

ТЕПЛООБМЕН МЕЖДУ ПОВЕРХНОСТЬЮ ВОЛЬФРАМА И ПЛАЗМОЙ ТЛЕЮЩЕГО РАЗРЯДА В АРГОНЕ И УГЛЕКИСЛОМ ГАЗЕ

Ф. Д. Поликарпов^{a,}, А. Ф. Поликарпов^a, С. Ф. Борисов^a,
С. П. Никулин^b, П. В. Третников^b*

^a *Уральский государственный университет
620083, Екатеринбург, Россия*

^b *Институт электрофизики Уральского отделения Российской академии наук
620016, Екатеринбург, Россия*

Поступила в редакцию 18 февраля 2009 г.

Экспериментально методом нагретой нити исследован теплообмен между поверхностью вольфрама и плазмой тлеющего разряда с полым катодом в аргоне и углекислом газе. Получены зависимости электрической мощности, подводимой к проволочному вольфрамовому образцу, от величины тока разряда для аргона и углекислого газа в диапазоне температур 1000–1700 К. Обнаружено различие в процессах теплообмена на поверхности вольфрамового образца в экспериментах с аргоном и углекислым газом. Предполагается, что это различие обусловлено гетерогенной рекомбинацией, присутствующей в случае углекислого газа.

PACS: 44.35.+c

1. ВВЕДЕНИЕ

Сложно перечислить весь круг прикладных и фундаментальных проблем, связанных с теплообменом на поверхности твердого тела, помещенного в плазму. Диапазон решаемых задач чрезвычайно широк: от аэротермодинамики [1] до технологий, связанных с плазменным напылением, распылением, травлением материалов [2]. Нельзя не упомянуть в этой связи и развитие зондовых методов диагностики плазмы, начинающихся с пионерских работ Ленгмюра [3, 4]. Все это определяет актуальность данной тематики как с теоретической, так и с практической точек зрения [1, 5]. Особое место занимают исследования, направленные на дальнейшее накопление экспериментального материала. Такие исследования, проводимые с помощью разнообразных экспериментальных методик, в значительной степени способствуют развитию модельных представле-

ний о взаимодействии поверхности твердого тела с плазмой.

В процессе данного исследования решаются две основные задачи. Первая — разработка экспериментального подхода, основанного на применении метода нагретой нити в тлеющем разряде с полым катодом. Вторая — получение экспериментальных данных по теплообмену аргона и углекислого газа с поверхностью вольфрама в диапазоне температур от 1000 до 1700 К при различной степени ионизации газа.

Выбор экспериментальной методики, реализованной в данном исследовании, обусловлен следующими обстоятельствами. Хорошо известен нашедший широкое применение при исследованиях теплообмена в системах разреженный газ — твердое тело стационарный метод низкого давления, известный как метод нагретой нити Кнудсена [6]. Важным преимуществом этого метода является простота технической реализации процессов управления нагревом образца и контроля его температуры по сопротивлению нити [7, 8].

*E-mail: Filipp.Polikarpov@usu.ru

Выбор материала металлической нити, в частности вольфрама, обусловлен следующими причинами. Во-первых, вольфрам представляет собой материал с хорошо изученными и систематизированными электрическими и теплофизическими свойствами [9, 10]. Во-вторых, вольфрам (температура плавления 3653 К [11]) относится к группе тугоплавких материалов, что позволяет проводить исследования в широком диапазоне температур. Кроме того, для вольфрама получен обширный материал, характеризующий тепло- и массообмен на его поверхности [7, 8, 12].

Для получения газоразрядной плазмы применяется тлеющий разряд с полым катодом [13]. Одним из основных достоинств такой системы является возможность создания достаточно большой плотности тока, протекающего через разрядный промежуток, по сравнению с плотностью тока в системах с плоскими электродами. Кроме того, возможно получение плазмы с высокой степенью ионизации при низких давлениях газа, хорошего пространственного разрешения зон тлеющего разряда [14].

Выбор в качестве рабочих газов аргона и углекислого газа обусловлен их достаточно близкими молекулярными массами при существенном различии в физико-химических свойствах, обуславливающих протекающие процессы как в объеме газа, так и на межфазной границе газ – твердое тело.

2. СХЕМА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ УСТАНОВКИ

Принципиальная схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Разрядная камера, в которой зажигается тлеющий разряд, установлена на изоляторах в вакуумной камере. К вакуумной камере присоединена система вакуумной откачки, которая позволяет получать давление остаточного газа порядка 10^{-3} Па, что достигается с помощью диффузионного паромасляного насоса НД-250 с быстротой действия до 2700 л/с. Предварительное разрежение до давлений около 0.5 Па производится форвакуумным насосом НФ-8. Вакуумная камера изготовлена из нержавеющей стали 12Х18Н10Т и имеет вид параллелепипеда размерами $410 \times 430 \times 500$ мм³.

Рабочий газ подается в газоразрядную камеру через канал диаметром 3 мм с помощью регулятора расхода газа РРГ-3-1-Ф и откачивается через отверстие диаметром 9 мм в противоположном фланце газоразрядной камеры. Устанавливаемый расход газа приблизительно $0.2 \text{ см}^3 \cdot \text{атм/с}$ позволяет под-

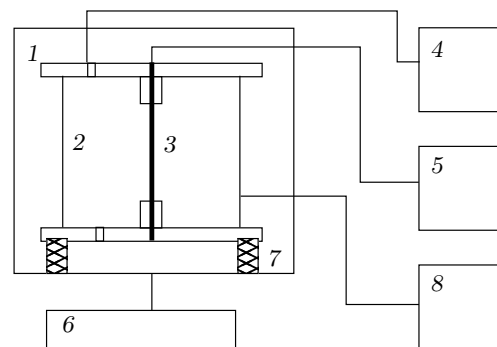


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — вакуумная камера; 2 — газоразрядная камера; 3 — вольфрамовый проволочный образец; 4 — система напуска рабочего газа; 5 — блок управления и регистрации нагрева нити; 6 — система вакуумной откачки; 7 — изоляторы; 8 — блок питания разряда

держивать давление газа в разрядной камере около 1 Па при давлении в вакуумной камере примерно $4 \cdot 10^{-2}$ Па.

Газоразрядная камера изготовлена из той же марки нержавеющей стали в виде цилиндра с внутренним диаметром 150 мм и длиной 210 мм. Этот цилиндр является катодом тлеющего разряда. На верхнем и нижнем фланцах через герметичные электрические разъемы установлены цилиндрические аноды диаметром 8 мм и длиной 17 мм, изготовленные также из нержавеющей стали. Такая конструкция обеспечивает экранировку мест крепления образца и токоподводов, а также некоторой поверхности проходящей внутри анодов металлической нити от воздействия сильнонеоднородной прикатодной плазмы. Контакт нити и плазмы происходит только в центре системы, вдоль оси газоразрядной камеры, где плазма близка к однородной [14–16]. Блок питания позволяет изменять ток разряда в диапазоне 20–200 мА при изменении разрядного напряжения от 500 до 700 В.

Вольфрамовая проволока длиной около 210 мм и диаметром 100 мкм натянута вдоль оси разрядной камеры и подключена к системе измерения тепловых потоков, основным элементом которой является устройство нагрева и стабилизации температуры. В условиях эксперимента, в частности в случае углекислого газа, образец находится под плавающим потенциалом, равным приблизительно 45 В. Температура образца определяется по политермам удельного сопротивления вольфрама [9].

Нагрев и стабилизация температуры образца, измерение подводимой к нему электрической мощ-

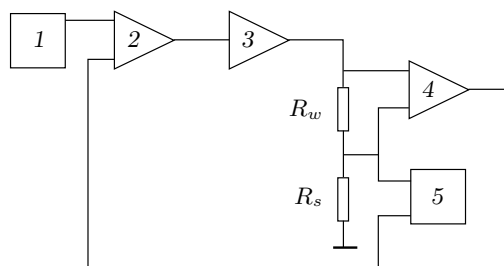


Рис. 2. Схема устройства нагрева, стабилизации и измерения температуры образца: 1 — цифро-аналоговый преобразователь; 2 — усилитель сравнения; 3 — усилитель мощности; 4 — дифференциальный усилитель; 5 — многоканальный аналого-цифровой преобразователь; R_w — сопротивление образца, R_s — эталонное сопротивление

ности производится с помощью компьютера через устройство, схема которого представлена на рис. 2.

Устройство состоит из управляемого стабилизатора напряжения и датчика тока. Нагрев осуществляется электрическим током выходного транзистора усилителя мощности, который управляется операционным усилителем, сравнивающим управляющий сигнал, задаваемый цифро-аналоговым преобразователем, и напряжение на образце. Подводимая к образцу мощность определяется на основе измерений напряжений на образце и эталонном сопротивлении с помощью двенадцатиразрядного аналого-цифрового преобразователя L-154. Дифференциальный усилитель с коэффициентом усиления, равным единице, предназначен для подавления синфазной составляющей сигнала.

Разработанная компьютерная программа позволяет проводить контролируемый нагрев вольфрамовой нити в диапазоне температур от 300 до 3000 К и определять подводимую к образцу мощность с усреднением до 16000 точек измеренных значений напряжения и тока.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты измерений подводимой к вольфрамовому образцу электрической мощности для аргона и углекислого газа представлены на рис. 3а,б. Каждая точка на графике является усреднением ста измерений, выполненных с помощью устройства нагрева, стабилизации и измерения температуры образца, управляемого ЭВМ. Частота дискретизации входного сигнала равна 50 кГц.

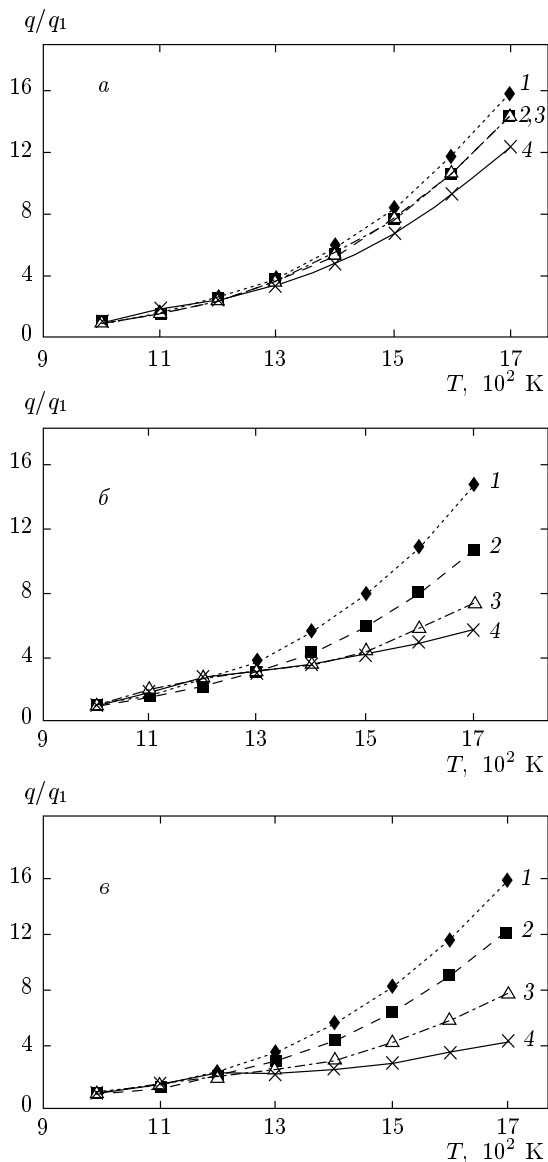


Рис. 3. Зависимости подводимой к образцу электрической мощности от температуры для аргона (а), углекислого газа (б) и воздуха (в) при токах разряда $J = 0$ (1), 40 (2), 100 (3), 200 (4) мА

Для удобства рассмотрения данные представлены как отношение теплот q/q_1 , подводимых при текущей температуре и при $T = 1000$ К. Видна существенная разница в поведении кривых для различных газов, особенно в области высоких температур.

Установленные параметры измерительной процедуры позволяют получить относительную ошибку измерения не более 5 %.

Значения абсолютных значений подводимой электрической мощности имеют также некоторую

погрешность, связанную с распылением металлической нити во время измерений при рабочих значениях тока и напряжения тлеющего разряда. Это подтверждается результатами предварительно проведенных исследований на сканирующем электронном микроскопе. Кроме того, косвенным подтверждением может служить увеличение сопротивления образца приблизительно на 10% за один цикл измерений, что соответствует уменьшению радиуса проволоки до 3%.

Измерения были также проведены в плазме тлеющего разряда в воздухе (рис. 3в). Результаты хорошо согласуются с данными для углекислого газа, что позволяет сделать вывод о том, что существенным фактором, влияющим на теплообмен в области высоких температур, является состав плазмы, формируемой тлеющим разрядом в молекулярном газе. В дальнейшем ограничимся рассмотрением процесса теплообмена в плазме аргона и углекислого газа.

Среди наиболее существенных процессов, влияющих на теплообмен между поверхностью вольфрама и газоразрядной плазмой, можно выделить такие, как излучение, распыление, молекулярный теплообмен, гетерогенная рекомбинация.

Поток тепла за счет излучения для обоих газов приблизительно одинаков. Даже если углекислый газ образует на поверхности вольфрама какие-либо соединения, которые изменяют коэффициент черноты изучаемой системы, то, принимая во внимание параллельно идущий процесс распыления, изменением коэффициента черноты можно пренебречь и считать тепловые потоки излучения двух различных газов зависящими только от температуры нити.

Среди трех процессов распыления — физического распыления, химического распыления, сублимации [17] — ни один нельзя выделить как преобладающий при сравнении двух исследуемых газов. Кроме того, при температурах, далеких от температуры сублимации, коэффициент распыления не зависит от температуры распыляемого образца [18], и можно считать, что процесс распыления носит одинаковый характер для углекислого газа и аргона при прочих равных условиях.

В реализованной геометрии задачи число Кнудсена $Kn > 10$, что позволяет ограничиться рассмотрением свободномолекулярного режима теплообмена. Тогда, принимая во внимание тот факт, что исследуемые газы имеют близкие атомные массы и степень ионизации плазмы, которая, по предварительным оценкам, изменяется в пределах от 10^{-5} до 10^{-3} , коэффициенты аккомодации энергии систем аргон–вольфрам и углекислый газ–вольфрам име-

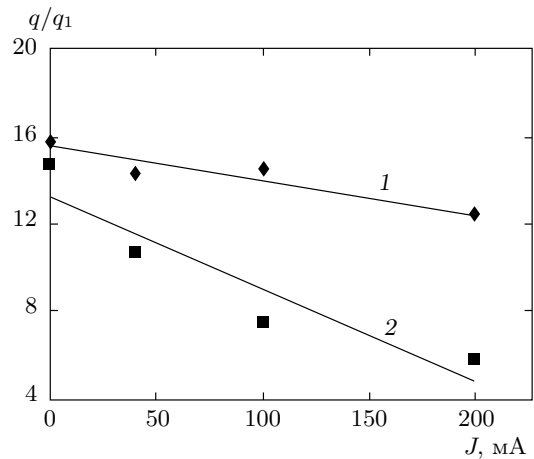


Рис. 4. Зависимости подводимой к вольфрамовой проволоке электрической мощности от тока разряда для аргона (1) и углекислого газа (2) при температуре образца $T = 1700$ К

ют, в соответствии с теорией Бауле [7], приблизительно одинаковые значения. Это подтверждается и ранее проведенными экспериментальными исследованиями [7, 8]. Следует отметить, что в данном случае рассматриваются некоторые эффективные коэффициенты аккомодации энергии.

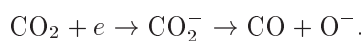
На основании изложенного выше может быть выдвинута следующая гипотеза. Причиной экспериментально обнаруженного различия в теплообмене для рассматриваемых газов могли бы служить процессы гетерогенной рекомбинации, существенно выраженные при температуре 1700 К. Это предположение является вполне обоснованным и подтверждается многочисленными исследованиями [19].

Представляет интерес рассмотрение зависимости относительной подводимой электрической мощности, выраженной в терминах q/q_1 , от тока разряда для углекислого газа и аргона (рис. 4). Тангенсы углов наклона интерполяционных прямых, полученных методом наименьших квадратов, различаются более чем в два раза.

Наклон интерполяционной прямой в случае аргона, по всей видимости, обусловлен нагревом стенок газоразрядной камеры в ходе всего процесса измерения. Это может быть связано как с радиационным нагревом от вольфрамовой проволоки, так и с нагревом от газоразрядной плазмы. Влияние указанных процессов может быть учтено после внесения некоторых изменений в методику проведения измерений.

Состав формируемой тлеющим разрядом плазмы в углекислом газе достаточно сложен. Существенное

влияние на его формирование будет оказывать ток разряда [20]. Среди всего многообразия протекающих реакций можно выделить как наиболее вероятную следующую [21]:



Очевидно, что эти продукты могут играть существенную роль в процессе взаимодействия с поверхностью образца.

Основным процессом, влияющим на характерный теплообмен между поверхностью вольфрамовой нити и плазмой в углекислом газе, является гетерогенная рекомбинация [22], которая может проходить по двум механизмам. Это ударная рекомбинация, так называемый механизм Или–Райдила [23], описывающий взаимодействие падающей из газовой фазы частицы с адсорбированной, и ассоциативная рекомбинация, механизм Ленгмюра–Хиншельвуда [24], описывающий взаимодействие адсорбированных частиц.

В общем случае рассмотрение может включать большее количество реакций рекомбинации–диссоциации и обмена. Полученные экспериментальные данные не позволяют определить, какой из механизмов преобладает.

Исходя из общепринятых определений [1], суммарный коэффициент передачи энергии каталитической рекомбинации, равный произведению коэффициента рекомбинации γ и коэффициента аккомодации β химической энергии, определяется следующей формулой [22]:

$$\gamma\beta = \frac{Q}{n(D/2)},$$

где Q — энергия, выделяющаяся при рекомбинации и влияющая на уменьшение подводимой электрической мощности для поддержания заданной температуры вольфрамовой нити, n — число частиц, падающих на поверхность образца, D — энергия диссоциации молекулы (в нашем случае, вероятно, что это может быть молекула углекислого газа).

Качественная зависимость суммарного коэффициента передачи энергии каталитической рекомбинации от температуры представлена на рис. 5. При температурах $T > 1400$ К наблюдается монотонный рост, что совпадает с поведением зависимостей $\gamma(T)$ и $\beta(T)$, полученных в результате исследования рекомбинации азота на поверхности вольфрамовой нити [22] при $T > 1600$ К. При $T < 1400$ К процесс теплообмена, вероятно, обусловлен неката-

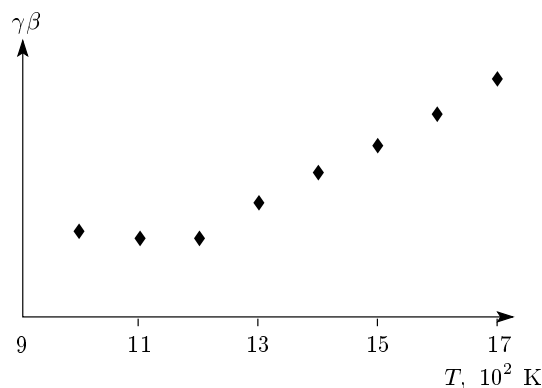


Рис. 5. Зависимость суммарного коэффициента передачи энергии каталитической рекомбинации от температуры для углекислого газа при токе разряда $J = 200$ мА

литическими реакциями на исследуемой поверхности, что также согласуется с имеющимися в литературе данными [22]. Следует отметить, что приведенная зависимость отражает многообразие достаточно сложного механизма гетерогенной рекомбинации.

Результаты проведенного экспериментального исследования демонстрируют применимость метода нагретой нити в условиях тлеющего разряда с полым катодом для обнаружения особенностей процесса теплообмена низкотемпературной плазмы одноатомных и многоатомных газов с поверхностью твердого тела.

Качественный анализ результатов измерений позволяет выдвинуть гипотезу о существенной роли гетерогенной рекомбинации в случае исследований как с углекислым газом, так и с многими другими молекулярными газами, например такими, которые входят в состав воздуха.

Ввиду сложности рассматриваемого явления, необходимо теоретическое рассмотрение, которое позволило бы из представленных выше экспериментальных данных получить количественные оценки параметров, характеризующих процесс теплообмена на поверхности металла, помещенного в газоразрядную плазму молекулярного газа.

Работа выполнена при частичной поддержке CNES-INTAS (грант № 03-53-5117) и CRDF — Американского фонда гражданских исследований и развития для независимых государств бывшего Советского Союза (грант № RUX0-000005-ЕК-06 (REC-005)).

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Л. Ковалев, *Гетерогенные каталитические процессы в аэротермодинамике*, Физматлит, Москва (2002).
2. G. S. Oehrlein, M. F. Doemling, B. E. E. Kastenmeier et al., IBM J. Res. and Develop. **43**, 181 (1999).
3. H. M. Mott-Smith and I. Langmuir, Phys. Rev. **28**, 727 (1926).
4. L. Tonks and I. Langmuir, Phys. Rev. **34**, 876 (1929).
5. H. Lynggaard, A. Andreasen, C. Stegelmann, and P. Stoltze, Progr. Surf. Sci. **77**, 71 (2004).
6. M. Knudsen, Ann. Phys. **34**, 593 (1911).
7. Ф. Гудман, Г. Вахман, *Динамика рассеяния газа поверхностью*, Мир, Москва (1980).
8. С. Ф. Борисов, Н. Ф. Балахонов, В. А. Губанов, *Взаимодействие газов с поверхностью твердых тел*, Наука, Москва (1988).
9. P. D. Desai, T. K. Chu, H. M. James, and C. Y. Ho, J. Phys. Chem. Ref. Data **13**, 1069 (1984).
10. G. K. White and S. J. Collocott, J. Phys. Chem. Ref. Data **13**, 1251 (1984).
11. *Таблицы физических величин*, справочник под ред. И. К. Кикоина, Атомиздат, Москва (1976).
12. О. А. Коленчиц, *Тепловая аккомодация систем газ – твердое тело*, Наука и техника, Минск (1977).
13. Б. И. Москалев, *Разряд с полым катодом*, Энергия, Москва (1969).
14. M. Castillo, I. Mendez, A. M. Islyaikin et al., Phys. Chem. A **109**, 6255 (2005).
15. С. П. Никулин, С. В. Кулешов, ЖТФ **70**(4), 18 (2000).
16. С. П. Никулин, ЖТФ **67**(5), 43 (1997).
17. T. Paulmier, M. Balat-Pichelin, D. Le Quéau et al., Appl. Surf. Sci. **180**, 227 (2001).
18. П. Зигмунд, в сб. *Распыление твердых тел ионной бомбардировкой*, вып. 1: Физическое распыление одноэлементных твердых тел, под ред. Р. Бернша, Мир, Москва (1984), с. 23.
19. V. Grill, J. Shen, C. Evans, and R. G. Cooks, Rev. Sci. Instrum. **72**, 3149 (2001).
20. D. M. Goebel, K. K. Jameson, R. M. Watkins et al., J. Appl. Phys. **98**, 113302 (2005).
21. A. L. S. Smith and J. M. Austin, J. Phys. D **7**, 314 (1974).
22. B. Halpern and D. E. Rosner, J. Chem. Soc. Faraday Trans. **74**, 1883 (1978).
23. D. D. Eley and E. K. Rideal, Nature **146**, 401 (1940).
24. I. Langmuir, Trans. Faraday Soc. **17**, 621 (1922).