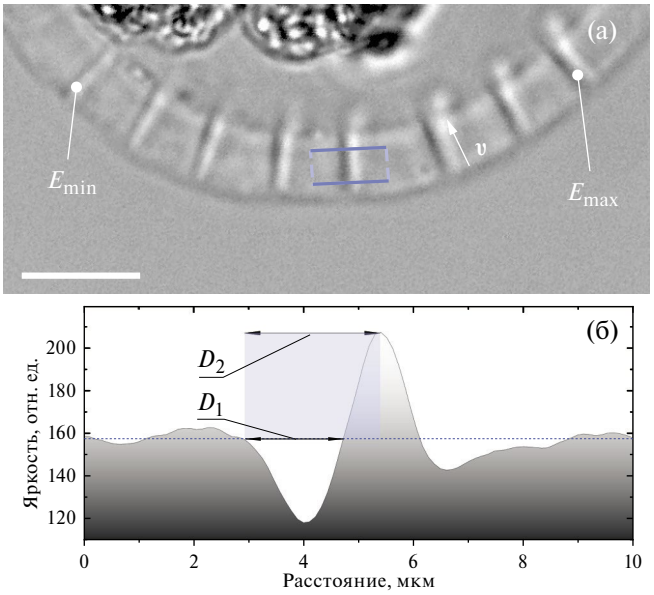

Рис. 4. Микрофотография (а) фрагмента блестящей оболочки эмбриона после выполнения микрохирургии при различных энергиях лазерных импульсов (v = 0.01 мм/с, f = 2.5 кГц); E_{min} = 134 нДж, E_{max} = 190 нДж; прямоугольник ограничивает область для построения профилей сечения; (б) осредненный профиль сечения: D_1, D_2 — ширины надреза, измеренные по среднему уровню яркости блестящей оболочки и от максимума светлого "бортика" на профиле соответственно.

процедур. Диссекция блестящей оболочки осуществлялась последовательностью лазерных импульсов при линейном перемещении эмбриона относительно лазерного луча с заданной скоростью υ. В собранной экспериментальной схеме лазерный луч оставался неподвижен, а перемещение эмбриона с заданной скоростью осуществлялось с помощью моторизованного двухкоординатного предметного стола микроскопа. Для простоты восприятия здесь и ниже по тексту под скоростью луча υ понимается скорость движения эмбриона относительно неподвижного луча.

На рис. 4а представлена микрофотография фрагмента оболочки эмбриона после выполнения серии надрезов при различной энергии лазерных импульсов E. Оператор задавал набор траекторий в виде линий, направленных к центру эмбриона и перпендикулярных к поверхности блестящей оболочки.

Перемещение лазерного луча относительно эмбриона осуществлялось в радиальном направлении: от внешней границы блестящей оболочки эмбриона к внутренней. Скорость луча при движении вдоль траектории v = 0.01 мм/с и частота импульсов f = 2.5 кГц в данной серии экспериментов оставались неизменными. При перемещении эмбриона от одной траектории к другой (холостое перемещение при выключенном излучении) скорость составляла 0.05 мм/с во избежание больших ускорений при начале и окончании движения. Расстояние между надрезами выбиралось не менее 10 мкм.

Для определения ширины надреза строился профиль сечения его изображения, расположенный перпендикулярно надрезу. Профиль сечения представляет собой зависимость яркости от пространственной координаты (рис. 4б). Область надреза выглядит на профиле сечения как "канавка" с уровнем яркости, опускающимся до значений ~120, и "бортиком", достигающим значений 210. Минимальное и максимальное значения яркости (0 и 255) соответствуют черному и белому цвету на микрофотографии. При этом средний уровень яркости блестящей оболочки вне области лазерного воздействия соответствует диапазону значений 150–160. Формирование светлого "бортика" предположительно связано с процессами преломления и полного внутреннего отражения. При распространении света от осветителя микроскопа сквозь блестящую оболочку эмбриона свет отражается от стенки надреза и попадает в регистрирующую изображение КМОП-камеру. Противоположная стенка надреза остается при этом в тени, а ее положение характеризуется темной областью на изображении. При уменьшении ширины надреза количество отраженного стенкой света уменьшается и яркость светлого бортика снижается. Результатом измерения ширины надреза служила величина D_{av}, равная полусумме значений D_2 и D_1 (рис. 4б), а их полуразность определяла точность измерения ΔD (показана отрезками на рис. 5 и 6 в виде погрешности). Осреднение осуществлялось по 50 сечениям, обозначенным прямоугольником на рис. 4а.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В проведенных ранее исследованиях [31, 39] значение скорости v = 0.01 мм/с было выбрано с точки зрения времени, затрачиваемого на выполнение микрохирургии блестящей оболочки. Такое значение скорости позволяло избежать больших ускорений эмбриона, лежащего свободно на дне перемещаемой чашки Петри. При этом время на выполнение надреза в рамках процедуры вспомогательного хетчинга эмбриона было достаточно мало и не превышало 2–3 с, что позволяло минимизировать пребывание группы экспериментальных эмбрионов вне инкубатора. Зависимость ширины надреза от энергии лазерных импульсов была получена ранее для скорости v = 0.01 мм/с (см. [34], λ = 514 нм). В настоящей работе исследование воздействия инфракрасных импульсов (λ = 1028 нм) дополнено измерениями как

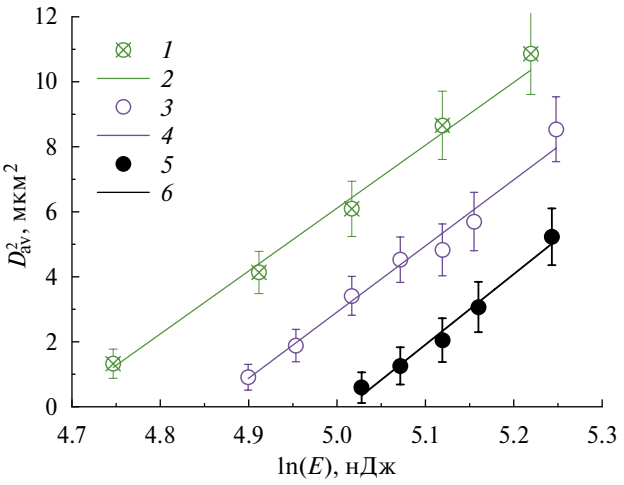

Рис. 5. Зависимости квадрата ширины надреза D_{av}^2 от логарифма энергии лазерных импульсов ln(E) при f = 2.5 кГц и различных скоростях перемещения: *1* – υ = 0.0025 мм/с, *3* – 0.01, *5* – 0.05; *2*, *4*, *6* – линейные аппроксимации.

при меньших (υ = 0.0025 мм/с), так и бóльших (υ = 0.05 мм/с) значениях скорости луча (рис. 5).

Надрезы на блестящей оболочке становятся видимыми при достижении энергией лазерных импульсов определенного значения E_{min}, которое тем больше, чем выше скорость перемещения луча. Максимально допустимые значения E_{max} определяются интенсивностью лазерных импульсов, вызывающих оптический пробой водной среды. Последний приводил к формированию кавитационного пузыря, который мог отбросить эмбрион в сторону. Снижение скорости относительно номинальной υ = 0.01 мм/с позволило сформировать видимые надрезы при меньшей энергии лазерных импульсов.

Особенностью воздействия фемтосекундных лазерных импульсов с длиной волны 1028 нм является достаточно узкий диапазон значений E_{max}/E_{min}. Если для видимого излучения (λ = 514 нм) данное соотношение составляло ~3 [30], то для λ = 1028 нм при υ = 0.01 мм/с $E_{max}/E_{min} \approx 1.5$. Минимальное значение энергии ИК-импульсов, необходимое для формирования надреза, превышает значение для излучения видимого диапазона (λ = 514 нм, υ = 0.01 мм/с) примерно в семь раз. Данное обстоятельство обусловлено совокупностью двух факторов: бóльшим размером перетяжки лазерного пучка r_0 для ИК-излучения и бóльшим значением интенсивности лазерного импульса, необходимого для инициации процесса многофотонного поглощения при представлении водной среды в виде аморфного диэлектрика [28, 29]. При значениях E_{max} > 200 нДж проявлялись признаки оптического пробоя в виде кавитационных пузырей.

Диссекция ZP эмбриона заключается в ее локальном разрушении в результате поглощения лазерного излучения. Взаимодействие фемтосекундного лазерного импульса со средой приводит к образованию “свободных” электронов в зоне проводимости в результате действия процессов многофотонной ионизации и туннельного эффекта Зенера [28, 40]. Вследствие нелинейности процесса поглощения электроны оказываются существенно локализованными в области фокусировки лазерного излучения. Одним из возможных механизмов разрушения белков, составляющих основу блестящей оболочки, является фотохимический эффект, приводящий либо к диссоциации молекул воды и созданию активных форм кислорода, разрушающих белки, либо к непосредственному нарушению связей (механизмы фемтосекундной нанохирургии клеток более подробно изложены в работах [28, 41]).

Ширина надреза определяется совокупностью параметров, включающих скорость υ перемещения лазерного пучка, радиус его перетяжки r_0, а также частоту следования импульсов f, определяющих их пространственное перекрытие при перемещении лазерного пучка по траектории: $D \sim Er_0 f/\upsilon$. Для определения оптимальных параметров лазерного воздействия при λ = 1028 нм проведена серия экспериментов для различных скоростей перемещения эмбриона υ при фиксированной частоте импульсов f. Ширина надреза блестящей оболочки D_{av} оценивалась по изложенной выше методике. Исследования проведены для трех значений энергии лазерных импульсов: E_1 = 136 нДж – энергия, близкая к минимальной, при которой на блестящей оболочке эмбриона заметен эффект лазерного воздействия при υ = 0.01 мм/с,

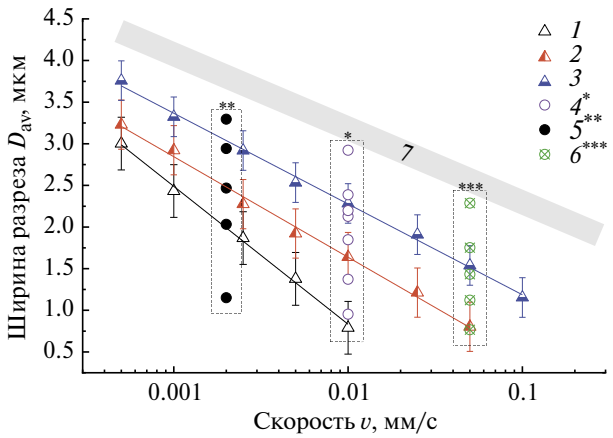

Рис. 6. Зависимости ширины надреза блестящей оболочки от скорости лазерного пучка $D_{av}(\upsilon)$ при f = 2.5 кГц и различных значениях энергии лазерного импульса: *1* – E = 136 нДж; *2* – 152; *3* – 174; *4** – 134, 141, 151, 159, 167, 173, 190; *5*** – 115, 135, 151, 167, 185; *6**** – 152, 159, 167, 174, 189; *7* – область оптического пробоя; данные для E*, E**, E*** взяты с рис. 5.

Коэффициенты линейной регрессии

Энергия E, нДж	136	154	174
β_1	-2.48 ± 0.14	-0.78 ± 0.09	0.10 ± 0.08
β_2	1.66 ± 0.05	1.20 ± 0.04	1.09 ± 0.02

$E_2 = 154$ нДж и $E_3 = 174$ нДж. Частота следования импульсов составляла $f = 2.5$ кГц. Зависимости $D_{av}(\upsilon)$ при заданной энергии E и фиксированной частоте следования лазерных импульсов f показаны на рис. 6 в виде маркеров; значения $D_{av}(\upsilon)$ и $D_{av}(E)$ демонстрируют неплохое согласие с точностью ~0.2 мкм. Линии – аппроксимации экспериментальных значений уравнением линейной регрессии по переменной $\lg(\upsilon)$:

$$D_{av}(\upsilon) = \beta 1 - \beta 2 \lg(\upsilon). \quad (2)$$

Значения коэффициентов β представлены в таблице.

Увеличение энергии лазерных импульсов на 13% и 28% относительно E_1 позволило повысить скорость луча относительно номинального значения $\upsilon = 0.01$ мм/с. Максимальная скорость υ, при которой формируется видимый надрез, увеличилась в пять раз для E_2; максимальное значение υ для E_3 в эксперименте достигнуто не было и предположительно составляет $\upsilon \sim 0.2$ мм/с для $D_{av} \approx 0.8$ мкм. Значение ширины $D_{av} \approx 0.8 \pm 0.2$ мкм является минимальным наблюдаемым в эксперименте при любых сочетаниях E и υ. Снижение энергии импульсов или увеличение скорости в попытке получить надрез меньшей ширины приводили к результату, неразличимому оптической системой микроскопа. Полученные результаты свидетельствуют о том, что применение фемтосекундных лазерных импульсов для микрохирургии блестящей оболочки эмбриона позволяют получить надрез, ширина которого меньше размера перетяжки лазерного пучка. Если рассматривать предельные значения сверху, то независимо от скорости υ максимально допустимая энергия для ИК-импульсов не превышала $E_{max} \leqslant 200$ нДж. При бóльших значениях проявлялись признаки оптического пробоя в виде кавитационных пузырей (область *7* на рис. 6).

Анализ полученных зависимостей показал, что заданное значение ширины надреза блестящей оболочки эмбриона можно получить при различных сочетаниях энергии лазерного импульса и скорости луча. Например, ширина $D \approx 1.5$ мкм может быть достигнута при следующем сочетании параметров: $E = 136$ нДж и $\upsilon = 0.004$ мм/с; $E = 152$ нДж и $\upsilon = 0.013$ мм/с; $E = 174$ нДж и $\upsilon = 0.05$ мм/с (данные представлены для $f = 2.5$ кГц и $r_0 = 1.56$ мкм). Указанные значения могут быть отмасштабированы для другой частоты f пропорциональным изменением скорости υ, например, для частоты $f = 5$ кГц значения υ нужно разделить на 2.

С практической точки зрения интерес представляет нахождение функции ширины надреза D от двух переменных: энергии E и скорости υ. Зависимость D от энергии лазерных импульсов E описывается уравнением (1), а от скорости луча υ – уравнением (2). При этом линии, апроксимирующие экспериментальные данные на рис. 6, имеют разный наклон, что свидетельствует о присутствии в зависимости $D(\upsilon)$ слагаемого, определяющего вклад энергии E лазерного импульса. Поэтому форма поверхности $D(\lg(\upsilon), \ln(E))$ не является плоскостью, и для придания поверхности большей пластичности добавлены корректирующие слагаемые третьей степени:

$$D(E, \upsilon) = (a + b\lg(\upsilon) + cE^3) \times \times (d\sqrt{\ln(E)} + e + h\upsilon^3). \quad (3)$$

Найденные значения коэффициентов с использованием функции *fittype* в среде Matlab R2021b составили: $a = 1.553$, $b = 0.5229$, $c = -3.468 \times 10^{-7}$, $d = 16.79$, $e = -39.95$, $h = 357$. Ошибка аппроксимации экспериментальных данных заданной поверхностью не превысила 0.2 мкм (определяется точностью стыковки данных в сериях $D_{av}(\upsilon)$ и $D_{av}(E)$), что соответствует погрешности не более 10%. Коэффициент детерминации составил $R^2 = 0.9868$. Границы применимости функционала (3) задаются неравенствами $0.25 \leqslant \upsilon \leqslant 100$ мкм/с и $115 \leqslant E \leqslant 190$ нДж для всех $D(E, \upsilon) > 0.7$ мкм.

Проведенные ранее исследования показали, что для реализации процедуры вспомогательного лазерного хетчинга [39] с использованием фемтосекундных лазерных импульсов с длиной волны $\lambda = 514$ нм достаточно выполнить надрез шириной около 1 мкм. Надрезы для индивидуальной маркировки эмбрионов [31] являлись отчетливо различимыми при $D \sim 1$–1.5 мкм. Таких же размеров надрезов следует придерживаться и при реализации микрохирургических процедур с помощью ИК-импульсов. Таким образом, можно утверждать, что фемтосекундные импульсы инфракрасного диапазона спектра оказались применимы для микрохирургии блестящей оболочки и позволяют формировать надрезы той же минимальной ширины, что и излучение с длиной волны $\lambda = 514$ нм [34].

В общем случае, при выборе оптимальной комбинации параметров лазерного воздействия можно руководствоваться следующими соображениями. В конфигурации с неподвижным лазерным лучом и перемещающимся предметным столиком с эмбрионом в чашке Петри скорости $\upsilon > 0.03$ мм/с следует избегать в силу большого ускорения, испытываемого

эмбрионом в начале движения и большого риска его смещения из начального положения (эмбрион лежит на дне чашки и не закреплен). С другой стороны, скорости $\upsilon < 0.001$ мм/с существенно увеличивают время диссекции и общее время нахождения эмбриона (или группы эмбрионов) вне инкубатора. Таким образом, выбор параметров следует начинать с задания желаемой ширины надреза блестящей оболочки. Для минимизации термического воздействия нужно выбирать наименьшие значения энергии E для желаемой ширины надреза D, принимая во внимание ограничения допустимой скорости в диапазоне $\upsilon = 0.001$–0.03 мм/с в соответствии с полученной зависимостью $D(E, \upsilon)$. Оптимальная область параметров отмечена пунктиром на рис. 7 с учетом перечисленных соображений. В случае применения конфигурации экспериментальной схемы с неподвижным предметным столиком и управляемым положением луча ограничение скорости сверху не имеет смысла.

Резюмируя различия в реализации технологии микрохирургии блестящей оболочки с использованием излучения с длинами волн 514 и 1028 нм, можно сделать следующие выводы. Энергия лазерных импульсов для ИК-излучения более чем в два раза выше по сравнению с излучением видимого диапазона. Это объясняется как большим диаметром сфокусированного лазерного пучка (в силу дифракции), так и меньшей энергией ИК-кванта. Последнее обстоятельство имеет большое значение в силу многофотонного характера поглощения, лежащего в основе взаимодействия фемтосекундного излучения с водной средой, представляемой в виде аморфного диэлектрика [28, 29]. В результате при переходе от видимого излучения к ИК

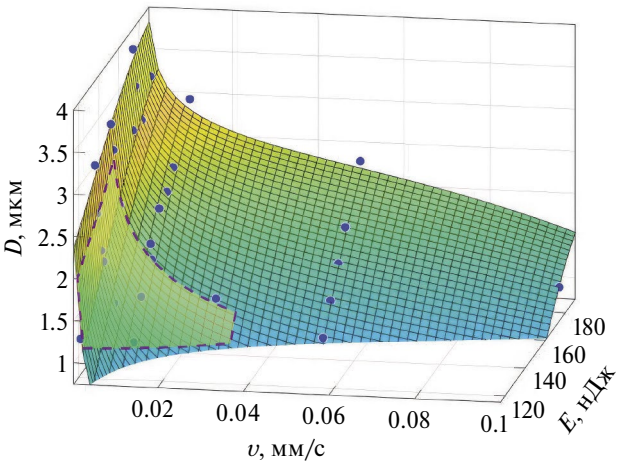

Рис. 7. Зависимость ширины надреза блестящей оболочки D от энергии лазерных импульсов E и скорости υ: синие маркеры – экспериментальные данные, представленные на рис. 6; поверхность – аппроксимация уравнением (3).

минимальная энергия импульса, необходимого для диссекции блестящей оболочки, увеличивается, а диапазон допустимых энергий сужается, будучи ограниченным сверху явлением оптического пробоя водной среды. Увеличивается и средняя мощность ИК-излучения. Поэтому область оптимальных значений параметров лазерного воздействия с длиной волны 1028 нм у́же, чем на 514 нм. С этой точки зрения импульсы видимого диапазона выглядят предпочтительнее.

Вместе с тем оба рассмотренных значения длины волны излучения оказались пригодны для задачи формирования надреза на блестящей оболочке эмбриона. Однако для окончательного заключения о преимуществах использования излучения видимого или инфракрасного диапазонов спектра, а также о безопасности их применения требуется проведение дополнительных исследований биологических эффектов, индуцируемых лазерным воздействием в прилегающих клетках эмбриона. Последние являются предметом дальнейшего изучения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе впервые проведены экспериментальные исследования влияния параметров лазерного воздействия на ширину надреза, формируемого в блестящей оболочке при выполнении микрохирургии ZP эмбриона мыши инфракрасными лазерными импульсами. Исследованы зависимости ширины надреза как от энергии лазерных импульсов E при заданной скорости перемещения лазерного луча υ, так и от скорости υ при различных энергиях E лазерных импульсов. Показано, что заданного значения ширины надреза можно достичь при различном сочетании параметров лазерного воздействия. Проведен анализ диапазона их допустимых значений, а полученная зависимость ширины надреза аппроксимирована функционалом переменных энергии и скорости. Допустимые значения составили $\upsilon = 0.001$–0.03 мм/с и $E = 115$–190 нДж. Показано, что фемтосекундные импульсы инфракрасного диапазона спектра могут быть применены для микрохирургии блестящей оболочки эмбриона. Полученные результаты имеют практическое значение для реализации процедур вспомогательного лазерного хетчинга и маркировки эмбрионов, поскольку ширина формируемого надреза влияет на читаемость наносимого цифро-буквенного обозначения.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (№ 23-19-00424, https://rscf.ru/project/23-19-00424/) на оборудовании УНУ “Лазерный тераваттный фемтосекундный комплекс”, входящим в состав ЦКП “Лазерный фемтосекундный комплекс” ОИВТ РАН.

Соблюдение этических стандартов. Исследование одобрено этическим комитетом ИБГ РАН (протокол

№ от 5 декабря 2021 г.) и проведено в строгом соответствии с положениями Директивы 2010/63/EU Европейского Парламента и Совета Европейского Союза от 22 сентября 2010 г. по охране животных, используемых в научных целях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ricardo Loret de Mola J., Garside W.T., Bucci J., Tureck R.W., Heyner S.* Analysis of the Human Zona Pellucida During Culture: Correlation with Diagnosis and the Preovulatory Hormonal Environment // J. Assist. Reprod. Genet. 1997. V. 14. № 6. P. 332.
2. *Krivonogova A.S., Bruter A.V., Makutina V.A., Okulova Y.D., Ilchuk L.A., Kubekina M.V., Khamatova A.Y. et al.* AAV Infection of Bovine Embryos: Novel, Simple and Effective Tool For Genome Editing // Theriogenology. 2022. V. 193. P. 77.
3. *Davidson L.M., Liu Y., Griffiths T., Jones C., Coward K.* Laser Technology in the ART Laboratory: A Narrative Review // Reprod. Biomed. Online. 2019. V. 38. № 5. P. 725.
4. *Tadir Y., Douglas-Hamilton D.H.* Laser Effects in the Manipulation of Human Eggs and Embryos for in Vitro Fertilization // Methods Cell Biol. 2007. V. 82. № 6. P. 409.
5. *Schimmel T., Cohen J., Saunders H., Alikani M.* Laser-assisted Zona Pellucida Thinning Does Not Facilitate Hatching and May Disrupt the in Vitro Hatching Process: A Morphokinetic Study in the Mouse // Hum. Reprod. 2014. V. 29. № 12. P. 2670.
6. *Douglas-Hamilton D.H., Conia J.* Thermal Effects in Laser-Assisted Pre-Embryo Zona Drilling // J. Biomed. Opt. 2001. V. 6. № 2. P. 205.
7. *Чефонов О.В., Овчинников А.В., Агранат М.Б.* Электрооптический эффект в кремнии, наведенный импульсом терагерцевого излучения // ТВТ. 2021. Т. 59. № 6. С. 844.
8. *Овчинников А.В., Чефонов О.В., Агранат М.Б.* Генерация второй оптической гармоники в кремнии при воздействии терагерцевого импульса с высокой напряженностью электрического поля // ТВТ. 2022. Т. 60. № 5. С. 666.
9. *Vicario C., Shalaby M., Hauri C.P.* Subcycle Extreme Nonlinearities in GaP Induced by an Ultrastrong Terahertz Field // Phys. Rev. Lett. 2017. V. 118. № 8. P. 083901.
10. *Jazbinsek M., Puc U., Abina A., Zidansek A.* Organic Crystals for THz Photonics // Appl. Sci. 2019. V. 9. № 5. P. 882.
11. *Струлёва Е.В., Комаров П.С., Евлашин С.А., Ашитков С.И.* Поведение магниевого сплава при высокоскоростной деформации под действием ударно-волновой нагрузки // ТВТ. 2022. Т. 60. № 5. С. 793.
12. *Струлёва Е.В., Комаров П.С., Евлашин С.А., Ашитков С.И.* Высокоскоростное разрушение пленок кобальта под действием нагрузок, создаваемых пикосекундным лазерным импульсом // ТВТ. 2023. Т. 61. № 6. С. 536.
13. *Ашитков С.И., Струлева Е.В., Комаров П.С., Евлашин С.А.* Ударное сжатие молибдена при воздействии ультракоротких лазерных импульсов // ТВТ. 2023. Т. 61. № 5. С. 790.
14. *Zuanetti B., McGrane S.D., Bolme C.A., Prakash V.* Measurement of Elastic Precursor Decay in Pre-Heated Aluminum Films under Ultra-fast Laser Generated Shocks // J. Appl. Phys. 2018. V. 123. P. 195104.
15. *Колобов Ю.Р., Корнеева Е.А., Кузьменко И.Н., Скоморохов А.Н., Кудряшов С.И., Ионин А.А., Макаров С.В. и др.* Влияние поверхностной обработки фемтосекундным импульсным лазерным излучением на механические свойства субмикрокристаллического титана // ЖТФ. 2018. Т. 88. № 3. С. 396.
16. *Ашитков С.И., Иногамов Н.А., Комаров П.С., Петров Ю.В., Ромашевский С.А., Ситников Д.С., Струлёва Е.В., Хохлов В.А.* Сверхбыстрый перенос энергии в металлах в сильно неравновесном состоянии, индуцируемом фемтосекундными лазерными импульсами субтераваттной интенсивности // ТВТ. 2022. Т. 60. № 2. С. 218.
17. *Radue E.L., Tomko J.A., Giri A., Braun J.L., Zhou X., Prezhdo O.V., Runnerstrom E.L., Maria J.-P., Hopkins P.E.* Hot Electron Thermoreflectance Coefficient of Gold During Electron Phonon Nonequilibrium // ACS Photonics. 2018. V. 5. № 12. P. 4880.
18. *Ильина И.В., Овчинников А.В., Чефонов О.В., Ситников Д.С., Агранат М.Б., Микаелян А.С.* Бесконтактная микрохирургия клеточных мембран с помощью фемтосекундных лазерных импульсов для оптоинъекции в клетки заданных веществ // Квантовая электроника. 2013. Т. 43. № 4. С. 365.
19. *Davis A.A., Farrar M.J., Nishimura N., Jin M.M., Schaffer C.B.* Optoporation and Genetic Manipulation of Cells Using Femtosecond Laser Pulses // Biophys. J. Biophysical Society. 2013. V. 105. № 4. P. 862.
20. *Kumar P., Nagarajan A., Uchil P.D.* Introducing Genes into Cultured Mammalian Cells // Cold Spring Harb. Protoc. 2019. V. 2019. № 11. P. 715.
21. *Agarwal K., Hatch K.* Femtosecond Laser Assisted Cataract Surgery: A Review // Semin. Ophthalmol. 2021. V. 36. № 8. P. 618.
22. *Latz C., Asshauer T., Rathjen C., Mirshahi A.* Femtosecond-laser Assisted Surgery of the Eye: Overview and Impact of the Low-energy Concept // Micromachines. 2021. V. 12. № 2. P. 122.
23. *Ilina I.V., Sitnikov D.S.* From Zygote to Blastocyst: Application of Ultrashort Lasers in the Field of Assisted Reproduction and Developmental Biology // Diagnostics. 2021. V. 11. № 10. P. 1897.

24. *Ilina I.V., Sitnikov D.S.* Application of Ultrashort Lasers in Developmental Biology: A Review // Photonics. 2022. V. 9. № 12. P. 914.
25. *Raghunathan R., Singh M., Dickinson M.E., Larin K.V.* Optical Coherence Tomography for Embryonic Imaging: A Review // J. Biomed. Opt. 2016. V. 21. № 5. P. 50902.
26. *Borile G., Sandrin D., Filippi A., Anderson K.I., Romanato F.* Label-free Multiphoton Microscopy: Much More Than Fancy Images // Int. J. Mol. Sci. 2021. V. 22. № 5. P. 2657.
27. *Vogel A., Venugopalan V.* Mechanisms of Pulsed Laser Ablation of Biological Tissues // Chem. Rev. 2003. V. 103. № 2. P. 577.
28. *Vogel A., Noack J., Hüttman G., Paltauf G.* Mechanisms of Femtosecond Laser Nanosurgery of Cells and Tissues // Appl. Phys. B. 2005. V. 81. № 8. P. 1015.
29. *Ситников Д.С., Ильина И.В., Пронкин А.А.* Оценка теплового воздействия лазерных импульсов фемто- и миллисекундной длительности при выполнении микрохирургических процедур на эмбрионах млекопитающих // Квантовая электроника. 2022. Т. 52. № 5. С. 482.
30. *Ilina I.V., Khramova Y.V., Filatov M.A., Sitnikov D.S.* Application of Femtosecond Laser Microsurgery in Assisted Reproductive Technologies for Preimplantation Embryo Tagging // Biomed. Opt. Exp. 2019. V. 10. № 6. P. 2985.
31. *Ilina I.V., Khramova Y.V., Filatov M.A., Sitnikov D.S.* Femtosecond Laser Is Effective Tool for Zona Pellucida Engraving and Tagging of Preimplantation Mammalian Embryos // J. Assist. Reprod. Genet. 2019. V. 36. № 6. P. 1251.
32. *Ilina I.V., Khramova Y.V., Filatov M.A., Semenova M.L., Sitnikov D.S.* Application of Femtosecond Laser Scalpel and Optical Tweezers for Noncontact Biopsy of Late Preimplantation Embryos // High Temp. 2015. V. 53. № 6. P. 804.
33. *Ilina I.V., Khramova Y.V., Filatov M.A., Semenova M.L., Sitnikov D.S.* Femtosecond Laser Assisted Hatching: Dependence of Zona Pellucida Drilling Efficiency and Embryo Development on Laser Wavelength and Pulse Energy // High Temp. 2016. V. 54. № 1. P. 46.
34. *Sitnikov D.S., Filatov M.A., Ilina I.V.* Optimal Exposure Parameters for Microsurgery of Embryo Zona Pellucida Using Femtosecond Laser Pulses // Appl. Sci. 2023. V. 13. № 20. P. 11204.
35. *Ильина И.В., Овчинников А.В., Ситников Д.С., Ракитянский М.М., Агранат М.Б., Храмова Ю.В., Семенова М.Л.* Применение фемтосекундных лазерных импульсов в биомедицинских клеточных технологиях // ТВТ. 2013. Т. 51. № 2. С. 198.
36. *Sitnikov D.S., Ovchinnikov A.V., Ilina I.V., Chefonov O.V., Agranat M.B.* Laser Microsurgery of Cells by Femtosecond Laser Scalpel and Optical Tweezers // High Temp. 2014. V. 52. № 6. P. 803.
37. *Ситников Д.С., Ильина И.В., Филатов М.А., Силаева Ю.Ю.* Исследование влияния микродиссекции блестящей оболочки эмбрионов млекопитающих на ее толщину // Вестн. РГМУ. 2023. № 1. С. 41.
38. *Liu J.M.* Simple Technique for Measurements of Pulsed Gaussian-beam Spot Sizes // Opt. Lett. 1982. V. 7. № 5. P. 196.
39. *Ilina I.V., Khramova Y.V., Ivanova A.D., Filatov M.A., Silaeva Y.Y., Deykin A. V., Sitnikov D.S.* Controlled Hatching at the Prescribed Site Using Femtosecond Laser for Zona Pellucida Drilling at the Early Blastocyst Stage // J. Assist. Reprod. Genet. 2021. V. 38. № 2. P. 517.
40. *Joglekar A.P., Liu H.H., Meyhofer E., Mourou G., Hunt A.J.* Optics at Critical Intensity: Applications to Nanomorphing // Proc. Natl. Acad. Sci. 2004. V. 101. № 16. P. 5856.
41. *Hoy C.L., Ferhanoglu O., Yildirim M., Kim K.H., Karajanagi S.S., Chan K.M.C., Kobler J.B., Zeitels S.M., Ben-Yakar A.* Clinical Ultrafast Laser Surgery: Recent Advances and Future Directions // IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 2014. V. 20. № 2. P. 242.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 131–142

УДК 621.385.6; 615.832

ЧИСЛЕННЫЙ АНАЛИЗ ТЕПЛООБМЕНА В ТКАНЯХ ПЕЧЕНИ ПРИ СВЧ-АБЛЯЦИИ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ОДНОЙ, ДВУХ, ТРЕХ И ЧЕТЫРЕХ ЩЕЛЕЙ

© 2024 г. E. Poorreza*

Faculty of Electrical engineering, Sahand University of Technology, Tabriz, Iran

**E-mail: elnaz.poorreza@gmail.com, e_poorreza@sut.ac.ir*

Поступила в редакцию 10.08.2023 г.
После доработки 15.11.2023 г.
Принята к публикации 04.12.2023 г.

В работе рассмотрена СВЧ-терапия – популярный медицинский метод лечения патологических тканей человека, содержащих раковые опухоли. Методом конечных элементов с использованием двумерного анализа сравниваются модели коаксиальной антенны с одной, двумя, тремя и четырьмя щелями. Представленные модели основаны на волновом уравнении электромагнетизма в режиме поперечных магнитных волн в сочетании с уравнением Пеннеса в условиях переходного состояния. Кроме того, модель учитывает термоэлектрические свойства тканей человека при рабочей частоте антенны 2.45 ГГц. Представлены результаты моделирования для различных конфигураций многощелевых антенн. Проведен сравнительный конечно-элементный анализ межтканевой СВЧ-абляции в ткани печени с использованием антенн с одной, двумя, тремя и четырьмя щелями. Согласно представленным результатам, доля поврежденной ткани, подвергающейся воздействию, уменьшается за счет увеличения количества щелей. В случае четырех щелей наблюдаются сферические зоны плавления с меньшим повреждением нормальных тканей, особенно в осевом направлении.

DOI: 10.31857/S0040364424010152

ВВЕДЕНИЕ

Раковые опухоли жизненно важных органов, таких как печень, кости, легкие, молочная железа, почки и другие, являются одной из основных причин смертности во всем мире [1–3]. Рак печени – один из наиболее распространенных видов рака в мире. Из-за своей высокой инвазивности это один из самых смертоносных видов рака [4]. Этот вид заболевания имеет 100%-ную летальность через пять лет протекания без лечения и приводит к смерти более миллиона человек ежегодно [5, 6].

Возможными методами лечения рака печени являются: хирургическая операция, химиотерапия, криохирургия, этаноловая абляция, лазерная абляция, лучевая терапия, радиочастотная и СВЧ-абляция (СВЧА) [5, 7–15].

СВЧА с использованием энергии электромагнитных волн является эффективным и перспективным способом термотерапии при лечении опухолей [16–22]. Системы СВЧА были введены в клиническое использование в 1990-х гг. СВЧА – малоинвазивный метод, суть которого заключается в коагуляционном некрозе опухолевых клеток, возникающем при повышении температуры около критического уровня 60°C [23, 24]. Целесообразность этого типа терапии была продемонстрирована на ряде жизненно важных органов, таких как мозг, грудь и печень.

СВЧА может улучшить результаты при небольшом количестве побочных эффектов и особенно полезна, когда опухоль расположена в зоне, которую невозможно удалить из соображений сохранения нормальной работы органов [25–29]. По сравнению с существующими технологиями с термической абляцией ключевыми преимуществами метода СВЧА являются поддержание высокой температуры опухоли, большие объемы областей абляции опухоли и более быстрая абляция. Эффективность процесса СВЧА связана с прогретым объемом, достигаемым в ходе процесса [23, 30–32]. Для метода СВЧА решающее значение имеет возможность прогнозирования температуры опухоли и окружающих тканей [25], чтобы уничтожать раковые клетки без повреждения здоровых тканей. Однако, прежде чем приступить к реальной терапии, необходимо провести базовое численное моделирование. Численное моделирование критически

важно для использования СВЧА, оно бесплатное и занимает относительно мало времени. Использование математического моделирования при лечении онкологических заболеваний получило широкое распространение и является прогрессирующим инструментом параллельно с экспериментальными исследованиями.

Энергия электромагнитного излучения от СВЧ-устройства является эффективным методом нагрева опухолевых клеток. Поскольку ткань электропроводящая, часть излучаемой энергии рассеивается внутри ткани, что приводит к повышению ее температуры. Микроволны могут попадать в ткань с помощью специальных антенн, расположенных рядом с тканью, подлежащей лечению, или внедренных в нее [1].

Система СВЧА состоит из игольчатых тонких коаксиальных межтканевых антенн, которые могут создавать зоны абляции во время применения через кожу [30, 33, 34]. В методе используются эффекты электромагнитных волн, передача тепла через антенны, чтобы уничтожить раковые опухоли при небольшом вреде для окружающих здоровых тканей [35].

Наиболее популярными антеннами в технологии СВЧА являются щелевые коаксиальные антенны. В антеннах этих типов внешний и центральный проводники соединяются на вершине наконечника антенны, а металлическое кольцо отделяет внешний проводник антенны, образуя щель антенны. Через такие щели электромагнитная энергия поступает в орган-мишень.

Насколько известно автору, в работах других исследователей при численном анализе рассматривалась только трехщелевая антенна. В [5] изучались одно- и двухщелевые антенны. Установлено, что в случае двухщелевой СВЧА можно добиться более широкого распределения поглощаемой СВЧ-мощности в ткани печени, чем в случае однощелевой антенны. Расположение прорезей в конструкции антенны может быть ответственным за различное энерговыделение в ткани печени и, следовательно, оказывать большое влияние на процесс заживления во время лечения. Согласно представленным результатам, полученным методом конечных элементов (МКЭ), некроз ткани, подвергшейся воздействию микроволновой энергии частотой 2.45 ГГц, уменьшался за счет увеличения количества щелей.

В настоящей работе выполнено численное исследование интерстициальной микроволновой гипертермии, при которой энергия передается в ткань печени с помощью микроволновой многощелевой коаксиальной антенны. Для полного объяснения реального процесса СВЧА в тканях человека решающее значение имеет моделирование теплопередачи. В данной статье представлены численные модели коаксиальной антенны с одной, двумя, тремя и четырьмя щелями.

МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ, ГЕОМЕТРИЯ И ОПИСАНИЕ ЗАДАЧИ

Электромагнитная модель. В осесимметричной модели конечных элементов электрическое и магнитное поля, передаваемые в биологический орган, объединяются с изменяющейся во времени поперечной электромагнитной (ТЕМ) волной. Из уравнения Максвелла волновой вид уравнения [5, 33] записывается так

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) - \mu_r k^2 \left(\varepsilon_r - \frac{j\sigma}{\omega \varepsilon_0} \right) \mathbf{E} = 0.$$

Здесь $\mathbf{E}$ – электрическое поле, создаваемое антенной; μ_r – проницаемость; k – константа распространения в свободном пространстве, м$^{-1}$; ε_r – относительная диэлектрическая проницаемость тканей; $\varepsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}$ Ф/м – относительная диэлектрическая проницаемость вакуума; σ – проводимость тканей; $\omega = 2\pi f$ – угловая частота прилагаемой электромагнитной волны [5, 33], рад/с, f – частота волны, Гц; $k = 2\pi\lambda$ – волновое число, м$^{-1}$; λ – длина волны, м [5].

Электрическое поле:

$$\mathbf{E} = \mathbf{e}_r \frac{C}{r} e^{j(\omega t - kz)},$$

магнитное поле:

$$\mathbf{H} = \mathbf{e}_\varphi \frac{C}{rZ} e^{j(\omega t - kz)},$$

$$C = \sqrt{\frac{ZP}{\pi \ln\left(r_{\text{out}} / r_{\text{in}} \right)}}.$$

Здесь $\mathbf{e}_r$, $\mathbf{e}_\varphi$ – единичные азимутальные векторы; Z – волновое сопротивление проводника; P – входная приложенная мощность СВЧ, Вт; r_{out}, r_{in} – внешний и внутренний радиусы диэлектрика.

Электрическое поле имеет конечную аксиальную составляющую в ткани печени, тогда как магнитное поле находится только в азимутальном направлении. Только внутри коаксиального кабеля электрическое поле действует в радиальном направлении, а внутри ткани – как в радиальном, так и в аксиальном направлениях. Это позволяет моделировать коаксиальную антенну с использованием формулировки осесимметричной волны [5]. В результате волновое уравнение становится скалярным по $\mathbf{H}_\varphi$:

$$\nabla \times \left(\left(\varepsilon_r' - \frac{j\sigma_{el}}{\omega \varepsilon_0} \right)^{-1} \nabla \times \mathbf{H}_\varphi \right) - \mu_r k_0^2 \mathbf{H}_\varphi = 0.$$

Изменения диэлектрических свойств ткани печени приводят к изменению места поглощения

энергии внутри ткани печени. Относительная диэлектрическая проницаемость и проводимость взяты из [5]. Линейная аппроксимация диэлектрической проницаемости и проводимости диэлектрического материала используется для аппроксимации скорости нагрева при температурах от 37 до 100°C в виде следующих функций:

$$\varepsilon'_{r\mathrm{Liv}}(T) = -0.0424T + 47.043,$$

$$\sigma_{\mathrm{Liv}}(T) = -0.0004T + 1.7381.$$

Энергия выводится из щелей коаксиальной микроволновой антенны, подключенной к генератору, и распространяется из щелей антенны в ткань печени. Граничные условия для анализа распространения электромагнитных волн рассматриваются в следующем виде:

– на входе наблюдается распространение поперечной волны с входной мощностью 10 Вт;

– при $r = 0$ применяется осесимметричное ограничение

$$\mathbf{E}_r = 0,$$

$$\frac{\partial \mathbf{E}_z}{\partial r} = 0.$$

Граничные условия рассеяния учитываются вдоль внешних границ печени во избежание отражения [5]:

$$\hat{n} \times \sqrt{\varepsilon}\mathbf{E} - \sqrt{\mu}\mathbf{H}_{\varphi} = -2\sqrt{\mu}\mathbf{H}_{\varphi 0}.$$

Здесь $\mathbf{H}_{\varphi 0} = \dfrac{C}{Zr}$ – магнитное поле возбуждения; $\mathbf{H}_{\varphi}$ сферической волны, созданное антенной, определяется как

$$\hat{n} \times \left(\nabla \times \mathbf{H}_{\varphi}\right) - jk\mathbf{H}_{\varphi} = 0.$$

Для упрощения и устранения численной ошибки внутренний и внешний проводники коаксиальной антенны рассматриваются как идеально электропроводные стенки:

$$\hat{n} \times E = 0.$$

Модель биологического теплообмена. Уравнение биотеплообмена, предложенное Пеннесом, широко применялось для решения проблем биологической теплопередачи. Это уравнение эффективно описывает, как происходит передача тепла внутри биологической ткани [5, 33, 36–40]:

$$\rho C \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \times (k_{\mathrm{th}} \nabla T) + \\ + \rho_b C_b \omega_b (T_b - T) + Q_{\mathrm{met}} + Q_{\mathrm{ext}}. \quad (1)$$

Здесь ρ – плотность ткани; ρ_b – плотность крови; C – удельная теплоемкость ткани; C_b – удельная теплоемкость крови; K_{th} – коэффициент теплопроводности ткани; $\omega_b = 4.5\times10^6$ кг/(м^3 с) – коэффициент перфузии крови; T_b – температура крови.

В уравнении (1) первый, второй, третий и четвертый члены в правой части обозначают теплообмен, охлаждение током крови, метаболический источник тепла и внешний источник тепла (тепло, создаваемое электрическим полем) соответственно. Внешний источник тепла учитывает влияние термического сопротивления, создаваемого электромагнитным полем, которое можно выразить как [41]

$$Q_{\mathrm{ext}} = \frac{1}{2}\sigma_{\mathrm{Liv}} |\mathbf{E}|^2.$$

Здесь σ_{Liv} – проводимость ткани печени. Когда микроволны распространяются в ткани печени, их энергия поглощается тканью и преобразуется в тепло, повышая температуру ткани. Термин “удельная скорость поглощения” характеризует электромагнитную мощность (Вт/кг), излучаемую на единицу массы ткани, и описывается выражением

$$S_A = \frac{\sigma_{\mathrm{Liv}} |\mathbf{E}|^2}{2\rho}.$$

С учетом S_A уравнение (1) можно переписать в виде

$$\rho C \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \times (K_{\mathrm{th}} \nabla T) + \\ + \rho_b C_b \omega_b (T_b - T) + Q_{\mathrm{met}} + \rho S_A.$$

В данной работе при расчетах учитывается зависимость свойств от температуры. В соответствии с данными о теплопроводности ткани печени, измеренной в [42], ее зависимость от температуры можно записать в виде

$$K_{\mathrm{th}}(T) = 0.0012T + 0.4692.$$

На процессы биотеплообмена в живых тканях часто влияет такой фактор, как перфузия крови через сосуды, так как она связана с локальным распределением температуры. Когда существует значительная разница между температурой крови и ткани, через которую она протекает, происходит конвективный перенос тепла, приводящий к изменению температуры и крови, и ткани. В результате модель теплопередачи в живых тканях должна учитывать влияние перфузии крови. Скорость перфузии крови можно определить следующим образом:

$$\omega_b(T) = 0.000021T + 0.00035.$$

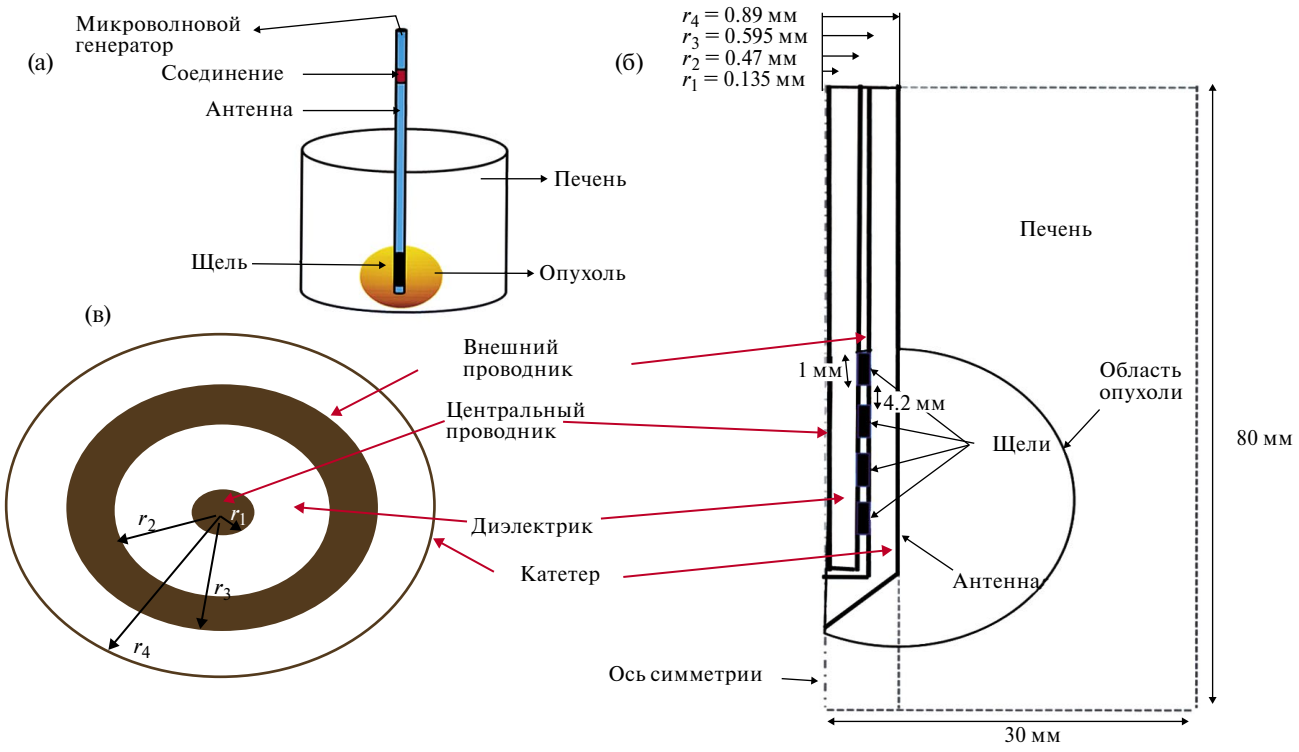

Рис. 1. Схема коаксиальной антенны, введенной в биологическую ткань (а), ее 2D-модель с размерами (б), поперечное сечение антенны с несколькими щелями (в).

Таблица 1. Размеры СВЧ-антенны (в мм) [43]

Размер	Значение
Радиус центрального проводника r_1	0.135
Внутренний радиус внешнего проводника r_2	0.470
Внешний радиус внешнего проводника r_3	0.595
Радиус катетера r_4	0.895
Размер щели d	1.000
Расстояние между щелями l	4.200

Теплообмен рассматривается только в тканях печени и не учитывает антенну. Граница печени считается термически изолированной:

$$\hat{n} \times \left(K \nabla T\right) = 0.$$

Начальное распределение температуры в печени считается универсальным: $T\left(t_0\right) = 37°\text{C}$.

Геометрия печени и введенной антенны. Представленное исследование относится к области гипертермической онкологии и моделирует электромагнитное поле, связанное с уравнением биотеплообмена. Уравнения ряда моделей, описывающих распространение электромагнитных волн и теплообмен, могут быть решены методом конечных элементов. Электромагнитные и биотеплообменные уравнения связаны. Физически область состояла из двух подобластей: печени и коаксиальной антенны.

Геометрическая схема многощелевой коаксиальной СВЧ-антенны изображена на рис. 1. СВЧ-антенна состоит из центрального проводника, диэлектрического материала, внешнего проводника и катетера из пластика, защищающего внутренние детали. Поскольку реальная антенна имеет цилиндрическую и коаксиальную форму, моделирование выполняется только для двумерной осесимметричной постановки в цилиндрических координатах (r, φ, z).

Расчетная область состоит наполовину из антенной конструкции и окружающей биологической ткани, а внешняя граница зафиксирована на уровне r = 30 мм. Кроме того, поскольку в практических приложениях антенна очень тонкая, ее предполагаемая ширина считается менее 2 мм. Все щели расположены во внешнем проводнике с координатами $z_1 = 15.5$, $z_2 = 19.7$, $z_3 = 23.9$, $z_4 = 28.1$ мм и имеют одинаковый размер $d_1 = d_2 = d_3 = d$. Расстояния между соседними прорезями постоянны и равны $l_1 = l_2 = l_3 = l$. Размеры антенны взяты из [43] и собраны в табл. 1. Область опухоли радиусом

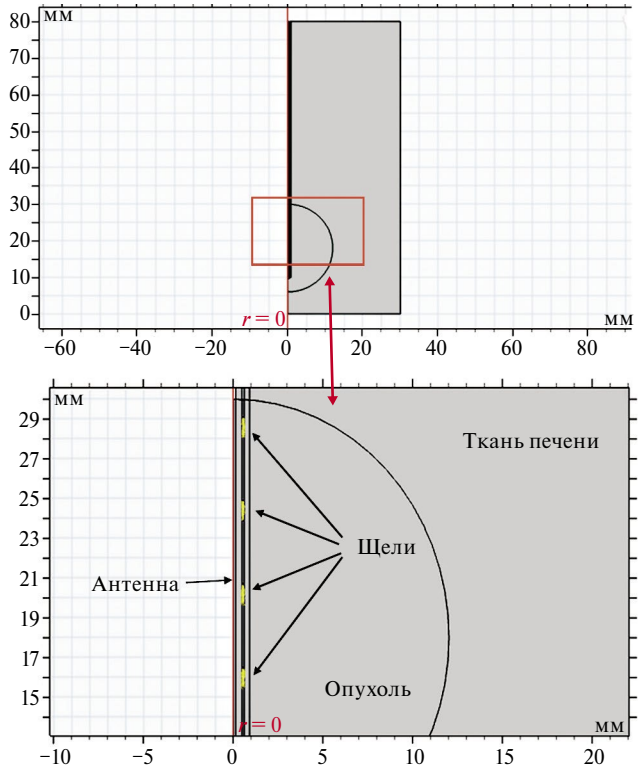

Рис. 2. Расположение щелей и опухоли.

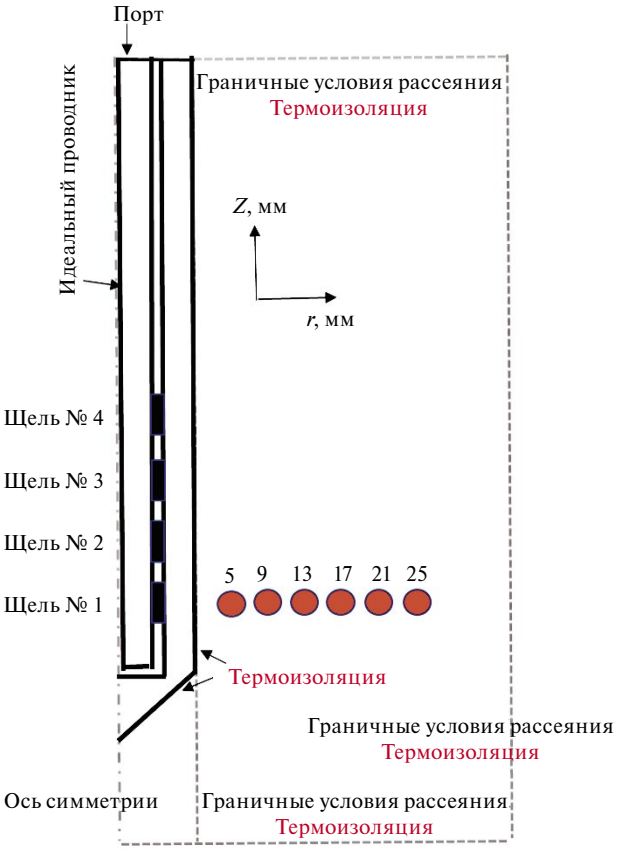

Рис. 3. Граничные условия задачи.

Таблица 2. Параметры биологического материала и материала антенны

Параметры	Значение
Плотность крови, кг/м^3	1000
Теплоемкость крови, Дж/(кг К)	3639
Перфузия[1] крови, 1/с	$3.6e^{-3}$
Температура крови, °С	37
Относительная диэлектрическая проницаемость печени	43.03
Электропроводность печени, См/м	1.69
Относительная диэлектрическая проницаемость	2.03
Относительная диэлектрическая проницаемость катетера	2.6
Частота СВЧ, ГГц	2.45
Входящая мощность P_{in}, Вт	10

[1] Перфузия – прохождение крови через биологическую ткань.

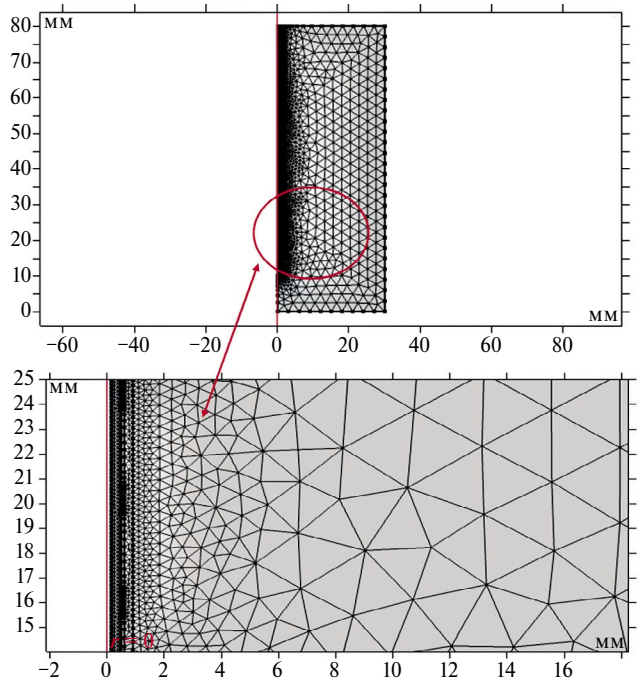

Рис. 4. Расчетная сетка для СВЧ-антенны.

около 1.2 см показана на рис. 2, при моделировании она не учитывается.

Ткань печени рассматривается как объект с цилиндрической геометрией. Она имеет радиус 30 мм и высоту 80 мм. В этой модели предполагается, что СВЧ-антенна погружена в однородную гладкую биологическую ткань. Свойства ткани печени и антенны приведены в табл. 2.

Граничные условия. Сформулирована математическая модель для прогнозирования поглощения излучаемой мощности, профиля S_A, распределения температуры и доли повреждения ткани печени в процессе СВЧА. При численном анализе процесса распространения электромагнитных волн на поверхности печени задается граничное условие рассеяния, означающее, что граница не нарушает распределение электромагнитного поля [5]. Источник микроволнового излучения устанавливается на верхнем конце антенны. Для моделирования коаксиальный порт, к которому подается питание, поддерживает только поперечный электромагнитный режим. В применяемой модели стенка антенны рассматривается как идеальный электрический проводник, а диэлектрические свойства ткани печени определяются как функция температуры. Внутри ткани печени не происходит фазового перехода и обмена энергии через внешнюю поверхность ткани печени, а также внутри области ткани печени не протекают химические реакции. Применяемые граничные условия показаны на рис. 3.

Сетка. Для анализа методом конечных элементов создана сетка, которая разделяет область решения на определенное количество элементов. На рис. 4 показана выбранная сетка для антенны. Другими словами, чтобы сэкономить время моделирования и достичь сходимости решения с наилучшей точностью, рассматривается приведенная ниже установка для построения сетки модели [1, 5]. Треугольные сетки строились наружу от оси симметрии с минимальным размером элемента 0.024 мм, максимальным размером элемента 3 мм, максимальной скоростью роста элемента 1.3

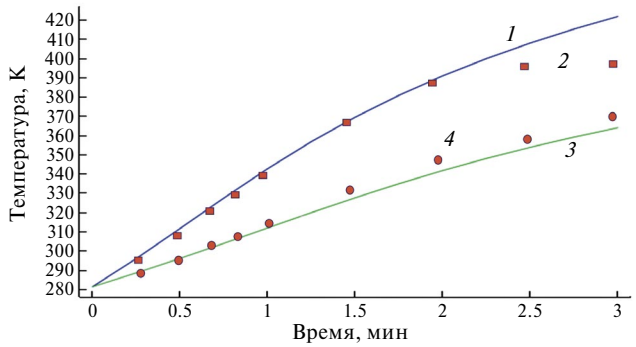

Рис. 5. Сравнение полученных температурных распределений (*1*, *3*) с данными [38]: *1*, *2* – 7 мм; *3*, *4* – 9.5 мм.

мм, коэффициентом кривизны сетки 0.3 и разрешением узких областей 1.

Валидация модели. Для проверки точности результаты сравниваются с экспериментальными данными [38]. Проверка распределения температуры в ткани печени в двух местах (7 и 9.5 мм от антенны) во время процесса СВЧА показана на рис. 5. Рабочая частота СВЧ, входная мощность и начальная температура ткани были выбраны равными 2.45 ГГц, 75 Вт и 281 K соответственно. Видно, что расчетные результаты и данные эксперимента хорошо согласуются. Небольшая разница обусловлена используемой численной схемой.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Полная плотность диссипации энергии. Внутренний источник нагрева приводит к гибели опухолевых клеток за счет вибрации и вращения молекул воды [1]. Важно оценить плотность рассеяния мощности, поглощаемой тканью печени. На рис. 6 показана общая плотность мощности излучения, рассеиваемого в ткани печени за $t = 600$ с (10 мин) для одной, двух, трех и четырех щелей. Выбор интервала 10 мин обусловлен экспериментальной работой [30]. Согласно представленным результатам, во всех случаях кривая

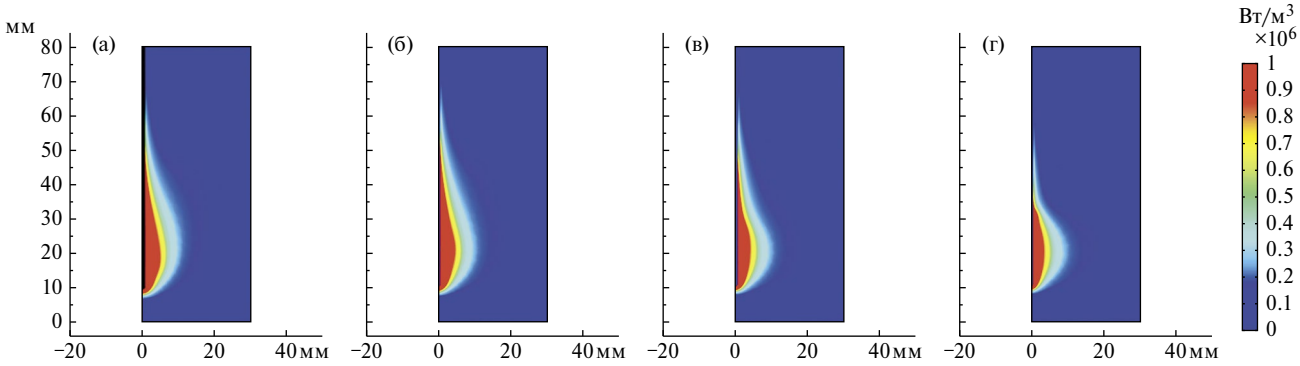

Рис. 6. Полная плотность энергии, поглощенной в ткани печени за $t = 600$ с для антенн с: (а) одной, (б) двумя, (в) тремя, (г) четырьмя щелями.

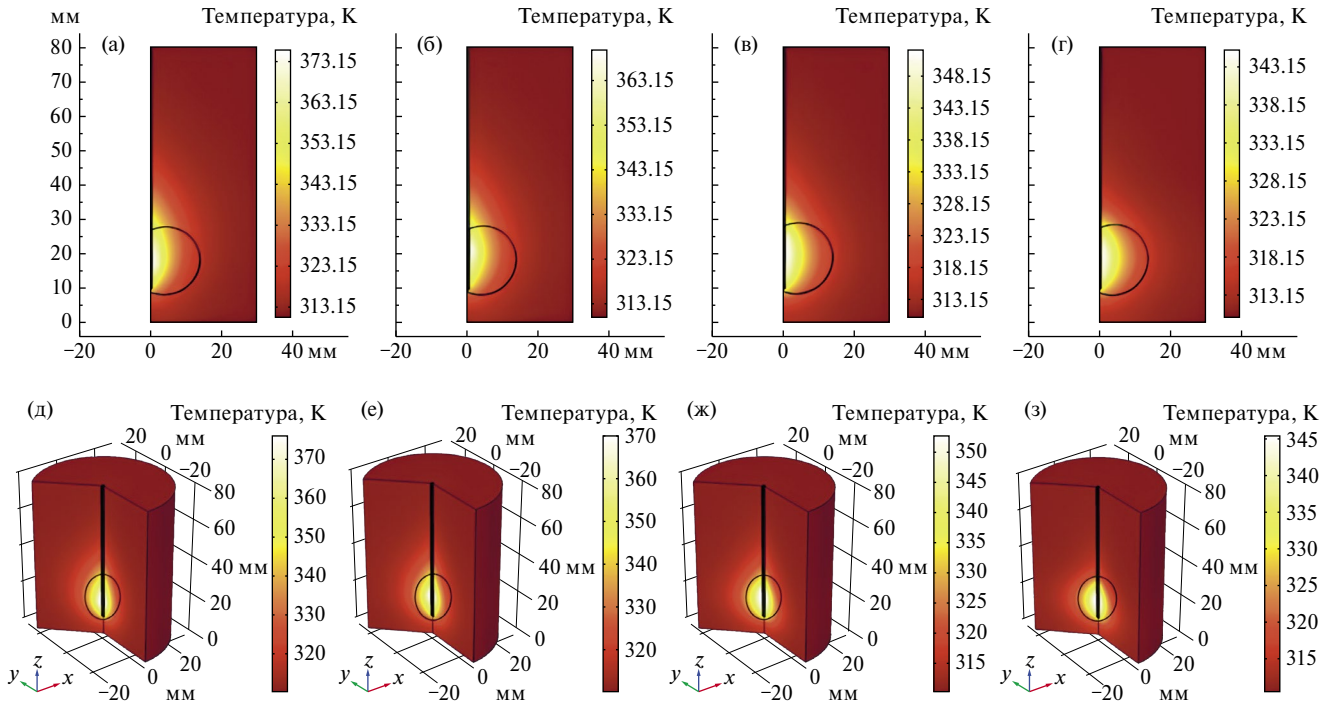

Рис. 7. Распределения температуры и соответствующие трехмерные поля температур: (а), (д) одна щель; (б), (е) две; (в), (ж) три; (г), (з) четыре.

Таблица 3. Размеры области абляции и ошибка оценки температуры

Количество щелей	Радиус температурной зоны, мм	Радиус опухоли, мм	Разница, %	Продольный размер температурной зоны, мм	Продольный размер опухоли, мм	Разница, %
1	14	12	16.6	50	24	108.3
2	13.5	12	12.5	45	24	87.5
3	13	12	8.3	40	24	66.6
4	12.5	12	4.1	32	24	33.3

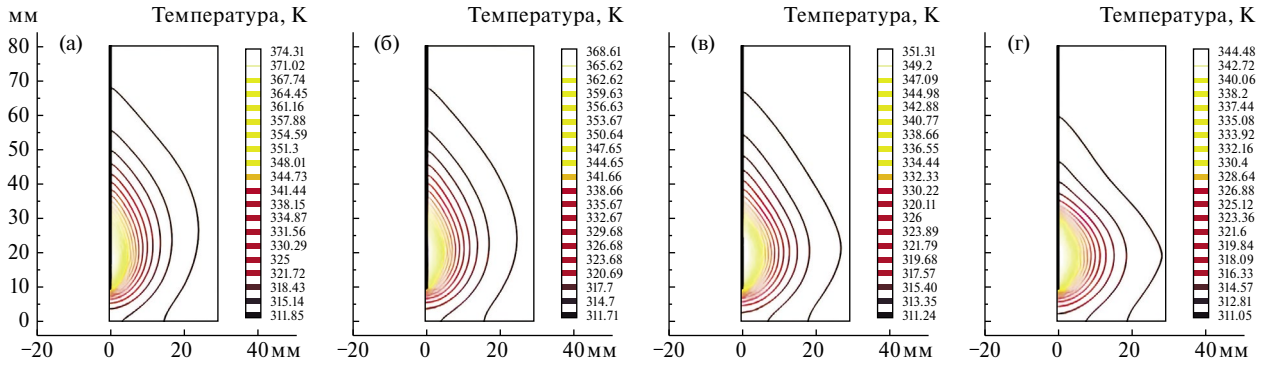

Рис. 8. Изотермы в ткани печени в стационарном состоянии для антенн с (а) одной, (б) двумя, (в) тремя, (г) четырьмя щелями.

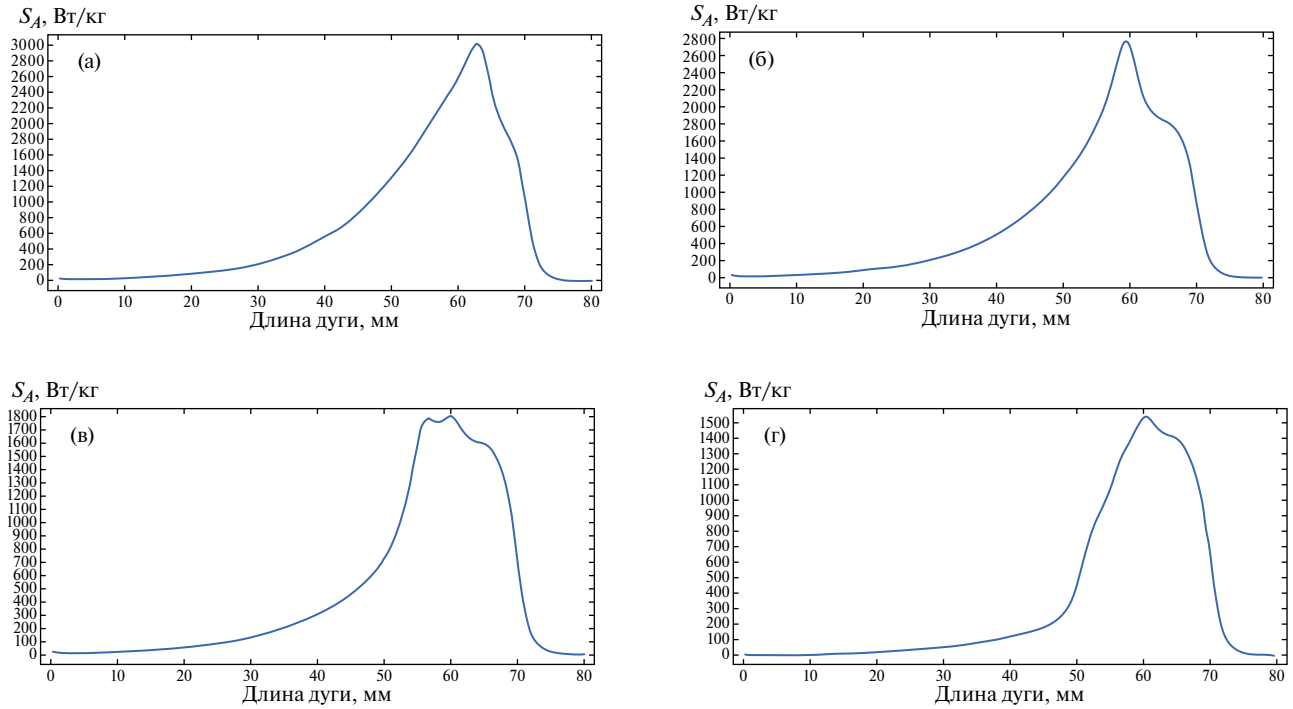

Рис. 9. Профили S_A для антенн с (а) одной, (б) двумя, (в) тремя, (г) четырьмя щелями.

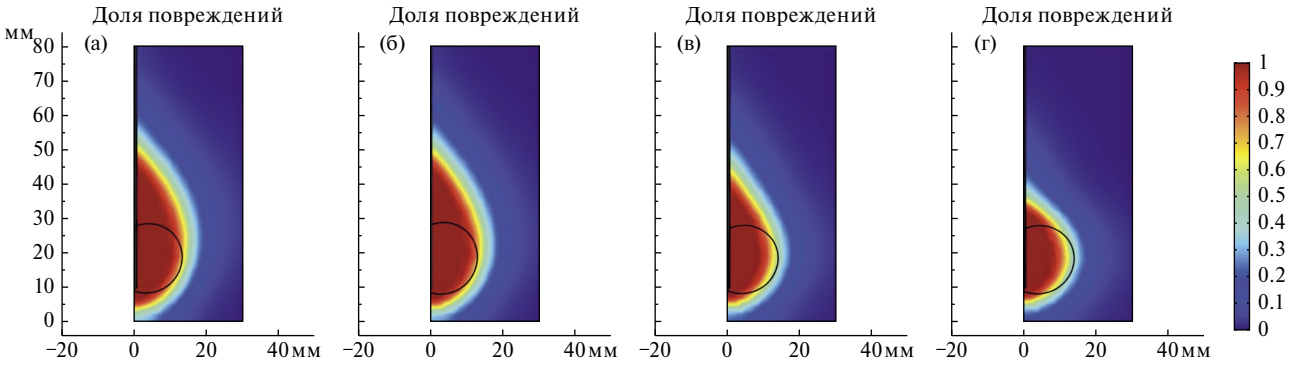

Рис. 10. Изменения во времени доли повреждений для антенн с (а) одной, (б) двумя, (в) тремя, (г) четырьмя щелями.

поглощенной тканью печени энергии имеет форму, близкую к эллипсоиду, вокруг щели, и ее максимальные значения находятся вблизи щели, уменьшаясь с удалением от щели.

Распределения температуры. Во всех случаях распределение температуры вокруг щели близко к эллипсоидному, а ее самые высокие значения достигаются вблизи щели и уменьшаются с увеличением расстояния (рис. 7), что согласуется с данными на рис. 5. Кроме того, распределение температуры увеличивается во времени. Это связано с тем, что мощность, поглощаемая тканью печени, рассеивается и преобразуется в тепло, вызывая повышение температуры ткани печени.

Размер зоны абляции и погрешность определения температуры указаны в табл. 3 для каждого слота. Судя по результатам, для случая с четырьмя щелями разница минимальна.

На рис. 8 сравниваются изотермы ткани печени в установившемся режиме для четырех исследованных случаев. Все последующие результаты моделирования получены при различных конфигурациях щелей при одних и тех же граничных условиях.

Распределение S_A. На рис. 9 показаны распределения S_A для всех четырех случаев вдоль линии, параллельной оси антенны. Во всех случаях распределения S_A постепенно увеличиваются вдоль

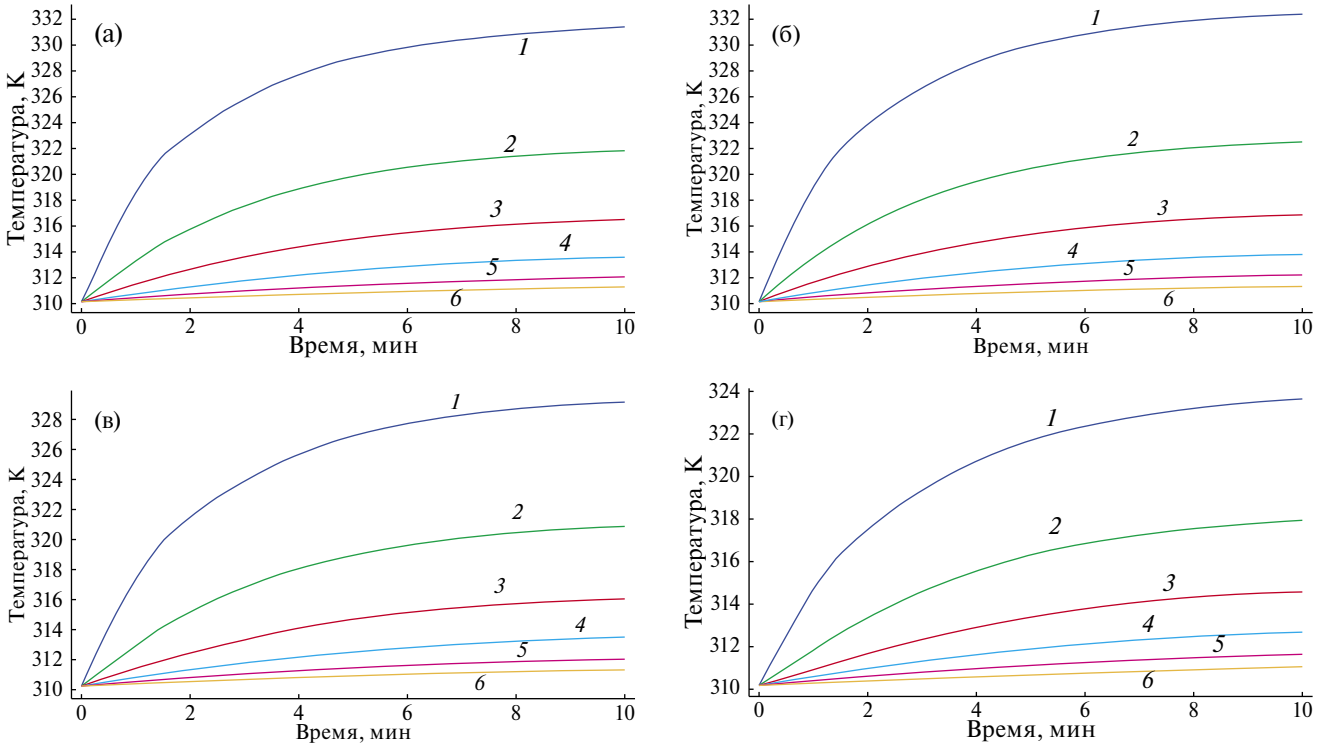

Рис. 11. Сравнение температурных кривых для положений: *1* – 5 мм, *2* – 9, *3* – 13, *4* – 17, *5* – 21, *6* – 25; для антенн с (а) одной, (б) двумя, (в) тремя, (г) четырьмя щелями.

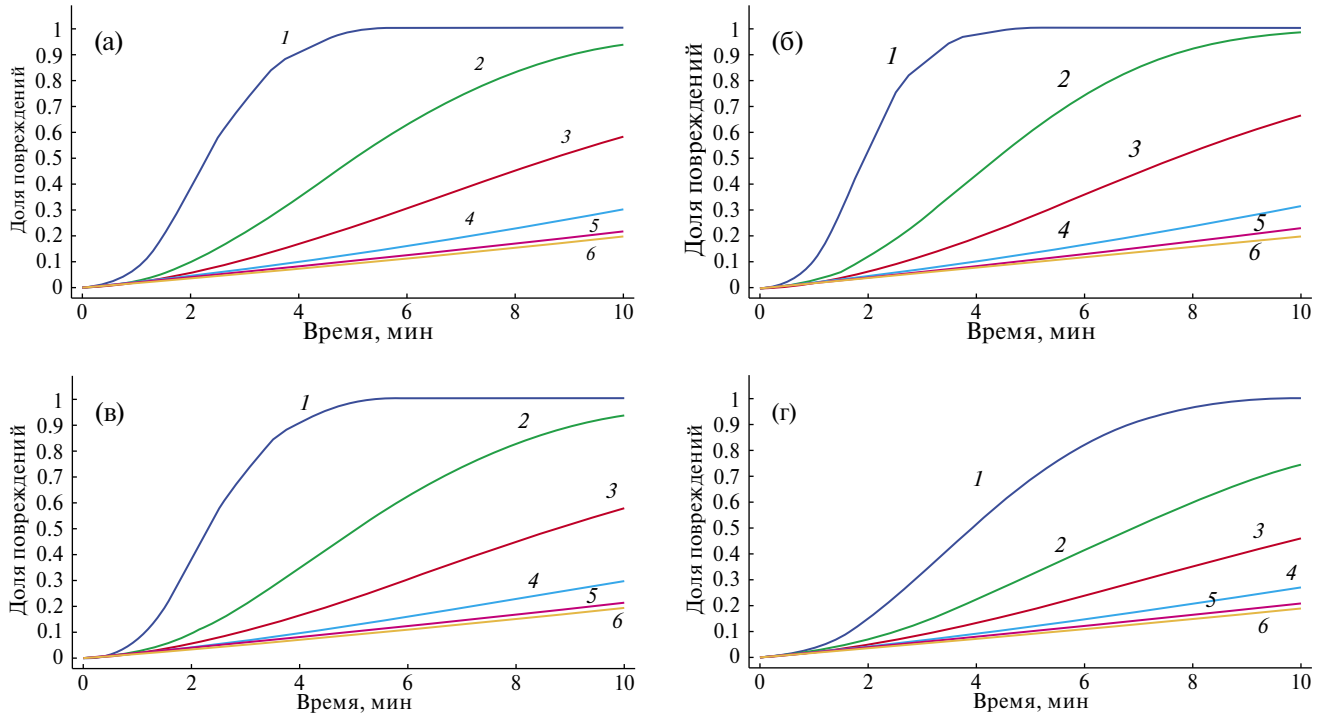

Рис. 12. Сравнение зависимостей доли повреждений для положений: *1* – 5 мм, *2* – 9, *3* – 13, *4* – 17, *5* – 21, *6* – 25; для антенн с (а) одной, (б) двумя, (в) тремя, (г) четырьмя щелями.

продольной оси антенны до максимума на выходе из щели. В случае однощелевой антенны пиковое значение S_A составляет 3000 кВт/кг при глубине введения примерно 63 мм. В то же время в случае антенны с двумя щелями пиковое значение S_A = 2800 Вт/кг достигается при глубине введения примерно 59 мм. Для трех щелей пиковое значение S_A = 1800 Вт/кг при глубине введения равняется примерно 60 мм, а для четырех щелей максимум составляет 1530 Вт/кг при глубине 61 мм. После максимумов значения S_A быстро уменьшаются и имеют наименьшее значение при глубине погружения 80 мм. Так, можно сделать вывод, что S_A в ткани печени обусловлено типом антенны и положением щели.

На рис. 10 показана временная эволюция доли повреждения ткани при воздействии СВЧ-антенной. Расчет доли повреждений выполнен на основе размера опухоли, выбранного по данным [33]. Доля повреждения в случае рис. 10а находится за пределами области опухоли. На рис. 10г повреждение ограничено практически областью опухолевых клеток. Согласно результатам расчетов, за счет увеличения количества щелей зона повреждения уменьшается. В случае четырех щелей наблюдаются сферические зоны плавления и с меньшим повреждением нормальных тканей, особенно в осевом направлении.

На рис. 11 приведено сравнение кривых температур в шести позициях (положения показаны на рис. 3) на уровне выхода верхней щели в зависимости от времени. Результаты для всех случаев демонстрируют схожие тенденции распределения температуры: температура увеличивается с увеличением времени. Результаты показывают, что общее распределение температуры для антенны с одной щелью выше, чем для антенн с двумя, тремя и четырьмя щелями. С другой стороны, за счет увеличения количества щелей температурные профили снижаются с увеличением времени.

На рис. 12 показано сравнение кривых доли повреждения во время абляции для разных положений ткани печени при разных положениях выхода верхней щели в зависимости от времени. Изменение зоны поражения опухоли меняется следующим образом: она незначительно увеличивается, а затем достигает зоны насыщения, которая показывает время завершения некроза опухоли. Также можно сделать вывод, что полный некроз опухоли достигается для положения r = 5 мм от антенны через 600 с. По полученным результатам время, необходимое для полного некроза, составило 340, 350, 370 и 600 с для антенны с одной, двумя, тремя и четырьмя щелями соответственно. В результате в последнем случае время, необходимое для полной абляции опухоли, велико. Таким образом, абляция опухолевых клеток может быть достигнута в течение длительного периода времени без повреждения здоровых клеток, если для разработанной СВЧА используется антенна с четырьмя щелями.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данном исследовании представлены результаты численного моделирования интерстициальной микроволновой гипертермии с использованием многощелевой коаксиальной антенны. Проведенное моделирование показало, что добавление новых слотов благотворно влияет на терапевтический эффект гипертермии. Как и ожидалось, температура, наблюдаемая в целевой области, быстро снижается по мере удаления от микроволнового аппликатора. При увеличении количества слотов значение температуры уменьшается. Самая высокая температура наблюдалась в ткани печени в случае однощелевой антенны. Самые низкие температуры получены в случае четырех щелей. Доля повреждения тканей, подвергающихся воздействию частоты, уменьшается за счет увеличения количества щелей.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Selmi M., Bin Dukhyil A.A., Belmabrouk H.* Numerical Analysis of Human Cancer Therapy Using Microwave Ablation // Appl. Sci. 2020. V. 10. № 1. P. 211.
2. *Lau W.Y., Leung T.W.T., Yu S.C.H., Ho S.K.W.* Percutaneous Local Ablative Therapy for Hepatocellular Carcinoma: A Review and Look Into the Future // Ann. Surg. 2003. V. 237. № 2. P. 171.
3. *Ильина И.В., Ситников Д.С., Агранат М.Б.* Современное состояние исследований влияния терагерцового излучения на живые биологические системы // ТВТ. 2018. Т. 56. № 5. С. 814.
4. *Kabiri S., Rezaei F.* Liver Cancer Treatment with Integration of Laser Emission and Microwave Irradiation with the Aid of Gold Nanoparticles // Sci. Rep. 2022. V. 12. 9271.
5. *Keangin P., Rattanadecho P., Wessapan T.* An Analysis of Heat Transfer in Liver Tissue During Microwave Ablation Using Single and Double Slot Antenna // Int. Commun. Heat Mass Transfer. 2011. V. 38. № 6. P. 757.
6. *Kuang M., Lu M.D., Xie X.Y., Xu H.X., Mo L.Q., Liu G.J., Xu Z.F., Zheng Y.L., Liang J.Y.* Liver Cancer: Increased Microwave Delivery to Ablation Zone with Cooled-shaft Antenna – Experimental and Clinical Studies // Radiology. 2007. V. 242. № 3. P. 914.
7. Ablative Techniques (Percutaneous). Thermal Ablative Techniques. In: Percutaneous Tumor Ablation in Medical Radiology / Eds. Vogl T., Helmberger T., Mack M., Reiser M. Berlin–Heidelberg–N.Y.: Springer, 2008. P. 7.
8. *Garrean S., Hering J., Saied A., Hoopes P., Helton W., Ryan T., Espat N.* Ultrasound Monitoring of a Novel

Microwave Ablation (MWA) Device in Porcine Liver: Lessons Learned and Phenomena Observed on Ablative Effects Near Major Intrahepatic Vessels // J. Gastrointest. Surg. 2009. V. 13. P. 334.

9. *Talaee M.R., Kabiri A.* Analytical Solution of Hyperbolic Bioheat Equation in Spherical Coordinated Applied in Radiofrequency Heating // J. Mech. Med. Biol. 2017. V. 17. № 4. P. 1750072.
10. *Deshazer G., Prakash P., Merck D., Haemmerich D.* Experimental Measurement of Microwave Ablation Heating Pattern and Comparison to Computer Simulations // Int. J. Hyperthermia. 2017. V. 33. № 1. P. 74.
11. *Lin S.-M., Li C.-Y.* Semi-analytical Solution of Bioheat Conduction for Multi-layers Skin Subjected to Laser Heating and Fluid Cooling // J. Mech. Med. Biol. 2017. V. 17. № 2. P. 1750029.
12. *Kabiri A., Talaee M.R.* Theoretical Investigation of Thermal Wave Model of Microwave Ablation Applied in Prostate Cancer Therapy // Heat Mass Transfer. 2019. V. 55. № 8. P. 2199.
13. *Wang S., Tian R., Zhang X., Cheng G., Yu P., Chang J., Chen X.* Beyond Photo: Xdynamic Therapies in Fighting Cancer // Adv. Mater. 2021. V. 33. № 25. 2007488.
14. *Whelan W.M., Davidson S., Chin L., Vitkin I.I.* A Novel Strategy For Monitoring Laser Thermal Therapy Based on Changes in Optothermal Properties of Heated Tissues // Int. J. Thermophys. 2005. V. 26. № 1. P. 233.
15. *Kinoshita T., Iwamoto E., Tsuda H., Seki K.* Radiofrequency Ablation as Local Therapy for Early Breast Carcinomas // Breast Cancer. 2011. V. 18. P. 10.
16. *Jiang Y., Zhao J., Li W., Yang Y., Liu J., Qian Z.* A Coaxial Slot Antenna with Frequency of 433 MHz for Microwave Ablation Therapies: Design, Simulation, and Experimental Research // J. Med. Biol. Eng. 2017. V. 55. P. 2027.
17. *Vaz R.H., Pereira J.M., Ervilha A.R., Pereira J.C.* Simulation and Uncertainty Quantification in High Temperature Microwave Heating // Appl. Therm. Eng. 2014. V. 70. № 1. P. 1025.
18. *Saccomandi P., Schena E., Massaroni C., Fong Y., Grasso R.F., Giurazza F., Zobel B.B., Buy X., Palussiere J., Cazzato R.L.* Temperature Monitoring During Microwave Ablation in *ex vivo* Porcine Livers // Eur. J. Surg. Oncol. (EJSO). 2015. V. 41. № 12. P. 1699.
19. *Hoffmann R., Rempp H., Erhard L., Blumenstock G., Pereira P.L., Claussen C.D., Clasen S.* Comparison of Four Microwave Ablation Devices: An Experimental Study in ex Vivo Bovine Liver // Radiology. 2013. V. 268. № 1. P. 89.
20. *Lebedev Y.A.* Microwave Discharges in Liquids: Fields of Applications // High Temp. 2018. V. 56. № 5. P. 811.
21. *Хабибуллин И.Л., Хамитов А.Т., Назмутдинов Ф.Ф.* Моделирование процессов тепло- и массопереноса в пористых средах при фазовых превращениях, инициируемых микроволновым нагревом // ТВТ. 2014. Т. 52. № 5. С. 727.
22. *Пащина А.С., Дегтярь В.Г., Калашников С.Т.* СВЧ-антенна на основе импульсной плазменной струи // ТВТ. 2015. Т. 53. № 6. С. 839.
23. *Karampatzakis A., Kühn S., Tsanidis G., Neufeld E., Samaras T., Kuster N.* Heating Characteristics of Antenna Arrays Used in Microwave Ablation: A Theoretical Parametric Study // Comput. Biol. Med. 2013. V. 43. № 10. P. 1321.
24. *Medina-Franco H., Soto-Germes S., Ulloa-Gomez J.L., Romero-Trejo C., Uribe N., Ramirez-Alvarado C.A., Robles-Vidal C.* Radiofrequency Ablation of Invasive Breast Carcinomas: A Phase II Trial // Ann. Surg. Oncol. 2008. V. 15. P. 1689.
25. *Keangin P., Rattanadecho P.* Analysis of Heat Transport on Local Thermal Non-equilibrium in Porous Liver During Microwave Ablation // Int. J. Heat Mass Transfer. 2013. V. 67. P. 46.
26. *Keangin P., Rattanadecho P.* A Numerical Investigation of Microwave Ablation on Porous Liver Tissue // Adv. Mech. Eng. 2018. V. 10. № 8.
https://doi.org/10.117/1687814017734133
27. *Rattanadecho P., Keangin P.* Numerical Study of Heat Transfer and Blood Flow in Two-layered Porous Liver Tissue During Microwave Ablation Process Using Single and Double Slot Antenna // Int. J. Heat Mass Transfer. 2013. V. 58. P. 457.
28. *Curto S., Taj-Eldin M., Fairchild D., Prakash P.* Microwave Ablation at 915 MHz vs 2.45 GHz: A Theoretical and Experimental Investigation // Med. Phys. 2015. V. 42. № 11. P. 6152.
29. *Biffi Gentili G., Ignesti C., Tesi V.* Development of a Novel Switched-mode 2.45 GHz Microwave Multiapplicator Ablation System // Int. J. Microwave Sci. Technol. 2014. V. 2014. 973736.
30. *Cepeda Rubio M.F.J., Guerrero López G.D., Valdés Perezgasga F., Flores García F., Vera Hernández A., Leija Salas L.* Computer Modeling for Microwave Ablation in Breast Cancer Using a Coaxial Slot Antenna // Int. J. Thermophys. 2015. V. 36. № 10–11. P. 2687.
31. *Radjenović B., Sabo M., Šoltes L., Prnova M., Čičak P., Radmilović-Radjenović M.* On Efficacy of Microwave Ablation in the Thermal Treatment of an Early-stage Hepatocellular Carcinoma // Cancers. 2021. V. 13. № 22. P. 5784.
32. *Shock S.A., Meredith K., Warner T.F., Sampson L.A., Wright A.S., Winter III T.C., Mahvi D.M., Fine J.P., Lee F.T. Jr.* Microwave Ablation with Loop Antenna: In Vivo Porcine Liver Model // Radiology. 2004. V. 231. № 1. P. 143.

33. *Wu X., Liu B., Xu B.* Theoretical Evaluation of High frequency Microwave Ablation Applied in Cancer Therapy // Appl. Therm. Eng. 2016. V. 107. P. 501.

34. *Hadizafar L., Azarmanesh M.N., Ojaroudi M.* Enhanced Bandwidth Double-fed Microstrip Slot Antenna with a Pair of L-Shaped Slots // Prog. Electromagn. Res. C. 2011. V. 18. P. 47.
http://dx.doi.org/10.2528/PIERC10092812

35. *Singh S., Repaka R.* Effect of Different Breast Density Compositions on Thermal Damage of Breast Tumor During Radiofrequency Ablation // Appl. Therm. Eng. 2017. V. 125. P. 443.

36. *Pennes H.H.* Analysis of Tissue and Arterial Blood Temperatures in the Resting Human Forearm // J. Appl. Physiol. 1998. V. 85. № 1. P. 5.

37. *Choi S.Y., Kwak B.K., Seo T.* Mathematical Modeling of Radiofrequency Ablation for Varicose Veins // Comput. Math. Methods Med. 2014. V. 2014. 485353.

38. *Yang D., Converse M.C., Mahvi D.M., Webster J.G.* Expanding the Bioheat Equation to Include Tissue Internal Water Evaporation During Heating // IEEE. Trans. Biomed. Eng. 2007. V. 54. № 8. P. 1382.

39. *Wessapan T., Srisawatdhisukul S., Rattanadecho P.* Specific Absorption Rate and Temperature Distributions in Human Head Subjected to Mobile Phone Radiation at Different Frequencies // Int. J. Heat Mass Transfer. 2012. V. 55. № 1–3. P. 347.

40. *Arathy K., Sudarsan N., Antony L., Ansari S., Malini K.A.* Early Detection and Parameter Estimation of Tongue Tumour Using Contact Thermometry in a Closed Mouth // Int. J. Thermophys. 2022. V. 43. № 3. 34.

41. *Lyu Ch.-y., Zhan R.-j.* Constitutive Equations Developed for Modeling of Heat Conduction in Biotissues: A Review // Int. J. Thermophys. 2021. V. 42. № 2. 27.

42. *Valvano J.W., Cochran J., Diller K.R.* Thermal Conductivity and Diffusivity of Biomaterials Measured with Self-heated Thermistors // Int. J. Thermophys. 1985. V. 6. P. 301.

43. *Gas P.* Study on Interstitial Microwave Hyperthermia with Multi-slot Coaxial Antenna // arXiv:2008.02032 [physics.med-ph]. 2020.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 143–146

КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ

УДК 537.311

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ В ОБЛАСТИ КОНТАКТНОЙ ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПОВЕРХНОСТИ ГРАФИТА

© 2024 г. А. В. Костановский*, М. Г. Зеодинов, М. Е. Костановская, А. А. Пронкин*****

Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

**E-mail: kostanovskiy@gmail.com*

***E-mail: mz.64@mail.ru*

****E-mail: pronking.a.a@gmail.com*

Поступило в редакцию 23.08.2023 г.
После доработки 11.10.2023 г.
Принято к публикации 04.12.2023 г.

Впервые бесконтактным методом оптической пирометрии определено распределение температуры вдоль образующей поверхности вертикального образца графита при пропускании постоянного электрического тока с двух сторон от контактной плоскости на равном удалении. Анализ зависимости распределения температуры от расстояния, которое отсчитывается от контактной плоскости, показал, что в диапазоне значений 750–1700 K выполняется симметрия поля температуры, которая в соответствии с экспериментом сохраняется при последовательном повышении давления (49, 77, 105 кПа) и при смене полярности постоянного электрического тока. Согласно закону Фурье симметрия поля температуры означает выполнение симметричного распределения плотности теплового потока относительно контактной плоскости. Симметрия поля температуры и плотности теплового потока влечет за собой выполнение граничных условий четвертого рода в плоскости контакта.

DOI: 10.31857/S0040364424010162

ВВЕДЕНИЕ

Электрическое контактное сопротивление, возникающее на границе соприкосновения одноименных или различных материалов при пропускании по образцу электрического тока, изучается с середины прошлого века [1]. Первоначально основное внимание исследователей было сосредоточено на характеристиках поверхности контакта, таких как шероховатость, прочность материала, вид деформации при различных внешних весовых нагрузках. По мере изучения физики многослойных сред большее внимание стало уделяться распределениям электрического сопротивления и температуры в области влияния плоскости контакта. Прямое измерение распределения температуры не применялось, так как тепловая задача являлась вторичной по отношению к электрической. Кроме того, внедрение термопар в образец влечет за собой изменение сопротивления образца и понижение точности определения электрических параметров. Распределение температуры, как правило, рассчитывается с использованием экспериментальных электрических данных. Расчет распределения температуры проводится на основе локального тепловыделения, которое возникает при пропускании электрического тока – закон Джоуля–Ленца, и предположения, что передача выделяемой теплоты от контактной плоскости к концам образца происходит по закону теплопроводности [2, 3]. Сравнение расчетных и экспериментальных значений температуры не проводилось.

Цель данной работы состоит в экспериментальном определении распределения температуры в зависимости от расстояния, которое отсчитывается от плоскости контактного электрического сопротивления, и в проверке выполнения граничных условий (ГУ) четвертого рода непосредственно в плоскости контакта [4]. В качестве исследуемого материала выбран графит с известными излучательными характеристиками [5], что позволяет определять распределение действительной температуры. Актуальность работы обусловлена необходимостью проведения прямых экспериментальных исследований поля температуры в окрестности контактной плоскости с целью расширения существующих представлений о природе контактного электрического сопротивления.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Для изучения контактного электрического сопротивления была создана установка, позволяющая исследовать контактные явления в вакууме и проводить эксперименты в области температур 750–1700 K. Описание установки приведено в [6]. Основными элементами установки являются: экспериментальный образец, система электрического питания, вакуумная и диагностирующая системы. В указанной работе приведены результаты первых тестовых экспериментов, демонстрирующие работоспособность установки.

Для решения задачи определения распределения температуры по длине образца в области, прилегающей к контактной плоскости, данная установка была усовершенствована. На рис. 1 приведено изображение установки с основными элементами. Измерительная система дополнена оптическим пирометром, использование которого позволило исключить термопары из эксперимента. Перед экспериментами с целью уменьшения отражения внутренняя поверхность камеры была экранирована графитовой тканью.

Экспериментальный образец диаметром $d = 2R = 7.85$ мм и рабочей длиной $l = 90$ мм ($l/d > 10$) был вырезан из графита марки МПГ-7 перпендикулярно плоскости приложения давления при прессовании. Цилиндр разрезался пополам перпендикулярно продольной оси, образованные плоскости (плоскость контакта) шлифовались бумагой. Образец, собранный из двух частей, устанавливался вертикально в кварцевом тонкостенном цилиндре (контроль за соосностью частей образца) с пазом для измерения температуры T. Использовалась весовая нагрузка, расположенная на верхнем торце цилиндра. По образцу пропускался постоянный электрический ток I. В ходе эксперимента последовательно увеличивалось давление на контактную плоскость $P = 49$, 77, 105 кПа. Измерения проводились в вакууме при давлении 10^{-4} Па.

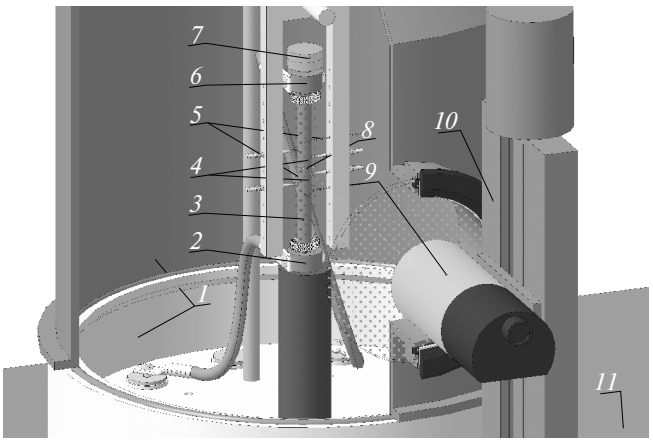

Рис. 1. Рабочий участок установки для измерения контактного электрического сопротивления: *1* – корпус вакуумной камеры, *2* – нижний токоподвод, *3* – кварцевая трубка, *4* – образцы, *5* – термопары, *6* – верхний токоподвод, *7* – грузики, *8* – контактная поверхность, *9* – ИК-пирометр, *10* – линейный модуль перемещения пирометра вдоль вертикальной оси образца, *11* – вакуумный пост ВУП-5.

Распределение яркостной температуры вдоль поверхности образца, фиксируемое на одной образующей параллельной оси цилиндра в диапазоне значений 750–1750 K, измерялось пирометром Raytek марки RAYMM1MHSF1L. Пирометр работал на длине волны 1.0 мкм и имел диаметр пятна визирования 1.0 мм. Погрешность измерения яркостной температуры составила ±6 K при максимальной температуре. Пирометр был установлен на оптическом столике так, чтобы его можно было перемещать параллельно оси экспериментального образца с заданным шагом x_i. Головка винта оптического столика, с помощью которого перемещался пирометр, была прокалибрована и использовалась для определения величины смещения пятна визирования с погрешностью 100 мкм. Шаг по длине составлял $\Delta x \approx 2.0$ мм, минимальное число измерений с каждой стороны от контактной плоскости равнялось семи. Значения яркостной температуры $T_{\text{ярк}}$ пересчитывались на действительную температуру T с использованием литературных данных о нормальной спектральной излучательной способности графита [5]. Были введены поправки на поглощение в стекле окна камеры. Оценка равномерности поля температуры по радиусу, выполненная на основе критерия Старка (который является аналогом критерия Био для граничных условий третьего рода) $\mathrm{St} = \sigma T^3 d/\lambda = 0.05$ (σ – константа Стефана–Больцмана, λ – теплопроводность графита), показала, что равномерность поля T по радиусу выполняется: $\mathrm{St} < 0.1$. Данная оценка не учитывает наличия внутренних источников теплоты, возникающих в результате прохождения по образцу электрического тока, влияние которых приводит к повышению T по мере приближения к оси образца. В результате измеренные на поверхности образца локальные (по длине) значения температуры $T(R, x_i) < T(r, x_i)$ можно рассматривать как оценку “снизу” для среднего значения температуры в каждом сечении.

Распределение температуры в зависимости от расстояния x_i, которое отсчитывается от контактной плоскости $T(R, x_i)$, измерялось с шагом 150–200 K при последовательном повышении T от ~750 до ~1700 K и затем понижении температуры. Измерения проводились в стационарном тепловом режиме. Время предварительной выдержки для каждого режима составляло 15 мин при низких температурах и 20 мин при высоких.

РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 2 приведен пример массива экспериментальных данных $T(R, x_i)$, полученных при давлении $P = 105$ кПа, источник питания был подключен плюсовым контактом к нижнему торцу образца. Видно, что все режимы характеризуются максимальными значениями T в плоскости контакта. Для каждого значения силы тока I вторые производные температуры от расстояния положительны $\partial^2 T(R, x_i)/\partial x_i^2 > 0$, что коррелирует с данными удельного электрического контактного сопротивления $\partial^2(\rho_{кс1}/\rho_{\perp})/\partial x^2 > 0$, измеренными в [7].

Для анализа выполнения симметрии поля $T(R, x_i)$ относительно плоскости контакта использованы методы математической статистики. Весь массив данных (рис. 2) приведен к безразмерному виду делением температуры $T(R, x_i)$ на $T_{макс}(I)$ для каждого значения силы тока I. Таким образом, получена безразмерная выборка с числом переменных 150. Оценка асимметрии проводилась по методике, используемой для нормального распределения, которое является симметричным, и основанной на расчете величины асимметрии $a_3 = м_3/(\sqrt{D})^3$, где $м_3$ – центральный эмпирический момент третьего порядка, D – дисперсия [8]. Расчет величины асимметрии всего массива данных (рис. 2) дал $a_3 = -0.091$, $a_3 = -0.056$ для выборки объемом 112, в которую вошли данные, отстоящие от плоскости контакта на ±6 мм. Следовательно, экспериментальные данные характеризуются наличием невысокой асимметрии, которая уменьшается при приближении к плоскости контакта. Можно предположить, что и температуры, и градиенты температуры, рассчитываемые на расстояниях, равноудаленных от плоскости контакта, равны. Это означает симметричность распределения и для локальных значений плотности теплового потока $q(x_i) = -\lambda(T(x_i))(\partial T(x_i)/\partial x)$ в силу равенства локальных значений теплопроводности $\lambda(T(x_i))$. Экстраполяция распределения температуры и распределения плотности теплового потока на плоскость контакта (равенство пределов “снизу” и “сверху”) показывает, что выполняются ГУ четвертого рода, когда теплообмен между соприкасающимися телами происходит по закону теплопроводности (тепловая задача) [4]. Отметим, что при изучении теплового контактного сопротивления (электрический ток отсутствует) рассматривается возможность выполнения граничных условий четвертого рода, однако для задачи контактного электрического сопротивления данный вывод сделан впервые. Тот факт, что экспериментальные данные позволяют сделать вывод о выполнении ГУ четвертого рода, связан не только с тем, что контактная плоскость образована одинаковыми материалами, но и со свойствами графита, когда вкладом других механизмов, например радиационным теплообменом между шероховатостями на плоскости контакта, можно пренебречь. Анализ всего массива экспериментальных данных показал, что ГУ четвертого рода выполняются при последовательном повышении давления на контактную поверхность графита 49, 77, 105 кПа и при смене полярности электрического тока. Последнее косвенно подтверждает, что может выполняться и симметрия распределения удельного контактного электрического сопротивления в окрестности плоскости контакта [7]. Данный вывод имеет ограничение – контактное электрическое сопротивление, образованное соединением различных материалов, может приводить к нарушению условия симметрии распределения температуры (нарушение симметрии наблюдается и в тепловом контактном сопротивлении) и удельного контактного электрического сопротивления. Указанные задачи требуют специального рассмотрения.

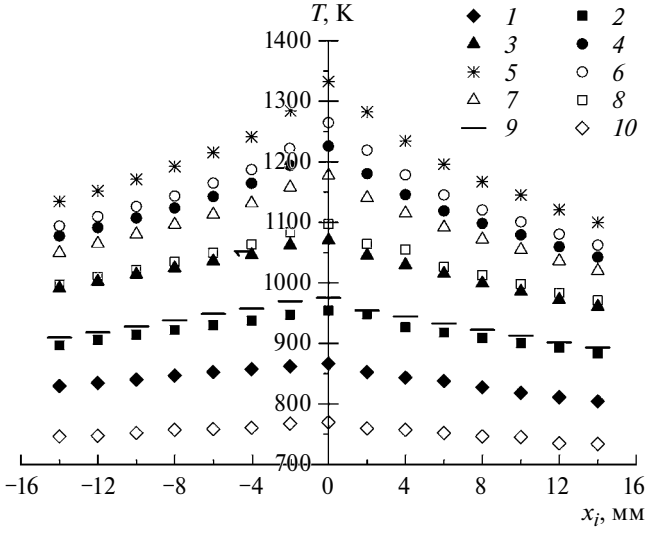

Рис. 2. Зависимости температуры от расстояния до контактной поверхности, измеренные при $P = 105$ кПа (положительный электрод внизу) и последовательном повышении тока: *1* – 52 А, *2* – 61, *3* – 73, *4* – 89, *5* – 100; при последовательном понижении тока: *6* – 93 А, *7* – 79, *8* – 71, *9* – 59, *10* – 42.

Вывод, сделанный о симметрии поля температуры, имеет, в частности, прикладное значение. Так как измерения контактного электрического сопротивления проводились двумя точечными поверхностными зондами, установленными на равном расстоянии от контактной плоскости [7], влияние температуры на электрические измерения отсутствует.

На рис. 3 приведены зависимости от силы тока I изменений локальной температуры, измеренной в плоскости контакта $T_{макс}$, и температуры, фиксируемой в центре изотермического участка образца, когда контактная плоскость отсутствует. Эксперименты проведены в максимальном соответствии таких параметров, как размеры образцов, направление электрического тока. Видно, что при

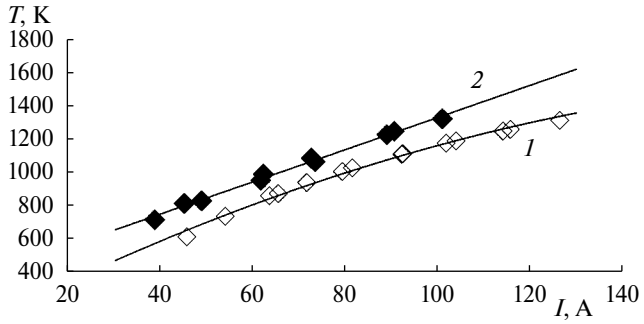

Рис. 3. Зависимости температуры T от силы тока I: *1* – измеренная в центре изотермического участка образца, в котором отсутствует контактная плоскость; *2* – температура $T_{макс}$, измеренная в плоскости контакта ($P = 105$ кПа, положительный электрод внизу).

увеличении силы тока в образце, когда контактная плоскость отсутствует, темп роста температуры уменьшается. Это связано с увеличением потерь в результате теплообмена с окружающей средой, так как плотность радиационного теплового потока $q_{рад} \sim (T^4 - T^4_{окр.ср})$ (где $T_{окр.ср}$ – температура окружающей среды) возрастает при увеличении T. В эксперименте, когда в образце присутствует плоскость контакта, зависимость $T_{макс} \sim f(I)$ характеризуется возрастающей линейной функцией (рис. 3). Это означает, что тепловыделение в плоскости контакта настолько велико, что компенсирует и превышает потери теплоты излучением в окружающую среду. Указанные температуры показывают, что отличие значений T в непосредственной близости к контактной плоскости и на достаточном удалении от нее может составлять сотни градусов. Приведенное сравнение зависимостей температуры от силы тока, по-видимому, получено впервые.

Проведены эксперименты, в которых изучено влияние внешней нагрузки P на распределение T. Зависимость максимальной температуры, измеренной в плоскости контакта, от внешней нагрузки $T_{макс} = f(P)$ при фиксированном значении силы тока $I = 100$ А в образце показала, что имеет место незначительное уменьшение $T_{макс}$ с ростом P. Это коррелирует с влиянием P на величину удельного контактного электрического сопротивления [1, 7].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые проведено бесконтактное измерение распределения температуры поверхности образца графита на разных расстояниях от плоскости контактного электрического сопротивления. Методами математической статистики показано выполнение симметрии поля температуры относительно плоскости контакта. Следствием симметрии поля температуры является выполнение граничного условия четвертого рода непосредственно в сечении, где находится плоскость контакта. Граничные условия четвертого рода выполняются при последовательном повышении давления на контактную поверхность 49, 77, 105 кПа и при смене полярности постоянного электрического тока. Экспериментально показано, что температура в плоскости контакта может на сотни градусов превышать значения T, которые имеют место при аналогичных условиях в образце без контактной плоскости.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Хольм Р.* Электрические контакты. М.: Изд-во иностр. лит., 1961. 464 с.
2. *Чунихин А.А.* Электрические аппараты. Общий курс. М.: Энергоатомиздат, 1988. 720 с.
3. *Костановский А.В., Костановская М.Е., Зеодинов М.Г., Пронкин А.А.* Термический эффект при контактном электрическом сопротивлении графита // ТВТ. 2022. Т. 60. № 6. С. 946.
4. *Лыков А.В.* Теория теплопроводности. М.: Высшая школа, 1967. 599 с.
5. Излучательные свойства твердых материалов. Спр. / Под ред. Шейндлина А.Е. М.: Энергия, 1974. 470 с.
6. *Костановский А.В., Зеодинов М.Г., Пронкин А.А., Костановская М.Е.* Установка для определения контактного электрического сопротивления высокотемпературных материалов // ПТЭ. 2023. № 6. С. 181.
7. *Зеодинов М.Г., Костановский А.В., Костановская М.Е., Пронкин А.А.* Контактное электрическое сопротивление графита марки МПГ-7 при постоянном и переменном токе // ТВТ. 2022. Т. 60. № 5. С. 789.
8. *Гмурман В.Е.* Теория вероятностей и математическая статистика. М.: Высшая школа, 2001. 478 с.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 147–149

УДК 532.529:534.2

АКУСТИЧЕСКИЕ ВОЛНЫ В СМЕСИ ВОЗДУХА С ПОЛИДИСПЕРСНЫМИ ЧАСТИЦАМИ АЛЮМИНИЯ

© 2024 г. Д. А. Губайдуллин*, Р. Р. Зарипов**

Институт механики и машиностроения – ОСП ФГБУН "Федеральный исследовательский центр "Казанский научный центр РАН", Казань, Россия

**E-mail: gubaidullin@imm.knc.ru*

***E-mail: rinat_zaripov.imm@mail.ru*

Поступило в редакцию 06.06.2023 г.
После доработки 25.10.2023 г.
Принято к публикации 04.12.2023 г.

На основе ранее разработанной линейной теории по распространению и затуханию акустических волн в полидисперсных газовзвесях проведено сравнение теоретических и экспериментальных данных. Построены зависимости декремента затухания на длине волны от частоты возмущения для смеси воздуха с полидисперсными частицами алюминия. Показано, что применение полидисперсной модели в газовзвесях дает более точное описание эксперимента, чем использование монодисперсной модели.

DOI: 10.31857/S0040364424010175

ВВЕДЕНИЕ

Понимание особенностей распространения акустических волн в многофазных средах важно во многих областях. Акустические методы могут использоваться для мониторинга и определения характеристик многофазных сред в технологических процессах, атомной энергетике, химической, нефтехимической и агрохимической промышленности. Частицы могут влиять на (нелинейную) акустику в камерах сгорания, таких как ракетные двигатели с металлизированным топливом и усилители тяги реактивных двигателей [1]. Метеорологов интересует распространение звука в облаках и тумане, а также загрязнение воздуха. Учет эффектов звукового распространения в облаках и тумане является важным для улучшения прогнозов погоды и исследования климата. Наличие в воздухе примесей в виде жидких и твердых включений приводит к изменению акустических характеристик среды. В них распространение акустических волн становится более сложным процессом. Основы динамики многофазных сред представлены в работах [2–4]. Некоторые экспериментальные и теоретические исследования характеристик двухфазных сред с твердыми частицами и каплями рассмотрены в [5–10]. Исследования, посвященные особенностям распространения и затухания акустических волн в многофракционных смесях, описаны в [11, 12].

В настоящей работе выполнено сопоставление теоретических результатов с экспериментальными и теоретическими данными других авторов по затуханию звука в смеси воздуха с частицами алюминия разных размеров.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

В работе [13] представлены экспериментальные данные по затуханию звука в смеси воздуха с частицами алюминия. Диапазон частот изменялся в пределах 200–2000 Гц. Объемное содержание частиц алюминия составляло $\alpha = 10^{-6}$. Радиус частиц алюминия изменялся в диапазоне 1–6 мкм. Зависимость суммарного распределения частиц по объему в процентах от радиуса частиц R в микрометрах представлена на рис. 1 [13].

Полученные из рис. 1 значения радиусов R частиц алюминия и их доли p от объемного содержания α представлены в таблице.

ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Сравнение экспериментальных данных проводится с помощью дисперсионного соотношения, которое было получено в работе [12]. Данное соотношение описывает распространение и затухание акустических волн в многофракционных полидисперсных газовзвесях. Так как в эксперименте рассматривается одна полидисперсная

Размеры частиц алюминия и их доля от объемного содержания

R, мкм	1	1.507	1.751	1.998	2.201	2.348	2.5	2.693
p	0.0095	0.017	0.019	0.0254	0.0499	0.0415	0.0596	0.0819
R, мкм	2.8446	2.9998	3.0979	3.1993	3.3902	3.4956	3.581	3.6983
p	0.05	0.1022	0.049	0.0521	0.099	0.0298	0.0468	0.0426
R, мкм	3.8875	3.9762	4.1867	4.373	4.5751	4.9755	5.4638	6
p	0.0788	0.038	0.034	0.027	0.0213	0.014	0.0074	0.0065

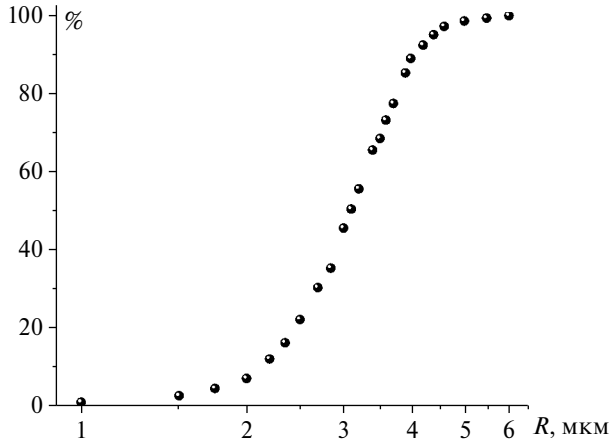

Рис. 1. Суммарное распределение частиц алюминия по объему в зависимости от радиуса частиц R.

фракция (частицы алюминия), то, полагая $j = 1$ в дисперсионном соотношении [12], получаем следующее дисперсионное соотношение:

$$\left(\frac{C_1 K_*}{\omega}\right)^2 = V(\omega) D(\omega), \qquad (1)$$

$$V(\omega) = 1 + m\left\langle \frac{1}{1 - i\omega\tau_v^*} \right\rangle,$$

$$D(\omega) = 1 + (\gamma_1 - 1)\frac{D_0(\omega)}{1 + D_0(\omega)},$$

$$D_0(\omega) = m\frac{c_{p2}}{c_{p1}}\left\langle \frac{1}{1 - i\omega\tau_T^*} \right\rangle,$$

$$\langle h \rangle = \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} N(R) g(R) h dR \Big/ \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} N(R) g(R) dR,$$

$$\tau_v^* = \frac{2}{9}\frac{\rho_2 R_2^2}{\mu_1}\left(1 - \frac{1-i}{\sqrt{2}}\sqrt{\omega\frac{\rho_1 R_2^2}{\mu_1}}\right)^{-1},$$

$$\tau_T^* = \tau_{\lambda 2}\frac{3z_2 - \left(3 + z_2^2\right)th(z_2)}{3z_2^2\left(th(z_2) - z_2\right)} + m\frac{c_{p2}}{3c_{p1}}\frac{\alpha_1}{\alpha_2}\frac{\tau_{\lambda 1}}{1 + z_1},$$

$$z_1 = (1-i)\sqrt{\frac{\omega\tau_{\lambda 1}}{2}},\ z_2 = (1-i)\sqrt{\frac{\omega\tau_{\lambda 2}}{2}},$$

$$\tau_{\lambda 1} = \frac{R_2^2 \rho_1 c_{p1}}{\lambda_1},\ \tau_{\lambda 2} = \frac{R_2^2 \rho_2 c_{p2}}{\lambda_2}.$$

Здесь C – скорость звука; K_* – комплексное волновое число; ω – круговая частота возмущений; m – массовое содержание; i – мнимая единица; τ_v^* – комплексное время релаксации скоростей фаз при квазистационарном обтекании частиц газом [3]; γ – показатель адиабаты; c_p – теплоемкость; τ_T^* – комплексное время релаксации температуры [3]; $R_{\max}$, $R_{\min}$ – максимальный и минимальный радиусы частицы; $N(R)$ – функция распределения частиц по размерам; $g(R)$ – масса одной частицы; $\langle h \rangle$ – линейный оператор осреднения [3]; μ_1 – коэффициент динамической вязкости; λ – коэффициент теплопроводности. Нижний индекс 1 относится к несущей фазе (воздух), индекс 2 – к дисперсной фазе (частицы алюминия). Функции $V(\omega)$ и $D(\omega)$ описывают эффекты, связанные с межфазным трением и межфазным теплообменом соответственно.

Отметим, что дисперсионное соотношение (1) описывает распространение и затухание акустических волн в смеси газа с полидисперсной твердой фракцией с учетом произвольной функции распределения частиц по размерам. Из данного дисперсионного соотношения можно получить выражение для декремента затухания на длине волны [3]:

$$\sigma = \frac{2\pi K_{**}}{K},\ K_* = K + iK_{**}. \qquad (2)$$

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

Расчеты проведены с помощью дисперсионного соотношения (1) и уравнения (2). Теплофизические свойства воздуха и частиц алюминия при температуре $T_0 = 237$ K и давлении $p_0 = 0.1$ МПа взяты из справочника [14]. В качестве функции

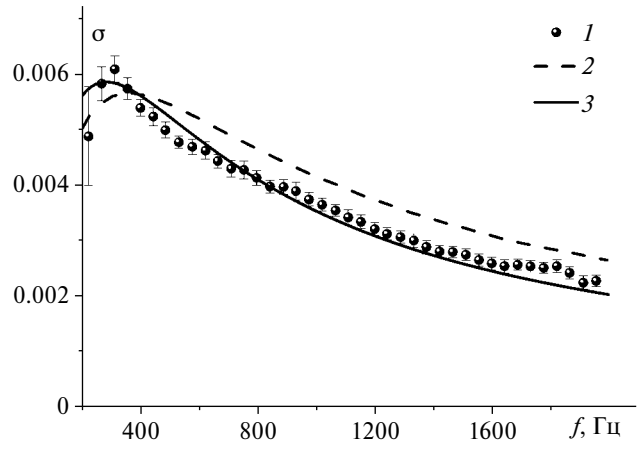

Рис. 2. Сопоставление данных теории и эксперимента по декременту затухания на длине волны в смеси воздуха с полидисперсными частицами алюминия: *1* – экспериментальные данные [13]; *2* – теоретические данные [15]; *3* – результаты, полученные с помощью (1).

распределения частиц по размерам выбрана функция с нормальным распределением, которая имеет следующий вид:

$$N(R) = \frac{1}{s\sqrt{2\pi}} \mathrm{e}^{-\frac{1}{2}\left(\frac{R-R_0}{s}\right)^2}, \quad R_{\min} < R < R_{\max}, \quad (3)$$

где R_0 – среднее значение, s – среднеквадратическое отклонение. Данные параметры определены из таблицы и составляют $R_0 = 3.17$ мкм и $s = 0.77$ мкм.

На рис. 2 приведены зависимости декремента затухания на длине волны σ от частоты возмущений $f = \omega/(2\pi)$ для смеси воздуха с полидисперсными частицами алюминия. Теоретические данные построены по монодисперсной модели со средним радиусом $R_0 = 3.2$ мкм [15]. Теоретические результаты настоящей работы получены с помощью (1) в рамках полидисперсной модели с учетом функции распределения частиц по размерам (3). При учете полидисперсного состава смеси наблюдается хорошее соответствие теоретической кривой экспериментальным значениям. Таким образом, учет функции распределения частиц по размерам в рамках полидисперсной теории дает более качественное описание эксперимента по сравнению с монодисперсной теорией, которая учитывает только средний размер частиц.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На примере смеси воздуха с частицами алюминия представлено сравнение ранее разработанной континуальной теории с экспериментальными данными по затуханию акустических волн. По имеющимся экспериментальным данным подобрана функция распределения частиц по размерам, учитывающая полидисперсность смеси. Выявлено, что теория, разработанная в рамках полидисперсной модели, более точно описывает проведенный эксперимент по сравнению с монодисперсной теорией.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 20-11-20070 (https://rscf.ru/project/20-11-20070/).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Culick F.E.C.* Some Recent Result for Nonlinear Acoustics in Combustion Chambers // AIAA J. 1994. V. 32. P. 146.
2. *Нигматуллин Р.И.* Динамика многофазных сред. М.: Наука, 1987. 464 с.
3. *Губайдуллин Д.А.* Динамика двухфазных парогазокапельных сред. Казань: Изд-во Казанск. матем. общ-ва, 1998. 154 с.
4. *Temkin S.* Suspension Acoustics: An Introduction to the Physics of Suspensions. N.Y.: Cambridge Univ. Press, 2005. 418 p.
5. *Marble F.E.* Dynamics of Dusty Gases // Ann. Rev. Fluid Mech. 1970. V. 2. P. 397.
6. *Вараксин А.Ю.* Обтекание тел дисперсными газовыми потоками // ТВТ. 2018. Т. 56. № 2. С. 282.
7. *Губайдуллин Д.А., Федоров Ю.В.* Сферические и цилиндрические волны в парогазовых смесях с полидисперсными частицами и каплями // ТВТ. 2012. Т. 50. № 5. С. 659.
8. *Temkin S., Dobbins R.A.* Measurements of Attenuation and Dispersion of Sound by an Aerosol // J. Acoust. Soc. Am. 1966. V. 40. P. 1016.
9. *Вараксин А.Ю.* Столкновения частиц и капель в турбулентных двухфазных потоках // ТВТ. 2019. Т. 57. № 4. С. 588.
10. *Вараксин А.Ю., Мочалов А.А., Желебовский А.А.* Характеристики течения в следе за крупной движущейся частицей // ТВТ. 2022. Т. 60. № 2. С. 701.
11. *Губайдуллин Д.А., Терегулова Е.А., Губайдуллина Д.Д.* Распространение акустических волн в многофракционных газовзвесях // ТВТ. 2015. Т. 53. № 5. С. 752.
12. *Губайдуллин Д.А., Зарипов Р.Р.* Акустические волны в многофракционных газовзвесях с полидисперсными включениями // ТВТ. 2019. Т. 57. № 3. С. 475.
13. *Moss S.* Acoustic Measurements of Flowing and Quasi-static Particulate Suspensions. PhD dis., 1997. P. 339.
14. *Варгафтик Н.Б.* Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. М.: Наука, 1972. 721 с.
15. *Lloyd P., Berry M.V.* Wave Propagation Through an Assembly of Spheres // Proc. Phys. Soc. 1967. V. 91. P. 678.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2024, том 62, № 1, с. 150–153

УДК 534.142

САМОВОЗБУЖДЕНИЕ КОЛЕБАНИЙ ГАЗА В ТРУБЕ С ЗАКРУЧЕННЫМ ПЛАМЕНЕМ

© 2024 г. В. М. Ларионов[1], А. О. Малахов[1], О. В. Иовлева[1, *], Е. В. Семенова[1, **], И. В. Ларионова[2]

[1]Казанский федеральный (Приволжский) университет, Казань, Россия

[2]Казанский национальный исследовательский технический университет им. А.Н. Туполева – КАИ, Казань, Россия

*E-mail: Olga.Beloded@kpfu.ru

**E-mail: Evgeniya.yallina@gmail.com

Поступило в редакцию 27.06.2023 г.
После доработки 13.10.2023 г.
Принято к публикации 04.12.2023 г.

Работа посвящена исследованию пульсационного горения в камере сгорания с закрученным потоком. Экспериментально определены условия возбуждения и характеристики акустических колебаний газа в трубе с тангенциальной подачей смеси пропан-бутанового топлива с воздухом. Обнаружена аномальная зависимость частоты колебаний газа от коэффициента избытка воздуха α: минимум при $\alpha = 1$ и локальный максимум при $\alpha \approx 1.15$. При $\alpha = 1$ колебания газа имеют максимальную амплитуду. Показано, что на частоту колебаний существенно влияют аксиальный градиент скорости звука в трубе, его зависимость от амплитуды колебаний газа.

DOI: 10.31857/S0040364424010181

ВВЕДЕНИЕ

Известно, что в камерах сгорания энергетических установок, например современных газотурбинных установок (ГТУ) [1–4], процесс горения может стать неустойчивым. Происходит возбуждение акустических колебаний газа, которые дестабилизируют работу всей установки и поэтому должны быть устранены.

В работе [5] проведено исследование процесса самовозбуждения колебаний газа в трубе с закрученным пламенем. Установлено, что при изменении расхода стехиометрической смеси от 10.2 до 32 л/мин наблюдается стабильный режим (без срыва пламени) пульсационного горения с частотой 230–260 Гц и уровнем звукового давления (УЗД) от 122–162 дБ.

Для распределения скорости звука использовалось линейное приближение [6, 7].

В этом случае волновое уравнение для пульсаций скорости газа имеет аналитическое решение, которое позволяет разработать математические модели пульсационного горения для ряда прямоточных камер сгорания. Предполагается, что распределение температуры при фиксированном расходе смеси топлива с воздухом зависит только от температуры горения и одинаково на всех стадиях процесса возбуждения колебаний газа. Реально колебания газа существенно ускоряют теплопередачу к стенкам камеры. В результате распределение температуры газа в режиме установившихся колебаний отличается от распределения в отсутствие колебаний или в начальной стадии возбуждения колебаний, когда их амплитуда бесконечно мала.

Цель данной работы – определение условий возбуждения, частоты и амплитуды колебаний газа в зависимости от коэффициента избытка воздуха в смеси и геометрических параметров смесеподающего устройства в трубе при горении в закрученном потоке.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Экспериментальная часть работы проводилась на установке, использованной в работах [5, 8]. Камера сгорания – цилиндрическая труба, закрытая на выходе с тангенциальной подачей смеси (рис. 1).

Камера сгорания состоит из цилиндрической трубы *5* внутренним диаметром 34 мм и входной камеры *1* такого же внутреннего диаметра с четырьмя входными патрубками *4* и *6* длиной 60 мм,

внутренним диаметром 3 мм. Смесь в патрубки поступала из трубопроводов *7* длиной 0.48 м, внутренним диаметром 8 мм. Использовались два противоположных или четыре симметрично расположенных патрубка. Поршень *3* после предварительных испытаний все время находился на расстоянии 10 мм ниже патрубков. На входе камеры сгорания имеется водяное охлаждение *2*. Такая организация необходима для предотвращения перегрева патрубков *4* и стабилизации температуры поступающей газовой смеси *7*. Длина камеры сгорания (расстояние от поршня до открытого выхода трубы) составляет 0.45 м.

Использовалась смесь баллонного пропан-бутанового топлива с атмосферным воздухом. Состав топлива [5, 8]: пропан (74.36%), метан (5.2%), изобутан (8.77%), бутан (6.9%), сероводород (4.13%) и вода (0.63%). Расчеты показали [8], что для полного сгорания 1 м^3 топлива потребуется 23.5 м^3 воздуха. Если расход топлива – V_f и воздуха – V_α, коэффициент избытка воздуха рассчитывается по формуле

$$\alpha = V_\alpha/(23.5V_f).$$

Характеристики колебаний газа – частота и УЗД на входе камеры сгорания – измерялись акустическим зондом, включающим компьютерный электретный микрофон и алюминиевый щуп длиной 15 см, внутренним диаметром 3 мм.

Исследовано влияние расхода смеси на частоту и амплитуду колебаний газа при условии, когда коэффициент избытка воздуха постоянен. Данные получены для трубопроводов, подводящих смесь к патрубкам, длиной l_t = 0.48 м. Если α = 1, увеличение расхода смеси от 10.2 до 24 л/мин вызывает повышение частоты колебаний до максимального значения 260 Гц (рис. 2). Дальнейшее изменение расхода смеси до 32 л/мин приводит к снижению частоты. Характер зависимости уровня звукового давления в зоне горения от расхода смеси (рис. 3) такой же, как для частоты колебаний. Имеется максимум 162 дБ, который соответствует максимальной частоте.

Результаты измерений показали, что стабильный режим пульсационного горения с наибольшими значениями амплитуды колебаний газа соответствует стехиометрическому составу смеси в диапазоне расхода воздуха от 20 до 27 л/мин.

Далее исследовано влияние коэффициента избытка воздуха на характеристики колебаний газа в камере сгорания длиной l_c = 0.45 м с четырехпатрубковой системой подачи (n = 4, l_t = 0.48 м) для фиксированных значений расхода воздуха (V_α = 21, 25.8, 27 л/мин). Данные, представленные на рис. 4, показывают, что частота колебаний газов минимальна для стехиометрического состава смеси (α = 1). Уменьшение или увеличение α, т.е. увеличение или уменьшение расхода топлива

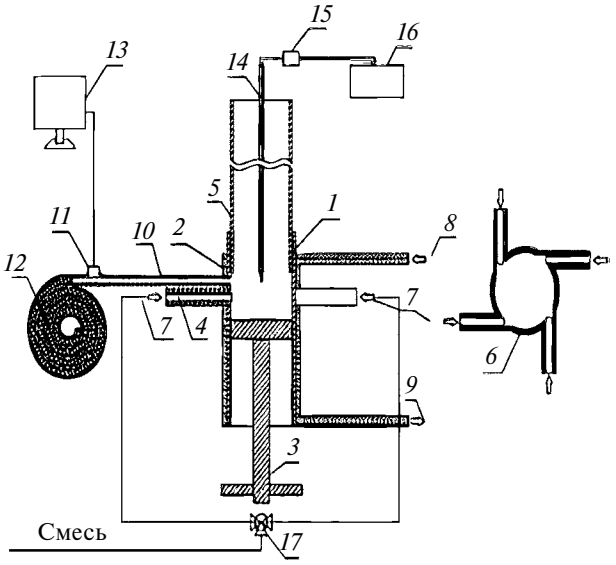

Рис. 1. Схема экспериментальной установки: *1* – входная камера; *2* – охлаждающий контур; *3* – винтовой поршень; *4* – патрубок подачи топливовоздушной смеси; *5* – цилиндрическая труба-резонатор; *6* – схема расположения патрубков; *7* – трубопроводы подвода смеси к патрубкам; *8, 9* – вход и выход охлаждающей воды; *10* – акустический зонд, щуп; *11* – микрофон; *12* – спиралевидная звукопоглощающая трубка; *13* – компьютер; *14* – термопара ВР 5/20; *15* – компенсатор холодного спая; *16* – цифровой прибор Ф266; *17* – распределитель смеси.

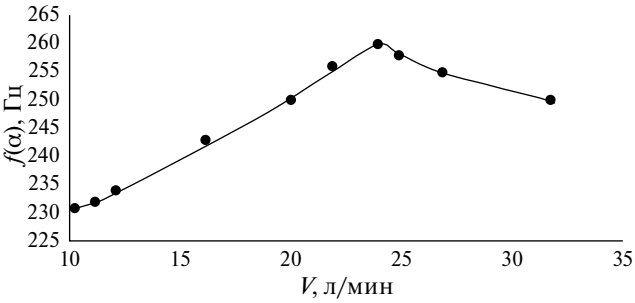

Рис. 2. Зависимость частоты колебаний газа от расхода смеси.

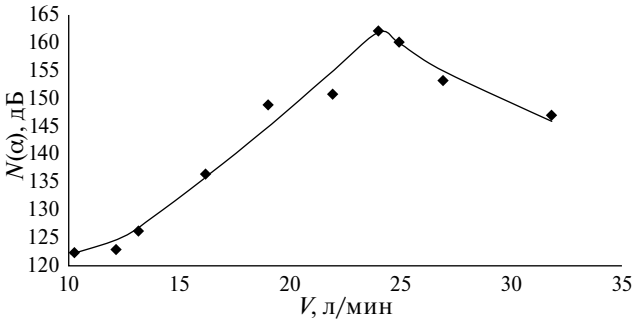

Рис. 3. Зависимость амплитуды колебаний газа от расхода смеси.

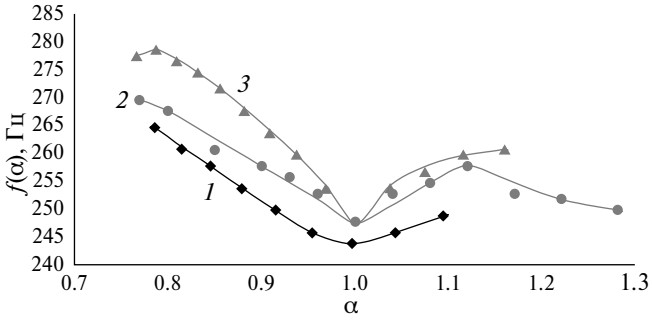

Рис. 4. Зависимости частоты акустических колебаний от коэффициента избытка воздуха для трех фиксированных расходов воздуха: *1* – V_α = 21 л/мин, *2* – 25.8, *3* – 27.

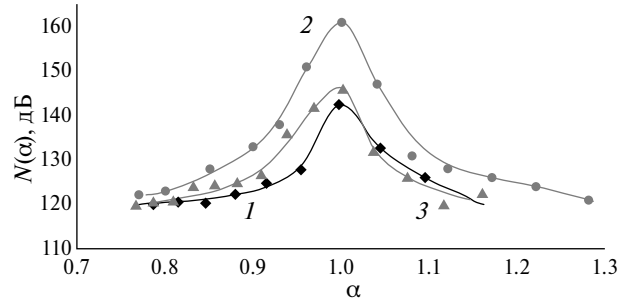

Рис. 5. Зависимости амплитуды акустических колебаний от коэффициента избытка воздуха: *1* – V_α = = 21 л/мин, *2* – 25.8, *3* – 27.

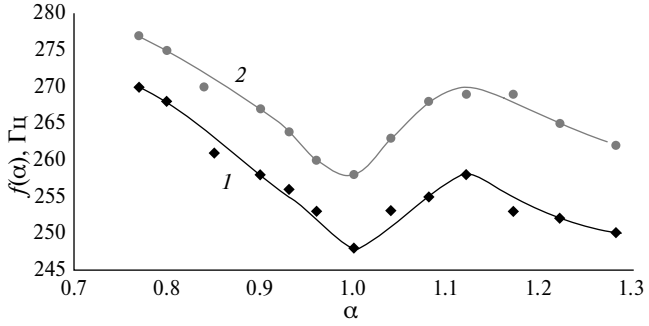

Рис. 6. Зависимости частоты колебаний газа от коэффициента избытка воздуха при l_c = 0.45 м, l_t = = 0.48 м: *1* – n = 4, *2* – 2.

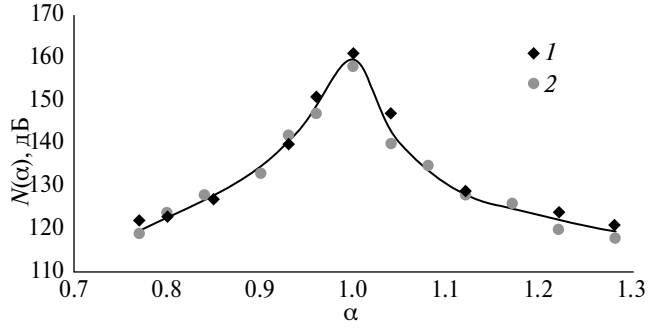

Рис. 7. Зависимости амплитуды колебаний газа от коэффициента избытка воздуха при l_c = 0.45 м, l_t = 0.48 м: *1* – n = 4, *2* – 2.

относительно стехиометрического значения, повышают частоту колебаний. Такой результат является неожиданным, аномальным.

Температура горения стехиометрической смеси и скорость звука на входе в камеру сгорания имеют максимальные значения. Как известно, частота акустических колебаний газа в трубе прямо пропорциональна скорости звука [9]. Следовательно, можно было ожидать, что при $\alpha = 1$ частота колебаний газа – максимальная. Измерения амплитуды колебаний давления на входе в камерах сгорания показали (рис. 5), что этот параметр, в отличие от частоты колебаний, имеет максимальное значение для $\alpha = 1$.

Дальнейшие измерения проводились в случае подачи смеси через два патрубка (n = 2) при постоянном расходе воздуха V_α = 25.8 л/мин, длине подводящих трубопроводов l_t = 0.48 м. Измерены зависимости характеристик колебаний газа от коэффициента избытка воздуха при условии l_c = 0.45 м (рис. 6, 7). Сравнение данных, полученных для n = 2 и 4, показало, что увеличение числа патрубков с двух до четырех приводит к уменьшению частоты колебаний газа при одинаковых значениях α (рис. 6). При этом амплитуда колебаний газа в камере сгорания почти не изменяется (рис. 7).

В итоге для камеры сгорания длиной l_c = 0.45 м наиболее благоприятные условия для пульсационного режима горения следующие: расход воздуха – 25.8 л/мин, коэффициент избытка воздуха в смеси α – от 0.77 до 1.22.

В результате эксперимента обнаружена аномальная зависимость частоты колебаний газа от коэффициента избытка воздуха: имеется минимум при $\alpha = 1$ и локальный максимум при $\alpha \approx 1.15$. Эту особенность можно объяснить следующим образом. Вследствие теплопередачи к стенкам поток газа охлаждается, появляются градиенты средней температуры газа и скорости звука вдоль трубы. В работах [6, 7, 10, 11] было показано, что продольное распределение температуры газа, а следовательно, плотности и скорости звука существенно влияет на условия возбуждения, частоту и амплитуду колебаний газа. В [8] измерено аксиальное распределение температуры газа и рассчитано соответствующее распределение скорости звука в трубе с закрученным пламенем, которое имеет вид

$$c(x) = a - bx, 0 \leqslant x \leqslant l_c,$$

$$a = a(\alpha) = c_1\sqrt{\frac{T_c(\alpha)}{T_1}},\ b = \frac{(a - c_l)}{l_0}, \qquad (1)$$

где l_c – длина трубы; $T_c(\alpha)$ – температура газа на входе трубы; c_1, T_1 – скорость звука и температура окружающей среды; c_l – скорость звука на выходе трубы.

Установлено, что для значений α, близких к единице, величина $a(\alpha)$ почти не изменяется. В то же время модуль градиента скорости звука b быстро возрастает и при $\alpha = 1$ достигает максимального значения, так же как амплитуда колебаний газа. Эти данные позволяют объяснить характер зависимости $f(\alpha)$. В случае линейного распределения скорости звука вдоль трубы для проведения качественного анализа можно взять среднеарифметическое значение скоростей звука на концах трубы:

$$\bar{c} = (a + c_l)/2 = a - bl_c/2. \qquad (2)$$

При изменении α от 0.7 до 1 происходит медленное увеличение температуры газа и, следовательно, скорости звука на входе трубы. Известно, что колебания газа значительно ускоряют теплопередачу от газа к стенкам. Это значит, что при одинаковой входной температуре температура газа на выходе трубы при увеличении амплитуды колебаний газа уменьшается. Согласно экспериментальным данным, амплитуда колебаний газа в случае приближения α к единице быстро возрастает. При постоянной скорости звука на входе трубы, согласно (1), модуль градиента скорости звука тоже возрастает, причем так, что средняя скорость звука, согласно (2), уменьшается, приводя к снижению частоты колебаний. При $\alpha = 1$ величина b достигает максимального значения, что соответствует минимуму частоты. При $\alpha > 1$ происходит быстрое уменьшение b, которое не только компенсирует уменьшение скорости звука на входе трубы, но и приводит к некоторому увеличению средней скорости звука и частоты колебаний. Однако дальнейшее увеличение коэффициента избытка воздуха вызывает быстрое уменьшение температуры газа и скорости звука на входе камеры сгорания. В это же время темп изменения величины b замедляется. В результате частота колебаний газа, достигнув некоторого локального максимума, начинает постепенно уменьшаться.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследование процесса горения смеси пропан-бутанового топлива с воздухом в экспериментальной камере сгорания с тангенциальной подачей смеси показало, что при определенных условиях горение приобретает пульсационный характер. В трубе длиной 0.45 м происходит самовозбуждение колебаний газа с частотами от 230 до 260 Гц и уровнем звукового давления до 162 дБ. Обнаружена аномальная зависимость частоты колебаний газа от коэффициента избытка воздуха – имеются минимум при $\alpha = 1$ и локальный максимум при $\alpha \approx 1.15$. Аномальная зависимость частоты колебаний газа от коэффициента избытка воздуха объясняется наличием переменного аксиального распределения скорости звука, которое зависит не только от коэффициента избытка воздуха, но и от амплитуды колебаний газа в режиме пульсационного горения. При $\alpha = 1$ колебания газа имеют максимальную амплитуду.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Lieuwen T., Zinn B.T.* Theoretical Investigation of Combustion Instability Mechanisms in Lean, Premixed Gas Turbines // AIAA 98-0641. 1998.
2. *Morgans A.S., Stow S.R.* Model-based Control of Combustion Instabilities in Annular Combustors // Combust. Flame. 2007. V. 150. P. 380.
3. *Steinberg A.M., Boxx I., Störh M., Meier W., Carter C.D.* Flow-flame Interactions Causing Acoustically Coupled Heat Release Fluctuations in a Thermo-acoustically Unstable Gas Turbine Model Combustor // Combust. Flame. 2010. V. 157. P. 2250.
4. *Durox D., Moeck J.P., Bourgouin J.F., Schuller T., Candel S., Morenton P., Viallon M.* Flame Dynamics of a Variable Swirl Number System and Instability Control // Combust. Flame. 2013. V. 160. P. 1729.
5. *Malahov A.O., Larionov V.M., Iovleva O.V., Gaianova T.E., Gaponenko S.A.* Pulsating Combustion of Propane-butane Fuel Mixture with Air in a Vortex Combustion Chamber // J. Phys.: Conf. Ser. 2020. V. 1588. № 1. 012026.
6. *Matveev K.I., Culick F.E.C.* A Study of the Transition to Instability in a Rijke Tube with Axial Temperature Gradient // Journal of Sound and Vibration. 2003. V. 264. P. 689.
7. *Raun R.L., Beckstead M.W.* A Numerical Model for Temperature Gradient and Particle Effects on Rijke Burner Oscillations // Combust. Flame. 1993. V. 94. P. 1.
8. *Малахов А.О., Ларионов В.М., Константинов Н.В.* Аксиальное распределение температуры газа и скорости звука в трубе с закрученным пламенем // Изв. вузов. Проблемы энергетики. 2022. № 24. С. 63.
9. *Ларионов В.М., Зарипов Р.Г.* Автоколебания газа в установках с горением. Казань: Изд-во Казан. гос. техн. ун-та, 2003. С. 226.
10. *Семенова Е.В., Иовлева О.В., Ларионова И.В., Ваньков Ю.В.* Частоты колебаний газа при горении твердого топлива в коаксиальных трубах // Изв. вузов. Проблемы энергетики. 2017. Т. 19. № 1–2. С. 164.
11. *Semenova E.V., Iovleva V.M., Larionov E.V.* Frequencies of Gas Oscillations in a Pipe with a Concentrated Heat Source // J. Phys.: Conf. Ser. 2016. V. 669. 012023.

ТЕМАТИЧЕСКИЙ УКАЗАТЕЛЬ ТОМА 61, 2023 г.

	Номер	Стр.
Дорогие авторы и читатели журнала “Теплофизика высоких температур”!	4	483
Вараксин А.Ю. Тепломассообмен и физическая газодинамика на страницах журнала “Теплофизика высоких температур”. К 60-летию журнала	6	803
Дьячков Л.Г. Физика плазмы на страницах журнала “Теплофизика высоких температур”. К 60-летию журнала	5	643
Павленко А.Н. Кипение в публикациях ТВТ: от базовых механизмов к разработке методов управления потоками для интенсификации теплообмена	6	807

Исследование плазмы

Васильев М.М., Алексеевская А.А., Косс К.Г., Васильева Е.В., Петров О.Ф. Самоорганизация кластеров активных броуновских частиц в коллоидной плазме при воздействии лазерного излучения	6	825
Гайсин Ал.Ф., Гайсин Ф.М., Басыров Р.Ш., Каюмов Р.Р., Мирханов Д.Н., Петряков С.Ю. Электрофизические и тепловые процессы в условиях горения разряда с жидким (неметаллическим) катодом	4	484
Дубинов А.Е., Китаев И.Н. Пылевые потоки в нелинейных пыле-акустических волнах в плазме	1	11
Задириев И.И., Швыдкий Г.В., Вавилин К.В., Кралькина Е.А., Никонов А.М. Зависимость параметров высокочастотного ускорителя с замкнутым дрейфом электронов от схемы организации емкостного высокочастотного разряда	1	3
Знаменская И.А., Коротеева Е.Ю., Карнозова Е.А., Кули-Заде Т.А. Динамика тепловых потоков нагретой импульсным сильноточным разрядом области канала	1	18
Кирко Д.Л. Исследование поверхностной структуры электродов при разряде в электролите в магнитном поле	3	333
Коршунов О.В., Кавыршин Д.И., Чиннов В.Ф. Диффузия столкновительной плазмы на примере сильноточной дуги в Не. Бинарная и тринарная ионизованные смеси	5	645
Котвицкий А.Я., Моралев И.А., Устинов М.В., Абдуллаев А.А. Возбуждение стационарных мод неустойчивости поперечного течения с помощью плазменного актуатора на основе диэлектрического барьерного разряда	6	830
Курбатов П.Ф. Разрушение когерентных структур в стратифицированной газоразрядной плазме, возбуждаемой постоянным током, в синергетической модели	2	170
Мартынова И.А., Иосилевский И.Л. Давление и изотермическая сжимаемость асимметричной комплексной плазмы с учетом нелинейного экранирования в модели средней ячейки Вигнера–Зейтца	6	836
Мартынова И.А., Иосилевский И.Л. Энергия взаимодействия в приближении Пуассона–Больцмана в корреляционной полости в асимметричной комплексной плазме	2	163

Маслов С.А., Бобров В.Б., Тригер С.А. Поперечная диэлектрическая проницаемость невырожденной электронной плазмы со столкновениями 4 492

Петрин А.Б. Распределение электромагнитного поля в нанослое фоторезиста при фокусировке поверхностной плазмонной волны на нановершине сканирующего металлического микроострия 4 497

Тригер С.А., Маслов С.А. Проводимость и экранирование в плазме с произвольным вырождением электронов 2 177

Тугаенко В.Ю., Грибков А.С., Суржиков С.Т. Физико-химические характеристики плазменного потока, окружающего возвращаемые космические аппараты при входе в атмосферу Земли с орбитальной скоростью 3 323

Филимонова Е.А., Добровольская А.С. Влияние момента инициации высокочастотного коронного разряда на развитие горения в гибридном компрессионном двигателе 3 340

Шумихин А.С. Проблема уравнения состояния тугоплавких металлов в околокритической области 5 655

Теплофизические свойства веществ

Абашев Д.Р., Бондарь В.С., Диковицкий П.О., Морозов С.В., Ларионова О.Е. Высокотемпературное деформирование гранулированного никелевого сплава 6 886

Ахтямов Э.Р., Горбатов В.И., Ивлиев А.Д., Полев В.Ф., Куриченко А.А. Высокотемпературные теплофизические свойства сплавов системы никель–ванадий в твердом состоянии 1 41

Безверхий П.П., Дутова О.С. Расчет термодинамических свойств метана до 30 МПа по новому малоконстантному уравнению состояния с регулярной и масштабной частями 3 358

Бельхеева Р.К. О влиянии давления и пористости на параметры уравнения состояния пористого вещества 5 693

Беляков М.Ю. Критические аномалии и фазовые диаграммы бинарной смеси 2 198

Бобров В.Б. О замкнутом интерполяционном уравнении состояния для простой жидкости 3 349

Волкова Н.В., Чистяков В.В., Патраков Е.И., Емельянова С.М. Электросопротивление сплава $Ni_{45}Mn_{46}In_9$ 2 193

Галашев А.Е. Первопринципное изучение переноса протона в металл-оксидном перовските 3 382

Ганиев И.Н., Сафаров А.Г., Додхоев Э.С., Ботуров К., Якубов У.Ш., Холмуродов Ф. Температурная зависимость теплофизических свойств и изменений термодинамических функций сплавов системы Mg–La 1 36

Ганиев И.Н., Файзуллоев Р.Дж., Зокиров Ф.Ш., Ганиева Н.И. Температурные зависимости теплоемкости и термодинамических функций алюминиевого проводникового сплава AlTi0.1 со стронцием 3 376

Ганиев И.Н., Шоназаров Р.С., Элмурод А., Файзуллоев У.Н. Теплоемкость и термодинамические функции алюминиевого сплава AlCu4.5Mg1, легированного барием 5 673

Гусейнов А.А. Определение температуры плавления минералов по кинетическим параметрам ионной проводимости (на примере флогопита) 1 24

Жуков А.Н., Якушев В.В., Рогачева А.И. Ударно-волновые превращения мелкозернистого кварца, диспергированного в серебряной матрице 6 871

Кудинов А.В., Губин С.А., Богданова Ю.А. Моделирование термического разложения метана при постоянных значениях объема и температуры методами молекулярной динамики и термодинамики 4 549

Кудрявцева И.В., Рыков С.В., Рыков В.А., Устюжанин Е.Е. Анализ линии фазового равновесия SF_6 на основе масштабной теории и уравнения Клапейрона–Клаузиуса 4 514

Кузамишев А.Г., Шебзухова М.А., Бжихатлов К.Ч. Размерные зависимости теплофизических свойств наночастиц. Энтропия и теплота плавления 5 700

Медведев А.Б. Определение плотности ядра Земли на основе уравнений состояния железа и титана при высоких давлениях и температурах 6 853

Онуфриев С.В., Савватимский А.И. Электросопротивление жидкого углерода (до 9000 K) и жидкого гадолиния (до 6000 K) при повышенном давлении и высоких температурах 5 685

Осина Е.Л., Никитин М.И., Скокан Е.В., Осин С.Б. Термодинамический расчет электронно-ионного состава насыщенного пара ионных кристаллов 1 30

Попов И.А., Хамидуллин О.Л., Амирова Л.М., Попов И.А. Исследование теплофизических свойств углепластика с различным армированием методами стационарного теплового потока и дифференциального сканирующего калориметра с температурной модуляцией 5 706

Румянцев А.В. Теплофизические свойства тантал-вольфрамовых сплавов замещения и сплава внедрения в диапазоне температур 1000–2500 K 1 57

Рыков С.В., Кудрявцева И.В., Рыков В.А. Новая корреляционная модель теплопроводности жидких гидрофторхлорпроизводных олефинов, гидрофторуглеродов и гидрохлорфторуглеродов 6 842

Рязанов В.В. Уравнение состояния и распределение размеров частиц в гиббсовской системе 2 205

Саввин В.С. Плотность и молярный объем жидких амальгам таллия, свинца и висмута 3 370

Семенов А.Ю., Абросимов С.А., Стучебрюхов И.А., Хищенко К.В. Изучение динамики волновых процессов сжатия и расширения в палладии при пикосекундном лазерном воздействии 4 542

Столярова В.Л., Лопатин С.И., Ворожцов В.А., Федорова А.В., Селютин А.А., Шилов А.Л. Масс-спектрометрическое термодинамическое исследование системы Fe_2O_3–TiO_2 ..... 6 859

Струлева Е.В., Комаров П.С., Евлашин С.А., Аширков С.И. Высокоскоростное разрушение пленок кобальта под действием нагрузок, создаваемых пикосекундным лазерным импульсом 4 536

Терехов С.В. Расчет теплоемкостей и коэффициентов теплового линейного расширения металлов легкой и тяжелой триад платины 5 679

Усов Э.В. Экстраполяция свойств жидкого натрия в область высоких температур и перегревов 5 665

Фокин Л.Р., Кулямина Е.Ю., Зицерман В.Ю. Термодинамическое согласование параметров точки плавления для осмия 1 51

Хуснутдинов Р.М., Хайруллина Р.Р., Бельтюков А.Л., Стерхова И.В., Суслов А.А., Ладьянов В.И., Мокшин А.В. Локальные структурные особенности

и микроскопическая динамика расплава никеля: экспериментальное исследование и молекулярно-динамическое моделирование 2 220

Шацких Ю.В., Костановский А.В., Зеодинов М.Г., Милютин В.А. Использование метода регулярного режима для экспериментального определения теплопроводности жидкости 4 525

Шишкин Р.А. Исследование влияния физико-химических свойств частиц на теплопроводность полимерных композиционных материалов 2 181

Prajapati A.K., Chaurasiya V., Yadawa P.K. Теоретическое исследование теплофизических, механических и ультразвуковых свойств слоев NbN на подложках из MgO (001) при высоких температурах 6 877

Zhou J., Yang B., van Velson N., Charles J., Wang J. Исследование стабильности водных наножидкостей на основе оксида графена для поглощения солнечной энергии 4 530

Тепломассообмен и физическая газодинамика

Абдулагатов И.М., Рамазанова А.Э. Процесс переноса тепла в угольном пласте с изменяющимися теплофизическими свойствами 3 391

Аганин А.А., Аганин И.А., Давлетшин А.И., Нигматулин Р.И. Отклик газовых пузырьков в сферических кластерах на однократный импульс разрежения 1 98

Аганин А.А., Хисматуллина Н.А., Нигматулин Р.И. Импульсное воздействие на коллапс кавитационного пузырька 3 419

Азатян В.В., Прокопенко В.М., Сон Э.Е., Абрамов С.К. Зависимости характеристик распространения пламени от гетерогенных реакций промежуточных частиц 1 91

Алифанов О.М., Будник С.А., Ненарокомов А.В., Салосина М.О. Исследование теплофизических свойств перспективных теплоизоляционных материалов для космической техники 4 559

Алишаев М.Г., Аливердиев А.А., Бейбалаев В.Д. Проблема нагнетания сухого пара в пласт без конденсации в скважине 6 914

Байдаков В.Г., Каверин А.М., Панков А.С. Взрывное вскипание перегретых газонасыщенных алканов 4 611

Баянов И.М., Гималтдинов И.К., Столповский М.В. Моделирование процесса горения гидрата метана с учетом неполного испарения выделившейся воды при его диссоциации 2 251

Беляев И.А., Черныш Д.Ю., Лучинкин Н.А., Краснов Д.С., Колесников Ю.Б., Листратов Я.И. Формирование входного течения для пассивного управления магнитогидродинамическим потоком жидкого металла в канале 3 452

Бородина Т.И., Глазков В.В., Ивочкин Ю.П., Кубриков К.Г., Синкевич О.А., Тепляков И.О., Юдин С.М. Интенсивная эмиссия капель при плавлении металлических образцов в высокочастотном индукторе 2 258

Булат П.В., Волков К.Н., Грачев Л.П., Есаков И.И., Бычков В.Л. Влияние пучка ускоренных электронов и внешнего электрического поля на горение пропано-воздушной смеси в дозвуковом потоке воздуха 6 904

Валуева Е.П., Зюкин В.С. Ламинарное пульсирующее течение на начальном участке плоского канала 5 723

Великанов А.А., Ильмов Д.Н., Кудряков С.Б., Нагорнова О.А., Соболев В.В. Разработка модели конденсации в условиях невесомости и при наличии силы тяжести для миниатюрных контурных тепловых труб 1 130

Гатапова Е.Я. Измерение профилей температур вблизи межфазной границы жидкость–газ при испарении воды и этанола в воздух 4 567

Гималтдинов И.К., Лепихин С.А. О встречном воздействии на детонационную волну в пузырьковой жидкости волнами малой амплитуды 6 891

Голубков В.Д., Гарбарук А.В. Численное моделирование турбулентного течения во вращающемся канале прямоугольного сечения с поворотом на 90° 1 75

Гольдштейн К.Д., Логунов М.А., Потапов Д.О., Орехов Н.Д. О влиянии морфологии поверхности сажевых частиц на кинетику их роста. Молекулярно-динамическое исследование 1 68

Губайдуллин Д.А., Федоров Ю.В. Волновая динамика капель перфторуглерода в вязкоупругой жидкости 3 436

Деревич И.В., Клочков А.К. Тепловой взрыв одиночных частиц в случайном поле температуры среды 1 108

Егоров И.В., Нгуен Н.К., Пальчековская Н.В. Численное моделирование взаимодействия волны Маха и пограничного слоя на плоской пластине 5 752

Зайнуллина Э.Р., Митяков В.Ю. Исследование капельно-ручейковой конденсации методом градиентной теплометрии 5 730

Канин П.К., Ягов В.В., Забиров А.Р., Молотова И.А., Виноградов М.М., Рязанцев В.А. О механизме дестабилизации паровой пленки при нестационарном пленочном кипении 2 241

Карташов Э.М. Тепловое состояние области с термоизолированной движущейся границей 5 714

Касымов Д.П., Перминов В.В., Шевлякова А.А., Якимов А.С. Математическое моделирование процесса тепломассообмена в композиционных материалах в условиях пожара 1 83

Киселёв Н.А., Маластовский Н.С., Здитовец А.Г., Виноградов Ю.А. Экспериментальное исследование теплообмена при течении сжимаемого газа с отрицательным градиентом давления 4 578

Комов А.Т., Захаренков А.В., Толмачев В.В., Штелинг В.С. Процессы в факеле распыла теплоносителя 3 410

Леманов В.В., Пахомов М.А., Терехов В.И. Экспериментальное и численное моделирование теплопереноса в импактной синтетической струе 2 226

Минюшкин Д.Н., Фролов И.С. Оценка конвективных тепловых потоков для метеороидных тел в трехмерной постановке 4 588

Миронов В.В., Толкач М.А., Тлевцежев В.В. Влияние химических реакций в пограничном слое на обобщенный коэффициент тепломассообмена 5 767

Нигматулин Р.И., Аганин А.А., Аганин И.А., Давлетшин А.И. Динамика пузырьков в сферическом кластере при повышении давления жидкости 5 744

Никитченко Ю.А., Попов С.А., Сергеева Н.И. Система модельных кинетических уравнений для многокомпонентного газа 5 736

Петрин А.Б. О задаче теплопроводности для нестационарного точечного источника тепла в плоскослоистой среде 1 118

Пузина Ю.Ю., Крюков А.П. Режимы кипения гелия II на цилиндрическом нагревателе внутри пористой структуры 4 619

Сахнов А.Ю., Володин О.А., Печеркин Н.И., Павленко А.Н. Режимы стекания пленки жидкости на вертикальном цилиндре при различных контактных углах смачивания 4 594

Синкевич О.А., Зинченко Г.О. Трехмерные вихревые течения в замкнутом объеме и некоторые “аномальные” явления в атмосфере Земли 3 426

Сызранова Н.Г., Андрущенко В.А. Численное исследование нестандартных траекторий космических тел, вторгнувшихся в атмосферу Земли 2 279

Усов Э.В., Чухно В.И., Климонов И.А., Вепрев Д.П., Мосунова Н.А., Стрижов В.Ф. Численное исследование термического разрушения ТВЭЛов с нитридным топливом с использованием тяжелоаварийного модуля интегрального кода ЕВКЛИД/V2 ..... 6 897

Филиппов А.И., Ахметова О.В., Зеленова М.А. Аналитико-численное решение задачи о нестационарном теплообмене встречных потоков 2 234

Формалев В.Ф., Гарибян Б.А., Колесник С.А. Моделирование тепломассопереноса на затупленных телах в условиях аэродинамического нагрева высокоскоростных летательных аппаратов 3 398

Чиннов Е.А. Интенсификация теплообмена и взаимодействие струй на поверхности нагреваемой пленки жидкости 4 604

Чупров П.А., Уткин П.С., Фортова С.В., Киверин А.Д. Численное моделирование взаимодействия ударной волны со слоем пены с использованием двухжидкостного подхода 3 443

Шагапов В.Ш., Булатова З.А., Шаяхметов Г.Ф. Особенности отражения импульсных сигналов от слоя с парогазовыми пузырьками перед жесткой стенкой в воде 5 760

Швецов Д.А., Павленко А.Н., Брестер А.Е., Жуков В.И. Инверсия кривой кипения на микроструктурированных пористых покрытиях 3 405

Farooq M.U., Hussain M.I., Naz M.Y., Makhlouf M.M., Shukrullah S., Ghaffar A., Ibrahim K., AbdEl-Salam N.M. Изготовление и исследование характеристик новой конструкции пассивного солнечного водонагревателя термосифонного типа 3 465

Ghozlani B., Hadj-Salah S., Bezi S., Souayeh B. Интенсификация теплообмена и характеристики потока наножидкости при обтекании усеченного конуса в неограниченной полости 2 265

Высокотемпературные аппараты и конструкции

Митрофанова О.В., Федоринов А.В. Моделирование гидродинамики и теплообмена в каналах парогенерирующих систем судовых ядерных энергетических установок интегрального типа 4 625

Новая энергетика и современные технологии

Жук А.З., Иванов П.П. Моделирование металлогидридного утилизационного цикла в составе топливного элемента с высокотемпературной протонно-обменной мембраной 1 140

Жук А.З., Иванов П.П. Характеристики твердооксидного топливного элемента для термодинамического моделирования энергетических установок 5 777

Ситников Д.С., Мухдина Д.Е., Коршунова Д.С., Силаева Ю.Ю., Филатов М.А., Ильина И.В. Влияние лазерной микродиссекции блестящей оболочки эмбрионов на динамику ее истончения при использовании протоколов криоконсервации 4 632

Чефонов О.В., Овчинников О.В., Агранат М.Б. Генерация второй оптической гармоники под действием узкополосных терагерцовых импульсов в антиферромагнетике NiO 6 920

Обзоры

Вараксин А.Ю. Гидрогазодинамика и теплофизика двухфазных потоков с твердыми частицами, каплями и пузырями 6 926

Kabir M., Downer J., Preller E., Tarau C., Yang B., Xu J. Кипение двухфазного потока наножидкости в мини- и микроканалах 2 285

Краткие сообщения

Аширков С.И., Струлева Е.В., Комаров П.С., Евлашин С.А. Ударное сжатие молибдена при воздействии ультракороткими лазерными импульсами 5 790

Видин Ю.В., Злобин В.С. Аналитический метод расчета собственных чисел в задаче нестационарной теплопроводности сферического тела 2 315

Губайдуллин Д.А., Зарипов Р.Г., Ткаченко Л.А., Шайдуллин Л.Р., Фадеев С.А. Осаждение полидисперсного аэрозоля в узкой закрытой трубе при резонансном режиме колебаний 6 953

Губайдуллин Д.А., Зарипов Р.Г., Ткаченко Л.А., Шайдуллин Л.Р., Фадеев С.А. Резонансные колебания газа и аэрозоля в открытой трубе со скачком сечения 1 145

Дороватовский А.В., Шейндлин М.А., Минаков Д.В. Прямое измерение кривой плавления циркония до 4 кбар методом изобарического импульсного нагрева 6 949

Дохов М.П. Смачивание твердых тугоплавких металлов жидкими оксидами и расчет их межфазных характеристик 5 787

Ермолаев И.А. Естественная термогравитационная конвекция в подогреваемой снизу частично перегороженной квадратной области. Локальный и средний теплообмен 5 793

Зиннатуллин Р.Р., Ковалева Л.А. Лабораторные исследования разделения различных водонефтяных эмульсий в высокочастотном электромагнитном поле 5 797

Зиннатуллин Р.Р., Мусин А.А., Гайсин И.В., Усманов Б.А. Физическое и математическое моделирование распределения температуры по длине нефтематеринской породы при микроволновом облучении 1 149

Ломоносов И.В. Уравнения состояния сапфира, кремнезема, периклаза и рутила 3 473

Николаев Д.Н., Ломоносов И.В. Уравнение состояния оксида железа при давлении $\leqslant$1 ТПа 2 318

Хищенко К.В. Уравнение состояния алюминия при высоких давлениях 3 477

Хищенко К.В. Уравнение состояния циркония при высоких давлениях 5 783

Шамсиев М.Н., Хайруллин М.Х., Морозов П.Е., Гадильшина В.Р., Абдуллин А.И., Насыбуллин А.В. Численный метод решения обратной задачи неизотермической фильтрации в средах с двойной пористостью 6 957

В мире теплофизики

О монографии В.Ф. Формалева, С.А. Колесника “Математическое моделирование сопряженного теплопереноса между вязкими газодинамическими течениями и анизотропными телами” (изд. 2-е, испр. и сущ. доп. М.: Ленанд, 2022. 348 с.) 1 153