ISSN 0040-3644

Том 61, Номер 4 Июль - Август 2023

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР

нашему журналу 60 лет

www.sciencejournals.ru

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 61, номер 4, 2023

Дорогие авторы и читатели журнала “Теплофизика высоких температур”! 483

ИССЛЕДОВАНИЕ ПЛАЗМЫ

Электрофизические и тепловые процессы в условиях горения разряда с жидким (неметаллическим) катодом

Ал. Ф. Гайсин, Ф. М. Гайсин, Р. Ш. Басыров, Р. Р. Каюмов, Д. Н. Мирханов, С. Ю. Петряков 484

Поперечная диэлектрическая проницаемость невырожденной электронной плазмы со столкновениями

С. А. Маслов, В. Б. Бобров, С. А. Тригер 492

Распределение электромагнитного поля в нанослое фоторезиста при фокусировке поверхностной плазмонной волны на нановершине сканирующего металлического микроострия

А. Б. Петрин 497

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ВЕЩЕСТВ

Анализ линии фазового равновесия SF_6 на основе масштабной теории и уравнения Клапейрона–Клаузиуса

И. В. Кудрявцева, С. В. Рыков, В. А. Рыков, Е. Е. Устюжанин 514

Использование метода регулярного режима для экспериментального определения теплопроводности жидкости

Ю. В. Шацких, А. В. Костановский, М. Г. Зеодинов, В. А. Милютин 525

Исследование стабильности водных наножидкостей на основе оксида графена для поглощения солнечной энергии

J. Zhou, B. Yang, N. van Velson, J. Charles, J. Wang 530

Высокоскоростное разрушение пленок кобальта под действием нагрузок, создаваемых пикосекундным лазерным импульсом

Е. В. Струлева, П. С. Комаров, С. А. Евлашин, С. И. Аширков 536

Изучение динамики волновых процессов сжатия и расширения в палладии при пикосекундном лазерном воздействии

А. Ю. Семенов, С. А. Абросимов, И. А. Стучебрюхов, К. В. Хищенко 542

Моделирование термического разложения метана при постоянных значениях объема и температуры методами молекулярной динамики и термодинамики

А. В. Кудинов, С. А. Губин, Ю. А. Богданова 549

ТЕПЛОМАССООБМЕН И ФИЗИЧЕСКАЯ ГАЗОДИНАМИКА

Исследование теплофизических свойств перспективных теплоизоляционных материалов для космической техники

О. М. Алифанов, С. А. Будник, А. В. Ненарокомов, М. О. Салосина 559

Измерение профилей температур вблизи межфазной границы жидкость–газ при испарении воды и этанола в воздух

Е. Я. Гатапова 567

Экспериментальное исследование теплообмена при течении сжимаемого газа с отрицательным градиентом давления

Н. А. Киселёв, Н. С. Маластовский, А. Г. Здитовец, Ю. А. Виноградов 578

Оценка конвективных тепловых потоков для метеороидных тел в трехмерной постановке
Д. Н. Минюшкин, И. С. Фролов 588

Режимы стекания пленки жидкости на вертикальном цилиндре при различных контактных углах смачивания
А. Ю. Сахнов, О. А. Володин, Н. И. Печеркин, А. Н. Павленко 594

Интенсификация теплообмена и взаимодействие струй на поверхности нагреваемой пленки жидкости
Е. А. Чиннов 604

Взрывное вскипание перегретых газонасыщенных алканов
В. Г. Байдаков, А. М. Каверин, А. С. Панков 611

Режимы кипения гелия II на цилиндрическом нагревателе внутри пористой структуры
Ю. Ю. Пузина, А. П. Крюков 619

ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫЕ АППАРАТЫ И КОНСТРУКЦИИ

Моделирование гидродинамики и теплообмена в каналах парогенерирующих систем судовых ядерных энергетических установок интегрального типа
О. В. Митрофанова, А. В. Федоринов 625

НОВАЯ ЭНЕРГЕТИКА И СОВРЕМЕННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ

Влияние лазерной микродиссекции блестящей оболочки эмбрионов на динамику ее истончения при использовании протоколов криоконсервации
Д. С. Ситников, Д. Е. Мухдина, Д. С. Коршунова, Ю. Ю. Силаева, М. А. Филатов, И. В. Ильина 632

ДОРОГИЕ АВТОРЫ И ЧИТАТЕЛИ ЖУРНАЛА “ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР”!

DOI: 10.31857/S0040364423040191

В 2023 г. исполняется 60 лет журналу “Теплофизика высоких температур”. В 1963 г. журнал создавался как издание, отражающее самые актуальные и перспективные направления и достижения в области теплофизических исследований. В 60-е годы XX в. теплофизика переживала свое второе рождение. Жизненно необходимо было издание, собирающее под своей обложкой результаты и достижения экспериментальных и теоретических исследований в этой области науки. Задачи теплофизики являются частью множества научных направлений – от медицинских технологий до ракетной техники. При проектировании атомных станций нового поколения, разработке нефтедобывающих технологий и при исследовании и применении новых материалов с требуемыми свойствами необходимы данные, получаемые при решении задач теплофизики.

За прошедшие годы журнал приобрел известность и уважение среди ученых не только нашей страны, но и всего мира. Издание продолжает заложенные создателями журнала А.Е. Шейндлиным, А.В. Кириллиным, Э.Э. Шпильрайном направления публикуемых работ.

Исследования в области плазмы и плазменных технологий представляют новые типы и особенности разрядов и возможности их применения как в отдельных инженерных устройствах, так и в процессах микроэлектроники, биомедицинских приложениях, космических технологиях.

Продолжаются традиционные для направления теплофизики экспериментальные исследования высокотемпературных процессов (2000–6000 K), свойств материалов, разработка уравнений состояния, исследования теплообменных процессов, в том числе в агрессивных средах.

Развитие современных программных пакетов и возможностей для моделирования открыло новые перспективы для исследования как процессов, не обеспеченных достаточными экспериментальными данными, сложных в постановке эксперимента, так и процессов на молекулярном и атомарном уровнях.

Задуманный создателями журнала широкий спектр тематик для публикации в журнале отражается в оригинальных работах и в обзорных статьях, которые посвящены не только классическим направлениям теплофизических наук, но и новым технологиям и материалам, методам моделирования и экспериментального исследования процессов, важных для авиационной и космической технологий, прогнозированию теплофизических свойств новых материалов и формированию перспективных соединений.

Отрадно, что за годы выпуска журнала ТВТ требования к качеству и научному содержанию рукописей сохраняются на высоком уровне. Здесь необходимо отметить самоотверженную и высококвалифицированную работу рецензентов и членов редакционной коллегии журнала, которые ответственно подходят к работе со статьями.

Выполненная работа по созданию архива позволила открыть доступ ко всем выпускам журнала, начиная с первого номера со вступительной статьей академика А.В. Кириллина и продолжая вплоть до текущих номеров, которые становятся доступными для чтения в кратчайшие сроки после подготовки.

Невзирая на многие сложности, возникающие в издательской деятельности, журнал “Теплофизика высоких температур” выходит с неизменной периодичностью шесть номеров в год.

Поздравляю авторов, читателей и членов редакционной коллегии с 60-летним юбилеем журнала и желаю процветания и развития науке, научным сотрудникам и нашему журналу.

Главный редактор
академик О.Ф. Петров

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 484–491

ИССЛЕДОВАНИЕ ПЛАЗМЫ

УДК 537.528

ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИЕ И ТЕПЛОВЫЕ ПРОЦЕССЫ В УСЛОВИЯХ ГОРЕНИЯ РАЗРЯДА С ЖИДКИМ (НЕМЕТАЛЛИЧЕСКИМ) КАТОДОМ

© 2023 г. Ал. Ф. Гайсин*, Ф. М. Гайсин, Р. Ш. Басыров, Р. Р. Каюмов, Д. Н. Мирханов, С. Ю. Петряков

Казанский национальный исследовательский технический университет им. А.Н. Туполева – КАИ, г. Казань, Россия

**E-mail: almaz87@mail.ru*

Поступила в редакцию 13.12.2022 г.
После доработки 25.01.2023 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

Представлены результаты экспериментальных исследований и численных расчетов параметров электрического разряда с жидким (неметаллическим) катодом в потоке воздуха атмосферного давления. Описаны формы плазменных структур, возникающих в межэлектродном промежутке. С помощью оптической эмиссионной спектроскопии установлены состав плазмы и концентрация электронов. Методом инфракрасной термографии определена температура поверхности электродов в зоне горения разряда. Построена вольт-амперная характеристика разряда. Приведены результаты численных расчетов распределения плотности мощности джоулевого тепловыделения и напряженности электрического поля вблизи металлического анода. Описано образование парожидкостной смеси вокруг погруженной части металлического анода в электролит.

DOI: 10.31857/S004036442304004X

ВВЕДЕНИЕ

Газоразрядная плазма с жидкими (неметаллическими) электродами является объектом быстроразвивающейся междисциплинарной области исследований, включающей в себя науку о плазме, тепломассопереносе, гидрогазодинамике, фотолизе и многофазной химии [1]. Зажигание таких разрядов осуществляется в рабочих камерах, где один или оба электрода являются жидкостью. В качестве жидкого электрода, как правило, применяются растворы солей различных концентраций в дистиллированной, технической или очищенной водопроводной воде. В данных разрядах сложным образом переплетены три подсистемы, для описания которых необходимо знание процессов в плазменном, жидком (непроточный или проточный электролит) и газовом (окружающий воздух) фазовых состояниях. Плазма, взаимодействующая с жидкостью, может генерироваться при постоянном напряжении, переменным током низких частот, высокочастотным током 13.56 МГц и микроволновым возбуждением в диапазоне сверхвысоких частот. Рабочие давления варьируются от очень низких значений (при использовании ионных жидкостей) до очень высоких в сверхкритических жидкостях. Для плазменно-жидкостных систем характерна сложность разработки математических моделей и проведения численных расчетов плазменно-жидкостных систем. Полученные при этом результаты неудовлетворительно коррелируют с экспериментальными данными [2]. Все это затрудняет создание единой классификации плазменно-жидкостных систем, аналогично той, которая существует для газовых разрядов, зажигаемых между твердыми электродами (искровой, дуговой, тлеющий, коронный и др.) [3]. Одним из возможных направлений систематизации разрядов с жидкими электродами выступает их классификация по элементарным процессам, поэтому проведение экспериментальных исследований и математического моделирования разрядов с жидкими электродами в лабораторных условиях является актуальной задачей.

В настоящее время существуют различные типы, формы и конфигурации электродов для исследования разрядов с жидкими (неметаллическими) электродами, твердым и жидким (неметаллическим) электродами [4–7], между двумя жидкими электродами [8–10], разрядов в газожидкостных потоках [11]. На основании анализа опубликованных работ можно заключить, что наиболее устоявшиеся системы зажигания плазменно-жидкостных систем формируются при погружении твердого электрода в жидкость, либо при расположении твердого электрода над поверхностью жидкости. В центре внимания специалистов находится взаимодействие плазмы с жидкостью, в частности физические и химические механизмы на границе раздела сред [12–14]. Остаются вопросы по типам и свойствам образующихся плазменных структур как в области плазменного столба, так и в виде пятен на поверхности твердых и жидких электродов [15–18].

Наряду с этим плазменно-жидкостные системы находят широкое применение при решении различных прикладных задач. В публикациях описаны применения разряда с жидким (неметаллическим) электродом для полировки металлических изделий со сложной геометрией внешней и внутренней поверхностей с повышением параметров шероховатости на 1–2 класса, зачистки заусенцев и скругления острых углов, очистки поверхностей от загрязнений и подготовки ее перед нанесением покрытий [19–21]. Широкое разнообразие применений плазменно-жидкостных систем связано с большим количеством конфигураций газоразрядных камер, режимов и параметров зажигания и горения разряда, а также плазмохимических процессов, связанных с переносом вещества и заряда на границе раздела фаз [22–28].

Целью данной работы является исследование типов и форм, а также электрофизических, тепловых и спектральных характеристик электрического разряда постоянного тока, поддерживаемого между металлическим анодом и электролитическим катодом при атмосферном давлении. Полученные результаты могут быть использованы для разработки математических моделей разрядов, а также создания плазменных устройств.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И РЕЗУЛЬТАТЫ

Для зажигания и поддержания разряда использовалась экспериментальная установка с рабочей камерой, схема которой показана на рис. 1. Разряд исследовался при двух конфигурациях расположения электродов: 1) при погружении металлического анода в электролитический катод; 2) при расположении металлического анода в вертикальной плоскости на некотором расстоянии над поверхностью электролитического катода. В качестве анода использовалась пластина, изготовленная методом селективного лазерного спекания на основе сырья из металлического порошка марки “PH1”. Электролит представлял собой 5%-ный раствор NaCl в очищенной водопроводной воде.

Исследование электрического разряда осуществлялось при напряжении $U = 0.1–1.5$ кВ, глубине погружения металлического анода в электролит $h =$ $= 3$ мм, межэлектродном промежутке $i = 1–10$ мм, диаметре металлического анода $d_a = 6$ мм. Эксперименты осуществлялись в потоке воздуха с $v = 0.2$ м/с при атмосферном давлении $p = 10^5$ Па.

На рис. 1а показана схема рабочей камеры для поддержания разряда при погружении металлического анода в электролитический катод. Она состоит из металлического анода *1*, предварительно погруженного в ванну с раствором электролита *4*. В ванне предусмотрена металлическая пластина *2* для подвода к электролиту отрицательного потенциала. Область *3* соответствует зоне горения электрического разряда в парогазовой смеси около металлического анода. Для контроля температуры раствора электролита в ванне предусмотрен термостат. Термостатирование осуществлялось с помощью циркуляционного охладителя рефрижераторного типа. Обновление электролита в ванне производилось с помощью системы подачи и откачки электролита. Для очищения раствора от примесей в системе предусмотрен фильтр грубой очистки. Удаление паров электролита из зоны исследования разряда осуществлялось с помощью стационарной вытяжки и вентилятора.

На рис. 1б схематично показана рабочая камера для поддержания разряда при расположении металлического анода над поверхностью электролитического катода. Для этого в рабочей камере предусмотрен автоматический манипулятор, с помощью которого анод *1* перемещался в вертикальной плоскости над поверхностью электролита в ванне *4*. Стрелка *3* показывает область горения разряда в парогазовом промежутке между анодом и катодом.

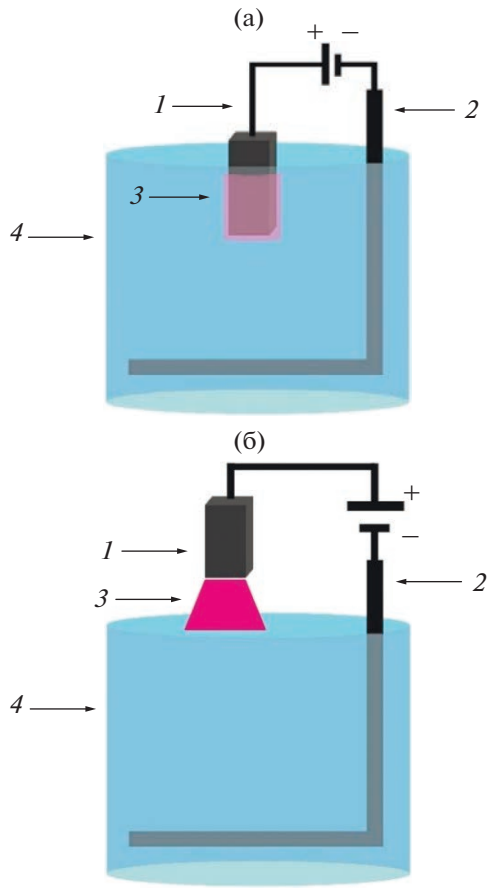

Рис. 1. Функциональная схема рабочей камеры для поддержания электрического разряда: (а) – при погружении металлического анода в электролитический катод, (б) – при расположении металлического анода над поверхностью электролитического катода.

Для питания разряда был использован регулируемый источник постоянного тока с мощностью до 40 кВт, который обеспечивает регулируемое постоянное напряжение до 4000 В при номинальном токе до 10 А. Источник состоит из низковольтного и высоковольтного регулируемых блоков, обеспечивая тем самым указанные диапазоны изменений напряжений и тока. Установка заземлена. Текущие значения тока и напряжения показывались стрелочными индикаторами на пульте источника, передавались на управляющий компьютер и контролировались оператором.

Для решения поставленных в работе задач применялись современные методы и подходы исследования.

1. Видеосъемка динамики процессов, протекающих в зоне горения разряда между металлическим и электролитическим электродами, а также образующихся при этом плазменных структур осуществлялась с помощью высокоскоростной видеокамеры марки “Casio EX-F1”. Ввиду высокой динамичности протекающих в зоне горения разряда процессов скорость съемки была выбрана 1200 и 600 кадр/с. Камера устанавливалась на штатив на расстоянии 300 мм от зоны горения разряда и передавала получаемую информацию на ЭВМ с оператором. Обработка полученных данных проводилась на персональном компьютере с установленным программным обеспечением “HX Link” и “Movavi Video Editor 14 Plus”. Дополнительное детальное исследование плазменных структур на поверхности жидкого и металлического электродов осуществлялось одновременно с помощью микроскопа “СП-52”.

2. Излучение плазмы разряда анализировалось методом эмиссионной спектроскопии на оптоволоконном спектрометре марки “PLASUS EC 150201 MC”. Регистрация излучения разряда осуществлялась с помощью коллиматора для фиксации световых лучей в диапазоне длин волн 195–1105 нм. Коллиматор подводился к зоне горения разряда на расстояние 100–200 мм. Калибровка аппаратной функции системы проводилась снятием светового излучения от лампы марки “СИРШ 6–100”. За аппаратную ширину взята ширина минимальных, одиночных и самых узких линий спектра, которая оказалась равной $\Delta\lambda_g = 1$ нм. Исследуемое излучение собиралось со всего объема формируемого разряда, поэтому оценка состава и компонентов плазмы выполнена без привязки к определенной точке разряда. Анализ полученных данных осуществлялся при помощи сопоставления исследуемого спектра с базой данных Национального института стандартов и технологий США (NIST).

3. Для анализа распределения температуры исследуемой поверхности металлического и электролитического электродов в процессе горения разряда использовалась тепловизионная камера марки “FLIRA6500SC” с пространственным разрешением детектора 640 × 512 пикселей при рабочем спектральном диапазоне 3.6–4.9 мкм. Тепловизор обеспечивал фиксацию температуры поверхности электродов в калиброванном диапазоне от 4 до 2400°C. Обработка полученных значений проводилось на ЭВМ с программным обеспечением “ALTAIR v5.91.010”.

4. Исследования колебаний тока и напряжения электрического разряда производились цифровыми осциллографами “GDS-806S” и “GOS-6030”.

5. Численные расчеты осуществлялись в среде “ANSYS FLUENT 16.2”. Рассматривается протекание тока в электролитической ячейке с заземленным проводящим днищем. С помощью инструментов геометрических построений была создана расчетная область $100 \times 100 \times 40$ мм^3. Задача решалась методом конечных элементов, расчетная область разбивалась на элементы в виде тетраэдров. Модель представляет собой трехкомпонентную систему жидкость – воздух – пар. Для жидкой фазы учитывается наличие в электролите ионов. Берутся в расчет следующие процессы: джоулево тепловыделение, теплопроводность и конвекция, парообразование и конденсация воды, эффекты поверхностного натяжения. Система, описывающая динамику парогазовой среды и жидкости, включает уравнения неразрывности смеси, движения (импульсов), энергии и потенциала электрического поля.

В диапазоне $U = 0.1$–0.4 кВ при погруженном в электролит аноде разряд не зажигается. В области контакта электродов наблюдается процесс испарения, а затем кипения электролита с интенсивным парообразованием, что происходит как на свободной поверхности жидкости, так и вокруг металлического анода. При этом вокруг металлического анода возникает граница разделения фаз, т.е. на его поверхности образуются пузырьки, которые содержат воздух и насыщенный пар. Постоянный ток в цепи приводит в действие процессы химического выделения растворенных веществ из электролитического катода и джоулевого тепловыделения с поверхности металлического анода. В газоразрядной камере протекает процесс, характерный для электролиза. Изменяя параметры температуры и концентрации электролита, можно изменять приэлектродные процессы в нужном направлении. Пробой на границе раздела сред не возникает, так как вкладываемая в разряд мощность недостаточна для ионизации паровоздушной смеси и возникновения электронной лавины.

С увеличением напряжения более 450 В напряженность электрического поля достигает значений, достаточных для пробоя парогазового промежутка. После пробоя на образование свободных электронов в парогазовом промежутке могут вли-

ять ионизация прямым электронным ударом, ступенчатая, фото- и диссоциативная ионизация в объеме, а также плазмохимические реакции между продуктами диссоциации на границе электролита и в объеме. Разряд имеет импульсный характер с колебаниями тока в диапазоне $I = 0.2–1.2$ А, с частотой генерации до 200 Гц. Горение разряда протекает в парогазовой смеси вокруг металлического анода. В области горения разряда наблюдается процесс, аналогичный электрогидравлическому взрыву, который сопровождается акустическими хлопками, выделением конвективных парогазовых потоков, кипением и разбрызгиванием электролита. Такой характер горения разряда обусловлен тем, что в результате формирования разряда в пузырях парогазовой смеси вокруг металлического анода образуются возмущающие электролит волны, которые распространяются в различных направлениях околоэлектродного пространства.

Для стабилизации разряда применялся автоматический манипулятор, с помощью которого металлический анод вынимался из электролита. Разряд в направлении от металлического анода до электролитического катода принимает вид усеченного конуса. Свечение плазмы столба имеет желтый цвет, характерный для атомов натрия. С помощью микроскопа СП-52 установлено, что внутри конуса горят микроканалы, которые периодически появляются, перемещаются и исчезают в области межэлектродного пространства. На поверхности электролита у основания микроканалов наблюдаются катодные пятна различной геометрической формы, схожие с такими фигурами, как октаграмма или многоконечная звезда (рис. 2). Установлено, что с увеличением тока разряда количество катодных пятен, а также скорость их перемещения увеличиваются.

Для моделирования условий пробоя в парогазовой смеси вблизи металлического анода проведены численные расчеты напряженности электрического поля и распределения объемной плотности мощности джоулева тепловыделения. Схема электролитической ячейки приведена на рис. 1а. Рассматривается цилиндрический металлический электрод, частично погруженный в электролит. Диаметр металлического электрода $d_a = 6$ мм, глубина погружения $h = 10$ мм. На электрод подается постоянное напряжение U.

Моделирование электрофизических процессов в электролитической ячейке производилось в среде “ANSYS-FLUENT”. Применялась модель многофазной среды. Рассматривались три фазы: воздух, жидкий электролит и пары воды. Учитывались процессы: джоулево тепловыделение, теплопроводность и конвекция, парообразование и конденсация воды, эффекты поверхностного натяжения. В модели многофазной среды решаются следующие уравнения.

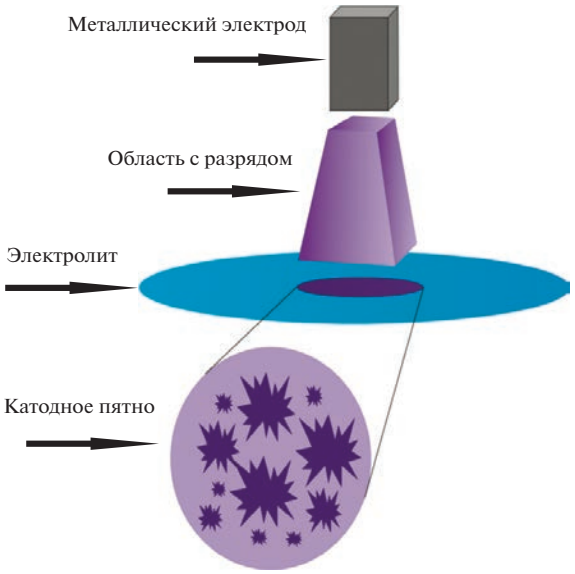

Рис. 2. Формы катодных пятен, образующихся на поверхности электролита при горении электрического разряда между металлическим анодом и жидким (неметаллическим) катодом.

Уравнение неразрывности смеси:

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho_m + \nabla \cdot (\rho_m \mathbf{v}_m) = 0, \qquad (1)$$

где

$$\mathbf{v}_m = \frac{1}{\rho_m}\sum_{k=1}^{3}\alpha_k \rho_k \mathbf{v}_k$$

– ее среднемассовая скорость,

$$\rho_m = \sum_{k=1}^{3}\alpha_k \rho_k$$

– средняя плотность, α_k и ρ_k – объемная доля и плотность k-й компоненты,

$$\sum_{k=1}^{3}\alpha_k = 1.$$

Уравнения движения (уравнение импульсов):

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_m \mathbf{v}_m) + \nabla \cdot (\rho_m \mathbf{v}_m \cdot \mathbf{v}_m) = -\nabla p + \left[\mu_m \left(\nabla \mathbf{v}_m + \nabla \mathbf{v}_m^T\right)\right] + \rho_m \mathbf{g} + \mathbf{F} + \nabla \cdot \left(\sum_{k=1}^{3}\alpha_k \rho_k \mathbf{v}_{dr,k} \cdot \mathbf{v}_{dr,k}\right), \qquad (2)$$

где

$$\mu_m = \sum_{k=1}^{3}\alpha_k \mu_k$$

– средний коэффициент вязкости смеси,

$$\mathbf{v}_{dr,k} = \mathbf{v}_k - \mathbf{v}_m$$

– дрейфовая скорость k-й компоненты; p – давление; g – ускорение свободного падения; $\mathbf{F}$ – внешние силы, действующие на элементы объема среды (например, силы поверхностного натяжения).

Уравнение энергии:

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\sum_{k=1}^{3}\alpha_k\rho_k E_k\right) + \nabla\cdot\left(\sum_{k=1}^{3}\alpha_k\mathbf{v}_k\left(\rho_k E_k + p\right)\right) = \nabla\cdot\left(k_{\text{eff}}\nabla T\right) + S_E, \quad (3)$$

где

$$k_{\text{eff}} = \sum_{k=1}^{3}\alpha_k\left(k_k + k_t\right)$$

– эффективный коэффициент теплопроводности k-й компоненты, k_t – вклад в теплопроводность за счет турбулентности. В (3) для газовой фазы принимается удельная энергия

$$E_k = h_k - \frac{p}{\rho_k} + \frac{v_k^2}{2},$$

где h_k – удельная энтальпия, а для жидкой фазы

$$E_k = h_k,$$

S_E – объемная плотность мощности источников теплоты.

В данной модели учитывается джоулево тепловыделение

$$S_E = \mathbf{j}\cdot\mathbf{E} = \sigma E^2, \quad (4)$$

$\mathbf{j}$ – плотность тока, $\mathbf{E}$ – напряженность электрического поля, σ – удельная электропроводность электролита.

Уравнение неразрывности электрического тока

$$\text{div}\mathbf{j} = 0,$$

$$\mathbf{j} = \sigma\mathbf{E}.$$

Для электростатического поля

$$\mathbf{E} = -\text{grad}\varphi,$$

тогда уравнение для потенциала электрического поля

$$\text{div}\left(\sigma\text{grad}\varphi\right) = 0. \quad (5)$$

Приняты следующие граничные условия для (4). На нижней проводящей пластине $\varphi = 0$; на металлическом электроде $\varphi = U$. На боковых диэлектрических стенках принято условие Неймана $\frac{\partial\varphi}{\partial n} = 0$, что соответствует непротеканию тока.

Для уравнения энергии на боковых вертикальных стенках принято условие конвективного теплообмена с окружающим атмосферным воздухом, давление которого $p_0 = 10^5$ Па, температура $T_a = 300$ K.

Уравнения модели (1)–(5) решаются в среде ANSYS методом конечных элементов.

Расчеты проводились при значении подаваемого на электрод напряжения $U = 600$ В, удельная электропроводность электролита принята равной $\sigma = 3$ См/м. У нижней кромки электрода распределение потенциала сильно неоднородное и возникает область с большой напряженностью поля. Здесь будет максимальное джоулево тепловыделение (4), из-за чего начинается парообразование (рис. 3). На рис. 4 показано распределение плотности мощности джоулева тепловыделения по поверхности цилиндрического электрода. Видно, что имеются локальные участки с большим значением плотности мощности, вплоть до 540 ГВт/м^3. Это можно объяснить тем, что локальное парообразование приводит к изменению (уменьшению) электропроводности, что ведет к усилению неоднородности поля и возникновению больших градиентов потенциала. Сильное локальное электротермическое воздействие на материал электрода при-

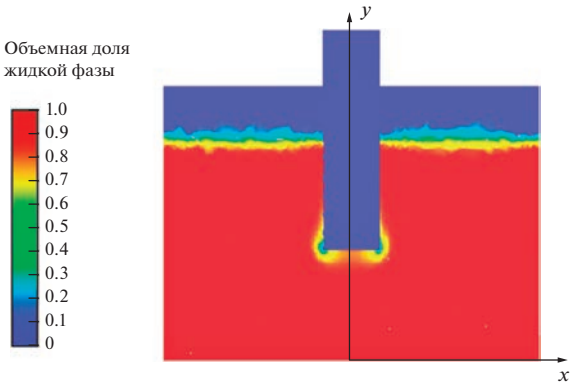

Рис. 3. Начало парообразования у нижней кромки электрода (расчет): момент времени – 16 мс после включения напряжения.

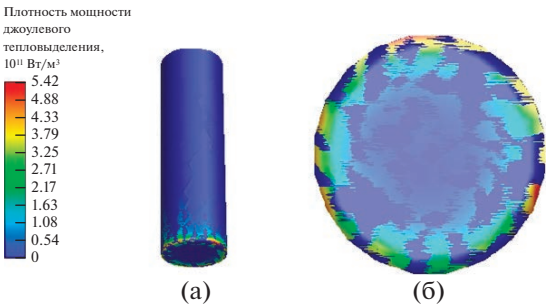

Рис. 4. Распределение плотности мощности джоулева тепловыделения по поверхности цилиндрического электрода (а) и по его нижнему торцу (б).

водит к его оплавлению и эрозии. Это, в свою очередь, способствует образованию порошка.

В процессе развития разрядных процессов вокруг погруженной части электрода образуются парожидкостная оболочка и область с пониженной электропроводностью, где происходит основное падение напряжения (рис. 5). Напряженность электрического поля вблизи торца электрода достигает значения 30 кВ/м. В этой же области происходит максимальное джоулевое тепловыделение (рис. 6). Данная модель позволяет рассмотреть динамику развития быстропротекающих электрофизических процессов и рассчитать численные характеристики.

Построена вольт-амперная характеристика (ВАХ) электрического разряда между металлическим анодом и электролитическим катодом при расположении металлического электрода над поверхностью электролита при атмосферном давлении (рис. 7). ВАХ разряда имеет линейно спадающий характер. Участок кривой с возрастающей ВАХ от 50 до 540 В соответствует электролизу, предшествующему разряду. Далее после стабилизации разряда напряжение уменьшается от 540 до 400 В, ток разряда меняется в интервале от 0.01 до 0.4 А. Такое поведение ВАХ разряда характерно для дугового разряда между твердыми электродами.

Анализ оптических спектров (рис. 8) показал наличие различных химических элементов в составе плазмы: H, Na, Cl. Определение концентрации электронов в плазме проводилось по анализу контуров водородной линии H_α с учетом аппаратного уширения в предположении фойгтовского контура регистрируемой линии и лоренцевской составляющей, которая обусловлена линейным штарк-эффектом. Для данных контуров значения концентрации электронов представлены в таблице (электролит NaCl). Наибольшая полуширина водородной

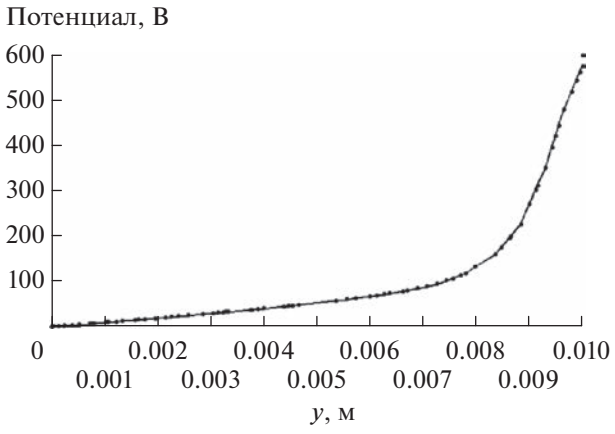

Рис. 5. Изменение потенциала вдоль осевой линии, где $y = 0$ соответствует заземленной пластине *2* на рис. 1а, $y = 0.01$ м – нижнему торцу электрода.

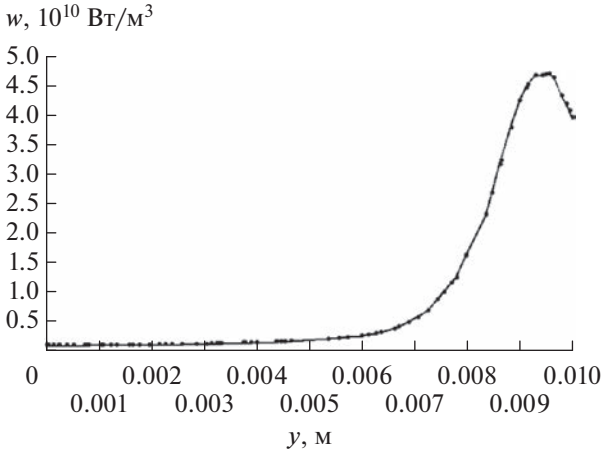

Рис. 6. Изменение объемной плотности мощности джоулева тепловыделения вдоль осевой линии.

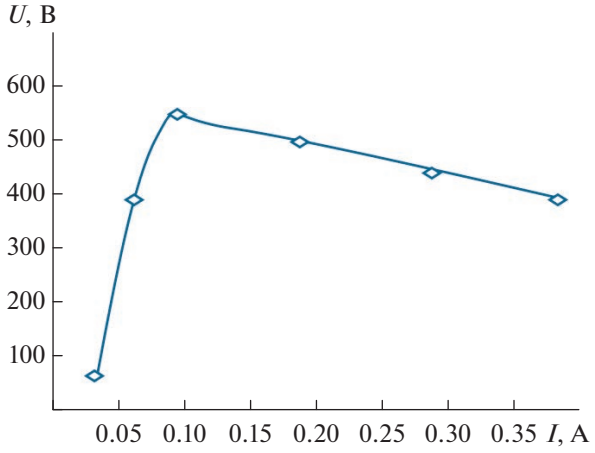

Рис. 7. ВАХ электрического разряда между металлическим анодом и электролитическим катодом.

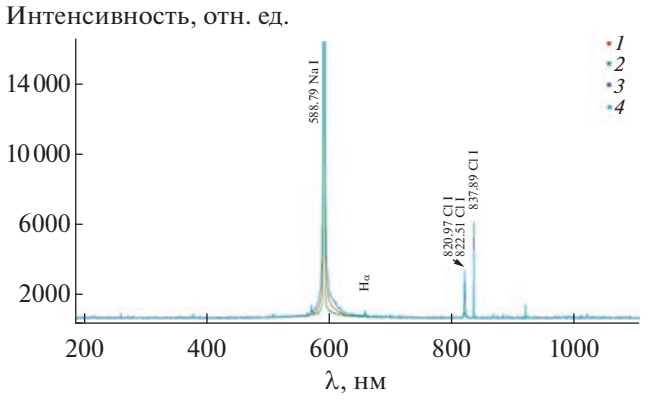

Рис. 8. Исследуемый спектр плазменного разряда между металлическим анодом и электролитическим катодом со спектральными линиями из базы NIST.

Концентрация электронов для электролита NaCl

Электролит	NaCl			
Номер эксперимента (рис. 8)	*1*	*2*	*3*	*4*
Линия из серии Бальмера	H_α	H_α	H_α	H_α
Полуширина фойгтовского контура, нм	1.3	1.3	1.4	1.4
Полуширина лоренцевской составляющей, нм	0.6	0.6	0.76	0.7
Концентрация электронов, 10^{16} см$^{-3}$	6.1	6.2	7.9	7.7

линии из серии Бальмера получена в эксперименте 3, следовательно, и расчет концентраций электронов в плазме для этой линии более точен. Концентрация электронов в плазменном разряде между электродами $n_e = 6.1 \times 10^{16}$–7.9×10^{16} см$^{-3}$.

Методом термографии исследована температура поверхности металлического анода (рис. 9а) и электролитического катода (рис. 9б) в условиях горения разряда, где синий отрезок – участок вдоль вертикальной поверхности на металлическом электроде, а красный отрезок – это участок вдоль горизонтальной поверхности на электролите. Исходя из анализа полученных данных следует, что на расстоянии от 0 до 47 мм температура поверхности металлического анода повышается от 375 до 450°C в направлении горения разряда, затем температура стабилизируется и на расстоянии от 47 до 215 мм не меняется. Минимальная температура в системе – 375.5°C, а максимальная температура – 450.7°C (рис. 9а).

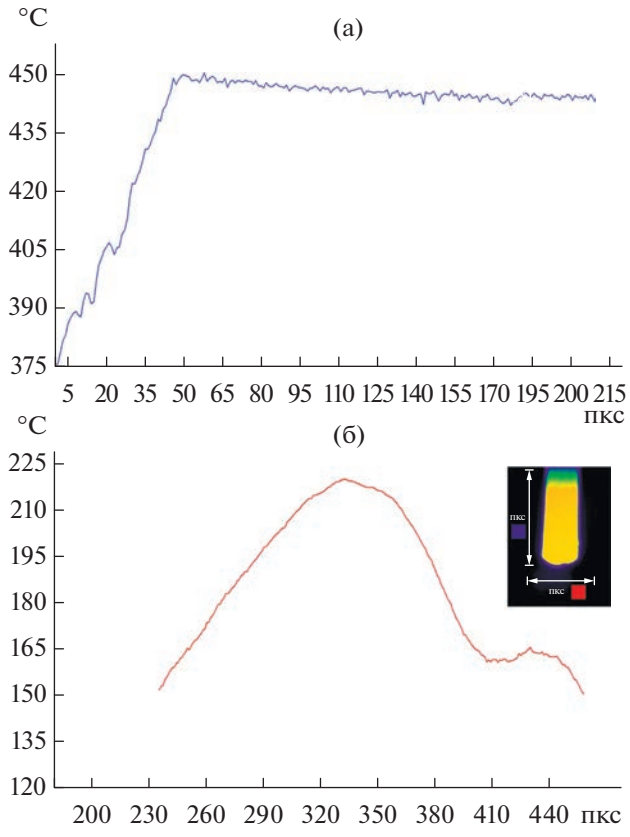

Рис. 9. Термограммы поверхности металлического анода (а) и электролитического катода (б) при горении электрического разряда.

Температура поверхности электролита в области катодного пятна повышается к середине плазменного столба и достигает 220°C, затем постепенно понижается к периферии разряда. Минимальная температура в системе – 150.2°C, а максимальная температура – 220.1°C (рис. 9б).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследованы электрофизические, спектральные и тепловые процессы, протекающие в зоне горения электрического разряда постоянного тока между металлическим анодом и жидким (неметаллическим) катодом при атмосферном давлении. Описаны типы и формы плазменных структур и пятен, образующихся на границе раздела сред, в области горения разряда. Проведены численные расчеты тепловых и электрических свойств анодной области, предшествующие разряду.

Установлено формирование разрядов постоянного тока между металлическим анодом и электролитическим катодом в форме усеченного конуса с образованием микроканалов внутри плазменного столба. Наблюдается образование катодных пятен на поверхности раствора электролита в форме октаграмм и многоконечной звезды. При погружении металлического анода в электролит разряд имеет импульсный характер с колебаниями тока в диапазоне $I = 0.2$–1.2 А, с частотой генерации до 200 Гц. В конфигурации электродов, где металлический анод расположен над электролитом, ВАХ разряда имеет спадающий характер с уменьшением напряжения от 540 до 400 В при увеличении тока от 0.01 до 0.4 А.

Напряженность электрического поля вблизи торца электрода достигает значения 30 кВ/м. В этой же области происходит максимальное джоулево тепловыделение.

Анализ оптических спектров показал наличие различных химических элементов в составе плазмы: H I, Na I и Cl I. Концентрация электронов в плазменном разряде между электродами составляет $n_e = 6.1 \times 10^{16}$–7.9×10^{16} см$^{-3}$.

Из анализа термограмм видно, что температура металлического анода повышается от 380 до 450°С в направлении горения разряда, а температура электролитического катода в области катодного пятна возрастает до 220°С.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (№ 22-29-0021).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bruggeman P.J., Kushner M.J., Locke B.R., Gardeniers J.G., Graham W.G., Graves D.B., Hofman-Caris R.C. et al.* Plasma–Liquid Interactions: a Review and Roadmap // Plasma Sources Sci. Technol. 2016. V. 25. P. 053002.
2. *Sakiyama Y., Graves D.B., Hung-Wen Ch., Shimizu T., Morfill G.E.* Plasma Chemistry Model of Surface Microdischarge in Humid Air and Dynamics of Reactive Neutral Species // J. Phys. D: Appl. Phys. 2012. V. 45. P. 425201.
3. *Raizer Y.P., Allen J.E., Kisin V.I.* Gas Discharge Physics. Berlin: Springer, 1997. 449 p.
4. *Гайсин А.Ф., Сон Э.Е., Ефимов А.В., Гильмутдинов А.Х., Кашапов Н.Ф.* Спектральная диагностика плазмы разряда между металлическим катодом и жидким анодом // ТВТ. 2017. Т. 55. № 3. С. 472.
5. *Хлюстова А.В.* Динамическая модель подводного разряда // Письма в ЖТФ. 2021. Т. 47. С. 38.
6. *Kashapov N.F., Kashapov R.N., Kashapov L.N.* Influence of the Electrolytic Cathode Temperature on the Self-sustaining Mechanism of Plasma-electrolyte Discharge // J. Phys. D: Appl. Phys. 2018. V. 51. P. 494003.
7. *Кирко Д.Л.* Исследование приэлектродной плазмы и поверхности электродов при разряде в электролите // Физика плазмы. 2020. Т. 46. № 6. С. 495.
8. *Andre P., Barinov Y., Faure G., Kaplan V., Lefort A., Shkol'nik S., Vacher D.* Experimental Study of Discharge with Liquid Non-metallic (Tap-water) Electrodes in Air at Atmospheric Pressure // J. Phys. D: Appl. Phys. 2001. V. 34. P. 3456.
9. *Желтухин В.С., Гайсин Ал.Ф., Петряков С.Ю.* Механизм пробоя высокочастотного разряда со струйными электролитическими электродами // Письма в ЖТФ. 2022. Т. 48. С. 24.
10. *Гайсин Ал.Ф., Сон Э.Е., Петряков С.Ю.* Высокочастотный емкостной разряд с проточными жидкими электродами при понижении давления // Физика плазмы. 2017. Т. 43. № 7. С. 625.
11. *Сон Э.Е., Суворов И.Ф., Какауров С.В., Гайсин А.Ф., Самитова Г.Т., Соловьева Т.Л., Юдин А.С., Рахлецова Т.В.* Электрические разряды с жидкими электродами и их применение для обеззараживания вод // ТВТ. 2014. Т. 52. № 4. С. 512.
12. *Хафизов А.А., Валиев Р.И., Багаутдинова Л.Н., Гайсин Аз.Ф., Гайсин Ал.Ф., Гайсин Ф.М., Сон Э.Е., Фахрутдинова И.Т.* Электрический разряд переменного тока в однопроцентном растворе хлорида натрия в дистиллированной воде при пониженных давлениях // ТВТ. 2022. Т. 60. № 4. С. 625.
13. *Валиев Р.И., Хафизов А.А., Багаутдинова Л.Н., Гайсин Ф.М., Басыров Р.Ш., Гайсин Аз.Ф., Гайсин Ал.Ф.* Электрические разряды переменного тока в газожидкостной среде раствора хлорида натрия при атмосферном давлении // ТВТ. 2021. Т. 59. № 4. С. 634.
14. *Багаутдинова Л.Н., Садриев Р.Ш., Гайсин А.Ф., Мастюков Ш.Ч., Гайсин Ф.М., Фахрутдинова И.Т., Леушка М.А., Гайсин А.Ф.* Некоторые особенности диэлектрического барьерного разряда с жидким и твердым электродами // ТВТ. 2019. Т. 57. № 6. С. 953.
15. *Галимзянов И.И., Гайсин А.Ф., Фахрутдинова И.Т., Шакирова Э.Ф., Ахатов М.Ф., Каюмов Р.Р.* Некоторые особенности развития электрического разряда между струйным анодом и жидким катодом // ТВТ. 2018. Т. 56. № 2. С. 306.
16. *Гайсин А.Ф., Гайсин Ф.М., Гайсин А.Ф., Багаутдинова Л.Н., Садриев Р.Ш., Галимзянов И.И., Гильмутдинов А.Х., Шакирова Э.Ф.* Термограммы высокочастотного емкостного разряда между твердым и жидким электродами // ТВТ. 2018. Т. 56. № 6. С. 891.
17. *Гайсин А.Ф.* Двухмерное численное моделирование объемного разряда с жидким анодом // ТВТ. 2017. Т. 55. № 1. С. 141.
18. *Сон Э.Е., Гайсин А.Ф., Леушка М.А., Гайсин А.Ф., Садриев Р.Ш., Гайсин Ф.М.* Некоторые особенности электрического разряда между твердым электродом и технической водой // ТВТ. 2016. Т. 54. № 1. С. 29.
19. *Гайсин А.Ф.* Исследование воздействия низкотемпературной плазмы парогазовых разрядов с электролитическими электродами при пониженном давлении на изделие сложной геометрической формы // Физика и химия обработки материалов. 2016. № 3. С. 22.
20. *Гайсин А.Ф., Гильмутдинов А.Х., Мирханов Д.Н.* Электролитно-плазменная обработка поверхности детали, изготовленной с применением аддитивной технологии // Металловедение и термическая обработка металлов. 2018. № 2 (752). С. 69.
21. *Гайсин А.Ф., Гильмутдинов А.Х.* Электролитно-плазменная обработка изделия, изготовленного с применением аддитивной технологии // Физика и химия обработки материалов. 2020. № 2. С. 28.
22. *Агафонов А.В., Сироткин Н.А., Титов В.А., Хлюстова А.В.* Подводная низкотемпературная плазма как инструмент синтеза неорганических наноматериалов // Журн. неорг. химии. 2022. Т. 67. № 3. С. 271.
23. *Рыбкин В.В., Смирнов С.А., Титов В.А., Аржаков Д.А.* Характеристики электронов и колебательных распределений молекул в разряде постоянного тока атмосферного давления в воздухе с жидким катодом // ТВТ. 2010. Т. 48. № 4. С. 498.
24. *Кирко Д.Л., Савелов А.С.* Характеристики капиллярного разряда при добавлении в плазму атомов металлов // ТВТ. 2015. Т. 53. № 6. С. 953.
25. *Тазмеев Г.Х., Тимеркаев Б.А., Тазмеев Х.К., Мифтахов М.Н.* Особенности переноса вещества и зарядов в газоразрядную плазму из водного раствора хлорида натрия, служащего в качестве катода // ХВЭ. 2018. Т. 52. № 1. С. 83.
26. *Тазмеев Г.Х., Тимеркаев Б.А., Тазмеев Х.К.* Исследование газового разряда постоянного тока с находящимся в водном потоке медным катодом // Физика плазмы. 2017. Т. 43. № 7. С. 641.
27. *Тазмеев Х.К., Тазмеев Б.Х.* Некоторые особенности горизонтально ориентированной слаботочной электрической дуги в воздухе // Физика плазмы. 2016. Т. 42. № 1. С. 93.
28. *Хлюстова А.В., Максимов А.И.* Плазменно-окислительная деструкция органических красителей в растворе при совместном действии подводных разрядов и озона // ХВЭ. 2013. Т. 47. № 3. С. 237.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 492–496

УДК 533.9

ПОПЕРЕЧНАЯ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ НЕВЫРОЖДЕННОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ ПЛАЗМЫ СО СТОЛКНОВЕНИЯМИ

© 2023 г. С. А. Маслов*, В. Б. Бобров, С. А. Тригер

Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

**E-mail: sergm90@mail.ru*

Поступила в редакцию 10.06.2022 г.
После доработки 10.06.2022 г.
Принята к публикации 13.10.2022 г.

Найдено аналитическое выражение для поперечной диэлектрической проницаемости невырожденной электронной плазмы в приближении эффективной частоты столкновений для слабонеидеального газа с учетом спина электрона. Полученное выражение учитывает как диамагнетизм Ландау, так и парамагнетизм Паули в электронной плазме.

DOI: 10.31857/S0040364423040087

ВВЕДЕНИЕ

Поведение однородной и изотропной плазменной системы в слабом внешнем электромагнитном поле полностью определяется [1] тензором диэлектрической проницаемости

$$\varepsilon_{\alpha\beta}(\mathbf{k},\omega) = \varepsilon^{l}(k,\omega)\frac{k_\alpha k_\beta}{k^2} + \varepsilon^{\mathrm{tr}}(k,\omega)\left(\delta_{\alpha\beta} - \frac{k_\alpha k_\beta}{k^2}\right),$$

где $\varepsilon^{l}(k,\omega)$ и $\varepsilon^{\mathrm{tr}}(k,\omega)$ – соответственно продольная и поперечная диэлектрические проницаемости (ДП). Зависимости от волнового числа k и частоты ω, определяющие пространственную и частотную дисперсии функций $\varepsilon^{l}(k,\omega)$ и $\varepsilon^{\mathrm{tr}}(k,\omega)$, различны. Это приводит к соответствующим (продольным и поперечным) вкладам в коллективные потери при движении потока быстрых заряженных частиц в плазме [2] и поверхностный импеданс полуограниченной плазмы [3]. При этом продольная ДП $\varepsilon^{l}(k,\omega)$ однозначно определяет среднюю энергию электростатического взаимодействия заряженных частиц в плазме [4], в то время как поперечная ДП $\varepsilon^{\mathrm{tr}}(k,\omega)$ – магнитные свойства [5, 6] и характеристики равновесного излучения в плазме [7]. Только в длинноволновом пределе ($k \to 0$) продольная и поперечная ДП совпадают [1]: $\lim\limits_{k\to 0}\varepsilon^{l}(k,\omega) = \lim\limits_{k\to 0}\varepsilon^{\mathrm{tr}}(k,\omega) = \varepsilon(\omega)$. Величина $\varepsilon(\omega)$ используется при исследовании оптических свойств плазменных систем на основе формул Френеля [8].

В максвелловской плазме электроны не вырождены в силу условия $T \gg e_{\mathrm{F}}$, где T – температура плазмы в энергетических единицах, $e_{\mathrm{F}} = \hbar^2 k_{\mathrm{F}}^2/2m$ – энергия Ферми, $k_{\mathrm{F}} = (3\pi^2 n)^{1/3}$ – волновой вектор Ферми для системы электронов массы m со средней плотностью числа частиц n. В случае слабого взаимодействия между электронами проводимости и ионами в качестве важного исходного приближения широко применяется модель электронной жидкости (однокомпонентной электронной плазмы), которая представляет собой квантовую систему электронов, находящихся в компенсирующем фоне ионов [9]. Исследованию продольной ДП вырожденной и невырожденной электронной плазмы уделяется большое внимание, что обусловлено, прежде всего, ее связью с термодинамическими свойствами металлов и плазмы [10–13]. Отметим, что рассмотрение поперечной диэлектрической проницаемости (ПОДП) электронной плазмы фактически ограничивалось случаем идеального электронного газа, хотя исследованию магнитных свойств уделялось значительное внимание (см. [9] и цитируемую там литературу). При определении ПОДП идеальной электронной плазмы для описания воздействия внешнего поля можно использовать гамильтониан

$$\hat{H}_0 = \int \hat{\psi}^{+}(\mathbf{r})\left\{\frac{1}{2m}\left(\hat{\mathbf{p}} - \frac{e}{c}\mathbf{A}^{(\mathrm{ext})}\right)^2 + e\varphi^{(\mathrm{ext})}\right\}\hat{\psi}(\mathbf{r})d^3\mathbf{r}, \quad (1)$$

представленный в формализме вторичного квантования. Здесь $\hat{\psi}^{+}(\mathbf{r})$ и $\hat{\psi}(\mathbf{r})$ – полевые операторы рождения и уничтожения электрона; $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$ – оператор импульса электрона, который характеризуется зарядом e; $\mathbf{A}^{(\mathrm{ext})}$ и $\varphi^{(\mathrm{ext})}$ – соответственно векторный и скалярный потенциалы внешнего поля, изменяющиеся во времени и пространстве; c – скорость света. В рассматриваемом нерелятви-

вистском приближении используется кулоновская калибровка для векторного потенциала: $\mathrm{div}\mathbf{A}^{(\mathrm{ext})} = 0$. Гамильтониан (1) применяется для явного аналитического вычисления ПОДП слабонеидеальной вырожденной (начиная с известной работы Линдхарда [14]) и невырожденной [3, 4] электронной плазмы как в рамках метода кинетического уравнения (см., например, [15–17] и цитируемую там литературу), так и на основе теории линейного отклика [18, 19]. Однако применение гамильтониана (1) возможно только при рассмотрении плазменных систем, состоящих из частиц, не имеющих спина (см., например, [20, 21] и цитируемую там литературу). На это было указано уже в работе Линдхарда [14], где дан способ учета спина для частиц плазмы при вычислении ПОДП вырожденного электронного газа. Однако результирующие аналитические выражения для ПОДП бесстолкновительной электронной плазмы с явным учетом спина электрона осуществлены лишь недавно [22, 23].

Частицы со спином обладают также определенным "собственным" магнитным моментом [24], которому отвечает оператор $\hat{\boldsymbol{\mu}} = \mu\hat{\mathbf{s}}/s$, пропорциональный оператору спина $\hat{\mathbf{s}}$, где s – величина спина частицы, а μ – характерная для частицы постоянная. Собственный магнитный момент электрона, который характеризуется спином $s = 1/2$, равен $-\mu_{\mathrm{B}}$, где $\mu_{\mathrm{B}} = |e|\hbar/(2mc)$ – магнетон Бора. Таким образом, вместо гамильтониана (1) следует использовать оператор

$$\hat{H} = \int \hat{\psi}^{+}(\mathbf{r})\left\{\frac{1}{2m}\left(\hat{\mathbf{p}} - \frac{e}{c}\mathbf{A}^{(\mathrm{ext})}\right)^2 + e\varphi^{(\mathrm{ext})} - \frac{\mu}{s}\mathbf{H}^{(\mathrm{ext})}\hat{\mathbf{s}}\right\}\hat{\psi}(\mathbf{r})d^3\mathbf{r}, \tag{2}$$

где $\mathbf{H}^{(\mathrm{ext})} = \mathrm{rot}\mathbf{A}^{(\mathrm{ext})}$ – напряженность внешнего магнитного поля [25]. При этом гамильтониану (2) соответствует следующий оператор плотности электронного тока [24, 25]:

$$\hat{\mathbf{j}}(\mathbf{r}) = \hat{\mathbf{j}}^{(\mathrm{ext})}(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{j}}_d(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{j}}_p(\mathbf{r}),$$

$$\mathbf{j}^{(\mathrm{ext})}(\mathbf{r}) = -\frac{e^2}{mc}\mathbf{A}^{(\mathrm{ext})}\hat{\psi}^{+}(\mathbf{r})\hat{\psi}(\mathbf{r}),$$

$$\hat{\mathbf{j}}_d(\mathbf{r}) = \frac{ie\hbar}{2m}\left[\left(\nabla\hat{\psi}^{+}(\mathbf{r})\right)\hat{\psi}(\mathbf{r}) - \hat{\psi}^{+}(\mathbf{r})\left(\nabla\hat{\psi}(\mathbf{r})\right)\right],$$

$$\hat{\mathbf{j}}_p(\mathbf{r}) = \frac{\mu c}{s}\mathrm{rot}\left(\hat{\psi}^{+}(\mathbf{r})\hat{\mathbf{s}}\hat{\psi}(\mathbf{r})\right).$$

Здесь $\hat{\mathbf{j}}^{(\mathrm{ext})}(\mathbf{r})$ – плотность электронного тока, обусловленного наличием внешнего электромагнитного поля; $\hat{\mathbf{j}}_d(\mathbf{r})$ – плотность электронного тока без явного учета спина электрона, которая соответствует гамильтониану (1); $\hat{\mathbf{j}}_p(\mathbf{r})$ – плотность электронного тока, связанного с наличием спина у электрона. Другими словами, при вычислении ПОДП необходимо не только учитывать эффекты квантовой статистики, которые определяются значением спина, но и принимать во внимание сам факт наличия спина, который характеризует взаимодействие электрона с внешним магнитным полем. Наличие спина у частиц плазмы приводит к качественным нелинейным эффектам в квантовой плазме (см. подробнее [26]).

В настоящей статье полученные в работах [22, 23] аналитические выражения для ПОДП бесстолкновительной плазмы, учитывающие собственный магнитный момент электрона, обобщаются на случай столкновительной плазмы с использованием не зависящей от импульса частоты электронно-ионных столкновений. Такое обобщение является модельным, однако позволяет получить в явном аналитическом виде ПОДП при наличии частотной и пространственной дисперсии.

ПОПЕРЕЧНАЯ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ В ПРИБЛИЖЕНИИ БХАТНАГАРА–ГРОССА–КРУКА

Как известно, приближение постоянной частоты столкновений широко используется для электронно-атомных столкновений в кинетической теории (интеграл столкновений Бхатнагара–Гросса–Крука, см., например, [3]). В работах [27, 28] было достигнуто хорошее совпадение с экспериментальными данными по оптическим свойствам плазмы с параметром неидеальности $\Gamma_a = z_a^2 e^2 n_a^{1/3}/T \le 1$ при использовании модельной не зависящей от импульса частоты столкновений уже в простейшем приближении Друде.

Очевидное обобщение выражений для бесстолкновительной ПОДП [23] при учете электронно-ионных столкновений с частотой ν для произвольно вырожденной плазмы записывается в виде

$$\varepsilon_0^{\mathrm{tr}}(k,\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} - \frac{4\pi}{\omega^2}\left(\Phi_0^{(dd)}(k,\omega) + \Phi_0^{(pp)}(k,\omega)\right), \tag{3}$$

$$\Phi_0^{(dd)}(k,\omega) = \frac{1}{2}\sum_a (2s_a+1)\frac{z_a^2 e^2\hbar^2}{m_a^2}\int\frac{d^3p}{(2\pi)^3}\left(p^2 - \frac{(\mathbf{p}\cdot\mathbf{k})^2}{k^2}\right)\times \frac{f_a(\mathbf{p}-\mathbf{k}/2) - f_a(\mathbf{p}+\mathbf{k}/2)}{\hbar\omega + f_a(\mathbf{p}-\mathbf{k}/2) - f_a(\mathbf{p}+\mathbf{k}/2) + i\nu}, \tag{4}$$

$$\Phi_0^{(pp)}(k,\omega) = k^2\sum_a \frac{(2s_a+1)s_a(s_a+1)}{3}\left(\frac{\mu_a c}{s_a}\right)^2 \times \int\frac{d^3p}{(2\pi)^3}\frac{f_a(\mathbf{p}-\mathbf{k}/2) - f_a(\mathbf{p}+\mathbf{k}/2)}{\hbar\omega + f_a(\mathbf{p}-\mathbf{k}/2) - f_a(\mathbf{p}+\mathbf{k}/2) + i\nu}. \tag{5}$$

Здесь $\omega_p = \left(\sum_a 4\pi n_a z_a^2 e^2/m_a\right)^{1/2}$ – плазменная частота, $f_a(\mathbf{p}) = \{\exp[(e_a(\mathbf{p}) - \zeta_a)/T] + 1\}^{-1}$ – функция

распределения Ферми–Дирака, $e_a(\mathbf{p}) = \hbar^2 p^2/2m_a$ – энергетический спектр свободного заряда, ζ_a – химический потенциал свободных частиц сорта a плазмы. Величина ζ_a определяется из условия нормировки $n_a(T,\zeta_a) = (2s_a+1)\int f_a(\mathbf{p})\dfrac{d^3p}{(2\pi)^3}$. Легко показать, что при использовании гамильтониана (1) в выражении (3) для поперечной ДП $\varepsilon_0^{\mathrm{tr}}(k,\omega)$ будет отсутствовать функция $\Phi_0^{(pp)}(k,\omega)$.

Переходя к рассмотрению максвелловской плазмы, запишем

$$f_a(\mathbf{p}) = \frac{n_a\Lambda_a^3}{2s_a+1}\exp\left(-\frac{\hbar^2p^2}{2m_aT}\right),\quad \Lambda_a = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{m_aT}},$$

где Λ_a – длина волны де Бройля для частиц сорта a. Используя в (4) и (5) цилиндрическую систему координат с осью z, при которой $\mathbf{k} = k\mathbf{e}_z$, $p_z = p_1$ вдоль $\mathbf{k}$, получаем

$$\Phi_0^{(dd)}(k,\omega) = \frac{1}{4}\sum_a \frac{n_a\Lambda_a^3 z_a^2e^2\hbar^2}{m_a^2}\frac{4m_a^2T^2}{\hbar^4}\times$$
$$\times\int\frac{dp_1}{(2\pi)^2\left(\hbar\omega+i\nu-\hbar^2p_1k/m_z\right)}\times$$
$$\times\left[\exp\left(-\frac{\hbar^2(p_1-k/2)^2}{2m_aT}\right)-\exp\left(-\frac{\hbar^2(p_1+k/2)^2}{2m_aT}\right)\right],$$

$$\Phi_0^{(dd)}(k,\omega) = k^2\sum_a\frac{n_a\Lambda_a^3s_a(s_a+1)}{6}\left(\frac{\mu_ac}{s_a}\right)^2\times$$
$$\times\int\frac{dp_1}{(2\pi)^2\left(\hbar\omega+i\nu-\hbar^2p_1k/m_z\right)}\times$$
$$\times\left[\exp\left(-\frac{\hbar^2(p_1-k/2)^2}{2m_aT}\right)-\exp\left(-\frac{\hbar^2(p_1+k/2)^2}{2m_aT}\right)\right].$$

Далее введем в рассмотрение безразмерные переменные

$$W = \frac{\hbar\omega}{T},\quad N = \frac{\hbar\nu}{T},\quad Y = \frac{k\Lambda_e}{2\sqrt{\pi}} = \frac{k\hbar}{\sqrt{2m_eT}},$$
$$P = \frac{p_1\hbar}{\sqrt{2m_eT}},\quad \Gamma_a = \frac{z_a^2e^2n_a^{1/3}}{T},\quad \eta_a = n_a\Lambda_a^3,\quad t_a = \frac{m_e}{m_a},$$

так что ПОДП $\varepsilon_0^{\mathrm{tr}}(k,\omega)$ (3) принимает вид

$$\varepsilon_0^{\mathrm{tr}}(Y,W) = 1-\sum_a\frac{2\Gamma_a\eta_a^{2/3}}{W^2}-\sum_a\frac{2\Gamma_a\eta_a^{2/3}}{\sqrt{\pi}W^2}\times$$
$$\times\left(1+\frac{u_a^2t_aY^2(s_a+1)}{6s_a}\right)\int\frac{\sqrt{t_a}dP}{W-2t_aPY+iN}\times \qquad (6)$$
$$\times\left[\exp\left(-t_a(P-Y/2)^2\right)-\exp\left(-t_a(P+Y/2)^2\right)\right],$$

где u_a определено равенством $\mu_a = u_a|e|\hbar/(2m_ac)$; в частности, для электронов $u_e = 1$, а для протонов $u_p = 2.79$.

Интегрирование в (6) позволяет выразить ПОДП через интеграл вероятностей $w(z)$ от комплексного аргумента:

$$\varepsilon_0^{\mathrm{tr}}(Y,W) = 1-\sum_a\frac{2\Gamma_a\eta_a^{2/3}}{W^2}+$$
$$+\sum_a\frac{i\sqrt{\pi}\Gamma_a\eta_a^{2/3}}{Y\sqrt{t_a}W^2}\left(1+\frac{u_a^2t_aY^2(s_a+1)}{6s_a}\right)\times$$
$$\times\left[w\left(\frac{W}{2Y\sqrt{t_a}}-\frac{Y\sqrt{t_a}}{2}+\frac{iN}{2Y\sqrt{t_a}}\right)-\right. \qquad (7)$$
$$\left.-w\left(\frac{W}{2Y\sqrt{t_a}}+\frac{Y\sqrt{t_a}}{2}+\frac{iN}{2Y\sqrt{t_a}}\right)\right],$$

где для табулированной функции $w(z)$ справедливо интегральное представление

$$w(z) = \frac{i}{\pi}\times\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\exp(-x^2)dx}{z-x},\ \mathrm{Im}\,z>0.$$

Для плазмы с $z_a = z_e = 1$ условие квазинейтральности имеет вид $n_a = n_e$ (индекс a относится к ионам, а e – к электронам), и можно получить $\Gamma_a = \Gamma_e$, $\eta_a^{2/3} = n_a^{2/3}\Lambda_a^2 = \dfrac{2\pi n_a^{2/3}\hbar^2}{m_aT} = \dfrac{2\pi n_a^{2/3}\hbar^2t_a}{m_eT} = t_a\eta_e^{2/3}$.

Обозначая далее $\Gamma_e = \Gamma$, $\eta_e = \eta$ и полагая $s_a = 1/2$, запишем (7) в виде

$$\varepsilon_0^{\mathrm{tr}}(Y,W) = 1-\frac{2\Gamma\eta^{2/3}(1+t_a)}{W^2}+\frac{i\sqrt{\pi}\Gamma\eta^{2/3}}{YW^2}\times$$
$$\times\left(1+\frac{Y^2}{2}\right)\left[w\left(\frac{W}{2Y}-\frac{Y}{2}+\frac{iN}{2Y}\right)-w\left(\frac{W}{2Y}+\frac{Y}{2}+\frac{iN}{2Y}\right)\right]+$$
$$+\frac{i\sqrt{\pi}\Gamma_a\eta_a^{2/3}}{Y\sqrt{t_a}W^2}\left(1+\frac{u_a^2t_aY^2(s_a+1)}{6s_a}\right)\times \qquad (8)$$
$$\times\left[w\left(\frac{W}{2Y\sqrt{t_a}}-\frac{Y\sqrt{t_a}}{2}+\frac{iN}{2Y\sqrt{t_a}}\right)-\right.$$
$$\left.-w\left(\frac{W}{2Y\sqrt{t_a}}+\frac{Y\sqrt{t_a}}{2}+\frac{iN}{2Y\sqrt{t_a}}\right)\right].$$

Для электронного газа $N\to+0$ и уравнение (8) переходит в известный результат [23]

$$\mathrm{Re}\,\varepsilon^{\mathrm{tr}}(Y,W) = 1-\frac{2\Gamma\eta^{2/3}}{W^2}-\frac{2\Gamma\eta^{2/3}}{\sqrt{\pi}YW^2}\left(1+\frac{Y^2}{2}\right)\times$$
$$\times\left[\left(\frac{W}{2Y}-\frac{Y}{2}\right)\,{}_1F_1\left(1,\frac{3}{2},-\left(\frac{W}{2Y}-\frac{Y}{2}\right)^2\right)-\right.$$
$$\left.-\left(\frac{W}{2Y}+\frac{Y}{2}\right)\,{}_1F_1\left(1,\frac{3}{2},-\left(\frac{W}{2Y}+\frac{Y}{2}\right)^2\right)\right],$$

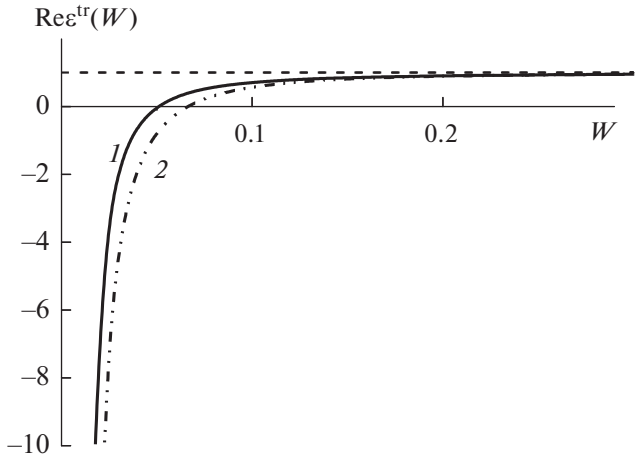

Рис. 1. Зависимость $\mathrm{Re}\varepsilon^{\mathrm{tr}}(Y,W)$ от W при $\Gamma = 0.01$, $\eta = 0.1$, $Y = 0.1$ для $N = 0.1$ (*1*) и 10 (*2*).

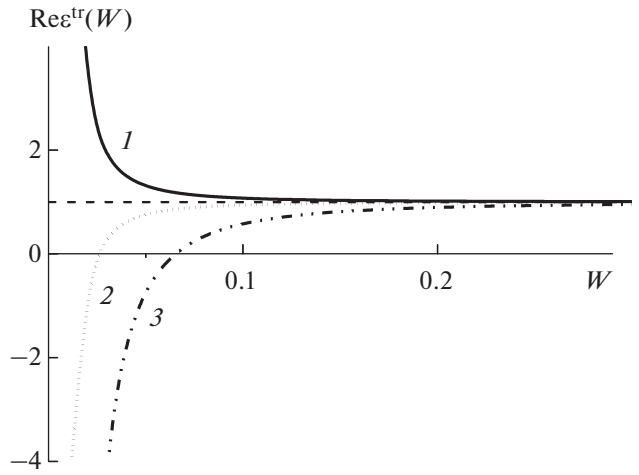

Рис. 2. Зависимость $\mathrm{Re}\varepsilon^{\mathrm{tr}}(Y,W)$ от W при $\Gamma = 0.01$, $\eta = 0.1$, $Y = 0.1$ для $N = 0.1$ (*1*), 0.5 (*2*) и 10 (*3*).

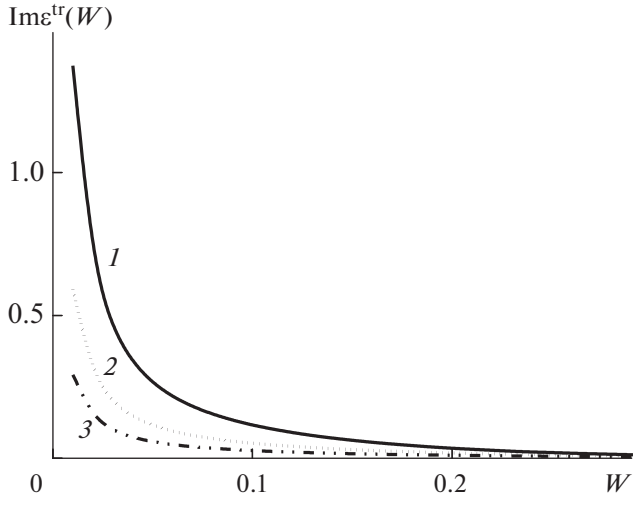

Рис. 3. Зависимость $\mathrm{Im}\varepsilon^{\mathrm{tr}}(Y,W)$ от W при $\Gamma = 0.01$, $\eta = 0.1$, $Y = 0.1$ для $N = 0.1$ (*1*), 0.2 (*2*) и 0.3 (*3*).

$$\mathrm{Im}\varepsilon^{\mathrm{tr}}(Y,W) = \frac{2\Gamma\eta^{2/3}}{\sqrt{\pi}YW^2}\left(1+\frac{Y^2}{2}\right)\times$$
$$\times\left[\exp\left(-\left(\frac{W}{2Y}-\frac{Y}{2}\right)^2\right)-\exp\left(-\left(\frac{W}{2Y}+\frac{Y}{2}\right)^2\right)\right].$$

На рис. 1–3 представлены графики для действительной и мнимой частей ПОДП в соответствии с (8).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Полученные результаты могут быть использованы для описания имеющихся экспериментов по статической и оптической проводимости плазменных систем, а также при расчетах спектральной плотности энергии равновесного излучения [7, 29]. При наличии плазмы спектральная плотность полностью определяется видом ПОДП.

Авторы благодарны Ю.А. Грибову за полезные обсуждения и замечания. Данная работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН № 075-15-2020-785 от 23 сентября 2020 г.).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Силин В.П., Рухадзе А.А.* Электромагнитные свойства плазмы и плазмоподобных сред. М.: Госатомиздат, 1961. 244 с.
2. *Климонтович Ю.Л., Силин В.П.* О спектрах систем взаимодействующих частиц и коллективных потерях при прохождении заряженных частиц через вещество // УФН. 1960. Т. 70. № 2. С. 247.
3. *Александров А.Ф., Богданкевич Л.С., Рухадзе А.А.* Основы электродинамики плазмы. М.: Высшая школа, 1978. 407 с.
4. *Крефт В.-Д., Кремп Д., Эбелинг В., Репке Г.* Квантовая статистика систем заряженных частиц. Пер. с англ. М.: Мир, 1988. 408 с.
5. *Киржниц Д.А.* Общие свойства электромагнитных функций отклика // УФН. 1987. Т. 152. № 7. С. 399.
6. *Bobrov V.B.* To the Theory of the Linear Magnetic Permeability of a Medium // Physica A. 1992. V. 187. № 3–4. P. 603.
7. *Бобров В.Б., Соколов И.М., Тригер С.А.* О спектральном распределении энергии равновесного излучения в веществе // Письма в ЖЭТФ. 2015. Т. 101. № 5. С. 326.
8. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. 620 с.
9. *Коваленко Н.П., Красный Ю.П., Тригер С.А.* Статистическая теория жидких металлов. М.: Наука, 1990. 204 с.
10. *Горобченко В.Д., Максимов Е.Г.* Диэлектрическая проницаемость взаимодействующего электронного газа // УФН. 1980. Т. 130. № 1. С. 65.
11. *Ichimaru S.* Strongly Coupled Plasmas: High Density Classical Plasmas and Degenerate Electron Liquids // Rev. Mod. Phys. 1982. V. 54. P. 1017.
12. *Бобров В.Б., Тригер С.А.* Соотношения Крамерса–Кронига для диэлектрической проницаемости,

"истинный" радиус экранирования и критическая точка кулоновской системы // ТВТ. 2011. Т. 49. № 4. С. 513.

13. *Латышев А.В., Юшканов А.А.* Продольная диэлектрическая проницаемость квантовой вырожденной плазмы с постоянной частотой столкновений // ТВТ. 2014. Т. 52. № 1. С. 136.
14. *Lindhard J.* On the Properties of a Gas of Charged Particles // Kongelige Danske Videnskabernes Selskab, Matematisk–Fysiske Meddelelser. 1954. V. 28. № 8. P. 1.
15. *Кузьменков Л.С., Максимов С.Г.* О функциях распределения в квантовой механике и функциях Вигнера // ТМФ. 2002. Т. 131. № 2. С. 231.
16. *Dressel M., Grüner G.* Electrodynamics of Solids. Optical Properties of Electrons in Matter. Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2003. 487 p.
17. *Латышев А.В., Юшканов А.А.* Поперечная электрическая проводимость в квантовой столкновительной плазме // Физика плазмы. 2012. Т. 38. № 11. С. 977.
18. *Пайнс Д.* Элементарные возбуждения в твердых телах. Пер. с англ. М.: Мир, 1965. 383 с.
19. *Giuliani G., Vignale G.* Quantum Theory of the Electron Liquid. Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2005. 800 p.
20. *Владимиров С.В., Тышецкий Ю.О.* Об описании бесстолкновительной квантовой плазмы // УФН. 2011. Т. 181. № 12. С. 1313.
21. *Бобылев Ю.В., Кузелев М.В.* Диэлектрические проницаемости квантовой плазмы. Часть I // Физика плазмы. 2014. Т. 40. № 5. С. 417.
22. *Bobrov V.B., Trigger S.A.* Quantum Effects in the Transverse Dielectric Permittivity of a Maxwellian Plasma // Theor. Math. Phys. 2017. V. 192. P. 1396.
23. *Bobrov V.B., Maslov S.A., Trigger S.A.* On the Transverse Dielectric Permittivity of the Collisionless Plasmas with Quantum Effects// Phys. Plasmas. 2018. V. 25. P. 072116.
24. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Квантовая механика. Нерелятивистская теория. М.: Наука, 1974. 752 с.
25. *Ахиезер А.И., Пелетминский С.В.* Методы статистической физики. М.: Наука, 1977. 368 с.
26. *Шукла П.К., Элиассон Б.* Нелинейные аспекты квантовой физики плазмы // УФН. 2010. Т. 180. № 1. С. 55.
27. *Zaporozhets Yu., Mintsev V., Gryaznov V., Fortov V., Reinholz H., Raitza T., Röpke G.* Reflectivity of Nonideal Plasmas // J. Phys. A: Math. General. 2006. V. 39. № 17. P. 4329.
28. *Bronin S.Ya., Zelener B.B., Zelener B.V.* Refraction, Absorption, and Reflectivity of Radiation in Strongly Coupled Plasma // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. 2021. V. 268. P. 107621.
29. *Trigger S.A., Maslov S.A.* Primordial Plasma: Influence of Non-ideality on Equilibrium Radiation // Phys. Scripta. 2021. V. 96. P. 015605.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 497–513

УДК 535.015

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО ПОЛЯ В НАНОСЛОЕ ФОТОРЕЗИСТА ПРИ ФОКУСИРОВКЕ ПОВЕРХНОСТНОЙ ПЛАЗМОННОЙ ВОЛНЫ НА НАНОВЕРШИНЕ СКАНИРУЮЩЕГО МЕТАЛЛИЧЕСКОГО МИКРООСТРИЯ

© 2023 г. А. Б. Петрин*

Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

**E-mail: petrin@ihed.ras.ru, a_petrin@mail.ru*

Поступила в редакцию 18.04.2022 г.
После доработки 26.04.2022 г.
Принята к публикации 07.06.2022 г.

Сформулирован и доказан обобщенный метод зеркальных отражений электростатики для точечного заряда, расположенного рядом с плоскослоистой структурой, причем подробно рассмотрен случай точечного заряда, находящегося рядом с одной пленкой. Затем этот метод обобщается на случай произвольной системы зарядов. Подробно показывается, как применить полученный метод для нахождения фокального распределения электрического поля в окрестности нановершины металлического микроострия рядом с плоскослоистой структурой, которое получается при схождении (фокусировке) поверхностной плазмонной волны к нановершине. Обсуждается проникновение сфокусированного поля в пленку фоторезиста, находящуюся на поверхности диэлектрического или металлического полупространства. Демонстрируется общность предложенного теоретического метода на примере решения задачи нахождения температурного поля в окрестности нагретого параболоидального острия, расположенного вблизи теплопроводящей пленки и полупространства.

DOI: 10.31857/S0040364423040129

ВВЕДЕНИЕ

Нанофокусировка световой энергии на вершинах микрострий – важное явление, лежащее в основе перспективных нанотехнологических приложений. Оно состоит в резком возрастании интенсивности поверхностной плазмонно-поляритонной TM (transverse magnetic) волны, симметрично возбуждаемой в основании металлического микроострия, при ее схождении к нановершине [1–3]. Это явление объясняется тем, что на геометрически идеальном металлическом острие может существовать осесимметричная электромагнитная стоячая волна с сингулярностью электрического поля на вершине [4]. Как показывают эксперименты [5, 6], эта стоячая волна может эффективно возбуждаться сходящейся к вершине поверхностной плазмонно-поляритонной TM-волной. Наличие сингулярности электрического поля объясняется в квазистатическом приближении, выполняющемся в окрестности вершины.

Реальная вершина микроострия не идеальна и закруглена. В работах [7, 8] для нахождения распределения электрического поля вблизи закругленной вершины одиночного микроострия его поверхность была аппроксимирована параболоидом вращения. Задача решалась в параболической системе координат. Было доказано, что размер фокального распределения вблизи вершины убывает пропорционально радиусу закругления вершины, что принципиально и объясняет нанофокусировку (при уменьшении радиуса острия до нанометровых размеров размер фокальной области уменьшается в той же пропорции). Оказалось, что симметричное решение квазистатической задачи с максимумом в окрестности вершины острия имеет вид стоячей волны с узлами поля, причем длина стоячей волны уменьшается при приближении рабочей частоты к предельной частоте поверхностных плазмонов. Длина стоячей волны у вершины может быть значительно меньше длины волны в вакууме и длины волны поверхностных плазмонов на плоской поверхности. Применимость квазиэлектростатики в окрестности нановершины объясняется уменьшением фазовой скорости поверхностных плазмонов с уменьшением длины волны, т.е. вблизи нановершины эта сходящаяся поверхностная волна очень медленная по сравнению со скоростью света, а образующаяся стоячая волна представляет собой стационарные в пространстве колебания. Кроме того, применимость квазистатического приближения была строго подтверждена оценками, проведенными на основе уравнений Максвелла [9].

Если нановершина микроострия находится вблизи плоскослоистой структуры, то возника-

ет необходимость детального описания распределения сфокусированного на вершине поля как вблизи вершины острия, так и в плоскослоистой структуре. В задачах излучения и распространения электромагнитных полей в плоскослоистых средах широко используются матричные методы, такие как в [10]. В работах [11–13] предложен оригинальный вариант строгой электромагнитной теории излучения элементарного диполя на границе или внутри плоскослоистой структуры, являющийся развитием работ [14, 15]. В частности, в [11–13] был продемонстрирован метод аналитического упрощения решения, имеющий общетеоретическое значение. Обобщение данного метода для случая произвольного количества пленок в плоскослоистой структуре [16] позволило привести формулы для излучаемых полей к одномерным интегралам, что существенно упростило анализ задачи и ускорило численные расчеты. В данном исследовании методы работ [11–13] и [16] применяются сначала к нахождению трехмерного фундаментального решения электростатики (квазиэлектростатики) в плоскослоистых средах, т.е. к нахождению поля точечного заряда в таких средах. На основе полученных результатов дается обобщение метода зеркальных отражений для точечного заряда, расположенного рядом с плоскослоистой структурой, а затем этот результат обобщается на случай произвольного распределения зарядов вблизи плоскослоистой структуры. Обсуждается применение обобщенного метода зеркальных отражений для формулировки задач нанофокусировки поверхностной плазмонной волны на вершине микроострия, расположенного вблизи наносло фоторезиста.

В последнем разделе показывается общность предложенного теоретического метода на примере решения задачи нахождения температурного поля в окрестности нагретого параболоидального острия, расположенного вблизи теплопроводящей пленки и полупространства.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ. ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ ТОЧЕЧНОГО ЗАРЯДА, РАСПОЛОЖЕННОГО ВНУТРИ ПЛОСКОСЛОИСТОЙ СТРУКТУРЫ

Рассмотрим задачу нахождения электростатического поля точечного заряда, расположенного внутри плоскослоистой структуры. Пусть, для общности, этот заряд расположен внутри плоской слоистой структуры, состоящей из нескольких пленок и окружающих слоистую структуру двух полупространств. Для определенности сначала будем считать, что заряд расположен в одной из пленок, а затем обобщим эту задачу на случай, когда заряд расположен на их границе или в одном из полупространств.

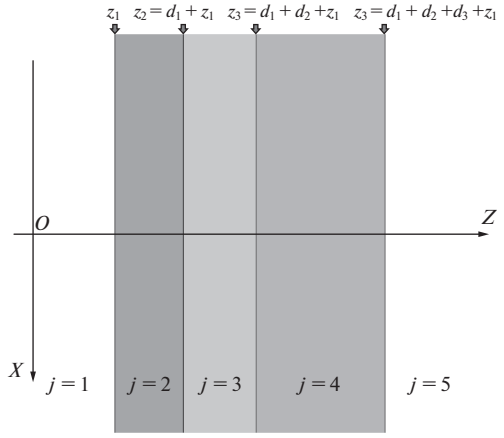

Рис. 1. Геометрия плоскослоистой структуры, состоящей из трех пленок.

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 $j = 1,\ldots,(N+1)$ (на рис. 1 показана задача с $N = 4$ и $N_f = 3$). Предположим, что пленки имеют абсолютные диэлектрические проницаемости ε_j, а вне слоистой структуры находятся однородные полупространства с проницаемостями ε_1 и ε_{N+1}. Обозначим также z_j координаты N границ пленок по оси Z: $z_j = z_1 + \sum_{m=1}^{j-1} d_m$ при $j = 2,\ldots,N$.

Уравнения электростатики (или квазиэлектростатики) в области с номером j можно записать с помощью электрического потенциала φ_j в виде $\Delta\varphi_j = -q/\varepsilon_j$, где Δ – оператор Лапласа, ε_j – абсолютная диэлектрическая проницаемость j-й области. Решая уравнения Лапласа в каждой области с учетом граничных условий, найдем электрическое поле во всех областях. Рассмотрим сначала следующую 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 (рис. 2). Диэлектрическая проницаемость среды в этой пленке равна ε_j. Электрический потенциал можно представить в виде фурье-разложения

$$\varphi_j(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_j(\xi,\eta,z)\, e^{i\xi x + i\eta y} d\xi d\eta. \quad (1)$$

Подставим в уравнение $\Delta\varphi_j = -q/\varepsilon_j$ потенциал (1), тогда в рассматриваемой области

$$d^2\hat{\varphi}_j/dz^2 - \gamma^2\hat{\varphi}_j = 0, \quad (2)$$

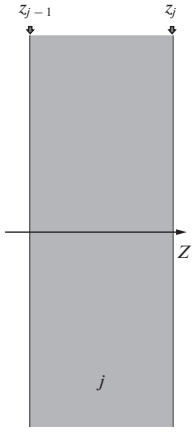

Рис. 2. Пленка с номером j, расположенная между границами z_{j-1} и z_j.

где $\gamma = \sqrt{\xi^2 + \eta^2}$. Уравнения (2) при фиксированных значениях ξ и η есть обыкновенные дифференциальные уравнения относительно переменной z. Задача состоит в нахождении функции $\hat{\varphi}_j$ в рассматриваемой области. Линейно независимые решения уравнений (2) можно записать в виде

$$\varphi_j^{\pm}(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_j^{\pm} e^{\mp\gamma z} e^{i(\xi x+\eta y)} d\xi d\eta.$$

Общее решение уравнений (2) в области $[z_{j-1}, z_j]$

$$\varphi_j(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_j^{+} e^{-\gamma(z-z_{j-1})} e^{i(\xi x+\eta y)} d\xi d\eta + \\ + (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_j^{-} e^{\gamma(z-z_j)} e^{i(\xi x+\eta y)} d\xi d\eta, \quad (3)$$

где $\hat{\varphi}_j^{+}$ и $\hat{\varphi}_j^{-}$ – функции только от ξ и η. Из (3) найдем фурье-образ электрического потенциала и нормальную компоненту индукции поля на границах области j:

$$\left.\begin{pmatrix} \hat{\varphi}_j \\ \hat{D}_{j,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_{j-1}} = \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma d_{j-1}} \\ \varepsilon_j\gamma & -\varepsilon_j\gamma e^{-\gamma d_{j-1}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_j^{+} \\ \hat{\varphi}_j^{-} \end{pmatrix},$$

$$\left.\begin{pmatrix} \hat{\varphi}_j \\ \hat{D}_{j,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_j} = \begin{pmatrix} e^{-\gamma d_{j-1}} & 1 \\ \varepsilon_j\gamma e^{-\gamma d_{j-1}} & -\varepsilon_j\gamma \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_j^{+} \\ \hat{\varphi}_j^{-} \end{pmatrix},$$

где $d_{j-1} = z_j - z_{j-1}$. Вводя вектор-столбец $\hat{\mathcal{F}}_j = \left(\hat{\varphi}_j^{+};\ \hat{\varphi}_j^{-}\right)^{\mathrm{T}}$, запишем полученные выражения в матричном виде

$$\left.\begin{pmatrix} \hat{\varphi}_j \\ \hat{D}_{j,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_{j-1}} = \mathbf{L}_j \times \hat{\mathcal{F}}_j, \quad \left.\begin{pmatrix} \hat{\varphi}_j \\ \hat{D}_{j,z} \end{pmatrix}\right|_{z=z_j} = \mathbf{R}_j \times \hat{\mathcal{F}}_j, \quad (4)$$

где

$$\mathbf{L}_j = \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma d_{j-1}} \\ \varepsilon_j\gamma & -\varepsilon_j\gamma e^{-\gamma d_{j-1}} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{R}_j = \begin{pmatrix} e^{-\gamma d_{j-1}} & 1 \\ \varepsilon_j\gamma e^{-\gamma d_{j-1}} & -\varepsilon_j\gamma \end{pmatrix}. \quad (5)$$

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ В МНОГОСЛОЙНОЙ СТРУКТУРЕ, СВОБОДНОЙ ОТ СТОРОННИХ ЗАРЯДОВ

Рассмотрим многослойную структуру, внутри которой нет сторонних зарядов, с границей $z = z_j$ между областями j и $j+1$. Непрерывность тангенциальных компонент напряженностей электрического поля ($E_{j,x}$, $E_{j+1,x}$ и $E_{j,y}$, $E_{j+1,y}$) и нормальных компонент электрической индукции ($D_{j,z} = -\varepsilon_j\,\partial\varphi_j/\partial z$ и $D_{j+1,z} = -\varepsilon_{j+1}\,\partial\varphi_{j+1}/\partial z$) на этой границе можно записать через соответствующие электрические потенциалы φ_j и φ_{j+1} в виде

$$\varphi_j\big|_{(x,y,z_j)} - \varphi_{j+1}\big|_{(x,y,z_j)} = 0,$$
$$\varepsilon_j \frac{\partial}{\partial z}\varphi_j\bigg|_{(x,y,z_j)} - \varepsilon_{j+1}\frac{\partial}{\partial z}\varphi_{j+1}\bigg|_{(x,y,z_j)} = 0,$$

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, то граничные условия должны выполняться для каждого члена фурье-разложения, т.е. для фурье-образов соответствующих величин:

$$\hat{\varphi}_j\big|_{(\xi,\eta,z_j)} - \hat{\varphi}_{j+1}\big|_{(\xi,\eta,z_j)} = 0,$$
$$\hat{D}_{j,z}\big|_{(\xi,\eta,z_j)} - \hat{D}_{j+1,z}\big|_{(\xi,\eta,z_j)} = 0. \quad (6)$$

Записывая (6) с помощью (4), получим матричное уравнение на границе $z = z_j$:

$$\mathbf{R}_j \times \hat{\mathcal{F}}_j = \mathbf{L}_{j+1} \times \hat{\mathcal{F}}_{j+1}, \quad (7)$$

где $d_{j-1} = z_j - z_{j-1}$, $d_j = z_{j+1} - z_j$, а 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 ($j = N$). Таким образом, общая толщина слоистой структуры $d_{\mathrm{tot}} = \sum_{m=1}^{N-1} d_m$ (сумма толщин пленок, составляющих структуру).

Общее решение для электрического потенциала в области $j = 1$, т.е. в интервале $(-\infty, z_1]$, запишем в виде

$$\varphi_1(x,y,z) = (2\pi)^{-2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\hat{\varphi}_1^{+}e^{-\gamma(z-z_1)}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta + \\ + (2\pi)^{-2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\hat{\varphi}_1^{-}e^{\gamma(z-z_1)}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta. \quad (8)$$

В выражении (8) отлично от нуля только второе слагаемое, так как предполагается наличие источников только справа от границы $z = z_1$. Учитывая, что из (8) следует $\left.\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_1\\ \hat{D}_{1,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_1} = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_1\gamma & -\varepsilon_1\gamma\end{pmatrix}\begin{pmatrix}0\\ \hat{\varphi}_1^{-}\end{pmatrix}$, где $\hat{\mathcal{F}}_1 = \left(0;\ \hat{\varphi}_1^{-}\right)^T$, представим граничные условия при $z = z_1$ в виде

$$\begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_1\gamma & -\varepsilon_1\gamma\end{pmatrix}\times\hat{\mathcal{F}}_1 = \mathbf{L}_2\times\hat{\mathcal{F}}_2. \quad (9)$$

Аналогично общее решение для потенциала в области $j = N+1$, т.е. в интервале $[z_N, +\infty)$, записывается как

$$\varphi_{N+1}(x,y,z) = (2\pi)^{-2}\times \\ \times\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\hat{\varphi}_{N+1}^{+}e^{-\gamma(z-z_N)}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta + \quad (10) \\ + (2\pi)^{-2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\hat{\varphi}_{N+1}^{-}e^{\gamma(z-z_N)}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

В (10) отлично от нуля лишь одно слагаемое, которое предполагает наличие источников только слева от границы $z = z_N$. Тогда, учитывая, что из (10) следует $\left.\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_{N+1}\\ \hat{D}_{N+1,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_N} = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_{N+1}\gamma & -\varepsilon_{N+1}\gamma\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_{N+1}^{+}\\ 0\end{pmatrix}$, запишем граничные условия при $z = z_N$ в виде

$$\mathbf{R}_N\times\hat{\mathcal{F}}_N = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_{N+1}\gamma & -\varepsilon_{N+1}\gamma\end{pmatrix}\times\hat{\mathcal{F}}_{N+1}, \quad (11)$$

где $\hat{\mathcal{F}}_{N+1} = \left(\hat{\varphi}_{N+1}^{+};\ 0\right)^T$. Уравнения (7), (9) и (11) позволяют связать вектор-столбцы электрического потенциала в первой и последней областях задачи (в полупространствах, вне плоскослоистой структуры): $\hat{\mathcal{F}}_1 = \mathbf{M}\times\hat{\mathcal{F}}_{N+1}$, где $\mathbf{M} = \mathbf{T}_1\times\left(\prod_{m=2}^{N}\mathbf{T}_m\right)\times$ $\times\,\mathbf{T}_{N+1}$, $\mathbf{T}_1 = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_1\gamma & -\varepsilon_1\gamma\end{pmatrix}^{-1}$, $\mathbf{T}_m = \mathbf{L}_m\times(\mathbf{R}_m)^{-1}$, $\mathbf{T}_{N+1} = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_{N+1}\gamma & -\varepsilon_{N+1}\gamma\end{pmatrix}$. Если известен, например, потенциал распределения зарядов в пленках структуры, то из уравнения $\hat{\mathcal{F}}_1 = \mathbf{M}\times\hat{\mathcal{F}}_{N+1}$, как системы двух уравнений, можно найти неизвестные – функцию $\hat{\varphi}_1^{-}$ и потенциал в полупространстве $j = 1$ от зарядов в плоскослоистой структуре по формуле (8), а также функцию $\hat{\varphi}_{N+1}^{+}$ вектор-столбца $\hat{\mathcal{F}}_{N+1}$ и потенциал от зарядов в полупространстве $j = N+1$ в плоскослоистой структуре по формуле (10).

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ В МНОГОСЛОЙНОЙ СТРУКТУРЕ ОТ ТОЧЕЧНОГО ЗАРЯДА

Пусть имеется точечный заряд q в точке $(0,\ 0,\ z_q)$ области с номером s (рис. 3), тогда распределение плотности заряда $\rho(x,y,z) = q\delta(x)\delta(y)\delta(z-z_q)$, где $\delta(x)$ – дельта-функция Дирака, а фурье-образ этого распределения

$$\hat{\rho}(\xi,\eta,z) = q\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\delta(x)\delta(y)\delta(z-z_q)e^{-i(\xi x+\eta y)}dxdy = \\ = q\delta(z-z_q).$$

Пусть данный точечный заряд находится в бесконечно тонком слое $(z_q - \Delta z/2, z_q + \Delta z/2)$. Тогда уравнения электростатики $\mathrm{rot}\mathbf{E} = 0$ и $\mathrm{div}\mathbf{D} = \rho$ для фурье-образов полей можно записать (при $\Delta z \to 0$) в следующем виде:

$$i\eta\hat{E}_{s,z} - \frac{\Delta\hat{E}_{s,y}}{\Delta z} = 0,\ \ \frac{\Delta\hat{E}_{s,x}}{\Delta z} - i\xi\hat{E}_{s,z} = 0, \\ i\xi\hat{E}_{s,y} - i\eta\hat{E}_{s,x} = 0; \\ i\xi\hat{D}_{s,x} + i\eta\hat{D}_{s,y} + \frac{\Delta\hat{D}_{s,z}}{\Delta z} = q\delta(z-z_q).$$

Отсюда получим $\Delta\hat{E}_{s,y} = i\eta\hat{E}_{s,z}\Delta z$, $\Delta\hat{E}_{s,x} = i\xi\hat{E}_{s,z}\Delta z$ и $\Delta\hat{D}_{s,z} = -\left(i\xi\hat{D}_{s,x} + i\eta\hat{D}_{s,y}\right)\Delta z + q\delta(z-z_q)\Delta z$.

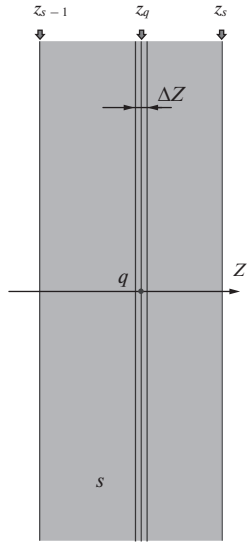

Рис. 3. Точечный заряд q, расположенный в точке $(0,\ 0,\ z_d)$ в области с номером s.

Тогда в пределе $\Delta z \to 0$ скачок тангенциальных компонент напряженностей электрического поля и нормальной компоненты индукции электрического поля при переходе через бесконечно тонкий слой с зарядом $\Delta\hat{E}_{s,y} \xrightarrow[\Delta z\to 0]{} 0$, $\Delta\hat{E}_{s,x} \xrightarrow[\Delta z\to 0]{} 0$, $\Delta\hat{D}_{s,z} \xrightarrow[\Delta z\to 0]{} q$. В матричном виде эти предельные соотношения можно записать в эквивалентном виде через потенциал следующим образом:

$$\left.\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_s\\ \hat{D}_{s,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_q+0} - \left.\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_s\\ \hat{D}_{s,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_q-0} = \begin{pmatrix}0\\ q\end{pmatrix}. \quad (12)$$

Выразим теперь левую часть граничного условия (12) через вектор-столбцы $\hat{\mathcal{F}}_1$ и $\hat{\mathcal{F}}_{N+1}$ полупространств снаружи плоскослоистой структуры. Для этого разобьем область с номером s на две области и обозначим их индексами l и r (левая и правая на рис. 3). Введем вектор-столбцы $\hat{\mathcal{F}}_l$ и $\hat{\mathcal{F}}_r$ в этих областях. Тогда члены слева от знака равенства в (12) можно выразить как

$$\left.\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_s\\ \hat{D}_{s,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_d-0} = \mathbf{R}_l \times \hat{\mathcal{F}}_l, \quad \left.\begin{pmatrix}\hat{\varphi}_s\\ \hat{D}_{s,z}\end{pmatrix}\right|_{z=z_d+0} = \mathbf{L}_r \times \hat{\mathcal{F}}_r. \quad (13)$$

Кроме того, из (7) следует

$$\hat{\mathcal{F}}_1 = \mathbf{Q}_L \times \hat{\mathcal{F}}_l, \quad (14)$$

причем матица $\mathbf{Q}_L$ представляется формулой

$$\mathbf{Q}_L = \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_1\gamma & -\varepsilon_1\gamma\end{pmatrix}^{-1} \times \left[\mathbf{L}_2 \times (\mathbf{R}_2)^{-1}\right] \times \\ \times \ldots \times \left[\mathbf{L}_{s-1} \times (\mathbf{R}_{s-1})^{-1}\right] \times \mathbf{L}_l,$$

где

$$\mathbf{L}_l = \begin{pmatrix}1 & e^{-\gamma(z_q - z_{s-1})}\\ \varepsilon_s\gamma & -\varepsilon_s\gamma e^{-\gamma(z_q - z_{s-1})}\end{pmatrix},$$

$$\hat{\mathcal{F}}_r = \mathbf{Q}_R \times \hat{\mathcal{F}}_{N+1}, \quad (15)$$

$$\mathbf{Q}_R = (\mathbf{R}_r)^{-1} \times \left[\mathbf{L}_{s+1} \times (\mathbf{R}_{s+1})^{-1}\right] \times \\ \times \ldots \times \left[\mathbf{L}_N \times (\mathbf{R}_N)^{-1}\right] \times \begin{pmatrix}1 & 1\\ \varepsilon_{N+1}\gamma & -\varepsilon_{N+1}\gamma\end{pmatrix},$$

$$\mathbf{R}_r = \begin{pmatrix}e^{-\gamma(z_s - z_q)} & 1\\ \varepsilon_s\gamma e^{-\gamma(z_s - z_q)} & -\varepsilon_s\gamma\end{pmatrix}.$$

Подставляя (14) и (15) в (13), затем полученные выражения – в (12), находим

$$\mathbf{H}_R \times \hat{\mathcal{F}}_{N+1} = \mathbf{H}_L \times \hat{\mathcal{F}}_1 + \mathbf{V}, \quad (16)$$

где $\mathbf{V} = (0,\ q)^{\mathrm{T}}$ – вектор-столбец, характеризующий возбуждающее воздействие на плоскослоистую систему точечного заряда, а матрицы $\mathbf{H}_R$ и $\mathbf{H}_L$ характеризуют отклик слоистой структуры на внешнее возбуждение соответственно справа и слева от заряда и выражаются следующим образом: $\mathbf{H}_R = \mathbf{T}_R \times \\ \times \left(\prod_{m=s+1}^{N} \mathbf{T}_m\right) \times \mathbf{T}_{N+1}$, $\mathbf{H}_L = \left(\mathbf{T}_1 \times \left(\prod_{m=2}^{s-1} \mathbf{T}_m\right) \times \mathbf{T}_L\right)^{-1}$, где $\mathbf{T}_m = \mathbf{L}_m \times (\mathbf{R}_m)^{-1}$ при $m \neq s$ и $\mathbf{T}_L = \mathbf{L}_l \times (\mathbf{R}_l)^{-1}$, $\mathbf{T}_R = \mathbf{L}_r \times (\mathbf{R}_r)^{-1}$.

В рассматриваемой задаче источник полей (точечный заряд) находится исключительно внутри плоскослоистой структуры. Поэтому в столбцах $\hat{\mathcal{F}}_1$ и $\hat{\mathcal{F}}_{N+1}$ есть только компоненты, определяющие волны, идущие от плоскослоистой структуры.

Чтобы получить оставшиеся, отличные от нуля, компоненты $\hat{\mathcal{F}}_1$ и $\hat{\mathcal{F}}_{N+1}$, разобьем матрицы $\mathbf{H}_R$ и $\mathbf{H}_L$ соответственно на элементы H_{RA}, H_{RB}, H_{RC}, H_{RD} и H_{LA}, H_{LB}, H_{LC}, H_{LD}. Тогда уравнение (16) примет вид

$$\begin{pmatrix}H_{RA} & H_{RB}\\ H_{RC} & H_{RD}\end{pmatrix} \times \begin{pmatrix}\hat{\varphi}^+_{N+1}\\ 0\end{pmatrix} = \begin{pmatrix}H_{LA} & H_{LB}\\ H_{LC} & H_{LD}\end{pmatrix} \times \begin{pmatrix}0\\ \hat{\varphi}^-_1\end{pmatrix} + \mathbf{V}. \quad (17)$$

Уравнение (17) можно представить следующей системой из двух матричных уравнений $H_{RA}\hat{\varphi}^+_{N+1} = H_{LB}\hat{\varphi}^-_1$, $H_{RC}\hat{\varphi}^+_{N+1} = H_{LD}\hat{\varphi}^-_1 + q$. Эти уравнения можно снова объединить в одно матричное 2×2 уравнение:

$$\begin{pmatrix}-H_{LB} & H_{RA}\\ -H_{LD} & H_{RC}\end{pmatrix} \hat{\mathcal{F}}_{\text{out}} = \begin{pmatrix}0\\ q\end{pmatrix}, \quad (18)$$

где введен вектор-столбец $\hat{\mathcal{F}}_{\text{out}} = \left(\hat{\varphi}^-_1;\ \hat{\varphi}^+_{N+1}\right)^{\mathrm{T}}$. 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

$$\varphi_1(x, y, z) = (2\pi)^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}^-_1 e^{\gamma(z - z_1)} e^{i(\xi x + \eta y)} d\xi d\eta, \quad (19)$$

а убывающее вправо поле в полупространстве $j = N + 1$ – по формуле

$$\varphi_{N+1}(x,y,z) = (2\pi)^{-2} \times \times \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \hat{\varphi}_{N+1}^{+} e^{-\gamma(z-z_N)} e^{i(\xi x+\eta y)} d\xi d\eta. \quad (20)$$

При необходимости, зная $\hat{\mathcal{F}}_1$ и $\hat{\mathcal{F}}_{N+1}$, можно найти вектор-столбцы потенциалов в любой внутренней области $\hat{\mathcal{F}}_j$, так как они однозначно определяются граничными условиями. После этого электрический потенциал в любой из этих областей может быть найден по формуле (3). Таким образом, поля будут определены во всем пространстве.

ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ ПОЛЕ ТОЧЕЧНОГО ЗАРЯДА, РАСПОЛОЖЕННОГО У ГРАНИЦЫ ПЛЕНКИ

Рассмотрим теперь задачу нахождения электрического потенциала от точечного заряда q, расположенного в среде с диэлектрической проницаемостью ε_f на некотором расстоянии от пленки с ε_p, нанесенной на полупространство с ε_d (рис. 4). В системе координат рис. 4 заряд находится в точке с радиус-вектором $\mathbf{r}_q = (0, 0, z_q)$ на расстоянии $z_b - z_q$ вдоль оси Z от пленки толщиной h. Можно рассмотреть задачу нахождения электрического потенциала от точечного заряда, расположенного на поверхности вспомогательной пленки толщины $z_b - z_q$, причем диэлектрические постоянные этой пленки и полупространства слева равны ε_f.

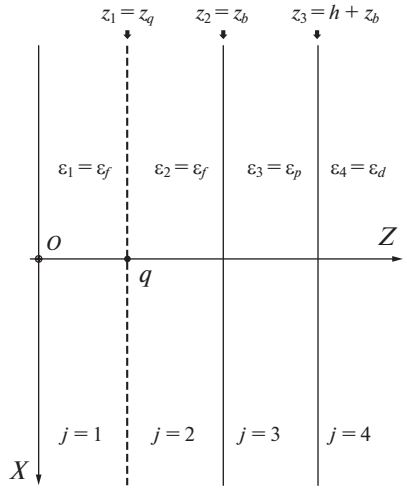

Рис. 4. Точечный заряд q в свободном пространстве с диэлектрической проницаемостью ε_f в точке с координатой z_q на расстоянии $z_b - z_q$ от пленки толщиной h и диэлектрической проницаемостью ε_p, расположенной на границе полупространства с диэлектрической проницаемостью ε_d.

Таким образом, имеется четыре области задачи. Индекс $j = 1$ соответствует полупространству с ε_f, $j = 2$ – вспомогательной пленке с $\varepsilon_2 = \varepsilon_f$ и толщиной, равной расстоянию от заряда до пленки, т.е. $z_b - z_q$, $j = 3$ – реальной пленке с $\varepsilon_3 = \varepsilon_p$ толщиной h, а $j = 4$ – полупространству с $\varepsilon_4 = \varepsilon_d$ (рис. 4).

Тогда $N = 3$, $z_1 = z_q$, $z_2 = z_b$, $z_3 = h + z_b$, $\mathbf{H}_R = \mathbf{T}_2 \times \mathbf{T}_3 \times \mathbf{T}_4$, $\mathbf{H}_L = (\mathbf{T}_1)^{-1}$ и уравнение (16) примет вид

$$(\mathbf{T}_2 \times \mathbf{T}_3 \times \mathbf{T}_4) \times \hat{\mathcal{F}}_4 = (\mathbf{T}_1)^{-1} \times \hat{\mathcal{F}}_1 + \mathbf{V},$$

где матрицы выражаются следующими формулами

$$\mathbf{T}_1 = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix}^{-1}, \quad \mathbf{T}_2 = \mathbf{L}_2 \times (\mathbf{R}_2)^{-1} =$$

$$= \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma(z_b-z_q)} \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma e^{-\gamma(z_b-z_q)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-\gamma(z_b-z_q)} & 1 \\ \varepsilon_f\gamma e^{-\gamma(z_b-z_q)} & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix}^{-1},$$

$$\mathbf{T}_3 = \mathbf{L}_3 \times (\mathbf{R}_3)^{-1} = \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma h} \\ \varepsilon_p\gamma & -\varepsilon_p\gamma e^{-\gamma h} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-\gamma h} & 1 \\ \varepsilon_p\gamma e^{-\gamma h} & -\varepsilon_p\gamma \end{pmatrix}^{-1},$$

$$\mathbf{T}_4 = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_d\gamma & -\varepsilon_d\gamma \end{pmatrix},$$

а вектор-столбец точечного заряда равен $\mathbf{V} = (0;\ q)^T$. В результате

$$\mathbf{H}_L = (\mathbf{T}_1)^{-1} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix},$$

$$\mathbf{H}_R = \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma(z_b-z_q)} \\ \varepsilon_f\gamma & -\varepsilon_f\gamma e^{-\gamma(z_b-z_q)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-\gamma(z_b-z_q)} & 1 \\ \varepsilon_f\gamma e^{-\gamma(z_b-z_q)} & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix}^{-1} \times$$

$$\times \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma h} \\ \varepsilon_p\gamma & -\varepsilon_p\gamma e^{-\gamma h} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-\gamma h} & 1 \\ \varepsilon_p\gamma e^{-\gamma h} & -\varepsilon_p\gamma \end{pmatrix}^{-1} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_d\gamma & -\varepsilon_d\gamma \end{pmatrix}.$$

Вводя вектор-столбец $\hat{\mathcal{F}}_{\text{out}} = \left(\hat{\varphi}_1^-;\ \hat{\varphi}_4^+\right)^T$, уравнение (18) запишем как

$$\begin{pmatrix} -1 & H_{RA} \\ \varepsilon_f\gamma & H_{RC} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{\varphi}_1^- \\ \hat{\varphi}_4^+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ q \end{pmatrix}. \quad (21)$$

Из (21) следует

$$\hat{\varphi}_1^- = qH_{RA}/(H_{RC} + \varepsilon_f\gamma H_{RA}), \quad \hat{\varphi}_4^+ = q/(H_{RC} + \varepsilon_f\gamma H_{RA}). \quad (22)$$

В явном виде можно выразить H_{RA} и H_{RC} через гиперболические синусы и косинусы, обозначая $z_{bq} = z_b - z_q$:

$$H_{RA} = \mathrm{ch}(\gamma z_{bq})\mathrm{ch}(\gamma h) + \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_f}\mathrm{sh}(\gamma z_{bq})\mathrm{sh}(\gamma h) + \\ + \frac{\varepsilon_d}{\varepsilon_p}\mathrm{ch}(\gamma z_{bq})\mathrm{sh}(\gamma h) + \frac{\varepsilon_d}{\varepsilon_f}\mathrm{sh}(\gamma z_{bq})\mathrm{ch}(\gamma h), \quad (23)$$

$$H_{RC} = \gamma\left[\varepsilon_f\mathrm{sh}(\gamma z_{bq})\mathrm{ch}(\gamma h) + \varepsilon_p\mathrm{ch}(\gamma z_{bq})\mathrm{sh}(\gamma h) + \right. \\ \left. + \frac{\varepsilon_d\varepsilon_f}{\varepsilon_p}\mathrm{sh}(\gamma z_{bq})\mathrm{sh}(\gamma h) + \varepsilon_d\mathrm{ch}(\gamma z_{bq})\mathrm{ch}(\gamma h)\right]. \quad (24)$$

Найдем потенциал φ_1 в полупространстве $j = 1$ при $z \le z_q$. Подставляя (23) и (24) в (22), получим

$$\hat{\varphi}_1^- = qH_{RA}/(H_{RC} + \varepsilon_f\gamma H_{RA}) = \\ = \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f} + \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{-2\gamma(z_b - z_q)}\Re(\gamma, h),$$

где

$$\Re(\gamma, h) = \frac{\varepsilon_f - \varepsilon_p}{\varepsilon_p + \varepsilon_f} + \frac{4\varepsilon_p\varepsilon_f}{(\varepsilon_p + \varepsilon_f)} \times \\ \times \frac{(\varepsilon_p - \varepsilon_d)}{\left[(\varepsilon_p + \varepsilon_f)(\varepsilon_p + \varepsilon_d)e^{2\gamma h} + (\varepsilon_p - \varepsilon_d)(\varepsilon_f - \varepsilon_p)\right]}. \quad (25)$$

Из выражения (19) находим

$$\varphi_1(x, y, z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \times \\ \times \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{\gamma(z - z_q)} + \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}\mathrm{e}^{\gamma(z-(2z_b - z_q))}\Re(\gamma, h)\right) \times \\ \times \mathrm{e}^{i(\xi x + \eta y)}d\xi d\eta.$$

Учитывая, что $\gamma = \sqrt{\xi^2 + \eta^2}$, воспользуемся тождеством

$$\frac{q}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\mathrm{e}^{\gamma|z-a|}}{2\varepsilon_f\gamma}\mathrm{e}^{i(\xi x + \eta y)}d\xi d\eta = \\ = q\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2 + y^2 + (z-a)^2}. \quad (26)$$

Тогда

$$\varphi_1(x, y, z) = \frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2 + y^2 + (z - z_q)^2}} + \frac{\varepsilon_f - \varepsilon_p}{\varepsilon_p + \varepsilon_f} \times \\ \times \frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2 + y^2 + (z - (2z_b - z_q))^2}} + \\ + \frac{q}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{2\varepsilon_p}{\gamma(\varepsilon_p + \varepsilon_f)} \times \right. \\ \left. \times \frac{(\varepsilon_p - \varepsilon_d)\mathrm{e}^{\gamma(z-(2z_b - z_q))}}{\left[(\varepsilon_p + \varepsilon_f)(\varepsilon_p + \varepsilon_d)\mathrm{e}^{2\gamma h} + (\varepsilon_p - \varepsilon_d)(\varepsilon_f - \varepsilon_p)\right]}\right) \times \\ \times \mathrm{e}^{i(\xi x + \eta y)}d\xi d\eta. \quad (27)$$

Переходя в интеграле к полярным координатам в плоскостях (x, y) и (ξ, η) по формулам

$$x = \rho\cos\psi,\ y = \rho\sin\psi,\ \xi = \lambda\cos\vartheta,\ \eta = \lambda\sin\vartheta, \quad (28)$$

получим

$$\varphi_1(\rho, \psi, z) = q\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{\rho^2 + (z - z_q)^2} + \frac{\varepsilon_f - \varepsilon_p}{\varepsilon_p + \varepsilon_f} \times \\ \times q\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{\rho^2 + (z - (2z_b - z_q))^2} + \\ + \frac{q}{(2\pi)^2}\frac{2\varepsilon_p(\varepsilon_p - \varepsilon_d)}{(\varepsilon_p + \varepsilon_f)}\int_0^{+\infty}\left(\int_0^{2\pi}\mathrm{e}^{i\rho\lambda\cos(\psi - \vartheta)}d\vartheta\right) \times \\ \times \left(\frac{\mathrm{e}^{\lambda(z-(2z_b - z_q))}}{\left[(\varepsilon_p + \varepsilon_f)(\varepsilon_p + \varepsilon_d)\mathrm{e}^{2\lambda h} + (\varepsilon_p - \varepsilon_d)(\varepsilon_f - \varepsilon_p)\right]}\right)d\lambda.$$

Используя тождество $\int_0^{2\pi}\mathrm{e}^{i\rho\lambda\cos(\psi - \vartheta)}d\vartheta = 2\pi J_0 \times \\ \times (\rho\lambda)$, находим

$$\varphi_1(\rho, \psi, z) = \frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{\rho^2 + (z - z_q)^2}} + \frac{\varepsilon_f - \varepsilon_p}{\varepsilon_p + \varepsilon_f} \times \\ \times \frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{\rho^2 + (z - (2z_b - z_q))^2}} + \frac{q\varepsilon_p(\varepsilon_p - \varepsilon_d)}{\pi(\varepsilon_p + \varepsilon_f)} \times \\ \times \int_0^{+\infty}\frac{J_0(\rho\lambda)\mathrm{e}^{\lambda(z-(2z_b - z_q))}}{\left[(\varepsilon_p + \varepsilon_f)(\varepsilon_p + \varepsilon_d)\mathrm{e}^{2\lambda h} + (\varepsilon_p - \varepsilon_d)(\varepsilon_f - \varepsilon_p)\right]}d\lambda. \quad (29)$$

Найдем потенциал φ_4 в полупространстве ($j = 4$) при $z \ge h + z_b$. Подставляя (23) и (24) для H_{RA} и H_{RC} в выражение (22) для $\hat{\varphi}_4^+$, получаем

$$\hat{\varphi}_4^+ = \frac{q}{H_{RC} + \varepsilon_f\gamma H_{RA}} = \\ = \frac{2q\varepsilon_p\mathrm{e}^{-\gamma(z_b - z_q)}\mathrm{e}^{\gamma h}}{\gamma\left[(\varepsilon_p + \varepsilon_f)(\varepsilon_p + \varepsilon_d)\mathrm{e}^{2\gamma h} + (\varepsilon_p - \varepsilon_d)(\varepsilon_f - \varepsilon_p)\right]}. \quad (30)$$

Из (20) с учетом (30) находим

$$\varphi_4(x,y,z) = \frac{q}{(2\pi)^2}\times$$
$$\times\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\frac{2\varepsilon_p e^{2\gamma h}}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\gamma h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}\times$$
$$\times\frac{e^{-\gamma(z-z_q)}}{\gamma}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Перейдем к полярным координатам в плоскостях (x,y) и (ξ,η) по формулам (28). Тогда имеем

$$\varphi_4(\rho,\psi,z) =$$
$$=\frac{q}{\pi}\int\limits_0^{+\infty}\frac{\varepsilon_p J_0(\rho\lambda)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\lambda h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}\times$$
$$\times e^{-\lambda(z-(z_q+2h))}d\lambda.$$

Найдем теперь потенциал при $z_b \le z \le (h+z_b)$, т.е. в слое $j=3$. Граничные условия (7) на плоскости $z = z_3 = h + z_b$ можно записать в виде

$$\begin{pmatrix} e^{-\gamma h} & 1 \\ \varepsilon_p\gamma e^{-\gamma h} & -\varepsilon_p\gamma \end{pmatrix}\begin{pmatrix}\hat\varphi_3^+\\ \hat\varphi_3^-\end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \varepsilon_d\gamma & -\varepsilon_d\gamma \end{pmatrix}\begin{pmatrix}\hat\varphi_4^+\\ 0\end{pmatrix}.$$

Тогда, решая это уравнение и используя (30), получаем решение

$$\hat\varphi_3^+ = \frac{\varepsilon_p+\varepsilon_d}{2\varepsilon_p}e^{\gamma h}\hat\varphi_4^+ = \frac{\varepsilon_p+\varepsilon_d}{2\varepsilon_p}\times$$
$$\times\frac{2q\varepsilon_p e^{-\gamma(z_b-z_q-2h)}}{\gamma\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\gamma h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]},$$
$$\hat\varphi_3^- = \frac{\varepsilon_p-\varepsilon_d}{2\varepsilon_p}\hat\varphi_4^+ = \frac{\varepsilon_p-\varepsilon_d}{2\varepsilon_p}\times$$
$$\times\frac{2q\varepsilon_p e^{-\gamma(z_b-z_q-h)}}{\gamma\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\gamma h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}.$$

Полный потенциал поля внутри слоя $j=3$ выражается формулой (3)

$$\varphi_3(x,y,z) = (2\pi)^{-2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\hat\varphi_3^+ e^{-\gamma(z-z_b)}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta +$$
$$+(2\pi)^{-2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\hat\varphi_3^- e^{\gamma(z-(z_b+h))}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Подставляя сюда выражения для $\hat\varphi_3^+$ и $\hat\varphi_3^-$, получим

$$\varphi_3(x,y,z) = \frac{q(\varepsilon_p+\varepsilon_d)}{(2\pi)^2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\frac{e^{-\gamma(z-(z_q+2h))}}{\gamma\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\gamma h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}\times$$
$$\times e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta + \frac{q(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{(2\pi)^2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\frac{e^{\gamma(z-(2z_b-z_q))}}{\gamma\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\gamma h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Перейдем к полярным координатам в плоскостях (x,y) и (ξ,η) по формулам (28) и используем тождество $\int_0^{2\pi} e^{i\rho\lambda\cos(\psi-\vartheta)}d\vartheta = 2\pi J_0(\rho\lambda)$. Тогда

$$\varphi_3(\rho,\psi,z) = \frac{q}{2\pi}\times$$
$$\times\int\limits_0^{+\infty}\frac{J_0(\rho\lambda)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\lambda h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}\times$$
$$\times e^{-\lambda(z-(z_q+2h))}d\lambda + \frac{q}{2\pi}\times$$
$$\times\int\limits_0^{+\infty}\frac{J_0(\rho\lambda)(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\lambda h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}\times$$
$$\times e^{\lambda(z-(2z_b-z_q))}d\lambda.$$

Найдем теперь потенциал при $z_q \le z \le z_b$, т.е. в слое $j=2$. Граничные условия (7) на плоскости $z = z_2 = z_b$ можно записать в виде

$$\begin{pmatrix} e^{-\gamma(z_b-z_q)} & 1 \\ \varepsilon_f\gamma e^{-\gamma(z_b-z_q)} & -\varepsilon_f\gamma \end{pmatrix}\begin{pmatrix}\hat\varphi_2^+\\ \hat\varphi_2^-\end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & e^{-\gamma h} \\ \varepsilon_p\gamma & -\varepsilon_p\gamma e^{-\gamma h} \end{pmatrix}\begin{pmatrix}\hat\varphi_3^+\\ \hat\varphi_3^-\end{pmatrix}.$$

После несложных вычислений получаем

$$\hat\varphi_2^+ = \frac{\varepsilon_f+\varepsilon_p}{2\varepsilon_f}e^{\gamma(z_b-z_q)}\hat\varphi_3^+ + \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_p}{2\varepsilon_f}e^{\gamma(z_b-z_q-h)}\hat\varphi_3^- = \frac{q}{2\gamma\varepsilon_f},$$
$$\hat\varphi_2^- = \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_p}{2\varepsilon_f}\hat\varphi_3^+ + \frac{\varepsilon_f+\varepsilon_p}{2\varepsilon_f}e^{-\gamma h}\hat\varphi_3^- =$$
$$= \Re(\gamma,h)\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{-\gamma(z_b-z_q)},$$

где $\Re(\gamma,h)$ выражается формулой (25). Тогда полный потенциал поля внутри слоя $j=2$ (см. (3))

$$\varphi_2(x,y,z) = (2\pi)^{-2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{-\gamma(z-z_q)}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta +$$
$$+(2\pi)^{-2}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\Re(\gamma,h)\frac{q}{2\gamma\varepsilon_f}e^{\gamma(z-(2z_b-z_q))}e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Подставляя сюда $\Re(\gamma, h)$ и используя тождество (26), получим

$$\varphi_2(x,y,z) = \frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-z_q)^2}} + \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_p}{\varepsilon_p+\varepsilon_f}\times$$
$$\times\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-(2z_b-z_q))^2}} + \frac{q}{(2\pi)^2}\times$$
$$\times\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{2\varepsilon_p}{\gamma(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\times\right. \qquad (31)$$
$$\left.\times\frac{(\varepsilon_p-\varepsilon_d)e^{\gamma(z-(2z_b-z_q))}}{\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\gamma h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}\right)\times$$
$$\times e^{i(\xi x+\eta y)}d\xi d\eta.$$

Заметим, что это то же самое выражение (27), что и для $\varphi_1(x,y,z)$ в полупространстве $j=1$. Первый член (31) представляет собой потенциал точечного заряда q, расположенного в точке $\mathbf{r}_q = (0, 0, z_q)$. Второй член – это потенциал точечного заряда $q(\varepsilon_f-\varepsilon_p)/(\varepsilon_p+\varepsilon_f)$ в среде с диэлектрической проницаемостью ε_f, расположенного зеркально относительно плоскости $z = z_b$ в точке $\mathbf{r}_{\text{ref}} = (0, 0, 2z_b - z_q)$. Третий член – это потенциал заряда, распределенного по плоскости $z = z_b$ с некоторой поверхностной плотностью (ниже, она будет вычислена в явном виде).

Переходя к цилиндрическим координатам (28), так же как при рассмотрении решения в полупространстве $j=1$, получим из (31) формулу для φ_2, аналогичную (29) в цилиндрических координатах:

$$\varphi_2(\rho,\psi,z) = \frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{\rho^2+(z-z_q)^2}} + \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_p}{\varepsilon_p+\varepsilon_f}\times$$
$$\times\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{\rho^2+(z-(2z_b-z_q))^2}} + \frac{q\varepsilon_p\varepsilon_f(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{\pi\varepsilon_f(\varepsilon_p+\varepsilon_f)} \qquad (32)$$
$$\times\int_0^{+\infty}\frac{J_0(\rho\lambda)e^{\lambda(z-(2z_b-z_q))}}{\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\lambda h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}d\lambda.$$

Для нахождения φ_{ind} – потенциала индуцированных в рассматриваемой плоскослоистой структуре зарядов – надо в области $z < z_b$ вычесть из полного потенциала потенциал исходного заряда. Тогда, обозначая $z_{\text{ref}} = 2z_b - z_q$, получим из (31) и (32) выражения в декартовой и цилиндрической системах координат

$$\varphi_{\text{ind}}(x,y,z) = \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_p}{\varepsilon_p+\varepsilon_f}\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-z_{\text{ref}})^2}} + \frac{q\varepsilon_p(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{2\pi^2(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\times$$
$$\times\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{e^{\gamma(z-z_{\text{ref}})}e^{i(\xi x+\eta y)}}{\gamma\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\gamma h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}d\xi d\eta, \qquad (33)$$
$$\varphi_{\text{ind}}(\rho,\psi,z) = \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_p}{\varepsilon_p+\varepsilon_f}\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{\rho^2+(z-z_{\text{ref}})^2}} + \frac{q\varepsilon_p(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{\pi(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\times$$
$$\times\int_0^{+\infty}\frac{J_0(\rho\lambda)e^{\lambda(z-z_{\text{ref}})}}{\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\lambda h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}d\lambda.$$

Из (32) сразу видно, что при $h\to+\infty$ интеграл исчезает, отсюда получаем известную формулу для заряда у границы двух полупространств при соответствующей замене символов диэлектрических проницаемостей [17].

ОБОБЩЕНИЕ МЕТОДА ЗЕРКАЛЬНЫХ ОТРАЖЕНИЙ НА СЛУЧАЙ ТОЧЕЧНОГО ЗАРЯДА, РАСПОЛОЖЕННОГО ВБЛИЗИ ПЛОСКОСЛОИСТОЙ СРЕДЫ

Продолжая рассмотрение задачи с одной пленкой, можно найти другую форму записи для потенциала $\varphi_{\text{ind}}(x,y,z)$, индуцированного точечным зарядом q в точке $\mathbf{r}_q = (0, 0, z_q)$. Воспользуемся тождеством (26) и введем функцию

$$U(x,y,z) = q/4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+z^2}, \qquad (34)$$

которая определяет потенциал точечного заряда q, расположенного в начале координат в пространстве с диэлектрической проницаемостью ε_f. Запишем выражение (33) в виде

$$\varphi_{\text{ind}}(x,y,z) = \frac{\varepsilon_f-\varepsilon_p}{\varepsilon_p+\varepsilon_f}\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-z_{\text{ref}})^2}} + \qquad (35)$$
$$+\frac{q}{(2\pi)^2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\chi(\gamma,h)\frac{e^{\gamma(z-z_{\text{ref}})}e^{i(\xi x+\eta y)}}{2\varepsilon_f\gamma}d\xi d\eta,$$

где функция $\chi(\gamma,h)=\Re(\gamma,h)-(\varepsilon_f-\varepsilon_p)/(\varepsilon_p+\varepsilon_f)$ определяется формулой

$$\chi(\gamma,h)=\frac{4\varepsilon_p\varepsilon_f}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\times \times\frac{(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\gamma h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}.$$

Введем также функцию

$$r(u,v)=(2\pi)^{-2}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\chi\left(\sqrt{\xi^2+\eta^2},h\right)e^{i(\xi u+\eta v)}d\xi d\eta. \quad (36)$$

Применяя теорему о свертке ко второму слагаемому в (35), получим

$$\varphi_{\text{ind}}(x,y,z)=\frac{\varepsilon_f-\varepsilon_p}{\varepsilon_p+\varepsilon_f}\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{x^2+y^2+(z-z_{\text{ref}})^2}}+ +\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}r(u,v)U(x-u,y-v,z-z_{\text{ref}})dudv. \quad (37)$$

При вычислении φ_{ind} по (37) можно устранить четырехкратное интегрирование, приводя двойное интегрирование в (36) к однократному с помощью перехода к полярным координатам в плоскостях (u,v) и (ξ,η) по формулам $u=\sigma\cos\psi$, $v=\sigma\sin\psi$ и $\xi=\lambda\cos\vartheta$, $\eta=\lambda\sin\vartheta$ и используя тождество $\int_0^{2\pi}e^{i\sigma\lambda\cos(\psi-\vartheta)}d\vartheta=2\pi J_0(\sigma\lambda)$. В результате получим

$$r(\sigma)=\frac{1}{2\pi}\int_0^{+\infty}J_0(\sigma\lambda)\chi(\lambda,h)\lambda d\lambda=\frac{2\varepsilon_p\varepsilon_f(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{\pi(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\int_0^{+\infty}\frac{\lambda J_0(\sigma\lambda)}{\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\lambda h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}d\lambda,$$

$$r(u,v)=r\left(\sqrt{u^2+v^2}\right)=\frac{2\varepsilon_p\varepsilon_f(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{\pi(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\int_0^{+\infty}\frac{\lambda J_0\left(\lambda\sqrt{u^2+v^2}\right)}{\left[(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)e^{2\lambda h}+(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)\right]}d\lambda. \quad (38)$$

Функция $r(\sigma)$ является плавной, ее можно аппроксимировать сплайнами при численном интегрировании в (37). Формула (37) дает потенциал, индуцированный в слоистой структуре под действием заряда q, расположенного в точке $\mathbf{r}_q=(0,\ 0,\ z_q)$. Тогда, для точечного заряда q в произвольной точке $\mathbf{r}_q=(x_q,\ y_q,\ z_q)$ полный потенциал $\varphi_1=\varphi_2$ в полупространстве $j=1$ и $j=2$, обозначая $z_{\text{ref}}=2z_b-z_q$, можно записать в виде

$$\varphi_1(x,y,z)=\varphi_2(x,y,z)=q\Big/4\pi\varepsilon_f\sqrt{(x-x_q)^2+(y-y_q)^2+(z-z_q)^2}+ +\frac{(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\frac{q}{4\pi\varepsilon_f\sqrt{(x-x_q)^2+(y-y_q)^2+(z-z_{\text{ref}})^2}}+\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}r(u,v)U(x-x_q-u,y-y_q-v,z-z_{\text{ref}})dudv. \quad (39)$$

Полученная формула дает обобщение метода зеркальных отражений в электростатике на случай, когда точечный заряд q расположен в некотором полупространстве рядом с пленкой толщиной h на границе другого полупространства. Выражение (39) имеет простой физический смысл. Первый член в (39) – это потенциал исходного точечного заряда q (источника поля); второй член – потенциал виртуального заряда $q(\varepsilon_f-\varepsilon_p)/(\varepsilon_p+\varepsilon_f)$, расположенного зеркально относительно ближайшей границы пленки $z=z_b$; третий член – потенциал виртуальных зарядов, распределенных по плоскости $z=z_{\text{ref}}$ с плотностью rq и сосредоточенных в поверхностной области размером порядка толщины пленки h. Нетрудно видеть из выражения (38) для $r(u,v)$, что последний член в (39) весьма быстро убывает с ростом толщины пленки (при $h\to\infty$).

Из вывода формулы (39) видно, что для плоскослоистой структуры, состоящей из произвольного числа пленок, можно получить подобную формулу, но с другим распределением поверхностного заряда qr, которое будет зависеть от толщин всех пленок и их диэлектрических проницаемостей, а также от параметров полупространства за плоскослоистой структурой. Следуя предложенным выше рассуждениям, можно численно или аналитически

найти функцию $r(u,v)$ для многопленочной структуры и использовать эту функцию в формуле (39).

Для дальнейших обобщений нетрудно получить формулы вида (39) для потенциала поля точечного заряда q, расположенного в произвольной точке $\mathbf{r}_q = (x_q,\ y_q,\ z_q)$ в области пленки ($j = 3$) и в полупространстве за пленкой ($j = 4$). Приведем результат вычислений, используя функции $r(u,v)$ и $U(x,y,z)$, определенные в (38) и (34):

$$\varphi_3(x,y,z) = \frac{2\varepsilon_f}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\times$$
$$\times U(x-x_q, y-y_q, z-z_q) - \frac{(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{2\varepsilon_p}\times$$
$$\times \int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)U(x-x_q-u, y-y_q-v, z-z_q)\,dudv +$$
$$+ \frac{2\varepsilon_f(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)}\times \qquad (40)$$
$$\times U(x-x_q, y-y_q, z-[2(z_b+h)-z_q]) -$$
$$- \frac{(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{2\varepsilon_p(\varepsilon_p+\varepsilon_d)}\int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)U\times$$
$$\times (x-x_q-u, y-y_q-v, z-[2(z_b+h)-z_q])\,dudv,$$

$$\varphi_4(x,y,z) =$$
$$= \frac{4\varepsilon_f\varepsilon_p U(x-x_q, y-y_q, z-z_q)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)} - \frac{(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_d)}\times \qquad (41)$$
$$\times \int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)U(x-x_q-u, y-y_q-v, z-z_q)\,dudv.$$

ОБОБЩЕНИЕ МЕТОДА ЗЕРКАЛЬНЫХ ОТРАЖЕНИЙ НА СЛУЧАЙ СИСТЕМЫ ЗАРЯДОВ-ИСТОЧНИКОВ

Обобщим теперь полученный метод зеркальных отражений на потенциал полного поля $\Phi_{\text{tot}}(x,y,z)$ в области $z < z_b$ перед пленкой (рис. 5) произвольной компактной системы N_q зарядов-источников q_k, расположенных в точках с радиус-векторами $\mathbf{r}_{q,k} = (x_{q,k},\ y_{q,k},\ z_{q,k})$, где $k = 1,2,\ldots,N_q$. Если бы не было проскослоистой структуры, то потенциал этой системы зарядов-источников представлялся бы формулой

$$\Phi_s(x,y,z) =$$
$$= \sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f\sqrt{(x-x_{q,k})^2+(y-y_{q,k})^2+(z-z_{q,k})^2}.$$

Суммируя выражения (39) для каждого заряда q_k по всем N_q зарядам системы и замечая, что

$$\sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f\sqrt{(x-x_{q,k})^2+(y-y_{q,k})^2+(z-(2z_b-z_{q,k}))^2} =$$
$$= \sum_{k=1}^{N_q} q_k \Big/ 4\pi\varepsilon_f\sqrt{(x-x_{q,k})^2+(y-y_{q,k})^2+((2z_b-z)-z_{q,k})^2} = \Phi_s(x,y,2z_b-z),$$

получим обобщение метода зеркальных отражений в электростатике для произвольных распределений зарядов в виде

$$\Phi_{\text{tot}}(x,y,z) = \Phi_s(x,y,z) +$$
$$+ \frac{(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\Phi_s(x,y,2z_b-z) + \qquad (42)$$
$$+ \int\limits_{-\infty}^{+\infty}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)\Phi_s(x-u, y-v, 2z_b-z)\,dudv.$$

Обобщение метода зеркальных отражений получено ранее в работах [18, 19] несколько другим способом и было успешно применено к задаче о нанофокусировке поверхностной плазмонной волны на вершине металлического острия. При этом поле параболоидального острия снаружи и внутри было разложено по полным системам гармонических функций. Обобщенный метод зеркальных отражений позволяет получить уравнение, определяющее указанные разложения. Решение данной задачи нанофокусировки дает возможность вычислить рас-

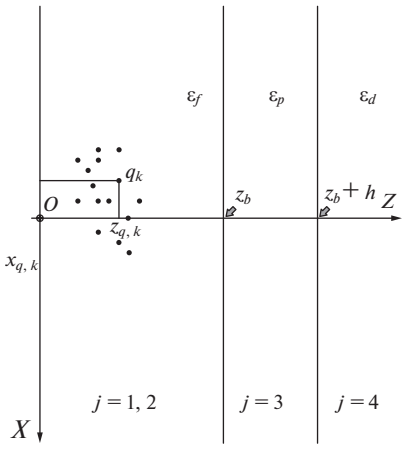

Рис. 5. Система точечных зарядов q_k у пленки, расположенной на границе полупространства.

пределение сфокусированного поля в пленке фоторезиста, что важно для задач нанолитографии.

Из вывода формулы (42) следует, что потенциал индуцированных зарядов Φ_{ind}, который порождается потенциалом Φ_s распределений зарядов-источников поля, может быть представлен как

$$\Phi_{\text{ind}}(x,y,z) = \frac{(\varepsilon_f - \varepsilon_p)}{(\varepsilon_p + \varepsilon_f)}\Phi_s(x,y,2z_b - z) + \\ + \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)\,\Phi_s(x-u,y-v,2z_b - z)\,du dv. \quad (43)$$

Аналогично из (40) и (41) найдем потенциал Φ_3 поля в пленке при $z_b \le z \le (z_b + h)$ ($j = 3$) и потенциал Φ_4 полного поля в полупространстве при $z \ge (z_b + h)$ ($j = 4$):

$$\Phi_3(x,y,z) = \frac{2\varepsilon_f}{(\varepsilon_p + \varepsilon_f)}\Phi_s(x,y,z) - \frac{(\varepsilon_f - \varepsilon_p)}{2\varepsilon_p}\times \\ \times\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)\,\Phi_s(x-u,y-v,z)\,du dv + \\ + \frac{2\varepsilon_f(\varepsilon_p - \varepsilon_d)}{(\varepsilon_p + \varepsilon_f)(\varepsilon_p + \varepsilon_d)}\Phi_s(x,y,2(z_b+h) - z) - \\ - \frac{(\varepsilon_p - \varepsilon_d)(\varepsilon_f - \varepsilon_p)}{2\varepsilon_p(\varepsilon_p + \varepsilon_d)}\times \\ \times\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)\,\Phi_s(x-u,y-v,2(z_b+h) - z)\,du dv, \quad (44)$$

$$\Phi_4(x,y,z) = \frac{4\varepsilon_f\varepsilon_p}{(\varepsilon_p + \varepsilon_f)(\varepsilon_p + \varepsilon_d)}\Phi_s(x,y,z) - \\ - \frac{(\varepsilon_f - \varepsilon_p)}{(\varepsilon_p + \varepsilon_d)}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)\,\Phi_s(x-u,y-v,z)\,du dv. \quad (45)$$

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ НА НАНОВЕРШИНЕ МЕТАЛЛИЧЕСКОГО ОСТРИЯ, РАСПОЛОЖЕННОГО ВБЛИЗИ ПЛОСКОЙ ГРАНИЦЫ ТОНКОПЛЕНОЧНОЙ СТРУКТУРЫ, В КВАЗИСТАТИЧЕСКОМ ПРИБЛИЖЕНИИ

Рассмотрим металлическое острие с наноразмерным радиусом закругления вершины R. Поверхность острия вблизи вершины представляется (осесимметричным относительно оси Z) параболоидом вращения $z = R/2 - \left(x^2 + y^2\right)/2R$ (рис. 6). Пусть вблизи острия находится пленка толщиной h с границами $z = z_b$ и $z = (z_b + h)$, предполагается $z_b \ge R/2$. Комплексные диэлектрические проницаемости металла острия, внешней однородной среды, пленки и полубесконечной среды за пленкой обозначим ε_m, ε_f, ε_p и ε_d соответственно.

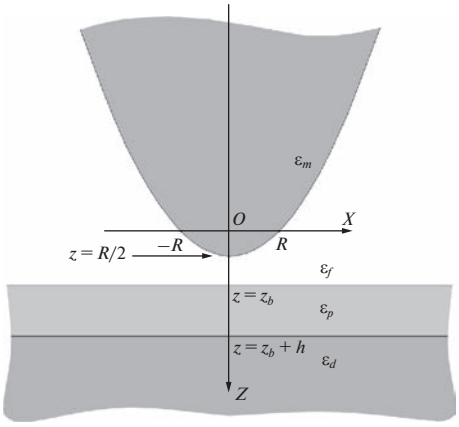

Рис. 6. Вершина металлического параболоидального острия у пленки, расположенной на границе полупространства.

Рассмотрим распределение гармонического электрического поля, которое установится в окрестности нановершины микроострия при схождении симметричной ТМ поверхностной плазмонной волны, которая используется для фокусировки светового поля на нановершине металлического микроострия в важных приложениях [1].

При решении данной задачи будем использовать комплексное представление полей с временной зависимостью $e^{-i\omega t}$, где ω – циклическая частота. Предположим, что характерные геометрические размеры задачи (порядка десяти нанометров) много меньше длины электромагнитной волны в вакууме, соответствующей частоте ω. Можно показать [7–9], что такую задачу вблизи нановершины можно решать в квазиэлектростатической формулировке, при которой комплексный потенциал электрического поля Φ удовлетворяет уравнению Лапласа $\Delta\Phi = 0$, а нормальные и тангенциальные составляющие электрического поля на поверхности острия и на двух плоских границах пленки должны соответствовать известным граничным условиям:

на поверхности острия:

$$\varepsilon_f E_{f,n} = \varepsilon_m E_{m,n} \text{ и } E_{f,\tau} = E_{m,\tau}, \quad (46)$$

на границе пленки $z = z_b$:

$$\varepsilon_p E_{3,n} = \varepsilon_f E_{f,n} \text{ и } E_{3,\tau} = E_{f,\tau}, \quad (47)$$

на границе пленки $z = z_b + h$:

$$\varepsilon_d E_{4,n} = \varepsilon_p E_{3,n} \text{ и } E_{4,\tau} = E_{3,\tau}. \quad (48)$$

Будем искать осесимметричное решение уравнения Лапласа с максимумом поля на вершине острия, соответствующее фокусировке на этой вершине поверхностной симметричной плазмонной ТМ-волны.

Кроме того, для автоматического удовлетворения граничных условий на плоских поверхностях

пленки (47) и (48) будем использовать специальный метод, который изложен ниже. Пусть потенциал зарядов, находящихся на параболоидальном металлическом острие, в пространстве с проницаемостью ε_f описывается функцией $\Phi_s(x,y,z)$, а потенциал индуцированных зарядов на границах пленки (заметим, что из уравнений Максвелла следует, что внутри однородного диэлектрика нет поляризационных зарядов, они могут быть только на границе) в пространстве с проницаемостью ε_f равен $\Phi_{\text{ind}}(x,y,z)$. Тогда полный потенциал Φ_{tot} в области, заполненной диэлектриком с ε_f, равен $\Phi_{\text{tot}}(x,y,z) = \Phi_s(x,y,z) + \Phi_{\text{ind}}(x,y,z)$.

Пусть потенциалы, возбуждаемые зарядами острия в областях с ε_p и ε_d, т.е. в пленке и в полупространстве за пленкой, равны $\Phi_3(x,y,z)$ и $\Phi_4(x,y,z)$ соответственно.

Найдем общий вид потенциала одиночного острия без плоскослоистой структуры рядом, удовлетворяющий уравнению Лапласа в однородном диэлектрическом пространстве снаружи $\Phi_s(x,y,z)$ и внутри $\Phi_m(x,y,z)$ острия, причем на границе острия должны удовлетворяться граничные условия (46). Введем параболические координаты [20] (систему параболических координат вращения) (α,β,ψ), которые связаны с прямоугольными декартовыми координатами (x,y,z) формулами

$$x = c\alpha\beta\cos\psi, \quad y = c\alpha\beta\sin\psi, \quad z = c\left(\beta^2 - \alpha^2\right)/2, \tag{49}$$

где c – масштабный постоянный множитель. В рассматриваемой системе координат с началом в точке O и осью Z (см. рис. 6) уравнение Лапласа для электрического потенциала внутри Φ_m или снаружи Φ_s острия при аксиальной симметрии (Φ_m и Φ_s не зависят от ψ) можно записать следующим образом [20]:

$$\Delta\Phi = \frac{1}{c^2\left(\alpha^2+\beta^2\right)}\times \left(\frac{\partial^2\Phi}{\partial\alpha^2} + \frac{\partial^2\Phi}{\partial\beta^2} + \frac{1}{\alpha}\frac{\partial\Phi}{\partial\alpha} + \frac{1}{\beta}\frac{\partial\Phi}{\partial\beta}\right) = 0. \tag{50}$$

Общее осесимметричное решение (50) известно [20] и определяется выражением

$$\Phi = \sum \left(B_1 J_0(p\alpha) + B_2 Y_0(p\alpha)\right)\times \left(C_1 I_0(p\beta) + C_2 K_0(p\beta)\right), \tag{51}$$

где p, B_1, B_2, C_1, C_2 – константы; J_0, Y_0 – функции Бесселя первого и второго рода нулевого порядка; I_0, K_0 – модифицированные функции Бесселя первого и второго рода нулевого порядка. Суммирование производится по решениям с различными значениями констант.

Пусть граница параболоидального острия определяется уравнением $\beta = \beta_0$. Из (49) следует, что граница острия $\beta = \beta_0$ в декартовых координатах (x,y,z) определяется уравнением $z = c\beta_0^2/2 - \left(x^2+y^2\right)/2c\beta_0^2$. Несложно показать, что радиус кривизны вершины острия равен $R = c\beta_0^2$.

Имея в виду общность дальнейшего изложения, перейдем к безразмерным координатам: $\tilde{x} = x/R$, $\tilde{y} = y/R$, $\tilde{z} = z/R$ и $\tilde{\alpha} = \alpha/\beta_0$, $\tilde{\beta} = \beta/\beta_0$. Безразмерные параболоидальные $(\tilde{\alpha},\tilde{\beta})$ и декартовы координаты на плоскости $(\tilde{x},\tilde{z})$ связаны между собой формулами $\tilde{\alpha} = \sqrt{\sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2+\tilde{z}^2} - \tilde{z}}$ и $\tilde{\beta} = \sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2}\Big/\sqrt{\sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2+\tilde{z}^2} - \tilde{z}}$. В этих координатах граница острия будет определяться функцией $\tilde{z} = 1/2 - \left(\tilde{x}^2+\tilde{y}^2\right)/2$, а уравнение Лапласа (50) в безразмерных координатах будет иметь такой же вид.

Решение уравнения Лапласа – осесимметричный потенциал, являющийся функцией только $\tilde{\alpha}$ и $\tilde{\beta}$. Нормируем потенциал на его значение U в максимуме поля на вершине острия, тогда можно перейти от размерного к безразмерному потенциалу $\tilde{\Phi} = \Phi/U$ и от размерных составляющих полей к их безразмерным величинам.

В осесимметричном случае для выполнения граничных условий на поверхности вращения острия достаточно удовлетворить их на линии пересечения ее 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 граничным условиям только на границе пересечения полуплоскости $\tilde{y} = 0$ при $\tilde{x} \ge 0$ и поверхности рассматриваемого параболоидального острия. В безразмерных координатах это будет кривая $\tilde{z} = 1/2 - \tilde{x}^2/2$, при $\tilde{y} = 0$ и $\tilde{x} \ge 0$. Отметим, что в нормированных декартовых координатах в плоскости $(\tilde{x},\ \tilde{z})$ при $\tilde{y} = 0$ компоненты нормированного электрического поля будут иметь вид $\tilde{E}_{\tilde{x}} = -\partial\tilde{\Phi}/\partial\tilde{x}$, $\tilde{E}_{\tilde{z}} = -\partial\tilde{\Phi}/\partial\tilde{z}$.

Исходя из общего решения (51), будем искать решение граничной задачи для электрического поля в окрестности острия, предполагая, что потенциал снаружи $\tilde{\Phi}_s$ при $\beta \ge \beta_0$ и потенциал внутри металлического острия $\tilde{\Phi}_m$ при $\beta \le \beta_0$ имеют вид

$$\tilde{\Phi}_s = \sum_{j=1}^{N} A_j J_0(\lambda_j\tilde{\alpha})\, K_0(\lambda_j\tilde{\beta}),$$
$$\tilde{\Phi}_m = \sum_{j=1}^{N} B_j J_0(\lambda_j\tilde{\alpha})\, I_0(\lambda_j\tilde{\beta}), \tag{52}$$

где A_j, B_j и λ_j – константы. Значения λ_j можно выбрать в виде $\lambda_j = \mu_j / L$, где μ_j, $j = 1,2,\ldots,N$ – первые N корней уравнения Бесселя $J_0(\mu_j) = 0$, а L – некоторое безразмерное расстояние от вершины, на котором удовлетворяются граничные условия на поверхности острия. В пределе $N \to \infty$ система функций $J_0(\lambda_j \tilde{\alpha})$ с вышеуказанным выбором λ_j на отрезке $0 \le \tilde{\alpha} \le L$ образует полную систему функций [21].

Отметим, что выбор функциональных зависимостей (52) из общего решения (51) обусловлен естественными требованиями к сконцентрированному у вершины полю (которые и выделяют указанные зависимости однозначным образом):

а) снаружи острия потенциал поля должен уменьшаться при удалении от его поверхности, быть конечным и максимальным на вершине острия;

б) внутри металла острия потенциал должен быть конечным в начале координат и, кроме того, непрерывным при переходе через границу.

Тогда потенциал зарядов острия $\tilde{\Phi}_s$ в координатах $(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})$ в среде с ε_f можно представить в виде

$$\begin{gathered}\tilde{\Phi}_s(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum\nolimits_{j=1}^{N} A_j \Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}),\\ \Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = J_0\left(\lambda_j\sqrt{\sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2+\tilde{z}^2}-\tilde{z}}\right)\times\\ \times K_0\left(\lambda_j\sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2}\Big/\sqrt{\sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2+\tilde{z}^2}-\tilde{z}}\right).\end{gathered} \quad (53)$$

Аналогично потенциал индуцированных зарядов в плоскослоистой структуре $\tilde{\Phi}_{\text{ind}}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})$ можно представить, учитывая (43), в виде

$$\tilde{\Phi}_{\text{ind}}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \mathfrak{B}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}),$$

где $$\mathfrak{B}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \frac{(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)}\Im_j(\tilde{x},\tilde{y},2\tilde{z}_b-\tilde{z}) +$$

$$+\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)\,\Im_j(\tilde{x}-u,\tilde{y}-v,2\tilde{z}_b-\tilde{z})\,du dv.$$

Тогда получим потенциал в среде с ε_f в виде

$$\tilde{\Phi}_{\text{tot}}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j\left(\Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) + \mathfrak{B}_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})\right). \quad (54)$$

Аналогично в металле острия в плоскости потенциал можно представить в виде

$$\begin{gathered}\tilde{\Phi}_m(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} B_j J_0\left(\lambda_j\sqrt{\sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2+\tilde{z}^2}-\tilde{z}}\right)\times\\ \times I_0\left(\lambda_j\sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2}\Big/\sqrt{\sqrt{\tilde{x}^2+\tilde{y}^2+\tilde{z}^2}-\tilde{z}}\right).\end{gathered} \quad (55)$$

На границе острия (при $\tilde{y}=0$, $\tilde{z} = 1/2 - \tilde{x}^2/2$) единичные векторы нормали и касательной представляются формулами

$$\mathbf{n} = \mathbf{e}_{\tilde{x}}\left(\tilde{x}\Big/\sqrt{1+\tilde{x}^2}\right) + \mathbf{e}_{\tilde{z}}\left(1\Big/\sqrt{1+\tilde{x}^2}\right);$$
$$\boldsymbol{\tau} = \mathbf{e}_{\tilde{x}}\left(1\Big/\sqrt{1+\tilde{x}^2}\right) + \mathbf{e}_{\tilde{z}}\left(-\tilde{x}\Big/\sqrt{1+\tilde{x}^2}\right).$$

Тогда граничные условия для нормальных и тангенциальных полей на поверхности острия можно записать, используя $\tilde{E}_{\tilde{x}} = -\partial\tilde{\Phi}/\partial\tilde{x}$ и $\tilde{E}_{\tilde{z}} = -\partial\tilde{\Phi}/\partial\tilde{z}$ соответственно:

$$\begin{gathered}-\varepsilon_f\,\partial\tilde{\Phi}_{\text{tot}}/\partial\mathbf{n}\Big|_{\substack{\tilde{y}=0\\ \tilde{z}=1/2-\tilde{x}^2/2}} + \varepsilon_m\,\partial\tilde{\Phi}_m/\partial\mathbf{n}\Big|_{\substack{\tilde{y}=0\\ \tilde{z}=1/2-\tilde{x}^2/2}} = 0,\\ -\partial\tilde{\Phi}_{\text{tot}}/\partial\boldsymbol{\tau}\Big|_{\substack{\tilde{y}=0\\ \tilde{z}=1/2-\tilde{x}^2/2}} + \partial\tilde{\Phi}_m/\partial\boldsymbol{\tau}\Big|_{\substack{\tilde{y}=0\\ \tilde{z}=1/2-\tilde{x}^2/2}} = 0.\end{gathered} \quad (56)$$

Если подставить (54) и (55) в (56), получим линейные уравнения относительно A_j и B_j, которые можно представить в виде

$$\begin{gathered}-\varepsilon_f\sum_{j=1}^{N} a_j(\tilde{x})A_j + \varepsilon_m\sum_{j=1}^{N} b_j(\tilde{x})B_j = 0,\\ -\sum_{j=1}^{N} c_j(\tilde{x})A_j + \sum_{j=1}^{N} d_j(\tilde{x})B_j = 0.\end{gathered} \quad (57)$$

Не будем здесь показывать функции $a_j(\tilde{x})$, $b_j(\tilde{x})$, $c_j(\tilde{x})$ и $d_j(\tilde{x})$ в явном виде, которые получаются при указанной тривиальной подстановке.

В данной работе уравнения (57) решались методом коллокаций [22]. Указанные уравнения записывались в $N-1$ точках кривой $\tilde{z} = 1/2 - \tilde{x}^2/2$ при $\tilde{y}=0$ и $\tilde{x}>0$ на поверхности острия. В результате были получены $2N-2$ линейных алгебраических уравнений с $2N$ неизвестными коэффициентами A_j и B_j. Для определения однозначного решения были добавлены еще два уравнения: приравнены единице потенциалы на вершине острия снаружи $\tilde{\Phi}_{\text{tot}}(0,0,1/2) = 1$ и внутри $\tilde{\Phi}_m(0,0,1/2) = 1$. В результате решения полученной системы $2N$ уравнений находились A_j и B_j, затем по ним определялись распределения потенциала и электрического поля во всем пространстве. При этом получалось нормированное (на единицу на вершине острия) распределение потенциала $\tilde{\Phi}_{\text{tot}}(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})$.

Зная все A_j, можно найти $\tilde{\Phi}_s(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})$. Тогда по формулам (44) и (45) рассчитываются потенциалы как в пленке, так и в свободном полупространстве:

$$\tilde{\Phi}_3(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \left(\frac{2\varepsilon_f}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)} \Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) - \right.$$
$$- \frac{(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{2\varepsilon_p} \Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) +$$
$$+ \frac{2\varepsilon_f(\varepsilon_p-\varepsilon_d)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)} \Im_j(\tilde{x},\tilde{y},2(\tilde{z}_b+\tilde{h})-\tilde{z}) - \quad (58)$$
$$\left. - \frac{(\varepsilon_p-\varepsilon_d)(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{2\varepsilon_p(\varepsilon_p+\varepsilon_d)} \Im_j(\tilde{x},\tilde{y},2(\tilde{z}_b+\tilde{h})-\tilde{z}) \right),$$

$$\tilde{\Phi}_4(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \sum_{j=1}^{N} A_j \left(\frac{4\varepsilon_f\varepsilon_p}{(\varepsilon_p+\varepsilon_f)(\varepsilon_p+\varepsilon_d)} \times \right.$$
$$\left. \times \Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) - \frac{(\varepsilon_f-\varepsilon_p)}{(\varepsilon_p+\varepsilon_d)} \Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) \right), \quad (59)$$

где функция $\Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z})$ определена уравнением (53) и

$$\Im_j(\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}) = \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} r(u,v)\,\Im_j(\tilde{x}-u,\tilde{y}-v,\tilde{z})\,du dv.$$

В итоге формулы (54), (58) и (59) решают задачу нахождения потенциала снаружи острия и во всей слоистой структуре по известным значениям A_j.

Полученные решения для нормированного потенциала обладают важным свойством: они зависят от отношений диэлектрических проницаемостей, т.е. если увеличить все диэлектрические проницаемости в k раз, то распределение потенциала в нормированных координатах не изменится.

ИССЛЕДОВАНИЕ ФОКАЛЬНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПОЛЯ У ВЕРШИНЫ НАНООСТРИЯ, РАСПОЛОЖЕННОГО ВБЛИЗИ ПЛОСКОЙ СЛОИСТОЙ СТРУКТУРЫ

Проведены численные расчеты распределения сфокусированного поля для золотого острия вблизи плоской слоистой структуры. Рассматривалось распределение модуля потенциала электрического поля в окрестности вершины, которое возникает при схождении (вдоль поверхности острия) к вершине плазмонно-поляритонной ТМ-волны. Частота сфокусированного поля соответствует длине волны в вакууме $\lambda_0 = 633$ нм. Диэлектрическая проницаемость золота на этой частоте полагалась $\varepsilon_m = -11.6 + i1.2$ [23]. Параболоидальное острие находилось в вакууме с $\varepsilon_f = 1$ рядом с плоскослоистой структурой, состоящей из пленки толщины $\tilde{h} = 1$ (в нормированных на радиус кривизны острия единицах) с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_p = 2$ и полупространства с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_d = 4$. Границы пленки определялись уравнениями $\tilde{z} = \tilde{z}_2 = \tilde{z}_b = 1$ и $\tilde{z} = \tilde{z}_3 = \tilde{z}_b + \tilde{h} = 2$ (см. рис. 4 и рис. 6). Вершина металлического острия располагалась на расстоянии $\Delta\tilde{z} = 0.5$ от поверхности пленки. Уравнения (57) решались методом коллокаций в отдельных точках границы вблизи вершины острия, как описано выше.

На рис. 7а показано нормированное (на единицу в максимуме на вершине) распределение максимального значения потенциала электрического поля за период колебаний (модуля комплексного потенциала) в плоскости $(\tilde{x},\tilde{z})$ при указанных параметрах. Видно увеличение расстояния между

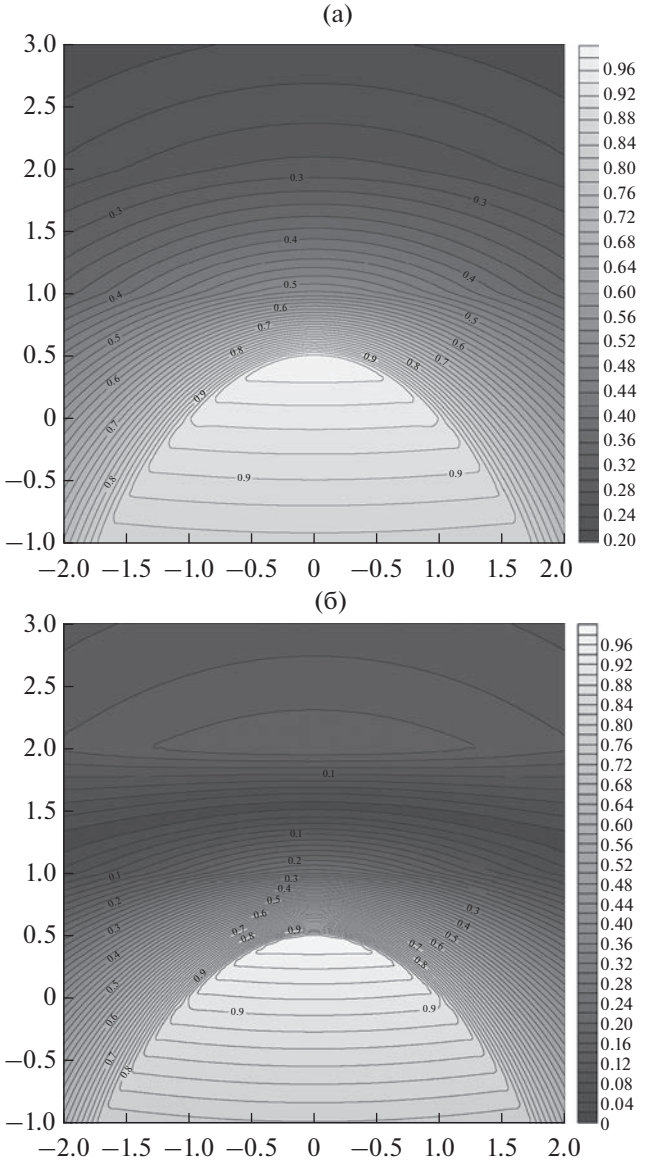

Рис. 7. Распределения модуля комплексного потенциала, сфокусированного на вершине острия поля и нормированного на его максимальное значение на вершине острия (в координатах, нормированных на радиус закругления вершины): (а) – $\varepsilon_m = -11.6 + i1.2$, $\varepsilon_f = 1$, $\varepsilon_p = 2$, $\varepsilon_d = 4$; (б) – $\varepsilon_m = -11.6 + i1.2$, $\varepsilon_f = 1$, $\varepsilon_p = 2$, $\varepsilon_d = \varepsilon_m$.

эквипотенциалями при переходе из свободного пространства в диэлектрическую пленку и далее в диэлектрическое полупространство. Это связано с естественной экранировкой электрического поля в диэлектрике, возникающей за счет индуцированных зарядов. Чем больше диэлектрическая проницаемость, тем сильнее экранировка. Важное свойство полученного распределения поля – его характерный размер приближенно равен размеру острия, т.е. при наноразмерах острия и фокальное пятно на пленке фоторезиста будет наноразмеров. Полученное решение строго доказывает возможность нанолитографии, основанной на полимеризации фоторезиста в фокусе описанного возбужденного металлического острия с наноразмерной точностью.

Возникает вопрос: а можно ли использовать рассмотренную схему для полимеризации фоторезиста, расположенного на поверхности металла? Чтобы ответить на этот вопрос, были проведены расчеты для полупространства за пленкой, заполненного металлом, конкретно золотом с $\varepsilon_d = \varepsilon_m = -11.6 + i1.2$ на рассматриваемой рабочей частоте. На рис. 7б показаны результаты расчетов распределения для такой задачи. Все остальные размеры и диэлектрические проницаемости были теми же (кроме $\varepsilon_d = \varepsilon_m$). Из рис. 7б видно, что сделанные для предыдущей задачи выводы качественно сохраняются. Кроме того, можно сказать, что электромагнитное поле более сконцентрировано в пленке в окрестности острия, чем в предыдущем случае диэлектрической подложки. Полученный результат можно применять в прикладных задачах нанолитографии и использовать технологические слои металла под пленкой фоторезиста для более острой фокусировки поля.

ПРИМЕНЕНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ К ЗАДАЧАМ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ ПЛОСКОСЛОИСТЫХ СРЕД

Известно, что существует аналогия между задачами электростатики и стационарными задачами теплопроводности (см. [24], гл. 12). Аналогичны не только соответствующие уравнения, но и граничные условия [25–28]. 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 можно решить аналогичные задачи тем же методом.

Например, чтобы решить задачу распределения температуры в окрестности вершины параболоидального острия, нагретого до постоянной температуры T_m, можно сначала решить электростатическую задачу распределения потенциала в окрестности острия, при постоянном потенциале U. Для этого надо перейти к нормированным координатам и потенциалам (нормировка потенциала на U), как в уже рассмотренной задаче. Решение в области между острием и пленкой найдем, как и выше, в виде $\tilde{\Phi}_s = \sum_{j=1}^{N} A_j J_0(\lambda_j\tilde{\alpha}) K_0(\lambda_j\tilde{\beta})$. Условия на границе запишем в виде $\tilde{\Phi}_{\text{tot}}\Big|_{\substack{\tilde{y}=0 \\ \tilde{z}=1/2-\tilde{x}^2/2}} = 1$ в N точках коллокации. Получится N линейных алгебраических уравнений с постоянными коэффициентами, из которых находим константы разложения A_j и потенциалы во всем пространстве. Это будет также решением упомянутой аналогичной задачи теплопроводности в нормированных координатах (при указанной замене величин и обозначений). Результат расчетов распределения температуры (точнее превышения температуры над внешней температурой T_0, выраженное в единицах $T_m - T_0$) в задаче о нагретом острие показан на рис. 8.

Полученное нормированное температурное распределение так же, как и в случае распределения нормированных потенциалов, обладает следующим свойством: оно зависит от отношений коэффициентов теплопроводности областей. То есть, если увеличить все коэффициенты в k раз, то нормированное распределение температуры не изменится в нормированных координатах. В частности, на рис. 8 показано температурное распределение при значениях коэффициентов теплопроводности $K_f = 1$, $K_p = 2$, $K_d = 4$.

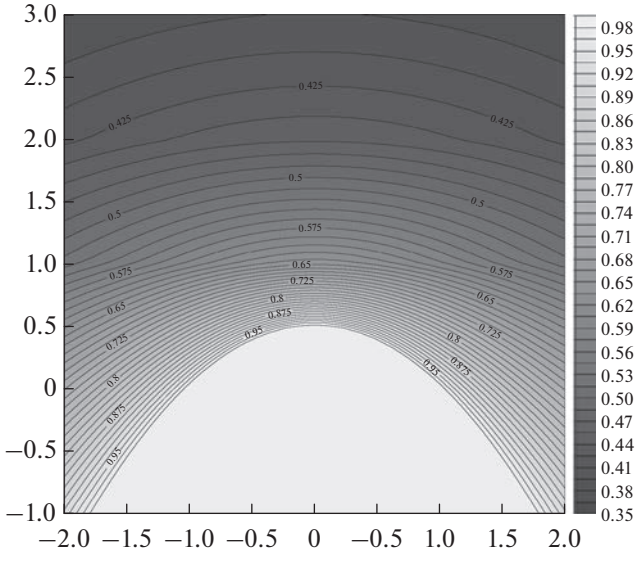

Рис. 8. Распределение превышения температуры над внешней температурой T_0, нормированное на превышение температуры острия $T_m - T_0$ в координатах, нормированных на радиус закругления вершины: коэффициенты теплопроводности $K_f = 1$, $K_p = 2$, $K_d = 4$.

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 конечным коэффициентом теплопроводности $K_f = 1$. Если взять этот коэффициент $K_f = k$ и, кроме того, $K_p = 2k$ и $K_d = 4k$, где k – произвольное число, то распределение нормированной температуры на рис. 8 останется прежним.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложена оригинальная матричная техника нахождения фундаментального решения оператора Лапласа для плоскослоистых сред на примере электростатической задачи. Обобщение метода зеркальных отражений для плоскослоистых сред дано в формулировке, позволяющей использовать преимущество предложенной матричной техники. Главными преимуществами развитого метода являются его логическая простота и возможность обобщения решения на многопленочные структуры и, в пределе, на градиентные пленки. Применение метода для нахождения фокального распределения электрического поля в окрестности нановершины металлического микроострия, расположенного рядом с пленкой фоторезиста, позволяет описывать проникновение поля в пленку и, таким образом, решать практические задачи нанолитографии. Показана общность предложенного теоретического метода на примере решения задачи нахождения температурного поля в окрестности равномерно нагретого острия, расположенного вблизи теплопроводящей пленки и полупространства.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *De Angelis F., Das G., Candeloro P. et al.* Nanoscale Chemical Mapping Using Three-dimensional Adiabatic Compression of Surface Plasmon Polaritons // Nature Nanotech. 2010. V. 5. P. 67.
2. *Frey H.G., Keilmann F., Kriele A., Guckenberger R.* Enhancing the Resolution of Scanning near-field Optical Microscopy by a Metal Tip Grown on an Aperture Probe // Appl. Phys. Lett. 2002. V. 81. P. 5030.
3. *Stockman M.I.* Nanofocusing of Optical Energy in Tapered Plasmonic Waveguides // Phys. Rev. Lett. 2004. V. 93. P. 137404.
4. *Петрин А.Б.* О двух режимах нанофокусировки поверхностной плазмонно-поляритонной волны на вершине металлического микроострия // ТВТ. 2012. Т. 50. № 1. С. 18.
5. *Giugni A., Allione M., Torre B. et al.* Adiabatic Nanofocusing: Spectroscopy, Transport, and Imaging Investigation of the Nano World // J. Opt. 2014. V. 16. P. 114003.
6. *Giugni A., Torre B., Toma A. et al.* Hot-electron Nanoscopy Using Adiabatic Compression of Surface Plasmons // Nature Nanotech. 2013. V. 8. № 11. P. 845.
7. *Петрин А.Б.* Нанофокусировка света на вершине металлического острия // Успехи прикл. физики. 2015. Т. 3. № 3. С. 236.
8. *Петрин А.Б.* О фокусировке поверхностной плазмонной волны на вершине металлического микроострия // Квантовая электроника. 2015. Т. 45. № 7. С. 658.
9. *Петрин А.Б.* О нанофокусировке оптической ТЕ-моды на нановершине металлического микроострия // Прикл. физика. 2016. № 1. С. 11.
10. *Chew W.C.* Waves and Fields in Inhomogeneous Media. N.Y.: IEEE Press, 1995.
11. *Петрин А.Б.* Элементарный излучатель, расположенный на границе или внутри слоистой структуры // Оптика и спектроскопия. 2020. Т. 128. № 11. С. 1676.
12. *Петрин А.Б.* Излучение в дальней зоне элементарного излучателя, расположенного на границе плоскослоистой структуры // Оптика и спектроскопия. 2020. Т. 128. № 12. С. 1874.
13. *Петрин А.Б.* Элементарный излучатель на границе плоскослоистой структуры // ЖЭТФ. 2021. Т. 159. № 1. С. 35.
14. *King R.W.P., Smith G.S.* Antennas in Matter. Cambridge, MA: M.I.T. Press, 1981.
15. *King R.W.P.* The Propagation of Signals Along a Three-layered Region // IEEE Trans. Microwave Theory Tech. 1988. V. 36. № 6. P. 1080.
16. *Петрин А.Б.* О теории плоской линзы из материала с отрицательным преломлением // Оптика и спектроскопия. 2021. Т. 129. № 1. С. 55.
17. *Сивухин Д.В.* Общий курс физики. III. Электричество. М.: Наука, 1977.
18. *Петрин А.Б.* О нанофокусировке света на вершине металлического микроострия, расположенного над плоскослоистой структурой // Успехи прикл. физики. 2016. Т. 4. № 4. С. 326.
19. *Петрин А.Б.* Нанофокусировка света на вершине металлического микроострия, расположенного вблизи многослойной тонкопленочной структуры: теория и возможные приложения // ТВТ. 2019. Т. 57. № 1. С. 20.
20. *Анго А.* Математика для электро- и радиоинженеров. М.: Наука, 1967.
21. *Никифоров А.Ф., Уваров В.Б.* Специальные функции математической физики. М.: Наука; Гл. ред. физ.-мат. лит., 1984.
22. Численные методы теории дифракции (Математика. Новое в зарубежной науке. Вып. 29). Сб. ст. Пер. с англ. М.: Мир, 1982.
23. *Новотный Л., Хехт Б.* Основы нанооптики / Под ред. Самарцева В.В. М.: Физматлит, 2009.
24. *Фейнман Р., Лейтон Р., Сэндс М.* Фейнмановские лекции по физике. Т. 5. Электричество и магнетизм. М.: Мир, 1965.
25. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теоретическая физика. Т. VI. Гидродинамика. М.: Наука, 1986.
26. *Карташов Э.М.* Аналитические методы в теории теплопроводности твердых тел. М.: Высшая школа, 2001.
27. *Петрин А.Б.* О фундаментальном решении задач электростатики и теплопроводности для плоскослоистых сред // ТВТ. 2022. Т. 60. № 5. С. 740.
28. *Петрин А.Б.* О задаче теплопроводности для нестационарного точечного источника тепла в плоскослоистой среде // ТВТ. 2023. Т. 61. № 1. С. 118.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 514–524

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ВЕЩЕСТВ

УДК 536.71

АНАЛИЗ ЛИНИИ ФАЗОВОГО РАВНОВЕСИЯ SF_6 НА ОСНОВЕ МАСШТАБНОЙ ТЕОРИИ И УРАВНЕНИЯ КЛАПЕЙРОНА–КЛАУЗИУСА

© 2023 г. И. В. Кудрявцева[1], С. В. Рыков[2, *], В. А. Рыков[1], Е. Е. Устюжанин[3]

[1]Университет ИТМО, Санкт-Петербург, Россия

[2]Военный институт (инженерно-технический) Военной академии материально-технического обеспечения имени генерала армии А.В. Хрулёва, Санкт-Петербург, Россия

[3]Национальный исследовательский университет "МЭИ", Москва, Россия

*****E-mail: togg1@yandex.ru*

Поступила в редакцию 02.07.2022 г.
После доработки 16.09.2022 г.
Принята к публикации 13.10.2022 г.

Предложена система взаимосогласованных уравнений, описывающая давление p_s, плотность пара ρ^- и плотность жидкости ρ^+ на линии фазового равновесия технически важных веществ в диапазоне от тройной точки и до критической точки. На этапе разработки этой системы учитываются: а) особенности поведения ряда свойств (ρ^-, ρ^+, p_s, d_f – средний диаметр линии насыщения, d_s – параметр порядка) в критической области; б) некоторые положения масштабной теории критических явлений и теории ренормгруппы, которая адаптирована L. Wang и др. (2013) для веществ с заданной молекулярной структурой, включая SF_6; в) уравнение Клапейрона–Клаузиуса, в котором вместо теплоты парообразования r использована "кажущаяся" теплота парообразования, $r^* = r\left(1 - \rho^-/\rho^+\right)^{-1}$. На этапе апробации данной системы уравнений предложена методика вычисления регулируемых коэффициентов, входящих в указанную систему на примере SF_6, для которой имеются прецизионные данные о термических свойствах, в том числе экспериментальные (p_s, ρ^-, ρ^+, T)-данные. С помощью предлагаемой методики определены коэффициенты системы уравнений с использованием прецизионных данных для SF_6 и получены расчетные значения свойств SF_6 в заданном интервале температур. Выполнен статистический анализ неопределенности расчетных данных, в том числе найдены средние квадратические отклонения экспериментальных (p_s, ρ^-, ρ^+, T)-данных от соответствующих уравнений. Показано, что предложенная система описывает перечисленные свойства с меньшей неопределенностью, чем неопределенность соответствующих свойств, отвечающих оригинальным уравнениям M. Funke и др. (2001). Температурная зависимость $d_f(T)$ предложенной модели удовлетворительно согласуется с моделью $d_f(T)$, которая разработана L. Wang и др. (2013) для критической области SF_6.

DOI: 10.31857/S0040364423030158

ВВЕДЕНИЕ

В данной работе рассматривается группа термодинамических свойств индивидуального вещества, в том числе свойств (давление, p_s, плотность пара ρ^-, плотность жидкости ρ^+, средний диаметр d_f, параметр порядка d_s) на линии насыщения в диапазоне от тройной до критической точки. Свойства d_f, d_s определяются уравнениями

$$d_f = \frac{\rho^+ + \rho^-}{2\rho_c} - 1 = \frac{\Delta\rho^+ + \Delta\rho^-}{2}, \qquad (1)$$

$$d_s = \frac{\rho^+ - \rho^-}{2\rho_c} = \frac{\Delta\rho^+ - \Delta\rho^-}{2}, \qquad (2)$$

где $\Delta\rho^+ = (\rho^+ - \rho_c)/\rho_c$, $\Delta\rho^- = (\rho^- - \rho_c)/\rho_c$ – относительные плотности, нижний индекс c – критические величины.

Исследуются температурные зависимости свойств $p_s(T)$, $\rho^-(T)$, $\rho^+(T)$, которые включены в систему взаимосогласованных уравнений. Уделяется внимание зависимостям $d_f(T)$ и $d_s(T)$, что объясняется, во-первых, их связью с уравнениями $\rho^-(T)$ и $\rho^+(T)$. Во-вторых, структура функций

$d_f(T)$ и $d_s(T)$ отвечает требованиям масштабной теории критических явлений (МТ); эти функции рассматриваются в многочисленных работах, включая [1–4]. Так, поведение $d_f(T)$ в асимптотической окрестности T_c $(0 < \tau < 0.001,\ \tau = 1 - T/T_c)$ привлекает пристальное внимание теплофизиков до сих пор. В-третьих, анализ показывает, что численные данные, которые отвечают зависимости $d_f(T)$, разработанной одними авторами, существенно отличаются от соответствующих значений, которые получены по зависимости $d_f(T)$, рекомендованной другими авторами. Это обусловлено следующими факторами.

1. В критической области данные о ρ^- и ρ^+ имеют значительные абсолютные неопределенности Δ_{ρ^-} и Δ_{ρ^+}.

2. Данные неопределенности растут по мере приближения к критической температуре, где сильно развиты флуктуации параметра порядка [3].

3. Неопределенности Δ_{ρ^-}, Δ_{ρ^+} существенно влияют на относительные неопределенности среднего диаметра δd_f и параметра порядка δd_s.

С учетом перечисленных причин представляет интерес оценить неопределенности δd_f, δd_s, которые записываются в виде

$$\delta d_f = \sqrt{\frac{\left(\Delta_{\rho^-}\right)^2 + \left(\Delta_{\rho^+}\right)^2 + \left(\Delta_{\rho_c}\right)^2}{\left(\rho^- + \rho^+ - 2\rho_c\right)^2} + \frac{\left(\Delta_{\rho_c}\right)^2}{\rho_c^2}}, \qquad (3)$$

$$\delta d_s = \sqrt{\frac{\left(\Delta_{\rho^-}\right)^2 + \left(\Delta_{\rho^+}\right)^2}{\left(\rho^+ - \rho^-\right)^2} + \frac{\left(\Delta_{\rho_c}\right)^2}{\rho_c^2}}, \qquad (4)$$

где $\Delta_{\rho_c} = 0.4$ кг/м^3 – абсолютная неопределенность критической плотности ρ_c [5].

При численном анализе неопределенностей (δd_f, δd_s, Δ_{ρ^+}, Δ_{ρ^-}, ...) предусматриваются некоторые условия, в том числе:

а) свойства d_f, d_s вычисляются с помощью (1), (2);

б) в качестве исходной информации, которая необходима для получения оценок (3), (4), выбираются экспериментальные (ρ^-, ρ^+, T)-данные для SF_6 [5];

в) в соответствии с МТ и подходом [3] в асимптотической окрестности T_c зависимости $d_f(T)$ и $d_s(T)$ представляются в виде

$$d_f = D_{2\beta}\tau^{2\beta} + D_{1-\alpha}\tau^{1-\alpha} + D_\tau\tau + o(\tau), \qquad (5)$$

$$d_s = D_1\tau^{\beta} + D_2\tau^{\beta+\Delta} + o(\tau), \qquad (6)$$

где D_1, D_2, $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ – постоянные коэффициенты; α, β, Δ – критические индексы;

г) при $T \to T_c$ выполняются предельные переходы $\delta d_f \to \infty$ и $\delta d_s \to \infty$.

Разработанный в настоящей работе подход предназначен для описания линии фазового равновесия технически важных веществ, в том числе веществ, исследованных в [3–11]. Выбор SF_6 для апробации предложенного подхода обусловлен тем, что для этого вещества имеется массив высокоточных (ρ^-, ρ^+, p_s, T)-данных [5] в диапазоне температур от $T_0 = 224$ до $T_1 = 318.69$ K. Данный температурный интервал включает ближайшие окрестности как тройной точки, так и критической точки SF_6.

Значение $D_{2\beta}$, а также отношения $D_{2\beta}/D_{1-\alpha}$ и $D_{2\beta}/D_\tau$ рассчитаны в [3] на основе теории ренормгруппы (РГ) для ряда веществ, включая и SF_6.

Анализ отобранной информации позволил сформулировать цель данной работы: разработать систему уравнений (СУ), в которую внесены зависимости $p_s(T)$, $\rho^-(T)$, $\rho^+(T)$. Данные уравнения должны отвечать ряду граничных условий, в том числе:

I) в диапазоне $[T_0, T_1]$ расчетные свойства, построенные с помощью СУ, удовлетворительно согласуются с исходными (ρ^-, ρ^+, p_s, T)-данными;

II) уравнения – компоненты СУ – взаимно согласуются между собой по критическим индексам и критическим параметрам;

III) расчетные (d_f, d_s, T)-данные, отвечающие СУ, удовлетворительно согласуются с зависимостями (5), (6) в заданном интервале температур.

Выбраны следующие температурные границы:

а) для $p_s(T)$ значения T_0 и T_1 отвечают равенствам $T_0 = 1.00199T_{tr}$, $T_1 = 0.999937T_c$ (здесь $T_{tr} = 223.555$ K – температура тройной точки SF_6 [5]);

б) для $\rho^-(T)$, $\rho^+(T)$ значения T_0 и T_1 отвечают равенствам $T_0 = 1.00199T_{tr}$, $T_1 = 0.99981T_c$.

МОДЕЛЬ ЛИНИИ НАСЫЩЕНИЯ

При формировании СУ выбираются $p_s(T)$ в форме [6]:

$$p_s = p_c \mathrm{e}^{-\frac{a_0}{t}\tau^2} \times \qquad (7)$$
$$\times \left(1 + a_1\tau + a_2\tau^{2-\alpha} + a_3\tau^{2-\alpha+\Delta} + a_4\tau^3 + a_5\tau^4 + a_6\tau^7\right),$$

где $t = T/T_c$, $\tau = 1 - T/T_c$, $T_c = 318.71$ K, $p_c = 3.754$ МПа, $\alpha = 0.11$, $\Delta = 0.51$.

Уравнение (7) адаптировано для SF_6 и удовлетворяет требованиям МТ. Наряду с этими услови-

ями уравнение (7) в области низких давлений удовлетворяет следующей зависимости [7]:

$$\ln\pi_s = -\frac{a_0}{t},$$

где $\pi_s = p_s/p_c$.

При формировании зависимости $\rho^-(T)$ выполняются следующие этапы.

1. Выбирается форма, которая связана с уравнением Клапейрона–Клаузиуса и имеет форму [8]:

$$\rho^-(T) = \frac{T}{r^*(T)}\frac{dp_s}{dT}, \tag{8}$$

где $r^*(T)$ – "кажущаяся" теплота парообразования [8].

Функция $r^*(T)$ и теплота парообразования r связаны формулой

$$r = r^*(T)\left(1 - \frac{\rho^-}{\rho^+}\right).$$

Исходный вариант скейлинговой части $r^*(T)$ для SF_6 выбирается в виде ряда [8]

$$\begin{aligned} r^*(T) = \frac{p_c}{\rho_c}\big(&-d_0 + d_1\tau^\beta + d_2\tau^{2\beta} + \\ &+ d_3\tau^{1-\alpha} + d_4\tau^{3\beta} + d_5\tau + d_6\tau^{\beta+\Delta}\big), \end{aligned} \tag{9}$$

где $\rho_c = 742.26$ кг/м^3, $\beta = 0.325$, $d_0 = a_1$.

2. На данном этапе в уравнение (8) вносится скейлинговая часть производной dp_s/dT от (7) и включаются компоненты с коэффициентами a_0, a_1, a_2, a_3. Записывается скейлинговая часть $1/r^*(T)$, входящая в (8), как

$$1/r^*(T) = \rho_c/(-a_1p_c)\left[1 + (d_1/a_1)\tau^\beta + (d_2/a_1)\tau^{2\beta} + \ldots\right]$$

при условии $\tau \to 0$. В (8) вносится скейлинговая часть $1/r^*(T)$, и $\rho^-(T)$ представляется в форме

$$\begin{aligned} \rho^-(T) = \rho_c\Bigg(&1 - D_1\tau^\beta - D_2\tau^{\beta+\Delta} + D_{2\beta}\tau^{2\beta} + \\ &+ D_{1-\alpha}\tau^{1-\alpha} + D_{3\beta}\tau^{3\beta} + D_\tau\tau + \sum_{n=7}^{14} D_n^*\tau^{\chi_n} + o\left(\tau^{\chi_{14}}\right)\Bigg), \end{aligned} \tag{10}$$

где D_1, D_2, $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, $D_{3\beta}$, D_τ, (D_n^*, $n = 7$–14) – постоянные коэффициенты, o – символ Ландау.

Записываются коэффициенты D_1, D_2, $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, $D_{3\beta}$, D_τ, входящие в (10), в виде

$$\begin{aligned} D_1 = -\frac{d_1}{a_1},\quad D_2 = -\frac{d_6}{a_1},\\ D_{2\beta} = \frac{d_1^2}{a_1^2} + \frac{d_2}{a_1},\quad D_{1-\alpha} = \frac{d_3}{a_1} + (2-\alpha)\frac{a_2}{a_1}, \end{aligned} \tag{11}$$

$$\begin{aligned} D_\tau = -\left(1 - \frac{d_5}{a_1} + 2\frac{a_0}{a_1}\right),\\ D_{3\beta} = \left(\frac{d_1}{a_1}\right)^3 - 2\frac{d_1}{a_1}\frac{d_2}{a_1} + \frac{d_4}{a_1}. \end{aligned} \tag{12}$$

Постоянные показатели степени χ_n, входящие в (10), находятся как результат перемножения скейлинговой части производной dp_s/dT и скейлинговой части $1/r^*(T)$ при условии $\tau \to 0$. В результате получены следующие значения:

$$\begin{aligned} \chi_7 = 1 + \beta - \alpha,\quad \chi_8 = 4\beta,\quad \chi_9 = 1 + \beta,\\ \chi_{10} = 1 - \alpha + \Delta,\quad \chi_{11} = 1 + 2\beta - \alpha,\quad \chi_{12} = 1 + 2\beta, \end{aligned} \tag{13}$$

$$\chi_{13} = 1 + 3\beta - \alpha,\quad \chi_{14} = 1 + 3\beta. \tag{14}$$

3. На следующем этапе на коэффициент $D_{3\beta}$ (12) накладывается условие

$$d_4 = a_1\left[2\frac{d_1}{a_1}\frac{d_2}{a_1} - \left(\frac{d_1}{a_1}\right)^3\right].$$

В этом случае компонент $D_{3\beta}|\tau|^{3\beta}$ принимает нулевое значение, т.е. тем самым этот компонент исключается из (10) и модель среднего диаметра теперь удовлетворяет (5).

4. На этом этапе $r^*(T)$ представляется в виде конечного ряда

$$\begin{aligned} r^*(T) = \frac{p_c}{\rho_c}\Bigg(&-d_0 + d_1\tau^\beta + d_2\tau^{2\beta} + d_3\tau^{1-\alpha} + \\ &+ d_4\tau^{3\beta} + d_5\tau + d_6\tau^{\beta+\Delta} + \sum_{n=7}^{14} d_n\tau^{\chi_n}\Bigg), \end{aligned} \tag{15}$$

где показатели степени χ_n заданы в виде (13), (14). Включение в $r^*(T)$ в виде (15) компонентов $d_7\tau^{\chi_7}$, $d_8\tau^{\chi_8}$, ..., $d_{14}\tau^{\chi_{14}}$ позволяет существенно повысить точность описания СУ (ρ^-, ρ^+, p_s, d_f, d_s, T)-данных [5] по сравнению с СУ, в которую включена $r^*(T)$ (9).

5. Записывается окончательное выражение для $\rho^-(T)$ (8) с использованием (7), (15):

$$\rho^-(T) = \frac{\rho_c T p_s(T)\, y(T)}{T_c p_c\left(-d_0 + d_1\tau^\beta + d_2\tau^{2\beta} + d_3\tau^{1-\alpha} + d_4\tau^{3\beta} + d_5\tau + d_6\tau^{\beta+\Delta} + \sum_{n=7}^{14} d_n\tau^{\chi_n}\right)}, \tag{16}$$

Таблица 1. Критические параметры моделей линии насыщения SF_6

Модель	T_c, K	p_c, МПа	ρ_c, кг/м^3
[9]	318.7232	3.754983	742.3
[5], уравнение линии упругости	318.723	3.7550	
[5], уравнение паровой и жидкостной ветвей линии насыщения	318.706		742.26
[10]	318.709		742.255
[6]	318.71	3.754	742.26
[12]	318.7095		741.61
Данная работа, (7), (8), (16)	318.71	3.754	742.26

где

$$y(T)=\frac{a_0\tau^2}{t^2}+\frac{2a_0\tau}{t}-\frac{a_1+(2-\alpha)a_2\tau^{1-\alpha}+(2-\alpha+\Delta)a_3\tau^{1-\alpha+\Delta}+3a_4\tau^2+4a_5\tau^3+7a_6\tau^6}{1+a_1\tau+a_2\tau^{2-\alpha}+a_3\tau^{2-\alpha+\Delta}+a_4\tau^3+a_5\tau^4+a_6\tau^7}.$$

Анализ показывает, что регулируемые коэффициенты D_1, D_2, $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ, (D_n^*, n = 7–14) можно вычислять на основе аппроксимации экспериментальных данных ρ^-, T [5].

При формировании $\rho^+(T)$ учитывается уравнение (10) таким образом, чтобы новые зависимости $d_f(T)$ и $d_s(T)$, опирающиеся на $\rho^+(T)$ и $\rho^-(T)$ (8), согласовывались с (5), (6) в асимптотической окрестности критической точки. В итоге $\rho^+(T)$, согласно (10), записывается в форме

$$\rho^+(T)=\rho_c\left(1+D_1\tau^{\beta}+D_2\tau^{\beta+\Delta}+D_3\tau^{2\beta}+D_4\tau^{1-\alpha}+D_5\tau^{3\beta}+D_6\tau+\sum_{n=7}^{14}D_n\tau^{\chi_n}\right), \quad (17)$$

где D_1, D_2, $D_3=D_{2\beta}$, $D_4=D_{1-\alpha}$, $D_5=D_{3\beta}=0$, $D_6=D_\tau$ – коэффициенты, совпадающие с аналогичными коэффициентами (10)–(12); D_n, n = 7–14 – коэффициенты, которые вычисляются на основе аппроксимации экспериментальных (ρ^+, T)-данных [5].

Значения T_c, p_c, ρ_c для SF_6 представлены в большом числе работ (табл. 1) и имеют существенный разброс между собой. При этом в ряде работ значение T_c, которое используется в функциях $\rho^+(T)$ и $\rho^-(T)$, существенно расходится со значением T_c, которое применяется в функции $p_s(T)$. Например, в [5] в функциях $\rho^+(T)$, $\rho^-(T)$ использовано значение T_c = 318.723 K, а в функции $p_s(T)$ применено значение T_c = 318.706 K. В рамках предлагаемого подхода значения T_c, p_c, ρ_c в (7), (16), (17) должны иметь одни и те же значения. В результате для T_c, p_c, ρ_c использовались значения, рекомендованные в работе [6] и приведенные в табл. 1.

В [3] на основе РГ предложена модель d_f (5), которая ориентирована на вещества с заданной молекулярной структурой и имеет следующие коэффициенты применительно к SF_6:

$$D_{2\beta}=0.064,\quad D_{2\beta}/D_{1-\alpha}=-0.21,\quad D_{2\beta}/D_\tau=0.14. \quad (18)$$

В модели (5) [3] приняты критические индексы в виде β = 0.326 и δ = 4.8. Применительно к СУ выбраны значения β = 0.325, α = 0.11, Δ = 0.51, которые соответствуют рекомендациям МТ и являются близкими к упомянутым значениям [3]. Коэффициенты и параметры уравнений (7), (16), (17) находятся на основе экспериментальных данных [5] путем поиска минимума функционалов F_x, который записывается в виде

$$F_x=\sum_{j=1}^{N}\left[Q_{x,j}\left(x_j^{(e)}-x_j^{(r)}\right)\right]^2, \quad (19)$$

где x – соответствующее свойство (p_s, ρ^-, ρ^+); $Q_{x,j}$ – "вес" j-й экспериментальной $x_j^{(e)}$-точки; $x_j^{(r)}$ – j-я точка, соответствующая точке $x_j^{(e)}$ и рассчитанная по одному из уравнений (7), (16) или (17).

В данной работе рассмотрены два варианта СУ – уравнения (7), (16), (17), которые отличаются между собой значениями $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ. При этом в обоих вариантах используется уравнение (7) с одними и теми же коэффициентами [6], приведенными в табл. 2.

В варианте I вычисляются (d_f, T)-данные, полученные на основе (ρ^-, ρ^+, T)-данных [5]. Значе-

ния $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ определяются совместно с другими коэффициентами СУ с помощью метода наименьших квадратов (МНК), который реализован на основе программы SVD [13]. Данный МНК обеспечивает минимизацию F_{ρ^-}, F_{ρ^+} (19) и среднего квадратического отклонения S_{df}, которое включает локальные отклонения $(d_f^{[5]}, T)$-данных от функции $d_f(\tau)$ (1). Здесь $d_f^{[5]}, T$ получены на основе (ρ^-, ρ^+, T)-данных [5] по формуле (1).

В результате определены следующие значения коэффициентов $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ и их отношения:

$$D_{2\beta} = 0.20423571, \quad D_{1-\alpha} = -1.1799758, \quad D_\tau = 1.66230357, \tag{20}$$

$$\frac{D_{2\beta}}{D_{1-\alpha}} = -0.173084659, \quad \frac{D_{2\beta}}{D_\tau} = 0.122863064. \tag{21}$$

Оптимальные значения остальных коэффициентов в (7), (16), (17) приведены в табл. 3, 4.

Статистические оценки неопределенности в виде отклонений (*S*, *AAD*, *BIAS*, *SDV*, *RMS*) [11], которые относятся к экспериментальным данным [1, 5, 9, 14–24], от результатов расчетов по уравнениям (7), (16), (17) представлены в табл. 5–7. Здесь согласно [11]:

$$S = \sqrt{\sum (\delta r_i)^2 / [N(N-1)]}, \%, \quad AAD = 1/N \sum |\delta r_i|, \%, \quad BIAS = 1/N \sum \delta r_i, \%, \tag{22}$$

$$SDV = \sqrt{\sum (\delta r_i - BIAS)^2 / (N-1)}, \%, \quad RMS = \sqrt{\sum (\delta r_i)^2 / N}, \%, \tag{23}$$

где $\delta r_i = (r_{i,\text{exp}} - r_{i,\text{calc}})/r_{i,\text{exp}} \times 100, \%$; $r_{i,\text{exp}}$, $r_{i,\text{calc}}$ – соответственно значения экспериментальных данных [5] и рассчитанных на основе СУ ($r = p_s$, $r = \rho^-$, $r = \rho^+$); N – число экспериментальных точек.

СУ воспроизводит экспериментальные данные [5] в пределах экспериментальной неопределенности этих данных (рис. 1–3). При этом точность описания экспериментальных (ρ^-, ρ^+, T)-данных [5] с помощью (16), (17) существенно выше, чем точность оригинальных уравнений, предложенных в [5] и описывающих указанные результаты. Например, с помощью уравнений (16), (17) получены следующие отклонения данных [5]: $RMS_{\rho^-} = 0.0589$, $RMS_{\rho^+} = 0.00504$; для уравнений Funke и др. [5] такие же оценки составляют $RMS_{\rho^-} = 0.126$, $RMS_{\rho^+} = 0.00947$.

Таблица 2. Коэффициенты уравнения $p_s(T)$ (7)

i	a_i	i	a_i
0	6.0	4	−8.8487306
1	−7.0611045	5	15.215161
2	22.909936	6	−18.964624
3	−17.714252		

Таблица 3. Коэффициенты d_n уравнения $\rho^-(T)$ (16)

i	d_i	i	d_i
1	10.216797	8	48342.462
2	13.340676	9	21503.014
3	−34.967846	10	−55232.97
4	17.21615	11	−22774.357
5	−6.7988038	12	50246.705
6	254.58897	13	−31555.108
7	−23778.786	14	13027.463

Таблица 4. Коэффициенты (10), (11) и D_n уравнения $\rho^+(T)$ (17)

i	D_i	i	D_i
1	1.446912	8	18430.057
2	36.05512	9	−852.83946
3	0.20423581	10	−20482.532
4	−1.1799759	11	11370.367
5	0	12	−1614.9636
6	1.6623036	13	−2644.6475
7	−5634.2658	14	1394.4598

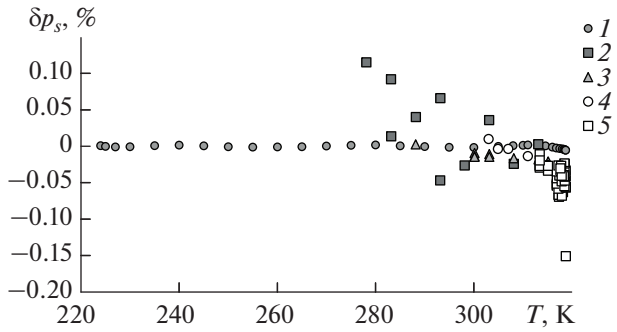

Рис. 1. Относительные отклонения давления насыщения $(p_{s,\text{exp}} - p_{s,\text{calc}})/p_{s,\text{exp}} \times 100, \%$, рассчитанные по (7), от экспериментальных данных: *1* – [5], *2* – [14], *3* – [9], *4* – [16], *5* – [17].

Таблица 5. Отклонения экспериментальных (p_s, T)-данных от результатов по уравнению $p_s(T)$ (7)

Источник	*N*	*S*	*AAD*	*BIAS*	*SDV*	*RMS*
[5]	32	0.000395	0.00163	−0.000846	0.00206	0.0022
[14]	10	0.019	0.0463	0.0267	0.0532	0.0571
[9]	9	0.00508	0.0134	−0.0129	0.00674	0.0144
[15]	23	0.155	0.707	0.707	0.174	0.727
[16]	14	0.0102	0.0321	−0.0307	0.0209	0.0367
[17]	54	0.00646	0.0427	−0.0427	0.0199	0.047
[18]	21	0.0936	0.273	0.0586	0.425	0.419
[19]	10	0.221	0.441	0.441	0.52	0.662
[20]	13	0.808	2.36	2.1	1.92	2.8
[21]	4	1.82	3.15	3.15	0.317	3.16

Таблица 6. Отклонения экспериментальных (ρ^-, T)-данных от результатов по уравнению $\rho^-(T)$ (16)

Источник	*N*	*S*	*AAD*	*BIAS*	*SDV*	*RMS*
[4]	4	0.0432	0.0715	−0.0235	0.082	0.0748
[5]	32	0.0106	0.0167	−0.0113	0.0587	0.0589
[9]	5	0.0149	0.0219	−0.0219	0.0225	0.0297
[16]	6	0.222	0.389	−0.354	0.381	0.496
[1]*	33	0.2	1.05	−1.04	0.459	1.13
[1]**	33	0.0888	0.33	0.166	0.482	0.502
[22]	13	2.08	5.94	−5.48	4.89	7.21
[19]	8	0.753	0.938	0.721	1.99	1.99
[23]	6	1.73	3.79	3.79	0.82	3.86
[20]	12	2.3	6.08	−2.12	7.64	7.61

* T_c = 318.707 K, ρ_c = 733 кг/м^3 [2].
** T_c = 318.71 K, ρ_c = 742.26 кг/м^3 данной работы.

Таблица 7. Отклонения экспериментальных (ρ^+, T)-данных от результатов по уравнению $\rho^+(T)$ (17)

Источник	*N*	*S*	*AAD*	*BIAS*	*SDV*	*RMS*
[4]	4	0.0297	0.0496	−0.0188	0.0554	0.0515
[5]	31	0.000921	0.00353	0.00058	0.00509	0.00504
[9]	13	0.00808	0.0157	0.0148	0.0247	0.028
[16]	8	2.1	2.72	−1.69	5.67	5.56
[1]*	33	0.17	0.962	−0.962	0.0521	0.964
[1]**	33	0.0606	0.338	0.338	0.0585	0.343
[22]	13	0.86	2.24	−2.19	2.1	2.98
[19]	9	0.0339	0.0736	−0.0232	0.0986	0.0958
[24]	16	0.0439	0.134	−0.0529	0.167	0.17
[19]	8	1.13	1.93	−1.93	2.42	2.98
[23]	7	0.729	1.63	−1.63	0.795	1.78
[20]	12	1.14	2.26	−1.83	3.46	3.78

* T_c = 318.707 K, ρ_c = 733 кг/м^3 [2].
** T_c = 318.71 K, ρ_c = 742.26 кг/м^3 данной работы.

В варианте II выбираются следующие значения $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ в соответствии с рекомендациями [3]:

$$D_{2\beta} = 0.06261481,$$
$$\frac{D_{2\beta}}{D_{1-\alpha}} = -0.21383431, \quad \frac{D_{2\beta}}{D_\tau} = 0.14080154. \qquad (24)$$

Такой выбор также позволил на основе (7), (16), (17) описать данные о p_s, ρ^-, ρ^+ [5] в пределах экспериментальной неопределенности этих результатов. Однако в точности описания среднего диаметра вариант II существенно уступает варианту I, что отражается в отклонениях (*S*, *AAD*, *BIAS*, *SDV*, *RMS*), показанных в табл. 8 (вычисления выполнены по (22), (23), где $r = d_f$).

С целью проверки компьютерного кода в табл. 9 приведены p_s, ρ^-, ρ^+, T, рассчитанные по (7), (16), (17).

ПРИКЛАДНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Значения d_f, которые рассчитаны на основе данных о ρ^-, ρ^+ [4], полученные на основе анализа экспериментальной информации [1], в отличие от значений d_f, основанных на данных [2, 3], при $\tau \le 0.00041$ находятся в пределах экспериментальной неопределенности $d_f^{[5]}$ (рис. 4а, символы *8*). Модели d_f на основе (5) с привлечением (18), (20) (линии *3*, *4* на рис. 4) уже при $\tau \ge 0.0013$ выходят за пределы экспериментальной неопределенности $d_f^{[5]}$. В то же время расчеты по модели (5) с привлечением (24) (линия *10* на рис. 4) согласуются с данными $d_f^{[5]}$ до $\tau \le 0.006$.

Вариант зависимости $d_f(T)$, который рассчитан на основе взаимосогласованных уравнений (16), (17) и включает коэффициенты $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ, отвечающие (20) и (21), описывает экспериментальные ($d_f^{[5]}$, T)-данные с высокой точностью (табл. 8, рис. 4, 5, линия *1*).

Из графической информации (рис. 4б, линия *9*) также видно, что второй вариант зависимости $d_f(T)$, который рассчитан на основе уравнений (16), (17) и с коэффициентами $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ из (24), отвечающими (18), согласуется с экспериментальными ($d_f^{[5]}$, T)-данными в пределах неопределенности, которая относится к этим значениям ($d_f^{[5]}$, T). Анализ показывает, что во втором варианте отклонения (*S*, *AAD*, *BIAS*, *SDV*, *RMS*) существенно увеличиваются (табл. 8, рис. 4б) по сравнению с критериями, полученными в первом варианте. Интересно отметить, что во втором варианте коэффициенты $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ (24) практически совпадают со значениями $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ (18), рассчитанными на основе теории РГ [3].

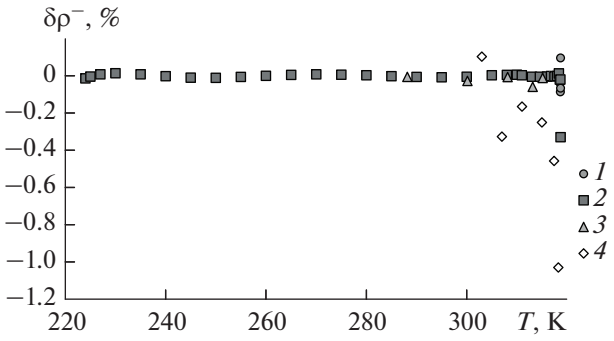

Рис. 2. Относительные отклонения плотности пара на линии насыщения $(\rho^-_{exp} - \rho^-_{calc})/\rho^-_{exp} \times 100$, %, рассчитанные по (16), от экспериментальных данных: *1* – [4], *2* – [5], *3* – [9], *4* – [16].

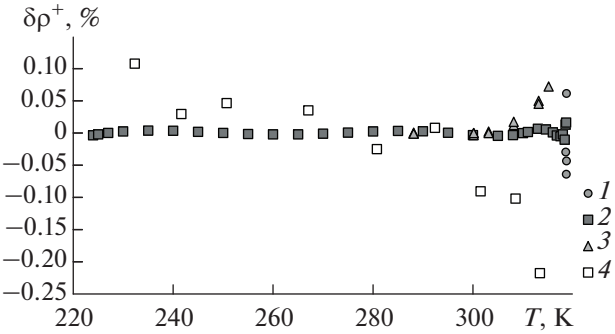

Рис. 3. Относительные отклонения плотности жидкости на линии насыщения $(\rho^+_{exp} - \rho^+_{calc})/\rho^+_{exp} \times 100$, %, рассчитанные по (17), от экспериментальных данных: *1* – [4], *2* – [5], *3* – [9], *4* – [18].

Данные ($d_f^{[2]}$, T), которые получены на основе (5) и моделированием экспериментальных данных [2] (линия *2* на рис. 4), выходят за пределы экспериментальной неопределенности $d_f^{[5]}$ (линии *12*, *13*, рис. 4) уже при значениях $|\tau| \ge 0.0004$.

Данные ($d_f^{[1]}$, T), рассчитанные на основе экспериментальных результатов ρ^-, ρ^+, T [1], выходят за пределы экспериментальной неопределенности $d_f^{[5]}$ в асимптотической окрестности T_c (рис. 4, точки *11*). Результаты [1] использованы в ряде работ, в том числе в [2, 3]. Так, в [2] приведены экспериментальные результаты [1] при $T_c = 318.707$ K, использованные при построении $d_f^{[1]}(T)$ на рис. 4. Также в [2] предложена собственная зависимость $d_f^{[2]}(T)$, показанная на рис. 4 (точки *5*).

Таблица 8. Отклонения экспериментальных $d_f^{[5]}$-данных от $d_{f,\mathrm{calc}}$

Вариант	Источник	N	S, %	AAD, %	BIAS, %	RMS, %
I	[5]	31	0.093	0.22	–0.17	0.51
II	[5]	31	0.66	0.91	0.53	3.6

Таблица 9. Свойства SF_6 на линии фазового равновесия

Свойство	Формула	T, K		
		224	318.65	318.69
$p_s(T)$, МПа	(7)	0.23581247	3.7490167	3.7523375
$\rho^-(T)$, кг/м^3	(16)	19.913225	668.86769	692.25280
$\rho^+(T)$, кг/м^3	(17)	1842.9246	815.94870	792.42228

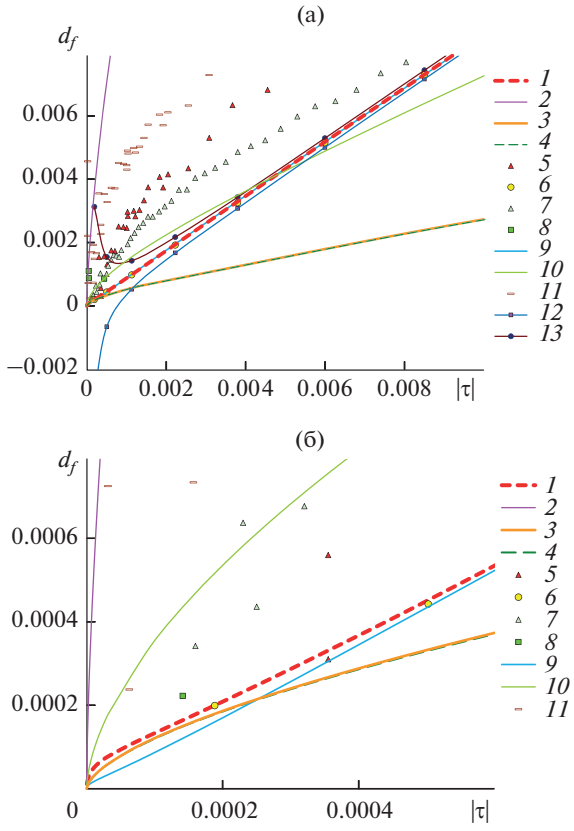

Рис. 4. Модели среднего диаметра $d_f(\tau)$: *1* – рассчитанная по (16), (17) при $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ (20); *2* – (5), $D_{2\beta} = 0.88$, $D_{1-\alpha} = D_{2\beta}/(-0.14)$ и $D_\tau = D_{2\beta}/0.12$ определены в [3] моделированием экспериментальных данных [2]; *3* – (5), $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ (22) определены в [3] методом ренормгруппы; *4* – (5), $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ (20); *5* – на основе экспериментальных данных [2]; *6* – [5]; *7* – расчет в [1] методом РГ; *8* – расчет на основе данных [4]; *9* – (16), (17) при $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ (24), аналогичных (18) [3]; *10* – (5) с коэффициентами (24); *11* – расчет на основе экспериментальных данных [1]; *12*, *13* – границы экспериментальной неопределенности среднего диаметра, рассчитанного на основе экспериментальных данных [5] по (3).

Таким образом, СУ с наименьшей неопределенностью описывает не только (ρ^-, ρ^+, T)-данные [5], но и значения среднего диаметра $d_f^{[5]}$, рассчитанные на основе этих экспериментальных данных.

Система уравнений (7), (16), (17) позволяет рассчитать параметр порядка d_s в пределах экспериментальной относительной неопределенности $E_s = \pm\delta d_s^{[5]} \times 100\%$, где $\delta d_s^{[5]}$ – неопределенность, рассчитанная на основе (5) и данных [5] во всем интервале температур данных [5] (рис. 5). Заметим, что на рис. 5 приведена информация о ε_s и $\varepsilon_d = \delta d_d^{[5]} \times 100\%$, где $\delta d_f^{[5]}$ рассчитана на основе (4) и данных [5] для всех экспериментальных данных ρ^+ и ρ^- [5] за исключением значения $\varepsilon_d = -2.14\%$ при $T = 318.55$ K.

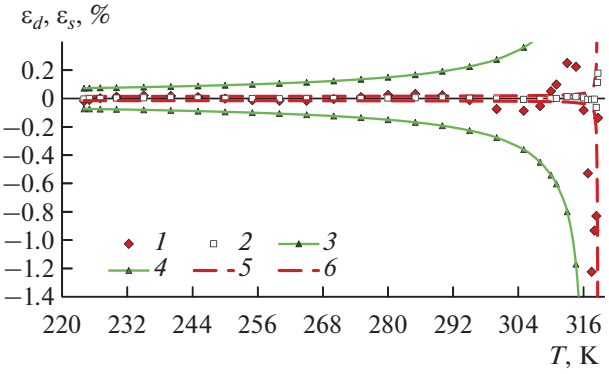

Рис. 5. Зависимости относительных неопределенностей $\varepsilon_d = \left(d_f^{[5]} - d_{f,\mathrm{calc}}\right)/d_f^{[5]} \times 100$, %, и $\varepsilon_s = \left(d_s^{[5]} - d_{s,\mathrm{calc}}\right)/d_s^{[5]} \times 100$, %, от температуры: *1* – ε_d; *2* – ε_s; *3*, *4* – границы $E_d = \pm\delta d_f^{[5]} \times 100$, %, экспериментальной неопределенности данных $d_f^{[5]}$; 5, *6* – границы $E_s = \pm\delta d_s^{[5]} \times 100$, %, $d_s^{[5]}$.

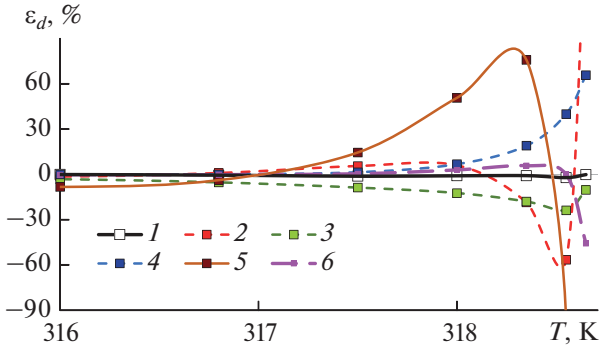

Рис. 6. Относительные отклонения $\varepsilon_d = \left(d_f^{[5]} - d_{f,\text{calc}}\right)/d_f^{[5]} \times 100$, %, значений среднего диаметра $d_f^{[5]}$, рассчитанных на основе экспериментальных данных [5], от среднего диаметра $d_{f,\text{calc}}$, рассчитанного по уравнениям различных работ: *1* – расчет по уравнениям (16), (17) при $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ (20) и (18); *2* – [8]; *3* – [10]; *4* – [4]; *5* – [6]; *6* – [5].

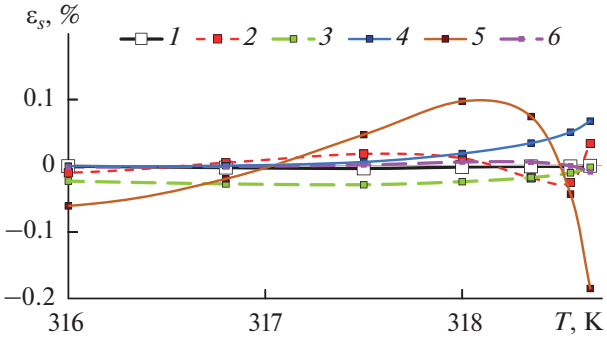

Рис. 7. Относительные отклонения $\varepsilon_s = \left(d_s^{[5]} - d_{s\ \text{calc}}\right)/d_s^{[5]} \times 100$, %, значений параметра порядка $d_s^{[5]}$, рассчитанных на основе экспериментальных данных [5], от параметра порядка $d_{s,\text{calc}}$, рассчитанного по уравнениям других работ: *1* – расчет по уравнениям (16), (17) при $D_{2\beta}$, $D_{1-\alpha}$, D_τ (18); *2* – [8]; *3* – [10]; *4* – [4]; *5* – [6]; *6* – [5].

Анализ показал, что предложенная система уравнений с существенно более высокой точностью описывает экспериментальные данные d_s и d_f [5] по сравнению с моделями линии фазового равновесия [4, 6, 8, 10, 12], в рамках которых имеет место предельный переход $d_f\big|_{\tau\to 0} \to D_{2\beta}\tau^{2\beta}$ (рис. 6, 7).

Авторы [5] предложили для описания своих экспериментальных данных уравнения линии упругости и уравнения паровой и жидкостной линии насыщения. Данные уравнения, в отличие от уравнений (7), (16), (17), не удовлетворяют требованиям РГ [3, 25]. В отличие от модели линии фазового равновесия данной работы, критическая температура принята авторами [5] существенно разной для линии упругости и на линии насыщения (табл. 1). Из рис. 6 следует, что локальные уравнения паровой и жидкостной линий насыщения [5] с большей неопределенностью (достигающей 40%) описывают экспериментальные данные $d_f^{[5]}$, чем уравнения (16), (17). Действительно, в случае (16), (17) (вариант I) максимальное абсолютное отклонение $\max|\varepsilon_f| < 2.1\%$. В табл. 9 представлены статистические характеристики, показывающие точность описания экспериментальных данных [5] различными моделями линии насыщения. По целому ряду статистических характеристик модель линии насыщения (16), (17) превосходит по точности модели [5, 12, 26], в том числе модель линии насыщения, разработанную сотрудниками NIST [27] (табл. 10).

Таблица 10. Статистические характеристики моделей линии насыщения при описании данных [5]

Модель	Свойство	*N*	*S*, %	*AAD*, %	*BIAS*, %	*SDV*, %	*RMS*, %
[5]	ρ^-	32	0.023	0.0387	−0.0101	0.128	0.126
[12]	ρ^-	32	0.016	0.0663	−0.0029	0.093	0.0912
[26]	ρ^-	32	0.0197	0.0692	−0.0187	0.11	0.11
[27]	ρ^-	32	0.0131	0.0217	0.021	0.0708	0.0728
(16), (17)	ρ^-	32	0.0099	0.015	−0.0097	0.055	0.056
[5]	ρ^+	31	0.0017	0.0027	0.0015	0.0095	0.0094
[12]	ρ^+	31	0.0049	0.0162	0.0105	0.0255	0.0272
[26]	ρ^+	31	0.00284	0.0113	−0.0015	0.0157	0.0156
[27]	ρ^+	31	0.0227	0.0343	−0.0338	0.121	0.124
(16), (17)	ρ^+	31	0.0011	0.0033	−0.0004	0.0062	0.0061

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе уравнения (16), которое структурно включает "кажущуюся" теплоту парообразования, получены (ρ^-, T)-данные SF_6, а также разработано выражение (17), описывающее (ρ^+, T)-данные SF_6 в широком интервале температур. Выполненный анализ новых (ρ^-, ρ^+, d_f, T)-данных показывает следующее.

1. Неопределенности $d_f^{[5]}$-данных [5] (рис. 4а, линии *12*, *13*) не позволяют сделать однозначного вывода о знаке среднего диаметра d_f в асимптотической окрестности T_c (рис. 4а, линия *12*).

2. Уравнения (16), (17) успешно использованы для расчета среднего диаметра и параметра порядка в широком интервале температур (рис. 5). В критической области новые расчетные (d_f, T)-данные отвечают условию $d_f > 0$ и удовлетворительно согласуются с величинами, полученными на основе (5), (6) и отвечающими РГ. Все показатели степени компонентов линии насыщения рассчитаны на основе МТ и уравнения Клапейрона–Клаузиуса.

3. Сформирована система, которая содержит взаимосогласованные уравнения (7), (16), (17) и удовлетворяет требованиям МТ.

4. В пределах неопределенности экспериментальных данных СУ позволяет описать (p_s, ρ^-, ρ^+, T)-данные [5] в диапазоне от температуры тройной точки до критической температуры.

Комплекс представленных уравнений (7), (16), (17) в силу его универсальности может быть использован при описании линии фазового равновесия не только SF_6, но и других технически важных веществ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Weiner J., Langley K.H., Ford Jr. N.C.* Experimental Evidence for a Departure from the Law of the Rectilinear Diameter // Phys. Rev. Lett. 1974. V. 32. P. 879.
2. *Pestak M.W., Goldstein R.E., Chan M.H.W., de Bruyn J.R., Balzarini D.A., Ashcroft N.W.* Three-body Interactions, Scaling Variables, and Singular Diameters in the Coexistence Curves of Fluids // Phys. Rev. B. 1987. V. 36. P. 599.
3. *Wang L., Zhao W., Wu L., Li L., Cai J.* Improved Renormalization Group Theory for Critical Asymmetry of Fluids // J. Chem. Phys. 2013. V. 139. 124103.
4. *Воробьев В.С., Устюжанин Е.Е., Очков В.Ф., Шишаков В.В., Тун Аунг Ту Ра, Рыков В.А., Рыков С.В.* Исследование границы фазового перехода для C_6F_6 и SF_6 в условиях микрогравитации // ТВТ. 2020. Т. 58. № 3. С. 355.
5. *Funke M., Kleinrahm R., Wagner W.* Measurement and Correlation of the (p, ρ, T) Relation of Sulphur Hexafluoride (SF_6). II. Saturated-liquid and Saturated-vapour Densities and Vapour Pressures Along the Entire Coexistence Curve // J. Chem. Thermodyn. 2001. V. 34. P. 735.
6. *Kudryavtseva I.V., Rykov V.A., Rykov S.V., Ustyuzhanin E.E.* A Model System of the Liquid Density, the Gas Density and the Pressure on the Saturation Line of SF_6 // J. Phys.: Conf. Ser. 2019. V. 1385. 012010.
7. *Wagner W.* New Vapour Pressure Measurements for Argon and Nitrogen and a New Method for Establishing Rational Vapour Pressure Equations // Cryogenics. 1973. V. 13. P. 470.
8. *Rykov S.V., Kudryavtseva I.V., Rykov V.A., Ustyuzhanin E.E., Ochkov V.F.* Analysis of the Saturation Line on the Basis of Clapeyron–Clausius and Gibbs–Duhem Equations // J. Phys.: Conf. Ser. 2019. V. 1147. 012017.
9. *Gilgen R., Kleinrahm R., Wagner W.* Measurements of the (Pressure, Density, Temperature) Relation of Sulphur Hexafluoride (SF_6) in the Homogeneous Region at Temperatures from 321.15 K to 333.15 K and at Pressures up to 8 MPa and on the Coexistence Curve at Temperatures from 288.15 K to 315.15 K // J. Chem. Thermodyn. 1992. V. 24. P. 953.
10. *Vorob'ev V.S., Rykov V.A., Ustyuzhanin E.E., Shishakov V.V., Popov P.V., Rykov S.V.* Comparison of the Scaling Models for Substance Densities Along Saturation Line // J. Phys.: Conf. Ser. 2016. V. 774. 012017.
11. *Kolobaev V.A., Popov P.V., Kozlov A.D., Rykov S.V., Kudryavtseva I.V., Rykov V.A., Sverdlov A.V., Ustyuzhanin E.E.* Methodology for Constructing the Equation of State and Thermodynamic Tables for a New Generation Refrigerant // Meas. Tech. 2021. V. 64. P. 109.
12. *Vorobev V.S., Ochkov V.F., Rykov V.A., Rykov S.V., Ustyuzhanin E.E., Pokholchenko V.A.* Development of Combined Scaling Models for Liquid and Gas Densities at the Saturation Line: Structures and Numerical Data for SF_6 // J. Phys.: Conf. Ser. 2019. V. 1147. 012016.
13. *Форсайт Дж., Малькольм Н., Моулер К.* Машинные методы математических вычислений. М.: Мир, 1980. 280 с.
14. *Hurly J.J., Defibaugh D.R., Moldover M.R.* Thermodynamic Properties of Sulfur Hexafluoride // Int. J. Thermophys. 2000. V. 21. P. 739.
15. *Berg J., Wagner Z.* Vapour–Liquid Equilibrium in the Sulphur Hexafluoride–*n*-pentane System at High Pressure // Fluid Phase Equilib. 1990. V. 54. P. 35.
16. *Biswas S.N., Ten Seldam C.A.* Determination of the Coexistence Curve of Sulfur Hexafluoride from Isochoric Intercepts // Fluid Phase Equilib. 1989. V. 47. P. 67.
17. *Biswas S.N., Trappeniers N.J., Hoogland J.H.B. PVT* Properties of Sulfur–Hexafluoride in the Gas–Liquid Critical Region // Physica A. 1984. V. 126. P. 384.
18. *Mears W.H., Rosenthal E., Sinka J.V.* Physical Properties and Virial Coefficients of Sulfur Hexafluoride // J. Phys. Chem. 1969. V. 73. P. 2254.
19. *Clegg H.P., Rowlinson J.S., Sutton J.R.* The Physical Properties of Some Fluorine Compounds and Their Solutions // Trans. Faraday Soc. 1955. V. 51. P. 1327.

20. *Miller H.C., Verdelli L.S., Gall J.F.* Some Physical Properties of Sulfur Hexafluoride // Ind. Eng. Chem. 1951. V. 43. P. 1126.
21. *Schumb W.C., Gamble E.L.* The Preparation of Sulfur Hexafluoride and Some of Its Physical Properties // J. Am. Chem. Soc. 1930. V. 52. P. 4302.
22. *Tison J.K., Hunt E.R.* Self-diffusion, Spin-lattice Relaxation, and Density of SF_6 near the Critical Point // J. Chem. Phys. 1971. V. 54. P. 1526.
23. *Atack D., Schneider W.G.* The Coexistence Curve of Sulfur Hexafluoride in the Critical Region // J. Phys. Chem. 1951. V. 55. P. 532.
24. *Otto J., Thomas W.* Thermische Zustandsgrößen von Schwefelhexafluorid // Zeitschrift für Physikalische Chemie. 1960. Bd. 23. S. 84.
25. *Zhou Z., Cai J., Hu Y.* A Self-consistent Renormalisation Group Theory for Critical Asymmetry of One-component Fluids // Molecular Physics. 2022. V. 120. P. e1987541.
26. *Ustyuzhanin E.E., Shishakov V.V., Abdulagatov I.M., Popov P.V., Rykov V.A., Frenkel M.L.* Scaling Models of Thermodynamic Properties on the Coexistence Curve: Problems and Some Solutions // Russ. J. Phys. Chem. B. 2012. V. 6. № 8. P. 912.
27. *Guder C., Wagner W.* A Reference Equation of State for the Thermodynamic Properties of Sulfur Hexafluoride (SF_6) for Temperatures from the Melting Line to 625 K and Pressures up to 150 MPa // J. Phys. Chem. Ref. Data. 2009. V. 38. P. 33.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 525–529

УДК 53.082

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МЕТОДА РЕГУЛЯРНОГО РЕЖИМА ДЛЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ ЖИДКОСТИ[1]

© 2023 г. Ю. В. Шацких[1, *], А. В. Костановский[1, 2], М. Г. Зеодинов[1, 2], В. А. Милютин[1]

[1]Национальный исследовательский университет "МЭИ", Москва, Россия

[2]Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

*E-mail: shatskih_jv@mail.ru

Поступила в редакцию 12.09.2022 г.
После доработки 12.09.2022 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

В статье рассмотрены получившие широкое распространение методы определения теплопроводности наножидкости: метод нагретой нити (проволоки) и 3ω-проводной метод. Предложено использование метода регулярного режима для определения коэффициента теплопроводности. Показаны особенности конструкции измерительного калориметра и методики проведения эксперимента: длительность эксперимента должна быть не менее 800 с при коэффициенте теплоотдачи от термостатирующей жидкости к поверхности калориметра не менее 2000 Вт/(м^2 K). Проведенные исследования на дистиллированной воде показали отклонение от табличных данных на 10–11%. Дальнейшие исследования с применением калориметров других конструкций представляются перспективными.

DOI: 10.31857/S0040364423030201

ВВЕДЕНИЕ

Повышение интенсивности теплообмена является актуальной и важной задачей. Особый интерес представляют методы повышения коэффициента теплоотдачи в системах охлаждения энергетического оборудования. Последние два десятилетия перспективным направлением исследований в этой области является изучение теплообмена с применением наножидкостей. К настоящему времени отечественными и зарубежными авторами выполнен достаточно большой объем исследований [1–3]. Научный поиск ведется в нескольких направлениях: выбор теплопроводного материала и базовой жидкости, исследование влияния концентрации наночастиц и их размера на интенсивность теплообмена. Для повышения теплопроводности наножидкости в качестве теплопроводного материала используются как чистые металлы (Au, Cu, Fe) и их оксиды (CuO, Al_2O_3, TiO_2), так и графит (углеродные нанотрубки, нанографен). В качестве базовой жидкости применяются в основном дистиллированная вода, минеральное масло или этиленгликоль.

Практически все авторы отмечают увеличение теплопроводности наножидкости в среднем до 40% по сравнению с базовой жидкостью при концентрации наночастиц в экспериментах до 3%. С другой стороны, значения теплопроводности конкретной наножидкости заметно различаются в работах исследователей [4–7]. Это связано с тем, что наножидкость является сложным объектом для изучения. Как правило, исследователи перед экспериментом предварительно готовят наножидкость [8]. Однако воспроизвести наножидкость, аналогичную по свойствам той, которую исследовали другие авторы, крайне сложно. Кроме того, методическая база и ее экспериментальная реализация для определения теплопроводности наножидкости строго индивидуальная. В основном это метод нагреваемой нити (проволоки) [9–13] и 3ω-проводной метод [14–16], ориентированные не столько на наножидкость, сколько на свойства материала источника ее нагрева.

В этой связи использование иных методических подходов к определению теплофизических свойств наножидкости становится принципиально необходимым.

В данной работе приведены результаты апробации метода регулярного режима для измерения температуропроводности и теплопроводности наножидкости. Метод сравнительно прост в реализации, кроме того, он позволяет определить не только теплопроводность, но и температуропроводность жидкости.

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

ОБЗОР МЕТОДОВ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ НАНОЖИДКОСТИ

Измерения теплопроводности наножидкости проводили достаточно большое количество исследователей как отечественных, так и зарубежных [9–18]. В абсолютном большинстве случаев исследователи для экспериментов использовали измерительные приборы, которые сами изготавливали в единичном экземпляре.

В настоящее время исследователи используют несколько методов измерения теплопроводности наножидкости. Однако практически все применяемые методы имеют те или иные недостатки, которые существенно влияют на результаты измерений.

Наибольшую сложность при определении теплопроводности наножидкости представляет тот факт, что в процессе переноса теплоты присутствуют как кондуктивная, так и конвективная составляющие.

Еще на перенос теплоты в наножидкости влияет и термодиффузия, т.е. перемещение частиц под действием градиента температуры. Это явление также называется термофорезом или эффектом Соре. Поэтому в большинстве методов определения теплопроводности жидкости используется кратковременный нагрев рабочего элемента (до 1 с) на сравнительно незначительную величину (не более 10 K). При таком нагреве влиянием конвекции и термодиффузии можно пренебречь.

Стоит отметить, что теплообмен в наножидкости исследуется при температурах до 100°C.

В большинстве исследований для экспериментального определения теплопроводности наножидкости используется нестационарный метод нагреваемой нити (проволоки). К проволоке диаметром 25 мкм, изготовленной из платины либо тантала, в течение периода времени от 20 мс до 1 с подводится постоянный электрический ток. Проволока нагревается на 4–10 K. Проволоку можно рассматривать как линейный источник теплоты, который рассеивает теплоту в бесконечную среду. Для определения коэффициента теплопроводности необходимо измерить тепловой поток и изменение температуры во времени. Интервал времени должен быть таким, чтобы зависимость температуры от логарифма времени была линейной. По результатам измерений строят график изменения температуры как функции логарифма времени, которая является прямой линией, а наклон графика пропорционален коэффициенту теплопроводности.

Использование метода нагретой нити для исследования теплопроводности именно наножидкости связано с некоторыми трудностями, обусловленными прежде всего физико-химическими свойствами материала самой проволочки, а именно чистотой поверхности проволочки, стойкостью к химическому взаимодействию с базовой жидкостью. Это приводит к скоплению наночастиц на поверхности проволоки, что неконтролируемо изменяет как тепловые, так и электрические характеристики в области контакта между наножидкостью и поверхностью греющей проволочки. Для решения этой проблемы проволока покрывается электрическим изоляционным материалом, например тефлоном. Можно использовать танталовую проволоку, на поверхности которой образуется слой пентоксида тантала, также служащий электрическим изолятором.

В некоторых исследованиях используется 3ω-проводной метод, который основан на измерениях за период времени повышения температуры источника теплоты, погруженного в исследуемую жидкость. В качестве нагревателя используется проволока малого диаметра (несколько десятков микрон), которая также выполняет роль термометра сопротивления. Данный метод позволяет одновременно определить температуропроводность и теплопроводность.

Сущность метода заключается в следующем. На проволоку (нагреватель) подается переменный ток, количество теплоты, выделившееся при прохождении через проволоку электрического тока, определяется по закону Джоуля–Ленца и представляет собой суперпозицию источника постоянного тока и 2ω модулированного источника тепла. Выделившаяся тепловая мощность порождает изменение температуры в нагревателе, которое также является суперпозицией компоненты постоянного тока и компоненты 2ω переменного тока. Электрическое сопротивление металлической проволоки в условиях эксперимента зависит от температуры и представляет собой 2ω-компоненту переменного тока в сопротивлении проволоки. Коэффициент теплопроводности жидкости λ_f определяется по наклону 2ω изменения температуры металлической проволоки по отношению к частоте ω.

Таким образом, устанавливается зависимость коэффициента теплопроводности жидкости от изменения температуры проволоки и частотной характеристики переменного электрического тока.

3ω-проводной метод имеет несколько преимуществ перед методом нагретой нити:

1) температурные колебания в исследуемой жидкости достаточно малы (меньше 1 K), что позволяет сохранить постоянные свойства жидкости;

2) фоновые шумы, такие как изменение температуры, гораздо слабее влияют на результаты измерений.

Точность при определении теплопроводности описанным методом в большой степени зависит от определения сопротивления моста Уинстона, применяемого в экспериментальной установке. Недостатком 3ω-метода является то, что твердая поверхность нагревателя обычно имеет тепловую инерционность гораздо больше, чем у жидкости.

Поэтому теплота, выделяемая в металлическом нагревателе, делится между твердой подложкой и жидкостью в зависимости от соотношения их тепловых инерционностей. Можно предположить, что большая часть тепла будет поступать в подложку, а не в жидкость. Кроме того, сама измерительная установка достаточно сложная и включает в себя мост Уинстона, генератор сигналов, анализатор спектра, осциллограф.

Общей особенностью двух описанных методов является то, что коэффициент теплопроводности определяется косвенно через связь тепловых характеристик исследуемой жидкости и измеряемых электрических характеристик нагревателя.

Для измерения теплопроводности наножидкости применяется стационарный метод плоского слоя. Сущность метода заключается в следующем: исследуемая наножидкость заливается в тонкий плоский слой, находящийся между двумя пластинами – нагревателем и холодильником. Для определения коэффициента теплопроводности по уравнению Фурье необходимо измерить тепловой поток и градиент температуры. Достоинством стационарного метода плоского слоя по сравнению с вышеописанными методами является его простота. Однако широкого применения этот метод не нашел, поскольку точность измерений существенно зависит от выполнения условия одномерности потока теплоты. Экспериментальные установки, работающие по методу плоского слоя, отличаются способом уменьшения боковых утечек теплоты. Для определения теплопроводности жидкостей необходима специальная ячейка [17]. Опубликованы результаты исследования теплопроводности наножидкости на основе *н*-пентана и оксида алюминия, а также ортофосфорной кислоты [17, 18]. Автор исследований подчеркивает, что разработанная им установка обеспечивает высокую точность измерений (максимальная неопределенность – 2%). Прибор запатентован [17], но серийно не изготавливается.

ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА РЕГУЛЯРНОГО РЕЖИМА ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ НАНОЖИДКОСТИ

Ранее метод регулярного тентового разжима успешно использовался для исследования теплофизических свойств, а именно температуропроводности и теплопроводности различных теплоизоляционных, строительных и других технических твердых материалов [19]. В работе [20] приведены результаты применения данного метода для определения температуропроводности наножидкости. Опубликованные данные, во-первых, указывают на возможность надежного использования метода регулярного тентового разжима для исследования наножидкости (погрешность определения коэффициента температуропроводности не превышает 1.73%) и, во-вторых, свидетельствуют о его простоте и доступности.

Существо метода заключается в следующем. Согласно второй теореме Кондратьева [21], при числе Био $\mathrm{Bi} \to \infty$ темп охлаждения прямо пропорционален коэффициенту температуропроводности

$$a = Km_\infty,$$

где K – коэффициент формы тела.

Число Био определяется как

$$\mathrm{Bi} = \frac{\alpha R}{\lambda},$$

где α – коэффициент теплоотдачи от термостатирующей жидкости к калориметру, Вт/(м^2 K); R – радиус калориметра, м; λ – коэффициент теплопроводности исследуемого материала, Вт/(м K).

Соответственно, для определения коэффициента температуропроводности нужно определить темп охлаждения

$$m_\infty = \frac{\ln\vartheta_1 - \ln\vartheta_2}{\tau_2 - \tau_1},$$

где $\vartheta = t - t_0$ – избыточная температура, представляющая собой разность между температурой исследуемой жидкости и температурой греющей (охлаждающей) среды. Для определения избыточной температуры используют измеренные значения температуры t_1 и t_2 в произвольные моменты времени τ_1 и τ_2 в области регулярного режима.

Таким образом, для определения коэффициента температуропроводности необходимо выполнить достаточно простые измерения температуры в фиксированной точке внутри исследуемого образца в течение времени.

Авторы разработали установку для определения коэффициента теплопроводности методом регулярного режима. Установка состоит из стального цилиндрического калориметра радиусом R и высотой Z. В калориметре установлены две термопары: одна на оси ($r_2 = 0$), вторая на расстоянии $r_1 = 0.7R$ от оси. Термопары располагаются на одной изотермической поверхности. Калориметр заполняется исследуемой жидкостью при температуре 20°C и погружается в термостат, заполненный водой. Термостатирующая жидкость постоянно перемешивается, ее температура в разных сериях экспериментов поддерживалась на уровне 40–60°C. В процессе нагрева исследуемой жидкости в калориметре устанавливается распределение температуры жидкости во времени. На стадии регулярного режима нагрева определяется темп нагрева m_∞, а затем коэффициент температуропроводности. Использование в качестве гре-

Результаты эксперимента

Температура, °C	Коэффициент температуропроводности, 10^{-7} м^2/с		Коэффициент теплопроводности, Вт/(м K)	
	экспериментальные данные	табличные значения [22]	экспериментальные данные	табличные значения [22]
30	1.643	1.487	0.686	0.615
35	1.664	1.51	0.689	0.622
40	1.684	1.533	0.692	0.629

ющей жидкости воды позволяет провести эксперимент при условии $\mathrm{Bi} \to \infty$.

Для определения теплопроводности требуются данные об удельной теплоемкости c_p и плотности жидкости ρ

$$\lambda = ac_p\rho. \quad (1)$$

Необходимым условием реализации этого метода является высокий коэффициент теплоотдачи от греющей среды к стенке калориметра $\alpha \to \infty$. На практике достаточно обеспечить интенсивное перемешивание термостатирующей жидкости в калориметре, тогда коэффициент теплоотдачи примерно равен 2000 Вт/(м^2 K).

При кажущейся очевидной простоте метода его реализация сопровождается определенными сложностями. Во-первых, размеры калориметра не могут быть произвольными: термопары не должны располагаться слишком близко друг к другу, иначе графики $\ln\vartheta_1 = f(\tau)$ и $\ln\vartheta_2 = f(\tau)$ будут накладываться друг на друга.

Для определения оптимальных размеров калориметра проведены пробные эксперименты. Использовались два цилиндрических калориметра: первый изготовлен из тонкой меди радиусом 0.02 м и высотой 0.06 м, второй радиусом 0.05 м и высотой 0.16 м изготовлен из тонкого алюминия. Каждый калориметр оснащен двумя хромель-копелевыми термопарами. Эксперименты проводились в термостате в водяной и воздушной банях при нагреве воды в термостате до 42°C. Точность температурных измерений составила 0.1°C.

Результаты экспериментов показали, что при охлаждении калориметра в воде наблюдается практически полное совпадение показаний двух термопар. В то же время в воздушной ванне разница показаний термопар составила уже порядка 1°C. Погрешность эксперимента не превышает 15%.

Также метод регулярного режима можно применять только при условии реализации одномерного температурного поля в калориметре. Это достигается за счет правильно подобранного соотношения высоты и радиуса калориметра. При радиусе 50 мм калориметра его высота равна $Z = 160$ мм.

Во-вторых, известно, что регулярный режим наступает при $\mathrm{Fo} = \dfrac{a\tau}{R^2} \geq 0.3$, соответственно, например, для воды время эксперимента должно быть не менее 800 с. Здесь τ – время нагрева (охлаждения). Таким образом, эксперимент относительно, например, метода горячей проволочки является длительным. Так, определенный методом регулярного режима коэффициент теплопроводности следует рассматривать как эффективный, т.е. учитывающий перенос теплоты в жидкости, залитой в калориметр, не только теплопроводностью, но и термодиффузией. Использование эффективного коэффициента теплопроводности в дальнейших расчетах оправдано тем, что в реальных условиях процессы теплопроводности и термодиффузии протекают совместно.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

В качестве экспериментальной жидкости использована обессоленная вода, подготовленная методом ионного обмена, с электропроводимостью 80 мкСм м. Результаты эксперимента приведены в таблице. Там же приведены и табличные значения коэффициентов теплопроводности и температуропроводности. Значения коэффициента теплопроводности взяты из [22], значения коэффициента температуропроводности получены по формуле (1) на основе справочных данных [22]. Табличные значения приведены для воды с электропроводимостью менее 2 мкСм м.

Различие между табличными и экспериментальными данными составляет 10–11%. Это частично можно объяснить различием в составах воды.

Также стоит отметить, что перспективным является использование калориметров другой конструкции [21], которые позволяют проводить эксперимент при низком значении коэффициента теплоотдачи.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для определения теплопроводности наножидкостей в настоящее время наибольшее распространение получили метод нагретой нити (проволоки) и 3ω-проводной метод. Оба метода позволя-

ют определить коэффициент теплопроводности косвенно по связи тепловых характеристик исследуемой жидкости и измеряемых электрических характеристик нагревателя. Стационарный метод плоского слоя использован в единичных исследованиях. В данной работе рассмотрено применение метода регулярного режима для определения коэффициента теплопроводности жидкости. Метод прост в реализации и не требует дорогостоящего оборудования. Проведенные эксперименты позволили определить размеры калориметра и отработать методику измерений. Коэффициент теплопроводности и коэффициент температуропроводности, определенные данным методом, отличаются от табличных значений на 10–11%. Таким образом, перспективно использовать калориметры другой конструкции, которые позволяют проводить эксперимент при низком значении коэффициента теплоотдачи.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Chavez Panduro E.A., Finotti F., Lervåg K.Y., Largiller G.* A Review of the Use of Nanofluids as Heat-transfer Fluids in Parabolic-trough Collectors // Appl. Therm. Eng. 2022. V. 211. P. 118346.
2. *Shatskikh Y.V., Kostanovsky A.V.* Characteristic Features of Nanofluids Application in Power Engineering // J. Phys.: Conf. Ser. 2020. V. 1683. P. 032028.
3. *Фомин А.А., Фомина Л.Н.* Анализ эмпирических корреляций теплофизических свойств водных суспензий наночастиц оксида алюминия // Теплофизика и аэромеханика. 2020. Т. 27. № 2. С. 169.
4. *Jwo C.S., Teng T.P., Hung C.J., Guo Y.T.* Research and Development of Measurement Device for Thermal Conductivity of Nanofluids // J. Phys.: Conf. Ser. 2005. V. 13. P. 55.
5. *Safiei W., Rahman M., Kulkarni R., Ariffin N., Malek Z.A.* Thermal Conductivity and Dynamic Viscosity of Nanofluids // J. Advanced Research in Fluid Mechanics and Thermal Sciences. 2020. № 74. P. 66.
6. *Konstantinos D.A., Georgia J.T., Marc J.A., William A.W.* Necessary Conditions for Accurate, Transient Hot-wire Measurements of the Apparent Thermal Conductivity of Nanofluids are Seldom Satisfied // Int. J. Thermophys. 2016. № 37(8). https://doi.org/10.1007/s10765-016-2083-8
7. *Pryazhnikov M.I., Minakov A.V., Rudyak V.Ya., Guzei D.V.* Thermal Conductivity Measurements of Nanofluids // Int. J. Heat Mass Transfer. 2017. V. 104. № 1. P. 1275.
8. *Минаков А.В., Рудяк В.Я., Гузей Д.В., Лобасов А.С.* Измерение коэффициента теплоотдачи наножидкости на основе воды и частиц оксида меди // ТВТ. 2015. Т. 53. № 2. С. 256.
9. *Минаков А.В., Рудяк В.Я., Гузей Д.В., Пряжников М.И., Лобасов А.С.* Измерение коэффициента теплопроводности наножидкостей методом нагреваемой нити // ИФЖ. 2015. Т. 88. № 1. С. 148.
10. *Рудяк В.Я., Минаков А.В., Пряжников М.И., Гузей Д.В.* Измерение теплопроводности и коэффициента теплоотдачи наножидкостей с одностенными нанотрубками // ТВТ. 2022. Т. 60. № 5. С. 692.
11. *Пряжников М.И., Минаков А.В., Гузей Д.В., Рудяк В.Я.* Теплопроводность наножидкостей на основе воды и этиленгликоля с наночастицами различных материалов // Матер. 8-й Рос. нац. конф. по теплообмену. М.: НИУ “МЭИ”, 2022. С. 237.
12. *Prasad T.R., Krishna K.R., Sharma K.V., Mantravadi N.* Вязкость и теплопроводность наножидкостей кобальта и диоксида кремния в оптимальной смеси глицерина и воды // Коллоид. журн. 2022. Т. 84. № 2. С. 213.
13. *Yufeng G., Zhang T., Zhangn D., Wang O.* Experimental Investigation of Thermal and Electrical Conductivity of Silicon Oxide Nanofluids in Ethylene Glycol/Water Mixture // Int. J. Heat Mass Transfer. 2018. № 117. P. 280.
14. *De Koninck D.* Thermal Conductivity Measurements Using the 3-Omega Technique: Application to Power Harvesting Microsystems. Montreal: McGill University, 2008. 106 p.
15. *Moon I.K., Jeong Y.H., Kwun S.I.* The 3ω Technique for Measuring Dynamic Specific Heat and Thermal Conductivity of a Liquid or Solid // Rev. Sci. Instrum. 1996. № 67(1). P. 29.
16. *Жаров А.А., Савинский Н.Г., Павлов А.А., Евдокимов А.Н.* Экспериментальный метод измерения теплопроводности наножидкости // Фундаментальные исследования. 2014. № 8 (Ч. 6). С. 1345.
17. *Гусейнов Г.Г.* Устройство для измерения теплопроводности. Патент на изобретение № 2096773. Кл. МПК-G01N25/00. 20.11.1997.
18. *Guseinov G.G., Abdulagatov I.M.* Thermal-conductivity Measurements of Aqueous Orthophosphoric Acid Solutions in the Temperature Range From (293 to 400) K and at Pressures up to 15 MPa // Int. J. Thermophys. 2014. V. 35. № 2. P. 218.
19. *Костановский А.В.* Регулярный тепловой режим и его приложение для измерения тепловых свойств твердых тел. Нестационарная теплопроводность. М.: Изд. дом МЭИ, 2006. 32 с.
20. *Сафаров М.М., Мирзоев С.Х., Гуломов М.М и др.* Влияние углеродных нанотрубок на поведения теплопроводностии температуропроводности жидкого диэтилового эфира // Вестн. Казанск. нац. технол. ун-та. 2017. Т. 20. № 7. С. 13.
21. *Кондратьев Г.М.* Регулярный тепловой режим. М.: Гос. изд-во тех.-теор. лит., 1954. 408 с.
22. *Александров А.А., Григорьев Б.А.* Таблицы теплофизических свойств воды и водяного пара. Спр. ГСССД Р-776-98. М.: Изд-во МЭИ, 1999. 168 с.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 530–535

УДК 546.26; 535.341; 697.328

ИССЛЕДОВАНИЕ СТАБИЛЬНОСТИ ВОДНЫХ НАНОЖИДКОСТЕЙ НА ОСНОВЕ ОКСИДА ГРАФЕНА ДЛЯ ПОГЛОЩЕНИЯ СОЛНЕЧНОЙ ЭНЕРГИИ

© 2023 г. J. Zhou[1], B. Yang[1, *], N. van Velson[2], J. Charles[2], J. Wang[2]

[1]Department of Mechanical Engineering, University of Maryland, College Park, MD 20742 United States

[2]Advanced Cooling Technologies, Inc., Lancaster, PA 17601 United States

*E-mail: baoyang@umd.edu

Поступила в редакцию 17.05.2022 г.
После доработки 23.09.2022 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

В данном исследовании стабильность водных наножидкостей на основе оксида графена исследуется в условиях кипения–конденсации. Наножидкости с оксидом графена остаются очень стабильными, а коэффициент пропускания в солнечной области спектра изменяется менее чем на 6% после трехчасового центрифугирования с ускорением 630*g* при 90°C без кипячения. Однако после процессов кипения и конденсации коэффициент пропускания солнечной энергии у наножидкостей с оксидом графена быстро снижается с 38 до 4% в течение первых 24 ч тестирования и стабилизируется в последние 120 ч тестирования. Уменьшение коэффициента пропускания жидкости связано с частичным восстановлением нанолистов оксида графена, о чем свидетельствуют измерения рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии и инфракрасной спектроскопии с преобразованием Фурье. Удивительно, что термическое восстановление оксида графена в водных жидкостях происходит при низкой температуре (~100°C) после прохождения кипения и конденсации. Данная температура намного ниже, чем ранее сообщавшаяся температура термического восстановления (180°C и выше) без кипения. Низкую температуру термического восстановления оксида графена можно объяснить пузырьковой кавитацией, связанной с кипением в водных жидкостях.

DOI: 10.31857/S000403644230401 8X

ВВЕДЕНИЕ

Солнечные тепловые системы считаются одним из наиболее практичных и эффективных способов сбора солнечной энергии [1]. В традиционных солнечных тепловых системах используются поверхностные поглотители для преобразования падающего солнечного излучения в тепловую энергию. В таких солнечных коллекторах существует большая разница температур поверхностных поглотителей и теплоносителей, что приводит к снижению общего теплового КПД [2, 3]. Стремление к дальнейшему повышению эффективности солнечного коллектора привело к разработке объемно поглощающих жидкостей, которые могут напрямую поглощать солнечное излучение и работать как теплоносители. В [4, 5] сообщалось, что в солнечных коллекторах с использованием объемно поглощающих жидкостей можно добиться увеличения фототермической эффективности на 5–10%.

В последнее время большое внимание уделяется использованию наножидкостей, представляющих собой дисперсные смеси наночастиц с жидкостями-теплоносителями, в качестве объемно поглощающих жидкостей в солнечных коллекторах [6–9]. Наножидкости обладают повышенными теплопроводностью и коэффициентом поглощения солнечной энергии по сравнению с традиционными жидкостями, такими как вода, этиленгликоль и т.д. [10, 11]. Графеновые нанолисты обладают высокими теплопроводностью и коэффициентом поглощения солнечной энергии и низкой массовой плотностью по сравнению с наночастицами металлов или оксидов металлов, поэтому их часто используют для приготовления объемно поглощающих солнечную энергию жидкостей [12]. В [13] сообщалось, что термический КПД солнечного коллектора увеличился на 29% при использовании водных жидкостей на основе графена с расходом 0.0075 кг/с по сравнению с КПД при использовании базовой жидкости (воды). Из-за гидрофобности поверхностей графена для предотвращения агломерации и осаждения графеновых нанолистов в наножидкостях необходимы поверхностно-активные вещества, такие как полимерные диспергаторы [14, 15].

Приложено много усилий для модификации поверхности графеновых нанолистов, чтобы уменьшить проблему стабильности наножидкостей на основе графена. Частично окисленные нанолисты графена имеют большое количество кисло-

родсодержащих функциональных групп на поверхности, что делает их гидрофильными. Нанолисты оксида графена в настоящее время считаются наиболее перпективными для применения в жидкостях, поглощающих солнечную энергию [16–20]. В [22] сообщается об объемных солнечных поглотителях на основе наножидкостей с оксидом графена, которые показали изменение поглощения видимого ультрафиолетового (и в прилежащих областях) излучения менее чем на 5% после хранения в течение 10 дней при комнатной температуре. Авторы [6] также сообщили о наножидкостях с оксидом графена, используемых для низкотемпературного поглощения солнечной энергии. Их образцы показали падение абсолютного ζ-потенциала примерно на 1.7% после хранения при комнатной температуре в течение более чем шести месяцев. В данных экспериментах наножидкости на основе графена часто работают в однофазном режиме теплопередачи. Однако во многих других приложениях применительно к солнечной энергии, например, с использованием тепловых трубок или термосифонов, наножидкости, поглощающие солнечную энергию, должны подвергаться процессам кипения и конденсации.

В настоящем исследовании водные наножидкости на основе оксида графена готовятся и тестируются под действием центробежной силы 630*g* и подвергаются кипению–конденсации. Коэффициент пропускания данных наножидкостей на основе оксида графена измеряется до и после этих испытаний. Измерения с помощью рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФС) и инфракрасной спектроскопии с преобразованием Фурье (ИСПФ) также проводятся для изучения изменения химического состава нанолиста оксида графена в результате процессов кипения и конденсации.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ

Материалы и подготовка образцов. Наночастицы оксида графена приобретены в Graphene Laboratories Inc. (Ronkonkoma, Нью-Йорк, США) и использовались в том виде, в котором получены. В качестве базовой жидкости в эксперименте использовалась деионизированная вода. Электропроводность составляла 0.047 мкСм, которая измерялась при комнатной температуре с использованием настольного измерителя проводимости Orion A212. Образцы наножидкости на основе оксида графена приготовлены путем диспергирования нанолистов оксида графена в деионизированной воде с использованием ультразвукового зонда (Sonics VCX 750, 300 Вт). Обнаружено, что обработки ультразвуком при амплитуде 40% в течение 10 мин достаточно для правильного диспергирования нанолистов оксида графена. Стеклянные флаконы с наножидкостями с оксидом графена поддерживались при комнатной температуре на водяной бане во время обработки ультразвуком. Ампулы с наножидкостями с различными массовыми концентрациями оксида графена (0.01, 0.025, 0.05%) показаны на рис. 1а–1в.

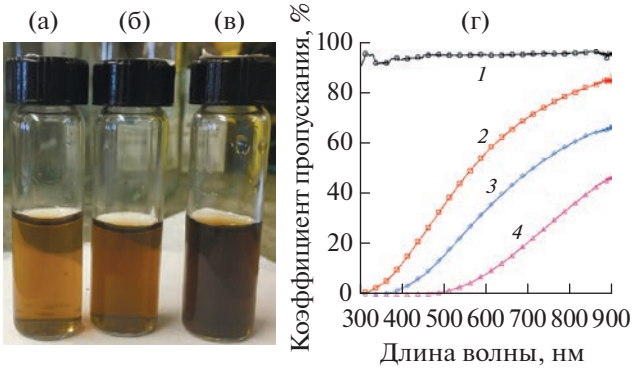

Рис. 1. Фотография наножидкостей с оксидом графена массовой долей 0.01% (а), 0.025% (б), 0.05% (в); (г) коэффициент пропускания деионизированной воды (*1*) в зависимости от длины волны и наножидкостей при различном содержании оксида графена: *2* – 0.01%, *3* – 0.025%, *4* – 0.05%.

Характеристики свойств. Морфология нанолистов оксида графена, не прошедших кипение и конденсацию, исследовалась с помощью автоэмиссионного просвечивающего электронного микроскопа (JEM 2100 FE-TEM). Образец наножидкости объемом 5–10 мкл наносился на сетку с углеродным покрытием с помощью микропипетки, а затем высушивался при комнатной температуре перед изучением под микроскопом. Морфология агрегатов нанолистов оксида графена после кипячения и конденсации исследовалась с помощью автоэмиссионного сканирующего электронного микроскопа (Hitachi SU-70 Schottky FE-SEM). Агрегаты нанолистов оксида графена сушились на кремниевой пластине. Спектры инфракрасного пропускания наножидкостей оксида графена измерялись с использованием метода ослабленного полного отражения (ОПО) – ИСПФ (Thermo Nicolet NEXUS 670 FTIR). При измерении ОПО-ИСПФ использовалась кристаллическая призма из германия, диапазон спектров составлял 600–4000 $см^{-1}$. Коэффициент пропускания наножидкостей с оксидом графена в области солнечного спектра измерялся с использованием спектрометра (Perkin-Elmer Lambda 25). Химический состав наночастиц с оксидом графена анализировался с помощью рентгеновского фотоэлектронного спектрометра (РФС, Kratos Axis 165 Photoelectron Spectrometer).

Испытание на устойчивость под действием центробежной силы. Стабильность наножидкостей с оксидом графена оценивалась в экспериментах под действием центробежной силы. Образцы наножидкости центрифугировались с контролируемой температурой в центрифуге L-K Industries Benchmark S Centrifuge при скорости 1500 об/мин и тем-

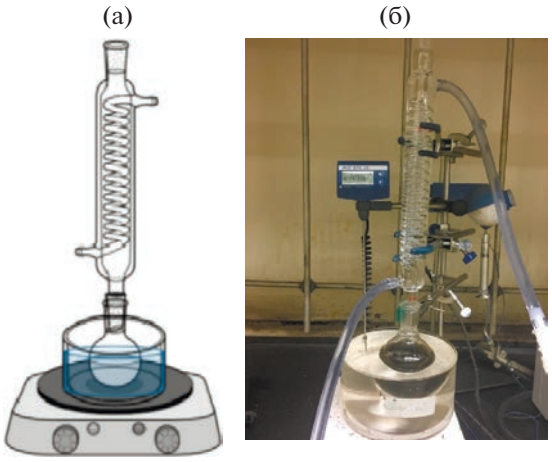

Рис. 2. Схема (а) и фотография (б) экспериментальной установки для кипения и конденсации наножидкости.

пературе 90°C в течение 3 ч. Скорость 1500 об/мин эквивалентна силе 630*g*. Образцы наножидкости, прошедшие испытания в центрифуге, имели массовую концентрацию 0.025%. Спектр пропускания образцов наножидкости измерялся каждый час в процессе центрифугирования.

Эксперимент с кипением и конденсацией. Эксперимент разработан для изучения влияния условий кипения–конденсации на стабильность образцов. Схема эксперимента показана на рис. 2. В ходе эксперимента образцы наножидкости с оксидом графена кипятились путем погружения в масляную баню при температуре 120°C, а конденсатор охлаждался водой при комнатной температуре. Образцы наножидкости имели массовую концентрацию 0.025%, а объем образцов составлял 30 мл. Спектр пропускания образцов наножидкости измерялся в процессе кипения и конденсации.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Изображение, полученное на электронном микроскопе частицы оксида графена до кипения и конденсации показано на рис. 3а. Частица оксида графена лежит на кружевной углеродной пленке. Частицы имеют пластинчатую форму со средним размером 1–3 мкм. Спектры пропускания свежеприготовленных наножидкостей с оксидом графена с массовыми долями 0.01, 0.025, 0.05% представлены на рис. 1г. Данные наножидкости очень хорошо поглощают излучение солнечного спектра. Коэффициент пропускания наножидкостей с оксидом графена уменьшается с увеличением концентрации частиц оксида графена, что согласуется с законом Бера–Ламберта [7]. Зависимость коэффициента пропускания наножидкостей с оксидом графена на длине волны 600 нм от времени хранения показана на рис. 4а. В тече-

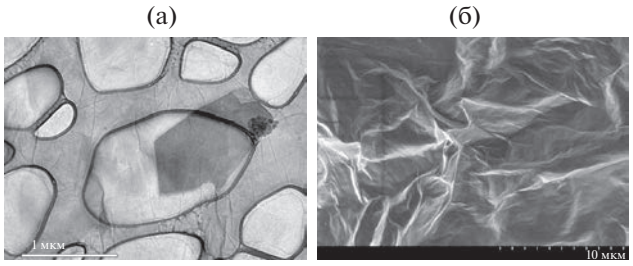

Рис. 3. Изображения нанолистов оксида графена, полученные на электронном микроскопе перед кипением и конденсацией (а), и на сканирующем электронном микроскопе после кипения и конденсации (б).

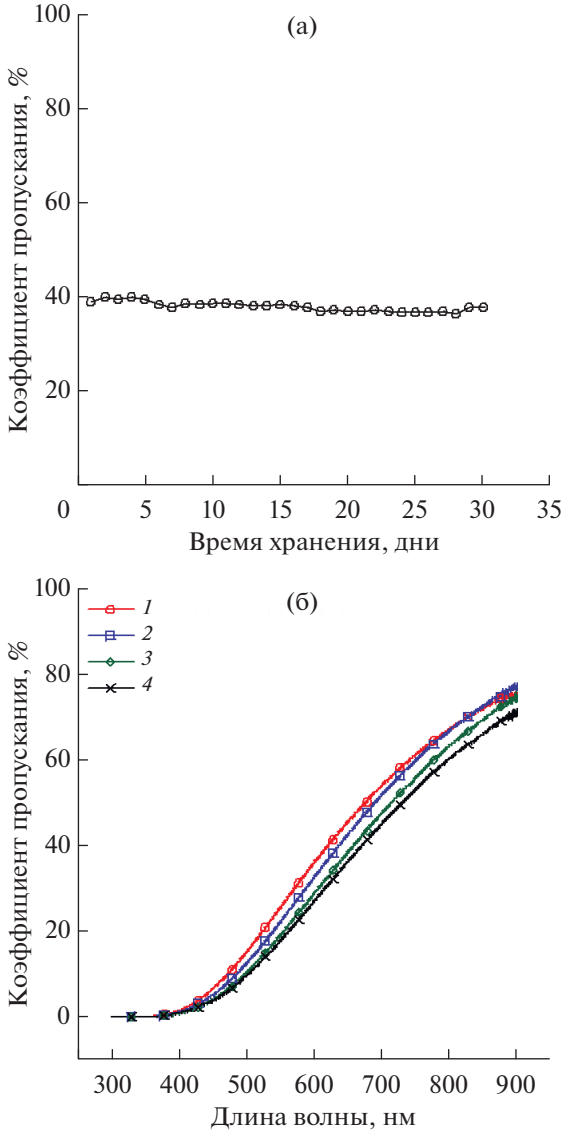

Рис. 4. Коэффициент пропускания на длине волны 600 нм в зависимости от времени хранения наножидкостей с оксидом графена при комнатной температуре (а), (б) зависимости коэффициента пропускания от длины волны: *1* – до центрифугирования, *2* – после 1 ч в центрифуге при 90°C, *3* – 2 ч, *4* – 3 ч.

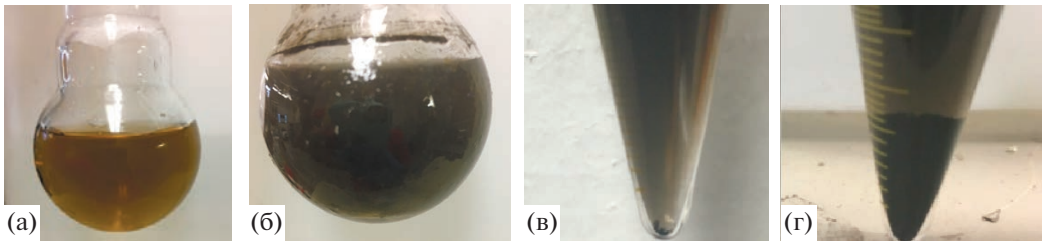

Рис. 5. Фотографии наножидкостей с оксидом графена в колбе для кипячения до (а) и после (б) кипения и конденсации; изображения наножидкостей в экспериментальной емкости до (в) и после (г) центрифуги.

ние 30-дневного испытания коэффициент пропускания изменяется менее чем на 4%. Согласно закону Бера–Ламберта, коэффициент пропускания наножидкостей с оксидом графена увеличится, если частицы оксида графена выпадают в осадок. Это означает, что наножидкости с оксидом графена могут оставаться стабильными в течение достаточно длительного времени при хранении при комнатной температуре. Аналогичные результаты получены и в [22, 23]. Стабильность наножидкостей также оценивалась в центрифуге при 1500 об/мин и температуре 90°C, что эквивалентно силе при 630*g*. Коэффициент пропускания наножидкостей снижается менее чем на 6% после трехчасового центрифугирования при 90°C (рис. 4б). Наличие кислородсодержащих функциональных групп на поверхности наночастиц оксида графена делает их гидрофильными и стабильными в водных жидкостях.

Наножидкости с оксидом графена исследовались на протяжении всего процесса кипения–конденсации. Наножидкости визуально становятся значительно темнее после этого (рис. 5а, 5б). Проведен быстрый тест стабильности с центрифугированием наножидкостей с оксидом графена после кипения и конденсации. Осаждение частиц оксида графена визуально наблюдается после центрифугирования (рис. 5в, 5г), что указывает на ухудшение стабильности, возникающее в результате процессов кипения и конденсации. Агрегация нанолистов оксида графена после кипения и конденсации проиллюстрирована на рис. 3б. Коэффициент пропускания наножидкостей с оксидом графена меняется после кипения и конденсации (рис. 6а, 6б). Коэффициент пропускания солнечной энергии исследуемых наножидкостей быстро снижается в течение первых 24 ч кипения и конденсации, а затем выравнивается в течение 120 ч испытания. Коэффициент пропускания наножидкостей на длине волны 600 нм демонстрирует аналогичную тенденцию. Падение коэффициента пропускания и более темный внешний вид сигнализируют о том, что нанолисты оксида графена могут частично преобразовываться в графеноподобные нанолисты путем удаления кисло-

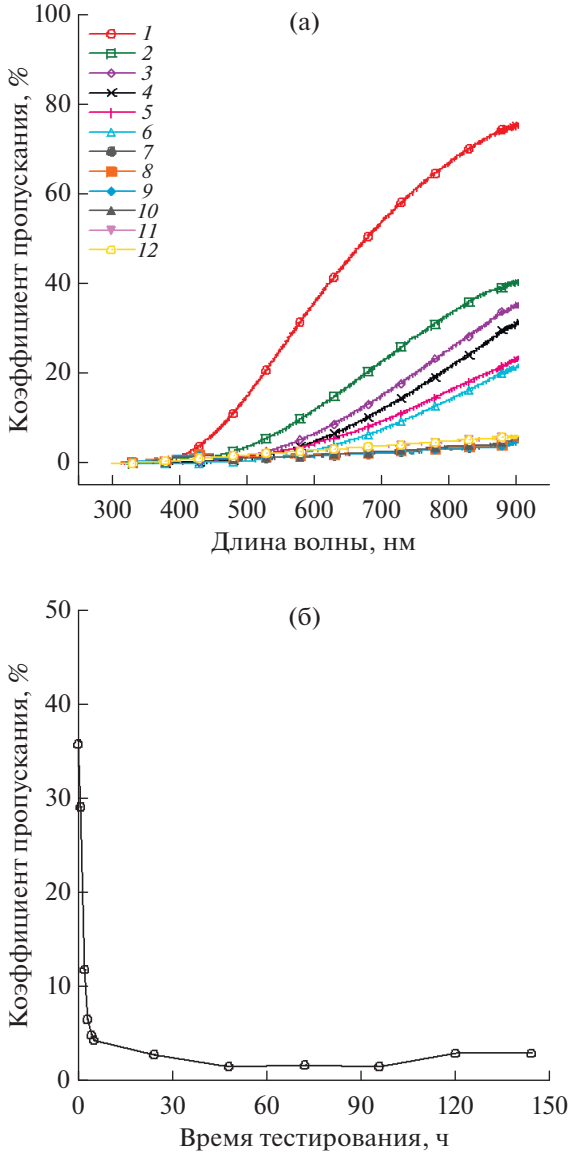

Рис. 6. Зависимости коэффициента пропускания наножидкостей от длины волны при различных временах кипения–конденсации (а): *1* – до обработки, *2* – 1 ч, *3* – 2, *4* – 3, *5* – 4, *6* – 5, *7* – 24, *8* – 48, 9 – 72, *10* – 96, *11* – 120, *12* – 144; (б) коэффициент пропускания на длине волны 600 нм в зависимости от времени кипения–конденсации наножидкостей с оксидом графена.

родсодержащих групп. Эта реакция частичного восстановления нанолистов, скорее всего, включает потерю групп CO и CO_2 и отчасти восстанавливает структуры и свойств графена [24, 25].

РФС-спектры наножидкостей до и после кипения и конденсации показаны на рис. 7а, 7б соответственно. В обоих спектрах обнаруживается присутствие кислорода и углерода. Из анализа спектров РФС видно, что атомное соотношение наночастиц оксида графена составляет 70.7% C/29.3% O перед кипением и конденсацией. Однако после конденсации и кипения их атомное соотношение становится равным 79.9% C/20.1% O. Соответствующее соотношение [C]/[O] увеличивается с 2.4 до 3.9, и это говорит о том, что частица оксида графена потеряла часть своих кислородсодержащих функциональных групп после кипения и конденсации.

Для дальнейшего анализа присутствия и потери кислородсодержащих функциональных групп на частицах оксида графена измерены ИСПФ-спектры этих наножидкостей до и после 48 ч кипячения и конденсации. ИСПФ-спектры наножидкостей до кипения и конденсации содержат множество пиков, соответствующих кислородсодержащим функциональным группам (рис. 8). Широкий пик

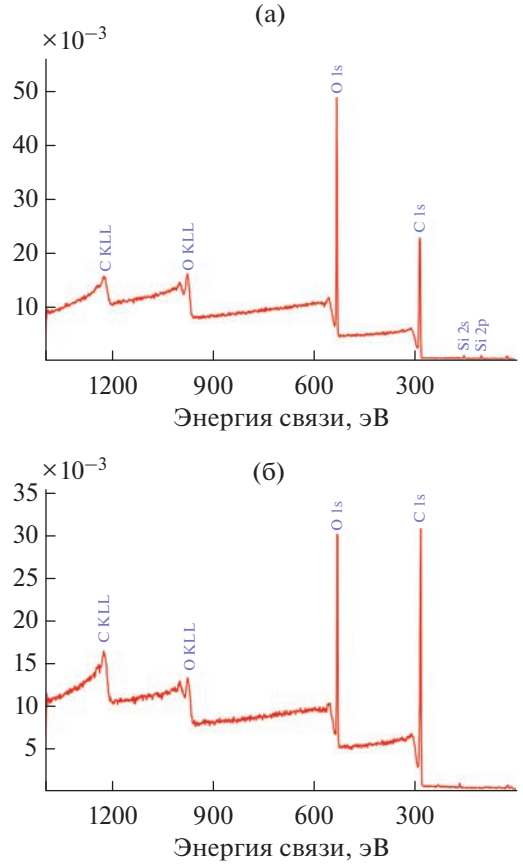

Рис. 7. РФС-спектры наножидкости с оксидом графена до (а) и после (б) кипения и конденсации.

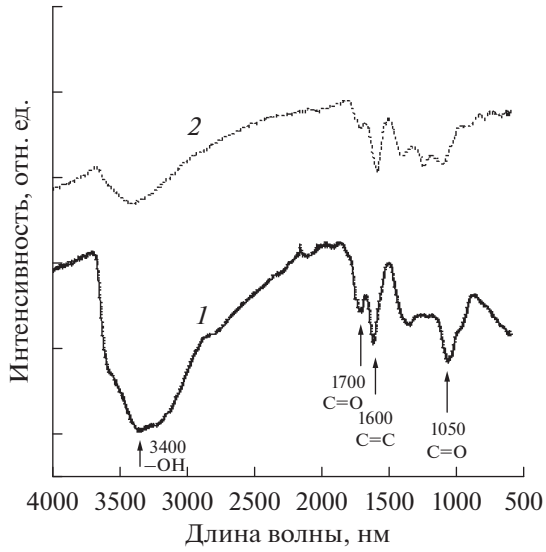

Рис. 8. Кривые коэффициента пропускания наножидкостей до (*1*) и после (*2*) кипения и конденсации, измеренные ИСПФ-спектрометром в режиме ОПО.

~3400 нм обусловлен гидроксильными группами. Пики при 1700, 1600, 1050 нм связаны с растяжением групп карбоновой кислоты, sp^2-углеродных групп, оставшихся после окисления, и алкоксигрупп соответственно. Однако интенсивность этих пиков значительно снижается в ИСПФ-спектрах частиц оксида графена после кипения и конденсации (рис. 8). В частности, практически исчезают пики при 3400 и 1700 нм, что указывает на потерю гидроксильных и карбоксильных групп в частицах оксида графена.

Частицы оксида графена частично восстановились в процессе кипения и конденсации, когда температура кипения составляла 100°C, о чем свидетельствуют РФС и ИСПФ-спектры частиц. В [26] установлено, что восстановление частиц оксида графена в водном растворе не происходит, пока температура не вырастет до 180°C и выше. Низкотемпературное термическое восстановление оксида графена, наблюдаемое в настоящем исследовании, можно объяснить пузырьковой кавитацией, связанной с кипением в водных жидкостях.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе исследованы коэффициент пропускания солнечной энергии и стабильность водных наножидкостей с оксидом графена во время и после кипения и конденсации. Наножидкости с оксидом графена оставались очень стабильными при вращении в центрифуге с усилием, соответствующем 630*g*, при 90°C без кипения и конденсации. Однако стабильность исследованных наножидкостей значительно ухудшалась, когда они подвергались процессам кипения и конденсации. Коэффициент пропускания сол-

нечной энергии наножидкостей с оксидом графена снижался в течение первых 24 ч кипения и конденсации, а затем стабилизировался в течение последующих 120 ч испытаний. Как показали результаты РСП и ИСПФ, снижение коэффициента пропускания жидкости произошло из-за частичного восстановления нанолистов оксида графена.

Исследование выполнено за счет финансирования Министерства энергетики США, грант № DE EE0008398.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Liu J., Ye Z., Zhang L., Fang X., Zhang Z.* A Combined Numerical and Experimental Study on Graphene/Ionic Liquid Nanofluid Based Direct Absorption Solar Collector // Solar Energy Materials and Solar Cells. 2015. V. 136. P. 177.
2. *Ni G., Miljkovic N., Ghasemi H., Huang X., Boriskina S.V., Lin C.T., Chen G.* Volumetric Solar Heating of Nanofluids for Direct Vapor Generation // Nano Energy. 2015. V. 17. P. 290.
3. *Saidur R., Meng T.C., Said Z., Hasanuzzaman M., Kamyar A.* Evaluation of the Effect of Nanofluid-based Absorbers on Direct Solar Collector // Int. J. Heat Mass Transfer. 2012. V. 55. № 21–22. P. 5899.
4. *Lenert A., Wang E.N.* Optimization of Nanofluid Volumetric Receivers for Solar Thermal Energy Conversion // Solar Energy. 2012. V. 86(1). P. 253.
5. *Taylor R.A., Phelan P.E., Otanicar T.P., Walker C.A., Nguyen M., Trimble S., Prasher R.* Applicability of Nanofluids in High Flux Solar Collectors // Journal of Renewable and Sustainable Energy. 2011. V. 3(2). 023104.
6. *Aguilar T., Sani E., Mercatelli L., Carrillo-Berdugo I., Torres E., Navas J.* Exfoliated Graphene Oxide-based Nanofluids with Enhanced Thermal and Optical Properties for Solar Collectors in Concentrating Solar Power // Journal of Molecular Liquids. 2020. V. 306. 112862.
7. *Cham sa-ard W., Fawcett D., Fung C.C., Chapman P., Rattan S., Poinern G.E.J.* Synthesis, Characterisation and Thermo-physical Properties of Highly Stable Graphene Oxide-based Aqueous Nanofluids for Potential Low-temperature Direct Absorption Solar Applications // Scientific Reports. 2021. V. 11. 16549.
8. *Khullar V., Tyagi H., Hordy N., Otanicar T.P., Hewakuruppu Y., Modi P., Taylor R.A.* Harvesting Solar Thermal Energy Through Nanofluid-based Volumetric Absorption Systems // Int. J. Heat Mass Transfer. 2014. V. 77. P. 377.
9. *Otanicar T.P., Phelan P.E., Prasher R.S., Rosengarten G., Taylor R.A.* Nanofluid-based Direct Absorption Solar Collector // Journal of Renewable and Sustainable Energy. 2010. V. 2(3). 033102.
10. *Colangelo G., Favale E., de Risi A., Laforgia D.* Results of Experimental Investigations on the Heat Conductivity of Nanofluids Based on Diathermic Oil for High Temperature Applications // Applied Energy. 2012. V. 97. P. 828.
11. *Otanicar T.P., Phelan P.E., Golden J.S.* Optical Properties of Liquids for Direct Absorption Solar Thermal Energy Systems // Solar Energy. 2009. V. 83(7). P. 969.
12. *Yu W., Xie H., Bao D.* Enhanced Thermal Conductivities of Nanofluids Containing Graphene Oxide Nanosheets // Nanotechnology. 2009. V. 21(5). 055705.
13. *Vakili M., Hosseinalipour S.M., Delfani S., Khosrojerdi S., Karami M.* Experimental Investigation of Graphene Nanoplatelets Nanofluid-based Volumetric Solar Collector for Domestic Hot Water Systems // Solar Energy. 2016. V. 131. P. 119.
14. *Stankovich S., Dikin D.A., Piner R.D., Kohlhaas K.A., Kleinhammes A., Jia Y., Ruoff R.S.* Synthesis of Graphene-based Nanosheets via Chemical Reduction of Exfoliated Graphite Oxide // Carbon. 2007. V. 45(7). P. 1558.
15. *Stankovich S., Piner R.D., Chen X., Wu N., Nguyen S.T., Ruoff R.S.* Stable Aqueous Dispersions of Graphitic Nanoplatelets via the Reduction of Exfoliated Graphite Oxide in the Presence of Poly (Sodium 4-styrenesulfonate) // J Materials Chem. 2006. V. 16(2). P. 155.
16. *Cassagneau T., Guérin F., Fendler J.H.* Preparation and Characterization of Ultrathin Films Layer-by-layer Self-assembled from Graphite Oxide Nanoplatelets and Polymers // Langmuir. 2000. V. 16(18). P. 7318.
17. *Kotov N.A., Dékány I., Fendler J.H.* Ultrathin Graphite Oxide–polyelectrolyte Composites Prepared by Self-assembly: Transition Between Conductive and Non-conductive States // Advanced Materials. 1996. 8(8). P. 637.
18. *Kovtyukhova N.I., Ollivier P.J., Martin B.R., Mallouk T.E., Chizhik S.A., Buzaneva E.V., Gorchinskiy A.D.* Layer-by-layer Assembly of Ultrathin Composite Films from Micron-sized Graphite oxide Sheets and Polycations // Chemistry of Materials. 1999. V. 11(3). P. 771.
19. *Nuncira J., Seara L.M., Sinisterra R.D., Caliman V., Silva G.G.* Long-term Colloidal Stability of Graphene Oxide Aqueous Nanofluids // Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures. 2020. V. 28(5). P. 407.
20. *Hirata M., Gotou T., Ohba M.* Thin-film Particles of Graphite Oxide. 2: Preliminary Studies for Internal Micro Fabrication of Single Particle and Carbonaceous Electronic Circuits // Carbon. 2005. V. 43(3). P. 503.
21. *Szabó T., Szeri A., Dékány I.* Composite Graphitic Nanolayers Prepared by Self-assembly Between Finely Dispersed Graphite Oxide and a Cationic Polymer // Carbon. 2005. V. 43(1). P. 87.
22. *Liu X., Wang X., Huang J., Cheng G., He Y.* Volumetric Solar Steam Generation Enhanced by Reduced Graphene Oxide Nanofluid // Applied Energy. 2018. V. 220. P. 302.
23. *Swinehart D.F.* The Beer–Lambert Law // Journal of Chemical Education. 1962. V. 39(7). P. 333.
24. *Xue Y., Zhu L., Chen H., Qu J., Dai L.* Multiscale Patterning of Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide for Flexible Supercapacitors // Carbon. 2015. V. 92. P. 305.
25. *Emiru T.F., Ayele D.W.* Controlled Synthesis, Characterization and Reduction of Graphene Oxide: A Convenient Method for Large Scale Production // Egyptian Journal of Basic and Applied Sciences. 2017. V. 4(1). P. 74.
26. *Niu Y., Fang Q., Zhang Z, Zhang P., Li Y.* Reduction and Structural Evolution of Graphene Oxide Sheets under Hydrothermal Treatment // Phys. Lett. A. 2016. V. 380. № 38. P. 3128.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 536–541

УДК 536.2.023; 532.591

ВЫСОКОСКОРОСТНОЕ РАЗРУШЕНИЕ ПЛЕНОК КОБАЛЬТА ПОД ДЕЙСТВИЕМ НАГРУЗОК, СОЗДАВАЕМЫХ ПИКОСЕКУНДНЫМ ЛАЗЕРНЫМ ИМПУЛЬСОМ

© 2023 г. Е. В. Струлева[1, *], П. С. Комаров[1], С. А. Евлашин[2], С. И. Ашитков[1]

[1]ФГБУН Объединенный институт высоких температур РАН (ОИВТ РАН), Москва, Россия

[2]Сколковский институт науки и технологий, Москва, Россия

*E-mail: struleva.evgenia@yandex.ru

Поступила в редакцию 01.06.2023 г.
После доработки 20.06.2023 г.
Принята к публикации 03.10.2023 г.

Проведено экспериментальное исследование движения тыльной свободной поверхности субмикронных пленочных образцов кобальта при воздействии лазерными импульсами пикосекундной длительности с различной плотностью энергии. Диагностика смещения свободной тыльной поверхности образца осуществлялась в пикосекундном диапазоне в одноимпульсном режиме методом спектральной интерферометрии. Получены данные об откольной прочности кобальта в конденсированном состоянии при скорости деформирования ~10^9 $с^{-1}$.

DOI: 10.31857/S0040364423040154

ВВЕДЕНИЕ

Современное развитие методов генерации и диагностики ударно-волновых явлений в твердых телах, в частности в тонких пленках, стимулировало развитие исследований поведения вещества вблизи теоретического предела прочности. Большой вклад в исследования прочностных и упруго-пластических свойств в условиях предельно малых длительностей нагрузок сделан при использовании пико- и фемтосекундных лазеров для генерации ультракоротких ударных волн [1–11]. Данные исследования важны для разработки и отладки широкодиапазонных уравнений состояния вещества, атомистического моделирования, для развития теории прочности и пластичности, в расчетах функционирования различных технических устройств в условиях интенсивных импульсных воздействий.

Известно, что предел текучести заметно возрастает при увеличении скорости нагружения. Эта зависимость резко усиливается при превышении скорости деформирования 10^3–10^4 $с^{-1}$. Результаты последних исследований ударно-волновых явлений в металлах при воздействии ультракороткими лазерными импульсами выявили возможность реализации в этих условиях сдвиговых и растягивающих напряжений, близких к предельно возможным (“идеальным”) значениям сдвиговой и объемной прочности.

Динамическая прочность материалов при нагрузках ультракороткой длительности определяется по результатам исследования явлений, возникающих при отражении импульса сжатия от свободной поверхности образца. В результате интерференции падающей и отраженной волн внутри образца возникают растягивающие напряжения. При превышении величины растягивающих напряжений σ^- такой критической величины, как прочность материала σ_{spall}, происходит его разрушение [12]. Релаксация напряжений при откольном разрушении приводит к образованию волн сжатия, которые начинают распространяться в обе стороны от поверхности откола. Достигнув свободной поверхности, вторичная волна сжатия приводит к повторному возрастанию скорости. Таким образом, на временном профиле скорости свободной поверхности при откольном разрушении формируется так называемый откольный импульс [12].

Исследование поведения кобальта как ферромагнитного и высокопрочного конструкционного материала оказывается актуальным в связи с широкой областью его практического применения в промышленности и энергетике. Статическое механическое поведение кобальта достаточно интенсивно изучалось как в окрестности температуры фазового ($\varepsilon \rightarrow \alpha$)-превращения при 695 K, так и в широком диапазоне температур 300–1450 K [13–15]. В то же время по сравнению с другими металлами исследованиям кобальта в условиях ударно-волнового нагружения уделено заметно меньше внимания. Хотя ударная адиабата кобальта известна достаточно давно [16], в настоящее время имеется ограниченный круг работ, посвященных измерению температурно-скоростных зависимостей сопротивления деформированию и

разрушению кобальта в области полиморфного превращения и точки Кюри (1390 K) в диапазоне скоростей деформирования от 10^5 до 10^6 $с^{-1}$ [17–19].

Несмотря на общее понимание физики и механики высокоскоростного деформирования и разрушения, детальное согласие теоретических представлений и моделей этих явлений с имеющимися экспериментальными данными пока не достигнуто. Существует потребность в накоплении экспериментальных данных такого рода в предельно широком диапазоне параметров для различных материалов.

В данной работе с помощью интерферометрической методики непрерывной регистрации движения поверхности с использованием частотно-модулированного (чирпированного) диагностического импульса измерена откольная прочность кобальта вблизи предела теоретической прочности при скорости деформирования 10^9 $с^{-1}$.

ЭКСПЕРИМЕНТ

При исследовании ударно-волновых явлений в тонких пленках методом спектральной интерферометрии с пространственным и временны́м разрешением регистрировался волновой профиль смещения свободной поверхности образца $z_{\text{fs}}(t)$.

В качестве источника лазерных импульсов использовалась титан-сапфировая фемтосекундная лазерная система, реализованная по принципу усиления чирпированных импульсов. Длина волны лазерного излучения равна 800 нм, энергия в одном импульсе – до 2 мДж. С целью уменьшения интенсивности при фокусировке излучения на мишень и исключения возникновения нелинейных эффектов и оптического пробоя в стекле длительность излучения увеличена до 1 пс.

Экспериментальным образцом служила пленка кобальта толщиной 330 ± 10 нм, нанесенная магнетронным методом на стеклянную подложку толщиной 180 мкм.

Для напыления материалов использовалась установка магнетронного распыления [20]. Перед напылением пленок установка вакуумировалась до ~10^{-5} Торр, после чего производился напуск аргона до достижения давления 5×10^{-2} Торр. Распыление производилось при постоянном токе без подогрева подложки. Перед напылением проводилось предварительное распыление материала мишени в течение 500 с, что обеспечивало очистку поверхности магнетронной мишени. Диаметр мишени составлял 68 мм, расстояние между мишенью и подложкой – 4 см. При распылении удельная мощность разряда – 44 $Вт/см^2$, что соответствует скорости напыления 1 нм/с. Толщина образцов определялась электронным сканирующим микроскопом (СЭМ) в области воздействия лазерного излучения (рис. 1).

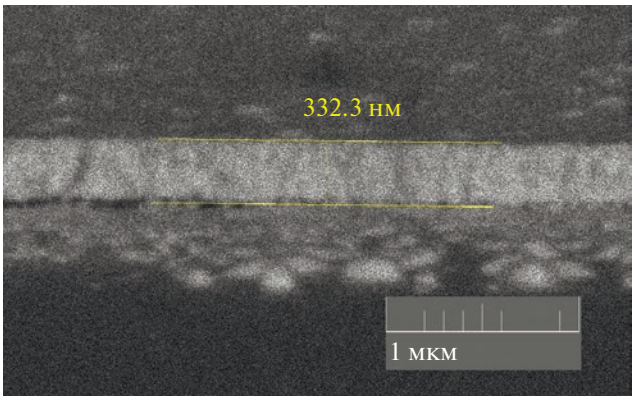

Рис. 1. СЭМ-изображение фрагмента кратера на образце кобальта.

В ходе эксперимента нагревающее лазерное излучение фокусировалось на образец со стороны стеклянной подложки. Регистрация смещения при выходе ударной волны проводилась на тыльной (свободной) поверхности.

Нагревающее излучение фокусировалось в эллиптическое пятно с гауссовым распределением интенсивности. Размер пятна определялся по известной методике по зависимости размера кратера от энергии лазерного импульса [21]. Из-за наклонного падения фокальное пятно на мишени было эллиптической формы радиусом r_{0x} = 35 мкм, r_{0y} = 26 мкм по уровню e^{-1}. Энергия нагревающего лазерного импульса не превышала 165 мкДж, что соответствовало плотности энергии 5.8 $Дж/см^2$ и интенсивности 5.8×10^{12} $Вт/см^2$, т.е. меньше порога оптического пробоя в стекле ~10^{13} $Вт/см^2$ [22, 23].

Энергия в каждом импульсе изменялась при помощи поляризационного ослабителя, который представлял собой полуволновую пластину и пленочный поляризатор. Контроль энергии осуществлялся калиброванным фотодиодом ThorLabs PDA 50B-EC.

Для диагностики использовался чирпированный импульс длительностью 300 пс с шириной спектра 40 нм и центральной длиной волны 800 нм. Для измерения динамики смещения тыльной свободной поверхности образца применялся интерферометр Майкельсона, совмещенный с дифракционным спектрометром Acton-2300i (схема Черни–Тернера) с решеткой 600 штрих/мм (рис. 2). Перенос изображения осуществлялся с помощью микрообъектива Olympus с числовой апертурой NA = 0.3, полученные изображения регистрировались с помощью ПЗС-камеры SensiCam QE с матрицей размером 1420 × 1080 $пкс^2$ и разрядностью 12 бит. Временное разрешение схемы измерений составляло 1 пс, пространственное разрешение в плоскости мишени – 3 мкм. После каждого воздействия мишень сдвигалась на 300 мкм на новое место с помощью микроманипулятора.

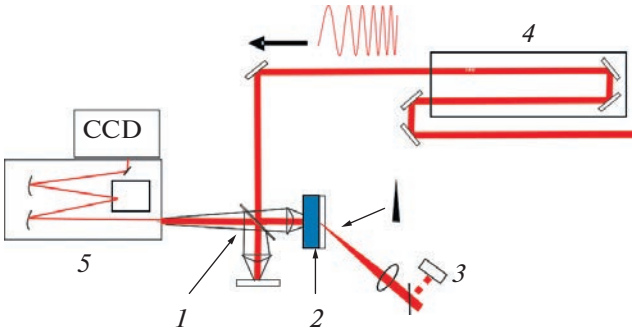

Рис. 2. Схема эксперимента: *1* – интерферометр Майкельсона, *2* – мишень, *3* – фотодиод, *4* – линия задержки, *5* – спектрометр.

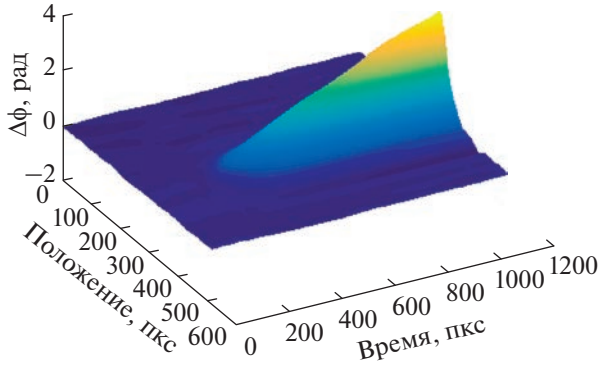

Рис. 3. Пространственно-временно́е распределение изменения фазы диагностического импульса $\Delta\phi(x,t)$ при выходе ударной волны на свободную тыльную поверхность образца; масштаб по оси времени – 0.164 пс/пкс, пространственный масштаб по оси координат – 0.3 мкм/пкс.

В каждом эксперименте записывались три типа интерферограмм: интерферограмма поверхности образца до воздействия (начальная), в момент воздействия ударной волны (временная) и после окончания процесса – спустя несколько секунд после воздействия (финальная). Сопоставление начальной и временной интерферограмм дает информацию о динамике ударно-волнового процесса.

Фурье-преобразование полученных интерферограмм проводилось в соответствии с методикой, описанной в работах [24–26]. Алгоритм анализа двумерных интерферограмм обеспечивает погрешность измерения изменения фазы отраженного импульса $\Delta\phi \approx 0.01$ рад, что соответствует погрешности определения смещения $\Delta z \approx 1$–2 нм. Полученное значение изменения фазы $\Delta\phi(t)$ позволяет рассчитать смещение поверхности $z_{fs}(t)$ по формуле

$$z_{fs}(t) = \frac{\Delta\phi(t)\lambda}{4\pi}.$$

На рис. 3 приведено пространственно-временно́е распределение $\Delta\phi(x,t)$, описывающее динамику пространственно-неоднородного движения тыльной свободной поверхности пленочного образца магниевого сплава толщиной $h = 330$ нм в момент выхода ударной волны, генерируемой лазерным импульсом с энергией $E = 48$ мкДж.

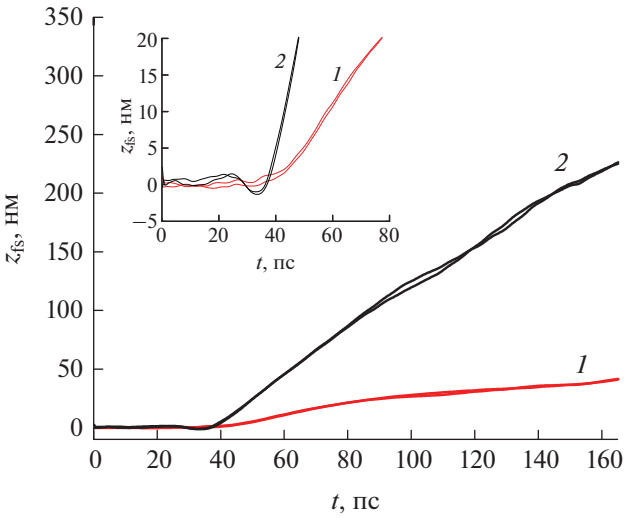

Рис. 4. Временные профили смещения свободной поверхности $z_{fs}(t)$ пленочного образца кобальта толщиной 330 нм для энергий лазерных импульсов E: *1* – 8 мкДж, *2* – 48; на вставке – увеличенный фрагмент; нулевой момент времени на графиках выбран произвольно.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 4 представлены временные профили смещения $z_{fs}(t)$ тыльной свободной поверхности пленочного образца кобальта при значениях энергии лазерного импульса $E_1 = 8$ мкДж и $E_2 = 48$ мкДж. Все профили $z_{fs}(t)$ построены для центральной области взаимодействия. Измеренные профили показывают хорошую воспроизводимость во всем временно́м диапазоне регистрации. С уменьшением энергии нагревающего импульса наблюдается уменьшение наклона зависимостей $z_{fs}(t)$ на начальном участке. Для энергии лазерного импульса $E_2 = 48$ мкДж наблюдаемое перед выходом ударной волны изменение фазы, очевидно, связано с изменением диэлектрической проницаемости сжатой среды [8, 27, 28].

На рис. 5 для двух лазерных импульсов с различной энергией построены профили скорости $u_{fs}(t)$. Профили $u_{fs}(t)$ получены в результате дифференцирования экспериментальных зависимостей $z_{fs}(t)$ с последующей итерационной обработкой.

Результаты измерений показали отсутствие расщепления ударной волны на упругую и пластическую при рассматриваемых расстояниях распространения и напряжениях сжатия. Во всех экспе-

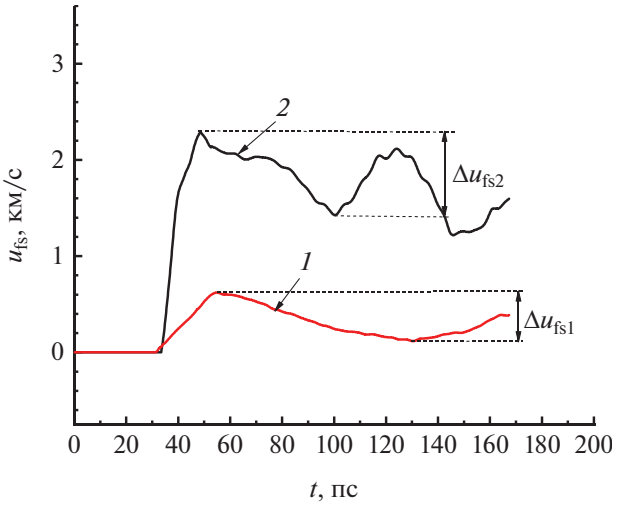

Рис. 5. Временные профили скорости движения свободной поверхности $u_{fs}(t)$ пленочного образца кобальта при различной энергии ЛИ E: *1* – 8 мкДж, *2* – 48.

рименталх, результаты которых приведены на рис. 5, волна сжатия является упругой. Профили $u_{fs}(t)$ обладают характерной треугольной формой. Время нарастания скорости свободной поверхности варьируется от нескольких единиц до десятка пикосекунд в зависимости от энергии лазерного излучения и уменьшается с ростом амплитуды импульса сжатия.

На графике скорости при энергии $E_2 = 48$ мкДж (рис. 5, кривая *2*) после откола наблюдаются затухающие колебания в результате переотражения волн между поверхностью откола и свободной поверхностью образца.

Величина растягивающего напряжения в твердом образце непосредственно перед разрушением в ударно-волновых экспериментах определяется по декременту скорости Δu_{fs} между ее максимальным значением и значением перед откольным импульсом [12]. В акустическом приближении, когда вклад нелинейности сжимаемости вещества незначителен, метод характеристик дает простую формулу для расчета величины откольной прочности

$$\sigma_{spall} = \rho_0 c \Delta u_{fs}/2,$$

где ρ_0 – плотность материала, c – скорость звука. В связи с возможными упругопластическими эффектами при отколе расчетная формула в линейном приближении для импульсов нагрузки треугольного профиля принимает вид [29, 30]

$$\sigma_{spall} = \rho_0 c_l \Delta u_{fs} \frac{1}{1 + c_l/c_b}, \quad (1)$$

где $\rho_0 = 8.9$ г/см^3 – начальная плотность, $c_l = 5.78$ км/с – продольная скорость звука, $c_b = 4.62$ км/с – объемная скорость звука в кобальте [19].

Под скоростью деформирования $\dot{\varepsilon}$ в ударно-волновых экспериментах понимается скорость расширения вещества в волне разряжения. Скорость деформирования определяется соотношением [12]

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\Delta u_{fs}}{\Delta t} \frac{1}{2c_l}. \quad (2)$$

Толщину откольного слоя можно оценить по формуле [1, 31]

$$L_{spall} \approx c_l \Delta t/2, \quad (3)$$

где $\Delta t = t_{spall} - t_{max}$ – разность между моментом выхода откольного импульса и временем достижения максимального значения скорости u_{fs}^{max}.

Из рис. 5 при $E_1 = 8$ мкДж значение декремента скорости получается $\Delta u_{fs1} = 0.5$ км/с, тогда по соотношению (1) откольная прочность составляет $\sigma_{spall} = 11.4 \pm 2$ ГПа при скорости деформирования по (2) $\dot{\varepsilon} \approx 0.6 \times 10^9$ с$^{-1}$. При значении $\Delta t \approx 75$ пс, согласно (3), разрушение происходит на глубине $L_{spall} \approx 216$ нм.

При большей вложенной энергии ($E_2 = 48$ мкДж) значения декремента скорости и откольной прочности составляют соответственно $\Delta u_{fs2} = 0.86$ км/с и $\sigma_{spall} = 19.7 \pm 3$ ГПа при скорости деформирования $\dot{\varepsilon} \approx 1.4 \times 10^9$ с$^{-1}$. Здесь $\Delta t \approx 52$ пс и откольное разрушение происходит на меньшей глубине $L_{spall} \approx 150$ нм.

Если величина растягивающих напряжений σ^- превышает объемную прочность материала σ_{spall}, то откол происходит вблизи тыльной поверхности в твердом состоянии. В случае, если $\sigma^- < \sigma_{spall}$, волна растяжения распространяется от тыльной поверхности по направлению к границе металл–стекло. Время удвоенного пробега образца акустической волной для пленок субмикронной толщины составляет от десятков до сотен пикосекунд, что меньше характерного времени кристаллизации расплава, лежащего в наносекундном диапазоне [32]. Поскольку прочность расплава меньше прочности твердой фазы, то волна растяжений, достигая границы расплава, приводит к возникновению нуклеации в расплаве с последующим его разрывом. В работе [32] проведено моделирование эволюции волн сжатия и растяжения, а также возникновения нуклеации в расплаве для пленочного образца алюминия.

На рис. 6 сопоставлены результаты для откольной прочности, полученные в настоящей работе, с имеющимися литературными данными по динамической прочности кобальта в твердом состоянии [17, 18].

С увеличением скорости растяжения имеет место существенное увеличение динамической прочности кобальта на разрыв. При этом данные суб-

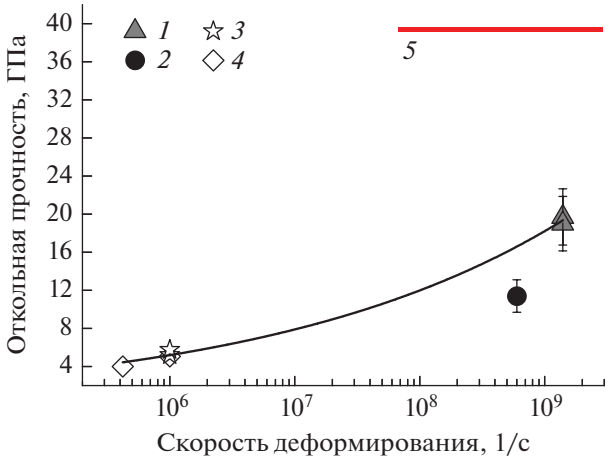

Рис. 6. Результат измерения откольной прочности кобальта в твердой (*1*) и жидкой (*2*) фазе в зависимости от скорости деформирования по данным настоящей работы в сравнении с данными экспериментов по соударению пластин и с генерацией ударной волны протонным пучком: *3* – [17], *4* – [18]; *5* – “идеальная” прочность.

микросекундного диапазона и полученные данные при $E_2 = 48$ мкДж хорошо аппроксимируются эмпирической зависимостью вида (кривая на рис. 6)

$$\sigma_{spall} = 0.42\left(\frac{\dot{\varepsilon}}{10^8}\right)^{0.18}.$$

В то же время при меньшей энергии лазерного излучения измеренное значение прочности лежит заметно ниже этой зависимости.

Характерная глубина плавления металла при фемтосекундном нагреве зависит как от параметров лазерного излучения, так и от теплопроводности металла и времени выравнивания температур электронной и ионной подсистем и составляет порядка 50–200 нм [4, 32, 33]. Из полученных оценок L_{spall} и σ_{spall} следует, что при энергии лазерного излучения $E_1 = 8$ мкДж велика вероятность откола на границе с расплавленным слоем кобальта или в расплаве. Откол при $E_2 = 48$ мкДж происходит в твердой фазе, где прочность вещества выше, чем в жидком состоянии. Таким образом, при плавлении откольная прочность кобальта уменьшается почти вдвое. Это соотносится с результатом оценки прочности жидкого алюминия вблизи порога плавления из работы [32]. Согласно теоретическим представлениям [34], прочность жидкости и время до ее кавитационного разрушения при растяжении определяются скоростью спонтанного зарождения пузырьков критического размера, которая сильно возрастает с повышением температуры. При этом прочность расплава растет с увеличением скорости растяжения и уменьшается с ростом температуры [35].

Предельное значение прочности при растяжении (“идеальная” прочность σ_{id}) можно оценить по выражению [12]

$$\sigma_{id} \approx \rho_0 c_0^2/4b,$$

где $c_0 = 4.772$ км/с, $b = 1.285$ – параметры ударной адиабаты $U_s = c_0 + bu_p$ (U_s – скорость фронта ударной волны, u_p – массовая скорость вещества за фронтом) [36]. Это дает для кобальта $\sigma_{id} = 39.4$ ГПа. Таким образом, в настоящей работе удалось достичь значения динамической прочности σ_{spall} кобальта в твердой и жидкой фазах при скорости деформирования ~10^9 c^{-1}, которое составляет около $\sigma_{spall} = 50$ и 29% от значения “идеальной” прочности в твердом состоянии.

Результаты экспериментов с лазерными ударными волнами и образцами субмикронной толщины могут быть согласованы со сведениями, полученными на образцах миллиметровой толщины в экспериментах по соударению пластин [18] и при генерации ударной волны протонным пучком [17, 18]. Это позволяет спрогнозировать поведение кобальта в широком диапазоне скоростей деформации – от 10^5 до 10^9 c^{-1}. Также эти исследования представляют интерес для молекулярно-динамического моделирования разрушения кобальта в пикосекундном диапазоне нагрузки.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе интерферометрическим методом непрерывной диагностики с пикосекундным разрешением исследована динамика движения свободной (тыльной) поверхности кобальта при выходе упругой ударной волны, генерируемой лазерными импульсами пикосекундной длительности. Получено значение откольной прочности кобальта в твердой и жидкой фазах, равное 19.7 ± 3 и 11.4 ± 2 ГПа при скоростях деформирования 1.4×10^9 и 0.6×10^9 c^{-1} соответственно.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН № 075-01129-23-00 от 29.12.2022 г.) на оборудовании ЦКП “Лазерный фемтосекундный комплекс” ОИВТ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ашитков С.И., Агранат М.Б., Канель Г.И., Комаров П.С., Фортов В.Е.* Поведение алюминия вблизи предельной теоретической прочности в экспериментах с фемтосекундным лазерным воздействием // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 92. № 8. С. 568.
2. *Whitley V.H., McGrane S.D., Eakins D.E., Bolme C.A., Moore D.S., Bingert J.F.* The Elastic-Plastic Response of Aluminum Films to Ultrafast Laser-generated Shocks // Appl. Phys. 2011. V. 109. № 1. 013505.
3. *Crowhurst J.C., Armstrong M.R., Knight K.B., Zaug J.M., Behymer E.M.* Invariance of the Dissipative Action at

Ultrahigh Strain Rates above the Strong Shock Threshold // Phys. Rev. Lett. 2011. V. 107. № 14. P. 144302.

4. *Demaske B.J., Zhakhovsky V.V., Inogamov N.A., Oleynik I.I.* Ultrashort Shock Waves in Nickel Induced by Femtosecond Laser Pulses // Phys. Rev. B. 2013. V. 87. № 5. P. 054109.
5. *Ashitkov S.I., Agranat M.B., Kanel G.I., Fortov V.E.* Approaching the Ultimate Shear and Tensile Strength of Aluminum in Experiments with Femtosecond Pulse Laser // AIP Conf. Proc. 2012. V. 1426. № 1. P. 1081.
6. *Аширков С.И., Комаров П.С., Агранат М.Б., Канель Г.И., Фортов В.Е.* Реализация предельных значений объемной и сдвиговой прочности железа при воздействии фемтосекундными лазерными импульсами // Письма в ЖЭТФ. 2013. Т. 98. № 7. С. 439.
7. *Crowhurst J.C., Reed B.W., Armstrong M.R., Radousky H.B., Carter J.A., Swift D.C., Zaug J.M. et al.* The $\alpha \rightarrow \varepsilon$ Phase Transition in Iron at Strain Rates up to $\sim 10^9$ s^{-1} // J. Appl. Phys. 2014. V. 115. № 11. 113506.
8. *Аширков С.И., Комаров П.С., Струлева Е.В., Агранат М.Б., Каннель Г.И.* Механические и оптические свойства ванадия под действием ударных нагрузок пикосекундного диапазона // Письма в ЖЭТФ. 2015. Т. 101. № 4. С. 294.
9. *Струлева Е.В., Комаров П.С., Аширков С.И.* Откольная прочность титана при высокоскоростном растяжении // ТВТ. 2020. Т. 58. № 5. С. 823.
10. *Струлева Е.В., Комаров П.С., Евлашин С.А., Аширков С.И.* Поведение магниевого сплава при высокоскоростной деформации под действием ударноволновой нагрузки // ТВТ. 2022. Т. 60. № 5. С. 793.
11. *Ashitkov S., Komarov P., Romashevskiy S., Struleva E., Evlashin S.* Shock Compression of Magnesium Alloy by Ultrashort Loads Driven by Sub-Picosecond Laser Pulses // J. Appl. Phys. 2022. V. 132. № 17. P. 175104.
12. *Канель Г.И., Фортов В.Е., Разоренов С.В.* Ударные волны в физике конденсированного состояния // УФН. 2007. Т. 177. № 8. С. 809.
13. *Kamel R., Halim K.* The Effect of Phase Change on the Mechanical Properties of Cobalt Near Its Transformation Temperature // Phys. Status Solidi B. 1966. V. 15. № 1. P. 63.
14. *Sokolov L.D., Gladkikh A.N., Skudnov V.A., Solenov V.M.* Mechanical Properties of Cobalt at Different Temperatures and Deformation Rates // Metal Sci. Heat Treat. 1969. V. 11. P. 626.
15. *Betteridge W.* The Properties of Metallic Cobalt // Prog. Mater. Sci. 1980. V. 24. P. 51.
16. *Walsh J.M., Rice M.H., McQueen R.G., Yarger F.L.* Shock-Wave Compressions of Twenty-Seven Metals. Equations of State of Metals // Phys. Rev. 1957. V. 108. P. 196.
17. *Baumung K., Bluhm H., Kanel G.I., Muller G., Razorenov S.V., Singer J., Utkin A.V.* Tensile Strength of Five Metals and Alloys in the Nanosecond Load Duration Range at Normal and Elevated Temperatures // Int. J. Impact Eng. 2001. V. 25. № 7. P. 631.
18. *Razorenov S.V., Kanel' G.I., Kramshonkov E.N., Baumung K.* Shock Compression and Spalling of Cobalt at Normal and Elevated Temperatures // Combust., Explos. Shock Waves. 2002. V. 38. № 5. P. 598.
19. *Zaretsky E.* Impact Response of Cobalt over the 300–1400 K Temperature Range // J. Appl. Phys. 2010. V. 108. № 8. P. 083525.
20. *Khmelnitsky R.A., Evlashin S.A., Martovitsky V.P., Pastchenko P.V., Dagesian S.A., Alekseev A.A., Suetin N.V., Gippius A.A.* Heteroepitaxy of Ni-Based Alloys on Diamond // Cryst. Growth Des. 2016. V. 16. № 3. P. 1420.
21. *Liu J.M.* Simple Technique for Measurements of Pulsed Gaussian-Beam Spot Sizes // Opt. Lett. 1982. V. 7. № 5. P. 196.
22. *Moore D.S., Gahagan K.T., Reho J.H., Funk D.J., Buelow S.J., Rabie R.L., Lippert T.* Ultrafast Nonlinear Optical Method for Generation of Planar Shocks // Appl. Phys. Lett. 2001. V. 78. № 1. P. 40.
23. *Von der Linde D., Schuler H.* Breakdown Threshold and Plasma Formation in Femtosecond Laser–Solid Interaction // J. Opt. Soc. Am. B. 1996. V. 13. № 1. P. 216.
24. *Струлева Е.В., Комаров П.С., Аширков С.И.* Интерферометрическая диагностика нанодеформаций поверхности мишени в пикосекундном диапазоне при импульсном лазерном воздействии // Вестник Объединенного института высоких температур. 2018. Т. 1. № 1. С. 130.
25. *Geindre J.P., Audebert P., Rebibo S., Gauthier J.C.* Single-Shot Spectral Interferometry with Chirped Pulses // Opt. Lett. 2001. V. 26. № 20. P. 1612.
26. *Temnov V.V., Sokolovski-Tinten K., Zhou P., von der Linde D.* Ultrafast Imaging Interferometry at Femtosecond Laser-Excited Surfaces // J. Opt. Soc. Am. B. 2006. V. 23. № 9. P. 1954.
27. *Funk D.J., Moore D.S., Gahagan K.T., Buelow S.J., Reho J.H., Fisher G.L., Rabie R.L.* Ultrafast Measurement of the Optical Properties of Aluminum During Shock-Wave Breakout // Phys. Rev. B. 2001. V. 64. P. 115114.
28. *Gahagan K.T., Moore D.S., Funk D.J., Rabie R.L., Buelow S.J., Nicholson J.W.* Measurement of Shock Wave Rise Times in Metal Thin Films // Phys. Rev. Lett. 2000. V. 85. № 15. P. 3205.
29. *Kanel G.I.* Spall Fracture: Methodological Aspects, Mechanisms and Governing Factors // Int. J. Fract. 2010. V. 163. P. 173.
30. *Степанов Г.В.* Откольное разрушение металлов плоскими упругопластическими волнами нагрузки // Проблемы прочности. 1976. № 8. С. 66.
31. *Канель Г.И.* Искажение волновых профилей при откольном в упругопластическом теле // ПМТФ. 2001. Т. 42. № 2. С. 194.
32. *Агранат М.Б., Анисимов С.И., Аширков С.И., Жаховский В.В., Иногамов Н.А., Комаров П.С., Овчинников А.В. и др.* Прочностные свойства расплава алюминия в условиях экстремально высоких темпов растяжения при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 91. № 9. С. 517.
33. *Anisimov S.I., Inogamov N.A., Petrov Y.V., Khokhlov V.A., Zhakhovskii V.V., Nishihara K., Agranat M.B. et al.* Thresholds for Front-side Ablation and Rear-side Spallation of Metal Foil Irradiated by Femtosecond Laser Pulse // Appl. Phys. A. 2008. V. 92. P. 797.
34. *Balibar S., Caupin F.* Metastable Liquids // J. Phys.: Condens. Matter. 2003. V. 15. № 1. P. S75.
35. *Mayer A.E., Mayer P.N.* Continuum Model of Tensile Fracture of Metal Melts and its Application to a Problem of High-Current Electron Irradiation of Metals // J. Appl. Phys. 2015. V. 118. № 3. P. 035903.
36. *Marsh S.P.* LASL Shock Hugoniot Data. Los Alamos Scientific Laboratory Series on Dynamic Material. Berkeley–Los Angeles–London: University of California Press, 1980. V. 5. P. 56.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 542–548

УДК 536.7

ИЗУЧЕНИЕ ДИНАМИКИ ВОЛНОВЫХ ПРОЦЕССОВ СЖАТИЯ И РАСШИРЕНИЯ В ПАЛЛАДИИ ПРИ ПИКОСЕКУНДНОМ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ

© 2023 г. А. Ю. Семенов[1, 2], С. А. Абросимов[1], И. А. Стучебрюхов[1, 3], К. В. Хищенко[2, 4, 5, 6, *]

[1]Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, г. Москва, Россия
[2]Московский физико-технический институт, г. Долгопрудный, Россия
[3]Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, г. Москва, Россия
[4]Объединенный институт высоких температур РАН, г. Москва, Россия
[5]Южно-Уральский государственный университет, г. Челябинск, Россия
[6]Федеральный исследовательский центр проблем химической физики и медицинской химии РАН, г. Черноголовка, Россия
*E-mail: konst@ihed.ras.ru

Поступила в редакцию 31.12.2022 г.
После доработки 02.08.2023 г.
Принята к публикации 03.08.2023 г.

Исследуются процессы в плоской мишени из палладия при облучении интенсивным лазерным импульсом пикосекундной длительности. В эксперименте определяются параметры облучающего импульса, а также глубина откольной выемки, образующейся в результате сложного течения волн сжатия и расширения по веществу. Динамика взаимодействия этих волн моделируется с использованием нового уравнения состояния палладия в широком диапазоне плотностей и давлений. По результатам эксперимента и численного моделирования оценивается максимальное растягивающее напряжение в плоскости откола при высокой скорости растяжения.

DOI: 10.31857/S0040364423040130

ВВЕДЕНИЕ

Источники интенсивного лазерного излучения позволяют исследовать свойства материалов в экстремальных условиях при высоких плотностях энергии [1–4]. При облучении мишени лазерным импульсом достаточно высокой интенсивности в результате взаимодействия электромагнитных волн с веществом вблизи поверхности образуется область с высокой температурой и высоким давлением. Дальнейшее движение вещества происходит в стороны меньшего противодавления. В частности, в глубь мишени уходит импульс сжатия, а со свободной (облучаемой) поверхности мишени вещество разлетается в противоположном направлении.

Исследование динамики волновых процессов сжатия и расширения (разлета) материала мишени представляет интерес для построения моделей поведения вещества в широкой области возникающих состояний [5–10]. Для численного моделирования движения среды требуется уравнение состояния исследуемого материала во всем диапазоне плотностей и давлений, включая область растягивающих напряжений [11–16]. Информация, полученная в эксперименте, позволяет сопоставить численную модель с измеряемыми параметрами процесса.

Настоящая работа посвящена экспериментальному и теоретическому изучению поведения палладия при воздействии интенсивным лазерным импульсом пикосекундной длительности. Для гидродинамического моделирования исследуемого процесса разработано уравнение состояния этого металла в широком диапазоне плотностей и давлений, которое оптимальным образом описывает имеющиеся данные ударно-волновых экспериментов. Результаты моделирования при измеренных параметрах лазерного импульса и мишени позволяют оценить прочность материала при высокой скорости растяжения.

ПОСТАНОВКА И РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Эксперимент проведен на установке “Камертон-Т” [4, 17, 18] с лазером на неодимовом стекле (использована вторая гармоника с длиной волны $\lambda = 0.527$ мкм). Лазерный импульс длительностью (ширина на высоте половины от максимальной интенсивности) $\tau = 70$ пс и энергией $E_L = 1.164$ Дж фокусировался в пятно диаметром 0.414 мм на поверхности палладиевой мишени толщиной 90 мкм. Учитывая измеренную зависимость интенсивности лазерного излучения от времени [19], оценка

максимальной интенсивности I_0 этого импульса дает значение 11.08 ТВт/см^2. В результате действия такого импульса часть материала на тыльной стороне мишени откололась. Глубина откольной выемки составила 12 ± 1 мкм, диаметр отколотой пластины – 0.460 мм.

УРАВНЕНИЕ СОСТОЯНИЯ ПАЛЛАДИЯ

Для моделирования динамики процесса, протекающего в мишени в результате облучения лазерным импульсом, путем решения системы уравнений движения вещества необходимо замкнуть эту систему уравнением состояния исследуемого материала. Уравнение состояния палладия во всей реализуемой области плотностей ρ и давлений P можно построить в рамках полуэмпирического подхода на основе модельной зависимости $P(V, E)$ [20–25]. Здесь V – удельный объем, $V = 1/\rho$; E – удельная внутренняя энергия. Этот подход позволяет получить уравнение состояния в удобной для расчетов форме, причем согласующееся с имеющимися данными [26] из ударно-волновых экспериментов.

Зависимость давления от объема и внутренней энергии задается в виде суммы слагаемых, соответствующих "холодной" кривой (изотерма нулевой температуры, $T = 0$) и тепловой составляющей [20]:

$$P(V,E) = P_c(V) + \frac{\Gamma(V,E)}{V}\left[E - E_c(V)\right], \qquad (1)$$

где $P_c = -dE_c/dV$, E_c – давление и удельная внутренняя энергия при $T = 0$; Γ – отношение тепловой составляющей давления к тепловой составляющей плотности энергии.

Внутренняя энергия на холодной кривой выражается суммой степенных функций:

$$E_c(V) = \frac{V_{0c}B_{0c}}{mn}\left(\frac{n\varsigma^m - m\varsigma^n}{m-n} + 1\right), \qquad (2)$$

где V_{0c}, B_{0c} – удельный объем и модуль сжатия при $P = 0$ и $T = 0$; $\varsigma = V_{0c}/V$; m, n – константы. Давление на холодной кривой получается путем дифференцирования (2):

$$P_c(V) = B_{0c}\frac{\varsigma^{m+1} - \varsigma^{n+1}}{m-n}. \qquad (3)$$

Тепловая часть давления определяется с помощью коэффициента Γ, зависящего от объема и внутренней энергии [8, 22–25]:

$$\Gamma(V,E) = \gamma_i + \frac{\gamma_c(V) - \gamma_i}{1 + \sigma^{-2/3}\left[E - E_c(V)\right]/E_a}, \qquad (4)$$

где $\sigma = V_0/V$ – степень сжатия; V_0 – удельный объем при нормальных условиях ($P = P_0$ и $E = E_0$); γ_c – коэффициент Грюнайзена при $T = 0$; γ_i, E_a – константы. Функция γ_c от объема формулируется в виде

$$\gamma_c(V) = 2/3 + (\gamma_{0c} - 2/3)\frac{\delta_n + \ln^2\sigma_m}{\delta_n + \ln^2(\sigma/\sigma_m)}, \qquad (5)$$

где γ_{0c}, δ_n, σ_m – константы.

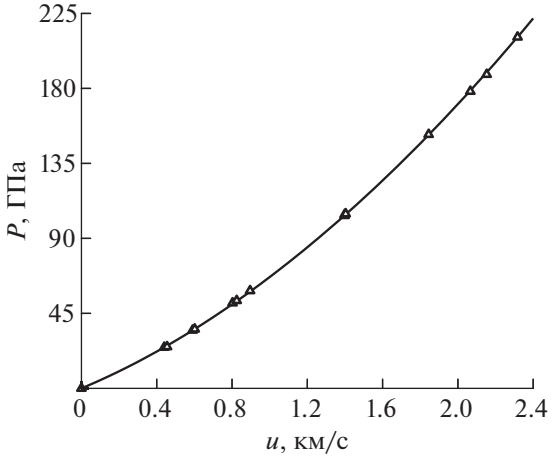

Рис. 1. Давление на ударной адиабате палладия в зависимости от массовой скорости: линия – результат расчета по представленному уравнению состояния для образцов с начальной плотностью $\rho_0 = 12$ г/см^3, маркеры – экспериментальные данные [26].

Параметры уравнения состояния палладия в модели (1)–(5) взяты следующие: $V_0 = 0.083333$, $V_{0c} = 0.082742$ см^3/г, $B_{0c} = 191.361$ ГПа, $m = 1.85$, $n = 1.87$, $\sigma_m = 0.8$, $\delta_n = 1$, $\gamma_{0c} = 1.12$, $\gamma_i = 0.45$, $E_a = 26$ кДж/г.

Расчетная ударная адиабата для образцов палладия с исходной нормальной плотностью $\rho_0 = 1/V_0$ показана на рис. 1 в сопоставлении с экспериментальными данными [26]. Полученное уравнение состояния адекватно имеющимся для палладия данным из экспериментов с ударными волнами.

МОДЕЛИРОВАНИЕ УДАРНО-ВОЛНОВОГО ТЕЧЕНИЯ В МИШЕНИ

Рассматривается одномерное течение в веществе вдоль оси x, направленной перпендикулярно облучаемой поверхности в глубь мишени. Система уравнений гидродинамики для этого случая имеет следующий общий вид [27, 28]:

$$\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{U} + \frac{\partial}{\partial x}\mathbf{F} = 0, \qquad (6)$$

$$\mathbf{U} = \begin{pmatrix} \rho \\ \rho u \\ \rho v \\ \rho w \\ e \end{pmatrix}, \quad \mathbf{F} = \begin{pmatrix} \rho u \\ \rho u^2 + P \\ \rho uv \\ \rho uw \\ (e+P)u \end{pmatrix}, \qquad (7)$$

где t – время; u – скорость вещества вдоль оси x; $v = 0$, $w = 0$; e – плотность полной энергии:

$$e = \rho E + \frac{1}{2}\rho\left(u^2 + v^2 + w^2\right). \quad (8)$$

Система уравнений (6)–(8) замыкается уравнением состояния $P = P(1/\rho, E)$, которое представлено в предыдущем разделе. Замкнутая система уравнений (1)–(8) может быть решена методом Куранта–Изааксона–Риса [29]. Метод численного решения подробно описан в работах [27, 28, 30].

В качестве начальных условий для решения принято $u = v = w = 0$, $P = P_0 = 0.1$ МПа, $\rho = \rho_0 = 12$ г/см^3, а также $E = E_0$ согласно уравнению состояния $P_0 = P(1/\rho_0, E_0)$.

На левой (облучаемой) поверхности мишени полагается, что в течение некоторого времени длительностью t_1 давление прямо пропорционально интенсивности лазерного излучения, приближенно равной

$$I_L(t) = 16^{-(t-t_0)^2\tau^{-2}} I_0. \quad (9)$$

Это предположение дает граничное условие для решения

$$P(t) = \begin{cases} 0, & t \le 0; \\ P_a I_0^{-1} I_L(t), & 0 < t < t_1; \\ 0, & t_1 \le t. \end{cases} \quad (10)$$

Давление P_a, являющееся благодаря условиям (9), (10) максимальным в рассматриваемой задаче, определяется согласно соотношению [31] (подтвержденному в эксперименте [32]), при $4.3 < I_0 \le 1000$ ТВт/см^2:

$$P_a = P_{a0}\left(\frac{\lambda_{i0} I_0}{\lambda}\right)^{2/3}\left[\frac{A_u}{2Z}\right]^{3/16}, \quad (11)$$

в котором $P_{a0} = 1.2$ ТПа; $\lambda_{i0} = 10^{-2}$ мкм см^2/ТВт; Z, A_u – атомный номер и относительная атомная масса материала мишени.

На правой (тыльной) поверхности мишени полагается $P = 0$.

ЭЛЕКТРОН-ИОННАЯ РЕЛАКСАЦИЯ ПО ЭНЕРГИИ

Ударно-волновое течение в мишени формируется через некоторое время после начала лазерного облучения τ_s и на некотором расстоянии от поверхности l_s [1, 2]. Это обстоятельство обусловлено тем, что воздействующее на мишень электромагнитное излучение нагревает электроны, а передача энергии от них к ионам происходит медленно (по сравнению со временем установления равновесия в подсистемах электронов и ионов [33, 34]). Поэтому поначалу происходит рост температуры электронов в приповерхностном слое вещества, толщина которого увеличивается из-за эффекта электронной теплопроводности [35–38]. При $t = \tau_s$ звуковая волна (отправившаяся от облучаемой поверхности в момент времени $t = 0$) преодолевает толщину прогретого слоя, после чего в невозмущенном до этого материале мишени начинается движение с фронтом, опережающим тепловую волну [35, 36, 39].

Согласно оценкам [1, 2, 35, 36], продолжительность стадии формирования ударно-волнового течения является величиной того же порядка, что и время электрон-ионной релаксации по энергии τ_{ei} в материале мишени.

В случае различающихся температур электронов и ионов (T_e и T_i соответственно) плотность энергии, передаваемой от электронов к ионам (фононам, в случае твердого тела) за единицу времени, определяется разностью температур T_e и T_i с некоторым множителем [33, 34, 38–41]: $Q_{ei} = (T_e - T_i)G_{ei}$. Этот множитель обратно пропорционален τ_{ei} [33, 34, 42–46]: $G_{ei} = n_e k_B/\tau_{ei}$, где n_e – концентрация свободных (валентных) электронов; k_B – постоянная Больцмана. Отсюда можно найти время электрон-ионной релаксации по энергии:

$$\tau_{ei} = \frac{Z_e \rho k_B}{A_u m_u G_{ei}}, \quad (12)$$

где Z_e – число свободных (валентных) электронов на один ион; m_u – атомная единица массы. Результаты оценки по формуле (12) для палладия при $Z_e = 10$, $A_u = 106.42$ [47] и $\rho = \rho_0$ с учетом значений G_{ei} [48], рассчитанных для холодной кристаллической решетки этого металла и разных температур электронов, показаны на рис. 2.

Электронная часть удельной внутренней энергии в приповерхностном слое при (изохорическом) нагреве лазерным излучением в рассматриваемом процессе на момент $t = \tau_s$ составляет (в предположении полного поглощения энергии излучения)

$$E_e(\tau_s) = E_{e0} + \frac{1}{\rho l_s} F_L(\tau_s), \quad (13)$$

где $l_s = C_S \tau_s$, C_S – изоэнтропическая скорость звука, E_{e0} – удельная внутренняя энергия электронов в начальном состоянии (при $T = 293$ K), F_L – флюенс энергии облучения (энергетическая экспозиция):

$$F_L(\tau_s) = \int_0^{\tau_s} I_L(t)\, dt. \quad (14)$$

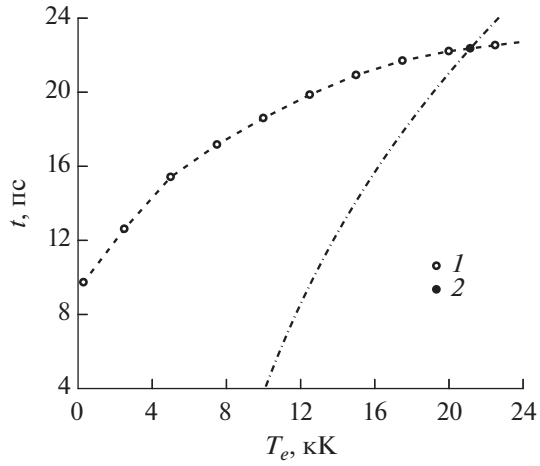

Рис. 2. Время электрон-ионной релаксации по энергии τ_{ei} и время прохождения звуковой волны на расстояние, равное толщине прогретого слоя мишени, τ_s в зависимости от температуры электронов в этом слое: штриховая линия – оценка τ_{ei} по (12) и расчетным значениям коэффициента G_{ei} [48] при разных температурах; штрихпунктирная линия – оценка τ_s по (24); *1* – результаты расчета по (12) в точках [48]; *2* – оценка τ_{ei} в рассматриваемом процессе при условии $\tau_s = \tau_{ei}$.

После подстановки выражения (9) в (14) можно сделать замену переменной интегрирования t на

$$\xi = 2\sqrt{\ln 2}\frac{t - t_0}{\tau} \tag{15}$$

и получить интеграл

$$F_L(\tau_s) = \frac{\tau I_0}{2\sqrt{\ln 2}}\int_{\xi_0}^{\xi_s} e^{-\xi^2} d\xi, \tag{16}$$

где

$$\xi_0 = -2\sqrt{\ln 2}\frac{t_0}{\tau}, \quad \xi_s = 2\sqrt{\ln 2}\frac{\tau_s - t_0}{\tau}. \tag{17}$$

Поскольку интеграл в (16) не выражается в элементарных функциях, можно ввести специальную функцию ошибок

$$\operatorname{erf} x = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_0^x e^{-\xi^2} d\xi \tag{18}$$

и преобразовать (16) к виду

$$F_L(\tau_s) = \frac{\sqrt{\pi}}{4\sqrt{\ln 2}}\tau I_0\left[\operatorname{erf}\xi_s - \operatorname{erf}\xi_0\right], \tag{19}$$

а в расчетах для (18) использовать аппроксимационное выражение [49]

$$\operatorname{erf}|x| \approx 1 - e^{-x^2}\sum_{i=1}^{5} a_i\left(1 + p|x|\right)^{-i}, \tag{20}$$

$p = 0.3275911$, $a_1 = 0.254829592$, $a_2 = -0.284496736$, $a_3 = 1.421413741$, $a_4 = -1.453152027$, $a_5 = 1.061405429$ с учетом того, что $\operatorname{erf} x = -\operatorname{erf}|x|$ при $x < 0$.

Удельная внутренняя энергия вырожденного идеального электронного газа в зависимости от удельного объема и температуры выражается следующим образом [50]:

$$E_e(V,T) = \frac{1}{2}\beta_e(V)T^2, \tag{21}$$

где β_e – коэффициент электронной теплоемкости,

$$\beta_e(V) = \frac{\pi^2}{2}\frac{Z_e k_B}{A_u m_u T_F(V)}, \tag{22}$$

T_F – температура Ферми,

$$T_F(V) = \frac{3^{2/3}}{8\pi^{2/3}}\frac{h^2}{m_e k_B}\left(\frac{Z_e}{A_u m_u V}\right)^{2/3}, \tag{23}$$

h – постоянная Планка. Следовательно, оценив электронную часть удельной внутренней энергии в нагреваемом приповерхностном слое по формулам (13)–(20), нетрудно найти температуру электронов на момент $t = \tau_s$ (в предположении, что удельный объем остается неизменным, $V = 1/\rho_0$):

$$T_e(\tau_s) = \sqrt{\frac{2E_e(\tau_s)}{\beta_e(V_0)}}. \tag{24}$$

Результаты расчета температуры электронов в зависимости от времени τ_s по формуле (24) с учетом (13)–(23) и в предположении $C_S = 3.94$ км/с (по предложенному уравнению состояния палладия при нормальных условиях) для $I_0 = 11.08$ ТВт/см^2, $\tau = 70$ пс, $t_0 = 123$ пс представлены на рис. 2.

Температуру электронов в нагретом слое мишени на момент $t = \tau_s = \tau_{ei}$, после которого звуковая волна начинает опережать тепловую волну, и соответствующее время электрон-ионной релаксации по энергии можно оценить в точке пересечения зависимостей, полученных по уравнениям (12), (24). В рассматриваемом случае такая оценка дает $T_e = 21$ кК и $\tau_{ei} = 22$ пс, $l_s = 0.09$ мкм. Следует отметить, что оцененное значение температуры электронов намного ниже температуры Ферми для палладия при нормальной плотности по (23), $T_F = 327$ кК; это подтверждает правильность предположения о вырождении электронного газа в рассматриваемых условиях.

Остается сделать вывод о применимости (однотемпературной) модели (6)–(11) для рассмотрения течения вещества в мишени лишь на временах намного позже 0.02 нс после начала импульса и на расстояниях намного дальше 0.1 мкм от облучаемой поверхности.

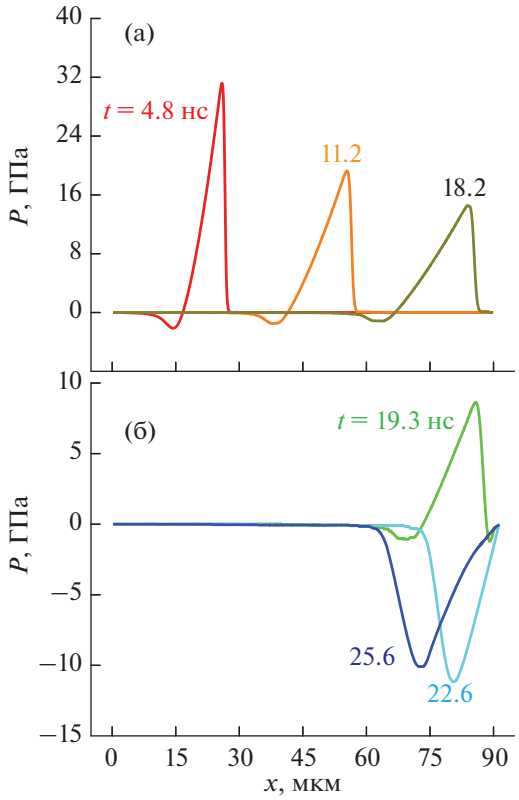

Рис. 3. Давление в мишени в моменты времени $t = 4.8$, 11.2, 18.2 (а), 19.3, 22.6, 25.6 нс (б) вдоль оси x, перпендикулярной облучаемой поверхности (точка $x = 0$ соответствует положению этой поверхности при $t = 0$).

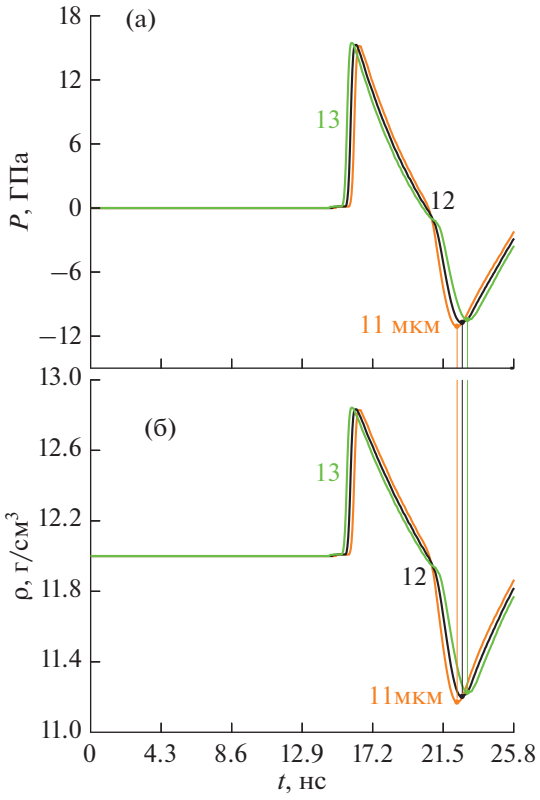

Рис. 4. Давление (а) и плотность (б) в плоскости, соответствующей начальному расстоянию от задней поверхности мишени 12 ± 1 мкм: тонкие вертикальные линии – моменты достижения максимального растягивающего напряжения (минимального давления).

РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Далее рассматриваются результаты моделирования динамики волновых процессов сжатия и расширения в палладии под действием нагружающего импульса (10) с учетом (9), (11) с амплитудой $P_a = 0.434$ ТПа, $t_0 = 123$ пс, $t_1 = 246$ пс, $Z = 46$, $A_u = 106.42$.

Распределение давления вдоль координаты по пространству внутри мишени в разные моменты времени показано на рис. 3. Видно, что в моменты $t = 4.8$, 11.2, 18.2 нс от облучаемой (лицевой) поверхности в глубь мишени движется ударная волна вместе с догоняющей волной разгрузки. Причем амплитуда ударной волны уменьшается по мере удаления от лицевой поверхности. После выхода ударной волны на тыльную поверхность мишени в обратном направлении следует еще одна волна растяжения ($t = 19.3$ нс).

В результате встречи двух волн растяжения образуется общая (связная) область отрицательного давления (моменты $t = 22.6$, 25.6 нс).

Зависимости давления и плотности от времени в плоскости, в которой произошел откол в эксперименте, показаны на рис. 4. Эти зависимости позволяют оценить максимальное растягивающее напряжение σ_{max} и максимальную скорость деформирования на стадии растяжения (скорость расширения) $(\rho_0 dV/dt)_{max} = (-\rho_0 \rho^{-2} d\rho/dt)_{max}$ в плоскости откола. В рассматриваемом случае $\sigma_{max} = 10.7 \pm \pm 0.3$ ГПа, $(\rho_0 dV/dt)_{max} = 57 \pm 8$ мкс$^{-1}$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, экспериментально и теоретически изучена динамика волн сжатия и расширения в палладии при воздействии интенсивным лазерным импульсом пикосекундной длительности. Разработанное уравнение состояния этого металла адекватно имеющимся ударно-волновым данным и может быть использовано в численном моделировании различных процессов при высоких плотностях энергии. В результате эксперимента и моделирования возникшего волнового течения в палладиевой мишени оценено максимальное растягивающее напряжение в плоскости откола – 10.7 ± 0.3 ГПа при скорости расширения 57 ± 8 мкс$^{-1}$.

Авторы благодарят М.Е. Вейсмана, Н.А. Смирнова, О.Н. Розмей, Н.Е. Андреева за полезные советы, высказанные при обсуждении полученных

результатов. Работа выполнена по программе Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН № 075-15-2020-785 от 23 сентября 2020 г.).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Physics of High Energy Density / Eds. Caldirola P., Knoepfel H. N.Y.: Acad. Press, 1971.
2. *Анисимов С.И., Прохоров А.М., Фортов В.Е.* Применение мощных лазеров для исследования вещества при сверхвысоких давлениях // УФН. 1984. Т. 142. № 3. С. 395.
3. *Фортов В.Е.* Физика высоких плотностей энергии. М.: Физматлит, 2013.
4. *Krasyuk I.K., Pashinin P.P., Semenov A.Yu., Khishchenko K.V., Fortov V.E.* Study of Extreme States of Matter at High Energy Densities and High Strain Rates with Powerful Lasers // Laser Phys. 2016. V. 26. № 9. P. 094001.
5. *Kanel G.I., Fortov V.E., Khishchenko K.V., Utkin A.V., Razorenov S.V., Lomonosov I.V., Mehlhorn T. et al.* Thin Foil Acceleration Method for Measuring the Unloading Isentropes of Shock-Compressed Matter // AIP Conf. Proc. 2000. V. 505. P. 1179.
6. *Уткин А.В., Мочалова В.М., Якушев В.В., Рыкова В.Е., Шакула М.Ю., Острик А.В., Ким В.В., Ломоносов И.В.* Импульсное сжатие и растяжение композитов при ударно-волновом воздействии // ТВТ. 2021. Т. 59. № 2. С. 189.
7. *Кулиш М.И., Минцев В.Б., Дудин С.В., Николаев Д.Н., Ломоносов И.В., Фортов В.Е.* Излучение кремния при давлении ударного сжатия 68 ГПа и в процессе разгрузки в вакуум // ТВТ. 2021. Т. 59. № 6. С. 865.
8. *Khishchenko K.V.* Equation of State for Bismuth at High Energy Densities // Energies. 2022. V. 15. № 19. P. 7067.
9. *Ghat M., Mohamed A., Afify A.S.* Физическое моделирование сплава Ti–6Al–4V над β-переходом при температурах 1010–1150°C и высоких скоростях деформации с использованием законов Гарофало и Хензеля–Шпиттеля // ТВТ. 2022. Т. 60. № 4. С. 529.
10. *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.
11. *Povarnitsyn M.E., Itina T.E., Khishchenko K.V., Levashov P.R.* Phase Transitions and Metastable States in Ultrashort Laser–Metal Interaction // AIP Conf. Proc. 2007. V. 955. P. 1341.
12. *Popova T.V., Mayer A.E., Khishchenko K.V.* Numerical Investigations of Shock Wave Propagation in Polymethylmethacrylate // J. Phys.: Conf. Ser. 2015. V. 653. P. 012045.
13. *Ломоносов И.В., Фортова С.В.* Широкодиапазонные полуэмпирические уравнения состояния вещества для численного моделирования высокоэнергетических процессов // ТВТ. 2017. Т. 55. № 4. С. 596.
14. *Фортова С.В., Уткин П.С., Казакова Т.С.* Трехмерное численное моделирование развития неустойчивости контактной границы сталкивающихся металлических пластин в газодинамическом приближении // ТВТ. 2019. Т. 57. № 2. С. 262.
15. *Хохлов В.А., Жаховский В.В., Иногамов Н.А., Ашитков С.И., Ситников Д.С., Хищенко К.В., Петров Ю.В. и др.* Плавление титана ударной волной, вызванной мощным фемтосекундным лазерным импульсом // Письма в ЖЭТФ. 2022. Т. 115. № 9. С. 576.
16. *Маевский К.К.* Численное моделирование термодинамических параметров германия // ТВТ. 2022. Т. 60. № 6. С. 837.
17. *Абросимов С.А., Бажулин А.П., Воронов В.В., Красюк И.К., Пашинин П.П., Семенов А.Ю., Стучебрюхов И.А. и др.* Исследование механических свойств алюминия, сплава АМг6М и полиметилметакрилата при высоких скоростях деформирования под действием лазерного излучения пикосекундной длительности // ДАН. 2012. Т. 442. № 6. С. 752.
18. *Абросимов С.А., Бажулин А.П., Большаков А.П., Конов В.И., Красюк И.К., Пашинин П.П., Ральченко В.Г. и др.* Экспериментальное исследование поли- и монокристаллических алмазов при отрицательных давлениях, создаваемых действием пикосекундного лазерного импульса // ДАН. 2014. Т. 457. № 1. С. 41.
19. *Абросимов С.А., Бажулин А.П., Большаков А.П., Конов В.И., Красюк И.К., Пашинин П.П., Ральченко В.Г. и др.* Изучение синтетических алмазов при растягивающих напряжениях, создаваемых пикосекундным лазерным воздействием // ПМТФ. 2015. Т. 56. № 1. С. 171.
20. *Бушман А.В., Ефремов В.П., Ломоносов И.В., Уткин А.В., Фортов В.Е.* Ударная сжимаемость и уравнение состояния углепластика при высоких плотностях энергии // ТВТ. 1990. Т. 28. № 6. С. 1232.
21. *Ломоносов И.В., Фортов В.Е., Хищенко К.В.* Модель широкодиапазонных уравнений состояния полимеров при высоких плотностях энергии // Хим. физика. 1995. Т. 14. № 1. С. 47.
22. *Хищенко К.В., Жерноклетов М.В., Ломоносов И.В., Сутулов Ю.Н.* Динамическая сжимаемость, адиабаты разгрузки и уравнение состояния стильбена при высоких плотностях энергии // ЖТФ. 2005. Т. 75. № 2. С. 57.
23. *Khishchenko K.V.* Equation of State of Hafnium at High Pressures in Shock Waves // Phys. Wave Phenom. 2023. V. 31. № 2. P. 123.
24. *Khishchenko K.V.* Equation of State for Tantalum at High Pressures in Waves of Shock Compression and Isentropic Expansion // Phys. Wave Phenom. 2023. V. 31. № 4. P. 273.
25. *Хищенко К.В.* Уравнение состояния алюминия при высоких давлениях // ТВТ. 2023. Т. 61. № 3. С. 477.
26. LASL Shock Hugoniot Data / Ed. Marsh S.P. Berkeley, CA: University of California Press, 1980.
27. *Kulikovskii A.G., Pogorelov N.V., Semenov A.Yu.* Mathematical Aspects of Numerical Solution of Hyperbolic Systems. Monographs and Surveys in Pure and Applied Mathematics. V. 118. Boca Raton, FL: Chapman & Hall/CRC, 2001.
28. *Куликовский А.Г., Погорелов Н.В., Семенов А.Ю.* Математические вопросы численного решения гиперболических систем уравнений. М.: Физматлит, 2012.
29. *Courant R., Isaacson E., Rees M.* On the Solution of Nonlinear Hyperbolic Differential Equations by Finite Differences // Commun. Pure Appl. Math. 1952. V. 5. № 3. P. 243.
30. *Semenov A.Yu., Stuchebryukhov I.A., Khishchenko K.V.* Modeling of Shock-Wave Processes in Aluminum un-

der the Action of a Short Laser Pulse // Math. Montis. 2021. V. 50. P. 108.
31. *Вовченко В.И., Красюк И.К., Пашинин П.П., Семёнов А.Ю.* Широкодиапазонная зависимость абляционного давления от интенсивности лазерного излучения // ДАН. 1994. Т. 338. № 3. С. 322.
32. *Krasyuk I.K., Semenov A.Yu., Stuchebryukhov I.A., Khishchenko K.V.* Experimental Verification of the Ablation Pressure Dependence upon the Laser Intensity at Pulsed Irradiation of Metals // J. Phys.: Conf. Ser. 2016. V. 774. P. 012110.
33. *Гинзбург В.Л., Шабанский В.П.* Кинетическая температура электронов в металлах и аномальная электронная эмиссия // ДАН СССР. 1955. Т. 100. № 3. С. 445.
34. *Брагинский С.И.* Явления переноса в полностью ионизованной двухтемпературной плазме // ЖЭТФ. 1957. Т. 33. № 2. С. 459.
35. *Caruso A., Gratton R.* Interaction of Short Laser Pulses with Solid Materials // Plasma Phys. 1969. V. 11. № 10. P. 839.
36. *Анисимов С.И.* О действии очень коротких лазерных импульсов на поглощающие вещества // ЖЭТФ. 1970. Т. 58. № 1. С. 337.
37. *Невский А.П.* Об электронной температуре на поверхности металлов при воздействии мощных тепловых потоков // ТВТ. 1970. Т. 8. № 4. С. 898.
38. *Lin Z., Zhigilei L.V., Celli V.* Electron-Phonon Coupling and Electron Heat Capacity of Metals under Conditions of Strong Electron-Phonon Nonequilibrium // Phys. Rev. B. 2008. V. 77. № 7. P. 075133.
39. *Андреев Н.Е., Вейсман М.Е., Костин В.В., Фортов В.Е.* Формирование ударной волны под действием ультракоротких лазерных импульсов // ТВТ. 1996. Т. 34. № 3. С. 379.
40. *Каганов М.И., Лифшиц И.М., Танатаров Л.В.* Релаксация между электронами и решеткой // ЖЭТФ. 1956. Т. 31. № 2. С. 232.
41. *Анисимов С.И., Капелиович Б.Л., Перельман Т.Л.* Электронная эмиссия с поверхности металлов под действием ультракоротких лазерных импульсов // ЖЭТФ. 1974. Т. 66. № 2. С. 776.
42. *Андреев Н.Е., Вейсман М.Е., Ефремов В.П., Фортов В.Е.* Генерация плотной горячей плазмы интенсивными субпикосекундными лазерными импульсами // ТВТ. 2003. Т. 41. № 5. С. 679.
43. *Агранат М.Б., Андреев Н.Е., Ашитков С.И., Вейсман М.Е., Левашов П.Р., Овчинников А.В., Ситников Д.С. и др.* Определение транспортных и оптических свойств неидеальной плазмы твердотельной плотности при фемтосекундном лазерном воздействии // Письма в ЖЭТФ. 2007. Т. 85. № 6. С. 328.
44. *Veysman M.E., Agranat M.B., Andreev N.E., Ashitkov S.I., Fortov V.E., Khishchenko K.V., Kostenko O.F. et al.* Femtosecond Optical Diagnostics and Hydrodynamic Simulation of Ag Plasma Created by Laser Irradiation of a Solid Target // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 2008. V. 41. № 12. P. 125704.
45. *Khishchenko K.V., Veysman M.E., Andreev N.E., Fortov V.E., Levashov P.R., Povarnitsyn M.E.* Modeling of Optical, Transport, and Thermodynamic Properties of Al Metal Irradiated by Intense Femtosecond Laser Pulses // Proc. SPIE. 2008. V. 7005. P. 70051S.
46. *Povarnitsyn M.E., Andreev N.E., Levashov P.R., Khishchenko K.V., Kim D.A., Novikov V.G., Rosmej O.N.* Laser Irradiation of Thin Films: Effect of Energy Transformation // Laser Part. Beams. 2013. V. 31. № 4. P. 663.
47. *Meija J., Coplen T.B., Berglund M., Brand W.A., De Bievre P., Groning M., Holden N.E. et al.* Atomic Weights of the Elements 2013 (IUPAC Technical Report) // Pure Appl. Chem. 2016. V. 88. № 3. P. 265.
48. *Smirnov N.A. Ab Initio* Calculations for the Transport Properties of Metals within Boltzmann Transport Theory: From Equilibrium to Nonequilibrium Heating Regime // Phys. Rev. B. 2022. V. 106. № 2. P. 024109.
49. Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables. Applied Mathematics Series / Eds. Abramowitz M., Stegun I.A. Washington, DC: United States Department of Commerce, National Bureau of Standards, 1972. V. 55.
50. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Статистическая физика. Ч. 1. М.: Наука, 1995.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 549–558

УДК 536.33

МОДЕЛИРОВАНИЕ ТЕРМИЧЕСКОГО РАЗЛОЖЕНИЯ МЕТАНА ПРИ ПОСТОЯННЫХ ЗНАЧЕНИЯХ ОБЪЕМА И ТЕМПЕРАТУРЫ МЕТОДАМИ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ И ТЕРМОДИНАМИКИ

© 2023 г. А. В. Кудинов[1], С. А. Губин[1, 2], Ю. А. Богданова[1, *]

[1]Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, Россия

[2]ФИЦ химической физики им. Н.Н. Семёнова РАН, Москва, Россия

*E-mail: bogdanova.youlia@bk.ru

Поступила в редакцию 27.05.2022 г.
После доработки 27.05.2022 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

Методами молекулярной динамики и равновесной термодинамики проведено моделирование термического разложения метана при постоянных значениях температуры и плотности 0.05–0.524 г/см^3. Молекулярно-динамическое моделирование начального этапа разложения метана проводилось с применением реакционно-силового поля ReaxFF-lg при температурах 2500–4000 K. Результаты моделирования показали, что разложение метана заключается в последовательном образовании и распаде радикалов и легких углеводородов и их замене все более сложными многоатомными углеводородами, подобными полициклическим ароматическим углеводородам, распады и объединения которых ведут к зарождению центров нуклеации конденсированного углерода. В свою очередь результаты термодинамических расчетов указывают на то, что разложение метана начинается и проходит при более низких температурах по сравнению с результатами ультракоротких неравновесных расчетов методом молекулярной динамики. Таким образом, применение методов молекулярной динамики и термодинамики для одного и того же процесса представляет крайние варианты возможных последовательностей состояний в случае ультракороткого неравновесного и длительного, близкого к равновесию, термических разложений метана.

DOI: 10.31857/S0040364423040075

ВВЕДЕНИЕ

Метан в качестве дешевого экологического топлива широко используется в энергетике и промышленности. При термическом разложении метана существует возможность получения водорода и высококачественного графита, состоящего из наночастиц углерода различных структуры и формы. Также перспектива получения больших объемов водорода для энергетики стала дополнительной причиной изучения этого процесса многими исследователями [1].

Экспериментальное изучение разложения CH_4 проводится с использованием ударных труб и установок пиролиза метана. В [2, 3] определен начальный механизм разложения метана с образованием водорода и промежуточных углеводородов до этана при $T < 2000$ K. В [3] установлена схема получения ацетилена из этилена и диацетилена, разложение которых сопровождается образованием частиц сажи. В [4] приведен обзор работ по разложению метана при $T < 2200$ K. В [5] диссоциация CH_4 изучалась оптическим методом при более высоких температурах, чем в предыдущих исследованиях. Показано, что с ростом давления скорости химических реакций заметно возрастают. Предложенная в [6] кинетическая модель разложения метана хорошо описывает пиролиз CH_4 в статических условиях в диапазоне температур $500 < T < 2000$ K.

Исследования на основе спектрометрических методов с высоким временным разрешением в [7] позволили предложить детальный механизм пиролиза метана из 21 химической реакции при давлении до 4 атм. В [8] предложен детальный механизм разложения метана из 36 химических реакций, используемый в базе данных Chemkin [9]. Обзор публикаций по разложению метана приведен в [10].

В качестве промежуточного продукта разложения метана в [11] обнаружен полипропилен, важный предшественник образования конденсированного наноуглеводорода.

Для производства водорода и конденсированного углерода предложен процесс разложения метана в плазменном реакторе [1, 12, 13]. Плазменный пиролиз позволяет прямо синтезировать водород и конденсированный углерод без выбросов большого количества CO_2, как это происхо-

дит при паровом реформинге. Для моделирования такого процесса оказались востребованными не только экспериментальные исследования термического разложения метана, но и математическое моделирование процесса, в том числе при высоких температурах и давлениях.

Изучение термического разложения метана на атомистическом уровне методом молекулярной динамики (МД) [14–18] позволяет обнаружить образование промежуточных газообразных продуктов и углеводородных наноструктур, которые трудно регистрировать в реальных экспериментах при высоких температурах и плотностях.

В [14] методом МД-моделирования получен широкий набор неидеально структурированных углеродных кластеров. Классическое МД-моделирование с потенциалом REBO применялось для изучения формирования фуллеренов из паров углерода [15, 17, 18], а также для моделирования процессов кластеризации и графитизации при охлаждении в течение нескольких наносекунд при температурах от 6000 до 2500 K [16–18].

Подробное изучение разложения метана в области низких плотностей и температур в диапазоне 2500–4000 K с применением реакционно-силового поля ReaxFF выполнено в [19]. Исследование агрегации молекул водорода и атомов углерода при $1000 \le T \le 2000$ K с образованием молекул метана и промежуточных продуктов разложения CH_4, а также крупных линейных молекул углеводородов проведено в [20]. Это обратный процесс термическому разложению.

В настоящее время нет исследований по МД-моделированию разложения метана в области высоких плотностей, не установлены газообразные углеводороды-предшественники и их роль в образовании центров нуклеации и формирования конденсированного наноуглерода.

Указанные обстоятельства требуют проведения новых исследований, направленных на изучение термического разложения метана при более высоких плотностях с применением различных методик моделирования для установления достоверных закономерностей механизма разложения метана и образования наночастиц конденсированного углерода.

Таким образом, цель настоящей работы – изучение методами молекулярной динамики и термодинамического моделирования термического разложения метана при высоких плотностях в широкой области температур, а также установление роли промежуточных продуктов, в том числе полициклических ароматических углеводородов (ПАУ) в последовательности реакций, ведущих к графитизации и образованию наночастиц конденсированного углерода.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ И МЕТОДИКИ РАСЧЕТОВ

В настоящей работе методом МД-моделирования изучено разложение молекул метана при постоянных температурах 2500, 3000, 3500, 4000 K и плотностях 0.524, 0.296, 0.204, 0.05 г/см^3.

МД-расчеты термического разложения метана проводились с реакционно-силовым полем ReaxFF-lg [21] с помощью программного пакета LAMMPS [22]. Для верификации результатов выполнены отдельные расчеты с параметризациями полей $\text{ReaxFF}_{\text{CHO}}$ [23] и $\text{ReaxFF}_{\text{PAH}}$ [24].

Реакционное силовое поле ReaxFF-lg [21] является параметризацией ReaxFF [25], которое разработано как реализация реакционного МД-моделирования для описания химического реагирования диссоциации, термического разложения, формирования химических связей и образования новых химических продуктов. Химические взаимодействия учитывались методом порядка связей. При этом порядки связей, рассчитанные для всех атомов ансамбля непосредственно из межатомных расстояний и обновляемые на каждом шаге интегрирования уравнения движения атомов, показывали образование или разрыв химических связей в процессе МД-моделирования. Параметризация ReaxFF-lg учитывает ван-дер-ваальсово взаимодействие атомов (low-gradient model) и широко применяется для моделирования свойств органических энергетических веществ.

Рассматривались два варианта ячеек: с 64 и 1000 молекулами метана CH_4. Ячейки с различными плотностями имели разные размеры: $\rho = 0.050$ г/см^3 ($V = 32.3 \times 32.3 \times 32.3$ Å^3), 0.204 ($20.3 \times 20.3 \times 20.3$), 0.296 ($17.9 \times 17.9 \times 17.9$), 0.524 ($14.8 \times 14.8 \times 14.8$). Перед началом моделирования термического разложения метана ячейка приводилась в состояние равновесия при постоянном объеме, температуре 298 K и давлении 1000 атм. Граничные условия на стенках ячейки – периодические. Для поддержания температуры на заданном значении использовался термостат Нозе–Гувера. Параметр релаксации T_{damp} составлял 100 шагов интегрирования (5 фс). Длительность расчетов МД – 1.0 нс.

Термодинамическое моделирование проводилось с помощью термодинамического кода TDS [26] с применением модифицированной теории возмущений KLRR-T [27] в предположении парного сферически симметричного взаимодействия частиц. Для решения каждой термодинамической задачи с двумя заданными параметрами состояния находятся такие значения концентраций продуктов и остальных неизвестных термодинамических параметров системы, для которых выполняется условие равновесия в виде экстремума соответствующей характеристической функции.

При рассмотрении многофазной системы для каждой фазы применялось свое термическое уравнение состояния (УРС). Термодинамические свойства реальных газов и газовых смесей при высоких давлениях описывались УРС, полученным с помощью термодинамической теории возмущений с потенциалом взаимодействий молекул exp-6 [28]. Конденсированная фаза нанографита рассчитывалась с применением термического УРС в форме Грюнайзена [29]. При проведении термодинамического расчета предполагалось, что при термическом разложении CH_4 в продуктах образуются наночастицы конденсированного углерода, которые являются сопутствующим продуктом промышленного производства водорода "Black Carbon nanoparticles" [1]. Факт образования углеродных наночастиц размером ~5 нм с энтальпией образования $\Delta H_f^0 = 4.8$ кДж/моль при разложении углеводородов в ударных волнах и детонации энергетических веществ предсказан расчетным путем в [30, 31] и обнаружен экспериментально в [1–5, 32].

Таким образом, при решении задач с заданными температурой и объемом для термического разложения метана в реагентах задавалась энтальпия образования нанодисперсного конденсированного углерода $\Delta H_f^0 = 4.8$ кДж/моль вместо величины $\Delta H_f^0 = 0$ для обычного крупнокристаллического графита, используемая в равновесной термодинамике. Поэтому далее такие расчеты в статье называются квазиравновесными в отличие от равновесных.

РЕЗУЛЬТАТЫ МД-МОДЕЛИРОВАНИЯ

Результаты МД-расчетов разложения метана показали, что химическое реагирование CH_4 практически отсутствовало при $T \le 2500$ K для любой плотности из рассматриваемого диапазона. На рис. 1 представлены результаты МД-расчетов разложения метана и образования водорода в интервале температур 2500–4000 K. Водород образуется при диссоциации CH_4 в результате столкновений молекул друг с другом и с появившимися атомами H. Убыль молекул метана и прирост молекул водорода происходят одновременно. В продуктах также образуются радикалы CH_3 и отдельные молекулы CH_2.

При 2500 K разложение метана продолжается дольше 1000 пс. Резкое ускорение разложения метана наблюдается с увеличением температуры в интервале 2500–4000 K. Если при температуре 2500 K диссоциация метана проходит медленно и наблюдается рекомбинация молекул CH_4, то при увеличении температуры на 1000 K на том же временном промежутке диссоциирует уже почти 80% молекул метана. Концентрация метана перестает

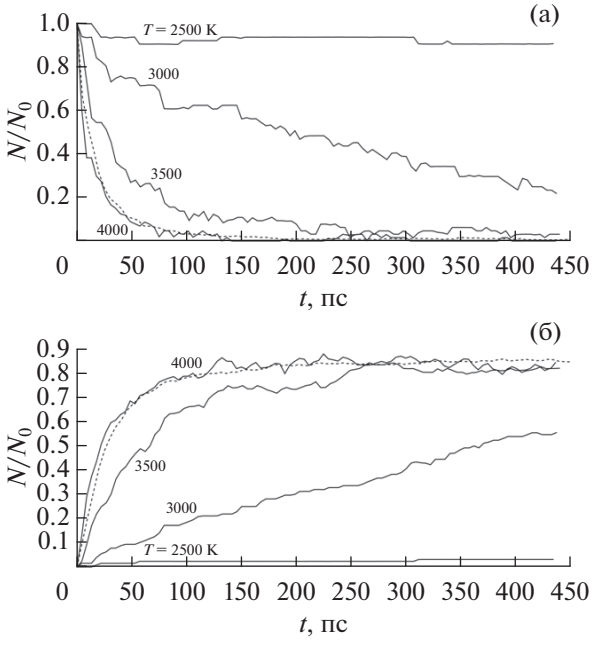

Рис. 1. Зависимости относительного количества молекул метана (а) и водорода (б) от времени в интервале температур 2500–4000 K при ρ = 0.05 г/см^3: (а) – $N_0 = 64$ молекулы метана, пунктирная линия – $N_0 = 1000$; (б) – $N_0 = 128$ молекул водорода, образующихся при полном разложении 64 молекул CH_4, пунктирная линия – расчет с $N_0 = 2000$ молекул водорода, образующихся при полном разложении 1000 молекул CH_4.

меняться к моменту времени 150 пс при 4000 K, 250–300 пс при 3500 K и 980 пс при 3000 K.

Скорость образования водорода сильно возрастает при высоких температурах T = 3000–4000 K (рис. 1б). На начальных интервалах времени наблюдается одновременный рост количества молекул CH_3 и H_2. При температурах 3500 и 4000 K количество молекул водорода выходит на плато к моменту времени 250–300 пс. Отметим, что выход количества водорода на плато в [19] происходит позже, чем в данной работе.

На рис. 2 представлены зависимости степени разложения метана от времени при различных плотностях. Низкоплотный метан разлагается медленнее более плотных систем, но выходит на плато с большей степенью разложения. Зависимости образования молекул водорода при разложении метана от времени для систем с высокой или низкой плотностью обратны зависимостям для CH_4.

На рис. 3 показано изменение состава продуктов разложения метана с плотностью 0.05 г/см^3 при 4000 K с образованием этилена C_2H_4, ацетилена C_2H_2 и одновалентного радикала метана CH_3 во времени.

Результаты расчетов показывают, что одновременно с убылью концентрации молекул мета-

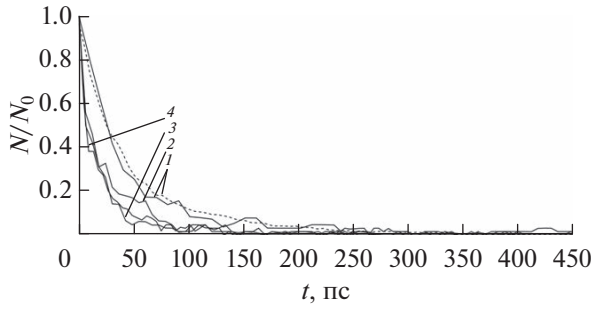

Рис. 2. Зависимости относительного числа молекул метана от времени для различных значений плотности при $T = 4000$ K: *1* – $\rho = 0.05$ г/см^3, *2* – 0.2, *3* – 0.3, *4* – 0.5; сплошные линии – $N_0 = 64$ молекулы метана, пунктирная линия – $N_0 = 1000$.

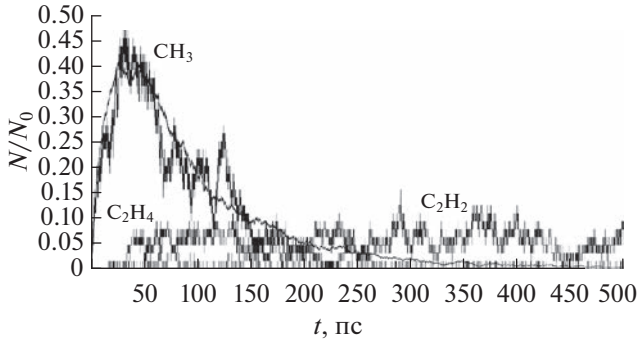

Рис. 3. Зависимости относительного количества продуктов разложения метана при $T = 4000$ K, $\rho = 0.05$ г/см^3 на временном интервале 0–250 пс, $N_0 = 64$ молекулы метана; линия с малой амплитудой флуктуаций для CH_3 соответствует $N_0 = 1000$.

на наблюдается рост количества молекул CH_3, который после достижения максимума сменяется снижением. Причем чем выше температура, тем короче интервал времени достижения максимума и тем больше количество образующихся радикалов (молекул) CH_3. Времена достижения максимальной концентрации молекул CH_3 в высокоплотной системе ($\rho = 0.524$ г/см^3) составляют 58 пс при $T = 2500$ K, 18 пс – 3000 K, 13 пс – 3500 K, 5 пс – 4000 K.

Одновременно с началом разложения молекул CH_3 наблюдается рост содержания этилена в системе. Дальнейшее уменьшение относительного количества молекул CH_3 сопровождается образованием молекул ацетилена. Затем количество молекул C_2H_4 начинает убывать и к моменту 85 пс этилен почти полностью исчезает из системы, образуя ацетилен C_2H_2 путем потери молекулы водорода. С ростом плотности скорость образования этилена увеличивается, а максимальная скорость образования молекул C_2H_4 достигается раньше, чем для низкоплотных систем.

Ацетилен, который образуется при распаде этилена, способствует образованию молекул водорода. Скорость увеличения содержания C_2H_2 в составе продуктов и максимальная интенсивность образования ацетилена оказываются ниже для систем с низкой плотностью. С ростом плотности скорости образования ацетилена оказываются выше, но величины максимального количества молекул ацетилена получаются ниже, чем для низкоплотных систем.

На рис. 1, 3 пунктиром показаны результаты расчетов МД с 1000 молекул CH_4, которые согласуются с данными, полученными с меньшим числом молекул метана (64). Зависимости параметров от времени на рис. 3 представлены без сглаживания флуктуаций относительных количеств продуктов разложения метана, чтобы продемонстрировать согласие расчетных зависимостей для CH_3 с малым и большим количеством молекул метана. Таким образом доказывается достоверность проведенных МД-расчетов.

Образование крупных углеводородных наноструктур. Образование углеродных атомов происходит в результате распада молекул CH_4 при разрыве связей C–H и образования новых связей C=C. Результаты МД-моделирования показывают, что молекулы C_2 начинают образовываться сразу в первые ~10–20 пс при разрушении молекул CH_4. Образование атомов и димеров углерода ускоряется при распаде молекул ацетилена и этилена при высоких температурах. Поэтому наибольшее количество углерода наблюдается в системе с плотностью 0.05 г/см^3 и $T = 4000$ K при $t \sim 1$ нс. С увеличением плотности системы образование димеров начинается раньше (при 0.2 г/см^3 – 860 пс, а при 0.05 г/см^3 – 970 пс), но максимальное количество молекул C_2 оказывается меньше, чем в низкоплотных системах.

К моменту времени 500–600 пс атомы углерода образуют нитевидные углеводородные структуры, показанные на рис. 4. Это этап кластеризации [17, 18]. Позднее из нитевидных кластеров свер-

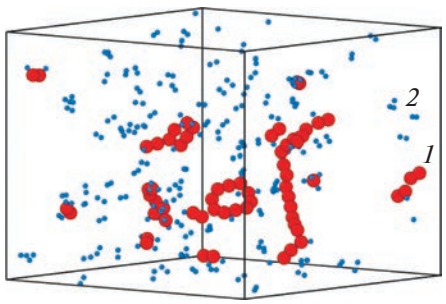

Рис. 4. Визуализация углеродных наноструктур для момента времени 900 пс при $\rho = 0.05$ г/см^3, $T = 3500$ K: *1* – атомы углерода, *2* – атомы водорода.

Таблица 1. Крупные молекулы в системе на момент времени 1 нс

T, K	ρ, г/см^3	Молекула углеводорода
4000	0.204	$C_{31}H_{10}$
	0.296	$C_{44}H_{21}$
	0.524	$C_{53}H_{32}$
3500	0.204	$C_{26}H_{12}$
	0.296	$C_{47}H_{19}$
	0.524	$C_{52}H_{24}$

тываются кольца с разным числом атомов углерода. Так, к моменту времени 900 пс в системе образуются кольцо $C_{10}H_2$, молекула линейного вида $C_{20}H_2$ и молекулы водорода H_2. Со временем из-за столкновений кластеров кольца разрушаются и образуются снова.

В системе появляются крупные углеводородные молекулы. Пример такой молекулы показан на рис. 5. Молекула содержит в себе четыре кольцевые структуры из атомов углерода: одно кольцо из пяти атомов, два кольца из шести атомов и одно кольцо из десяти атомов. Такие молекулы существуют около 10–20 пс. Затем они распадаются на более мелкие фрагменты и образуются снова. С увеличением плотности в 10 раз заметно сокращается время образования многоатомных молекул углеводородов с кольцами из атомов углерода.

В крупных молекулах углеводородов (табл. 1), образующихся при увеличении температуры и плотности к моменту времени ~1 нс, число атомов углерода превышает количество атомов водорода в два раза и более.

По составу атомов такие молекулы подобны молекулам ПАУ [33–35], содержащим несколько ароматических колец из атомов углерода, образующих участки (сетки или листы) со структурой графена. Молекулы таких крупных углеводородов нестабильны и распадаются при столкновениях. Но при последующих объединениях эти молекулы укрупняются за счет увеличения в их структуре количества ароматических колец из атомов С.

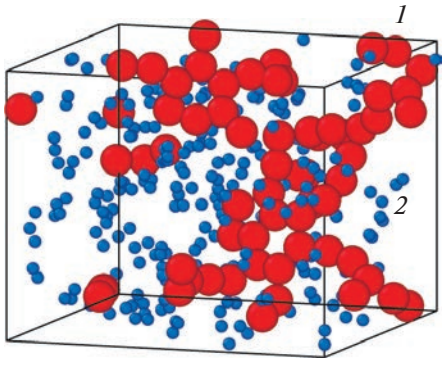

Рис. 5. Визуализация углеродных наноструктур при T = 4000 K и ρ = 0.524 г/см^3 в момент времени ~255 пс: *1* – атомы углерода, *2* – атомы водорода.

В дополнительных МД-расчетах термического разложения 1000 молекул метана с реакционно-силовыми полями $ReaxFF_{CHO}$ и $ReaxFF_{PAH}$ при постоянных значениях T = 4000 K и ρ = 0.05 г/см^3 можно видеть образование коротких нитей из 2–4 атомов углерода и почти полное отсутствие колец и крупных углеводородных структур за время ~0.5 нс. При этих условиях и за то же время в расчетах с параметризацией ReaxFF-lg наблюдается образование более длинных нитей из 7–11 атомов С и присоединившихся атомов Н. Также присутствуют 2–3 углеводородные структуры, полученные при соединении нескольких подобных нитей с образованием одного кольца из атомов углерода. С увеличением плотности скорость образования длинных нитей и многоатомных углеводородных структур увеличивается.

РЕЗУЛЬТАТЫ КВАЗИРАВНОВЕСНЫХ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИХ РАСЧЕТОВ

Значения термодинамических параметров и состав продуктов термического разложения метана для плотности в диапазоне 0.05–0.524 г/см^3 и температур в интервале 500–4000 K рассчитаны с применением программного комплекса термодинамических расчетов TDS [26].

Состав продуктов разложения метана при плотности 0.05 г/см^3 в зависимости от температуры, полученный в результате термодинамического моделирования в предположении образования конденсированного наноуглерода, показан на рис. 6.

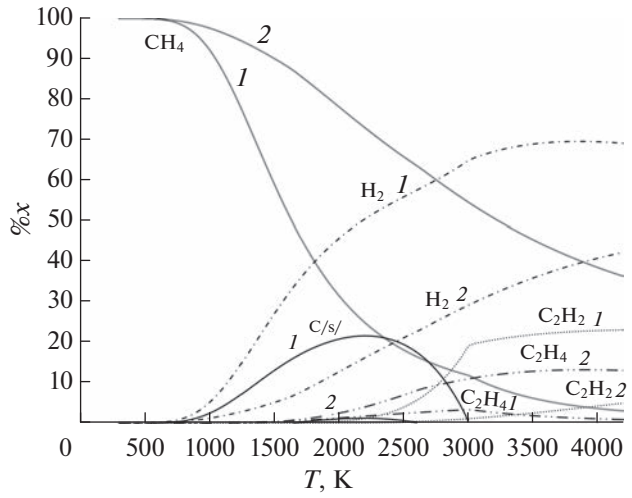

Рис. 6. Результаты квазиравновесного термодинамического расчета зависимости состава продуктов разложения метана (в мол. долях) от температуры для ρ = = 0.05 (*1*) и 0.524 г/см^3 (*2*).

Разложение метана с образованием наночастиц углерода и водорода начинается с $T \approx 500$ K и продолжается до окончания расчета при 4000 K. При этом мольные доли разложения CH_4 при промежуточных значениях температуры изменяются от нуля до ~0.955 для наименьшего значения плотности $\rho = 0.05$ г/см^3 и до ~0.65 для максимальной величины $\rho = 0.524$ г/см^3. С увеличением плотности уменьшается доля неразложившегося метана с ростом температуры.

Максимальное значение мольной доли образовавшегося водорода ~0.68 достигается при $T \approx 3500$ K и плотности 0.05 г/см^3. С увеличением плотности до $\rho = 0.524$ г/см^3 мольная доля H_2 снижается до ~0.4 при $T = 4000$ K.

Этилен начинает образовываться в заметных количествах при $T \geq 1500$ K. Интересно, что с увеличением плотности количество образовавшегося C_2H_4 с ростом температуры повышается и мольная доля этилена возрастает до максимального значения ~0.13.

Ацетилен начинает образовываться при $T \approx 1700$ K. При $\rho = 0.05$ г/см^3 количество образовавшегося C_2H_2 оказывается наибольшим и максимальная величина массовой доли ацетилена приближается к 0.2. С ростом плотности количество образовавшегося C_2H_2 снижается и мольная доля едва достигает значения ~0.05.

На рис. 7 показаны зависимости мольных долей наноуглерода, образующегося при разложении метана с различной плотностью, от температуры. С уменьшением плотности увеличивается количество образовавшегося наноуглерода с ростом температуры. С увеличением плотности повышаются температуры начала образования наноуглерода с $T = 600$ до 1200 K. Однако температура достижения максимальной концентрации углерода в смеси продуктов $T \approx 2300$ K и температура его полного исчезновения $T \approx 3000$ K не зависят от плотности. Рост плотности ведет к снижению интенсивности образования наноуглерода до почти полного его исчезновения при плотности более 0.524 г/см^3.

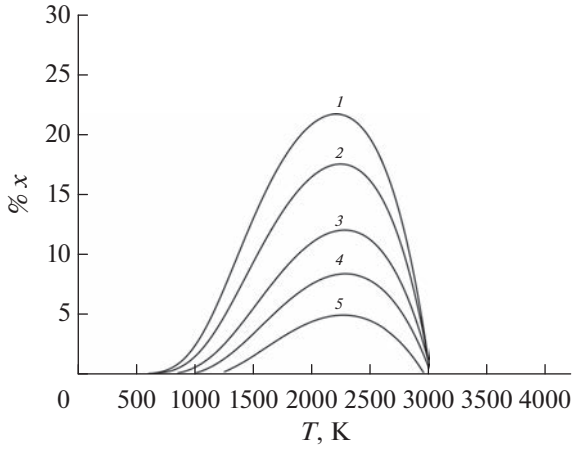

Рис. 7. Зависимости мольных долей нанодисперсного углерода от температуры в составе продуктов разложения метана при различных значениях плотности: *1* – $\rho = 0.05$ г/см^3, *2* – 0.1, *3* – 0.204, *4* – 0.296, *5* – 0.4.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Начальный этап разложения метана. Результаты МД-моделирования показывают, что возникновение водорода H_2 происходит при диссоциации CH_4 в результате столкновений молекул друг с другом и с образовавшимися атомами H по реакции

$$2CH_4 \rightarrow 2CH_3 + H_2. \quad (1)$$

Это подтверждается результатами МД-моделирования на рис. 1, откуда видно, что уменьшение количества молекул метана и прирост молекул водорода происходят одновременно.

После достижения максимума количество молекул CH_3 начинает уменьшаться вследствие образования этилена. Можно предположить, что две молекулы CH_3 образуют одну молекулу этилена и молекулу водорода согласно реакции

$$CH_3 + CH_3 \rightarrow C_2H_4 + H_2. \quad (2)$$

Данное предположение аргументируется продолжением роста содержания водорода даже на последних стадиях разложения, когда молекул метана остается мало.

Дальнейшее уменьшение количества молекул CH_3 сопровождается образованием молекул ацетилена:

$$C_2H_4 \rightarrow C_2H_2 + H_2. \quad (3)$$

Этилен не исчезает из системы и вместе с ацетиленом остается на постоянном уровне, что приводит к дальнейшему снижению количества молекул CH_3. Затем количество молекул C_2H_4 начинает убывать – они почти полностью исчезают из системы, образуя C_2H_2 путем потери молекулы водорода в этилене (3). Реакции (2), (3) поддерживают содержание водорода на постоянном уровне даже после окончания разложения метана.

Рассмотрен вариант, при котором две молекулы CH_3 или молекулы CH_3 и CH_4 образуют молекулу C_2H_6 или C_2H_7 соответственно:

$$CH_3 + CH_3 \rightarrow C_2H_6,$$
$$CH_3 + CH_4 \rightarrow C_2H_7.$$

Однако результаты МД-моделирования показали, что эти химические реакции протекают, но количество образующихся по ним молекул C_2H_6 и C_2H_7 незначительно, поэтому данный механизм не является основополагающим для расходования молекул CH_3.

Полученные результаты МД-моделирования позволяют оценить энергию активации мономолекулярной химической реакции (1) разложения метана. Для этого рассчитаны значения констант мономолекулярной химической реакции (1) при различных температурах по закону Аррениуса. Рассчитанные здесь значения констант химической реакции $k = 10^{10}$ для $T = 3250$ K согласуются с экспериментальными данными [36, 37] и расчетными величинами $k = 10^{10}$–10^{11} для $T = 3000$ K [19, 38].

Зависимость логарифмов констант скоростей химической реакции от обратной температуры является линейной в рассматриваемом диапазоне температур 3200–3800 K. Это означает, что механизмы разложения в данном диапазоне температур идентичны. Наклон прямой, определяющий зависимость логарифма константы скорости химической реакции от обратной температуры, пропорционален энергии активации процесса разложения метана, которая равна $E_{акт} = 99$ ккал/моль. Результаты экспериментальных исследований пиролиза метана дают среднюю величину $E_{акт}^{эксп} = 97.3$ ккал/моль с разбросом значений 90–101 ккал/моль [6, 7, 10].

Дальнейшее уменьшение количества этилена C_2H_4 до полного исчезновения из системы приводит к образованию ацетилена C_2H_2 путем потери молекулы водорода. Позднее появляется бензол – промежуточный продукт, важный для образования конденсированного углерода.

Нити из атомов углерода образуются ко времени ~500 пс. Присоединение атомов водорода и молекул легких углеводородов CH, CH_2, CH_3 к таким углеродным нитям ограничивает их рост и способность к свертыванию в кольца.

Кольца из углеродных атомов и молекул легких углеводородов, радикалов и водорода начинают объединяться и образовывать крупные молекулы ПАУ после 500 пс [39–41]. Количество атомов C в таких молекулах C_nH_m всегда превышает число атомов H в 2–4 раза ($n > m$). Экспериментальные исследования [40, 41] показали образование графита и сажи при высоких плотностях и температурах из ПАУ. В [42] на основе методов инфракрасной абсорбции, рамановской спектроскопии и рентгеновской дифракции обнаружено присутствие ПАУ в процессе образования наночастиц алмаза при распаде молекул CH_4 в ударных волнах при $P \geq 9$ ГПа. Крупные молекулы с высоким содержанием атомов углерода нестабильны. Они быстро распадаются и образуются снова с большим числом атомов. В [43] указано, что при $T \geq 2500$ K все ПАУ становятся химически активными (химическая сорбция), что приводит к их росту через объединение и образование крупных молекул углеводородов – зародышей графита.

Сопоставление результатов термодинамического моделирования и МД-расчетов. Прямое сравнение результатов МД-моделирования и термодинамических расчетов невозможно из-за совершенно разных времен процессов разложения CH_4 и разных составов продуктов разложения метана в этих методах. В термодинамических расчетах значения давления и других термодинамических параметров взаимосогласованы с составом продуктов для каждого значения температуры и плотности в предположении образования нанодисперсного углерода с частицами размером ~5 нм. Отметим, что в составах продуктов, полученных на основе МД-моделирования, конденсированных продуктов, состоящих только из атомов углерода, нет.

В табл. 2 представлены значения давления P, полученные из МД-расчетов для задач разложения метана с заданными величинами температуры T в диапазоне $2500 \leq T \leq 4000$ K и плотности ρ и квазиравновесных термодинамических расчетов в области $500 \leq T \leq 4000$ K для $\rho = 0.05$, 0.204, 0.296, 0.524 г/см^3. В каждой ячейке приведены расчетные значения давления TDS/MD ReaxFF-lg, разделенные косой чертой.

Расчетные давления при разложении метана в условиях постоянных значений температуры и плотности одного порядка согласуются в пределах 10% (табл. 2). При $\rho = 0.524$ г/см^3 происходит двукратный рост давления при увеличении температуры на 1500 K.

В квазиравновесных термодинамических расчетах степень разложения метана увеличивается с ростом температуры $500 \leq T \leq 4000$ K во всем диапазоне плотностей. При высоких температурах ($T > 3500$ K) результаты термодинамических и МД-расчетов имеют близкие интенсивности разло-

Таблица 2. Результаты квазиравновесных термодинамических и МД-расчетов разложения метана при постоянных значениях температуры и плотности

ρ, г/см^3	P, атм							
	500 K	1000 K	1500 K	2000 K	2500 K	3000 K	3500 K	4000 K
0.524	9260	14610	19120	23830	28890/26000	34400/34600	40390/45400	46680/50500
0.296	1460	3260	5040	7080	9370/7800	12060/12800	15260/16300	18570/19000
0.204	690	1650	2690	394750	5390/4400	7150/7700	9200/9700	11250/11200
0.050	130	290	500	800	1130	1500/1050	1880/1700	2230/2250

жения метана, а при низких температурах расчеты по этим методикам различаются больше. То же наблюдается с образованием молекул водорода.

Результаты МД-расчетов показывают, что с ростом плотности при высоких температурах скорость разложения метана уменьшается и время полного разложения CH_4 возрастает в ~2 раза. В то время как в квазиравновесных расчетах в таких условиях значительная часть CH_4 (около 0.35 мол. долей) не реагирует.

Результаты квазиравновесных термодинамических расчетов показывают, что разложение метана начинается при гораздо более низких температурах ($T \approx 500$ K) и давлениях ($130 \le P \le 9260$ атм) по сравнению с МД-моделированием при $T \approx 2500$ K и $4400 \le P \le 26000$ атм для рассмотренных значений плотности (табл. 2). При значениях параметров, близких к началу разложения метана в МД-расчетах, значительная часть молекул CH_4 уже распалась, и масса наноуглеродной конденсированной фазы значительно снизилась из-за перехода атомов С из конденсированной нанофазы углерода в газообразные углеводородные продукты, такие как этилен и ацетилен. С ростом температуры возрастает количество молекул ацетилена, что согласуется с экспериментальными данными [44, 45]. Этим квазиравновесный расчет отличается от МД-моделирования.

В [8, 45–47] показано, что начало химических реакций для многих органических жидкостей, определяемое по отклонению ударной адиабаты с химическим реагированием от “замороженной” адиабаты (для непрореагировавшего вещества), наблюдается в пикосекундном масштабе при более высоких перепадах давления на фронтах ударных волн [48], создаваемых разрядами мощных лазеров, чем в экспериментах с метанием, взрывом или газовой пушкой, выполняемых в длительных наносекундных и микросекундных масштабах. Другими словами, МД-расчеты предсказывают более интенсивные ударные волны для инициирования химических реакций при пикосекундных масштабах вычислений, для которых требуются более высокие значения температур и давлений ударных волн, чем при наносекундных регистрациях.

Высокие расчетные значения температур и давлений начала разложения метана в неравновесных расчетах МД объясняются их малой длительностью и короткими расстояниями, для которых проведены вычисления. Поэтому термодинамические расчеты разложения метана (близкие к квазиравновесным состояниям, достигаемым за длительное время) начинаются при более низких значениях температур и давлений. Эти параметры начала разложения метана близки к значениям, полученным в экспериментах [2–4, 6] по пиролизу метана при нормальных давлениях за миллисекундные и более длительные времена.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Результаты МД-моделирования в данной работе, полученные за очень короткие времена, при высоких плотностях в основном согласуются по промежуточным продуктам и установленной последовательности химических реакций на начальном этапе разложения метана с детальными химическими механизмами термического разложения CH_4 в экспериментальных и теоретических работах при высоких температурах [7–10, 19, 37, 38] и нормальных и низких давлениях.

2. МД-расчеты позволили установить последовательность формирования углеводородных структур в продуктах разложения метана от соединения отдельных атомов углерода в нити, свертывание их в кольца и соединение в крупные многоатомные и многокольцевые структуры вместе с атомами и молекулами водорода и легких углеводородов – ПАУ. Дальнейшему укрупнению углеводородов препятствуют атомы водорода и легкие углеводородные молекулы из продуктов разложения метана, которые заполняют свободные связи углеродных атомов и замедляют образование структур углеводородных макромолекул, что согласуется с выводами [19, 20].

В авторских и других современных МД-расчетах термического разложения углеводородов образования структуры конденсированного наноуглерода не наблюдалось. В лучшем случае можно говорить только о начале процесса нуклеации конденсированной фазы при объединении нескольких ПАУ в одну наноструктуру. В [43] сделан вывод об образовании сажи вследствие химического реагирования ПАУ при высоких температурах.

Рассмотренные в работе параметризации реакционно-силового поля ReaxFF-lg, $\text{ReaxFF}_{\text{CHO}}$ и $\text{ReaxFF}_{\text{PAH}}$, вероятно, не предназначены для моделирования структуры конденсированного углерода в смеси газообразных продуктов термического разложения метана, присоединяющихся к свободным связям атомов углерода и препятствующих образованию структуры графита.

3. Методики неравновесного МД-моделирования и квазиравновесных термодинамических расчетов относятся к крайним вариантам получения информации о параметрах и составе продуктов термического разложения метана. Несмотря на один порядок расчетных значений давления в этих методиках, состав продуктов разложения метана заметно различается в них.

Квазиравновесные термодинамические и МД-расчеты показывают, что для образования промежуточных углеводородных продуктов при разложении метана температура оказывается более важным параметром, чем плотность.

4. Результаты МД-моделирования завышают пороговые значения температур начала терми-

ческого разложения метана при заданных величинах температуры и плотности по сравнению с экспериментальными данными, полученными с ударными волнами, возбуждаемыми взрывами энергетических веществ или выстрелами газовых пушек, и результатами квазиравновесных термодинамических расчетов.

Основной причиной этого различия являются недостаточно протяженные пространственные масштабы и длительность МД-расчетов, которые не воспроизводят медленные химические реакции в продуктах разложения метана. Квазиравновесные термодинамические расчеты разложения метана начинаются при более низких значениях температуры по сравнению с МД-моделированием. По-видимому, реальный процесс разложения метана в рассматриваемой модельной постановке должен быть ближе к результатам квазиравновесного расчета, чем неравновесного МД-моделирования, которое необоснованно завышает температуры начала разложения метана.

5. Рассчитанные в [19] с реакционно-силовым полем ReaxFF временные зависимости количественных характеристик термического разложения метана (максимальные и минимальные значения, степени разложения и образования, выходы на плато количества молекул и атомов промежуточных продуктов и метана), а также расчеты с параметризациями $ReaxFF_{CHO}$ и $ReaxFF_{PAH}$ заметно превышают по длительности значения, полученные в настоящих МД-расчетах с реакционным полем ReaxFF-lg. Следовательно, силовое поле ReaxFF-lg сокращает на ~ 50–100% длительность характерных параметров разложения и образования промежуточных продуктов разложения метана по сравнению с рассмотренными в данной работе параметризациями. В [18] также отмечаются заметные различия в качественном описании и количественных характеристиках процессов образования углеродных наночастиц, моделируемых МД-расчетами с разными реакционными силовыми полями и даже их параметризациями. Это указывает на необходимость тщательного сравнения и валидации реакционных силовых полей при МД-моделировании.

В то же время результаты МД-моделирования, выполненные с использованием ReaxFF-lg в многочисленных статьях по расчету критических параметров для начала разложения органических и энергетических веществ в ударных волнах [45, 48], согласуются с экспериментальными значениями, полученными в ударных волнах, генерируемых лазерными разрядами [49].

Следовательно, короткие неравновесные МД-моделирования на основе параметризации ReaxFF-lg достоверны и могут применяться для предсказания характеристик термического разложения органических веществ при высоких температурах и плотностях.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение с ОИВТ РАН № 075-15-2020-785 от 23 сентября 2020 г.).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Gautier M., Rohani V., Fulcheri L.* Direct Decarbonization of Methane by Thermal Plasma for the Production of Hydrogen and High Value-added Carbon Black // Int. J. Hydrog. Energy. 2017. V. 42. № 47. P. 28140.
2. *Kevorkian V., Heath C.E., Boudart M.* The Decomposition of Methane in Shock Waves // J. Phys. Chem. 1960. V. 64. № 8. P. 964.
3. *Kozlov G.I., Knorre V.G.* Single-pulse Shock tube Studies on the Kinetics of the Thermal Decomposition of Methane // Combust. Flame. 1962. V. 6. P. 253.
4. *Khan M.S., Crynes B.L.* Survey of Recent Methane Pyrolysis Literature // Ind. Eng. Chem. 1970. V. 62. № 10. P. 54.
5. *Hartig R., Troe J., Wagner H.G.* Thermal Decomposition of Methane behind Reflected Shock Waves // Symp. Combust. 1971. V. 13. № 1. P. 147.
6. *Chen C.J., Back M.H.* The Thermal Decomposition of Methane. 1. Kinetics of the Primary Decomposition to $C_2H_6 + H_2$; Rate Constant for the Homogeneous Unimolecular Dissociation of Methane and Its Pressure Dependence // Can. J. Chem. 1975. V. 53. P. 3580.
7. *Hidaka Y., Nakamura T., Tanaka H. et al.* High Temperature Pyrolis of Methane in Shock Waves. Rates for Dissociative Recombination Reactions of Metil Radicals and Propyne Formation Reaction // Int. J. Chem. Kinet. 1990. V. 22. P. 701.
8. *Holmen A., Olsvik O., Rokstad O.A.* Pyrolysis of Natural-gas Chemistry and Process Concepts // Fuel Process. Technol. 1995. V. 42. № 2–3. P. 249.
9. *Kee R.J., Rupley F.M., Miller J.A. et al.* CHEMKIN Collection, Release 3.5. San Diego, CA: Reaction Design, Inc., 2000.
10. *Abbas H.F., Daud W.W.* Hydrogen Production by Methane Decomposition: a Review // Int. J. Hydrogen Energy. 2010. V. 35. № 3. P. 1160.
11. *Pinilla J.L., Suelves I., Lázaro M.J., Moliner R.* Kinetic Study of the Thermal Decomposition of Methane Using Carbonaceous Catalysts // Chem. Eng. J. 2008. V. 138. P. 301.
12. *Gaudernack B., Lynum S.* Hydrogen from Natural Gas without Release of CO_2 to the Atmosphere // Int. J. Hydrogen Energy. 1998. V. 23. № 12. P. 1087.
13. *Fulcheri L.* Direct Decarbonization of Methane by Thermal Plasma for the Synthesis of Carbon Black and Hydrogen // Int. J. Hydrogen Energy. 2017. V. 42. № 47. P. 28140.
14. *Bogana M.P., Colombo L.* Atomic Scale Simulations of Vapor Cooled Carbon Clusters // Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process. 2007. V. 86. № 3. P. 275.
15. *Yamaguchi Y., Maruyama S.* A Molecular Dynamics Simulation of the Fullerene Formation Process // Chem. Phys. Lett. 1998. V. 286. P. 336.
16. *Nyden M.R., Stoliarov S.I., Westmoreland P.R., Guo Z.X., Jee C.* Applications of Reactive Molecular Dynamics to the Study of the Thermal Decomposition of Polymers and Nanoscale Structures // Matter. Sci. Eng. A. 2004. V. 365. P. 114.

17. *Galiullina G.M., Orekhov N.D., Stegailov V.V.* Nucleation of Carbon Nanostructures: Molecular Dynamics with Reactive Potentials // J. Phys.: Conf. Ser. 2016. V. 774. 012033.
18. *Ostroumova G., Orekhov N., Stegailov V.* Reactive Molecular-dynamics Study of Onion-like Carbon Nanoparticle Formation // Diamond Relat. Mater. 2019. V. 94. P. 14.
19. *Lummen N.* REAX FF-molecular Dynamics Simulations of Non-oxidative and Non-catalysed Thermal Decomposition of Methane at High Temperatures // Phys. Chem. Chem. Phys. 2010. V. 12. P. 7873.
20. *Lummen N.* Aggregation of Carbon in an Atmosphere of Molecular Hydrogen Investigated by REAXFF-molecular Dynamics Simulations // Comput. Mater. Sci. 2010. V. 49. P. 243.
21. *Liu L., Liu Y., Zybin S.V., Sun H., Goddard III W.A.* Reaxff-lg: Correction of the REAXFF Reactive Force Field for London Dispersion, with Applications to the Equations of State for Energetic Materials // J. Phys. Chem. A. 2011. V. 115. P. 11016.
22. LAMMPS – A Flexible Simulation Tool for Particle-based Materials Modeling at the Atomic, Meso, and Continuum Scales. https://www.lammps.org/
23. *Chenoweth K., Van Duin A.C.T., Goddard W.A.I.* ReaxFF Reactive Force Field for Molecular Dynamics Simulations of Hydrocarbon Oxidation // J. Phys. Chem. A. 2008. V. 112. № 5. P. 1040.
24. *Mao Q., Ren Y., Luo K.H., van Duin A.* Dynamics and Kinetics of Reversible Homo-molecular Dimerization of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons // J. Chem. Phys. 2017. V. 147. P. 244305.
25. *Van Duin A.C.T., Dasgupta S., Lorant F., Goddard III W.A.* Reaxff: A Reactive Force Field for Hydrocarbons // J. Phys. Chem. A. 2001. V. 105. P. 9396.
26. *Victorov S.B., El-Rabii H., Gubin S.A., Maklashova I.V., Bogdanova Yu.A.* An Accurate Equation-of-state Model for Thermodynamic Calculations of Chemically Reactive Carbon-containing Systems // J. Energ. Mater. 2010. V. 28. P. 35.
27. *Kang H.S., Lee C.S., Ree T., Ree F.H.* A Perturbation Theory of Classical Equilibrium Fluids // J. Chem. Phys. 1985. V. 82. № 1. P. 414.
28. *Богданова Ю.А., Губин С.А., Викторов С.Б., Губина Т.В.* Теоретическая модель уравнения состояния двухкомпонентного флюида с потенциалом exp-6 на основе теории возмущений // ТВТ. 2015. Т. 53. № 4. С. 506.
29. *Губин С.А., Маклашова И.В.* Термодинамические условия синтеза алмазов // V Междун. конф. “Лазерные, плазменные исследования и технологии” ЛАПЛАЗ-2019. Сб. науч. тр. М.: НИЯУ МИФИ, 2019. С. 277.
30. *Губин С.А., Джелилова Е.И., Маклашова И.В.* Влияние формы и размера наночастиц на фазовую диаграмму углерода // Горение и взрыв. 2014. Т. 7. С. 226.
31. *Glosli J.N., Ree F.H.* Liquid-liquid Phase Transformation in Carbon // Phys. Rev. Lett. 1999. V. 82. № 23. P. 4659.
32. *Одинцов В.В., Губин С.А., Пепекин В.И., Акимова Л.Н.* Определение формы и размера кристаллов алмаза за детонационной волной в конденсированных взрывчатых веществах II // Хим. физика. 1991. Т. 10. № 5. С. 687.
33. *Wentorf Jr. R.H.* The Behavior of Some Carbonaceous Materials at Very High Pressures and High Temperatures // J. Phys. Chem. 1965. V. 69. P. 3063.
34. *Bohme H., Jander H., Tanke D.* PAH Growth and Soon Formation in the Pyrolysis of Acetylene and Benzene at High Temperature and Pressures: Modeling and Experiment // Symp. (Int.) Combust. 1998. V. 27. № 1. P. 1605.
35. *Chanyshev A.D., Litasov K.D., Shatskiy A. et al.* Oligomerisation and Carbonization of Polycyclic Hydrocarbons at High-pressure Temperature // Carbon. 2015. V. 84. P. 225.
36. *Kim K.S., Seo J.H., Nam J.S., Ju W.T., Hong S.H.* Production of Hydrogen and Carbon Black by Methane Decomposition Using DC-RF Hybrid Thermal Plasmas // IEEE Trans. Plasma Sci. 2005. V. 33. P. 813.
37. *Dean A.J., Hanson R.K.* CH and C-atom Time Histories in Dilute Hydrocarbon Pyrolysis: Measurements and Kinetics Calculations // Int. J. Chem. Kinet. 1992. V. 24. P. 517.
38. *GuéRet C., Daroux M., Billaud F.* Methane Pyrolysis: Thermodynamics // Chem. Eng. Sci. 1997. V. 52. P. 815.
39. *Michael J.V., Lim K.P., Kiefer J.H., Kumaran S.S.* Thermal Decomposition of Carbon Tetrachloride // J. Phys. Chem. 1993. V. 97. P. 1914.
40. *Davydov V.A., Rakhmanina A.V., Agafonov V. et al.* Conversion of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons to Graphite and Diamond at High Pressures // Carbon. 2004. V. 42. P. 261.
41. *Sabbah H., Biennier L., Klippenstein S.J., Sims I.R., Rowe B.R.* Exploring the Role of Pahs in the Formation of Soot: Pyrene Dimerization // J. Phys. Chem. Lett. 2010. V. 1. № 19. P. 2962.
42. *Gebbie M.A., Ishewata H., McQuade P.J. et al.* Experimental Measurements of the Diamond Nucleation Landscape Reveals Classical and Nonclassical Features // PNAS. 2018. V. 115. № 33. P. 8284.
43. *Mao Q., Van Duin A.C.T., Luo K.H.* Formation of Incipient Soot Particles from Polycyclic Aromatic Hydrocarbons: a Reaxff Molecular Dynamics Study // Carbon. 2017. V. 121. P. 380.
44. *Lumen A., Holmen O.A., Rokstad O.A., Solbakken A.* High-temperature Pyrolysis of Hydrocarbons. 1. Methane to Acetylene // Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.1976. V. 15. P. 439.
45. *Martínez E., Perriot R., Kober E.M.* Parallel Replica Dynamics Simulations of Reactions in Shock Compressed Liquid Benzene // J. Chem. Phys. 2019. V. 150. 244108.
46. *Moore D.S.* Shock Physics at the Nanoscale // J. Opt. Soc. Am. B. 2018. V. 35. № 10. B1.
47. *Cawkwell M.J., Niklasson M.N., Dattelbaum D.M.* Extended Lagrangian Born–Oppenheimer Molecular Dynamics Simulations of the Shock-induced Chemistry of Phenylacetylene // J. Chem. Phys. 2015. V. 142. 064512.
48. *Mahbubul I., Strachan A.* Decomposition and Reaction of Polyvinyl Nitrate under Shock and Thermal Loading: a REAXFF Reactive Molecular Dynamics Study // J. Phys. Chem. C. 2017. V. 121. P. 22452.
49. *Brown K.E., Mcgrane S.D., Bolme C.A., Moore D.S.* Ultrafast Chemical Reactions in Shocked Nitromethane Probed with Dynamic Ellipsometry and Transient Absorption Spectroscopy // J. Phys. Chem. A. 2014. V. 118. P. 2559.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 559–566

ТЕПЛОМАССООБМЕН И ФИЗИЧЕСКАЯ ГАЗОДИНАМИКА

УДК 536.21

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ПЕРСПЕКТИВНЫХ ТЕПЛОИЗОЛЯЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ ДЛЯ КОСМИЧЕСКОЙ ТЕХНИКИ

© 2023 г. О. М. Алифанов, С. А. Будник, А. В. Ненарокомов, М. О. Салосина*

Московский авиационный институт (национальный исследовательский университет), Москва, Россия

**E-mail: salosina.m@yandex.ru*

Поступила в редакцию 12.12.2022 г.
После доработки 19.03.2023 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

Данная работа посвящена исследованию теплофизических свойств перспективных высокопористых ячеистых материалов методами обратных задач теплообмена. Представлены результаты тепловых испытаний образцов данных материалов с разной структурой, определяемой диаметром ячеек. Получены теплофизические характеристики образцов, которые могут быть использованы для построения и верификации математических моделей теплообмена в высокопористых ячеистых материалах.

DOI: 10.31857/S0040364423040014

ВВЕДЕНИЕ

Изучение Солнца, планет и малых тел Солнечной системы с помощью автоматических межпланетных станций и спускаемых аппаратов – одно из приоритетных направлений фундаментальных космических исследований, целью которых является развитие теоретических основ ключевых научных дисциплин о космосе. Тепловая защита космических аппаратов функционирует при значительных тепловых нагрузках [1–6], поэтому необходима ее оптимальная сборка как по конструкторско-технологическим, так и по массовым характеристикам. Одно из перспективных направлений повышения весовой эффективности многослойных теплозащитных покрытий космических аппаратов связано с включением в их состав ультралегких теплоизоляционных материалов [7–9]. Большими возможностями здесь обладают высокопористые ячеистые материалы (ВПЯМ) благодаря малой плотности (50–400 кг/м^3), высокой жесткости, достаточной прочности при сжатии (0.3–4.0 МПа), невысокой теплопроводности (0.06–0.60 Вт/(м K)) [10].

Теплофизические характеристики ВПЯМ существенно зависят от многих факторов: температуры, состава материала, геометрических параметров структуры, свойств исходного сырья, используемой технологии производства материала. С одной стороны, это позволяет в процессе производства управлять свойствами получаемых ВПЯМ в достаточно широком диапазоне, создавая материалы с заранее заданными свойствами, имеющие оптимальную для конкретных условий эксплуатации структуру [11, 12]. С другой стороны, такая многофакторность затрудняет определение, моделирование и прогнозирование свойств материалов и увеличивает разброс их значений.

Внедрение перспективных высокопористых ячеистых материалов в практику проектирования эффективных теплозащитных конструкций требует разработки адекватных математических моделей теплообмена, позволяющих с достаточной точностью прогнозировать изменение теплофизических свойств материалов при изменении параметров макро- и микроструктуры [13–19]. Высококачественные математические модели теплофизических свойств ВПЯМ необходимы для определения проектных параметров элементов конструкций и получения максимального количества информации о характеристиках исследуемых объектов с использованием экспериментальных данных. Разработка подобных моделей представляет большой теоретический и практический интерес, так как позволяет существенно сократить объемы экспериментальных исследований при создании новых образцов авиационной и космической техники за счет широкого применения методов математического моделирования [20–24].

Большими потенциальными возможностями для разработки математических моделей теплопереноса в ВПЯМ обладает методология обратных задач теплообмена (ОЗТ). Данный подход является универсальным для идентификации и верификации математических моделей по результатам экспериментальных исследований в условиях, максимально приближенных к натурным, или непосредственно при эксплуатации объектов, обладает высокой информативностью, позволяет проводить исследования образцов материала в

условиях нестационарности температурного поля, в широких диапазонах температур, реализовывать схему испытаний, не нарушающую целостность образца [25–30].

Данная работа посвящена исследованию теплофизических свойств высокопористых ячеистых материалов методами обратных задач теплообмена. Представлены результаты тепловых испытаний образцов ВПЯМ с разной структурой, определяемой диаметром ячеек. Получены теплофизические характеристики образцов, которые могут быть использованы для построения и верификации математических моделей теплообмена в ВПЯМ с учетом параметров их структуры.

ТЕПЛОВЫЕ ИСПЫТАНИЯ ОБРАЗЦОВ ВПЯМ С РАЗНОЙ СТРУКТУРОЙ

Для оценки влияния геометрических параметров структуры на теплофизические свойства высокопористых ячеистых материалов проведены тепловые испытания образцов ВПЯМ с разной структурой. В испытаниях определялись характеристики теплового состояния (нестационарное одномерное поле температур) трехслойного пакета, имитирующего работу теплозащитного покрытия, в условиях нестационарного радиационно-кондуктивного нагрева. Модельная сэндвич-панель (рис. 1) состояла из двух пластин из высокотемпературной керамики (d_1 = 2.95, d_3 = 7.15 мм), между которыми располагалось ядро из высокопористого материала толщиной d_2 (табл. 1). В качестве теплоизоляционного материала в сэндвич-панели использовались образцы углеродных ВПЯМ производства компании ERG Aerospace Corporation (США) RVC-20, RVC-60 и RVC-80 с разной структурой, определяемой числом пор на единицу линейного размера: 8, 24 и 32 пор/см. Пластины изготавливались из высокотемпературного керамического материала на основе реакционно-связанного нитрида кремния с известными теплофизическими свойствами [31, 32].

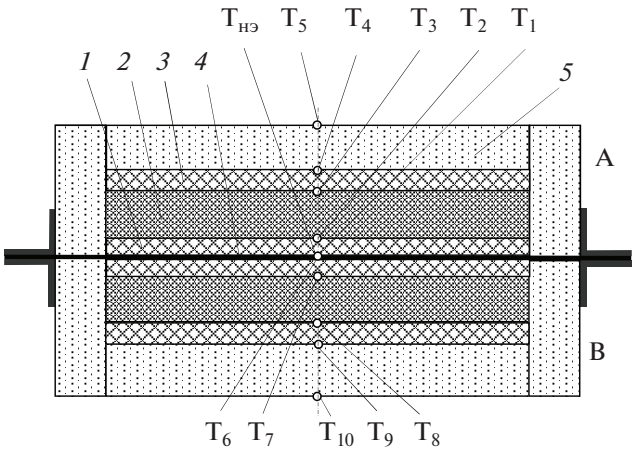

Рис. 1. Схема испытаний с симметричным нагревом двух экспериментальных сборок: *1* – пластина из высокотемпературной керамики d_1; *2* – образец ВПЯМ d_2; *3* – пластина из высокотемпературной керамики d_3; *4* – нагревательный элемент (НЭ); *5* – прижимная теплоизолирующая пластина; $T_{НЭ}$, T_1–T_{10} – термопары.

Таблица 1. Геометрические и массовые характеристики экспериментальных образцов

Образец	d_2, мм	Плотность (после испытаний), кг/м^3
RVC-20 A	12.83	48.28
RVC-20 B	12.47	43.44
RVC-60 A	12.75	45.36
RVC-60 B	12.90	45.37
RVC-80 A	13.00	44.58
RVC-80 B	12.70	47.42

В процессе тепловых испытаний реализуется симметричная схема (рис. 1) с кондуктивно-радиационным нагревом двух одинаковых экспериментальных сборок A и B, каждая из которых включает образец ВПЯМ, расположенный между двумя пластинами из высокотемпературного керамического материала. Симметричная схема тепловых испытаний позволяет одновременно испытывать два одинаковых образца ВПЯМ (A и B). На нагреваемых и обратных поверхностях керамических пластин устанавливались микротермопары типа ХА диаметром 100 мкм, сваренные способом встык. Экспериментальная сборка A с образцом ВПЯМ A и термопарами T_1–T_4 и экспериментальная сборка B с образцом ВПЯМ B и термопарами T_6–T_9 располагались на верхней и нижней поверхностях нагревательного элемента (НЭ) в специальных теплоизолирующих оправках из материала ТЗМК-10. Обратные поверхности экспериментальных сборок закрывались теплоизолирующими прижимными пластинами, на обратных поверхностях которых установлены термопары T_5 и T_{10}. Термопарные проволоки выводятся из экспериментальных сборок через стыки элементов теплоизолирующих оправок. Экспериментальные сборки плотно прижимаются к поверхностям нагревательного элемента с помощью специальных пружин с регулируемым усилием, установленных в узлах подвеса экспериментального модуля ЭМ-2В. Собранный модуль ЭМ-2В устанавливается на водоохлаждаемый рабочий стол вакуумной камеры тепловакуумного стенда ТВС-1М. Выбранная схема испытаний позволяет проанализировать тепловые режимы (нестационарное поле температур и прогрев) модельной сэндвич-панели и получить данные, необходимые для определения теплофизических характеристик образцов ВПЯМ.

Процесс теплообмена в трехслойной экспериментальной сборке описывается следующей системой уравнений:

$$C_l(T_l)\frac{\partial T_l}{\partial \tau} = \frac{\partial}{\partial x}\left(\lambda_l(T_l)\frac{\partial T_l}{\partial x}\right), \quad (1)$$
$$x \in (X_{l-1}, X_l), \quad l = 1, 2, 3, \quad \tau \in (\tau_{\min}, \tau_{\max}];$$

$$T_l(x, \tau_{\min}) = T_{0l}(x), \quad x \in [X_{l-1}, X_1]; \quad (2)$$

$$-\lambda(T)\frac{\partial T(X_0, \tau)}{\partial x} = q_{\text{нэ}}(\tau), \quad \tau \in (\tau_{\min}, \tau_{\max}]; \quad (3)$$

$$T(X_3, \tau) = T_b(\tau), \quad \tau \in (\tau_{\min}, \tau_{\max}], \quad (4)$$

где $C(T)$ – объемная теплоемкость; $T(x, \tau)$ – температура, x – координата по пространству; $\lambda(T)$ – теплопроводность; l – номер слоя экспериментальной сборки; X – координата границы слоя, отсчитываемая от поверхности НЭ; $q_{\text{нэ}}$ – плотность теплового потока от НЭ, b – номер термопары ($b = 4$ – для сборки А, $b = 9$ – для сборки В).

Начальное распределение температуры $T_l(x, \tau_{\min}) = T_{0l}(x)$ соответствует значениям температуры в точках измерений в начальный момент времени $\tau = 0$. Плотность теплового потока $q_{\text{нэ}}(\tau)$, $\tau_{\min} \le \tau \le \tau_{\max}$ определяется по электрическим параметрам нагревательного элемента:

$$q_{\text{нэ}}(\tau) = \frac{I(\tau)U(\tau)}{2S} - \left(\frac{\rho_{\text{нэ}}\delta_{\text{нэ}}c_{\text{нэ}}}{2}\frac{\partial T_{\text{нэ}}(\tau)}{\partial \tau}\right), \quad (5)$$
$$\tau \in (0, \tau_e],$$

где $I(\tau)$ – действующая сила тока в цепи НЭ; $U(\tau)$ – действующее напряжение на границах рабочей зоны НЭ; $S = 0.005$ м^2 – площадь рабочей зоны НЭ; $\delta_{\text{нэ}} = 0.0001$ м – толщина НЭ; $T_{\text{нэ}}(\tau)$ – температура НЭ; τ_e – время окончания измерений (испытаний) $\rho_{\text{нэ}}$, $c_{\text{нэ}}$ – плотность и теплоемкость материала НЭ: $\rho_{\text{нэ}} = (7902 - 0.0584T_{\text{нэ}})$ кг/м^3, $c_{\text{нэ}}(T) = (500 + 0.1744T_{\text{нэ}})$ Дж/(кг °С).

Результаты температурных измерений в трехслойной панели являются исходными данными для определения теплофизических характеристик (ТФХ) ВПЯМ из решения коэффициентной ОЗТ. Тип граничных условий и число точек измерения температуры должны обеспечивать единственность решения анализируемой обратной задачи [27]. Механические и электрические свойства исследуемых образцов ВПЯМ, а также их структура, не позволяют надежно установить термопары во внутренних точках образцов, поэтому все тепловые измерения должны проводиться на поверхностях образцов. Керамический материал имеет значительную твердость и поддается обработке только алмазным инструментом, поэтому термопары устанавливаются только на нагреваемых и обратных поверхностях пластин из керамики в специально прорезанные канавки глубиной 170 мкм. Канавки с термопарами заделываются (шпаклюются) заподлицо с поверхностью специально приготовленным составом на основе порошка керамического материала (90%) и огнеупорного клея (10%) с рабочей температурой 1300°С. Таким же образом устанавливаются провода управляющей термопары $T_{\text{нэ}}$, измеряющей температуру в центре нагревательного элемента. Вне пластин термопарные проволоки электроизолируются.

Тепловые испытания экспериментальных сборок с образцами ВПЯМ RVC-20, RVC-60, RVC-80 проводились при одинаковых условиях (режим нагрева в вакууме при давлении 0.005–0.06 Па до максимальной температуры 1000°С с темпом нагрева ~1°С/с). Кроме того, в испытаниях использовались образцы ВПЯМ с близкими значениями толщины, одинаковые образцы керамического материала и элементы теплоизолирующих оправок. Таким образом, результаты проведенных тепловых испытаний позволяют сравнить теплоизоляционные свойства образцов ВПЯМ с разной структурой и оценить влияние параметров структуры данных материалов на их свойства.

В процессе тепловых испытаний температуры T_1 и T_6, T_2 и T_7 в симметричных точках экспериментальных сборок А и В имели близкие значения, что свидетельствует о хорошей реализации симметричной схемы нагрева модельных трехслойных панелей. В то же время в испытаниях экспериментальных сборок с образцами ВПЯМ RVC-20 показания симметрично расположенных термопар T_3 и T_8, T_4 и T_9 имели значительное (до 100 К) расхождение, которое увеличивалось с ростом температуры. Данное несоответствие объясняется существенной разницей (до 10%) в плотностях ВПЯМ образцов RVC-20 А и В. При высоких температурах доминирующим механизмом теплопереноса в высокопористом материале становится излучение, и более плотный материал образца А прогревается медленнее.

Зависимости температуры нагревательного элемента $T_{\text{нэ}}(\tau)$ от времени совпадают во всех трех испытаниях экспериментальных сборок с образцами ВПЯМ RVC-20, RVC-60 и RVC-80 (рис. 2). На нагреваемой поверхности образца RVC-20 реализуются меньшие значения температуры T_2, однако данный образец прогревается значительно быстрее остальных (особенно при высоких температурах), о чем свидетельствует характер изменения температуры T_3 на обратной поверхности образца. Таким образом, материал RVC-20 с наибольшим диаметром ячеек демонстрирует наихудшие теплоизоляционные свойства.

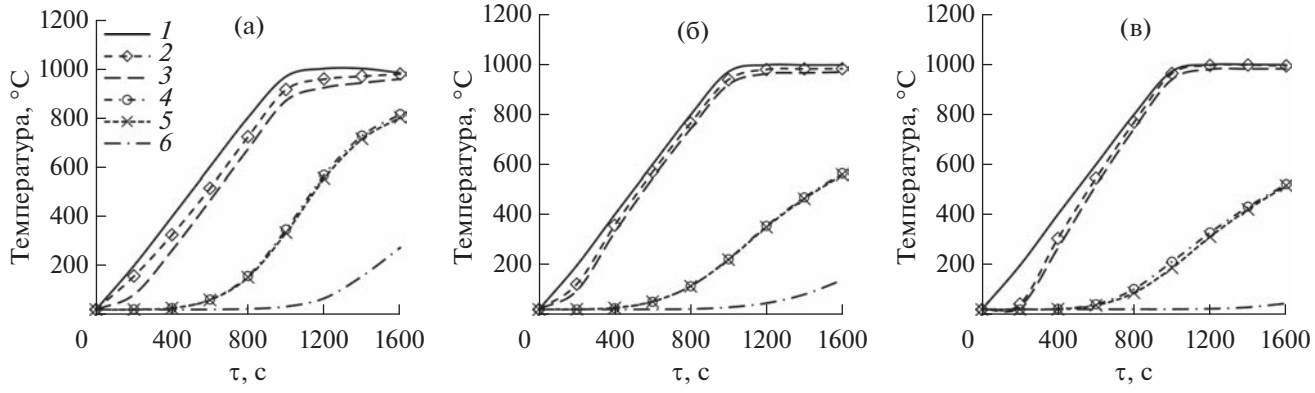

Рис. 2. Результаты прогрева экспериментальной сборки А с образцами ВПЯМ RVC-20 (а), RVC-60 (б), RVC-80 (в): *1* – данные термопары $Т_{нэ}$, *2* – Т1, *3* – Т2, *4* – Т3, *5* – Т4, *6* – Т5.

Температура T_2 нагреваемой поверхности образца ВПЯМ возрастает с увеличением числа пор/см (уменьшением диаметра ячеек) материала при температурах, превышающих ~800°С. Температура обратной поверхности образца ВПЯМ T_3 при высоких температурах существенно падает с увеличением числа пор/см. Таким образом, наилучшими теплоизоляционными свойствами при высоких температурах, когда доминирующим механизмом переноса тепла является излучение, обладают ВПЯМ с наименьшим размером ячеек.

Плотность теплового потока в испытаниях сборок с образцами RVC-20 значительно выше, чем в испытаниях с образцами RVC-60, RVC-80 (рис. 3). Это объясняется тем, что для реализации заданной программы нагрева при испытании экспериментальной сборки с материалом RVC-20, обладающим самыми низкими теплоизоляционными свойствами, к НЭ необходимо подвести большее количества тепла.

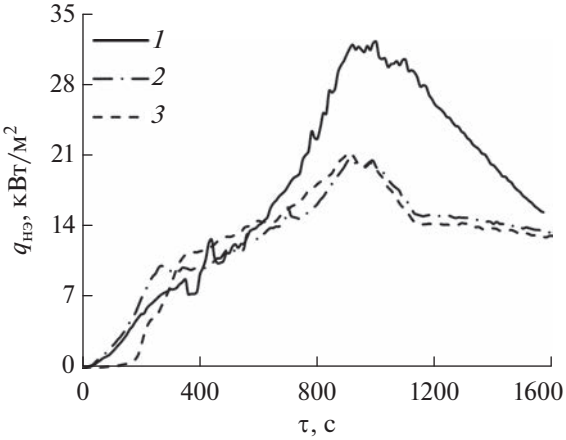

Рис. 3. Зависимости плотности теплового потока на нагревательном элементе: *1* – RVC-20, *2* – RVC-60, *3* – RVC-80.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ВПЯМ

Постановка рассматриваемой ОЗТ подразумевает определение теплофизических характеристик ВПЯМ $C(T)$ и $\lambda(T)$ в диапазоне температур от комнатной до 1000°С.

В качестве дополнительной информации, необходимой для решения ОЗТ, используются показания установленных на нагреваемой и обратной поверхностях образцов ВПЯМ датчиков температуры: $T_2(\tau)$ и $T_3(\tau)$, $\tau_{\min} \le \tau \le \tau_{\max}$ для образца А, $T_7(\tau)$ и $T_8(\tau)$, $\tau_{\min} \le \tau \le \tau_{\max}$ для образца В.

Неизвестные функции $C(T)$ и $\lambda(T)$ представляются в виде линейной комбинации кубических В-сплайнов [29]

$$C(T) = \sum_{k=1}^{N_1} C_k \varphi_k^1(T), \quad \lambda(T) = \sum_{k=1}^{N_2} \lambda_k \varphi_k^2(T)$$

на заданных в интервале $[T_{\min}, T_{\max}]$ однородных сетках

$$\omega_i = \{T_k = T_{\min} + (k-1)\Delta T, k = 1,\ldots,N_i\}, \quad i = 1,2$$

с различным числом узлов N_i. C_k, λ_k – неизвестные параметры, $\varphi_k(T)$ – заданная система базисных функций аппроксимирующего кубического В-сплайна.

В результате исходная функциональная обратная задача сводится к менее трудоемкой параметрической, заключающейся в нахождении вектора неизвестных параметров $\mathbf{p} = \{p_k\}, k = 1, N_p$, имеющего размерность $N_p = N_1 + N_2$ и состоящего из коэффициентов C_k (k = 1, N_1) и λ_k (k = 1, N_2). При выборе числа параметров аппроксимации учитывается имеющаяся предварительная информация об искомых функциях (гладкости, монотонности, темпе роста). В расчетах N_1 и N_2 принимались равными трем.

Искомый вектор определяется в результате минимизации положительно определенного функционала среднеквадратической невязки рассчитанных и экспериментальных значений температуры в точках установки термодатчиков [29]:

$$J(C(T),\lambda(T)) = \sum_{m=1}^{2}\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}}\left(T^{\text{расч}}(x_m,\tau)-T^{\text{эксп}}(x_m,\tau)\right)^2 d\tau, \quad (6)$$

где $T^{\text{расч}}(x_m,\tau)$ – зависимости температуры от времени в точках установки термодатчиков, найденные из решения краевой задачи (1)–(4); $T^{\text{эксп}}(x_m,\tau)$ – экспериментальные значения температуры.

Для поиска минимума функционала (6) используется метод сопряженных градиентов, в соответствии с которым очередное приближение вектора **p** вычисляется по формулам

$$\mathbf{p}^{s+1} = \mathbf{p}^s + \gamma^s \mathbf{g}^s,$$

$$\mathbf{g}^s = -\mathbf{J}_p^{'(s)} + \beta^s \mathbf{g}^{s-1},$$

$$\beta^0 = 0,\quad \beta^s = \left\langle \left(\mathbf{J}_p^{'(s)} - \mathbf{J}_p^{'(s-1)}\right),\ \mathbf{J}_p^{'(s)}\right\rangle_{R^{N_p}} \Big/ \left\|\mathbf{J}_p^{'(s)}\right\|_{R^{N_p}},$$

где $\mathbf{J}_p^{'(s)}$ – градиент функционала на текущей итерации s, $s = 0, 1, ..., s^*$, **g** – направление поиска, γ – длина шага, определяемая в результате приближенного решения задачи одномерной безусловной минимизации функции J^{s+1}.

Компоненты градиента функционала имеют вид [29]

$$J_{Ck}^{'(s)} = -\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}}\int_{x_0}^{x_1}\psi(x,\tau)\varphi_k^1(T)\frac{\partial T}{\partial \tau}dxd\tau;$$

$$J_{\lambda k}^{'(s)} = -\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}}\int_{x_0}^{x_1}\psi(x,\tau)\left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2}\varphi_k^2(T)+\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)^2\frac{\partial \varphi_k^2}{\partial T}\right)dxd\tau -$$

$$-\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}}\psi(X_0,\tau)\frac{\partial T}{\partial x}(X_0,\tau)\varphi_k^2(T(X_0,\tau))d\tau +$$

$$+\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}}\psi(X_1,\tau)\frac{\partial T}{\partial x}(X_1,\tau)\varphi_k^2(T(X_1,\tau))d\tau,$$

$$k = 1,\ldots,N_p,\quad i = 1,2,$$

где $\psi(x,\tau)$ – решение краевой задачи, сопряженной к линеаризованной форме задачи (1)–(4).

Регуляризирующим параметром останова итерационного процесса является номер последней итерации s*, выбранной в соответствии с условием

$$s^*: J(\mathbf{p}^{s^*}) \le \delta_f,$$

где $\delta_f = \sum_{m=1}^{2}\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}}\sigma_m(\tau)d\tau$ – интегральная ошибка температурных измерений, σ_m – дисперсия погрешности измерений температуры датчиками.

Полученные в результате решения ОЗТ ТФХ образцов А и В материала RVC-20 заметно различаются (рис. 4). Это связано с тем, что образец А имеет большую кажущуюся плотность (меньшую пористость), чем образец В, благодаря чему материал образца А демонстрирует лучшие теплоизоляционные свойства по сравнению с материалом образца В при высоких температурах, когда доминирующим механизмом переноса тепла является излучение. Значения кажущейся плотности образцов А и В материала RVC-60 практически совпадают, поэтому и теплофизические характеристики образцов близки. Образец А материала RVC-80 имеет меньшую плотность (большую пористость), чем образец В, в результате чего теплопроводность образца А при высоких температурах превышает теплопроводность образца В. Размер ячеек ВПЯМ оказывает сильное влияние на радиационную составляющую теплопроводности материала. Наилучшими теплоизоляционными свойствами обладает материал RVC-80 с минимальным диаметром ячейки (рис. 4б).

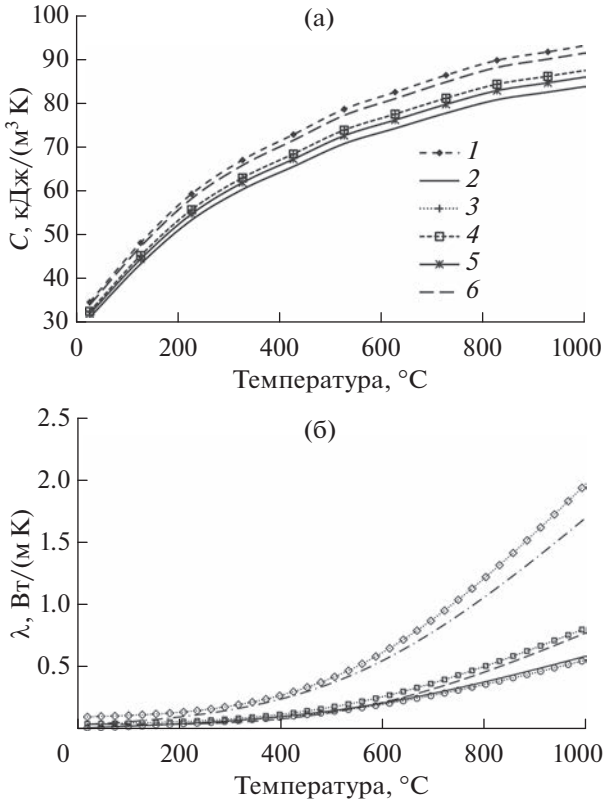

Рис. 4. Объемная теплоемкость (а) и теплопроводность (б) материалов RVC-20 (*1*, *2*), RVC-60 (*3*, *4*), RVC-80 (*5*, *6*): *1*, *3*, *5* – сборка А; *2*, *4*, *6* – сборка В.

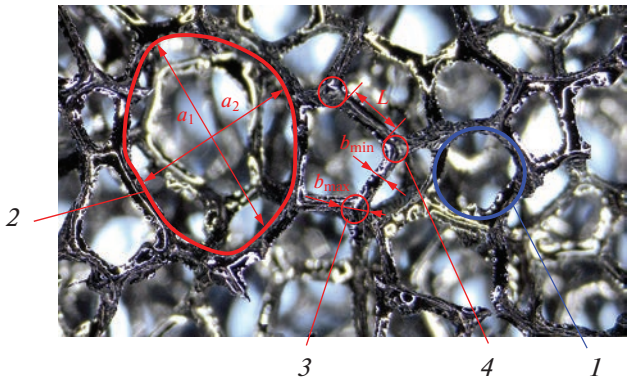

Рис. 5. Элементы структуры ВПЯМ: *1* – пора, *2* – ячейка, *3* – узел, *4* – стержень (тяж).

ВЕРИФИКАЦИЯ МАТЕМАТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ РАДИАЦИОННО-КОНДУКТИВНОГО ТЕПЛООБМЕНА В ВПЯМ

Исследуемые материалы RVC-20, RVC-60, RVC-80 имеют трехмерную пространственную структуру с открытыми порами (рис. 5). Элементарная ячейка структуры материала имеет форму, близкую к пентагондодекаэдру, состоящему из двенадцати пятиугольных граней, в вершинах которого располагаются узлы, а ребра образованы соединяющими узлы стержнями [33]. В одном узле, как правило, соединяются четыре стержня, но встречаются узлы, объединяющие и большее количество стержней (до шести). Толщина стержня переменна по длине и увеличивается в окрестности узла. Форма сечения стержней близка к равностороннему треугольнику с вогнутыми сторонами. Элементы ячеистой структуры (ячейки, поры, стержни и узлы) имеют различные размеры и ориентированы в пространстве произвольным образом. В структуре материала присутствуют различные дефекты, в результате чего структура реального ВПЯМ может значительно отличаться от ее математической модели.

Размеры элементов структуры исследуемых образцов ВПЯМ уменьшаются с увеличением числа пор/см (табл. 2). В большей степени от числа пор на единицу линейного размера зависят размеры ячеек ВПЯМ и в меньшей степени – размеры стержней и узлов. Влияние числа пор/см на размеры элементов структуры материала уменьшается с ростом числа пор на единицу линейного размера.

Полученные в результате статистической обработки параметры, характеризующие структуру материалов, учитываются при расчете кондуктивной λ_c и радиационной λ_R составляющих теплопроводности в соответствии с разработанной в [11, 12] математической моделью радиационно-кондуктивного теплообмена в ВПЯМ:

$$\lambda_c = \frac{1}{3}(1-\delta)\lambda_s, \tag{7}$$

$$\lambda_R = \frac{16n^2\bar{\sigma}T^3}{3\beta_R}, \tag{8}$$

$$\frac{1}{\beta_R} = \frac{1}{\beta}\int_0^\infty \frac{1}{(1+0.4444\rho_\lambda)}\frac{\partial I_{\lambda b}(T)}{\partial I_b(T)}d\lambda, \tag{9}$$

$$\beta = \frac{1}{a}\left(2.62\sqrt{1-\delta}\left[1+0.22(1-k)^2\right]\times\right.$$
$$\left.\times\left[1-0.22(1-t)^2\right]\right). \tag{10}$$

Здесь δ – пористость ВПЯМ; λ_s – теплопроводность материала, образующего структуру ВПЯМ; n – осредненный показатель преломления среды; $\bar{\sigma}$ – постоянная Стефана–Больцмана; ρ_λ – спектральная отражательная способность материала; $I_b(T)$ – интенсивность излучения абсолютно черного тела; k – параметр, учитывающий форму поперечного сечения стержня – отношение радиуса окружности, описанной вокруг

Таблица 2. Средние значения параметров структуры образцов ВПЯМ с разным количеством пор/см

Параметр структуры	RVC-20	RVC-60	RVC-80
Число пор/см	7.82	22.68	31.40
a_1, мкм	3063.59	975.42	689.32
a_2, мкм	2660.38	884.00	624.53
b_{max}, мкм	394.52	124.76	90.02
L, мкм	578.51	181.37	129.55
b_{min}, мкм	216.69	79.53	49.12
a, мкм	2861.99	929.71	656.93
t	0.549	0.638	0.546
Количество измерений	307.00	302.00	307.00

Примечание. a_1 – больший диаметр ячейки, a_2 – меньший диаметр ячейки, L – длина стержня.

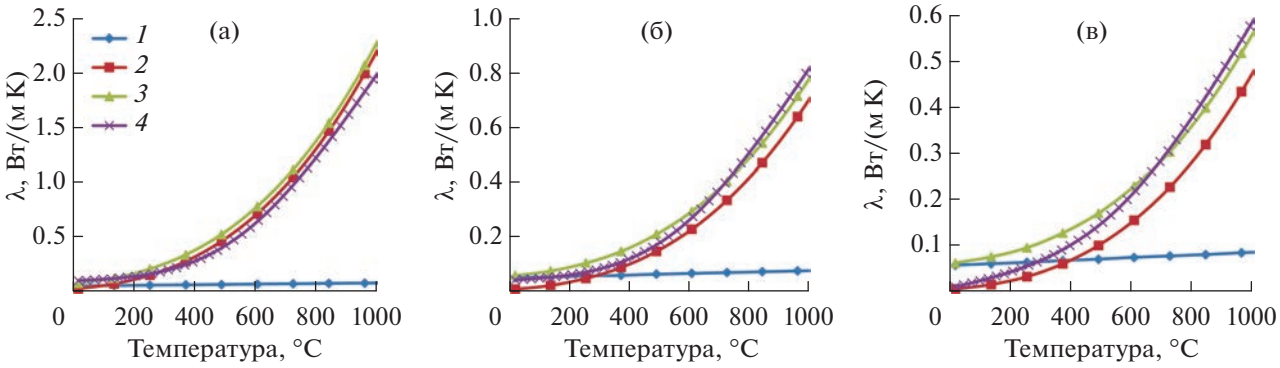

Рис. 6. Теплопроводность материалов RVC-20 (а), RVC-60 (б), RVC-80 (в): *1* – λ_c, расчет по (7)–(10); *2* – λ_R, расчет по (7)–(10); *3* – λ_Σ; *4* – λ_{eff}.

равностороннего треугольника, моделирующего поперечное сечение стержня, и радиуса кривизны вогнутой боковой поверхности стержня; a – средний диаметр ячейки; $t = b_{\min}/b_{\max}$ – отношение условного диаметра стрежня к диаметру узла.

Результаты численного моделирования теплопроводности образцов RVC-60, RVC-80 близки теплопроводности, определенной путем решения обратной задачи теплообмена, исходные данные для которой получены в процессе тепловых испытаний (рис. 6). Относительная погрешность определения коэффициента теплопроводности расчетно-экспериментальным путем λ_{eff} (решением ОЗТ) и теоретически по формулам (7)–(10) $\lambda_\Sigma = \lambda_c + \lambda_R$ рассчитывается с помощью соотношения

$$\Delta_r = \frac{|\lambda_\Sigma - \lambda_{\text{eff}}|}{\lambda_\Sigma}.$$

В диапазоне температур 500–1000°С эта величина не превышает 0.06 для материалов RVC-60, RVC-80 и 0.13 для RVC-20. Существенное расхождение теоретической и экспериментальной зависимостей теплопроводности от температуры образца RVC-20 при температуре выше 800°С связано с тем, что данный образец не является оптически толстой средой [34], поэтому диффузионное приближение, использованное для расчета радиационной составляющей теплопроводности, приводит к значительным погрешностям. Для материала RVC-80 расчетно-экспериментальный метод дает заниженную оценку теплопроводности в диапазоне температур от 20°С до 500°С по сравнению с теоретическим значением, полученным по формулам (7)–(10).

Таким образом, математическая модель радиационно-кондуктивного теплообмена в ВПЯМ (7)–(10) в целом адекватно отражает процессы кондуктивной теплопроводности через твердый каркас и излучения в пористой структуре рассматриваемых материалов и позволяет получать результаты, хорошо согласующиеся с экспериментальными данными.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты исследования теплофизических свойств высокопористых ячеистых материалов с разной структурой показывают, что наилучшими теплоизоляционными свойствами при высоких температурах, когда доминирующим механизмом переноса тепла является излучение, обладают ВПЯМ с наименьшим размером ячеек. Теплопроводность экспериментальных образцов ВПЯМ, рассчитанная путем численного моделирования, близка теплопроводности, определенной путем решения обратной задачи теплообмена, исходные данные для которой получены в процессе тепловых испытаний. Проведенные исследования подтвердили перспективность использования методологии обратных задач теплообмена для построения математических моделей теплообмена, позволяющих с достаточной точностью прогнозировать изменение теплофизических свойств ВПЯМ при изменении параметров макро- и микроструктуры.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Алексеев С.В., Аксенова И.В., Иванова Е.К., Харитонова Е.В., Лохов А.А.* К вопросу создания конструкции защитного теплового экрана космического аппарата “Интергелио-Зонд” // Вестник НПО им. С.А. Лавочкина. 2017. Т. 35. № 1. С. 64.
2. *Формалев В.Ф., Колесник С.А., Кузнецова Е.Л.* Тепломассоперенос на боковых поверхностях затупленных носовых частей гиперзвуковых летательных аппаратов // ТВТ. 2021.Т. 59. № 5. С. 797.
3. *Горский В.В.* Расчетно-теоретическая модель уноса массы углеродных теплозащитных материалов в окислительных газовых потоках // ТВТ. 2020. Т. 58. № 2. С. 249.
4. *Голомазов М.М., Иванков А.А.* Программный комплекс для разработки систем тепловой защиты космических аппаратов, спускаемых в атмосферах планет // Вестник НПО им. С.А. Лавочкина. 2017. № 3 (37). С. 41.
5. *Иванков А.А.* О численном решении задачи прогрева многослойной теплозащиты спускаемого аппара-

та с учетом уноса массы внешних и внутренних слоев покрытия // ЖВМиМФ. 2005. Т. 45. № 7. С. 1279.

6. *Колесников А.В., Палешкин А.В., Пронина П.Ф., Шеметова Е.В.* Моделирование тепловых нагрузок на поверхность космического аппарата в имитаторе с сетчатыми модулями // ТВТ. 2022. Т. 60. № 2. С. 242.
7. *Алифанов О.М., Черепанов В.В.* Методы исследования и прогнозирования свойств высокопористых теплозащитных материалов. М.: МАИ, 2014. 263 с.
8. *Резник С.В., Просунцов П.В., Михайловский К.В.* Прогнозирование теплофизических и термомеханических характеристик пористых углерод-керамических композиционных материалов тепловой защиты аэрокосмических летательных аппаратов // ИФЖ. 2015. Т. 88. № 3. С. 577.
9. *Venkataraman S., Haftka R.T., Sankar B.V., Zhu M., Blosser M.L.* Optimal Functionally Graded Metallic Foam Thermal Insulation // AIAA J. 2004. V. 42. № 11. P. 2355.
10. *Щурик А.Г.* Искусственные углеродные материалы. Пермь: Тип. Пермск. гос. ун-та, 2009. 342 с.
11. *Alifanov O.M., Budnik S.A., Nenarokomov A.V., Salosina M.O.* Design of Thermal Protection Based on Open Cell Carbon Foam Structure Optimization // Appl. Therm. Eng. 2020. V. 173. 115252.
12. *Салосина М.О., Алифанов О.М., Ненарокомов А.В.* Проектирование тепловой защиты солнечного зонда с учетом структуры теплозащитных материалов // Тепловые процессы в технике. 2019. Т. 11. № 8. С. 345.
13. *Doermann D., Sacadura J.F.* Heat Transfer in Open Cell Foam Insulation // J. Heat Transfer. 1996. V. 118. P. 88.
14. Cellular and Porous Materials: Thermal Properties Simulation and Prediction / Eds. Ochsner A., Murch G.E., de Lemos M.J.S. Weinheim: Wiley–VCH, 2008. 422 p.
15. *Coquard R., Rochais D., Ballis D.* Conductive and Radiative Heat Transfer in Ceramic and Metal Foams at Fire Temperatures // Fire Technology. 2012. V. 48. P. 699.
16. *Baillis D., Raynaud M., Sacadura J.F.* Determination of Spectral Radiative Properties of Open Cell Foam. Model Validation // J. Thermophys. Heat Transfer. 2000. V. 14. № 2. P. 137.
17. *Cunsolo S., Coquard R., Baillis D., Bianco N.* Radiative Properties Modeling of Open Cell Solid Foam: Review and New Analytical Law // Int. J. Thermal Sci. 2016. V. 104. P. 122.
18. *Loretz M., Coquard R., Baillis D., Maire E.* Metallic Foams: Radiative Properties/Comparison between Different Models // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. 2008. V. 109. P. 16.
19. *Cunsolo S., Coquard R., Baillis D., Wilson K.S. Ch., Bianco N.* Radiative Properties of Irregular Open Cell Solid Foams // Int. J. Thermal Sci. 2017. V. 117. P. 77.
20. *Samudre P., Kailas S.V.* Thermal Performance Enhancement in Open-pore Metal Foam and Foam-fin Heat Sinks for Electronics Cooling // Appl. Thermal Eng. 2022. V. 205. 117885.
21. *Corasaniti S., Luca E. De, Gori F.* Effect of Structure, Porosity, Saturating Fluid and Solid Material on the Effective Thermal Conductivity of Open-cells Foams // Int. J. Heat Mass Transfer. 2019. V. 138. P. 41.
22. *Marri G.K., Balaji C.* Experimental and Numerical Investigations on the Effect of Porosity and PPI Gradients of Metal Foams on the Thermal Performance of a Composite Phase Change Material Heat Sink // Int. J. Heat Mass Transfer. 2021. V. 164. 120454.
23. *Liu H., Zhao X.* Thermal Conductivity Analysis of High Porosity Structures with Open and Closed Pores // Int. J. Heat Mass Transfer. 2022. V. 183. 122089.
24. *Wang M., Pan N.* Modeling and Prediction of the Effective Thermal Conductivity of Random Open-cell Porous Foams // Int. J. Heat Mass Transfer. 2008. V. 51. № 5–6. P. 1325.
25. *Алифанов О.М.* Идентификация процессов теплообмена летательных аппаратов. М.: Машиностроение, 1979. 216 с.
26. *Алифанов О.М.* Обратные задачи теплообмена. М.: Машиностроение, 1988. 279 с.
27. *Алифанов О.М., Артюхин Е.А., Румянцев С.В.* Экстремальные методы решения некорректных задач и их приложения к обратным задачам теплообмена. М.: Наука, 1988. 285 с.
28. *Алифанов О.М., Будник С.А., Михайлов В.В., Ненарокомов А.В.* Экспериментально-вычислительный комплекс для исследования теплофизических свойств теплотехнических материалов // Тепловые процессы в технике. 2009. Т. 1. № 2. С. 49.
29. *Алифанов О.М., Вабищевич П.Н., Михайлов В.В. и др.* Основы идентификации и проектирования тепловых процессов и систем. М.: Логос, 2001. 400 с.
30. *Alifanov O.M.* Inverse Problems in Identification and Modeling of Thermal Processes: Russian Contributions // Int. J. Numer. Meth. Heat Fluid Flow. 2017. V. 27. № 3. P. 711.
31. *Пелецкий В.Э.* Исследование теплопроводности нитрида кремния // ТВТ. 1993. Т. 31. № 5. С. 727.
32. *Смотрицкий А.В., Зиновьев В.Е., Старостин А.А., Коршунов И.Г., Петровский В.Я.* Теплофизические свойства керамик на основе нитрида кремния при высоких температурах // ТВТ. 1996. Т. 34. № 4. С. 546.
33. *Будник С.А., Нетелев А.В., Салосина М.О., Самарин В.В.* Исследование свойств высокопористых ячеистых теплозащитных материалов // Тепловые процессы в технике. 2020. Т. 12. № 12. С. 546.
34. *Оцисик М.Н.* Сложный теплообмен. М.: Мир, 1976. 616 с.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 567–577

УДК 536.5:536.24

ИЗМЕРЕНИЕ ПРОФИЛЕЙ ТЕМПЕРАТУР ВБЛИЗИ МЕЖФАЗНОЙ ГРАНИЦЫ ЖИДКОСТЬ–ГАЗ ПРИ ИСПАРЕНИИ ВОДЫ И ЭТАНОЛА В ВОЗДУХ[1]

© 2023 г. Е. Я. Гатапова[1, 2, *]

[1]Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск, Россия

[2]Новосибирский государственный университет, Новосибирск, Россия

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

Поступила в редакцию 09.12.2022 г.
После доработки 09.03.2023 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

Работа посвящена экспериментальному исследованию температурного поля двухслойной системы жидкость–газ при нормальном атмосферном давлении для осесимметричной конфигурации. Измерения температур проведены для тонкого слоя воды и этанола толщиной около 2 мм при локальном нагреве и испарении в воздух с использованием микротермопары с плоским корольком толщиной около 3 мкм, двигающейся поперек слоев с шагом 48 нм. Фторопластовая кювета с жидкостью диаметром 35 мм и с нагревателем (диаметр – 1.6 мм) в центре располагалась внутри бокса размером 800 × 500 × 350 мм^3, так что испарение происходило в воздух с контролируемой температурой и влажностью. Получена эволюция профиля температуры вблизи межфазной границы жидкость–воздух при увеличении температуры нагревателя до 88°C. В зависимости от условий окружающей среды и типа жидкости температура в газовой фазе вблизи межфазной границы может быть выше или ниже, чем температура жидкости. Показано, что для летучей жидкости (этанола) профиль температуры совершенно другой, чем для нелетучей жидкости. А именно, температура в газовой фазе вблизи границы раздела жидкость–газ выше, чем в жидкости на границе раздела во всем рассмотренном диапазоне температур, что объясняется конвективным течением в этаноле.

DOI: 10.31857/S0040364423040051

ВВЕДЕНИЕ

Двухфазные системы с фазовым переходом заслуживают особого внимания при проектировании систем охлаждения из-за больших коэффициентов теплоотдачи [1]. Скрытая теплота парообразования при двухфазном течении обычно обеспечивает гораздо бóльшую охлаждающую способность по сравнению с аналогичными возможностями однофазного течения, что позволяет использовать небольшие массовые расходы жидкости. Однако существует ряд проблем, касающихся надежности и эффективности двухфазных охлаждающих систем, поэтому требуется тщательное изучение процессов тепломассообмена в них. Исследование переноса тепла в двухфазных системах актуально, например, для развития технологии изготовления тепловых труб [2], изучения процесса кипения и формирования сухих пятен [3, 4]. Важным в данной области является понимание механизмов тепло- и массообмена на границе раздела жидкость–пар в ограниченных областях. В литературе эта тема встречается редко. Конвекция в слое жидкости напрямую влияет на испарение с межфазной поверхности и может оказывать определяющее влияние на интенсивность испарения. Для определения степени интенсификации теплообмена при испарении нужно иметь четкое представление о макроскопическом профиле температуры вблизи межфазной поверхности при изменении теплового потока. Такие данные полезны при определении степени неравновесности на границе раздела.

Один из первых экспериментов по измерению скачка температуры на границе раздела жидкость–пар в закрытой системе выполнен в работе [5]. В эксперименте использовались микротермопары с размером королька около 0.3 мм, которые были зафиксированы в камере на определенном расстоянии друг от друга. Измерения проводились для воды, фреона-113 и ртути. Авторам не удалось зафиксировать скачки температуры на границе раздела жидкость–пар для воды. Серия экспериментов, проведенная группой профессора Варда [6, 7], посвящена исследованию скачка температуры на межфазной границе для системы жидкость–пар с использованием микротермопа-

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

ры типа K с диаметром проводов 25.4 мкм и размером королька 50 мкм. Эксперименты проведены в условиях пониженного по сравнению с атмосферным давления. Максимальная измеренная скорость испарения была 0.044 мкл/с, поток масс через границу раздела – 0.5386 г/(м^2 с). Установлено, что температура пара всегда выше, чем температура жидкости на границе раздела. Максимальный скачок температуры составлял 7.8°C, на границе температура со стороны жидкости равна –14.5°C и –6.7°C со стороны пара при давлении 194.7 Па. Впоследствии показано, что основной вклад в такие значительные отклонения от кинетической теории вносит конвективное течение в паре и жидкости [8]. Неравновесные явления, такие как скачки температур и давления на межфазной границе жидкость–пар должны быть исследованы посредством высокоточных экспериментов на микроуровне [9], а также посредством точных расчетов на основе кинетических уравнений Больцмана [10–13]. В работе [9] впервые с помощью микротермопары с размером королька 4 мкм показано, что температура в газовой фазе может быть ниже температуры в жидкости на межфазной границе.

Представленный краткий обзор литературы показывает, что явления, возникающие на границе раздела двух сред, по-прежнему до конца не изучены. Во многих экспериментальных работах исследования проводились при пониженном по сравнению с атмосферным давлением. Поэтому для того, чтобы внести ясность в процессы, возникающие на границе раздела жидкость–газ, требуются дополнительные экспериментальные данные, полученные при различных условиях с использованием прецизионных измерительных приборов.

Целью данной работы является экспериментальное исследование температурного профиля в двухслойной системе вода–воздух и этанол–воздух поперек слоев при локальном нагреве жидкости со стороны подложки в условиях нормального атмосферного давления с использованием микротермопары с размером королька около 3 мкм. Поскольку в данных экспериментах оцененная толщина слоя Кнудсена мала по сравнению с толщиной королька термопары, то здесь рассматриваются только характерные профили температуры при испарении.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Для исследования тепломассообмена на границе раздела жидкость–газ использовалась экспериментальная установка, схема которой представлена на рис. 1. Установка включает в себя рабочий участок, шприцевой насос, источник питания, микротермопары, прецизионную подвижку, контрольно-измерительную систему, электронный ноль, термогигрометр, барометр, персональный компьютер, видеокамеру, оптическую систему для теневого метода. Микротермопары №№ 1–3 расположены в нагревателе, №№ 4–6 закреплены на микроподвижке. Компоненты установки располагались на оптическом столе и находились внутри прозрачного кожуха размером 800 × 500 × 350 мм^3 для предотвращения попадания пыли и воздействия возмущений воздуха. Рабочий участок представляет собой круглую кювету, которая изготовлена из политетрафторэтилена и имеет вырез для жидкости диаметром 35 мм и высотой 1 мм. Кювета установлена горизонтально при помощи гониометра. Граница раздела жидкость–газ расположена на высоте около 150 мм от оптического стола. В центре кюветы имеется круглое отверстие диаметром 1.6 мм, куда впрессован латунный нагреватель. В качестве нагревателя использовался сердечник из латуни с диаметром головки 1.6 мм. Нагреватель плотно вставляется в отверстие кюветы, так что кювета и нагреватель создают единую плоскость.

Через намотанную поверх нижней части сердечника нихромовую ленту проходит электрический ток, осуществляя тем самым нагрев. Нихромовая лента подключена при помощи двух медных проводов к источнику питания постоянного тока (Акип, 1138-2). Для минимизации тепловых потерь нижняя часть нагревательного элемента изолирована при помощи нескольких слоев стеклоткани. Температура нагревательного элемента контролируется тремя микротермопарами, которые расположены вдоль нагревателя. Две из них находятся в массивной части нагревателя под нихромовой лентой симметрично относительно середины нагревателя. Третья микротермопара закреплена у основания головки нагревателя. Температура, измеренная тремя микротермопарами, установленными в разных частях нагревателя, отличается менее чем на пять градусов для всех режимов нагревателя. Рис. 2а показывает, что разница между показаниями трех термопар на нагревателе составила менее 0.08°C при отсутствии нагрева. В отличие от [9, 13] в

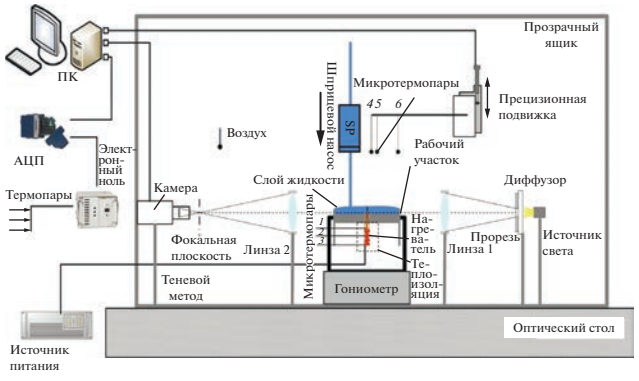

Рис. 1. Схема экспериментальной установки и используемого оборудования.

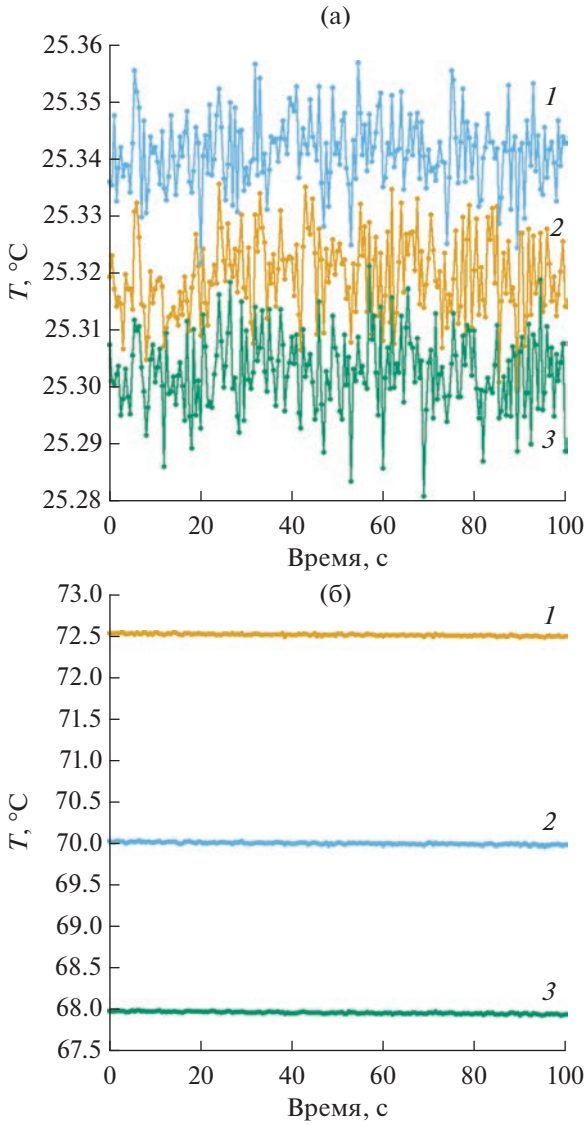

Рис. 2. Температура нагревателя в зависимости от времени в отсутствие жидкости в кювете: (а) без нагрева, (б) мощность нагревателя – 540 мВт; *1–3* – показания термопар *1–3* соответственно.

данной работе использовались микротермопара L-типа, электронный ноль, а также выполнена прецизионная синхронизация с помощью софта и автоматизирован процесс определения межфазной границы [14].

При помощи шприцевого насоса (Cole-Parmer, 110) в кювете формируется горизонтальный слой жидкости. Толщина слоя жидкости варьируется для различных режимов нагревателя и составляет около 2 мм. В качестве рабочей жидкости используются ультрачистая деионизированная вода (Merck Millipore Milli-Q) и 99%-ный раствор этанола. Слой жидкости снизу подогревается расположенным в центре точечным нагревателем и свободно испаряется в окружающий газ внутри короба.

Термопары типа K (Omega) с размером королька 75 мкм (№№ 5, 6), используемые для измерения температуры в газе над границей раздела, а также основная микротермопара типа L с поперечным размером плоского королька около 3 мкм (№ 4, рис. 3) прикреплены к микроподвижке (Zaber T-LSM 025A) на удалении около 300 мм при помощи держателя из текстолита. Микроподвижка перемещает микротермопары вверх–вниз и определяет позицию. Диапазон движения микроподвижки – 25.4 мм с величиной минимального шага 47.625 нм. Свободные концы всех микротермопар припаяны к медным проводам и опущены в электронный термостат (Fluke, 9101), который поддерживает температуру равной нулю с погрешностью 0.001°C. Сигнал с микротермопар поступает в терминал сбора данных (Natinal instruments, 9214), который, как и микроподвижка, подключен к компьютеру. Данные с микроподвижки и терминала сбора данных обрабатываются в режиме реального времени при помощи специально разработанного собственного программного обеспечения. Для наблюдения за положением микротермопары используется теневой метод. Разрешение используемой камеры составляет 2592 × 1944. Оптическая система включает в себя дополнительную увеличивающую линзу, что позволяет получить изображение 1 мкм/пиксель.

Основная микротермопара (рис. 3) изготовлена таким образом, чтобы избежать существенного притока тепла к корольку с других слоев за счет теплопроводности вдоль проводов. Горизонтальная часть микротермопары располагается параллельно межфазной границе, т.е. вдоль предполагаемой линии изотермы. Длина проводов, расположенных параллельно границе раздела, приблизительно равняется 20 размерам королька микротермопары с каждой стороны. Оценка ошибки измерения

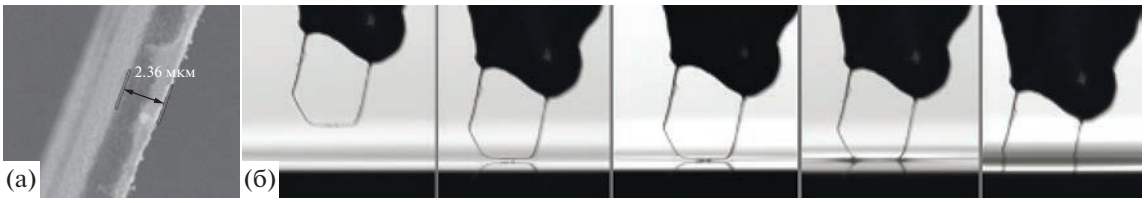

Рис. 3. СЭМ-фотография основной микротермопары типа L, сделанная при помощи микроскопа Hitachi S340 (а), и фотографии, полученные теневым методом во время прохождения микротермопарой границы раздела двух сред (б).

за счет теплопроводности вдоль проводов проведена в работах [15–17] и не вносит существенного вклада в погрешность (около 1%). Влажность и температура воздуха в коробе измеряются при помощи Testo 645 с точностью 2% и 0.1°C соответственно. Измерительный прибор расположен на одном уровне с кюветой на удалении 30 мм. Давление измеряется при помощи барометра М-67 с точностью 106 Па.

Микротермопары типа K с размером королька 150 мкм, установленные в нагревателе (№№ 1–3), а также микротермопары типа K с размером королька 75 мкм, расположенные в воздухе над границей раздела жидкость–газ (№№ 5, 6), откалиброваны в диапазоне температур от 5 до 95°C с шагом 5°C. Уникальная микротермопара типа L (№ 4) оттарирована в диапазоне температур от 18 до 72°C с шагом 3°C. Измерения проводились с использованием калибратора (Эталон, КС 100\1). Контроль температуры осуществлялся при помощи двух эталонных термометров сопротивления (Эталон, ЭТС 100\1) и прецизионного измерителя (Эталон, В7-99). Точность измерений в исследуемом диапазоне температур 5–95°C для эталонных термометров сопротивления составляет 0.02°C при доверительной вероятности 0.95. Дискретные калибровочные данные приближались полиномом шестой степени. Точность терминала сбора данных (Natinal instruments, 9214) в исследуемом диапазоне температур – 0.01°C. Точность термостата (Fluke, 9101), в котором расположены холодные концы микротермопар, равна 0.001°C. Таким образом, общая точность измерения температуры составила 0.0301°C.

Точность определения положения микроподвижки при перемещении на длину около 8 мкм в режиме постоянной скорости – менее 1 мкм.

Температурное поле в окрестности границы раздела жидкость–газ измеряется для различных режимов нагревателя. Измерения проводятся для стационарного режима нагрева. В каждом режиме нагревателя проводилось минимум по пять измерений с различной постоянной скоростью перемещения микротермопары. Измерения около границы раздела жидкость–газ проводились при помощи основной микротермопары типа L с размером королька около 3 мкм, которая откалибрована и подготовлена, как описано ранее. Скорость перемещения микротермопары варьировалась от 5 до 20 мкм/с. Сигнал с микротермопар считывался каждые 0.5 с. Величина разницы (скачка) температур на межфазной поверхности жидкость–газ для различных скоростей была примерно одинаковой и хорошо повторялась. Эксперименты проводились при увеличении мощности нагревателя до формирования видимого конденсата на микротермопаре.

Эксперимент проходил следующим образом: микротермопара перемещалась в положение над жидкостью, после чего с постоянной заранее заданной скоростью проходила через слой газа, границу раздела и слой жидкости, не доходя до нагревателя. На рис. 3 изображен момент касания микротермопары границы раздела двух сред. Наблюдается мениск в области королька. Таким образом, в проведенных экспериментах королек микротермопары всегда касался границы раздела первым.

Эксперимент управлялся при помощи специально разработанной программы. Программа для решения задач синхронизации данных с микротермопары и микроподвижки, проведения серии экспериментов в одинаковых режимах, автоматического вычисления характерных значений эксперимента, исключения человеческого фактора написана на языке C++. Она записывает время и положение для микроподвижки, а также время и значения температуры для терминала сбора данных микротермопар. После чего сравнивает и соотносит эти данные по времени. Координата границы раздела определяется двумя способами: первый – визуальный, в момент касания микротермопары о жидкость, при помощи теневого метода, второй – определение за счет скачка температуры, проявляющегося при проходе микротермопары через границу раздела [14]. В результате выполнения программы получается график зависимости температуры от координаты относительно границы раздела и задержки в синхронизации данных (рис. 4). Графики получены при следующих условиях: температура окружающего воздуха – 29.8°C, влажность – 27.1%, давление – 99.591 кПа, режим нагревателя – 21 мВт. Скорость перемещения микротермопары – 5 мкм/с.

Также программа собирает, сохраняет и обрабатывает данные с остальных микротермопар, расположенных в различных частях экспериментальной установки. Ошибка синхронизации вычисляется как модуль разности между временем получения сигнала с микротермопары и сигналом с микроподвижки. На рис. 4а указано время задержки, не превышающее 35 мс, что является достаточным для данного эксперимента, поскольку размер королька микротермопары на порядок больше расстояния, пройденного микротермопарой за это время. Для всех представленных экспериментов скорость задержки синхронизации не превышает 50 мс. Положение дна в координатах микроподвижки определяется один раз для всех экспериментов. Это позволяет автоматически вычислять толщину слоя жидкости как место скачка температуры при прохождении через границу раздела. Для режима, представленного на рис. 4б, величина максимального скачка температуры равна около 0.045°C. Максимальный скачок температуры наблюдался около 98-й секунды эксперимента. Позиция максимального скачка в координатах микроподвижки – 15153.5 мкм, позиция дна в координатах микроподвижки – 17327 мкм. Таким образом, толщина слоя жидкости – 2173.5 мкм.

Проводя серию экспериментов и измеряя толщину слоя жидкости при помощи автоматического и визуального метода, можно наблюдать за изменением толщины пленки жидкости и определять скорость испарения жидкости по следующей формуле:

$$\text{скорость испарения} = \frac{\text{разница толщин слоя жидкости}}{\text{время}} \times \text{площадь кюветы}.$$

Стоит отметить, что такой способ может иметь большую ошибку (около 10%), так как в нем не учитываются особенности профиля пленки жидкости и такие эффекты, как термокапиллярная деформация поверхности пленки.

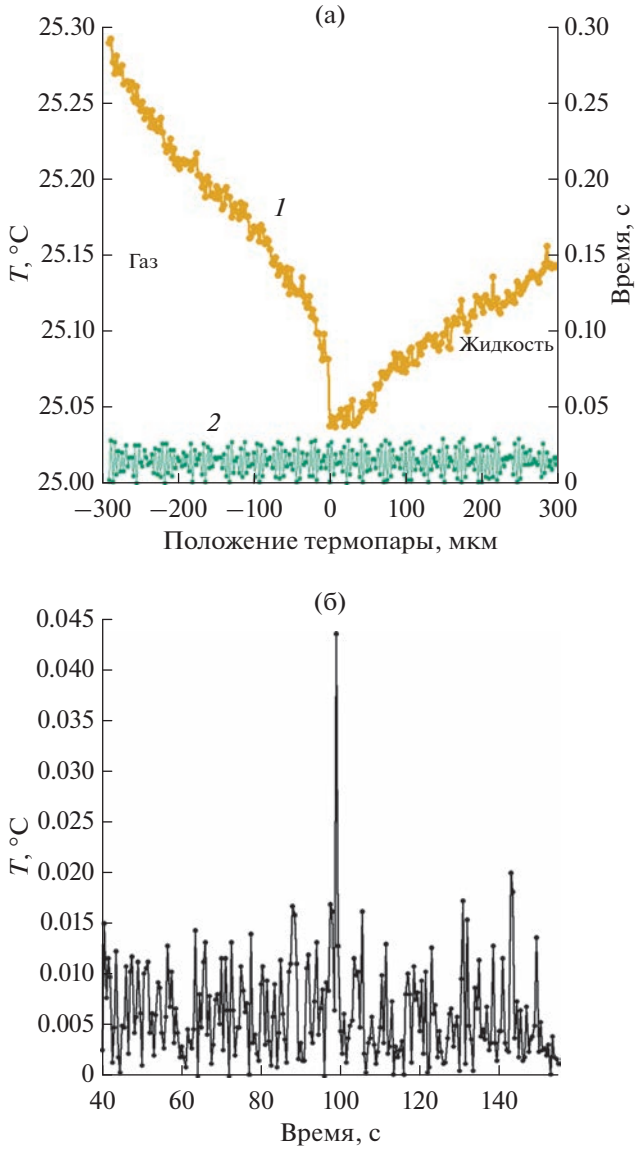

Рис. 4. Графики выполненных измерений (а): *1* – профиль температуры, *2* – задержка измерений; (б) – абсолютное изменение температуры после каждого измерения.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Система вода–воздух. На рис. 5 представлены данные измерения температурного профиля на границе раздела вода–воздух поперек слоев при локальном нагреве жидкости снизу. Позиция 0 соответствует границе раздела жидкость–газ, положительные значения координаты – положению в жидкости, отрицательные – в газе. Для определения профилей температуры проведена серия из более чем ста экспериментов. Так как данные для каждого эксперимента уникальны (температура на границе всегда разная, как и толщина слоя жидкости), они представлены для конкретных экспериментов, а не в осредненном виде. Однако величина разницы температур на межфазной поверхности вода–воздух для стационарного режима нагревателя примерно в разных экспериментах одинаковая и хорошо повторялась. Подробные данные по каждому режиму нагревателя, в том числе по величине разности температур на межфазной границе, скорости испарения и температуры в разных частях экспериментальной установки, представлены в табл. 1.

На рис. 5а приведен профиль температуры при отсутствии нагрева. Температура воздуха на границе раздела выше, чем температура в жидкости – наблюдается скачок температуры с отрицательным значением. Стоит обратить внимание на профиль температуры в воздухе: с уменьшением координаты, увеличивается температура (рис. 5а–5г). Такое увеличение температуры может быть объяснено наличием дополнительных источников тепла в защитном боксе (камера, источник света, микроподвижка), которые расположены в разных частях установки и окружают кювету. Теплый воздух легче холодного и поэтому поднимается вверх. К тому же газовая фаза более чувствительна, чем жидкость, к любым изменениям внешних условий. Далее при увеличении мощности нагрева наблюдалось выравнивание профиля температуры в воздухе, такой режим представлен на рис. 5д. В данном режиме скачок отсутствует или не может быть обнаружен на этой установке и наблюдается классический непрерывный профиль температуры. После этого профиль температуры в воздухе меняет угол наклона на положительный и локально совпадает с углом наклона профиля температуры в жидкости (рис. 5е). Для данного режима скачок также не удалось обнаружить. Далее с ро-

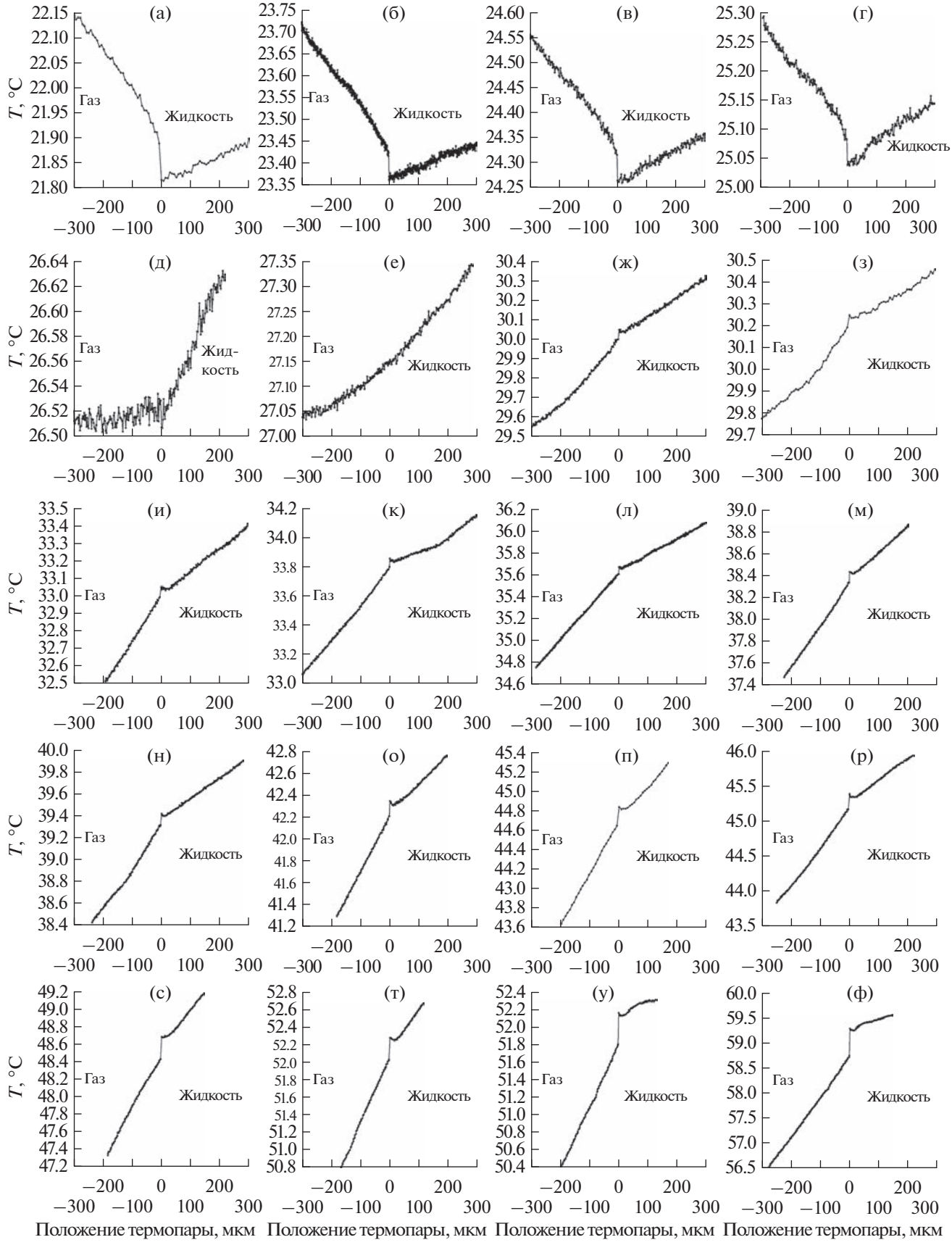

Рис. 5. Профили температуры для системы вода–воздух при различных режимах нагрева, данные см. в табл. 1.

Таблица 1. Данные серии экспериментов для системы вода–воздух

№ режима нагревателя	Мощность нагревателя, мВт	Температура воздуха в коробке, °C	Влажность в атмосфере, %	Температура нагревателя, °C (термопара № 1)	Температура воздуха за 200 мкм до границы раздела, °C	Температура перед границей раздела, °C	Температура после границы раздела T_L, °C	Температура жидкости после 200 мкм за границей раздела, °C	Скорость испарения, мкл/с	Давление, кПа	Профиль температуры, рис. 5
1	0	23.1	27.1	23.006	22.077	21.889	21.816	21.869	0.078	99.59	5а
2	2	23	29.1	24.320	23.609	23.423	23.369	23.427	0.084	99.59	5б
3	8	29.7	26.8	25.633	24.474	24.316	24.264	24.324	0.087	99.59	5в
4	21	29.8	27.1	26.814	25.214	25.082	25.037	25.112	0.066	99.59	5г
5	44	29.5	26	29.075	26.518	26.532	26.509	26.614	0.076	99.59	5д
6	65	29.7	26.6	30.021	27.061	27.146	27.154	27.272	0.071	99.46	5е
7	96	29.9	27.4	33.674	29.662	29.999	30.049	30.221	0.076	99.46	5ж
8	119	29.8	24.2	34.618	29.899	30.194	30.250	30.368	0.092	99.46	5з
9	160	30.6	25.1	38.603	32.517 (–191.1 мкм)	32.997	33.054	33.275	0.095	99.46	5и
10	198	31	26.8	41.087	33.290	33.802	33.858	33.983	0.089	99.46	5к
11	250	31.3	26.2	44.528	35.002	35.607	35.672	35.929	0.091	99.46	5л
12	297	31.6	26.6	48.363	37.566	38.335	38.435	38.866	0.113	99.46	5м
13	360	31.7	27.2	50.798	38.564	39.324	39.425	39.755	0.126	99.46	5н
14	416	31.7	27	55.475	41.297 (–188.3 мкм)	42.211	42.348	42.765 (187.6 мкм)	0.126	99.46	5о
15	490	31.9	27.9	59.108	43.641 (–197.3 мкм)	44.648	44.841	45.297 (168.3 мкм)	0.167	99.46	5п
16	570	32	28.2	63.572	44.058	45.166	45.385	45.900	0.177	99.46	5р
17	640	32	29.1	67.919	47.332 (–184.3 мкм)	48.437	48.686	49.182 (145.3 мкм)	0.183	99.46	5с
18	810	32.1	30.4	76.753	50.803 (–167.1 мкм)	52.026	52.281	52.671 (114.4 мкм)	0.200	99.46	5т
19	874	32.2	29.8	76.633	50.406	51.808	52.165	52.308 (124.9 мкм)	0.177	99.46	5у
20	1071	32.3	30.2	88.197	57.107	58.753	59.300	59.563 (145.1 мкм)	0.215	99.46	5ф

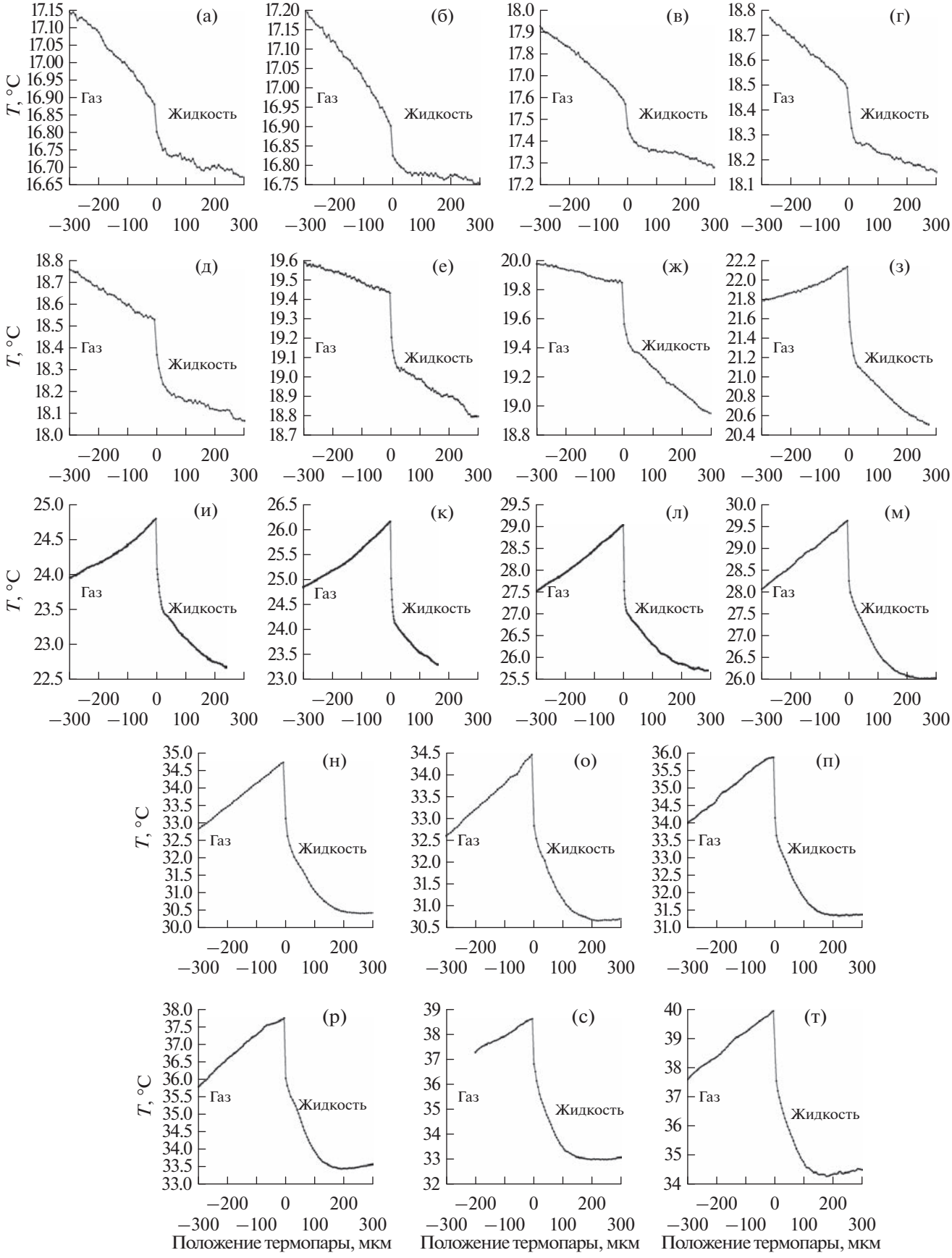

Рис. 6. Профили температуры для системы этанол–воздух при различных режимах нагрева, данные см. в табл. 2.

Таблица 2. Данные серии экспериментов для системы этанол–воздух

№ режима нагревателя	Мощность нагревателя, мВт	Температура воздуха в коробке, °C	Влажность в атмосфере, %	Температура нагревателя, °C (термопара № 1)	Температура воздуха за 200 мкм до границы раздела, °C	Температура перед границей раздела, °C	Температура после границы раздела T_L, °C	Температура жидкости после 200 мкм за границей раздела, °C	Скорость испарения, мкл/с	Давление, кПа	Профиль температуры, рис. 6
1	0	22.4	32.4	16.690	17.087	16.882	16.803	16.700	0.334	99.46	6а
2	2	23	32.1	16.822	17.120	16.905	16.828	16.777	0.318	99.32	6б
3	10	23.6	34.1	18.245	17.833	17.574	17.465	17.334	0.331	99.32	6в
4	21	24	33.6	19.512	18.693	18.490	18.392	18.192	0.322	99.32	6г
5	28	23.9	33.9	19.789	18.670	18.531	18.369	18.117	0.325	99.32	6д
6	55	24	33.7	21.807	19.544	19.435	19.207	18.903	0.319	99.32	6е
7	90	24	34.5	23.596	19.935	19.849	19.565	19.090	0.319	99.32	6ж
8	144	24	34.8	27.249	21.868	22.136	21.571	20.618	0.318	99.32	6з
9	189	24	35	31.150	24.150	24.796	24.076	22.750	0.322	99.32	6и
10	230	23.9	35.8	33.705	25.186	26.163	25.026	23.295 (158.3 мкм)	0.308	99.32	6к
11	324	23.9	36.5	39.036	27.952	29.030	27.747	25.844	0.327	99.32	6л
12	448	22.4	35.2	45.591	28.575	29.633	28.261	26.082	0.372	99.59	6м
13	540	23.5	35.4	53.593	33.479	34.730	33.131	30.467	0.396	99.59	6н
14	592	23.9	36.1	55.487	33.239	34.469	32.851	30.695	0.380	99.59	6о
15	697	23.9	37.8	62.037	34.662	35.879	34.165	31.386	0.398	99.59	6п
16	846	24	39.5	72.703	36.583	37.743	36.040	33.449	0.467	99.59	6р
17	1000	24	41.5	80.105	37.284	38.617	36.811	33.014	0.477	99.59	6с
18	1113	24	42.5	84.776	38.367	39.940	37.552	34.386	0.513	99.59	6т

стом мощности нагревателя скачок меняет свой знак и увеличивается.

Для представленных режимов нагревателя, за исключением двух режимов (№№ 5, 6), всегда существовал характерный перепад температуры на границе раздела. Также за исключением одного режима (№ 6) наблюдается излом профиля температуры при прохождении через границу раздела жидкость–газ, который скорее всего связан с различной теплопроводностью жидкости и газа.

Система этанол–воздух. На рис. 6 представлены данные измерений температурного профиля на границе раздела этанол–воздух поперек слоев при локальном нагреве жидкости снизу. Позиция 0 соответствует границе раздела жидкость–газ, положительные значения координаты – положению в жидкости, отрицательные – в газе. Для определения профилей температуры проведена серия из более чем ста экспериментов. Подробные данные по каждому режиму нагревателя представлены в табл. 2. Как и в серии экспериментов с водой, профиль температуры в газе меняет угол наклона при увеличении мощности нагревателя. В отличие от экспериментов с водой, температура в газе всегда была выше температуры в жидкости. Это связано со значительно большими скоростями испарения и конвективным течением (табл. 2, столбец 10). Нелинейность температуры значительно усиливалась с повышением температуры нагрева. Существенная разница температур на межфазной поверхности вызвана также конвективными потоками, скорость которых повышается, за счет чего и наблюдается “смещение” границы раздела.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Измерены поперечные температурные профили в двухслойной системе жидкость–газ при нормальных атмосферных условиях для воды и этанола. Слой жидкости толщиной около 2 мм локально нагревался снизу и испарялся из кюветы диаметром 35 мм, в центре которой находился нагреватель диаметром 1.6 мм. Таким образом, в работе рассматривалась осесимметричная конфигурация. Кювета с жидкостью располагалась внутри бокса, так что испарение происходило в воздух с контролируемой влажностью (27–42%). Для точного измерения температурных профилей специально изготовлена микротермопара L-типа с толщиной королька около 3 мкм. Эксперименты проведены при квазистационарном режиме нагрева в диапазоне температур нагревателя 23–88°C для воды и 16–84°C для этанола при нормальном атмосферном давлении. Оцененная толщина слоя Кнудсена на межфазной границе мала по сравнению с толщиной микротермопары, поэтому в работе идет речь только о характерных профилях температуры при испарении и изменении теплового потока.

Получена подробная эволюция профиля температуры с увеличением мощности нагревателя. В зависимости от условий окружающей среды и типа жидкости температура в газовой фазе вблизи границы раздела жидкость–газ может быть выше или ниже, чем температура жидкости.

Для летучего этанола характер эволюции профиля температуры с увеличением мощности нагрева отличается от характера эволюции для воды. Температура в газовой фазе вблизи границы раздела жидкость–газ у этанола выше, чем в жидкости на границе раздела, во всем рассмотренном диапазоне температур при нормальном атмосферном давлении. Измеренная скорость испарения этанола намного выше, чем у воды, при одинаковых мощностях нагрева. В этаноле наблюдались профили температур, характерные для конвективного течения. Нелинейность профиля температуры значительно усиливалась с повышением температуры нагрева. Значительная разница температур на межфазной поверхности вызвана также конвективными потоками, скорость которых повышается, за счет чего и наблюдается «смещение» границы раздела.

Для воды температура в газовой фазе вблизи границы раздела жидкость–газ выше, чем температура жидкости при слабом нагреве, и ниже при относительно высоком нагреве. При слабом нагреве процесс переноса тепла в воде и в воздухе вблизи межфазной границы кондуктивный, т.е. имеет место практически линейный профиль температуры в жидкой и газовой фазах. С усилением нагрева наблюдался нелинейный профиль в жидкости.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 20-19-00722, https://rscf.ru/project/20-19-00722/).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kandlikar S.G., Colin S., Peles Y., Garimella S., Pease R.F., Brandner J.J., Tuckerman D.B.* Heat Transfer in Microchannels - 2012 Status and Research Needs // J. Heat Transfer. 2013. V. 135. № 9. P. 091001-1.
2. *Чернышева М.А., Майданик Ю.Ф.* Моделирование тепломассопереноса в цилиндрическом испарителе контурной тепловой трубы с прямоугольным интерфейсом // ТВТ. 2021. Т. 59. № 3. С. 362.
3. *Васильев Н.В., Зейграник Ю.А., Ходаков К.А., Вавилов С.Н.* Паровые агломераты и сухие пятна как предвестники кризиса кипения недогретой жидкости в канале // ТВТ. 2021. Т. 59. № 3. С. 373.
4. *Володин О.А., Печеркин Н.И., Павленко А.Н.* Интенсификация теплообмена при кипении и испарении жидкостей на модифицированных поверхностях // ТВТ. 2021. Т. 59. № 2. С. 280.
5. *Shankar P.N., Deshpande M.D.* On the Temperature Distribution in Liquid–Vapor Phase Change between Plane Liquid Surfaces // Phys. Fluids A: Fluid Dynamics. 1990. V. 2. № 6. P. 1030.

6. *Fang G., Ward C.A.* Temperature Measured Close to the Interface of an Evaporating Liquid // Phys. Rev. E. 1999. V. 59. № 1. P. 417.
7. *Duan F., Ward C.A., Badam V.K., Durst F.* Role of Molecular Phonons and Interfacial-temperature Discontinuities in Water Evaporation // Phys. Rev. E. 2008. V. 78. № 4. P. 041130.
8. *Kazemi M.A., Ward C.A.* Contribution of Thermocapillary Convection to Liquid Evaporation // Int. J. Heat Mass Transfer. 2021. V. 164. P. 120400.
9. *Gatapova E.Ya., Graur I.A., Kabov O.A., Aniskin V.M., Filipenko M.A., Sharipov F., Tadrist L.* The Temperature Jump at Water–Air Interface During Evaporation // Int. J. Heat Mass Transfer. 2017. V. 104. P. 800.
10. *Labuntsov D.A., Kryukov A.P.* Analysis of Intensive Evaporation and Condensation // Int. J. Heat Mass Transfer. 1979. V. 22. P. 989.
11. *Graur I.A., Gatapova E.Ya., Moritz W., Batueva M.A.* Non-equilibrium Evaporation: 1D benchmark Problem for Single Gas // Int. J. Heat Mass Transfer. 2021. V. 181. 121997.
12. *Zhakhovsky V.V., Kryukov A.P., Levashov V.Y., Shishkova I.N., Anisimov S.I.* Mass and Heat Transfer between Evaporation and Condensation Surfaces: Atomistic Simulation and Solution of Boltzmann Kinetic Equation // Proc. National Academy of Sciences of the United States of America. 2019. V. 116(37). P. 18209.
13. *Гатапова Е.Я., Филипенко Р.А., Люлин Ю.В., Граур И.А., Марчук И.В., Кабов О.А.* Экспериментальное исследование температурного поля в двухслойной системе жидкость–газ // Теплофизика и аэромеханика. 2015. Т. 22. № 6. С. 729.
14. *Gatapova E.Ya., Filipenko M.A., Aniskin V.M., Kabov O.A.* A Contact Method for Simultaneous Measuring the Liquid Film Thickness and Temperature // Interfacial Phenom. Heat Transfer. 2018. V. 6. № 3. P. 187.
15. *Yarushev N.A.* Theoretical Basis of Non-stationary Temperature Measurement. Л.: Энергоатомиздат, 1990.
16. *Nanigian J.* Eliminate Temperature Errors Caused by Conduction // Adv. Mater. Process. 1994. V. 146. № 6. P. 66.
17. *Attia M.H., Kops L.* Distortion in Thermal Field around Inserted Thermocouples in Experimental Interfacial Studies. Part II. Effect of the Heat Flow Through the Thermocouple // J. Eng. Industry. 1988. V. 110. № 1. P. 7.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 578–587

УДК 536.24

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕПЛООБМЕНА ПРИ ТЕЧЕНИИ СЖИМАЕМОГО ГАЗА С ОТРИЦАТЕЛЬНЫМ ГРАДИЕНТОМ ДАВЛЕНИЯ[1]

© 2023 г. Н. А. Киселёв[1, *], Н. С. Маластовский[1, 2], А. Г. Здитовец[1], Ю. А. Виноградов[1]

[1]Институт механики МГУ им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

[2]Московский государственный технический университет им. Н.Э. Баумана, Москва, Россия

*E-mail: kiselev.nick.a@gmail.com

Поступила в редакцию 12.09.2022 г.
После доработки 26.01.2023 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

В работе приведены результаты экспериментальных исследований параметров теплообмена при течении сжимаемого газа с отрицательным градиентом давления. Коэффициенты теплоотдачи и температура теплоизолированной стенки определялись методом нестационарного теплообмена. Для оценки степени ламинаризации потока выполнено сопоставление результатов с известными зависимостями для турбулентного пограничного слоя, развивающегося на пластине в безградиентном потоке. Выявлены закономерности влияния ускорения потока на закон теплообмена для исследуемых конфигураций сверхзвуковых сопел.

DOI: 10.31857/S0040364423040063

ВВЕДЕНИЕ

Оценка параметров теплового и динамического пограничного слоя в высокоскоростных потоках газа в настоящее время сохраняет свою актуальность [1, 2]. В частности, это относится к исследованию обратного перехода от турбулентного течения к ламинарному (ламинаризация), приводящего к резкому изменению коэффициентов трения и параметров теплообмена – коэффициентов теплоотдачи и температуры теплоизолированной стенки. Уже в 1950–60-х гг. сформировалось представление, что процесс ламинаризации может происходить в условиях ускорения потока [3], например в сверхзвуковых соплах при течениях с низкими числами Рейнольдса [4–10], а также вокруг лопаток мало- и среднеразмерных газовых турбин [11–13].

Для оценки возможности возникновения ламинаризации наибольшее распространение получил критерий K, предложенный Лондером [14] и Кейсом [15] в середине 1960-х гг.:

$$K = \frac{\nu}{U^2}\frac{dU}{dx},$$

где ν – кинематическая вязкость, U – скорость ядра потока, x – продольная координата.

Определить значение K, соответствующее началу ламинаризации, можно, установив простейшую связь K с основным параметром динамического пограничного слоя – числом Рейнольдса, определенным по толщине потери импульса Re_θ. В соответствии с [16, 17] предположим, что турбулентный пограничный слой может поддерживаться только при $\mathrm{Re}_\theta \gtrapprox 300$. Записывая интегральное соотношение импульсов

$$\frac{d\,\mathrm{Re}_\theta}{d\,\mathrm{Re}_x} + (1+H)K\,\mathrm{Re}_\theta = \frac{C_f}{2}$$

и используя (для упрощения) зависимости формпараметра H [18] и коэффициента трения C_f от Re_θ для турбулентного безградиентного течения, можно показать [19], что при любых начальных значениях Re_θ, соответствующих турбулентному пограничному слою, ускорение потока с величиной K порядка 3.5×10^{-6} приведет к снижению числа Рейнольдса до $\mathrm{Re}_\theta \approx 300$.

Согласно опубликованным данным [20], значение $K = 3.5 \times 10^{-6}$ соответствует завершению перехода к ламинарному течению и подавлению турбулентных всплесков. Однако во многих работах отмечается, что изменения в пограничных слоях возникают при существенно более низких ускорениях. Например, в работе [21] приводится интервал критических значений $(3–3.5) \times 10^{-6}$, Лондер [19] оценивает предельное значение K как 2×10^{-6}. В [22] отмечается, что, уже начиная со

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

значения $K = 7.5 \times 10^{-7}$, наблюдается деформация профиля скорости в пограничном слое, характерная для процесса ламинаризации.

Необходимость проведения зондовых измерений в пограничном слое приводит к тому, что большинство исследований ограничены низкоскоростными потоками, в которых скорость на входе в участок с ускорением редко превышает 10 м/с [23]. При этом для высокоскоростных потоков с малой физической толщиной пограничного слоя подобные исследования провести принципиально сложнее. Здесь важную роль могут играть косвенные бесконтактные методы определения параметров теплообмена [24].

Расчетные оценки с использованием интегральных соотношений импульса и энергии совместно с законами трения и теплообмена для турбулентного пограничного слоя требуют корректного (и, кроме того, не известного заранее) соотношения между толщинами теплового и динамического пограничных слоев [25] и в случае применения к течениям в сверхзвуковых соплах дают консервативные оценки [6]. В свою очередь предположение о равновесности пограничных слоев [26] и отсутствии влияния предыстории потока на его параметры [27] приводит к переоценке влияния ускорения и занижению расчетных значений коэффициентов теплоотдачи относительно экспериментальных. Стоит отметить, что программные пакеты вычислительной гидрогазодинамики также нуждаются в верификации, так как современные модели турбулентности, описывающие ламинарно-турбулентный переход [28], имеют сложности с корректным описанием ламинаризации. Помимо этого, исследованию динамики изменения K и оценке скорости обратного перехода посвящено значительно меньше работ.

В области теплообмена общепризнанными являются обширные результаты, полученные в работах [4–6, 15, 29, 30] в 1960–70-е гг. Однако совершенствование экспериментальных и расчетных методик, а также средств измерений открывает новые возможности в исследованиях теплообмена в течениях с отрицательным градиентом давления. Здесь следует отметить, что опубликовано сравнительно мало современных работ, посвященных экспериментальному исследованию коэффициентов теплоотдачи [7, 31–34], отсутствуют работы по исследованию температуры теплоизолированной стенки (кроме [35] по исследованию обтекания перехода конуса в цилиндр), а расчетные работы в основном ссылаются на отмеченные выше работы для верификации.

Обобщая сказанное, отметим, что исследование процесса ламинаризации – это актуальная прикладная задача. Современное оборудование, в том числе инфракрасные камеры, позволяет с высокой точностью определять параметры теплового пограничного слоя (поля коэффициентов теплоотдачи и температур теплоизолированной стенки) в высокоскоростных газовых потоках. Задача оценки влияния локальных величин ускорения потока на ламинаризацию к настоящему времени также мало изучена и представляет значительную научную ценность.

Целью настоящей работы является оценка влияния ускорения потока (локальных величин K) на параметры теплообмена в сверхзвуковом сопле с использованием метода полевой инфракрасной термометрии с последующим восстановлением параметров теплового пограничного слоя.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧ ИССЛЕДОВАНИЯ

В рамках работы выполнено исследование влияния распределения локальных значений K в сверхзвуковом сопле на основные параметры теплообмена: коэффициенты теплоотдачи и температуру теплоизолированной стенки. Изменение K по длине (рис. 1) обеспечивалось различным профилированием боковых стенок (рис. 2). Изменение максимального значения K_{max} достигалось за счет варьирования полного давления в форкамере (таблица) при постоянстве противодавления на выходе из канала (1 атм). На рис. 1 представлены распределения K только для режимов I и VI (режимы течения II–V промежуточные). Использовались два варианта геометрии:

– геометрия первого сопла взята из атласа плоских сопел [36], обеспечивает умеренное ускорение потока на значительной протяженности, имеет равномерное поле числа Маха на выходе;

– для второго сопла дозвуковая часть спрофилирована с использованием профиля Витошинского, сверхзвуковая – методом характеристик, что довольно часто используется при проектировании сопел максимальной тяги [37]. Для данного

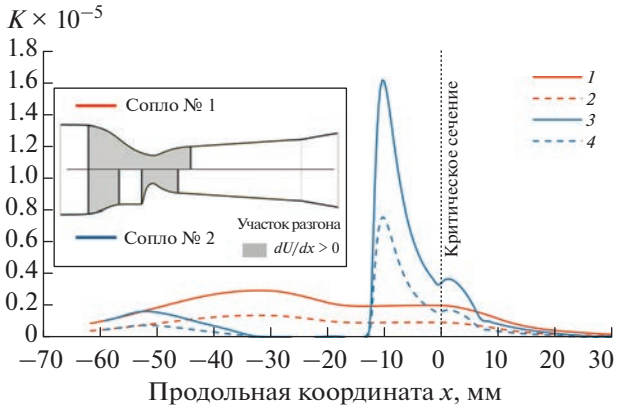

Рис. 1. Распределение параметра ускорения потока вдоль оси канала: *1*, *3* – режим течения I для сопел 1 и 2 соответственно; *2*, *4* – режим течения VI для сопел 1 и 2.

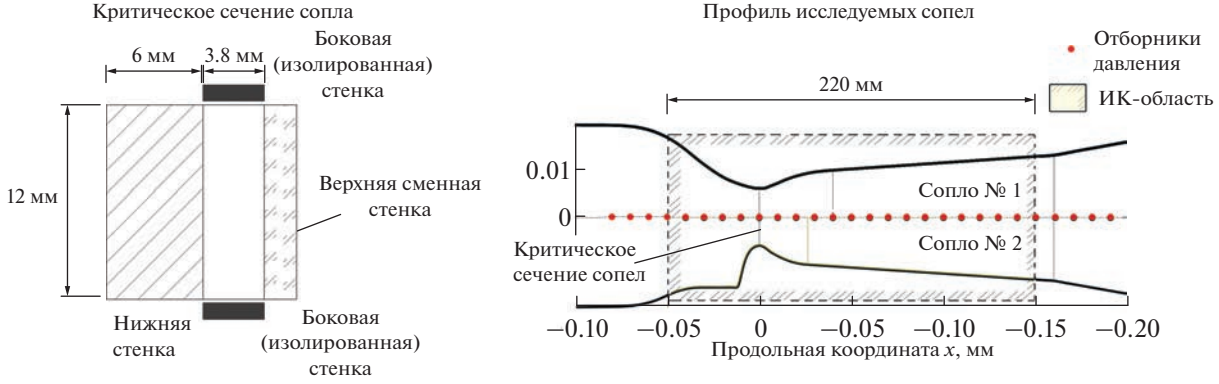

Рис. 2. Геометрия исследуемых сверхзвуковых сопел.

сопла характерны высокие значения ускорения потока на более короткой дистанции по сравнению с соплом № 1. При этом поле числа Маха на выходе имеет большую неравномерность. В связи с конструкционными особенностями установки, геометрия сопла № 2 и величины K на входе в канал повторяли сопло № 1, обеспечивая предварительное незначительное ускорение потока.

Два щелевых канала изготовлены фрезерованием из оргстекла со следующими общими параметрами:

– размеры входного сечения – 38.6 × 3.8 мм^2;

– размеры критического сечения – 12 × 3.8 мм^2;

– общая протяженность канала – 0.3 м;

– протяженность дозвуковой части канала (до критического сечения) – 0.1 м;

– протяженность сверхзвуковой части канала – 0.16 м;

– расчетное изоэнтропическое число Маха на выходе из сопла M = 2;

– боковые стенки канала за соплом выполнены с углом полураскрытия 1.5° для поддержания постоянного числа Маха;

– сверхзвуковой диффузор с углом раскрытия 8° располагался на расстоянии 0.16–0.2 м от критического сечения.

Во всех экспериментах полного давления в форкамере p_0 достаточно для запирания сопла и, следовательно, локальные значения K определяются геометрией каналов и свойствами рабочего тела – воздуха.

В сопле № 1 ускорение потока начиналось со входа в канал, величина K достигала своего максимума (таблица) на расстоянии –31 мм от критического сечения. Далее происходило полуторакратное снижение K и от $x = -15$ мм до критического сечения значение K сохранялось. В сверхзвуковой части сопла K монотонно снижалось. На выходе из сопла ускорение потока прекращалось.

После первоначального разгона в сопле № 2 пограничный слой развивался без ускорения до сечения $x = -12$ мм, а максимальные значения K_{max}, существенно превосходящие величины K, необходимые для начала ламинаризации, достигались в сечении –10 мм. Далее вплоть до выхода из сопла величина K практически монотонно снижалась. На участке $x = -15...6$ мм ускорение в данном сопле гораздо существеннее, и далее вплоть до окончания разгона величины K для двух сопел практически совпадали.

Экспериментальные исследования проводились в “холодной” аэродинамической трубе без существенного перепада между температурой стенки канала и температурой торможения потока. Это

Значения K_{max} при различных давлениях в форкамере

№	Давление в форкамере p_0, атм	K_{max} для сопла № 1, 10^{-6}	K_{max} для сопла № 2, 10^{-6}
I	1.43	3.5	16
II	1.75	2.85	13.1
III	2.04	2.45	11.2
IV	2.4	2.1	9.5
V	2.7	1.85	8.47
VI	3.05	1.65	7.5

позволяет исключить влияние температурного фактора на параметры теплового и динамического пограничных слоев и выделить, наряду со сжимаемостью потока, только влияние ускорения потока.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА И МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

Экспериментальные исследования проводились на малоразмерной аэродинамической установке (рис. 3). Сжатый воздух поступает в форкамеру, где происходит выравнивание потока в сотовом смесителе [38]. Регулировка давления в форкамере осуществлялась с помощью редуктора, расход воздуха измерялся с использованием массового кориолисового расходомера. В форкамере регистрируются давление и температура торможения [39]. После форкамеры (и шестикратного поджатия) установленная заслонка направляет поток воздуха либо в канал, либо напрямую в атмосферу. После дополнительного поджатия (в 4.2 раза) воздух поступает в исследуемый щелевой канал. Поток на входе в канал считался равномерным. Геометрия канала обеспечивает нарастание динамического пограничного слоя, начиная с расстояния 20 мм против потока от входа. Исследуемая поверхность, образующая заднюю стенку канала, выполнена нагреваемой, и, следовательно, развитие теплового пограничного слоя начинается непосредственно со входа в канал. Вклад теплоизолированного входного участка не превышает 3% в сечении $x = -50$ мм и не превышает 1% в критическом сечении.

Изготовлено два варианта верхней стенки. Одна из верхних стенок дренирована для измерения распределения статического давления по длине канала (на участке –80...190 мм относительно критического сечения с шагом 10 мм, диаметр отверстий равен 0.3 мм). Вторая стенка имеет Zn–Se-окно, прозрачное в ИК-области излучения, и обеспечивает возможность регистрации поля температур с помощью ИК-камеры. Окно расположено на участке –60...160 мм от критического сечения. Физический размер пикселя камеры составлял ~0.35 мм (расстояние в 220 мм вдоль оси канала соответствовало 630 пикселям камеры).

Экспериментальные исследования проводились в два этапа. На первом этапе устанавливалась дренированная верхняя стенка и исследовалось распределение статического давления p по длине канала при различных давлениях в форкамере p_0. Измерения проводились на неподогреваемой стенке. С использованием полученных распределений статического давления p и давления в форкамере p_0 определялись распределения чисел Маха по длине канала с использованием газодинамической функции давления:

$$\pi(\mathrm{M}) = \frac{p}{p_0} = \left(1 + \frac{k-1}{2}\mathrm{M}^2\right)^{\frac{k}{k-1}},$$

где k – показатель адиабаты. Число Маха, определенное с использованием $\pi(\mathrm{M})$, является максимальным числом Маха в сечении при условии сохранения полного давления по длине канала. Однако за соплом в высокоскоростном потоке падение полного давления существенно, и реальное значение числа Маха, по-видимому, несколько ниже. В области разгона потока экспериментальные значения числа Маха практически совпадали по величине с изоэнтропическим течением. Далее с использованием полученных чисел Маха определялись параметры в ядре потока, необходимые для расчета числа Стентона $\mathrm{St}_{\mathrm{exp}}$.

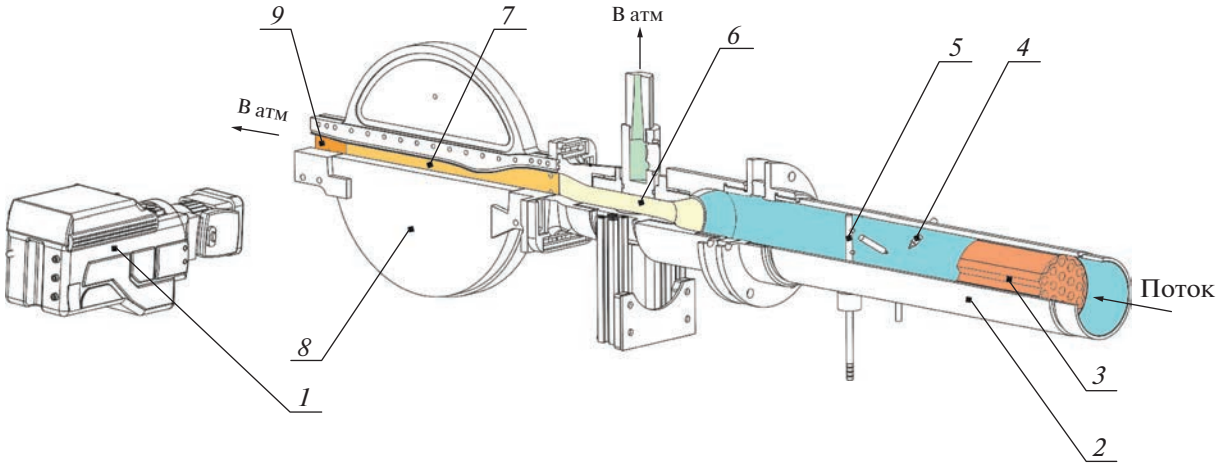

Рис. 3. Схема экспериментальной установки: *1* – ИК-камера, *2* – форкамера, *3* – сотовый смеситель, *4* – термопары температуры торможения T_0, *5* – отборники давления в форкамере p_0, *6* – заслонка, *7* – исследуемый канал, *8* – верхняя стенка, *9* – выходной диффузор.

На втором этапе исследовались поля коэффициентов теплоотдачи и температуры восстановления методом нестационарного теплообмена. Для этого исследуемая (нижняя) стенка канала предварительно нагревалась до 40–45°C. Для достижения постоянной температуры газа устанавливался требуемый расход, при этом вход в канал был закрыт. Контроль температурного поля стенки канала в это время осуществлялся ИК-камерой, полной температуры потока – термопарами в форкамере. По достижении постоянства во времени всех измеряемых температур воздух начинал поступать в канал. Частота съема изображений составляла 30 Гц. Продолжительность регистрации темпа охлаждения составляла 20 с. Перепад температур между начальным и конечным моментами эксперимента составлял от 30 до 50°C.

Для определения коэффициентов теплоотдачи и температуры теплоизолированной стенки использовался метод нестационарного теплообмена. Для каждого элемента исследуемой стенки, соответствующего пикселю ИК-камеры, строилась конечно-разностная модель по толщине стенки для решения одномерного нестационарного уравнения теплопроводности

$$k_s \frac{\partial^2 T_s(y,t)}{\partial y^2} = \rho_s c_s \frac{dT_s(y,t)}{dt},$$

где k_s – коэффициент теплопроводности, ρ_s – плотность, c_s – теплоемкость материала стенки (оргстекла), T_s – температура стенки в момент времени t на глубине y, $T_w(t) = T_s(y = 0, t)$, t – время. Граничное условие первого рода на границе, через которую осуществлялся нагрев, определяется температурой, регистрируемой термопарой, а на границе со стороны проточной части канала – ИК-камерой.

Для каждого момента времени восстанавливался тепловой поток q_{exp}, обеспечивающий экспериментально измеренный темп охлаждения поверхности модели. Далее тепловой поток выражался через локальный коэффициент теплоотдачи α и разность между локальной температурой теплоизолированной стенки T_{aw} и температурой поверхности T_w в текущий момент времени: $q_{exp}(t) = \alpha(T_{aw} - T_w(t))$. Для определения этих значений полученная зависимость $q_{exp}(t)$ строилась в координатах температура стенки–тепловой поток. Данные, соответствующие регулярному режиму, аппроксимировались линейной зависимостью: коэффициент теплоотдачи соответствовал углу наклона полученной линии, температура теплоизолированной стенки – точке пересечения с осью абсцисс. С использованием этой процедуры для каждого пикселя ИК-камеры определялись поля коэффициентов теплоотдачи и температуры теплоизолированной стенки в исследуемом канале.

Так как в глубоко дозвуковой области ($M \ll 1$) канала отличие полной температуры от температуры теплоизолированной стенки не превышает точности измерения этих температур, при определении параметров теплообмена в качестве полной температуры T_0 использовалась температура теплоизолированной стенки в области $M < 0.2$. Это позволяет существенно снизить неопределенности измерений, связанные с изменением температуры газа при его движении от форкамеры к каналу.

Локальное значение числа Стентона $St_{exp} = \alpha/(\rho U c_p)$ определялось с использованием локальных значений коэффициента теплоотдачи α. Величины скорости U и плотности ρ в ядре потока взяты на средней линии канала с использованием экспериментального распределения M вдоль канала и температуры торможения T_0, определенной в глубоко дозвуковой области течения.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Числа Маха и параметр ускорения потока. Необходимой частью теплофизического эксперимента являются определение параметров в ядре потока и идентификация величины ускорения потока в исследуемых соплах. На рис. 4 сравниваются экспериментальные распределения чисел Маха по длине каналов с расчетными (изоэнтропическими) для рассматриваемых давлений в форкамере.

На выходе из сопел максимальные значения $M \approx 1.8$ оказались несколько ниже расчетных. Число Маха в соответствии с практически постоянным статическим давлением в сверхзвуковой части канала за соплом № 1 не изменяется вплоть до возникновения скачка уплотнения. Число Маха на выходе из сопла № 2 имеет большую неравномерность в выходном сечении, что проявляется в возникновении характеристик против потока.

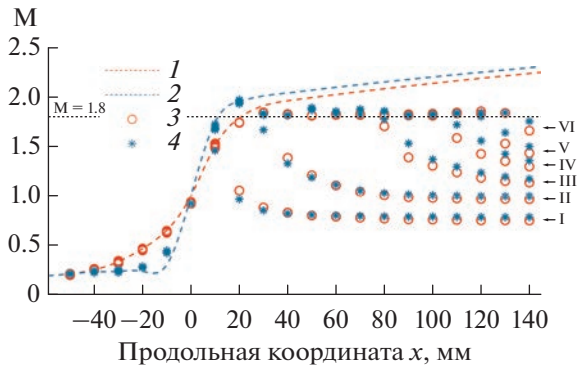

Рис. 4. Распределение числа Маха вдоль каналов: *1*, *2* – расчетные (изоэнтропические) значения для сопел 1 и 2; *3*, *4* – экспериментальные значения для сопел 1 и 2; подписи к экспериментальным значениям соответствуют данным таблицы.

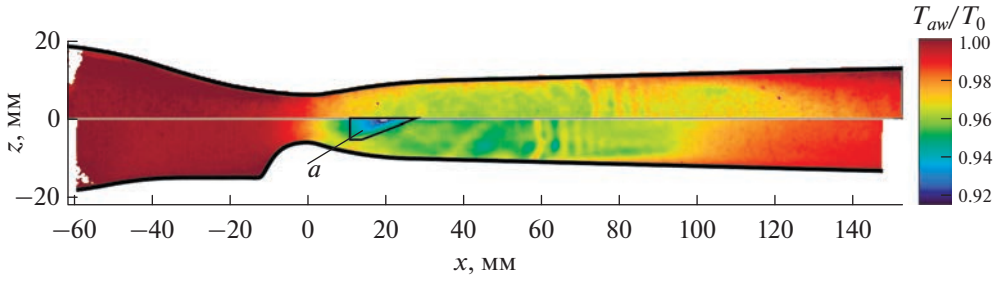

Рис. 5. Поля относительных температур T_{aw}/T_0 для двух сопел при давлении $p_0 = 2.04$ атм.

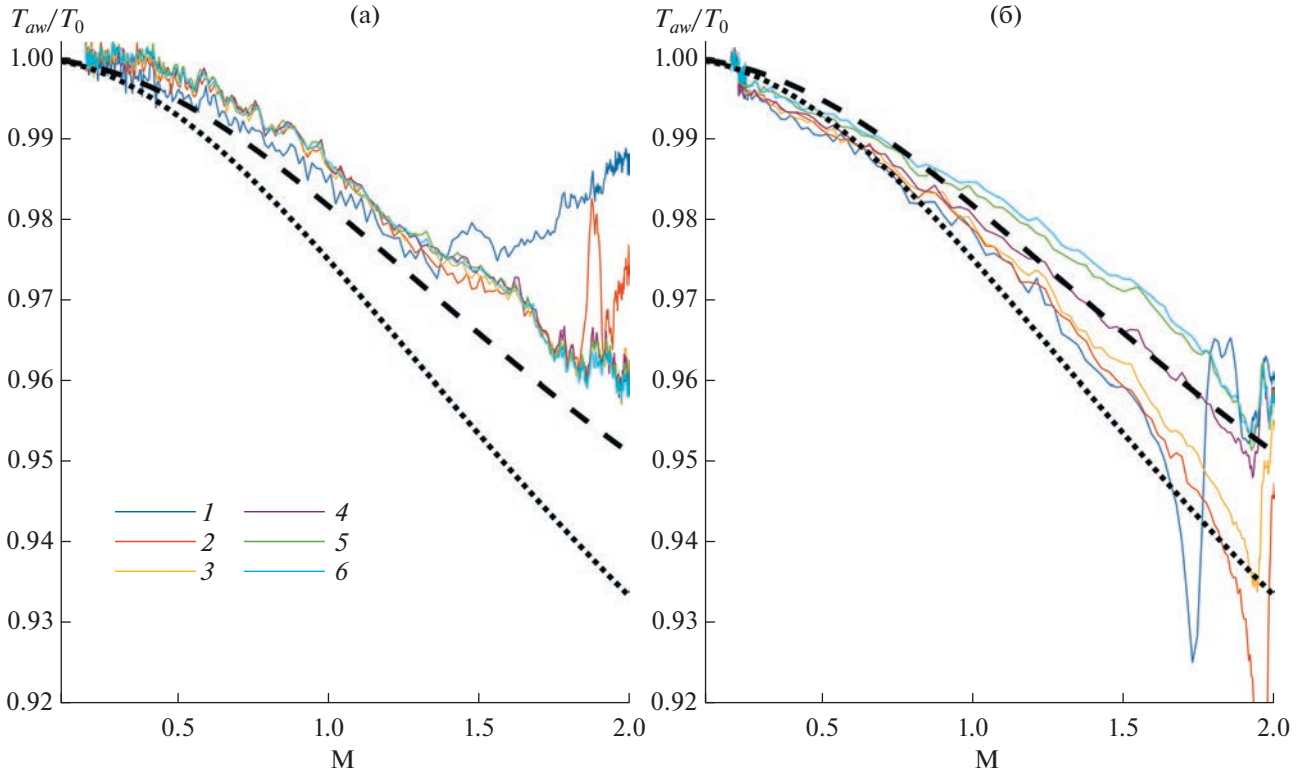

Рис. 6. Относительные температуры T_{aw}/T_0 для двух сопел на средней линии каналов: (а) – сопло № 1, (б) – № 2; *1* – $p_0 = 1.43$ атм, *2* – 1.75, *3* – 2.04, *4* – 2.4, *5* – 2.7, *6* – 3.02; штриховые линии – турбулентный режим течения, пунктирные линии – ламинарный.

При меньших давлениях в форкамере распределение чисел Маха соответствует описанному выше вплоть до скачка уплотнения. Выполненные измерения позволяют утверждать, что в разгонной части сопел ускорения потока соответствуют предварительным оценкам (рис. 1).

Адиабатная температура стенки. За исключением области взаимодействия характеристик, образующихся в точке перехода от разгона к выравниванию потока в сопле № 2 в нерасчетных режимах (область *a* на рис. 5), распределение относительной температуры теплоизолированной стенки T_{aw}/T_0 в поперечном направлении достаточно однородно (рис. 5). Поэтому для дальнейших оценок использовались значения на средней линии ($z = 0$ мм) рассматриваемой стенки.

На рис. 6 представлено изменение относительной температуры теплоизолированной стенки T_{aw}/T_0 для двух сопел при различных параметрах ускорения потока (давлениях в форкамере) с ростом числа Маха. Также на рисунок нанесены значения T_{aw}/T_0, соответствующие развитым ламинарному и турбулентному пограничным слоям. Здесь стоит отметить тот факт, что участок −60...−12 мм до критического сечения сопла № 2 соответствует области M < 0.25 на рис. 6б.

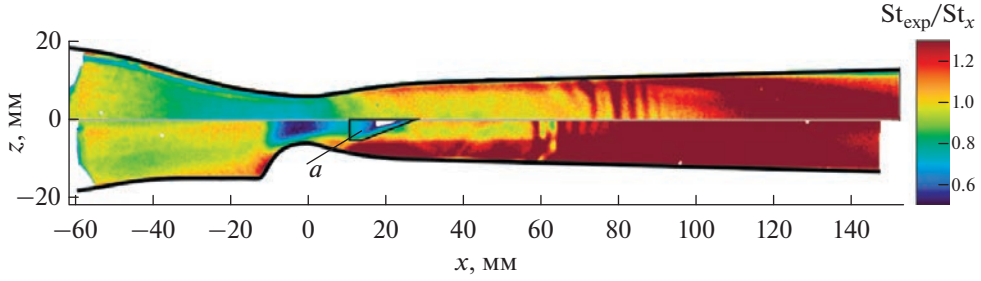

Рис. 7. Поля относительных коэффициентов теплоотдачи St_{exp}/St_x для двух сопел при давлении $p_0 = 2.04$ атм.

Наблюдается превышение измеренной величины T_{aw}/T_0 значений, характерных для развитого турбулентного течения в случае малых K и больших чисел Маха. Это, по-видимому, вызвано снижением реального числа Маха относительно изоэнтропического, а также тем, что пограничный слой недостаточно развит. Ниже по потоку – в области сверхзвукового течения – T_{aw}/T_0 снижается и достигает турбулентных значений на расстоянии 100 мм от критического сечения.

Характеры изменения T_{aw}/T_0 для двух вариантов ускорения существенно различаются. В сопле с умеренным ускорением потока величина T_{aw}/T_0 не зависит от K и по мере нарастания теплового пограничного слоя и увеличения числа М монотонно стремится к значению для турбулентного пограничного слоя вплоть до возникновения скачка уплотнения. В сопле № 2 наблюдается снижение T_{aw}/T_0 с ростом K при одинаковом М. Кроме того, для данного сопла на величину T_{aw}/T_0 в области М > 1.7 помимо ускорения потока оказывает влияние взаимодействие характеристик. Здесь наблюдаются минимальные значения $T_{aw}/T_{0.}$

Коэффициент теплоотдачи. На рис. 7 представлено сравнение полученных полей относительных коэффициентов теплоотдачи St_{exp}/St_x для двух сопел. Величина расчетного числа Стентона St_x определялась для турбулентного пограничного слоя, развивающегося на пластине в безградиентном течении [40]:

$$St_x = 0.0288 Re_x^{-0.2} Pr^{-0.6} \Psi_M^{0.8},$$

где Re_x – число Рейнольдса, определенное по длине пограничного слоя; Ψ_M – поправка на сжимаемость

$$\Psi_M = \left(\frac{M\sqrt{r\frac{k-1}{2}}}{M\sqrt{r\frac{k-1}{2}}} \right)^2.$$

Так как в интегральном соотношении энергии отсутствуют члены, определяемые продольным градиентом давления при оценке коэффициента теплоотдачи St_x, можно применять зависимость для безградиентного течения, в которой при определении Re_x используются локальные величины ρU [41]. Отклонение St_{exp}/St_x от единицы свидетельствует о влиянии ускорения потока на зависимость числа Стентона от числа Рейнольдса.

Величины коэффициентов теплоотдачи α достигают максимальных значений в области критического сечения и за скачком уплотнения. Однако St_{exp}/St_x в области критического сечения минимальны для обоих сопел. Значения коэффициентов теплоотдачи в глубоко дозвуковой области канала и в области безградиентного сверхзвукового течения в двух каналах практически совпадают с турбулентными значениями и здесь $St_{exp}/St_x \approx 1$. За скачком уплотнения наблюдается интенсификация теплоотдачи и $St_{exp}/St_x > 1$.

В сопле № 2 в области критического сечения происходит более существенное снижение St_{exp}/St_x по сравнению с соплом № 1, вследствие большего ускорения потока.

Следует отметить влияние пограничного слоя на боковых стенках на течение в канале и поля коэффициентов теплоотдачи в области возникновения скачка уплотнения, приводящих к отрыву пограничного слоя и значительному (до двух раз) увеличению коэффициента теплоотдачи за скачком. В то же время против потока увеличение коэффициента теплоотдачи в сопле № 1 незначительно (на 10%), в сопле № 2 – более существенное (до 30% при малых давлениях в форкамере) в периферийной области исследуемой нижней стенки (рис. 7).

Так как число Рейнольдса Re_x растет в дозвуковой области сопла и снижается в сверхзвуковой, а влияние числа Маха на коэффициент теплоотдачи описывается поправкой на сжимаемость Ψ_M, изменение величины St_{exp}/St_x представлено вдоль средней линии стенки каналов (рис. 8). Также на рисунок нанесены значения $St_{лам}/St_x$ для безградиентного ламинарного пограничного слоя при минимальном давлении в форкамере.

По мере роста параметра K (уменьшения полного давления) интенсивность теплообмена в области ускорения потока в сопле № 1 начинает

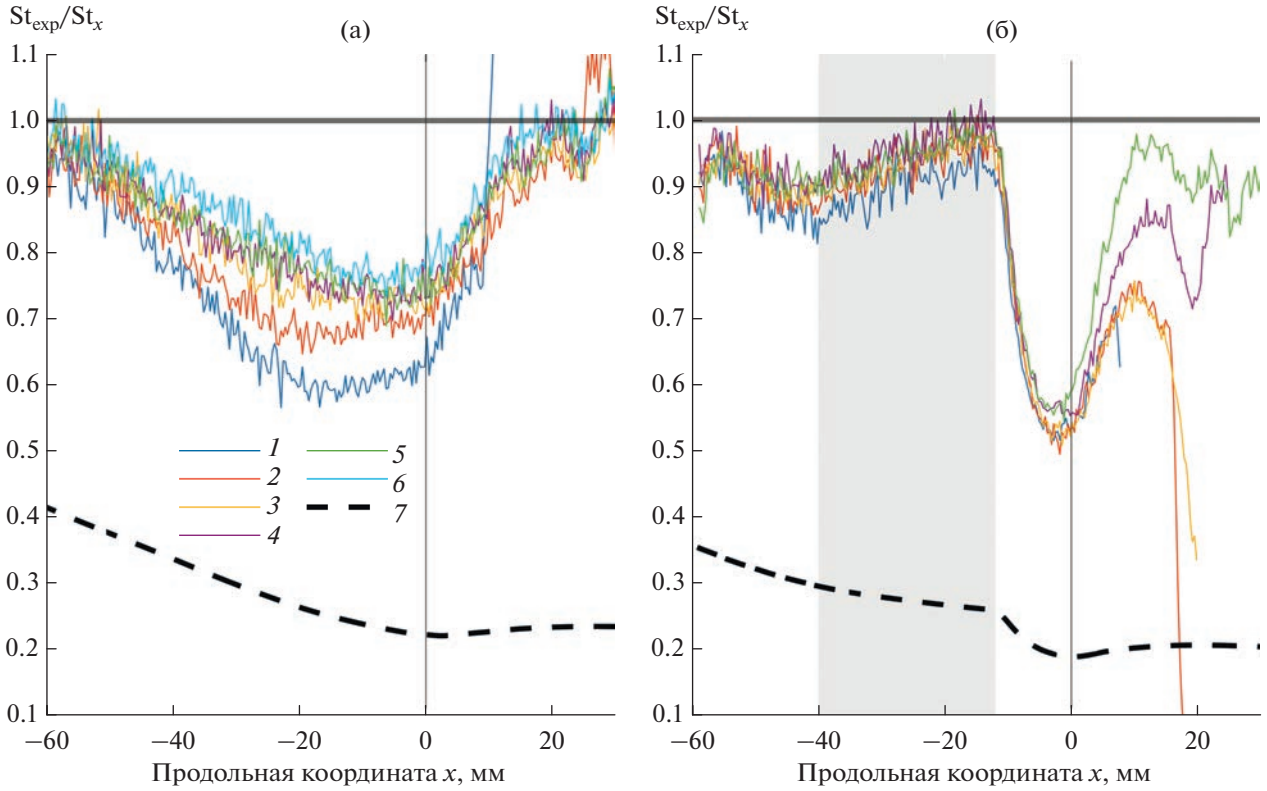

Рис. 8. Влияние продольного градиента давления на закон теплообмена St_{exp}/St_x для двух сопел: (а) – сопло № 1, (б) – № 2; серый – область безградиентного течения; *1* – p_0 = 1.43 атм, *2* – 1.75, *3* – 2.04, *4* – 2.4, *5* – 2.7, *6* – 3.05; *7* – $St_{лам}/St_x$.

снижаться и для режима течения с минимальным давлением составляет 0.6 от значения, соответствующего турбулентному пограничному слою. Минимальное значение St_{exp}/St_x соответствует дозвуковой области течения. За критическим сечением величина K падает, а St_{exp}/St_x возрастает, возвращаясь на выходе из сопла к турбулентным значениям.

Входной участок второго сопла повторяет геометрию сопла № 1, и пограничный слой аналогично реагирует на незначительное ускорение потока ($K < 1.6 \times 10^{-6}$) – снижением St_{exp}/St_x до 0.9. Однако по течению в безградиентной области сопла № 2 (–40...–12 мм) этот эффект исчезает. Далее происходит существенное снижение теплоотдачи (до St_{exp}/St_x = 0.5), при этом локальные значения St_{exp}/St_x практически не зависят от единичного числа Рейнольдса и K_{max}. Уменьшение комплекса St_{exp}/St_x наблюдается на всем дозвуковом участке ускорения вплоть до критического сечения, в то время как максимальное значение K_{max} соответствует расстоянию –12 мм от критического сечения и далее K практически монотонно убывает. По потоку в сверхзвуковой части, несмотря на продолжающееся снижение K, вплоть до p_0 = 2.4 атм происходит дальнейшее снижение St_{exp}/St_x. Как и с T_{aw}/T_0, снижение St_{exp}/St_x на выходе из сопла отчасти вызвано взаимодействием характеристик (область *а* на рис. 7). Здесь достигались значения St_{exp}/St_x = 0.35. По мере увеличения давления в форкамере значения St_{exp}/St_x приближаются к единице.

Важным является то, что для случая существенного ускорения потока в сопле № 2 достигнута предельная скорость снижения St_{exp}/St_x, в то же время в условиях умеренного ускорения (сопло № 1) скорость снижения St_{exp}/St_x зависела от K. При этом длина разгонного участка недостаточна для полной ламинаризации потока, и в обоих соплах минимальные значения относительного коэффициента теплоотдачи снижаются до $St_{exp}/St_x \approx 0.5$, что еще раз подчеркивает важность протяженности области ускорения потока.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлены результаты экспериментального исследования параметров теплообмена при течении сжимаемого газа с отрицательным градиентом давления на примере сопел различной геометрии с умеренным и существенным ускорением потока. Давление в форкамере изменялось в диапазоне p_0 = 1.43–3.03 атм, максимальные значения параметра ускорения потока

K_{max} в сопле с умеренным ускорением достигали $K_{max} = 3 \times 10^{-6}$, с существенным – $K_{max} = 16 \times 10^{-6}$. Методом нестационарного теплообмена получены поля коэффициентов теплоотдачи, а также поля температуры теплоизолированной стенки для каждого режима течения.

Отмечено влияние характера ускорения потока на температуру теплоизолированной стенки: умеренное ускорение потока практически не влияет на T_{aw}/T_0, в то время как существенное ускорение приводит к снижению T_{aw}/T_0 вплоть до значений, характерных для ламинарного потока.

Отмечено влияние ускорения на интенсивность теплообмена в турбулентном пограничном слое: максимальное снижение относительного коэффициента теплоотдачи в сопле с умеренным ускорением наблюдалось в области до критического сечения и достигало $St_{exp}/St_x = 0.6$. В сопле с существенным ускорением снижение теплообмена более значительно: в окрестности критического сечения достигалось значение $St_{exp}/St_x = 0.5$. Следовательно, оценка теплоотдачи с использованием закона теплообмена для турбулентного пограничного слоя в сверхзвуковых соплах может давать существенно консервативную оценку.

Обнаружено, что коэффициент теплоотдачи более чувствителен к ускорению потока и его ламинаризации по сравнению с температурой теплоизолированной стенки. Для сопла с существенным ускорением потока достигнута предельная скорость снижения интенсивности теплоотдачи, в то время как для сопла с умеренным ускорением абсолютные величины K определяли скорость изменения St_{exp}/St_x.

Обнаружено запаздывание реакции теплового пограничного слоя как для умеренного, так и для существенного ускорения: снижение относительного коэффициента происходит с некоторым отставанием – минимальные значения достигаются на некотором расстоянии по потоку относительно положения K_{max}. Это же справедливо и для относительной температуры теплоизолированной стенки. Однако даже при наименьших значениях параметров ускорения потока, реализованных в эксперименте, наблюдается влияние продольного градиента давления на величину коэффициента теплоотдачи. Следует отметить снижение относительного коэффициента теплоотдачи St_{exp}/St_x уже в режиме с максимальной величиной $K_{max} = 0.75 \times 10^{-6}$ в сопле с умеренным ускорением потока.

Исследование выполнено за счет средств гранта Российского научного фонда (проект № 19-79-10213, https://rscf.ru/project/19-79-10213/).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Леонтьев А.И., Лущик В.Г., Макарова М.С., Попович С.С.* Коэффициент восстановления температуры в сжимаемом пограничном слое // ТВТ. 2022. Т. 60. № 3. С. 455.
2. *Бурцев С.А., Киселёв Н.А., Леонтьев А.И.* Особенности исследования теплогидравлических характеристик рельефных поверхностей // ТВТ. 2014. Т. 52. № 6. С. 895.
3. *Wilson D.G., Pope J.A.* Convective Heat Transfer to Gas Turbine Blade Surfaces // Proc. Inst. Mech. Eng. 1954. V. 168. № 1. P. 861.
4. *Back L.H., Cuffel R.F., Massier P.F.* Laminarization of a Turbulent Boundary Layer in Nozzle Flow–Boundary Layer and Heat Transfer Measurements with Wall Cooling // J. Heat Transfer. 1970. V. 92. № 3. P. 333.
5. *Back L.H., Cuffel R.F.* Turbulent Boundary Layer and Heat Transfer Measurements Along a Convergent-Divergent Nozzle // J. Heat Transfer. 1971. V. 93. № 4. P. 397.
6. *Back L.H., Massier P.F., Gier H.L.* Convective Heat Transfer in a Convergent-divergent Nozzle // Int. J. Heat Mass Transfer. 1964. V. 7. № 5. P. 549.
7. *Nash-Webber J.L., Oates G.C.* An Engineering Approach to the Design of Laminarizing Nozzle Flows // J. Basic Eng. 1972. V. 94. № 4. P. 897.
8. *Mastanaiah K.* Prediction of Skin-friction and Heat Transfer from Compressible Turbulent Boundary Layers in Rocket Nozzles // Int. J. Heat Mass Transfer. 1978. V. 21. № 11. P. 1403.
9. *Лебедев В.П., Леманов В.В., Мисюра С.Я., Терехов В.И.* Влияние интенсивности турбулентности на эффективность газовой завесы в сопле Лаваля // ТВТ. 1995. Т. 33. № 4. С. 602.
10. *Волчков Э.П.* Пристенные газовые завесы. Новосибирск: Наука, 1983. 240 с.
11. *Bons J.* A Critical Assessment of Reynolds Analogy for Turbine Flows // J. Heat Transfer. 2005. V. 127. № 5. P. 472.
12. *Bons J.P., McClain S.T.* The Effect of Real Turbine Roughness with Pressure Gradient on Heat Transfer // J. Turbomach. 2004. V. 126. № 3. P. 385.
13. *Mayle R.E.* The 1991 IGTI Scholar Lecture: The Role of Laminar–Turbulent Transition in Gas Turbine Engines // J. Turbomach. 1991. V. 113. № 4. P. 509.
14. *Launder B.E.* Laminarization of the Turbulent Boundary Layer by Acceleration. Tech Rep. 77. 1964.
15. *Moretti P.M., Kays W.M.* Heat Transfer to a Turbulent Boundary Layer with Varying Free-stream Velocity and Varying Surface Temperature–an Experimental Study // Int. J. Heat Mass Transfer. 1965. V. 8. № 9. P. 1187.
16. *Bradshaw P.* A Note on Reverse Transition // J. Fluid Mech. 1969. V. 35. № 2. P. 387.
17. *Preston J.H.* The Minimum Reynolds Number for a Turbulent Boundary Layer and the Selection of a Transition Device // J. Fluid Mech. 1958. V. 3. № 4. P. 373.
18. *Chauhan K.A., Monkewitz P.A., Nagib H.M.* Criteria for Assessing Experiments in Zero Pressure Gradient Boundary Lyers // Fluid Dyn. Res. 2009. V. 41. № 2.
19. *Jones W.P., Launder B.E.* Some Properties of Sink-flow Turbulent Boundary Layers // J. Fluid Mech. 1972. V. 56. № 2. P. 337.
20. *Schraub F.A., Kline S.J.* A Study of the Structures of the Turbulent Boundary Layer with and without Longitudinal Pressure Gradients. Stanford, California, 1965.

21. *Narayanan M.A.B., Ramjee V.* On the Criteria for Reverse Transition in a Two-dimensional Boundary Layer Flow // J. Fluid Mech. 1969. V. 35. № 2. P. 225.
22. *Bader P., Pieringer P., Sanz W.* On the Capability of Transition Models to Predict Relaminarization // 12th Eur. Conf. Turbomach. Fluid Dyn. Thermodyn. ETC. 2017. P. 1.
23. *Escudier M.P., Abdel-Hameed A., Johnson M.W., Sutcliffe C.J.* Laminarisation and Re-transition of a Turbulent Boundary Layer Subjected to Favourable Pressure Gradient // Exp. Fluids. 1998. V. 25. № 5–6. P. 491.
24. *Mee D.J., Chiu H.S., Ireland P.T.* Techniques for Detailed Heat Transfer Measurements in Cold Supersonic Blowdown Tunnels Using Thermochromic Liquid Crystals // Int. J. Heat Mass Transfer. 2002. V. 45. № 16. P. 3287.
25. *Bartz D.R.* Turbulent Boundary-Layer Heat Transfer from Rapidly Accelerating Flow of Rocket Combustion Gases and of Heated Air // Adv. Heat Transfer. 1965. V. 2. № C. P. 1.
26. *Sucec J.* An Integral Solution for Heat Transfer in Accelerating Turbulent Boundary Layers // J. Heat Transfer. 2009. V. 131. № 11. P. 1.
27. *Christoph G.H., Lessmann R.C., White F.M.* Calculation of Turbulent Heat Transfer and Skin Friction // AIAA J. 1973. V. 11. № 7. P. 1046.
28. *Langtry R.B., Menter F.R.* Correlation-based Transition Modeling for Unstructured Parallelized Computational Fluid Dynamics Codes // AIAA J. 2009. V. 47. № 12. P. 2894.
29. *Kays W.M., Moffat R.J., Thielbahr W.H.* Heat Transfer to the Highly Accelerated Turbulent Boundary Layer With and Without Mass Addition // J. Heat Transfer. 1970. V. 92. № 3. P. 499.
30. *Kearney D.W., Kays W.M., Moffat R.J.* Heat Transfer to a Strongly Accelerated Turbulent Boundary Layer: Some Experimental Results, Including Transpiration // Int. J. Heat Mass Transfer. 1973. V. 16. № 6. P. 1289.
31. *Mutama K.R., Iacovides H.* The Investigation of Developing Flow and Heat Transfer in a Long Converging Duct // J. Heat Transfer. 1993. V. 115. № 4. P. 897.
32. *Hurst C., Schulz A., Wittig S.* Comparison of Calculated and Measured Heat Transfer Coeffiecients for Transonic and Supersonic Boundary-layer Flows // Proc. ASME Turbo Expo. 1995.V. 4. P. 248.
33. *Schoenman L., Block P.* Laminar Boundary-layer Heat Transfer in Low-thrust Rocket Nozzles // J. Spacecr. Rockets. 1968. V. 5. № 9. P. 1082.
34. *Stoll J., Straub J.* Film Cooling and Heat Transfer in Nozzles // J. Turbomach. 1988. V. 110. № 1. P. 57.
35. *Sternberg J.* Transition from a Turbulent to a Laminar Boundary Layer, U.S. Army Ballistics Re- search Lab. Rep. no. 906. Aberdeen, 1954.
36. *Овсянников А.М., Пирумов У.Г., Плетнева Е.М., Росляков Г.С.* Атлас плоских сопел. М.: Изд-во Моск. ун-та, 1976. 108 с.
37. *Zucrow M.J., Hoffman J.D.* Gas Dynamics. V. 2. Multidimensional Flow. N.Y.: John Wiley and Sons, Inc., 1977. 488 p.
38. *Rae W.H., Pope A.* Low-speed Wind Tunnel Testing // Low-Speed Wind Tunnel Testing. 2nd ed. N.Y.: Jonh Wiley & Sons, 1984.
39. *Leontiev A.I., Zditovets A.G., Kiselev N.A., Vinogradov Y.A., Strongin M.M.* Experimental Investigation of Energy (Temperature) Separation of a High-velocity Air Flow in a Cylindrical Channel with a Permeable Wall // Exp. Therm. Fluid Sci. 2019. V. 105.
40. *Кутателадзе С.С., Леонтьев А.И.* Тепломассообмен и трение в турбулентном пограничном слое. М.: Энергия, 1972. 344 с.
41. *Волчков Э.П., Лебедев В.П.* Тепломассообмен в пристенных течениях. Учеб. Новосибирск: Изд-во НГТУ, 2003. 244 с.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 588–593

УДК 532.526.3:533.6.011.6

ОЦЕНКА КОНВЕКТИВНЫХ ТЕПЛОВЫХ ПОТОКОВ ДЛЯ МЕТЕОРОИДНЫХ ТЕЛ В ТРЕХМЕРНОЙ ПОСТАНОВКЕ

© 2023 г. Д. Н. Минюшкин*, И. С. Фролов

Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет), г. Долгопрудный, Россия

**E-mail: minyushkin.dn@yandex.ru*

Поступила в редакцию 29.06.2022 г.
После доработки 23.01.2023 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

В данной работе предложен модифицированный метод эффективной длины для расчета тепловых потоков в сложных геометриях в трехмерной постановке при движении в атмосфере с высокими скоростями и описана его программная реализация. Метод, с одной стороны, не требует огромных вычислительных затрат для получения результата, а с другой, демонстрирует устойчивую работу в сложных геометриях.

DOI: 10.31857/S0040364423040099

ВВЕДЕНИЕ

Быстро движущиеся в атмосфере метеориты или летательные аппараты испытывают не только аэродинамическое сопротивление среды, но и радиационный [1] и аэродинамический нагрев. При сверхзвуковых скоростях возникают ударные волны, за фронтом которых газ сильно разогревается, нагревая поверхность метеорита. При моделировании движения в подобных условиях необходимо оценивать величину аэродинамического нагрева. Для расчета тепловых потоков в сложных геометриях в трехмерной постановке при движении в атмосфере с высокими скоростями в настоящее время широко используется численное решение уравнений Навье–Стокса. Однако даже при современном уровне доступности вычислительных мощностей подобные расчеты все же являются ресурсозатратными. В работе [2] пример подобного расчета приведен в осесимметричной постановке на основе решения уравнений Навье–Стокса. В случае необходимости рассчитывать изменяющуюся форму метеорита в результате разрушения материала расчет конвективных тепловых потоков становится массовой операцией: необходимо для каждой новой полученной формы метеорита искать новое поле тепловых потоков. Таким образом, массовость расчета конвективных потоков в трехмерной постановке радикально усложняет задачу расчета формы метеорита в результате аэродинамического нагрева.

Одним из часто используемых способов оценки аэродинамического нагрева является метод эффективной длины. Метод предложен В.С. Авдуевским [3–5] и основан на предположении, что тепловой поток через пограничный слой определяется локальными значениями параметров газа на внешней границе пограничного слоя и толщиной пограничного слоя, а локальная толщина пограничного слоя обусловлена предысторией течения от точки растекания. В сложных трехмерных геометриях локально могут возникать течения, в которых метод эффективной длины применять нельзя: течения в кавернах, на уступах, отрывы и вихри.

Целью работы является разработка модифицированного метода эффективной длины, устойчиво работающего на геометрически сложных поверхностях с изломами, кавернами и выбоинами.

МОДИФИЦИРОВАННЫЙ МЕТОД ЭФФЕКТИВНОЙ ДЛИНЫ

Математически метод сводится к определению тепловых потоков в точке растекания на поверхности тела и интегрированию вдоль линии тока, как схематически показано на рис. 1. Значения на внешней границе пограничного слоя являются входными параметра расчета и получаются из решения уравнений Эйлера или по методу Ньютона, что и обусловливает существенно более высокую скорость получения результата по отношению к решению уравнений Навье–Стокса. Для расчета теплового потока в области торможения для всех подобных геометрий предлагается использовать следующие соотношения [6]:

$$\frac{\alpha}{c_p} = 0.332\mathrm{Pr}^{-2/3}\sqrt{2\rho_*\mu_*\mathrm{div}\mathrm{U}},$$

$$q_w = \frac{\alpha}{c_p}(H_e - h_w), \qquad (1)$$

$$H_e = h_\delta + \frac{1}{2}\mathrm{Pr}^{1/2}U_\delta^2.$$

(а) (б)

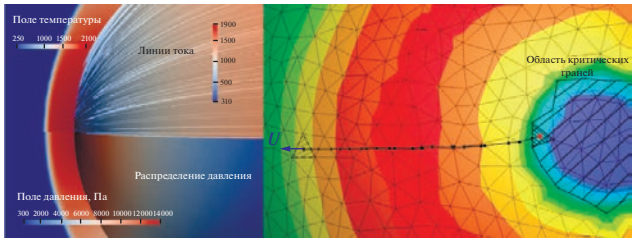

Рис. 1. Схема определения линии тока на поверхностной триангулированной сетке, предложенная в [5], на примере сферы: (а) – распределение газодинамических полей, полученное при решении уравнений Эйлера; (б) – область критических граней и линия тока, вдоль которой вычисляются криволинейные интегралы в (3).

Здесь α/c_p – коэффициент теплообмена; q_w – конвективный тепловой поток на стенке; h_w – энтальпия на поверхности тела; H_e – адиабатическая энтальпия; h_δ – энтальпия на внешней границе пограничного слоя; Pr – число Прандтля; U_δ – модуль скорости на внешней границе пограничного слоя; ρ_*, μ_* – плотность и вязкость газа, рассчитанные по значению давления и эккертовской энтальпии [6]:

$$h_* = 0.5h_w + 0.22H_e + 0.28h_\delta.$$

В методе эффективной длины, предложенном в [6], коэффициенты теплообмена вне области торможения вычисляются интегрированием вдоль линии тока (рис. 1). Соотношения для интегрирования [6] следующие:

$$\left(\frac{\alpha}{c_p}\right)_l = 0.332\mathrm{Pr}^{-2/3}\frac{r_{\mathrm{eff}}\rho_*\mu_*U_\delta}{z_l^{1/2}};$$
$$\left(\frac{\alpha}{c_p}\right)_t = 0.0296\mathrm{Pr}^{-0.6}\frac{r_{\mathrm{eff}}^{1/4}\rho_*\mu_*^{1/4}U_\delta}{z_t^{1/5}}; \quad (2)$$

$$z_l = \int_0^S B_l dS, \quad B_l = r_{\mathrm{eff}}^2\rho_*\mu_*U_\delta;$$
$$z_t = \int_0^S B_t dS, \quad B_t = r_{\mathrm{eff}}^{5/4}\rho_*\mu_*^{1/4}U_\delta. \quad (3)$$

Здесь S – длина дуги вдоль линии тока; r_{eff} – радиус эквивалентного осесимметричного тела; индексы l, t – параметры ламинарного и турбулентного режимов течения.

Соотношения для ламинарного теплообмена определяются на основе решения задачи Блазиуса о структуре пограничного слоя на пластине, формула для расчета турбулентного теплового потока получена на основе обобщения экспериментальных данных [6].

В данном случае интеграл z_i $(i = l,t)$ является функцией от S и его можно записать в виде дифференциала z_i как

$$\frac{dz_i}{dS} = B_i. \quad (4)$$

Обратный переход дает

$$\tilde{z}_i = \int_0^S B_i dS + \mathrm{const}. \quad (5)$$

В настоящей постановке для любой линии тока const = 0, потому что на границе критической области интегралы z_i и $\tilde{z}_i$ равны значению интеграла в критической области.

Интегрировать вдоль линии тока можно двумя способами. Первый, описанный в работе [5], предполагает вычисление линии тока из каждой точки на поверхности до границы точки растекания. Модификация метода эффективной длины, предложенная в данной работе, основана на втором способе [6].

Идея разработанного метода заключается в переходе от вычисления интеграла вдоль линии тока к эквивалентной краевой задаче, сформулированной на поверхности тела вне области торможения, с граничным условием первого рода на границе области торможения. Используя соотношения [7]

$$\frac{dz_i}{dS} = \mathrm{grad}(z_i)\cdot\mathbf{e},$$
$$\mathbf{e} = \frac{\boldsymbol{U}}{\|\boldsymbol{U}\|},$$
$$\mathrm{div}(z_i\boldsymbol{e}) = \mathrm{grad}(z_i)\cdot\mathbf{e} + z_i\mathrm{div}(\mathbf{e}),$$

можно преобразовать (4) к виду

$$\mathrm{div}(z_i\mathbf{e}) - z_i\mathrm{div}(\mathbf{e}) = B_i. \quad (6)$$

Граничное условие

$$z_i|_{\partial\Omega} = f(\mathbf{r}) \quad (7)$$

($\mathbf{r}$ – радиус-вектор точки в пространстве), заданное на границе области торможения $\partial\Omega$, обеспечивает равенство const = 0 в соотношении (5). Таким образом, сформулированная краевая задача (6), (7) эквивалентна исходной задаче.

Аналогичный подход может быть применен при решении уравнения для эффективного радиуса. Согласно определению [5]:

$$\frac{d\ln(r_{\mathrm{eff}})}{dS} = \mathrm{div}(\mathbf{e}).$$

Повторяя рассуждения, приведенные выше, можно показать, что задача поиска $\ln(r_{\mathrm{eff}})$ эквивалентна краевой задаче с уравнением

$$\mathrm{div}(\ln(r_{\mathrm{eff}})\mathbf{e}) - \ln(r_{\mathrm{eff}})\mathrm{div}(\mathbf{e}) = \mathrm{div}(\mathbf{e}) \quad (8)$$

и граничным условием

$$r_{\text{eff}}|_{\partial\Omega} = g(\mathbf{r}). \quad (9)$$

Выбор граничных значений в соотношениях (7), (9) рассмотрен при описании численного метода.

ЧИСЛЕННЫЙ МЕТОД И ОБЕСПЕЧЕНИЕ УСТОЙЧИВОСТИ СЧЕТА

Метод эффективной длины имеет ограничение – он не может применяться в областях, где пограничный слой разрушается. Например, в течении перед уступом, в донной области. Однако на практике во многих случаях оценка теплового потока нужна в теплонапряженных местах: областях в районе точки растекания, присоединения ударных волн, на наветренной стороне. Таким образом, требования по устойчивости к методу можно сформулировать следующим образом: расчет методом эффективной длины должен давать результат на теплонапряженных участках и оставаться устойчивым в местах, где он не дает корректного результата.

Предполагается, что есть неструктурированная поверхностная сетка, состоящая из ячеек произвольной формы, и в каждой ячейке заданы параметрами внешнего обтекания: скорость U, давление p, температура T. Численный алгоритм состоит из следующих шагов:

1) выделение критической области;

2) вычисление значений основных величин в критической области с помощью аналитических соотношений;

3) вычисление эффективного радиуса тела в каждой ячейке;

4) интегрирование по полю с заданными граничными условиями.

Рассмотрим подробнее каждый шаг алгоритма.

1. Выделение критической области. На данном этапе необходимо выделить точку растекания и прилегающую к ней область. Для этого используется набор критериев:

$$\|\mathbf{U}_i\| < \alpha \max_i \|\mathbf{U}_i\|,$$
$$p_i > (1-\alpha)\max_i (p_i),$$
$$\operatorname{div}\mathbf{e}_i > 0, \quad \mathbf{e}_i = \frac{\mathbf{U}_i}{\|\mathbf{U}_i\|},$$

где $\alpha \in (0,1)$. Рекомендуемые значения $\alpha = 0.05, 0.1$.

Таким образом, ячейки сетки, удовлетворяющие всем критериям, формируют критическую область. Здесь и далее нижний индекс i у величин означает, что используется значение в ячейке, соответствующей данному индексу.

2. Вычисление значений основных величин в критической области с помощью аналитических соотношений. На данном этапе вычисляются значения величин $\left(\frac{\alpha}{c_p}\right)_l$, $\left(\frac{\alpha}{c_p}\right)_t$, z_l, z_t, r_{eff} в критической области.

Для вычисления r_{eff} используется приближенная формула

$$r_{\text{eff}} = \|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_0\|, \quad \mathbf{R}_0 = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\mathbf{r}_i, \quad (10)$$

справедливая в малой окрестности точки растекания.

Здесь $\mathbf{r}_i$ – радиус-вектор центра ячейки с номером i, $\mathbf{R}_0$ – барицентр критической области. Суммирование в формуле (10) проводится по всем ячейкам критической области.

Для вычисления z_l нужно выразить эту величину из соотношения (2):

$$z_l = \left(\frac{0.332\,\mathrm{Pr}^{-\frac{2}{3}} r_{\text{eff}} \rho_* \mu_* \|\mathbf{U}\|}{\left(\frac{\alpha}{c_p}\right)_l}\right)^2. \quad (11)$$

Так как рассматривается граница области торможения, то $\left(\frac{\alpha}{c_p}\right)_l$ вычисляется по формулам (1) (данный подход неприменим, поскольку в рассматриваемой модели $\left(\frac{\alpha}{c_p}\right)_t = 0$ в области торможения).

Для вычисления z_t используется соотношение (3). Разложим функцию B_t в ряд Маклорена по S и оставим первый ненулевой член этого ряда. Кроме того, считая размер области растекания малым, примем $r_{\text{eff}} \approx S$. В результате получаем

$$z_t \approx \int_0^S x^{\frac{9}{4}} \rho_{*0} \mu_{*0}^{\frac{1}{4}} c\,dx. \quad (12)$$

Здесь ρ_{*0}, μ_{*0} – значения соответствующих величин в точке растекания (при $S=0$), $c = \frac{d\mathbf{U}}{dS}$. После интегрирования из (12) получаем

$$z_t \approx \frac{4}{13} r_{\text{eff}}^{\frac{13}{4}} \rho_{*0} \mu_{*0}^{\frac{1}{4}} c. \quad (13)$$

Соотношения (10), (11), (13) используются как внутри области торможения, так и на ее границе для аппроксимации граничных условий (7), (9).

3. Вычисление эффективного радиуса тела в каждой ячейке. На данном этапе производится численное решение краевой задачи (8), (9) мето-

дом релаксации. Для повышения устойчивости расчета в уравнение также добавляется вязкий член $\Delta(D_S \ln(r_{\text{eff}}))$, где D_S – искусственная вязкость. Таким образом, уравнение (8) после добавления вязкого члена при решении методом релаксации принимает вид

$$\frac{\partial \ln(r_{\text{eff}})}{\partial t} + \operatorname{div}(\ln(r_{\text{eff}})\mathbf{e}) - \Delta(D_S \ln(r_{\text{eff}})) = \\ = \operatorname{div}(\mathbf{e}) + \ln(r_{\text{eff}})\operatorname{div}(\mathbf{e}).$$

4. Интегрирование по полю с заданными граничными условиями. Численное решение краевой задачи (6), (7) производится методом релаксации. После добавления вязкого слагаемого при решении методом релаксации уравнение (6) записывается как

$$\frac{\partial z_i}{\partial t} + \operatorname{div}(z_i\mathbf{e}) - \Delta(D_S z_i) = B_i + z_i \operatorname{div}(\mathbf{e}). \qquad (14)$$

Дискретизация производится с помощью метода конечного объема. Производная по времени $\frac{\partial z_i}{\partial t}$ аппроксимируется с помощью схемы Эйлера. Конвективное слагаемое $\operatorname{div}(z_i\mathbf{e})$ аппроксимируется неявно с помощью схемы первого или второго порядка точности. Вязкий член $\Delta(D_S z_i)$ аппроксимируется неявно с помощью схемы Гаусса с линейной интерполяцией на грани ячеек. Слагаемые в правой части уравнения (14) аппроксимируются явно. В ячейках критической области значения z_i фиксируются.

При численном решении уравнения на каждой итерации проверяются значения z_i во всех ячейках. Если в какой-либо ячейке вне критической области значение z_i меньше максимального в критической области значения $\max_{\text{stag}} z_i$, то в этой ячейке устанавливается $z_i = \max_{\text{stag}} z_i$.

ВАЛИДАЦИЯ МОДИФИЦИРОВАННОГО МЕТОДА ЭФФЕКТИВНОЙ ДЛИНЫ И РАСЧЕТ СЛОЖНОГО МЕТЕОРОИДНОГО ТЕЛА

Для валидации метода выбраны два типа экспериментальных данных: для обтекания сферы и обтекания цилиндра с различными радиусами закругленной кромки. Первый валидационный тест показывает адекватность расчета тепловых потоков на затупленных по сфере телах, таких как метеороидное тело, а второй тест – возможности метода для расчета вероятных ребер на поверхности.

Сравнение для сферы проведено с результатами расчета из [5]. Сфера радиусом $R = 1$ м помещена в сверхзвуковой поток. Параметры набегающего потока: давление $P = 300$ Па, температура $T = 250$ K, молярная масса газа $M_g = 0.029$ кг/моль (параметры атмосферы на высоте 40 км, где скорость полета составляет примерно M = 6 [8]). В расчетах принималась температура стенки $T_w = 300$ K. Результаты расчета приведены на рис. 2, 3 – ламинарные и турбулентные тепловые режимы соответственно. На рисунках представлены зависимости теплового потока от угла на сфере. Приведены результаты нескольких расчетов: для разных характерных размеров ячеек, для схем первого и второго порядка аппроксимации конвективного члена. Коэффициент k определяется как отношение характерного размера ячейки к радиусу сферы.

Для валидационного расчета теплового потока на ребре цилиндра экспериментальные данные взяты из работы [9]. Расчет проводился в трехмерной постановке: трехмерная модель цилиндра помещена в набегающий сверхзвуковой поток. Параметры набегающего потока: давление – 12.46 МПа, темпе-

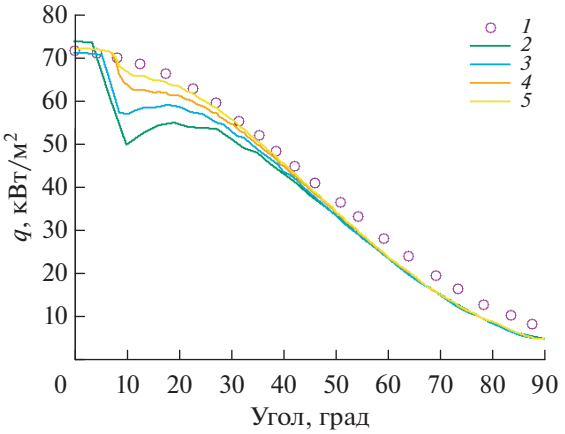

Рис. 2. Распределение ламинарного теплового потока на сфере радиусом 1 м в зависимости от характерного размера ячеек для первого и второго порядков аппроксимации конвективного члена в сравнении с данными [5] (*1*): *2* – первый порядок аппроксимации, $k = 0.07$; *3* – 0.05; *4* – 0.03; *5* – второй порядок, 0.03.

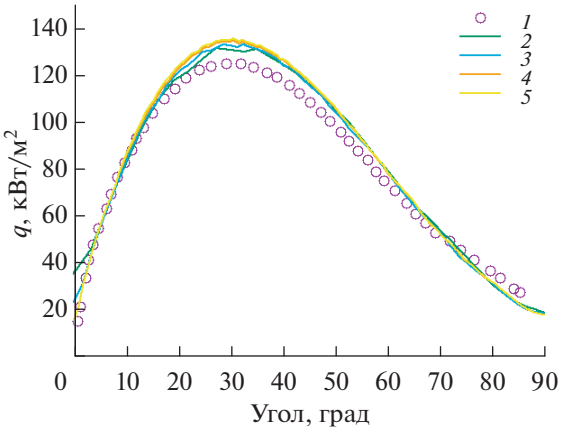

Рис. 3. Распределение турбулентного теплового потока на сфере радиусом 1 м в зависимости от характерного размера ячеек для первого и второго порядка аппроксимации конвективного члена в сравнении с данными [5] (*1*): *2* – первый порядок аппроксимации, $k = 0.07$; *3* – 0.05; *4* – 0.03; *5* – второй порядок, 0.03.

ратура – 1160 K, число Маха M – 10.5. Результаты расчетов для разных радиусов скругления приведены на рис. 4. Расчеты выполнены со вторым порядком аппроксимации конвективного члена с коэффициентом $k = 0.02$ (k – отношение характерного размера ячейки к радиусу цилиндра). Здесь q_l – ламинарный тепловой поток, $q_l^{(0)}$ – ламинарный тепловой поток в точке растекания, s – длина линии тока от точки растекания до заданной точки на поверхности цилиндра.

Для демонстрации устойчивости работы метода проведен расчет тела сложной геометрии, в которой присутствуют впадины, выщербины, выпуклости и т.п. Форма сложного метеороидного тела показана на рис. 5. Параметры внешнего набегающего потока: давление – 12.46 МПа, температура – 1160 K, число Маха – 10.5. Результаты расчета ламинарного и турбулентного тепловых потоков представлены на рис. 6. Количество ячеек в расчетной сетке – около 15×10^3, расчет проводился со вторым порядком аппроксимации конвективного члена по пространству, время расчета на одном ядре процессора Intel® Xeon® E5530 2.4 GHz составило примерно 2 мин.

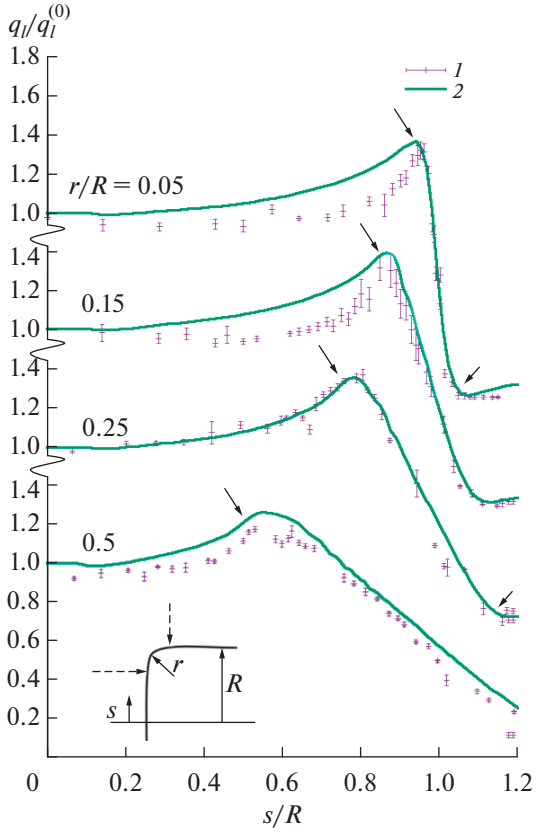

Рис. 4. Распределение ламинарных тепловых потоков по диску со скругленными угловыми точками при различных значениях соотношения r/R (числа у кривых): *1* – данные [9], *2* – результаты расчета; стрелки — начало и конец скругления.

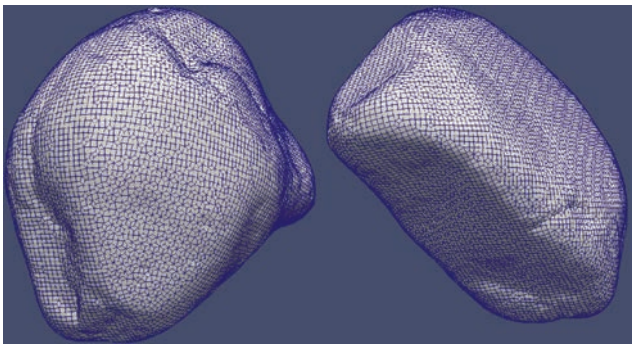

Рис. 5. Форма сложного метеороидного тела.

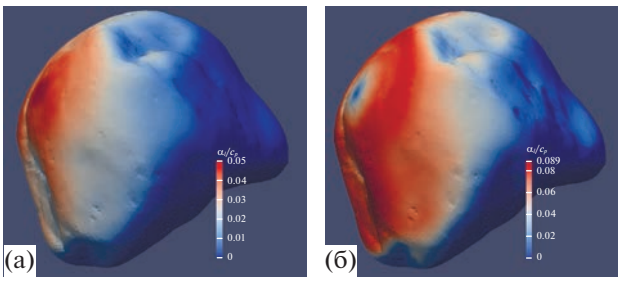

Рис. 6. Распределение ламинарного (а) и турбулентного (б) коэффициентов теплообмена по поверхности сложного метеороидного тела.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

На рис. 2 представлены результаты расчета ламинарного теплового потока на сфере в трехмерной постановке. Видно, что при уменьшении характерного размера ячеек качество решения в окрестности точки растекания улучшается. Качество решения также повышается при увеличении порядка аппроксимации конвективного члена $\mathrm{div}(z_i\mathbf{e})$ в уравнении (14), как видно на рис. 2, кривая *5*. Для интегрирования вдоль линии тока подобный эффект – улучшения качества решения при уменьшении размера расчетной сетки – подробно исследован в работе [5]. Надо только заметить, что и модифицированный метод эффективной длины имеет сходные свойства. Таким образом, можно сформулировать рекомендацию: для улучшения качества решения для ламинарного теплового потока необходимо повышать порядок аппроксимации конвективного члена в уравнении (14) и уменьшать размеры ячейки в окрестности критической точки.

На рис. 3 представлены результаты расчета турбулентного теплового потока на сфере в зависимости от характерного размера ячеек. Качество решения не сильно зависит от размера ячеек и порядка аппроксимации конвективного члена.

На рис. 4 показаны результаты расчета теплового потока для цилиндра с закругленными кром-

ками при различных радиусах скругления. Видно, что в окрестности точки растекания распределение теплового потока отклоняется от экспериментальных данных и довольно хорошо моделирует тепловой поток на кромках.

В целом можно сказать, что и на сфере, и на цилиндре со скругленными кромками можно оценивать тепловые потоки с точностью до 20% при значении коэффициента $k = 0.03$ и использовании второго порядка аппроксимации конвективного члена. Показано, что при уменьшении характерного размера ячеек (т.е. увеличении их числа и, соответственно, ресурсозатратности вычислений) можно повысить качество расчета ламинарного теплового потока в окрестности критической точки.

На рис. 5, 6 представлены результаты оценки тепловых нагрузок при аэродинамическом нагреве тела сложной формы, похожего на метеороидное тело. Рис. 5 показывает сложность геометрии: видны сложные складки, впадины и бугры. На рис. 6 представлено поле ламинарных и турбулентных тепловых потоков.

Необходимо отметить, что на наветренной стороне метеороидного тела, т.е. там, где может быть применен метод эффективной длины, выполняется расчет теплового потока. На уступах и впадинах, там, где метод эффективной длины непригоден для оценки теплового потока, проводится устойчивый расчет. Это свойство модифицированного метода эффективной длины является очень значимым на практике. Нет необходимости специально выделять области расчета, готовить геометрию тела для применения метода эффективной длины. Модифицированный метод эффективной длины дает оценку конвективных тепловых потоков на наветренной стороне и устойчиво работает в местах проблемной геометрии – с выбоинами, буграми и кавернами.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлен модифицированный метод эффективной длины. Отличительной особенностью метода является работоспособность для сложных геометрий обтекаемого тела. Входными данными для расчета являются поля внешнего невязкого обтекания, которые могут быть получены любым внешним решателем. Это обстоятельство является преимуществом при использовании расчетного кода в рамках вычислительных программных комплексов.

Продемонстрированы результаты валидационных расчетов в типовых геометриях, которые показали удовлетворительное совпадение с эталонными. Показано, что модифицированный метод эффективной длины позволяет оценить тепловые аэродинамические нагрузки на тела сложных форм за приемлемое время, с использованием ограниченных вычислительных ресурсов.

Показана устойчивая работа метода при расчете трехмерной сложной геометрии на примере метеороидного тела при наличии впадин и выступов. Данный результат позволяет не проводить подготовку геометрии тела для расчета (например, вручную исключать донную область или сглаживать выступы и выбоины). Модифицированный метод эффективной длины дает оценку тепловых потоков в частях тела со сложной геометрией – с выбоинами, буграми и кавернами.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Суржиков С.Т.* Радиационная газовая динамика спускаемых космических аппаратов больших размеров // ТВТ. 2010. Т. 48. № 6. С. 956.
2. *Минюшкин Д.Н., Крюков И.А.* Расчет прогрева и уноса теплозащитного материала в осесимметричной постановке // ТВТ. 2020. Т. 58. № 2. С. 244.
3. *Авдуевский В.С., Галицейский Б.М., Глебов Г.А. и др.* Основы теплопередачи в авиационной и ракетно-космической технике. Учеб. М.: Машиностроение, 1992. 528 с.
4. *Власов В.И., Горшков А.Б., Землянский Б.А. и др.* Численное моделирование теплообмена при входе в атмосферу Земли спускаемых аппаратов типа “Клипер” // Космонавтика и ракетостроение. 2007. № 1. С. 30.
5. *Журин С.В.* Методика численного моделирования конвективного теплообмена на телах сложной формы с использованием метода эффективной длины. Дис. ... канд. физ.-мат. наук. М.: МФТИ, 2009.
6. Конвективный теплообмен летательных аппаратов / Под ред. Землянского Б.А. М.: Физматлит, 2014.
7. *Дымарский Я.М.* Лекции по математическому анализу. Учеб. пособ. В 3-х ч. Ч. 3. М.: МФТИ, 2020. 69 с.
8. *Лунёв В.В.* Течение реальных газов с большими скоростями. М.: Физматлит, 2007. 760 с.
9. *Marvin J.G., Sinclair A.R.* Convective Heating in Regions of Large Favorable Pressure Gradient // AIAA J. 1967. V. 5. № 11. P. 1940.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 594–603

УДК 532.5

РЕЖИМЫ СТЕКАНИЯ ПЛЕНКИ ЖИДКОСТИ НА ВЕРТИКАЛЬНОМ ЦИЛИНДРЕ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ КОНТАКТНЫХ УГЛАХ СМАЧИВАНИЯ[1]

© 2023 г. А. Ю. Сахнов*, О. А. Володин, Н. И. Печеркин, А. Н. Павленко

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

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

Поступила в редакцию 11.09.2022 г.
После доработки 22.11.2022 г.
Принята к публикации 06.12.2022 г.

Представлены результаты трехмерного численного моделирования динамики стекания пленки смеси хладагентов 0.9 мол. доли R21 + R114. Рассматривалось стекание жидкости по внешней боковой поверхности круглого вертикального цилиндра при числе Рейнольдса 104 и значениях контактного угла смачивания 10°, 30°, 50°, 70°, 90°. Моделирование проводилось с применением метода объема жидкости (VOF) в пакете OpenFOAM. Получено, что угол смачивания оказывает значительное влияние на площадь смоченной поверхности вследствие смены режимов растекания жидкости по цилиндру. При этом выделены следующие режимы течения: сплошная пленка, устойчивый струйный режим, каскадный струйный режим и режим массивной струи. Эти режимы аналогичны режимам течения жидкости на горизонтальных трубах.

DOI: 10.31857/S0040364423030183

ВВЕДЕНИЕ

Стекающие пленки широко распространены в различных технических устройствах для интенсификации процессов тепломассообмена. Авторы статьи [1] выполнили обзор работ по теплообменным аппаратам в системах опреснения, где основную роль играют процессы тепломассообмена, связанные с характером стекания пленок. Авторы выделили три основных типа испарителей со стекающими пленками с горизонтальным или вертикальным расположением трубок и вертикальными пластинами. Отмечено, что преимуществами обладает тип испарителей с горизонтальными трубками. В соответствии с [2] определено шесть основных режимов стекания этиленгликоля по горизонтальным трубкам в диапазоне изменения значений пленочного числа Рейнольдса $Re = 2\Gamma/\mu = 1.3–64$ (где Γ – расход жидкости на единицу ширины пленки, кг/(м с); μ – динамическая вязкость, Н с/м^2). Во Введении формулы и обозначения из цитируемых работ приводятся без изменений. С ростом числа Рейнольдса режим стекания жидкости изменяется от капельного через различные струйные режимы и заканчивается сплошным режимом. В [3] показано, что противоток газовой фазы изменяет числа Рейнольдса, при которых реализуются перечисленные режимы стекания пленки. Ни в одной из данных работ не рассмотрена проблема зависимости режима стекания пленки жидкости от контактного угла смачивания.

Авторы [4] численно моделировали в пакете OpenFOAM стекание смеси воды и этиленгликоля по горизонтальным трубам в условиях полностью смачиваемой поверхности ($\theta = 0°$) при $Re = 15–210$. Получены детальные характеристики основных режимов обтекания, перечисленных выше, и подтверждено влияние числа Рейнольдса на переход от одного режима течения пленки к другому.

В [5] проведено моделирование стекающей пленки воды на горизонтальных трубах при $Re = 12$ и $\theta = 0°, 30°, 60°$ методом VOF. Для угла смачивания 10° смоделированы течения при числах Рейнольдса 12, 24 и 36 [5]. В [6] исследовано стекание раствора $LiBr–H_2O$ по горизонтальным трубам в более широких диапазонах числа Рейнольдса ($7 < Re < 53$) и угла смачивания ($0° < \theta < 120°$). В обеих работах показано, что с увеличением угла смачивания характер распространения пленки изменяется от струйного к капельному режиму при фиксированном числе Рейнольдса. Влияние Re на режим течения пленки коррелирует с результатами работы [2].

В [7, 8] выполнено моделирование методом VOF пленки жидкости, стекающей по наклонной пластине с гладкой или структурированной поверхностями. В обеих работах для классификации режима растекания пленки используется число Вебера $We = \rho V^2\delta/\sigma$, где ρ – плотность вещества, кг/м^3; σ – коэффициент поверхностного натя-

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

жения, Н/м; V – начальная скорость пленки, м/с; δ – начальная толщина пленки, м. На гладкой поверхности с $\theta = 70°$ при числах Вебера 0.03 [8] и 0.04 [7] реализуется капельный режим течения, при $We = 0.42$ [7], 0.8 [7, 8], 1.14 [7] – струйный режим, и при значениях этого комплекса 1.4 [8] и 1.44 [7] пленка жидкости равномерно покрывает всю рассматриваемую поверхность. Учитывая соотношение $We = Re\mu V/\sigma$ и фиксированный угол смачивания, результаты моделирования соответствуют выводам статьи [2] по влиянию числа Рейнольдса на режим течения жидкости на горизонтальных трубах. В [9] показано, что с уменьшением контактного угла смачивания увеличивается площадь межфазной поверхности.

В работе [10] численно исследовано влияние угла смачивания на характеристики ривулет при $\theta = 20°$, 23°, 24°, 34°, 60°, 100°. Авторы показали, что в зависимостях толщины и контурной линии ривулета от контактного угла есть минимум при $\theta = 60°$. Однако, поскольку случаи течения жидкости при $60° < \theta < 100°$ не исследованы, то в действительности минимумы этих характеристик могут находиться внутри указанного диапазона углов смачивания. Площадь межфазной поверхности убывает с ростом угла смачивания, включая сольвофобный ($\theta > 90°$) случай стекания жидкости.

Авторы [11] изучили влияние контактного угла и свойств жидкости на течение в пленке и ривулетах на наклонной пластине с применением метода VOF. Предложена обобщающая зависимость площади межфазной поверхности от числа Капицы. С ее помощью исследователи успешно обобщили данные по углам смачивания от 20° до 80° и значениям числа Капицы 26, 783.

В [12] исследователи моделировали стекание пленки раствора глицерина (50, 80%) в воде по вертикальной плоскости в отсутствие боковых стенок при $Re = V_0\delta/\nu = 1.2–101$ (где V_0 – начальная скорость, м/с) и $\theta = 40°–160°$. Авторы показали каскадный характер возникновения ривулет в таких условиях. Ввиду отсутствия боковых стенок первые ривулеты появляются на левой и правой границах стекающей пленки. Если ширина пленки достаточно большая, то при дальнейшем ее стекании возникают вторая и третья пары ривулет, расположенные на одинаковом расстоянии от первой пары ривулет. Для течения пленки 80%-ного раствора глицерина при $Re = 2.92$ показано, что увеличение угла смачивания не влияет на каскадный характер образования ривулет и их количество, однако увеличивает длину ривулет.

В [13] проведено численное исследование стекания жидкого кислорода и воды в структурированных насадках при $\theta = 0.1°$, 5°, 10°, 30°, 70° и $We = 4\rho V^2\delta/\sigma = 0.29–9.98$. Авторы отмечают, что при одном и том же угле смачивания ($\theta = 10°$) и близких числах Вебера для воды 1.59 и жидкого кислорода 1.83 вторая жидкость лучше смачивает поверхность насадки. Это свидетельствует о том, что число Вебера вместе с контактным углом смачивания не могут однозначно определять режим течения пленки по поверхности.

В [14] экспериментально и численно исследовано стекание пленок глицерина и силиконового масла по внешней поверхности вертикального цилиндра. Радиус цилиндра варьировался от 0.159 до 3.81 см. К сожалению, авторы не указали значение угла смачивания. При течении глицерина сплошная пленка практически не возникала, а формировались так называемые “пальцы”. В случае течения силиконового масла изначально сохранялась сплошная пленка с последующим формированием “пальцев”. При этом пальцы глицерина имели более четкие очертания, и их скорость была выше скорости пальцев силиконового масла. В свою очередь скорость фронта силиконового масла в межпальцевом пространстве была наименьшей во всем течении.

Проведенный обзор литературы показал, что, несмотря на достаточно значительное количество работ по пленкам жидкости (воды, глицерина, силиконового масла, жидкого кислорода и этиленгликоля), стекающим по боковой поверхности цилиндра, большинство исследований ограничено относительно малыми значениями числа Рейнольдса или двумя–тремя значениями угла смачивания. В таких условиях достаточно сложно выявить характерные режимы стекания пленки жидкости и описать их основные свойства. По этой причине выполнено данное системное исследование влияния контактного угла смачивания на поведение стекающей пленки смеси хладагентов R21 (мол. доля – 0.9) и R114. Данные хладагенты обладают малым поверхностным натяжением наряду с высокой смачиваемостью и малой вязкостью, что делает их удобными для экспериментального моделирования процессов теплообмена для широкого класса жидкостей, используемых в промышленности (смеси озонобезопасных хладонов, криогенные жидкости). В будущем планируется сопоставить экспериментальные данные с результатами численного моделирования.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ И ОПИСАНИЕ МОДЕЛИРОВАНИЯ

В данной работе исследовано влияние контактного угла смачивания при числе Рейнольдса 104 на характеристики растекания пленки смеси фреонов вдоль гладкого вертикального цилиндра в изотермических условиях. Результаты получены на основе трехмерного численного моделирования двухфазного течения. Основной интерес в данных условиях представляют режимы течения пленки, которые определяют площадь смоченной поверхности и интенсивность смачивания.

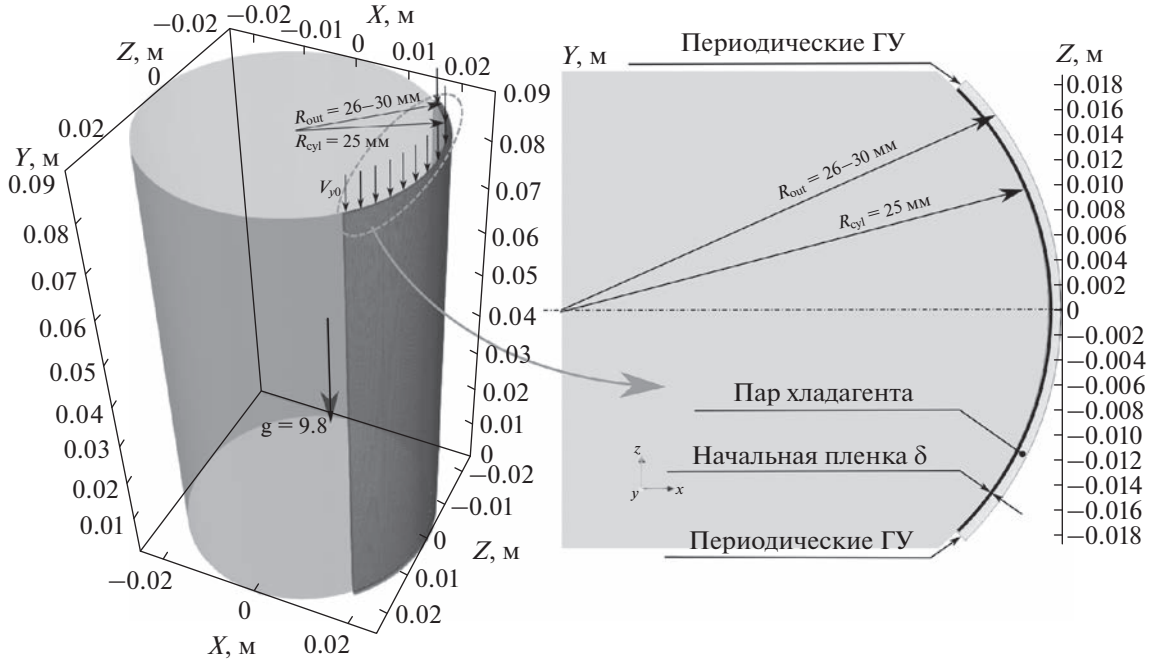

Рис. 1. Схема течения.

Рассматривалось стекание пленки смеси хладагентов R21 (мол. доля – 0.9) и R114 по четверти круглого вертикального цилиндра радиусом 25 мм и высотой 90 мм (рис. 1). Расчетный объем ограничивался мнимым цилиндром радиусом 26–30 мм в зависимости от угла смачивания. На верхней горизонтальной плоскости задавалась область с начальной толщиной пленки жидкости $\delta = 0.25$ мм и начальной скоростью $V_0 = -0.1$ м/с. С учетом свойств данной смеси фреонов (таблица) число Рейнольдса $\mathrm{Re} = \Gamma/\nu = V_0\delta/\nu$ составляет 104, а число Вебера ($\mathrm{We} = \rho V_0^2\delta/\sigma$) равно 0.2 (где ν – кинематическая вязкость, м^2/с). Число Капицы $\mathrm{Ka} = \sigma_l\left(\rho_l/\mu_l^4 g\right)^{1/3}$ для всех случаев течения составило 3801. Безразмерный радиус цилиндра $\hat{R} = 36.9$, вычисленный по формуле $\hat{R} = R_l \times (\rho_g/\sigma\delta)^{1/3}$ [15], существенно выше критических значений, при которых кривизна цилиндра может оказывать какое-либо влияние на характеристики пленки. Здесь и далее $g = 9.8$ м/с^2 – константа ускорения свободного падения на Земле; c_v – удельная теплоемкость при постоянном объеме; Pr – число Прандтля; σ_l – коэффициент поверхностного натяжения жидкой фазы, Н/м; ρ_l – плотность жидкой фазы, кг/м^3; μ_l – динамическая вязкость жидкой фазы, Па с.

Моделирование проводилось с применением метода объема жидкости (VOF) [16] в пакете OpenFOAM. Использовалось приложение «interFoam», включающее уравнения сохранения массы, импульса и переноса объема жидкости

$$\frac{\partial\rho}{\partial t} + \nabla\cdot(\rho\mathbf{U}) = 0,$$

$$\frac{\partial\rho\mathbf{U}}{\partial t} + \nabla\cdot(\rho\mathbf{U}\mathbf{U}) - \nabla\cdot(\mu\nabla\mathbf{U}) = \sigma\kappa\nabla\alpha - g\mathbf{X}\nabla\rho - \nabla P_d,$$

где $\mathbf{U}$ – вектор скорости, κ – кривизна межфазной поверхности, P_d – динамическое давление, $\mathbf{X}$ – радиус-вектор;

$$\frac{\partial\alpha}{\partial t} + \mathbf{U}\cdot\nabla\alpha + \nabla\cdot\mathbf{U}_c\alpha(1-\alpha) = 0,$$

где α – объемная доля жидкости. Значение $\alpha = 1$ соответствует ячейкам сетки, полностью запол-

Свойства смеси фреонов R21 (мол. доля – 0.9) и R114 при $P = 0.2$ МПа и $T = 24.94$°C

	Молярный вес, кг/(кг моль)	ρ, кг/м^3	μ, кг/(м с)	σ, Н/м	c_v, Дж/(кг К)	Pr
Жидкая фаза	109.72	1379.19	3.32×10^{-4}	1.68×10^{-2}	718	3.4

ненным жидкостью; при $\alpha = 0$ в ячейке находится только газовая фаза, и промежуточные значения этого коэффициента указывают на наличие межфазной поверхности внутри ячейки.

Связь скорости и давления устанавливалась посредством алгоритма PISO (pressure implicit with splitting of operators). Рассматривался ламинарный режим для обеих фаз, плотность жидкости задавалась постоянной.

Следующие условия заданы на границах расчетного объема:

– начальная пленка жидкости

$$y = 0.09: \quad \mathbf{U} = (0; V_{y0}; 0), \quad \alpha = 1, \quad dP/dn = 0;$$

– поверхность обтекаемого цилиндра

$$x^2 + z^2 = R_{\text{cyl}}^2: \quad \mathbf{U} = (0;0;0),$$
$$\alpha = 0, \quad \theta = \text{const}, \quad dP/dn = 0;$$

– свободная граница моделируемого объема

$$x^2 + z^2 = R_{\text{out}}^2 \text{ и } y = 0:$$
$$\mathbf{U} = (0;0;0) \text{ или } \partial\mathbf{U}/dn = 0,$$
$$\alpha = 0, \quad P = 2\times10^5 \text{ Па}.$$

В начальный момент времени $t = 0$ расчетный объем имел следующие параметры: $\mathbf{U} = (-0.005, 0, 0)$, $\alpha = 0$, $P = 2 \times 10^5$ Па.

Для выполнения расчета при значениях контактного угла смачивания 10° и 30° создана гексаэдральная сетка с количеством ячеек 20 × 500 × 400 ($x \times y \times z$). Применено сжатие сетки к поверхности обтекаемого цилиндра (рис. 2а). Для моделирования течений пленки при углах смачивания 50°, 70° и 90° требовалось увеличение расчетного объема и, как следствие, количества ячеек до 40 × 500 × 400 ($x \times y \times z$) (рис. 2б). Шаг по времени не превышал значения $\Delta t = 2 \times 10^{-5}$ с. Расчетная сетка имела следующие показатели: максимальное соотношение сторон ячейки – 8.83, минимальный объем ячейки – 3.68×10^{-13} м^3, максимальный объем ячейки – 2.92×10^{-12} м^3, максимальная неортогональность сетки – 3.91×10^{-6}, средняя неортогональность сетки – 0, максимальная асимметрия – 0.0048.

На рис. 3 приведены результаты теста на сеточную сходимость. Проведено моделирование стекающей смеси фреонов по вертикальному цилиндру при $\theta = 30°$ и Re = 104 с применением двух сеток: вышеописанной 20 × 500 × 400 и с меньшим количеством ячеек 13 × 400 × 300. Зависимости площади смоченной поверхности цилиндра от времени для обеих сеток показали хорошее совпадение между собой. Можно сказать, что дальнейшее увеличение сетки не требуется и сетка 20 × 500 × 400 может быть использована для дальнейших расчетов. Сетка 40 × 500 × 400 имеет

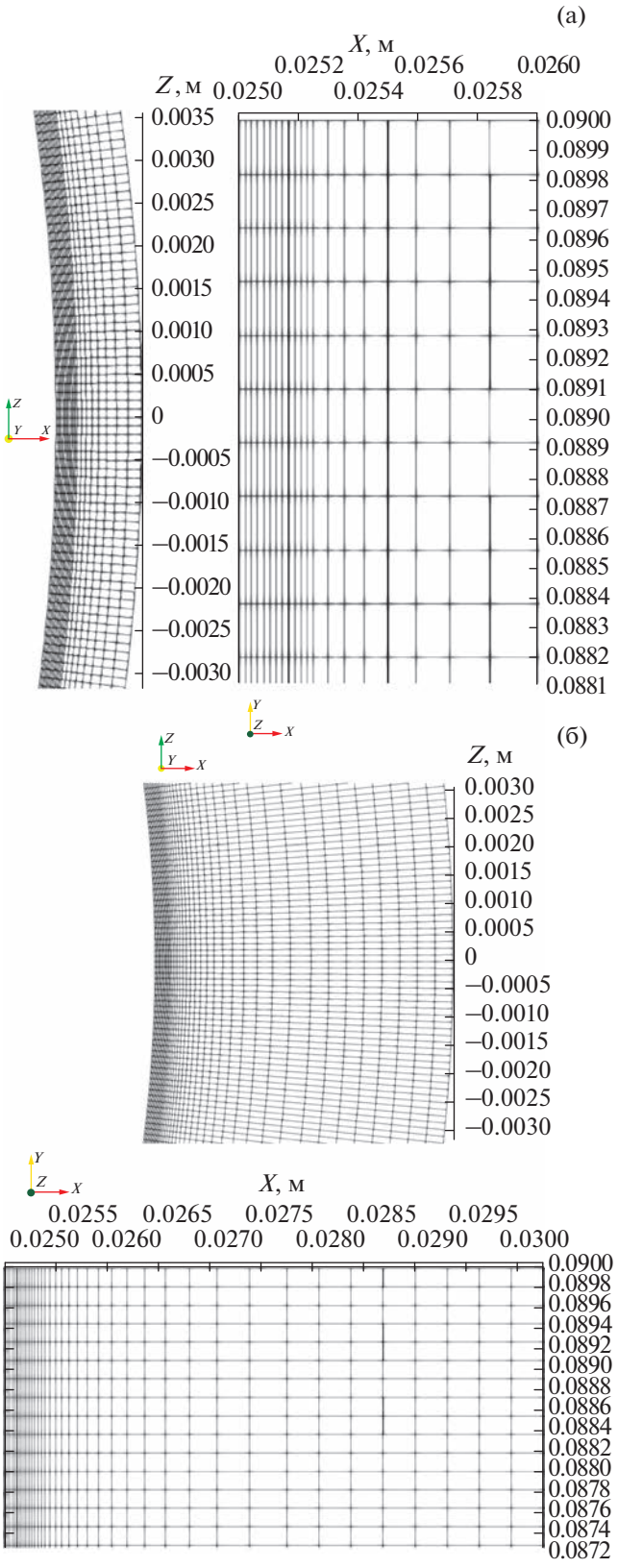

Рис. 2. Участки расчетной сетки в плоскости *ZX* (а) и в плоскости *XY* (б): (а) – для углов $\theta = 10°, 30°$; (б) – $\theta = 50°, 70°, 90°$.

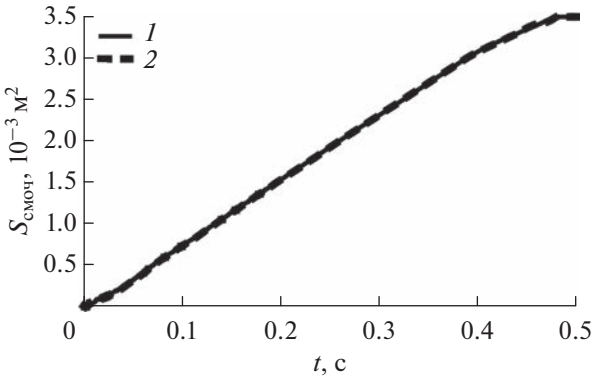

Рис. 3. Результаты теста на сеточную сходимость; сравнение площади смачивания для течения пленки жидкости при Re = 104 и θ = 30° для двух сеток: *1* – 20 × 500 × 400, *2* – 13 × 400 × 300.

большее количество ячеек по координате x преимущественно за счет увеличения расчетного объема (рис. 2).

РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 4 представлена картина стекания смеси фреонов по вертикальному цилиндру при угле смачивания 10°. Здесь и далее представлены изоповерхности при α = 0.5. Отсчет времени ведется от момента появления жидкости на верхней границе цилиндра, что соответствует началу расчета. Незначительная неравномерность на фронте смачивания появляется при t = 0.37 с. Далее фронт смачивания развивается в слегка волнистую линию (t = 0.40 с) и в таком виде достигает нижней границы цилиндра при t = 0.45 с. Таким образом, в вышеуказанных условиях жидкость натекает на поверхность цилиндра сплошной пленкой с почти ровным фронтом смачивания со средней скоростью 0.2 м/с, что в два раза больше начальной скорости жидкости.

На рис. 5 показана эволюция течения пленки смеси фреонов по вертикальному цилиндру при угле смачивания 30°. Жидкость натекает на цилиндр сплошной пленкой до t = 0.22 с. В этот момент времени во фронте смачивания появляются некоторые неравномерности, которые в отличие от течения с меньшим углом смачивания (рис. 4) развиваются в струи ниже сплошной пленки жидкости. При указанных Re и θ жидкость формирует прямые струи с острой формой фронта смачивания. Эти струи стабильны от момента появления и до достижения сплошной пленкой жидкости нижней границы цилиндра. Средняя скорость натекания сплошной пленки жидкости меньше, чем при θ = 10°, и составляет 0.187 м/с. Подходы к решению проблемы неустойчивости фронта смачивания рассмотрены в работе [17] для жидких пленок, стекающих по вертикальному пористому цилиндру.

На рис. 6 показана картина стекания пленки смеси фреонов по поверхности вертикального цилиндра при θ = 50°. По сравнению с углом смачивания 30° неравномерности фронта смачивания сплошной пленки возникают несколько раньше (t = 0.20 с) и на меньшем расстоянии от верхней границы цилиндра. Эти неравномерности также

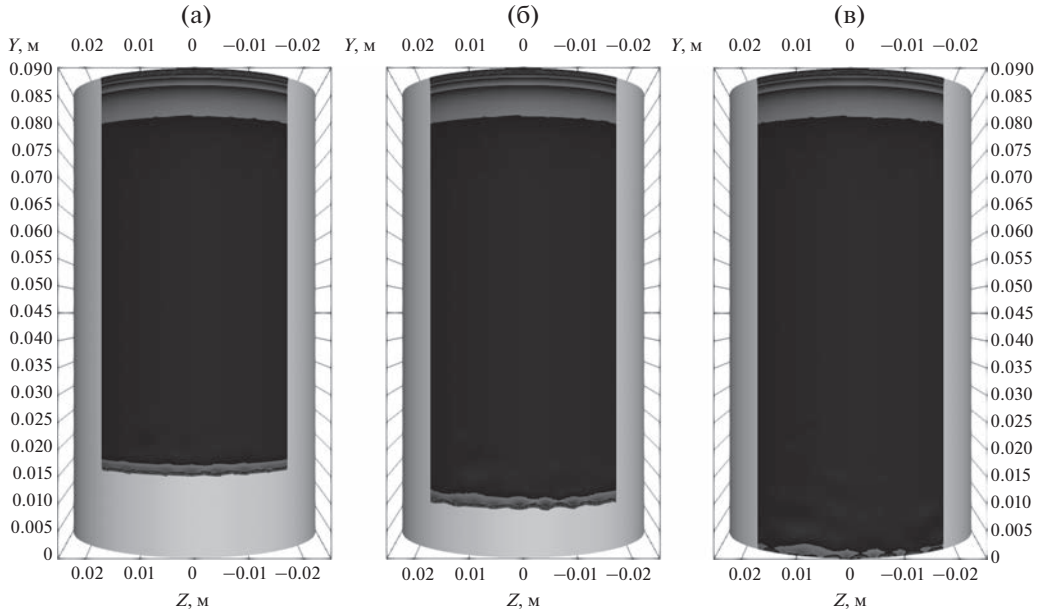

Рис. 4. Картины стекания пленки смеси фреонов (α = 0.5) по вертикальному цилиндру при θ = 10° в разные моменты времени: (а) – t = 0.37 с, $\bar{t}$ = 148; (б) – 0.40, 160; (в) – 0.45, 180.

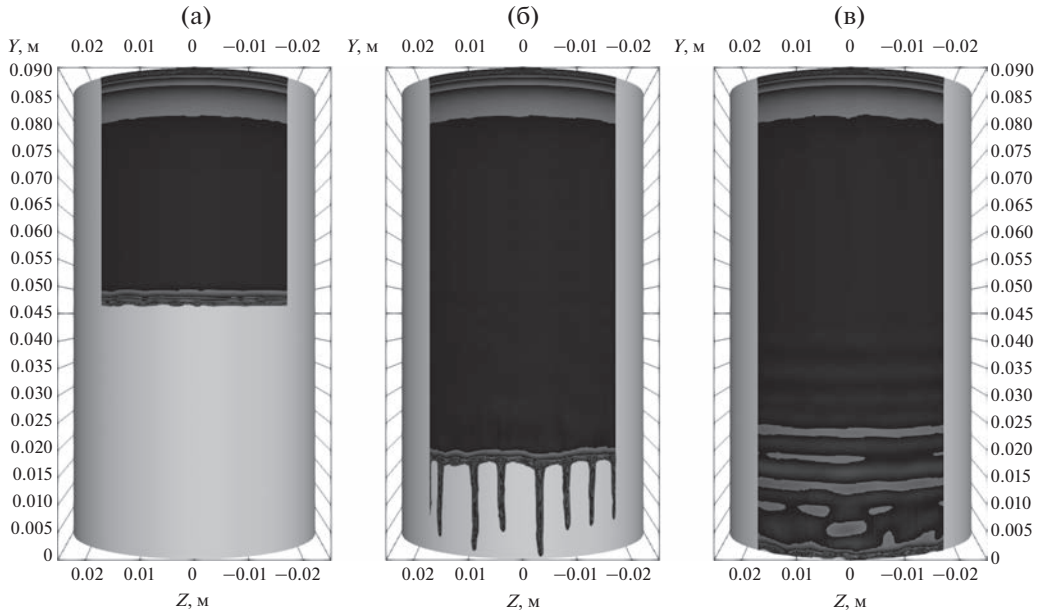

Рис. 5. Картины стекания пленки смеси фреонов ($\alpha = 0.5$) по вертикальному цилиндру при $\theta = 30°$ в разные моменты времени: (а) – $t = 0.22$ с, $\overline{t} = 88$; (б) – 0.382, 152.8; (в) – 0.48, 192.

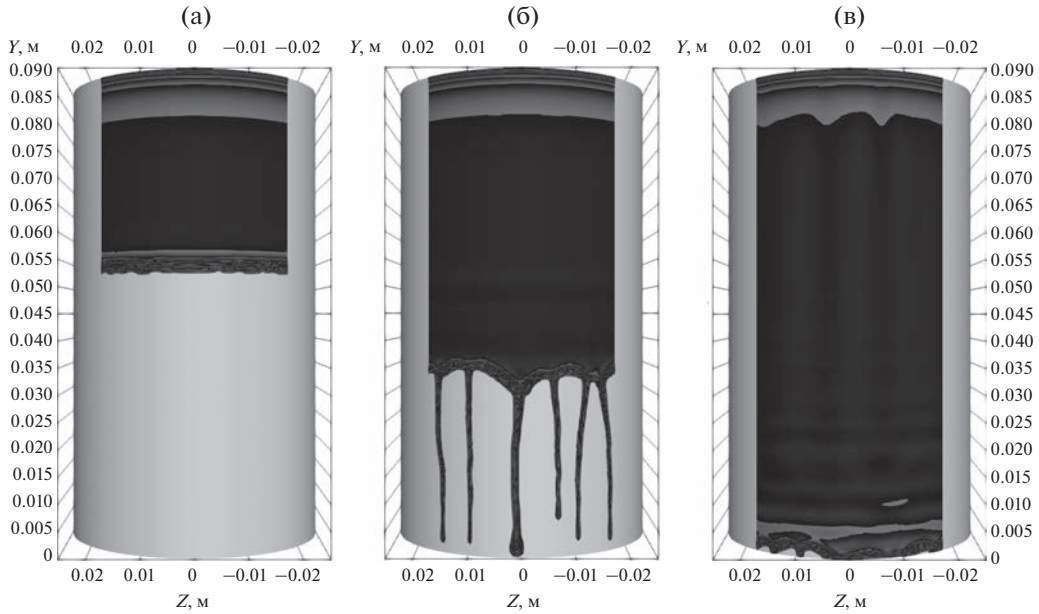

Рис. 6. Картины стекания пленки смеси фреонов ($\alpha = 0.5$) по вертикальному цилиндру при $\theta = 50°$ в разные моменты времени: (а) – $t = 0.20$ с, $\overline{t} = 80$; (б) – 0.347, 138.8; (в) – 0.64, 256.

дают начало струям, вытекающим из сплошной пленки жидкости. Данные струи несколько искривляются по мере движения к нижней границе цилиндра, однако остаются стабильными вплоть до достижения сплошной пленкой жидкости нижней границы цилиндра. Фронт смачивания струи имеет каплевидную, закругленную форму, а одна из струй больше остальных ($t = 0.347$ с).

На рис. 7 представлены изображения стекающей пленки смеси фреонов по поверхности вертикального цилиндра при $\theta = 70°$. При этом угле смачивания продолжает уменьшаться время существования прямого плоского фронта смачивания: первые неравномерности возникают при $t = 0.19$ с на расстоянии около 33 мм от верхней границы цилиндра. Струи жидкости, возникаю-

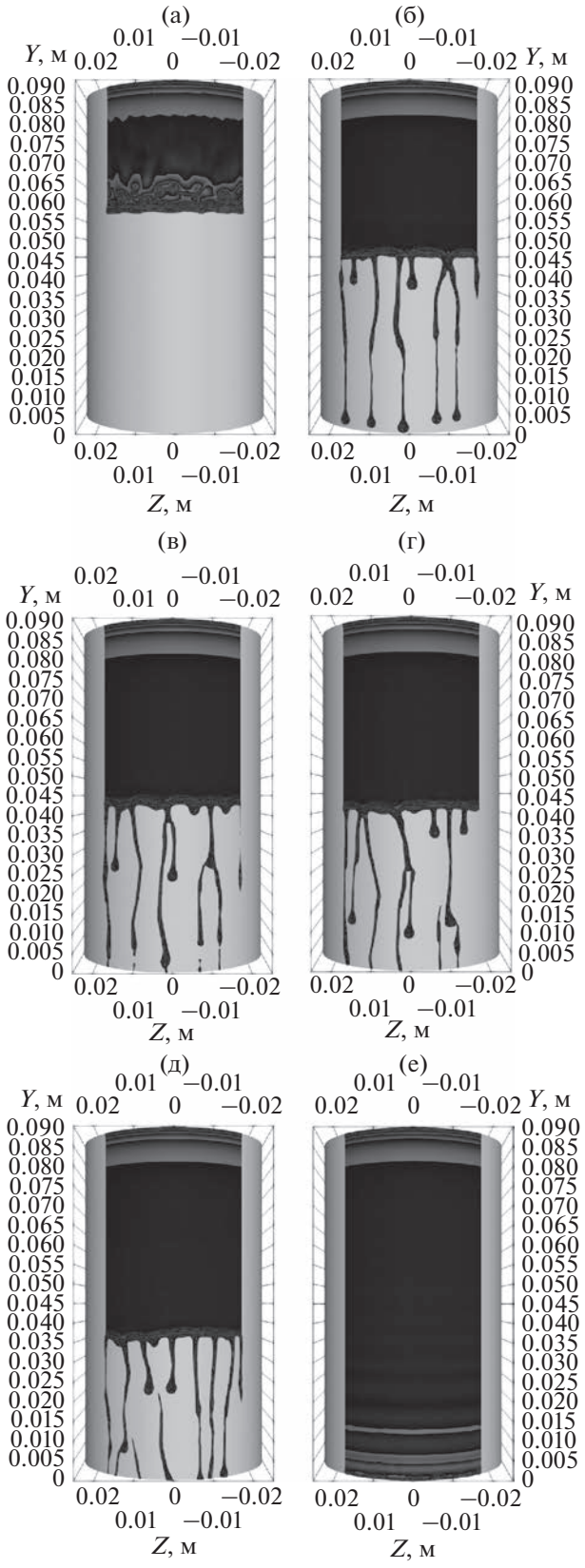

Рис. 7. Картины стекания пленки смеси фреонов ($\alpha = 0.5$) по вертикальному цилиндру при $\theta = 70°$ в разные моменты времени: (а) – $t = 0.19$ с, $\bar{t} = 76$; (б) – 0.335, 134; (в) – 0.37, 148; (г) – 0.4, 160; (д) – 0.48, 192; (е) – 1.14, 456.

щие ниже сплошной пленки, сохраняют каплевидную форму фронта смачивания. При этом увеличивается искривление струй, приводящее к их рекомбинации между собой: распаду и объединению. Более того, с течением времени на фронте смачивания сплошной пленки возникают новые струи в промежутках между уже существующими, т.е. можно говорить о каскадном характере стекания струй. В момент времени $t = 0.335$ с возникает вторая генерация струй, а первое поколение достигло нижней границы цилиндра. При $t = 0.37$ с появляется третье поколение струй и такое поведение жидкости сохраняется вплоть до полного покрытия цилиндра сплошной пленкой. Также некоторые струи способны отрываться от остальной жидкости ($t = 0.48$ с, $z \approx 0$) и самостоятельно стекать вдоль цилиндра. Сравнивая моменты времени $t = 0.37$, 0.40 с, можно заметить, что истоки некоторых струй перемещаются справа налево по фронту смачивания сплошной пленки. Средняя скорость стекания сплошной пленки при $\theta = 70°$ составляет 0.079 м/с.

На рис. 8 приведены картины стекания пленки смеси фреонов по вертикальному цилиндру при $\theta = 90°$. Неравномерности фронта смачивания возникают при том же времени $t = 0.19$ с, что и для угла смачивания 70°, но на меньшем расстоянии от верхней границы цилиндра, равном 28 мм. При $t = 0.25$ с существуют упорядоченные короткие каплевидные струи, которые через 0.11 с практически достигают нижней границы цилиндра, принимая сильно искривленную форму. При этом уже формируется второе поколение струй на фронте смачивания сплошной пленки, т.е. также реализуется каскадный сценарий натекания жидкости на цилиндр. Истоки струй перемещаются по фронту смачивания, что приводит к их рекомбинации и появлению более крупной струи при $t = 0.5$ с. Очевидно, что данная струя аккумулирует большой объем жидкости из вышерасположенной сплошной пленки. Это приводит к утончению остальных струй с частичным разрушением на отдельные капли жидкости. Также можно отметить, что при $t = 0.73$, 1.26 с фронт смачивания сплошной пленки практически не опускается ниже середины рассматриваемого цилиндра. Аналогичная картина течения с крупной струей возникает при стекании пленки азота по нагретой поверхности [18, 19]. Сформировавшаяся более крупная струя смещается от центра влево. Очевидно, что средняя скорость смачивания всей поверхности цилиндра при угле смачивания 90° стремится к нулю. В целом можно сказать, что при данном угле смачивания стекание жидкости по цилиндру проходит последовательно через описанные выше режимы течений при всех рассмотренных углах смачивания. При Re = 104 можно выделить следующие режимы стекания пленки по мере увеличения угла смачивания: сплошная

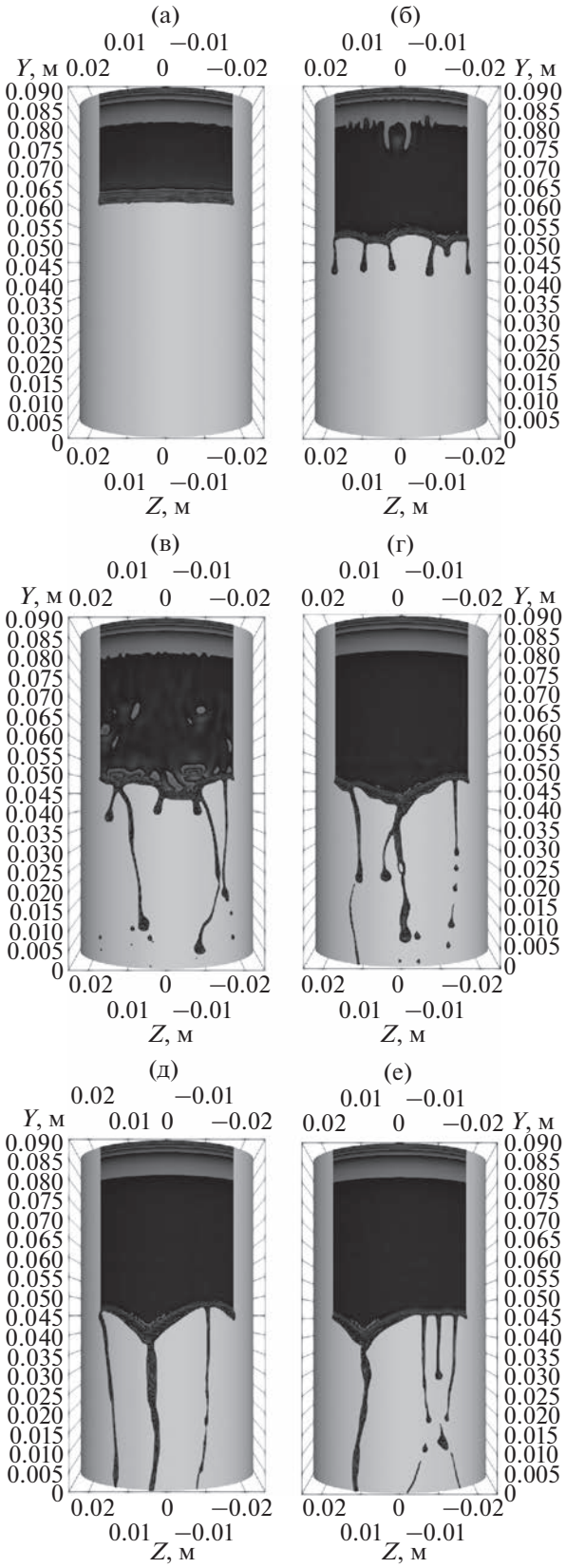

Рис. 8. Картины стекания пленки смеси фреонов ($\alpha = 0.5$) по вертикальному цилиндру при $\theta = 90°$ в разные моменты времени: (а) – $t = 0.19$ с, $\bar{t} = 76$; (б) – 0.25, 100; (в) – 0.36, 144; (г) – 0.5, 200; (д) – 0.73, 292; (е) – 1.26, 504.

пленка, стабильные струи с различным искривлением, каскадные рекомбинируещиеся струи и неполное смачивание с массивной струей.

На рис. 9 приведены зависимости площади смоченной поверхности цилиндра от времени в размерных (а) и безразмерных координатах (б) при всех углах смачивания, рассмотренных в статье. Безразмерная площадь определялась как отношение площади смоченной поверхности к четверти площади боковой поверхности цилиндра. Безразмерное время получено по начальной скорости и толщине пленки $\bar{t} = t\,|\,V_0\,|\,/\delta$. Смоченная поверхность учитывает все области контакта жидкости и поверхности цилиндра, включая капли и различные струи.

Смачивание поверхности цилиндра сплошной пленкой жидкости при $\theta = 10°$ (линия *1*) в зависимости от времени происходит строго линейно. Появление прямых струй с острым фронтом смачивания ввиду увеличения контактного угла (линия *2*) приводит к незначительному отклонению от строго линейной зависимости, когда 90% поверхности цилиндра уже смочено. Увеличение угла смачивания приводит к уменьшению угла на-

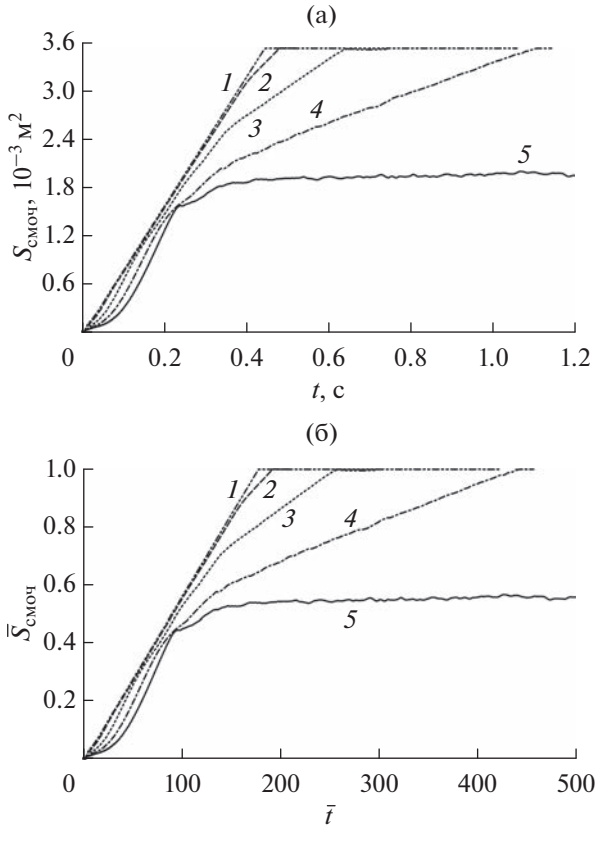

Рис. 9. Размерная (а) и безразмерная (б) площади смоченной поверхности при стекании смеси фреонов по вертикальному цилиндру: *1* – $\theta = 10°$, *2* – 30°, *3* – 50°, *4* – 70°, *5* – 90°.

клона зависимостей *3* и *4* при $t > 0.4$ с. Это указывает на замедление процесса смачивания. Если при $\theta = 10°$ скорость смачивания составляет 0.2 м/с, то при углах смачивания 50° и 70° возникновение струй при $t > 0.4$ с приводит к снижению скорости смачивания поверхности до 0.089 и 0.049 м/с соответственно. Увеличение угла смачивания до 90° приводит к прекращению дальнейшего смачивания поверхности цилиндра (линия *5*). Максимальная достигнутая площадь смоченной поверхности составляет около 55% (линия *5*, рис. 9б).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С применением метода VOF проведено трехмерное численное моделирование стекания пленок смеси фреонов R21 (мол. доля – 0.9) и R114 на вертикальном цилиндре в изотермических условиях при углах смачивания от 10° до 90° с шагом 20° и числе Рейнольдса 104. Получены следующие результаты.

– Во всех рассмотренных случаях на начальном этапе жидкость стекает по цилиндру в виде сплошной пленки, что соответствует заданному условию на верхней границе расчетного объема. Через $t = 0.19–0.23$ с на фронте смачивания появляются каплевидные неравномерности. Дальнейшая эволюция течения определяется углом смачивания. Исключение составляет случай с $\theta = 10°$, когда эти неравномерности появляются позже, при $t = 0.37$ с, и вместе со сплошной пленкой достигают нижней границы цилиндра.

– Увеличение угла смачивания приводит к появлению струй из неравномерностей на фронте смачивания. При угле смачивания 30° струи имеют острый фронт смачивания. При $50° \le \theta \le 90°$ фронт смачивания струй всегда имеет каплевидную форму.

– При Re = 104 с увеличением угла смачивания режимы течения сменяются в следующем порядке: сплошная пленка, устойчивый струйный режим, каскадный струйный режим и режим массивной струи. Устойчивый струйный режим характеризуется прямыми или слабо искривленными струями, истоки которых сохраняют свое положение на фронте смачивания сплошной пленки. В каскадном режиме струи периодически возникают на фронте смачивания сплошной пленки между истоками струй предыдущих генераций. При этом струи могут рекомбинировать между собой, а их истоки перемещаются по фронту смачивания сплошной пленки. При Re = 104 и $\theta = 90°$ течение проходит все перечисленные режимы и формируется массивная струя, аккумулирующая до 75% жидкости из расположенной выше сплошной пленки. Это приводит к остановке фронта смачивания сплошной пленки на середине цилиндра.

В целом угол смачивания оказывает ключевое влияние на площадь смоченной поверхности вследствие смены режимов стекания жидкости по вертикальному цилиндру. Режимы течения жидкости на вертикальном цилиндре подобны режимам течения на горизонтальных трубах [2].

Исследование свойств смеси хладагентов выполнено в рамках госзадания ИТ СО РАН, численное исследование стекания жидкости финансово поддержано мегагрантом Министерства науки и высшего образования РФ (номер соглашения 075-15-2021-575).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Dai Z., Zhang Y., Wang S., Nawaz K., Jacobi A.* Falling-film Heat Exchangers Used in Desalination Systems: A Review // Int. J. Heat Mass Transfer. 2022. V. 185. 122407.
2. *Hu X., Jacobi A.M.* The Intertube Falling Film: Part 1. Flow Characteristics, Mode Transitions, and Hysteresis // Trans. ASME: J. Heat Transfer. 1996. V. 118. P. 616.
3. *Li M., Lu Y., Zhang S., Xiao Y.* A Numerical Study of Effects of Counter-current Gas Flow Rate on Local Hydrodynamic Characteristics of Falling Films over Horizontal Tubes // Desalination. 2016. V. 383. P. 68.
4. *Karmakar A., Acharya S.* Numerical Simulation of Falling Film Flow Hydrodynamics over Round Horizontal Tubes // Int. J. Heat Mass Transfer. 2021. V. 173. 121175.
5. *Ramadan Z., Park C.W.* Hydrodynamic Behavior of Liquid Falling Film over Horizontal Tubes: Effect of Hydrophilic Circular Surface on Liquid Film Thickness and Heat Transfer // Case Studies in Thermal Engineering. 2021. V. 24. 10082.
6. *De Arroiabe P.F., Martinez-Urrutia A., Peña X., Martinez-Agirre M., Mounir Bou-Ali M.* Influence of the Contact Angle on the Wettability of Horizontal-Tube Falling Films in the Droplet and Jet Flow Modes // Int. J. Refrigeration. 2018. V. 90. P. 12.
7. *Iso Y., Chen X.* Flow Transition Behavior of the Wetting Flow between the Film Flow and Rivulet Flow on an Inclined Wall // J. Fluids Eng. 2011. V. 133. 091101.
8. *Sebastia-Saez D., Gu S., Ranganathan P., Papadikis K.* 3D Modeling of Hydrodynamics and Physical Mass Transfer Characteristics of Liquid Film Flows in Structured Packing Elements // Int. J. Greenhouse Gas Control. 2013. V. 19. P. 492.
9. *Sebastia-Saez D., Gu S., Ranganathan P., Papadikis K.* Meso-scale CFD Study of the Pressure Drop, Liquid Hold-Up, Interfacial Area and Mass Transfer in Structured Packing Materials // Int. J. Greenhouse Gas Control. 2015. V. 42. P. 388.
10. *Sebastia-Saez D., Gu S., Ramaioli M.* Effect of the Contact Angle on the Morphology, Residence Time Distribution and Mass Transfer into Liquid Rivulets: A CFD Study // Chem. Eng. Sci. 2018. V. 176. P. 356.
11. *Singh R.K., Galvin J.E., Sun X.* Three-dimensional Simulation of Rivulet and Film Flows over an Inclined Plate: Effects of Solvent Properties and Contact Angle // Chem. Eng. Sci. 2016. V. 142. P. 24.

12. *Lavalle G., Sebilleau J., Legendre D.* Rivulet Cascade from Falling Liquid Films with Side Contact Lines // Phys. Rev. Fluids. 2020. V. 5. 124001.

13. *Gu C., Zhang R., Zhi X., Zhu S., Qiu L.* Numerical Investigation on the Flow Characteristics of Liquid Oxygen and Water in the Structured Packing // Cryogenics. 2020. V. 110. 103140.

14. *Smolka L.B., SeGall M.* Fingering Instability Down the Outside of a Vertical Cylinder // Phys. Fluids. 2011. V. 23. 092103.

15. *Mayo L.C., McCue S.W., Moroney T.J.* Gravity-driven Fingering Simulations for a Thin Liquid Film Flowing Down the Outside of a Vertical Cylinder // Phys. Rev. E. 2013. V. 87. 053018.

16. *Hirt C.W., Nichols B.D.* Volume of Fluid (VOF) Method for the Dynamics of Free Boundaries // J. Comput. Phys. 1981. V. 39. № 1. P. 201.

17. *Ding Z., Wong T.N., Liu R., Liu Q.* Viscous Liquid Films on a Porous Vertical Cylinder: Dynamics and Stability // Phys. Fluids. 2013. V. 25. 064101.

18. *Стародубцева И.П., Павленко А.Н., Володин О.А., Суртаев А.С.* Особенности динамики повторного смачивания перегретой поверхности стекающей пленкой криогенной жидкости // Теплофизика и аэромеханика. 2012. Т. 19. № 3. С. 347.

19. *Павленко А.Н., Суртаев А.С., Цой А.Н., Стародубцева И.П., Сердюков В.С.* Динамика повторного смачивания перегретой поверхности стекающей пленкой жидкости // ТВТ. 2014. Т. 52. № 6. С. 886.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 604–610

УДК 32.62; 536.4

ИНТЕНСИФИКАЦИЯ ТЕПЛООБМЕНА И ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ СТРУЙ НА ПОВЕРХНОСТИ НАГРЕВАЕМОЙ ПЛЕНКИ ЖИДКОСТИ[1]

© 2023 г. Е. А. Чиннов*

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

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

Поступила в редакцию 03.09.2022 г.
После доработки 12.10.2022 г.
Принята к публикации 13.10.2022 г.

Выполнено исследование течения пленки воды вдоль вертикального нагревателя при числах Рейнольдса 33, 50 и 105 и начальных температурах T_0 = 15, 23, 30 и 40°C. Показано, что амплитуды зигзагообразного движения струй возрастают с увеличением плотности теплового потока. Наиболее интенсивный рост амплитуд наблюдается при развитии термокапиллярной неустойчивости в верхней части нагревателя. При высоких тепловых потоках, когда амплитуда зигзагообразного перемещения достигает достаточно большой величины, начинается процесс взаимодействия струй. Выделены несколько типов взаимодействия струй на поверхности нагреваемой пленки жидкости. Показано, что появление термокапиллярной структуры в верхней части нагревателя приводит к перемещению струй и повышению интенсивности теплообмена.

DOI: 10.31857/S0040364423030055

ВВЕДЕНИЕ

Пленочные течения широко используются в различных промышленных аппаратах и установках. Гравитационно стекающие пленки применяются в испарителях низкого давления при концентрировании пищевых продуктов и производстве фармакологических препаратов, в аппаратах для опреснения морской воды и в ректификационных колоннах. Пленочные течения используются в системах охлаждения, химических технологиях и др. Спектр практических приложений пленочных течений непрерывно расширяется, что стимулирует постановку и проведение новых экспериментальных и теоретических исследований этого класса течений. Понимание процессов, происходящих в нагреваемых пленках жидкости, очень важно для проектирования и создания таких устройств. Поэтому гравитационные течения жидкой пленки исследуются уже в течение длительного времени, привлекая внимание многих ученых.

Например, в работе [1] экспериментально установлено, что на тонкостенной фольге распространяющийся фронт повторного смачивания не является плоским и характеризуется ячеистой структурой с регулярными кипящими струями и межструйными зонами. Теоретически показано [2], что на поверхности пленки конденсата развиваются обусловленные неустойчивостью течения естественные волны, которые существенно интенсифицируют теплоперенос. В работе [3] для расчета теплообмена в свободно стекающей пленке жидкости предложен полуаналитический метод, в котором поле температуры в жидкости представлено в виде ряда по базисным функциям, удовлетворяющим граничным условиям. Исследования влияния термокапиллярных сил на теплообмен в гладкой и волновой пленках жидкости содержатся в [4]. Показано, что на интенсивность теплообмена в стекающих пленках жидкости существенное влияние оказывают структура и характеристики волнового течения.

Гидродинамические двумерные волны в изотермических пленках жидкости неустойчивы к трехмерным возмущениям. Длина волны неустойчивости к поперечным трехмерным возмущениям убывает с ростом числа Рейнольдса [5]. Установлено, что переход от регулярных двумерных структур к трехмерному течению сопровождается существенным перераспределением жидкости в продольном направлении [6, 7]. Описаны характерные формы трехмерных структур, развивающихся в процессе перехода.

При течении пленок жидкости по нагреваемым поверхностям помимо гидродинамической неустойчивости, приводящей к развитию волнового течения, возникают также термокапиллярные неустойчивости за счет градиента поверхностного натяжения. Образующиеся в результате развития данных неустойчивостей структуры двух типов (A и B) различаются уровнями тепловых потоков и

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

величиной градиента поверхностного натяжения, необходимыми для их формирования, а также величиной межструйного расстояния [8].

При формировании термокапиллярной структуры в режиме А на поверхности пленки в верхней части нагревателя наблюдался высокий температурный градиент – до 10–15 К/мм. Граничное условие, близкое к $T = \text{const}$, было реализовано на поверхности нагревателя. Правильные структуры в виде трехмерных образований в пленке из 25%-ного спиртового раствора в воде, протекающей по плоскости с малогабаритным нагревателем 6.5 × 13 мм^2, впервые обнаружены в [9, 10]. При тепловом потоке выше порогового значения на нагревателе образовывался горизонтальный вал, что приводило к движению жидкости в виде вертикальных струй и тонкой пленки между ними. Образование ривулетных структур на поверхности нагретой однокомпонентной жидкости MD-3F исследовалось в [11]. На сегодняшний день стационарные структуры типа А детально изучены экспериментально при $\text{Re} < 12$, а при больших числах Рейнольдса они наблюдались для воды в [12] при $\text{Re} < 50$ и в [13] при $\text{Re} = 50$. Установлено, что расстояние между струями в режиме А не зависит от числа Рейнольдса и составляет для воды 10 мм. Теоретические исследования, как правило, ограничиваются анализом течения неизотермической безволновой жидкой пленки при малых числах Рейнольдса [14, 15]. В работе [16] подтверждено существование структуры типа А при $\text{Re} \le 2$.

В режиме В струи формировались постепенно с увеличением теплового потока и расстояния от верхнего края нагревателя [8]. Граничное условие постоянства теплового потока было реализовано на поверхности нагревателя. Неоднородности в толщине жидкой пленки по всему потоку приводили к температурным неоднородностям на ее поверхности. Появлялся поперечный температурный градиент (до 1 К/мм), приводящий к увеличению поверхностной деформации жидкой пленки. Установлено, что расстояние между струями в режиме В также не зависит от числа Рейнольдса и составляет для воды 15 мм. Регулярные структуры в виде струй, стекающих по жидким пленкам вдоль нагретых поверхностей, изучены экспериментально в [17, 18]. Исследованы их характеристики. Подтверждено существование термокапиллярной структуры типа В.

В [19, 20] описаны экспериментальные методики, сочетающие одновременную планарную лазерно-индуцированную флуоресцентную и инфракрасную термографическую визуализацию, а также ее применение для измерения нестационарного и сопряженного теплообмена в тонких пленках жидкости. Обзор работ, посвященных формированию структур в пленках жидкости, представлен в [21].

Однако вопросы, связанные с взаимодействием набегающих волн с термокапиллярными структурами, формированием ривулетов, их движением и влиянием на теплообмен, требуют дальнейшего изучения. Ранее в основном исследовалось течение пленки жидкости при относительно малых тепловых потоках, не приводящих к взаимодействию струй. Целью данной работы является исследование зигзагообразного движения и взаимодействия трехмерных струй на поверхности нагреваемой пленки жидкости при числах Рейнольдса от 33 до 105 и их влияния на теплообмен.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Стенд представлял собой замкнутый циркуляционный контур, включающий резервуар с насосом, рабочий участок, фильтр, ротаметры, трубопроводы и запорную арматуру. Рабочий участок состоял из несущей плиты, на которую устанавливались пленкоформирователь, термостабилизатор и нагреватель. Рабочая жидкость (вода с красителем) с помощью насоса подавалась в пленкоформирователь, который включал накопительную камеру, распределительное устройство и сопло с калиброванной плоской щелью. Жидкость стекала по пластине и по соединительным каналам под действием гравитации, возвращаясь в резервуар с электронасосом. Эксперименты выполнены при числах Рейнольдса от 33 до 105: $\text{Re} = W/(\rho\nu)$, где W – удельный массовый расход жидкости, ρ – плотность жидкости, ν – коэффициент кинематической вязкости жидкости.

В качестве нагревательного элемента использовался медный плоский теплообменник шириной 150 мм и длиной 100 мм. Внутри теплообменника по прямоугольным каналам прокачивалась нагретая жидкость. Тепловой поток с поверхности нагревателя рассчитывался по разнице температур прокачиваемой жидкости на входе и выходе из теплообменника при заданном массовом расходе. Температура обращенной к пленке стенки нагревателя измерялась тремя термопарами, расположенными на вертикальной оси симметрии. Тепловой поток варьировался в пределах 0.5–11 Вт/см^2. Вертикальный рабочий участок был открыт в атмосферу. Начальная температура воды на выходе из сопла пленкоформирователя составляла 15–40°С.

Для определения мгновенного поля толщины и волновых характеристик пленки использован модифицированный флуоресцентный метод. Отличительной особенностью компоновки измерительной системы в эксперименте является расположение источника и приемника излучения со стороны свободной поверхности пленки. Для возбуждения флуорофора использовался лазер с диодной накачкой RLM-532-2000, непрерывно освещающий площадку размером 120 × 120 мм^2. Переизлученный флуорофором свет регистрировался циф-

ровой камерой PCO 1200h с разрядностью 10 бит и частотой 500 Гц в полнокадровом режиме (1280 × × 1024 пикс.). Перед камерой установлен красный фильтр для отсечения отраженного света лазера. При проведении измерений на площади 100 × 100 мм^2 система обеспечивает пространственное разрешение 0.1 мм.

В качестве флуоресцентного красителя в экспериментах использован родамин 6Ж. В диапазоне концентраций 10–100 мкмоль/л родамин 6Ж практически не влияет на поверхностное натяжение воды. Зависимость от температуры флуоресцентных свойств рабочих растворов красителя разных концентраций определялась экспериментально в диапазоне температур от 20 до 50°C. С целью обеспечения достаточного динамического диапазона яркости флуоресцентной жидкости для проведения экспериментов на нагревателе выбран раствор с концентрацией 20 мг/л (44.4 мкмоль/л). Температурное изменение яркости флюоресценции раствора такой концентрации при температуре 50°C не превышает 1% по сравнению с яркостью раствора при 20°C.

Калибровка измерительной системы производилась в условиях эксперимента. Измерялась интенсивность свечения рабочей жидкости известной толщины. Точность восстановления толщины плоской пленки по калибровочной зависимости составляет 5–10 мкм для пленок толщиной 200–400 мкм. Анализ перераспределения интенсивности, проведенный в приближении геометрической оптики, показал, что для режимов течения, реализованных в экспериментах, основной эффект, дающий ошибку, связан с фокусировкой под гребнями волн, что может приводить к незначительному завышению амплитуды этих волн. Однако в большинстве случаев уровень искажения достаточно мал и им можно пренебречь. Для исследованных режимов течения суммарная погрешность измерения толщины не превышает 3% для области пленочного течения и 7% в области струйного течения.

Распределение температуры на поверхности жидкой пленки измерялось с использованием инфракрасного сканера Titanium 570M. Система регистрировала инфракрасное (ИК) излучение в диапазоне длин волн 3.7–4.8 мкм. В данном диапазоне поверхность воды может рассматриваться как черное тело. Излучение от поверхности пленки, стекающей по поверхности пластины и нагревателя, проходило через объектив в приемник излучения. В качестве приемника использовалась матрица фотодиодов HgCdTe. Электрический сигнал, поступающий от приемника излучения, усиливался и преобразовывался аналого-цифровым преобразователем. Оцифрованные значения пересылались на персональный компьютер. Области с искусственными неоднородностями (вызванными сухими частями нагревателя) обрезались, и получалась область 60 × 100 мм^2. ИК-сканер установлен на расстоянии 50 см от поверхности нагревателя под углом 5° к нормали поверхности. Небольшая величина угла дала возможность использовать полученные данные без дополнительной обработки. Подробное описание установки и методики исследования содержится в [13].

АНАЛИЗ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ

На поверхности пленки воды, вертикально стекающей вдоль нагревателя размером 100 × 150 мм^2, наблюдается формирование струй. Синхронные трехмерные волны уже сформированы к моменту достижения верхней кромки нагревателя. Вдоль нагревателя волны движутся друг за другом, но уже при малых тепловых потоках они смещаются на небольшие расстояния в поперечном направлении.

На рис. 1 показаны распределение толщины пленки в области нагрева (q = 4 Вт/см^2) и кадр тепловизионной съемки распределения температур на поверхности пленки воды в градациях серого при высокой плотности теплового потока (q = 10 Вт/см^2), позволяющий следить за зигзагообразным движением и взаимодействием струй. В верхней части нагревателя видны неоднородности температуры и толщины, соответствующие термокапиллярным структурам типа A. В нижней части нагревателя расстояние между струями возрастает, достигая в среднем 15 мм.

Видно, что при высоких тепловых потоках в результате взаимодействия волн с термокапиллярными структурами происходит формирование струй на поверхности пленки жидкости, их интенсивное перемещение в направлении поперек потока (витание) и взаимодействие (касание, слияние и разделение).

Для расчета амплитуды зигзагообразного движения струй проанализированы мгновенные профили температуры в поперечном сечении потока (по направлению Z). Профили температуры обрабатывались с шагом 5–10 мм по X. На каждом мгновенном профиле определены минимумы температуры, соответствующие мгновенным положениям струй. Амплитуда зигзагообразного движения определялась как модуль максимального отклонения от среднего по времени положения центра струи. Для каждого момента времени рассчитывалась амплитуда витания струи для разных положений X вдоль нагревателя, из которых формировался временной ряд. Для анализа частотных характеристик витания рассчитывается преобразование Фурье от временного ряда амплитуды витания для каждого ривулета. Для ривулета находятся главная гармоника и частота, для которой значение амплитуды спектра максимально. Полученные доминирующие частоты в спектре осредняются для получения средней частоты витания ривулетов для конкретного значения q.

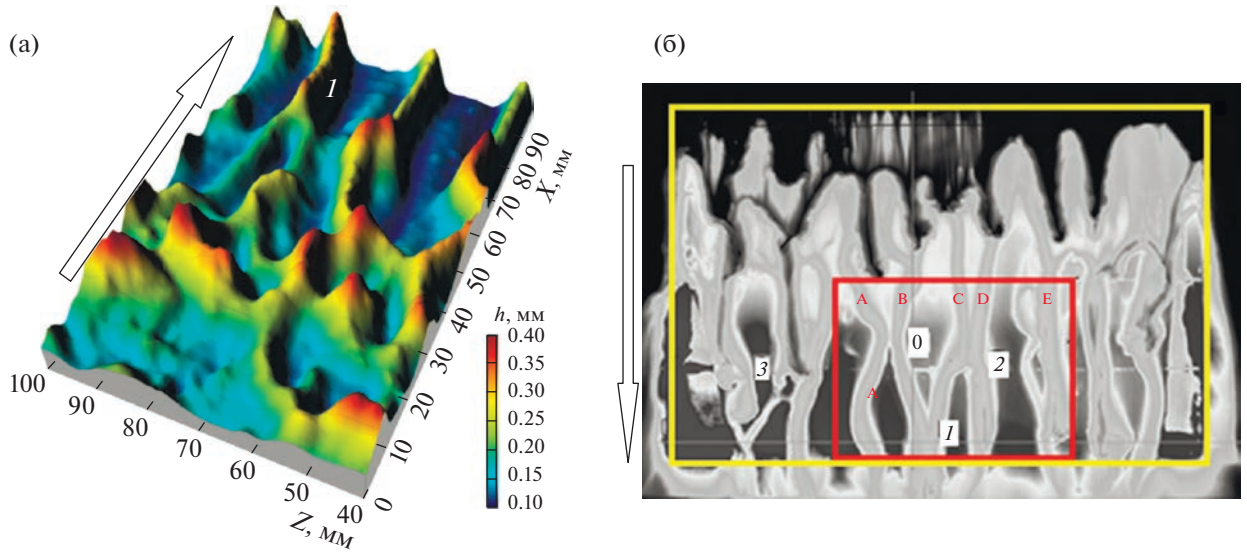

Рис. 1. Мгновенные распределения толщины (а) и температуры (б) на поверхности пленки при (а) – Re = 50, q = 4 Вт/см^2; (б) – 105, 10; желтый прямоугольник – область нагревателя, красный – область обработки данных по взаимодействию струй; A, B, C, D, E – анализируемые струи; стрелки – направление течения.

Зависимости максимальной амплитуды витания струи в центре нагревателя от плотности теплового потока для двух значений расстояния вдоль нагревателя (50 и 75 мм) при Re = 33 и 50 и начальной температуре жидкости 23, 30, 40°C представлены на рис. 2.

Можно выделить два режима витания струй. При малых плотностях тепловых потоков (q < 2 Вт/см^2) наблюдается движение струй с относительно малой амплитудой витания – в диапазоне 5–10 мм. В этом случае реализуется инерционно-термокапиллярный механизм витания струй в режиме B. Относительно слабые термокапиллярные силы из-за малых градиентов температуры на поверхности пленки, которые не превышали 1 K/мм, направляют гребень волны к центру струи. За счет инерционных сил волна проходит центральную линию. При более высоких плотностях тепловых потоков амплитуда витания струй резко возрастает (рис. 2). Как следует из рис. 1, это происходит за счет формирования термокапиллярных структур в режиме A в верхней части нагревателя. По достижении пороговой плотности теплового потока градиенты температуры на поверхности пленки в области верхней кромки нагревателя возрастали до 10 K/мм и более, что характерно для возникновения термокапиллярных структур типа A. Периодически эти структуры были видны достаточно отчетливо. Они формировались в остаточном слое перед фронтом набегающей волны вблизи передней кромки нагревателя.

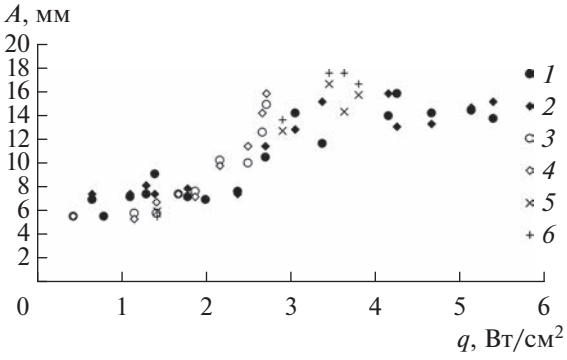

Рис. 2. Зависимость максимальной амплитуды витания струи в центре нагревателя от плотности теплового потока на двух различных расстояниях вдоль нагревателя (50 и 75 мм): *1* – Re = 33, T_0 = 23°C, 50 мм; *2* – 33, 23, 75; *3* – 33, 30, 50; *4* – 33, 30, 75; *5* – 50, 40, 50; 6 – 50, 40, 75.

На рис. 3 представлены графики зависимостей амплитуды зигзагообразного движения струй от расстояния вдоль нагревателя X при разных тепловых потоках для чисел Рейнольдса 50 и 105. При малых тепловых потоках струи движутся с относительно малой амплитудой витания (до 10 мм), причем эта амплитуда практически не изменяется вдоль нагревателя. С увеличением плотности теплового потока амплитуда возрастает, достигая значения в 20 мм в верхней части нагревателя, в результате взаимодействия с термокапиллярной структурой в режиме A. В этом случае амплитуды зигзагообразного движения струй уменьшаются вдоль нагревателя. Это уменьшение не является монотонным. Например, для Re = 50 при X = 80 мм наблюдается локальный максимум.

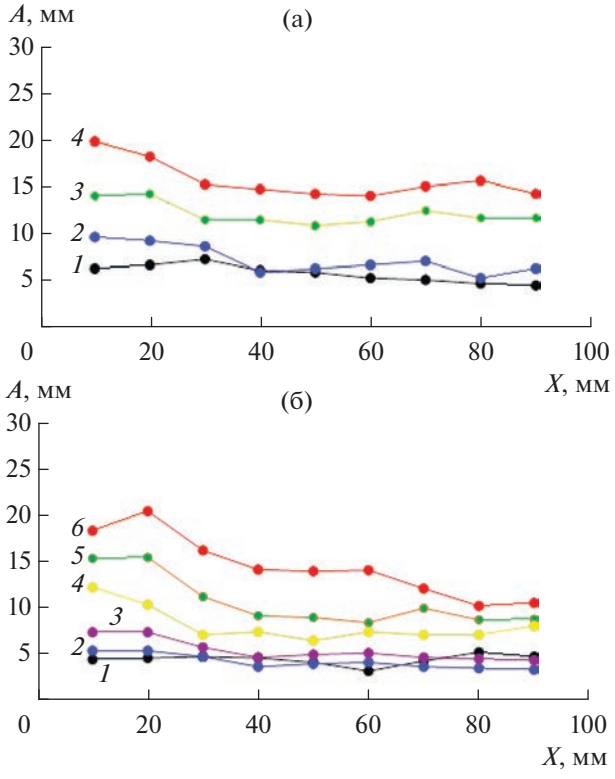

Рис. 3. Зависимости максимальной амплитуды витания струй от расстояния вдоль нагревателя при различных плотностях теплового потока: (а) – Re = 50: *1* – q = 1.7 кВт/см^2, *2* – 2.4, *3* – 4.0, *4* – 6.02; (б) – Re = = 105: *1* – q = 1.7 кВт/см^2, *2* – 2.4, *3* – 3.06, *4* – 6.03, *5* – 7.49, *6* – 8.71.

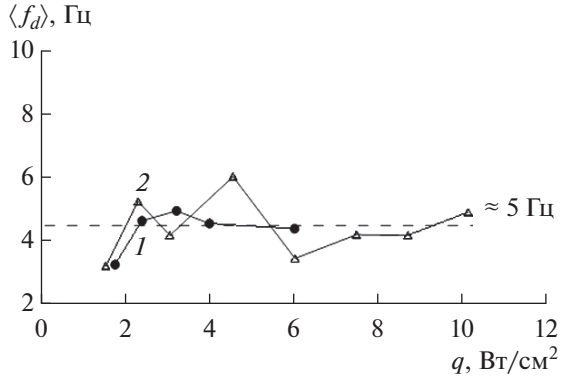

Рис. 4. Зависимости средней частоты витания струй для Re = 50 (*1*), 105 (*2*) от плотности теплового потока q; штриховая линия – усреднение приведенных данных.

Зависимость средней частоты витания струй для Re = 50, 105 от плотности теплового потока q представлена на рис. 4. В исследуемом диапазоне чисел Рейнольдса частота зигзагообразного движения струй остается постоянной и не зависит от плотности теплового потока.

Таким образом, показано, что развитие термокапиллярной неустойчивости в верхней части нагревателя приводит к росту амплитуд зигзагообразного движения струй. Максимальные значения амплитуд витания струй наблюдаются в верхней части нагревателя (X < 25 мм) при высоких тепловых потоках. В данной области трудно выделить и проследить эволюцию отдельных струй (см. рис. 1). В средней части нагревателя (25 < X < 75 мм) происходит взаимодействие струй. Амплитуда витания струй в этой области сопоставима со средним расстоянием между струями, что делает возможным их взаимодействие (рис. 1). В нижней части нагревателя амплитуда витания струй уменьшается, делая взаимодействие менее вероятным.

Для средней части нагревателя выполнен анализ взаимодействия струй при Re = 33 и T_0 = 23°C. Выделены несколько типов взаимодействия струй: 0-й тип – отсутствие взаимодействия (рис. 1б), когда волна, движущаяся по гребню струи, проходит до конца нагревателя без взаимодействия с другими струями; 1-й тип – слияние, две струи сливаются в одну (цифра *1* на рис. 1а, 1б); 2-й тип – перемычка, струи сливаются и снова разделяются (*2* на рис. 1б); 3-й тип – разделение струи, когда одна струя разделяется на две (*3* на рис. 1б).

Подсчитано количество взаимодействий каждого типа при разных тепловых потоках как при отсутствии структур А, так и при их наличии. Для каждого теплового потока учитывались взаимодействия только пяти струй в центре нагревателя, чтобы избежать влияния его конечных размеров. Просматривались по порядку все 600 кадров съемки тепловизором, фиксировались все случаи взаимодействий типов 1–3. В качестве типа 0 учитывались волны на поверхности струй, проходящие рассматриваемую область без взаимодействий. Далее количество взаимодействий каждого типа делилось на сумму всех взаимодействий, тем самым определялось, какая доля взаимодействий приходится на каждый тип. По полученным результатам построены гистограммы.

На рис. 5 представлены график зависимости максимальной амплитуды зигзагообразного движения струй от теплового потока на двух различных расстояниях от верхнего края нагревателя и гистограммы распределения разных типов взаимодействий для некоторых тепловых потоков. При достижении значения теплового потока, соответствующего появлению в верхней части нагревателя термокапиллярных структур типа А, наблюдаются пороговый рост максимальной амплитуды зигзагообразного движения струй и существенное изменение распределения взаимодействий по типам – доля взаимодействий типа 0 уменьшается, а типов 1–3 – увеличивается.

Зависимости среднего коэффициента теплоотдачи от плотности теплового потока представ-

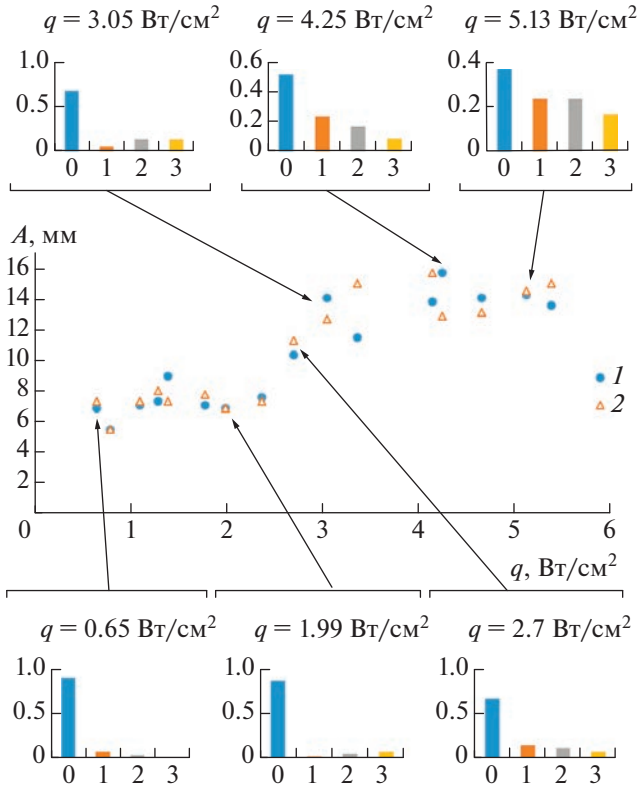

Рис. 5. Зависимости максимальной амплитуды зигзагообразного движения струй от плотности теплового потока на расстояниях от верхней кромки нагревателя 50 (*1*) и 75 мм (*2*) и гистограммы распределения различных типов взаимодействий (указана относительная доля взаимодействий) при Re = 33 и $T_0 = 23$°C.

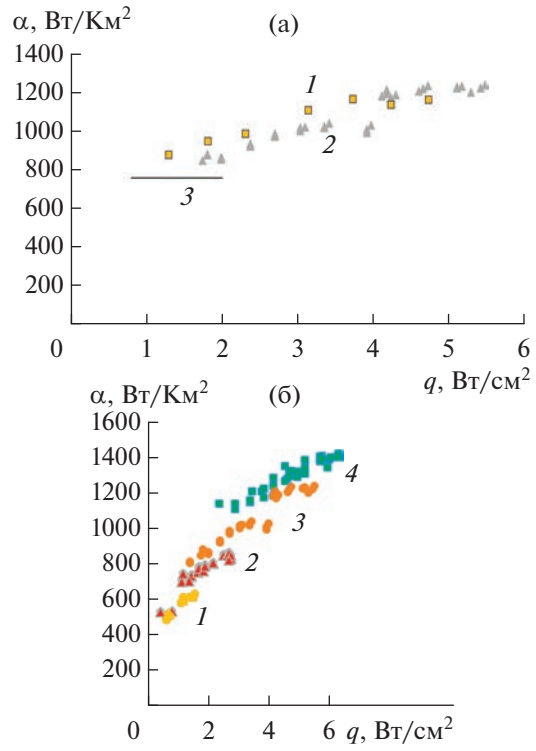

Рис. 6. Зависимости среднего коэффициента теплоотдачи от плотности теплового потока: (а) *1* – экспериментальные данные для Re = 50, *2* – Re = 33, *3* – результаты расчета для гладкой пленки по модели Нуссельта [22]; (б) – экспериментальные данные для Re = 33: *1* – $T_0 = 40$°C, *2* – 30, *3* – 23, *4* – 15.

лены на рис. 6. Средний коэффициент теплоотдачи рассчитывается по зависимости $\alpha = q/(T_w - T_0)$, где q – плотность теплового потока, T_w – средняя температура поверхности нагревателя, T_0 – начальная температура пленки. Результаты расчетов, выполненных с использованием модели Нуссельта [22] для гладкой пленки, показывают хорошую согласованность с экспериментальными данными для малого теплового потока (рис. 6а). Обнаружено усиление интенсивности теплоотдачи при тепловом воздействии. Коэффициент теплоотдачи повышался с увеличением теплового потока. Область наиболее интенсивного роста наблюдается в диапазоне изменения плотности теплового потока от 2 до 4 Вт/см^2, где происходило увеличение амплитуды зигзагообразного движения струй за счет формирования термокапиллярных структур типа А. После формирования структуры при $q \geq 4$ Вт/см^2 в верхней части нагревателя рост коэффициента теплоотдачи с увеличением плотности теплового потока не прекращается, но становится более плавным. Следует отметить, что взаимодействие струй, происходящее в этой области, не оказывает существенного влияния на интенсивность теплообмена, но может приводить к повышению устойчивости пленки к разрыву. Перемещение и взаимодействие струй способствуют предотвращению появления сухих пятен на поверхности нагревателя, повторному орошению осушенных зон и в конечном счете увеличению теплового потока, соответствующего разрыву пленки жидкости.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показано, что развитие термокапиллярной неустойчивости в верхней части нагревателя приводит к росту амплитуды зигзагообразного движения струй. Максимальные значения амплитуд витания струй наблюдаются при высоких тепловых потоках, соответствующих формированию термокапиллярных структур в режиме А. Установлено, что перемещение струй в горизонтальном направлении вызывает при определенных условиях их взаимодействие (касание, слияние и раздвоение). Рост амплитуды перемещения струй приводит к интенсификации теплообмена. Отмечено, что взаимодействие струй, происходящее в данной области, не оказывает существенного влияния на интенсивность теплообмена, но может приводить к повышению устойчивости пленки к разрыву.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РНФ 22-19-20090 и Правительства Новосибирской области (соглашение № р-13).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Павленко А.Н., Суртаев А.С., Цой А.Н., Стародубцева И.П., Сердюков В.С.* Динамика повторного смачивания перегретой поверхности стекающей пленкой жидкости // ТВТ. 2014. Т. 52. № 6. С. 886.
2. *Актершев С.П., Алексеенко С.В.* Волновое течение пленки конденсата // ТВТ. 2014. Т. 52. № 1. С. 84.
3. *Актершев С.П., Барташевич М.В., Чиннов Е.А.* Теплоперенос в пленке жидкости в условиях постоянного теплового потока на стенке // ТВТ. 2017. Т. 55. № 1. С. 115.
4. *Чиннов Е.А., Кабов О.А.* Влияние трехмерных деформаций на локальный теплообмен к неоднородно нагреваемой стекающей пленке жидкости // ТВТ. 2004. Т. 42. № 2. С. 269.
5. *Park C.D., Nosoko T.* Three-dimensional Wave Dynamics on a Falling Film and Associated Mass Transfer // AIChE J. 2003. V. 49. № 11. P. 2715.
6. *Алексеенко С.В., Гузанов В.В., Маркович Д.М. и др.* Особенности перехода от регулярного двумерного к трехмерному волновому движению на вертикально стекающих пленках жидкости // Письма в ЖТФ. 2012. Т. 38. № 16. С. 16.
7. *Алексеенко С.В., Бобылев А.В., Гузанов В.В. и др.* О формировании струй при изотермическом пленочном течении жидкости в процессе перехода к трехмерному волновому движению // Письма в ЖТФ. 2014. Т. 40. № 22. С. 97.
8. *Чиннов Е.А., Кабов О.А.* Формирование струйных течений при гравитационном стекании волновой нагреваемой пленки жидкости // ПМТФ. 2003. Т. 44. № 5. С. 128.
9. *Kabov O.A.* Heat Transfer from a Small Heater to a Falling Liquid Film // Heat Transfer Res. 1996. V. 27. № 1. P. 221.
10. *Kabov O.A., Diatlov A.V., Marchuk I.V.* Heat Transfer from a Vertical Heat Source to Falling Liquid Film // Proc. 1st Int. Symp. on Two-Phase Flow Modeling and Experimentation. Rome, Italy. 1995. V. 1. P. 203.
11. *Kabov O.A., Chinnov E.A.* Heat Transfer from a Local Heat Source to a Subcooled Falling Liquid Film Evaporating in a Vapor–Gas Medium // Rus. J. Eng. Thermophys. 1997. V. 7. № 1–2. P. 1.
12. *Чиннов Е.А.* Влияние условий волнообразования на формирование струйного течения в нагреваемых пленках жидкости // Теплофизика и аэромеханика. 2009. Т. 16. № 1. С. 69.
13. *Chinnov E.A.* Formation of the Unsteady Thermocapillary Structures in the Residual Layer of Three-dimensional Waves // Int. J. Heat Mass Transfer. 2017. V. 108. P. 2053.
14. *Scheid B., Oron A., Colinet P., Thiele U., Legros J.C.* Nonlinear Evolution of Nonuniformly Heated Falling Liquid Films // Phys. Fluids. 2002. V. 14. № 12. P. 4130.
15. *Kalliadasis S., Kiyashko A., Demekhin E.A.* Marangoni Instability of a Thin Liquid Film Heated from Below by a Local Heat Source // J. Fluid Mech. 2003. V. 475. P. 377.
16. *Frank A.M., Kabov O.A.* Thermocapillary Structure Formation in a Falling Film: Experiment and Calculations // Phys. Fluids. 2006. V. 18. № 3. P. 032107.
17. *Lel V.V., Stadler H., Pavlenko A.N., Kneer R.* Evolution of Metastable Quasi-regular Structures in Heated Wavy Liquid Films // Heat Mass Transfer. 2007. V. 43. № 11. P. 1121.
18. *Lel V.V., Kellermann A., Dietze G., Kneer R., Pavlenko A.N.* Investigations of the Marangoni Effect on the Regular Structures in Heated Wavy Liquid Films // Exp. Fluids. 2008. V. 44. № 2. P. 341.
19. *Markides C.N., Mathie R., Charogiannis A.* An Experimental Characterization of Spatiotemporally Resolved Heat Transfer in Thin Liquid-film Flows Falling over an Inclined Heated Foil // Int. J. Heat Mass Transfer. 2015. V. 93. P. 872.
20. *Mathie R., Nakamura H., Markides C.N.* Heat Transfer Augmentation in Unsteady Conjugate Thermal Systems. Part II. Applications // Int. J. Heat Mass Transfer. 2013. V. 56. P. 819.
21. *Chinnov E.A., Kabov O.A.* Structures in the Falling Liquid Films // Interfacial Phenom. Heat Transfer. 2021. V. 9. № 4. P. 1.
22. *Nusselt W.* Der Wärmeaustauseh am Berieselungskühler // Zeitschrift des VDI. 1923. Bd. 67. H. 9. S. 206.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 611–618

УДК 536.423

ВЗРЫВНОЕ ВСКИПАНИЕ ПЕРЕГРЕТЫХ ГАЗОНАСЫЩЕННЫХ АЛКАНОВ[1]

© 2023 г. В. Г. Байдаков*, А. М. Каверин, А. С. Панков

Институт теплофизики, Уральское отделение РАН, Екатеринбург, Россия

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

Поступила в редакцию 13.09.2022 г.
После доработки 01.12.2022 г.
Принята к публикации 06.12.2022 г.

Исследована кинетика спонтанного вскипания жидких алканов (метан, этан, пропан), насыщенных одним из следующих газов: гелий, водород, азот, метан. Методом среднего времени жизни определены температурная, барическая и концентрационная зависимости частоты зародышеобразования растворов в интервале (10^4–10^8) м$^{-3}$ с$^{-1}$. Измерения проведены при давлениях 1–2 МПа и концентрациях летучего компонента до 6 мол. %. Результаты экспериментов сопоставлены с классической теорией зародышеобразования в макроскопическом приближении. В отличие от чистой жидкости и жидкости, насыщенной гелием или водородом, температуры достижимого перегрева растворов, в которых растворенным веществом являются азот или метан, превышают их теоретические значения. Обсуждаются причины такого рассогласования.

DOI: 10.31857/S0040364423040026

ВВЕДЕНИЕ

Во многих природных явлениях и технологических процессах фазовые превращения протекают в средах, содержащих растворенный газ, и сопровождаются метастабильностью одной из фаз. Фазовая метастабильность в газонасыщенных системах наблюдается при вскрытии газоконденсатных месторождений [1], в гейзерах [2], магме при вулканических извержениях [3], в химических реакциях [4].

Природный газ – многокомпонентная система, помимо метана (основной компонент), в его состав входят этан, пропан, другие алканы, а также в виде примесей водород, азот, гелий. При ожижении природного газа образуется газожидкостный раствор, протекание процессов тепломассопереноса в котором во многом определяется содержанием летучих компонентов. Сброс давления, локальные теплопритоки в системах хранения и транспорта сжиженного природного газа инициируют газовыделение. Центрами газовыделения обычно выступают плохо смачиваемые жидкостью стенки сосуда, газ в трещинах и порах стенок, твердые взвешенные частицы. Интенсификация в области фазового перехода жидкость–газ процессов, связанных с изменением термодинамического состояния раствора, сопровождается его перегревом. Распад сильно перегретой жидкой фазы носит взрывной характер и может приводить к повреждению оборудования, нарушению технологических циклов. В литературе для выделения таких процессов часто используется специальный термин “BLEVE” – Boiling Liquid Expanding Vapor Explosion [5].

Взрывное вскипание жидкой фазы, как правило, связано со спонтанным зародышеобразованием. Первые экспериментальные исследования зародышеобразования в нелетучей газированной жидкости (воде) выполнены Хеммингсеном [6]. В [7] методом всплывающих капель измерена температура достижимого перегрева жидких пропана и изобутана, насыщенных двуокисью углерода. Растворение двуокиси углерода (до 33 мол. %) приводило к понижению температуры спонтанного вскипания алкана. При исследовании перегревов раствора этиловый эфир–азот в [8] использовался метод изотермического понижения давления. Данные работ [7, 8] по температурам достижимого перегрева растворов в пределах погрешности эксперимента (1–2 K) совпали с предсказаниями классической теории зародышеобразования (КТЗ) [9].

Термодинамика зарождения пузырьков в слабых растворах газа в жидкости рассматривалась Уордом и др. [10], кинетика – Несисом и Френкелем [11], Дерягиным и Прохоровым [12], Куни и др. [13, 14]. В работах [11, 12] предполагался свободномолекулярный режим поступления газа в пузырек, авторы [13, 14] постулировали диффузионный режим роста пузырька. Кинетика спонтанного вскипания газированной жидкости с учетом

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

вязких и инерционных сил, а также свободномолекулярного и диффузионного подвода молекул растворенного вещества и растворителя рассмотрена в работах [15, 16].

В [11–16] предполагалось, что в смеси, как и в однокомпонентной жидкости, поток зародышей идет через седловую точку активационного барьера. В работах [17–19] показано, что в растворе термодинамически оптимальный путь движения зародышей через седловую точку может смениться более выгодной с кинетической точки зрения траекторией, которая сдвинута от седловой точки в сторону одного из склонов активационного барьера. Для согласования с КТЗ аномально низких перегревов, полученных в экспериментах [20, 21], где пересыщения создавались с помощью химических реакций, в [20, 22] введено представление о появлении в растворе на стадии, предшествующей образованию критического пузырька, “уплотнений” из молекул растворенного газа (“кластеров” [22] или “блобов” [20]). Это позволило авторам [20, 22] в области реализуемых на опыте пересыщений понизить высоту активационного барьера до значения $\sim 10^2 k_B T$ (k_B – постоянная Больцмана), при котором в однокомпонентной жидкости наблюдается спонтанное зародышеобразование, и согласовать результаты КТЗ и эксперимента.

В данной работе представлены результаты экспериментальных исследований кинетики спонтанного зародышеобразования в растворах, где жидкими растворителями являются алканы (метан, этан, пропан), а газонасыщающими компонентами выступают гелий, водород, азот, метан. Состав раствора определяется, главным образом, природой растворяемого вещества и при давлениях $p \le 2.0$ МПа не превышает 0.15 мол. % в случае гелия и 1.5 мол. % – азота. Исследования проведены методом измерения времени жизни метастабильной системы при фиксированных значениях температуры T, давления p и мольной доли x растворенного газа в жидкости. Здесь не дается описания экспериментальной установки и методики проведения опытов, так как они подробно изложены в публикациях по изучению достижимых перегревов чистых жидкостей [23–25] и растворов с полной растворимостью компонентов [16].

ТЕРМОДИНАМИКА И КИНЕТИКА ЗАРОДЫШЕОБРАЗОВАНИЯ

Классическая теория зародышеобразования рассматривает распад метастабильной фазы как результат флуктуационного образования и последующего перехода фрагментов новой фазы (зародышей) через активационный барьер [26]. В стационарном случае конечный результат теории – выражение для числа закритических (жизнеспособных) зародышей, образующихся в единице объема метастабильной системы за единицу времени (частоты зародышеобразования), может быть записано в виде [27]

$$J = \rho B \exp\left(-W_* / k_B T\right). \quad (1)$$

Здесь ρ – числовая плотность метастабильной фазы; B – кинетический множитель, определяющий скорость перехода зародыша через критический размер; W_* – работа образования критического зародыша.

Активационный барьер представляет седловую поверхность в пространстве переменных зародыша: радиус пузырька R, давление p' и состав x' в пузырьке. Минимальная высота барьера – работа образования критического зародыша

$$W_* = \min\max W(T, x, R) = \\ = \frac{16\pi}{3}\frac{\gamma_*^3}{(p'_* - p)^2} = \frac{4\pi}{3} R_*^2 \gamma_*, \quad (2)$$

где γ – поверхностное натяжение на границе пузырек–раствор. Нижний индекс “звездочка” указывает, что величина относится к седловой точке активационного барьера. В качестве разделяющей поверхности принята поверхность натяжения.

Давление и состав в критическом пузырьке находятся из условий его механического и вещественного равновесия с раствором. Если жидкий раствор слабый и несжимаемый, а пузырек заполнен идеальной парогазовой смесью, то [28]

$$p'_* = p_{s0}(1 - x')\left(1 - \frac{\upsilon_{10}}{\upsilon'_{10}}\frac{p_{s0} - p}{p_{s0}}\right) + \\ + k_H x'\left(1 - \frac{\upsilon_2}{\upsilon'_2}\frac{p_s - p}{p_s}\right), \quad (3)$$

где p_{s0} – давление насыщенного пара чистого растворителя; υ_{10}, υ'_{10} – удельные объемы растворителя в жидкой и паровой фазах; k_H – константа Генри; p_s – давление фазового равновесия смеси; υ_2, υ'_2 – удельные объемы растворенного газа в жидкой и паровой фазах раствора. Состав равновесной парогазовой смеси в пузырьке отличается от состава жидкой смеси большим содержанием летучего компонента.

Факторами, сдерживающими рост парогазового пузырька на стадии его зарождения, являются вязкость и инерционность раствора, скорость подвода тепла, а также скорость обмена молекулами между материнской фазой и пузырьком. Последняя определяется как чисто молекулярным обменом, так и диффузионным подводом растворенного газа к пузырьку.

Ввиду высокой теплопроводности и большой теплоемкости раствора можно считать, что пузырек и материнская фаза находятся при одинако-

вой температуре. Температура, давление и состав раствора считаются заданными. Инерционными эффектами в динамике пузырька пренебрегаем. Условие такого пренебрежения: $\rho\gamma_* R_* \big/ \left(8\eta^2\right) < 1$, где η – вязкость раствора.

Эксперименты проводятся при положительных давлениях, когда $\omega_i = \left(3\alpha_i \upsilon_{ti}\eta\right) \big/ \left(2\gamma_*\right) > 1$, где α_i, υ_{ti} – коэффициент конденсации и средняя тепловая скорость движения молекул i-го компонента раствора, но не столь велико, чтобы начала сказываться инерционность жидкости. Для невязкой и неинерционной газонасыщенной жидкости определяющими механизмами роста пузырька являются свободномолекулярный обмен для растворителя и диффузионный подвод растворенного газа к пузырьку. В этом случае кинетический множитель B определяется выражением [15, 16]

$$B = \frac{1}{4}\frac{b}{3-b}\frac{R_*\left(k_{\text{B}}T\gamma_*\right)^{1/2}}{\eta} \times \left\{-A + \left[A^2 + 4\frac{\omega_1\omega_2}{\beta_2}\frac{3-b}{b}\right]^{1/2}\right\}, \quad (4)$$

где

$$A = \omega_1\left(\frac{3-b_2}{b_2}\right) + \frac{\omega_2}{\beta_2}\left(\frac{3-b_1}{b_1}\right), \quad b = \frac{2\gamma_*}{R_* p_*'},$$

$$\beta_2 = \frac{\alpha_2\upsilon_{t2}R_* H}{4k_{\text{B}}TD\rho}, \quad H = d p_*' \big/ dx,$$

D – коэффициент диффузии.

В решении (4) можно выделить два предельных случая. Если $\beta_2 \gg 1-3/b_1$, то, пренебрегая величиной $b/3$ по сравнению с единицей, выражение для кинетического множителя совпадает с полученным Каганом [29] для однокомпонентной жидкости, в которой отсутствуют тепловые эффекты на границе пузырек–жидкость. В противном случае, когда растворитель нелетуч, а растворенное вещество подводится к пузырьку только диффузией, имеем

$$B = \frac{D\rho x}{\left(b - 1/3\right)}\left(\frac{k_{\text{B}}T}{\gamma_*}\right)^{1/2}. \quad (5)$$

Формулы (1)–(5) определяют температурную, барическую и концентрационную зависимости частоты зародышеобразования в разбавленном растворе. При фиксированной частоте зародышеобразования они позволяют рассчитать температуру достижимого перегрева раствора T_n для заданных значений давления и состава.

ЭКСПЕРИМЕНТ И РЕЗУЛЬТАТЫ

Газовая смесь определенного состава (чистота компонентов смеси не менее 99.8 об. %) конденсировалась в рабочую камеру установки при температуре, близкой к температуре нормального кипения основного компонента (растворителя), и давлении ~3.5 МПа. Концентрация раствора x определялась и контролировалась по давлению насыщенных паров. Жидкость перегревалась в стеклянном капилляре ($V \approx 88$ мм^3), который термостатировался (± 0.005 K) при температуре T. Перегрев осуществлялся сбросом давления в системе капилляр–камера до заданного значения p. В эксперименте измерялось время от момента перевода раствора в метастабильное состояние до его вскипания τ (время жизни). При заданных T, p, x по результатам $N = 40$–80 измерений τ определялось среднее время жизни $\overline{\tau} = \sum_i \tau / N$ и рассчитывалась частота зародышеобразования $J = \left(\overline{\tau}V\right)^{-1}$. Погрешность измерения температуры – ± 0.02 K, давления – ± 0.005 МПа, времени – ± 0.01 с.

Эксперименты проводились вблизи границы спонтанного вскипания раствора. В зависимости от растворяемого вещества его содержание в растворе составляло от 0.05 до 6.0 мол. %. Минимальная растворимость характерна для систем, содержащих гелий, максимальная – для растворов алкан–алкан, где второй компонент являлся легколетучей добавкой.

Рис. 1 иллюстрирует температурные зависимости среднего времени жизни раствора пропан–водород при фиксированных значениях состава и частоты зародышеобразования метана и раствора метан–гелий при фиксированных значениях давления. На экспериментальных кривых можно выделить участки с резким возрастанием частоты зародышеобразования (уменьшением среднего времени жизни), которые сменяются более плавными температурными зависимостями J и $\overline{\tau}$. Как для раствора, так и для чистого растворителя этот загиб происходит примерно при одинаковых значениях J, $\overline{\tau}$, слабо зависящих от давления и состава. Такой ход экспериментальных кривых характерен для всех исследованных растворов. Полагается, что на участках с резкой температурной зависимостью частоты зародышеобразования (среднего времени жизни) реализуется гомогенный механизм зародышеобразования. Загибы на экспериментальных кривых связаны с инициированным зародышеобразованием.

Инициирующими вскипание перегретой жидкости факторами выступают естественный радиационный фон, космическое излучение и другие воздействия [27].

Для чистой жидкости ($x = 0$) вид температурной зависимости среднего времени жизни (частоты зародышеобразования) при $p = \text{const}$ аналогичен

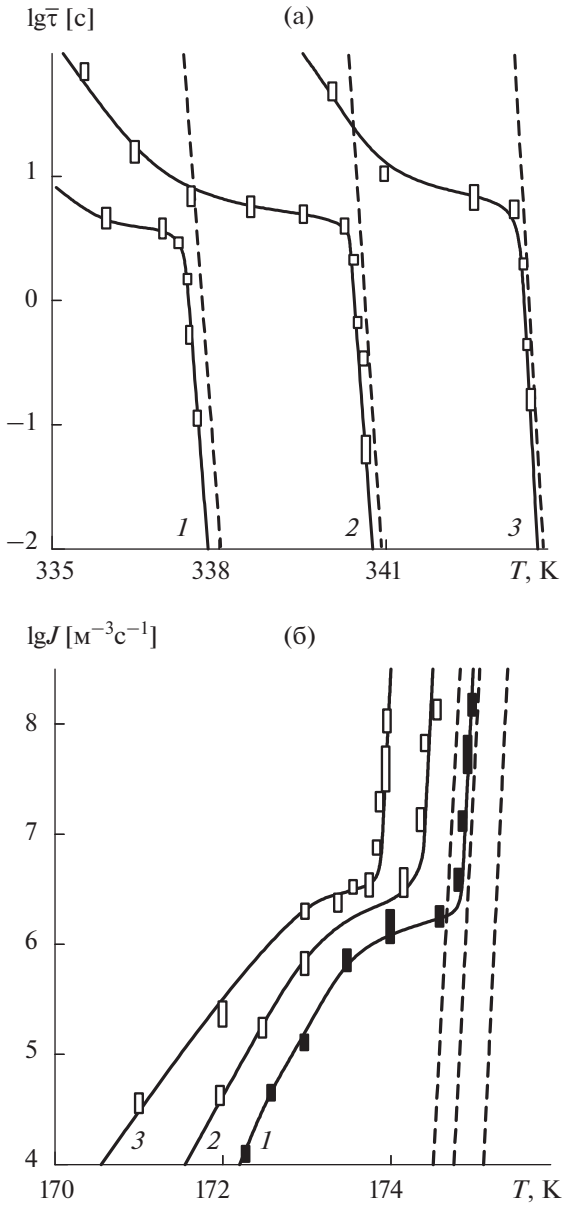

Рис. 1. Температурные зависимости среднего времени жизни раствора пропан–водород (x = 0.08 мол. %) при давлениях: *1* – p = 1.3 МПа, *2* – 1.6, *3* – 1.9 (а); частоты зародышеобразования чистого метана (*1* – x = = 0 мол. %; черные точки) и раствора метан–гелий (*2* – x = 0.06 мол. %, *3* – 0.10) при p = 2.0 МПа (б); штриховые линии – КТЗ [16]; высота прямоугольников – погрешности определения среднего времени жизни в эксперименте.

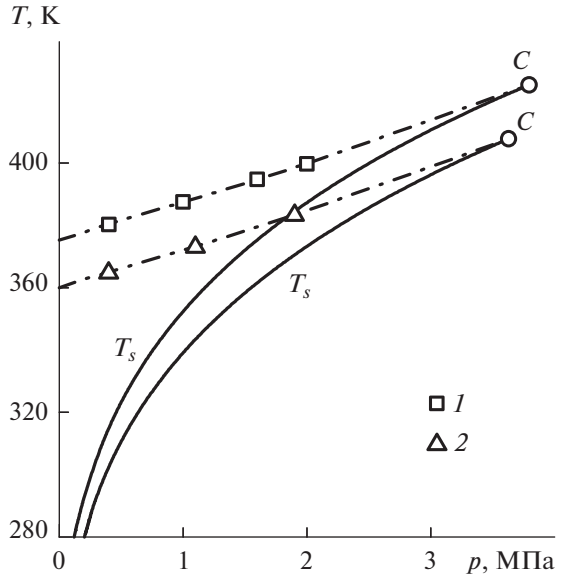

Рис. 2. Температура достижимого перегрева (J = = 10^7 м$^{-3}$ с$^{-1}$) *н*-бутана (*1*) и изобутана (*2*); *C* – критическая точка, штрихпунктирные линии – интерполяция экспериментальных данных.

изображенной на рис. 1. Температура T_n, отвечающая определенному значению частоты зародышеобразования J – температура достижимого перегрева жидкости, повышается с ростом давления.

В ряду алканов достижимый перегрев ΔT_n = = $T_n - T_s$, где T_s – температура насыщения при заданном давлении, возрастает по мере увеличения молекулярного веса алкана. На рис. 2 представлены температуры достижимых перегревов *н*-бутана и изобутана [30]. При одном давлении перегрев *н*-бутана больше, чем изобутана. Это связано с более слабым межмолекулярным взаимодействием в конденсированной фазе изобутана по сравнению с *н*-бутаном.

Растворение летучего компонента в жидких алканах приводит к понижению температуры достижимого перегрева. Во всем исследованном диапазоне давлений и составов зависимость $T_n(x)$ близка к линейной как для самого растворимого в алканах из числа исследованных веществ – метана (рис. 3), так и наименее растворимого – гелия. При p = 1.0 МПа и $J = 10^7$ м$^{-3}$ с$^{-1}$ растворение 0.1 мол. % гелия в метане понижает температуру его достижимого перегрева на 1.2 K, а растворение водорода – на 0.24 K. Добавка к этану 0.1 мол. % азота (p = 1.0 МПа) снижает температуру перегрева на 0.2 K, метана – на 0.1 K. Величина перегрева $\Delta T_n = T_n - T_s$ при введении в жидкий алкан летучего компонента возрастает за счет понижения T_s.

СОПОСТАВЛЕНИЕ С КЛАССИЧЕСКОЙ ТЕОРИЕЙ ЗАРОДЫШЕОБРАЗОВАНИЯ

Расчет частоты зародышеобразования (температуры достижимого перегрева) по КТЗ предполагает знание комплекса термодинамических свойств раствора. Наиболее жесткие требования по точности предъявляются к поверхностному натяжению и давлению в критическом пузырьке, первое из которых входит в кубе, а второе в квадрате в показатель экспоненты в уравнении (1).

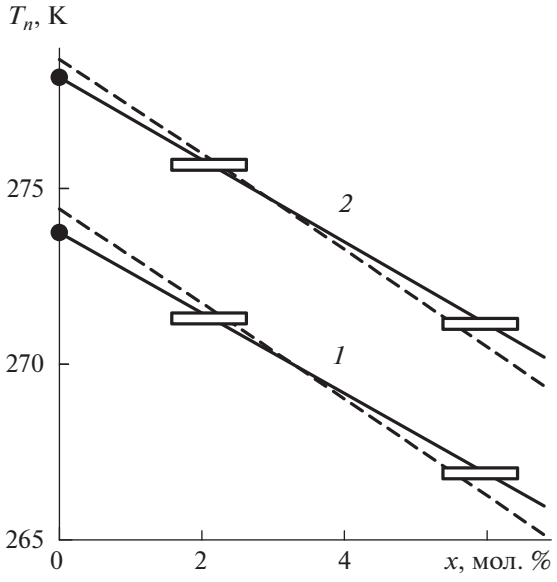

Рис. 3. Концентрационные зависимости температуры достижимого перегрева ($J = 10^7$ м$^{-3}$ с$^{-1}$) раствора этан–метан при давлениях: *1* – p = 1.0 МПа, *2* – 1.6; штриховые – КТЗ [16], черные точки – чистый этан [24]; длина прямоугольников – погрешности определения концентрации второго компонента.

Поверхностное натяжение критического пузырька в растворе есть функция температуры, состава и радиуса кривизны поверхности натяжения. В расчетах по КТЗ обычно принимается макроскопическое приближение, т.е. $\sigma(T, x, R) = \sigma_\infty(T, x)$, где σ_∞ – поверхностное натяжение на плоской межфазной границе жидкость–газ. Значения σ_∞ измерены для порций веществ из тех же партий, на которых проведены исследования кинетики зародышеобразования [31–33].

При определении давления в критическом пузырьке параметры фазового равновесия растворов, входящие в выражение (3), рассчитывались по уравнению состояния GERG-2008 [34]. Данное уравнение использовалось также для определения состава раствора в измерительной ячейке.

Результаты расчета частоты зародышеобразования и температуры достижимого перегрева ($J = 10^7$ м$^{-3}$с$^{-1}$) по (1)–(4) показаны на рис. 1, 3, 4 штриховыми линиями. При удовлетворительном согласии температурных зависимостей $\lg J$ на крутых участках линий постоянного значения состава и давления (рис. 1) имеет место систематическое рассогласование в значениях температуры перегрева. Для чистых жидкостей при фиксированной частоте зародышеобразования достигнутые в эксперименте температуры перегрева T_n ниже их теоретических значений. В метане при давлениях p = 1.6 и 2.0 МПа разница составляет примерно 0.5 K. Как показано в [16], это характерно для всех простых жидкостей и связано с влиянием кривизны межфазной границы на поверхностное натяжение зародыша. При давлении $p \approx 0.5p_c$, где p_c – давление в критической точке, и частоте зародышеобразования $J = 10^7$ м$^{-3}$ с$^{-1}$ критический пузырек имеет радиус ≈4.5 нм и содержит около 800 молекул.

КТЗ дает более сильное снижение температуры достижимого перегрева алканов по мере растворения в них летучего компонента, чем эксперимент. Этот эффект слабо проявляется, если растворяемыми веществами являются гелий или водород (рис. 4), и приводит к изменению знака рассогласования в T_n для таких систем, как этан–азот и этан–метан (рис. 3).

Обычно считается, что летучая примесь (малый размер молекул, малое поверхностное натяжение) концентрируется в поверхностном слое раствора, т.е. выступает как поверхностно-активная добавка, понижая поверхностное натяжение на границе пузырька. Это не всегда так. Здесь необходим учет молекулярной природы растворителя. Водород и гелий, имеющие близкие по величине размеры молекул и очень низкие значения критических параметров, по-разному влияют на поверхностное натяжение жидких углеводородов метанового ряда. Малые добавки этих веществ в метан снижают его поверхностное натяжение (поверхностно-активная примесь). В пропане и бутане водород – поверхностно-активная добав-

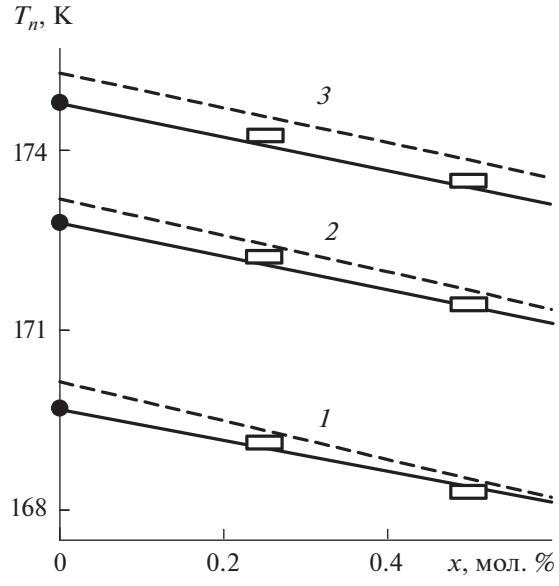

Рис. 4. Температура достижимого перегрева ($J = 10^7$ м$^{-3}$ с$^{-1}$) раствора метан–водород как функция концентрации водорода при давлениях: *1* – p = 1.0 МПа, *2* – 1.6, *3* – 2.0; штриховые линии – КТЗ [16], черные точки – чистый метан [23]; длина прямоугольников – погрешности определения концентрации второго компонента.

ка, а гелий – инактивная примесь [32], повышающая поверхностное натяжение указанных веществ в определенном температурном интервале. В растворах алканов с гелием и водородом в исследованном интервале концентраций летучего компонента ($x < 0.5$ мол. %) за пределами погрешностей измерений проявления этого эффекта не регистрируются.

В системах “алкан, насыщенный более низкокипящим алканом” или другой низкокипящей жидкостью при достижении некоторого значения концентрации температура перегрева раствора начинает превышать свое теоретическое значение.

Если, как и в случае однокомпонентной системы, отнести это рассогласование к “размерному эффекту”, то последнее означает, что поверхностное натяжение критических пузырьков в растворе превышает его значение на плоской межфазной границе [35].

В растворе, помимо сил вязкости, инерции, теплового режима, летучести компонентов, на динамику роста пузырьков влияют диффузионные процессы. При малых концентрациях летучего компонента в жидкой фазе раствора, находящегося в двухфазном состоянии, в составе паровой фазы доминирует летучая примесь. Для обеспечения равновесного состава в пузырьке во время прохождения критической области активационного барьера на его внешней поверхности должно установиться стационарное поле концентрации. Проведенные оценки показывают, что для исследованных в данной работе систем характерное время диффузии летучего компонента к поверхности сферического пузырька составляет $\sim 10^{-10}$ с, тогда как время прохождения пузырьком критической области активационного барьера $\sim 10^{-12}$ с. Таким образом, активационный распад слабого раствора ($x < 0.5$ мол. %) может протекать через образование и рост неравновесного зародыша [36].

Приведем некоторые оценки параметров критических зародышей вблизи границы их спонтанного вскипания в двух газонасыщенных растворах, отличающихся разной растворимостью летучего компонента. При $p = 2$ МПа, $T = 175.0$ K в растворе метан–гелий, содержащем $x = 0.10$ мол. % гелия, в области с размером критического пузырька $R_* = 4.7$ нм находится примерно 5 атомов гелия и 4720 молекул метана. После образования зародыша – 22 атома гелия и 755 молекул метана. Таким образом, в процессе зародышеобразования объем критического размера покидают преимущественно молекулы метана и требуется дополнительный приток недостающих 17 атомов гелия. В растворе этан–азот ($p = 1.0$ МПа, $T = 269.0$ K, $x = 1.5$ мол. %) радиус критического пузырька $R_* \approx 4.9$ нм. Концентрация азота в пузырьке – 13.7 мол. %. Он содержит 55 молекул азота и 349 молекул этана. До образования пузырька в растворе такого объема находилось 3990 молекул этана и 60 молекул азота. Диффузионный подвод молекул летучего компонента, по-видимому, не нужен, а изменение количества молекул азота может произойти за счет теплового движения.

Как свидетельствуют данные молекулярно-динамического моделирования зародышеобразования в системах типа метан–гелий, метан–водород [37, 38], спонтанному образованию пузырьков всегда предшествуют значительные флуктуации состава раствора. В результате таких флуктуаций в растворе появляются “сгустки” из частиц летучего компонента. Так как силы притяжения между частицами растворенного газа и растворителя существенно слабее, чем силы притяжения между частицами растворителя, то пузырек образуется, как правило, на таких “сгустках”. Это обеспечивает при формировании критического зародыша тот недостаток частиц летучего компонента, который имеет место в однородном растворе.

Сразу после появления пузырька в слабом однородном растворе состав паровой фазы в нем будет такой же, что и первоначальный состав жидкости. Слой жидкости, прилегающий к поверхности пузырька, обедняется летучим компонентом до состава, равновесного для состава пара. Если характерное время формирования пузырька меньше характерного времени диффузионного подвода к его границе дополнительного количества летучего компонента, то пузырек при заданной температуре находится в состоянии временного равновесия с окружением, но с другим составом. Равновесное давление в таком пузырьке определяется выражением (3), в котором давление p_s, равновесное для состава x жидкости вдали от пузырька, должно быть заменено давлением p', равновесным для состава пара x'. В этом случае давление в жизнеспособном пузырьке минимального размера меньше p_*' и, соответственно, работа его образования больше W_*. Описанный сценарий при использовании работы образования такого “квазиравновесного” зародыша в КТЗ должен привести к повышению расчетных значений температуры достижимого перегрева газонасыщенных растворов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследован процесс образования зародышей парогазовой фазы в слабых растворах алканов: метан–гелий, метан–водород, пропан–гелий, пропан–водород, этан–азот, этан–метан. Максимальное значение концентрации раствора определялось давлением в перегреваемом объеме и не превышало 0.05 мол. % для наименее растворимого вещества – гелия, достигая 6 мол. % при растворении метана. Растворенный газ понижает температуру достижимого перегрева жидких ал-

канов и их предельное растяжение. При этом перегрев $\Delta T_n = T_n - T_s$, ввиду более значительного снижения температуры насыщения, растет.

Для всех исследованных растворов при $x < 0.3$ мол. % полученные в эксперименте температуры перегрева ($J = 10^6$–10^8 м$^{-3}$ с$^{-1}$) ниже рассчитанных по КТЗ в макроскопическом приближении. В растворах с высокой растворимостью летучего компонента этан–азот и этан–метан они превышают теоретические значения соответственно при $x > 0.5$ и $x > 3$ мол. %.

Одно из отличий раствора от однокомпонентной жидкости – наличие адсорбции растворенного вещества на межфазной границе. В зависимости от природы адсорбируемого компонента и растворителя поверхностное натяжение раствора может как понижаться, так и повышаться. Кроме того, характер размерной зависимости поверхностного натяжения пузырька в растворе отличается от таковой в однокомпонентной жидкости. Здесь поверхностное натяжение критического пузырька может превышать его значение на плоской межфазной границе.

Сопоставление КТЗ и эксперимента предполагает, что время прохождения зародышем критической области активационного барьера превышает время установления адсорбционного равновесия на границе пузырек–раствор. Это условие может нарушаться в газонасыщенной системе и должно приниматься во внимание при интерпретации результатов экспериментов по кинетике зародышеобразования в растворах.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 18-19-00276, https://rscf.ru/project/18-19-00276/.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Salla J., Demichela M., Casal J.* BLEVE: A New Approach to the Superheat Limit Temperature // J. Loss Prev. Process Ind. 2006. V. 19. P. 690.
2. *Pruess K., Narasimhan T.N.* On Fluid Reserves and the Production of Superheated Steam from Fractured, Vapor-dominated Geothermal Reservoirs // J. Geophys. Research: Solid Earth. 1982. V. 87. P. 9329.
3. *Sahagian D.* Eruptive Shearing of Tube Pumice: Pure and Simple // Nature (London). 1999. V. 402. P. 589.
4. *Rubin M.B., Noyes R.M.* Thresholds for Nucleation of Bubbles of Nitrogen in Various Solvents // J. Phys. Chem. 1992. V. 96. P. 993.
5. *Abbasi T., Abbasi S.A.* The Boiling Liquid Expanding Vapour Explosion (BLEVE): Mechanism, Consequence Assessment Management // J. Hazard. Mat. 2007. V. 141(3). P. 489.
6. *Hemmingsen E.A.* Supersaturation of Gases in Water: Absence of Cavitation on Decompression from High Pressure // Science. 1970. V. 167. P. 1493.
7. *Mori Y., Hijikata K., Nagatani T.* Effect of Dissolved Gas on Bubble Nucleation // Int. J. Heat Mass Transfer. 1976. V. 19. № 10. P. 1153.
8. *Forest T.W., Ward C.A.* Effect of a Dissolved Gas on the Homogeneous Nucleation Pressure of a Liquid // J. Chem. Phys. 1977. V. 66. № 6. P. 2322.
9. *Volmer M.* Kinetik der Phasenbildung. Dresden–Leipzig, 1939.
10. *Ward C.A., Balakrishnan A., Hooper F.C.* On the Thermodynamics of Nucleation in Weak Gas-liquid Solutions // Trans. ASME. 1970. V. 92. № 4. P. 695.
11. *Несис Е.И., Френкель Я.И.* Вскипание газированной жидкости // ЖТФ. 1952. Т. 22. С. 1500.
12. *Дерягин Б.В., Прохоров А.В.* К теории вскипания газированной жидкости // Коллоидный журнал. 1982. Т. 44. № 5. С. 847.
13. *Куни Ф.М., Огенко В.М., Ганюк Л.Н., Гречко Л.Г.* Термодинамика распада пересыщенного газом раствора // Коллоидный журнал. 1993. Т. 55. № 2. С. 22.
14. *Мелихов А.А., Трофимов Ю.В., Куни Ф.М.* Теория преодоления активационного барьера при распаде пересыщенного газом раствора // Коллоидный журнал. 1994. Т. 56. № 2. С. 201.
15. *Baidakov V.G.* Nucleation in Superheated Gas-saturated Solutions: 1. Boiling-up Kinetics // J. Chem. Phys. 1999. V. 110. № 8. P. 3955.
16. *Baidakov V.G.* Explosive Boiling of Superheated Cryogenic Liquids. Weinheim: Wiley–VCH, 2007. 340 p.
17. *Staufer D.* Kinetic Theory of Two-component ("Hetero-molecular") Nucleation and Condensation // J. Aerosol Sci. 1976. V. 7. № 4. P. 319.
18. *Trinkaus H.* Theory of the Nucleation of Multicomponent Precipitates // Phys. Rev. B. 1988. V. 27. № 12. P. 7372.
19. *Зицерман В.Ю., Бережковский А.М.* Теория многокомпонентной нуклеации с обходом седловой точки // ЖФХ. 1990. Т. 64. № 7. С. 1795.
20. *Bowers P.G., Hofstetter C., Letter C.R., Toomey R.T.* Supersaturation Limit for Homogeneous Nucleation of Oxygen Bubbles in Water at Elevated Pressure: "Super-Henry's Law" // J. Phys. Chem. 1995. V. 99. № 23. P. 9632.
21. *Bowers P.G., Bar-Eli K., Noyes R.M.* Unstable Supersaturated Solutions of Gas in Liquids and Nucleation Theory // J. Chem. Soc. Faraday Trans. 1996. V. 92. № 16. P. 2843.
22. *Kwak H., Panton R.L.* Gas Bubble Formation in Nonequilibrium Water-gas Solutions // J. Chem. Phys. 1983. V. 78. № 9. P. 5795.
23. *Байдаков В.Г., Каверин А.М., Скрипов В.П.* Кинетика флуктуационного вскипания перегретого жидкого метана // Коллоидный журнал. 1980. Т. 42. № 2. С. 314.
24. *Байдаков В.Г., Каверин А.М., Сулла И.И.* Достижимый перегрев жидкого этана // ТВТ. 1989. Т. 27. № 2. С. 410.
25. *Байдаков В.Г., Каверин А.М., Скрипов В.П.* Кинетика флуктуационного вскипания перегретых пропана и изобутана// Журн. физ. хим. 1986. Т. 60. № 2. С. 444.
26. *Зельдович Я.Б.* Теория образования новой фазы. Кавитация // ЖЭТФ. 1942. Т. 12. № 11/12. С. 525.
27. *Скрипов В.П.* Метастабильная жидкость. М.: Наука, 1972. 312 с.
28. *Байдаков В.Г.* Спонтанное зародышеобразование в перегретых растворах гелия в метане // Коллоидный журнал. 2019. Т. 81. № 3. С. 281.

29. *Каган Ю.М.* О кинетике кипения чистой жидкости // Журн. физ. хим. 1960. Т. 34. № 1. С. 92.
30. *Baidakov V.G., Kaverin A.M., Pankov A.S.* Attainable Superheating of Liquid *n*-butane // Phys. Fluids. 2018. V. 30. P. 047102(5).
31. *Baidakov V.G., Grishina K.A.* Capillary Constant and Surface Tension of Methane–Helium Solutions // Fluid Phase Equilib. 2013. V. 354. P. 245.
32. *Baidakov V.G., Kaverin A.M., Grishina K.A., Khotienkova M.N.* Surface Tension of Alkanes Saturated with Helium or Hydrogen // Int. Phenomena Heat Transfer. 2018. V. 5. № 2. P. 97.
33. *Baidakov V.G., Kaverin A.M., Khotienkova M.N., Andbaeva V.N.* Surface Tension of an Ethane–Nitrogen Solution: 1. Experiment and Thermodynamic Analysis of the Results // Fluid Phase Equilib. 2012. V. 328. P. 13.
34. *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. № 11. P. 3032.
35. *Baidakov V.G., Khotienkova M.N.* Surface Tension of Methane–Nitrogen Solutions: 2. Description in the Framework of the van der Waals Gradient Theory// Fluid Phase Equilib. 2016. V. 424. P. 402.
36. *Baidakov V.G., Protsenko S.P., Bryukhanov V.M.* Relaxation Processes at Liquid–Gas Interfaces in One- and Two-component Lennard–Jones Systems: Molecular Dynamics Simulation // Fluid Phase Equilib. 2019. V. 481. P. 1.
37. *Protsenko S.P., Baidakov V.G., Teterin A.S., Zhdanov E.R.* Computer Simulation of Nucleation in a Gas-saturated Liquid // J. Chem. Phys. 2007. V. 126. № 9. P. 094502(14).
38. *Bryukhanov V.M., Baidakov V.G.* Phase Equilibria and Stability Boundaries in a Two-component Lennard–Jones Mixture // Fluid Phase Equilib. 2022. V. 557. P. 113413.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 619–624

УДК 536.24

РЕЖИМЫ КИПЕНИЯ ГЕЛИЯ II НА ЦИЛИНДРИЧЕСКОМ НАГРЕВАТЕЛЕ ВНУТРИ ПОРИСТОЙ СТРУКТУРЫ[1]

© 2023 г. Ю. Ю. Пузина*, А. П. Крюков**

ФГОУ ВО "Национальный исследовательский университет "МЭИ", Москва, Россия

**E-mail: Puzina2006@inbox.ru*

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

Поступила в редакцию 12.09.2022 г.
После доработки 02.12.2022 г.
Принята к публикации 06.12.2022 г.

Рассматриваются экспериментальные данные по исследованию кипения сверхтекучего гелия (гелия II) на цилиндрическом нагревателе внутри пористой структуры. На основании анализа видеозаписей дана классификация режимов тепломассопереноса, характеризующихся существенным видоизменением формы границы раздела фаз. Представлены значения тепловых потоков и температур нагревателя, оценена степень неравновесности соответствующих процессов переноса.

DOI: 10.31857/S0040364423030171

ВВЕДЕНИЕ

Исследование теплопередачи к сверхтекучему гелию в стесненных условиях позволяет оценить эффективность криостатирования сверхпроводящих устройств различного назначения (магниты ускорителей, кабели, аппараты магнитно-резонансной томографии). Использование пористых покрытий катушек и кабелей способствует проникновению гелия II непосредственно к захолаживаемому объекту, в результате чего эффективность отвода тепла через микроканалы этих пористых структур повышается. В статье [1] экспериментально показано, что применение пористого покрытия повышает эффективность криостатирования в несколько раз путем увеличения как пиковой нагрузки, при которой начинается образование пара, так и восстановительной, при которой паровая пленка на тепловыделяющей поверхности пропадает и достигается непосредственный контакт жидкость–нагреватель.

Экспериментальные исследования процессов тепломассопереноса в сверхтекучем гелии (температура $T < 2.17$ K) сопровождаются известными трудностями, связанными с высоким уровнем теплопритоков из окружающей среды и необходимостью их постоянной компенсации за счет вакуумной откачки паров насыщенной жидкости (давление $P < 5 \times 10^3$ Па). Из-за этих сложностей осуществлено лишь ограниченное количество исследований, посвященных кипению гелия II при уровне удельных тепловых нагрузок (тепловых потоков), превышающем 10^4 Вт/м^2, причем в основном на тонких (10–100 мкм) нагревательных элементах. Так, например, в [2] использовался нагреватель диаметром 50 мкм, причем авторы не смогли добиться формирования стабильной паровой пленки. Только применение таких нагревателей в экспериментах при микрогравитации [3] позволило получить практически идеальную гладкую границу раздела фаз сферической формы за счет действия сил поверхностного натяжения. Вместе с тем в [4, 5] на проволоках-нагревателях относительно небольшого диаметра (0.2–0.8 мм) при нагрузке $(2–5) \times 10^4$ Вт/м^2 наблюдались образование и существование в течение достаточно длительного времени паровых пленок с гладкими межфазными поверхностями гелий II–пар.

Характер тепломассопереноса для двухфазных систем в сверхтекучем гелии отличается от аналогичных явлений в неквантовых жидкостях, включая криогенные. Для таких систем необходима подготовка специального оборудования [6], которое позволяет, например, исследовать явления, возникающие на поверхности He II в ячейках различных размеров и формы (различные граничные условия) при возбуждении волн в широком диапазоне частот. При этом некоторые физические исследования невозможны без использования ультранизких температур в несколько милликельвинов, которые можно получить с использованием технологии непрерывного охлаждения в криостатах растворения ^{3}He–^{4}He относительно большой мощности [7].

Процессы в сверхтекучем гелии особенно при высоких тепловых потоках описываются на осно-

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

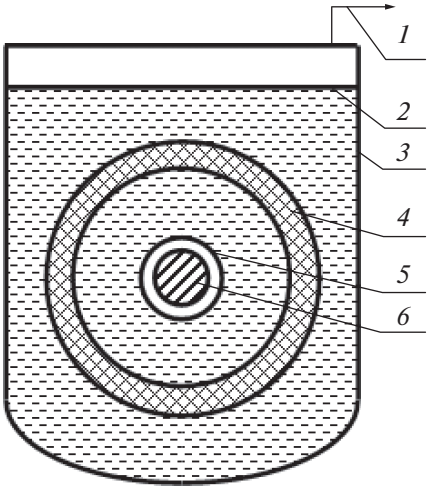

Рис. 1. Схема эксперимента: *1* – линия вакуумной откачки, *2* – свободный уровень жидкости, *3* – криостат, *4* – пористая структура, *5* – паровая пленка, *6* – цилиндрический нагреватель.

вании методов гидродинамики сверхтекучей турбулентности [8], что позволяет проанализировать влияние квантовых эффектов на формирование волн второго звука. Развитие техники эксперимента дает возможность проводить изучение вихревого движения, создаваемого волнами на поверхности сверхтекучего гелия [9] с помощью зарядов, инжектированных в объем жидкости.

Результаты расчета [10] показывают, что переход к использованию пористой структуры должен подавлять колебания паровой пленки при кипении гелия II, однако в экспериментах [11] обнаружено отличие картины кипения внутри пористой структуры как от обычных жидкостей, так и от кипения гелия II в большом объеме. Тем не менее удается получить в таких условиях и замкнутую паровую пленку [12]. Недостаточно полная информация о поведении сверхтекучего гелия в каналах пористой структуры в ограниченном объеме особенно при высоких тепловых потоках, обусловливающих кипение жидкости, стала мотивацией для проведения исследований, представленных в настоящей работе.

1. ПРОВЕДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Общая схема экспериментального стенда для исследования процессов тепломассопереноса в сверхтекучем гелии, подготовка и методика проведения исследований представлены в [11].

Экспериментальный стенд включает в себя системы криостатирования, вакуумной откачки, оптического наблюдения, цифровой видеозаписи, подачи тепловой нагрузки и измерения режимных параметров. На рис. 1 схематично изображены криостат, линия вакуумной откачки и экспериментальная ячейка, которая является центральным элементом установки [13]. Цилиндрический корпус ячейки представляет собой трубу из нержавеющей стали с внутренним диаметром 36 мм. На боковой поверхности этой оболочки выполнены сверления для обеспечения ее проницаемости для пара, образующегося при кипении гелия II. Внутрь корпуса вкладывается пористая структура *4* толщиной 7.5 мм из 10 намотанных слоев стальной тканой сетки (диаметры основы – 0.12, утка – 0.1, плетения – 0.44 мм). На оси ячейки горизонтально крепится цилиндрический нагреватель *6* на Г-образный изогнутый стержень. Наружная поверхность цилиндрического нагревателя представляет собой латунную трубку диаметром 3 мм и длиной 30 мм, внутри которой находится намотка из нихромовой проволоки [13].

Давление пара P'' над зеркалом жидкости во внутреннем сосуде гелиевого криостата контролируется с помощью присоединенного к нему ртутного чашечного манометра МЧР-4. В автоматическом режиме значения давления записываются емкостным датчиком “Баратрон” (модели 235). Для измерения температур жидкости и поверхности нагревателя установлены температурные датчики сопротивления, базирующиеся на ТВО-резисторах[2] [14]. Один из термодатчиков прикреплен к внешней боковой поверхности нагревателя вблизи Г-образного металлического держателя. Другой датчик располагался свободно во внутреннем сосуде Дьюара для измерения температуры жидкости вне экспериментальной ячейки. Также измерялась температура жидкости вблизи внутренней и внешней поверхностей пористой структуры. Подача тепловой нагрузки q_w на нагреватель обеспечивалась программируемым источником питания Rigol DP821A. Для автоматического сбора и обработки результатов эксперимента использовались модули АЦП-ЦАП ZetLAB 230 и 220.

Экспериментальная серия начинается в момент подачи напряжения на нагреватель. Исследуемый диапазон тепловых нагрузок – 10^4–3.5×10^4 Вт/м^2. Подача тепловой нагрузки q_w на нагреватель приводит к образованию паровой пленки *5* (рис. 1) и выходу пара из экспериментальной ячейки через пористую структуру в криостат. Наблюдение осуществляется с торца экспериментальной ячейки. Изменение давления пара над зеркалом жидкости и соответствующей температуры равновесной жидкости, а также увеличение температуры нагревателя T_w по мере нагревания приводят к видоизменению границы раздела фаз, что фиксируется визуально. Диапазон изменения температуры жидкости – 1.61–2.17 K, давления в криостате – 800–5000 Па. Температура нагревателя T_w зависит от режима кипения и может варьироваться от 5–6 K

[2] ТВО-резистор – термовлагостойкий объемный резистор.

в момент образования пленки пара до 200 K. Эксперименты для каждого значения плотности теплового потока проводятся в условиях монотонного увеличения во времени давления в рабочей камере и температуры жидкости. Экспериментальная сессия заканчивается выключением нагрузки при достижении жидкостью температуры λ-точки (2.17 K) или при существенном повышении температуры нагревателя (выше 200 K).

2. КИПЕНИЕ ВНУТРИ ПОРИСТОЙ СТРУКТУРЫ

В результате проведенных экспериментов при постоянной тепловой нагрузке нагревателя получены различные режимы кипения гелия II внутри пористой структуры при различных температурах жидкости. Систематически появляются четыре различные формы межфазной поверхности жидкость–пар: 1) бесшумовой режим тонкой пленки; 2) шумовой режим толстой пленки; 3) режим перевернутого “колокола”; 4) гладкая межфазная поверхность под нагревателем. Переход между режимами осуществляется через развитие колебаний границы раздела фаз при изменении внешних параметров.

2.1. Беспленочный режим кипения. Так же как и ранее, для случая кипения в большом объеме [4] при тепловой нагрузке меньше пиковой обнаружен режим теплоотдачи без видимых паровых образований (рис. 2). Температура нагревателя могла достигать 5 K, в этом случае вблизи нагревателя наблюдается изменение оптических свойств жидкости, которые, по всей видимости, связаны с образованием микропузырей на поверхности нагревателя. На рис. 2–6 в нижней части видны Г-образный крепеж и провода температурных датчиков.

2.2. Бесшумовой режим тонкой пленки. Увеличение теплового потока q_w приводит к тому, что при некотором его значении на поверхности нагревателя образуется тонкая пленка пара с коаксиальной границей раздела фаз жидкость–пар (рис. 3). Такую величину q_w часто называют пиковой тепловой нагрузкой. В отличие от кипения классических жидкостей, формирование гладкой устойчивой паровой пленки в гелии II не сопровождается отрывом паровых конгломератов и пузырей. Теплоперенос осуществляется теплопроводностью от нагревателя через пар, далее теплота поступает в жидкость, где эффективность переноса существенно выше [15], чем для обычных жидкостей, поэтому испарения с межфазной поверхности гелий II–пар не происходит. Подобного рода картину можно наблюдать при кипении недогретых до состояния насыщения жидкостей [16–18], а также, вероятно, в жидких металлах [19].

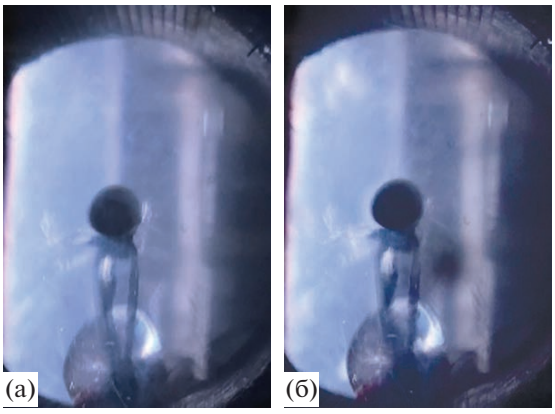

Рис. 2. Фотографии эксперимента при отсутствии видимого кипения: (а) – без нагрузки; (б) – $P' = 1000$ Па, $q_w = 1.09 \times 10^4$ Вт/м^2, $T_w = 3.85$ K.

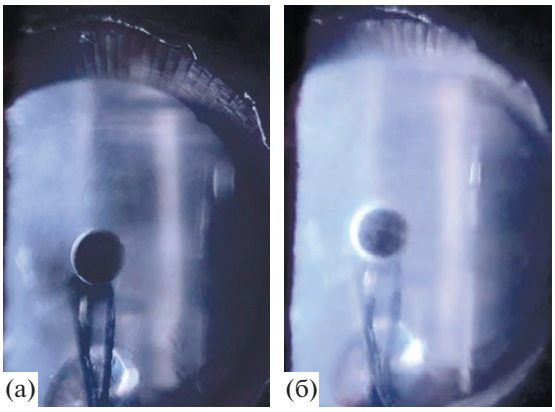

Рис. 3. Фотографии эксперимента в режиме кипения с замкнутой тонкой пленкой: (а) – $P' = 3500$ Па, $q_w = 2.45 \times 10^4$ Вт/м^2, $T_w = 6.83$ K; (б) – 1200, 3.33×10^4, 11.45.

Для такой тонкой пленки (толщиной 50–500 мкм) степень неравновесности процесса теплопереноса на межфазной поверхности $q = \dfrac{q_w}{P''\sqrt{2RT}}$ оценивается при разных тепловых нагрузках и температурах жидкости на уровне 0.02–0.3 (например, для параметров, соответствующих рис. 3а, степень неравновесности $q = 0.077$; для параметров рис. 3б $q = 0.31$), что обусловливает необходимость применения неравновесных граничных условий [20] при определении толщины паровой пленки (подобно см. статью [21]).

Эксперименты показали, что область существования гладких устойчивых паровых пленок в земных условиях так же, как и для случая свободного объема [4], весьма ограниченна, хотя предварительные аналитические исследования пред-

полагали наличие только таких пленок пара [10]. В ряде случаев на поверхности пленки видны поверхностные колебания. При флуктуации параметров эксперимента паровая пленка теряет свою форму и происходит переход в толстую шумовую пленку или перевернутую колоколообразную (см. ниже).

2.3. Шумовой режим толстой пленки. В данном режиме на поверхности нагревателя образуется толстая паровая пленка (толщиной 0.5–4 мм) и кипение сопровождается явно слышимым шумом (рис. 4). Пленка, в целом оставаясь устойчивой, претерпевает поверхностные колебания границы раздела фаз. При этом по сравнению с режимом тонкой пленки толщина ее не остается постоянной по сечению. Очевидно, что поскольку толщина пленки существенно возрастает, для описания процессов на границе раздела фаз следует использовать формулу, полученную в цилиндрической геометрии [22]. Результаты расчетов показывают, что как для случая неподвижной межфазной поверхности [23], подобно рассмотренной в п. 2.2, так и в случае движения границы раздела фаз пар–жидкость [24] нестационарная стадия кинетической релаксации заканчивается за время, меньшее, чем интервал между кадрами видеосъемки 1/30 с.

2.4. Режим перевернутого колокола. Нарушение устойчивости границы раздела фаз в режиме тонкой бесшумовой пленки или развитие колебаний в режиме шумовой толстой пленки приводят к качественному изменению характера кипения. Образующийся пар вытесняет из внутренней полости ячейки значительную часть жидкого гелия. Пар скапливается в верхней части ячейки, обволакивая изнутри пористую оболочку. Формируется единое паровое пространство от нагревателя до верхней образующей, визуально в сечении похожее на перевернутый колокол (рис. 5). Как обсуждалось ранее [11], такой режим кипения не наблюдается в свободном объеме, его протекание обусловлено именно замкнутым пространством пористой оболочки.

2.5. Плоская межфазная поверхность под нагревателем. “Перевернутый колокол” изменяется в размерах таким образом, что расстояние между образующими увеличивается и видимое сечение парового пространства начинает занимать более половины объема внутренней цилиндрической полости пористой оболочки. С развитием колебаний границы раздела фаз развал “колокола” усиливается, затем уровень жидкости внутри ячейки опуска-

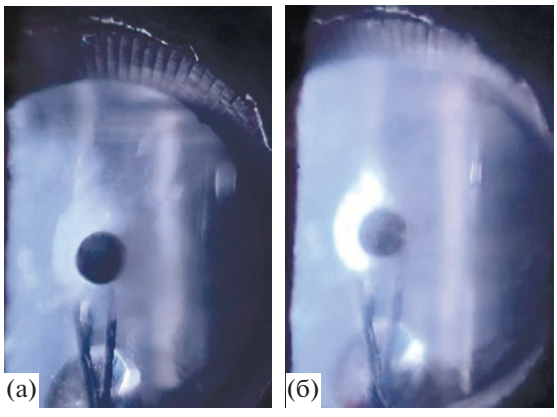

Рис. 4. Фотографии эксперимента в режиме шумового кипения с замкнутой толстой пленкой: (а) – P' = = 3800 Па, $q_w = 2.45 \times 10^4$ Вт/м^2, $T_w = 15.15$ K; (б) – 1500, 3.33×10^4, 27.36.

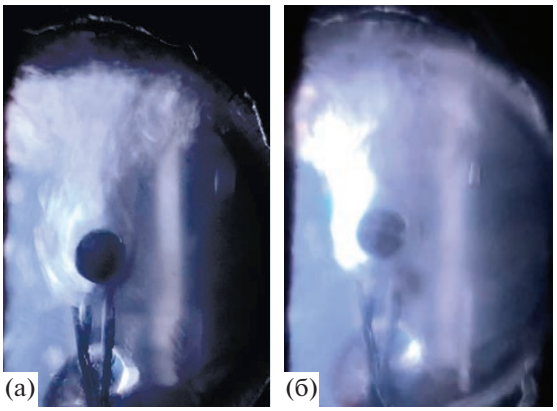

Рис. 5. Фотографии эксперимента в режиме кипения с перевернутой колоколообразной пленкой: (а) – P' = 4300 Па, $q_w = 2.45 \times 10^4$ Вт/м^2, $T_w = 40.38$ K; (б) – 3200, 3.33×10^4, 90.67.

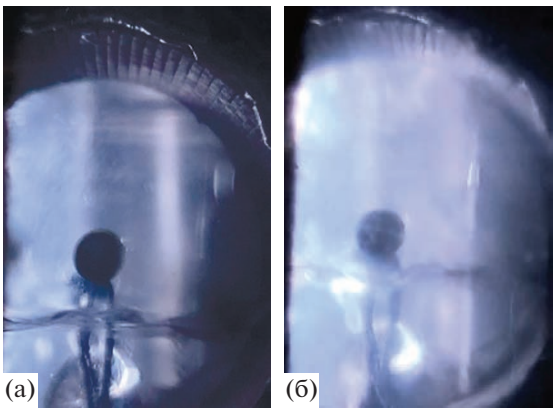

Рис. 6. Фотографии эксперимента в режиме кипения с разомкнутой паровой пленкой: (а) – P' = 4900 Па, $q_w = 2.45 \times 10^4$ Вт/м^2, $T_w = 155.68$ K; (б) – 4400, $3.33 \times$ $\times 10^4$, 126.17.

ется ниже нагревателя. Паровая пленка при этом вырождается, а внутри ячейки видна гладкая устойчивая плоская межфазная поверхность пар–гелий II на некотором расстоянии от нагревателя (рис. 6). Таким образом, происходит расслоение пара и жидкости внутри ячейки: пар занимает верхнюю часть внутреннего пространства пористой структуры, жидкость – нижнюю, меньшую, часть, а граница раздела фаз представляет собой горизонтальную плоскость под нагревателем.

При этом температура нагревателя может достигать 200 K, а гелий, как показывают датчики давления и температуры, все еще остается в сверхтекучем состоянии.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основании проведенных экспериментальных исследований впервые выделены режимы кипения сверхтекучего гелия на цилиндрическом нагревателе, размещенном внутри коаксиальной пористой структуры. Описаны характерные особенности процессов в рассматриваемом диапазоне параметров, обсуждаются отличия протекания исследуемых процессов в свободном объеме и стесненных условиях, а также переходы между режимами в виде развития колебаний межфазной поверхности сверхтекучий гелий–пар. Возникновение различных форм границы раздела пар–жидкость обусловлено изменением условий существования неравновесной двухфазной системы. Так, например, при $q_w = 2.45 \times 10^4$ Вт/м^2 и глубине погружения 80 мм тонкая пленка возникает в интервале температур жидкости 2.03–2.1 K, тогда как при $q_w = 3.33 \times 10^4$ и глубине погружения 237 мм тонкая пленка появляется в интервале температур 2.05–2.08 K. Таким образом, режим кипения в рассмотренных условиях определяется независимыми параметрами эксперимента: глубиной погружения, температурой жидкости и тепловым потоком.

Авторы благодарят за совместную работу над экспериментом и последующей обработкой полученных данных И.А. Ячевского, И.В. Володина, И.А. Корнякова.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-08-00342).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Arend I., Li Y.Z., Liiders K., Ruppert U.* Heat Flux Investigations on Wires Coated with Porous Insulation in Superfluid Helium // Cryogenics. 1996. V. 36. P. 215.
2. *Takada S., Murakami M., Kimura N.* Heat Transfer Characteristics of Four Film Boiling Modes Around a Horizontal Cylindrical Heater in He II // AIP Conf. Proc.: Transac. Cryogenic Engineering Conf.–CEC: Adv. Cryog. Eng. 28 June–2 July 2009, Tucson, Arizona. 2010. V. 1218. P. 1355.
3. *Takada S., Kimura N., Pietrowicz S., Grunt K., Murakami M., Okamura T.* Visualization of He II Boiling Process under the Microgravity Condition for 4.7 s by Using a Drop Tower Experiment // Cryogenics. 2018. V. 89. P. 157.
4. *Спиридонов А.Г.* Экспериментальное исследование теплоотдачи к сверхтекучему гелию. Дис. ... канд. тех. наук. М.: МЭИ, 1981. 168 с.
5. *Лабунцов Д.А., Аметистов Е.В., Спиридонов А.Г.* Исследование пленочного режима кипения сверхтекучего гелия (He-II) // Теплоэнергетика. 1981. № 4. С. 18.
6. *Левченко А.А., Межов-Деглин Л.П., Пельменёв А.А.* Низкотемпературная вставка для изучения явлений на поверхности сверхтекучего гелия // ПТЭ. 2016. № 6. С. 133.
7. *Усов Ю.А.* Юбилейный год реализации метода получения сверхнизких температур путем растворения ^{3}He в ^{4}He // Новости ОИЯИ. 2016. № 4. С. 20.
8. *Кондаурова Л.П., Немировский С.К.* Численное исследование эволюции интенсивных волн второго звука в турбулентном сверхтекучем гелии // Теплофизика и аэромеханика. 2008. Т. 15. № 2. С. 237.
9. *Султанова М.Р., Левченко А.А., Ремизов И.А.* Регистрация вихревого движения в объеме сверхтекучего гелия по инжектированным зарядам // Наноиндустрия. 2021. Т. 14. № 56. С. 288.
10. *Крюков А.П., Пузина Ю.Ю.* Подавление колебаний границы раздела фаз пар–жидкость при кипении сверхтекучего гелия внутри пористого тела // ИФЖ. 2013. Т. 86. № 1. С. 24.
11. *Крюков А.П., Королев П.В., Пузина Ю.Ю.* Экспериментальное исследование кипения He-II внутри пористого тела // ПМТФ. 2017. № 4. С. 126.
12. *Korolyov P.V., Kryukov A.P., Puzina Yu.Yu., Yachevsky I.A.* The Formation of a Closed Vapor Film During the Boiling of Helium II on a Cylindrical Heater inside the Porous Structure // J. Phys.: Conf. Ser. 2020. V. 1675. 012059.
13. *Королев П.В., Крюков А.П., Пузина Ю.Ю.* Конструкция экспериментальной ячейки для исследования кипения гелия-II в условиях невесомости // Вопросы электромеханики. Тр. НПП ВНИИЭМ. 2012. Т. 130. № 5. С. 43.
14. *Filippov Yu.P., Miklyaev V.V.* A Comparison of Two Kinds of TVO Cryogenic Temperature Sensors // Cryogenics. 2019. V. 100. P. 85.
15. *Gorter C.J., Mellink J.H.* On the Irreversible Processes in Liquid Helium II // Physica. 1949. V. 15. № 3/4. P. 285.
16. *Григорьев В.С., Жилин В.Г., Зейгарник Ю.А., Ивочкин Ю.П., Глазков В.В., Синкевич О.А.* Поведение паровой пленки на сильно перегретой поверхности, погруженной в недогретую воду // ТВТ. 2005. Т. 43. № 5. С. 100.
17. *Duplyankin R.A., Glazkov V.V., Sinkevich O.A., Ivochkin Y.P., Kubrikov K.G.* Subcooled Pool Film

Boiling Heat Transfer from Sphere: Experiment and Modelling // J. Phys.: Conf. Ser. 2020. V. 1683. 022093.

18. *Yagov V.V., Zabirov A.R., Kaban'kov O.N., Minko M.V.* Heat Transfer During Cooling of High Temperature Spheres in Subcooled Water at Different Pressures // Int. J. Heat Mass Transfer. 2017. V. 110. P. 219.
19. *Двайер О.* Теплообмен при кипении жидких металлов. М.: Наука, 1980.
20. *Муратова Т.М., Лабунцов Д.А.* Кинетический анализ процессов испарения и конденсации // ТВТ. 1969. Т. 7. № 5. С. 959.
21. *Puzina Yu.Yu., Kryukov A.P., Yachevsky I.A.* Determination of the Vapor Film Thickness at Steady Superfluid Helium Film Boiling // J. Phys.: Conf. Ser. 2019. V. 1359. 012050.
22. *Королев П.В., Крюков А.П.* Описание теплопереноса через цилиндрическую межфазную поверхность жидкость–пар // ТВТ. 2016. V. 54. № 1. С. 73.
23. *Крюков А.П., Ястребов А.К.* Анализ процессов переноса в паровой пленке при взаимодействии сильно нагретого тела с холодной жидкостью // ТВТ. 2003. Т. 41. № 5. С. 771.
24. *Ястребов А.К., Крюков А.П.* Тепломассоперенос через пленку пара с учетом движения межфазной поверхности жидкость–пар и роста температуры границы раздела фаз // ТВТ. 2006. Т. 44. № 4. С. 560.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 625–631

ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫЕ АППАРАТЫ И КОНСТРУКЦИИ

УДК 621.039

МОДЕЛИРОВАНИЕ ГИДРОДИНАМИКИ И ТЕПЛООБМЕНА В КАНАЛАХ ПАРОГЕНЕРИРУЮЩИХ СИСТЕМ СУДОВЫХ ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК ИНТЕГРАЛЬНОГО ТИПА[1]

© 2023 г. О. В. Митрофанова, А. В. Федоринов*

Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, Россия

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

Поступила в редакцию 15.01.2023 г.
После доработки 13.03.2023 г.
Принята к публикации 11.05.2023 г.

В работе продемонстрирована возможность теоретического моделирования процессов гидродинамики и теплообмена в сложных каналах парогенераторов судовых ядерных энергетических установок интегрального типа. Приведена схема и кратко изложен принцип работы ядерного реактора и кассеты парогенератора. Построена сеточная модель прототипа теплообменного канала с двусторонним обогревом для выполнения теплогидравлических расчетов в программном комплексе ANSYS CFX, а также проведена верификация расчетной схемы на примере сравнения полученных результатов с экспериментальными данными.

DOI: 10.31857/S0040364423040117

ВВЕДЕНИЕ

Одной из отечественных разработок последних лет в сфере судовых ядерных энергетических установок (ЯЭУ) является двухреакторная установка РИТМ-200 с интегральной компоновкой, схема которой представлена на рис. 1. Новый ядерный реактор обладает большей мощностью, чем его предшественник КЛТ-40(М) блочного типа, входящий в состав ЯЭУ современных ледоколов. За счет перехода на интегрированную компоновку РИТМ-200 стал легче и компактнее. Преимущественно это было достигнуто за счет исполнения активной зоны и парогенераторов в едином корпусе. Такое конструкционное решение позволило значительно сократить количество корпусных конструкций, сварных соединений и длину трубопроводов. Габаритные размеры и массогабаритные характеристики паропроизводящей установки уменьшились, а ресурсные показатели улучшились.

Помимо вышедших в эксплуатацию ЯЭУ РИТМ-200, которые функционируют на атомном ледоколе "Арктика", а в скором времени будут работать и на атомном ледоколе "Сибирь", ведутся разработки серии интегральных установок для атомного ледокола "Лидер", плавучей атомной электростанции и атомной станции малой мощности. Этот факт говорит о явном направлении вектора развития транспортной ядерной энергетики России в сторону ЯЭУ интегрального типа.

В целях совершенствования современных судовых ЯЭУ, неотъемлемой частью которых являются парогенерирующие системы, все актуальнее становится вопрос об оптимизации характеристик надежности и безопасности таких систем и улучшения технико-экономических показателей. Возможной причиной этого являются недостаточные знания в области теплогидравлических процессов, протекающих в каналах сложной геометрии. Акцент настоящей работы поставлен на разработку методики расчетной схемы моделирования гид-

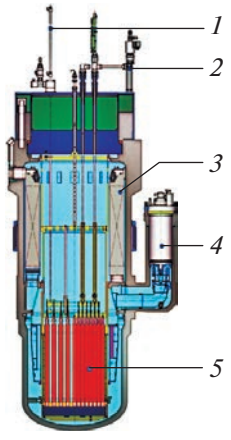

Рис. 1. ЯЭУ РИТМ-200: схема ядерного реактора.

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

родинамики и теплообмена для решения практических задач.

ОСОБЕННОСТИ ЭКСПЛУАТАЦИИ ПАРОГЕНЕРАТОРОВ СУДОВЫХ ЯЭУ

Атомный ледокол “Арктика” содержит в своем составе две ЯЭУ интегрального типа РИТМ-200. Схема ядерного реактора приведена на рис. 1.

Реакторная установка РИТМ-200 (рис. 1) представляет собой комплекс систем и оборудования, включающий в себя ядерный реактор и непосредственно связанные с ним компоненты, необходимые для нормальной эксплуатации и обеспечения безопасности установки, в процессе работы которых выполняется преобразование ядерной энергии в тепловую. Теплоноситель первого контура, проходя через активную зону *5*, нагревается до заданных параметров и затем поступает сверху вниз в двенадцать кассет парогенератора *3*, расположенных по периферии корпуса реактора над активной зоной. Отдавая свою энергию рабочему телу второго контура, теплоноситель поступает во всасывающую область четырех циркуляционных насосов первого контура *4* и затем возвращается на вход активной зоны, завершая цикл движения. Для быстрого перевода активной зоны реактора в подкритическое состояние, а также для компенсации избыточной реактивности и регулирования мощности реактора используются группы поглощающих стержней аварийной защиты *1* и стержни-поглотители системы компенсации реактивности *2* соответственно.

Кассета парогенератора представляет собой теплообменник прямоточного типа с теплопередающей поверхностью из прямотрубных парогенерирующих элементов. Греющий теплоноситель поступает во внутреннюю часть кассеты через верхний торец кожуха и, опускаясь в межтрубном пространстве, омывает теплообменные трубы. Отдав свое тепло рабочему телу второго контура, теплоноситель отводится из кассеты через патрубок в днище кожуха. Схема движения среды второго контура следующая: питательная вода поступает на вход кассеты в общую полость питательного коллектора, затем распределяется на семь парогенерирующих модулей, внутри которых расположены трубы парогенерирующих элементов. В них питательная вода нагревается, испаряется, перегревается до требуемых параметров и отводится из кассеты через паросборную полость коллектора.

Данные мониторинга теплогидравлических параметров в процессе эксплуатации всех типов парогенераторов судовых ЯЭУ выявили характерную закономерность снижения теплогидравлической эффективности судовой парогенерирующей установки при повышении мощности ядерного реактора. Данный эффект подробно описан в работе [1]. При этом усложнение конструкции теплообменного канала в парогенерирующей системе кассетного типа не привело к устранению проблем, выявленных при эксплуатации змеевиковых трубных систем.

Предпринятые в настоящей работе исследования направлены на совершенствование конструктивных особенностей парогенерирующих систем судовых ЯЭУ, повышение их эксплуатационной надежности и теплогидравлической эффективности.

РЕЗУЛЬТАТЫ ПРЕДВАРИТЕЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Прямотрубные парогенераторы, применяемые на интегральных судовых ЯЭУ четвертого поколения, имеют жесткие ограничения по своим массогабаритным характеристикам, так как от их размеров зависят компактность и технико-экономические показатели не только ядерного реактора, но и всего судна в целом. Решение этой проблемы потребовало рассмотрения вопроса о способе повышения теплогидравлической эффективности прямотрубных теплообменных аппаратов, который позволил бы, помимо вышеперечисленных требований, добиться необходимых энергетических характеристик ЯЭУ. В работе [2] проведены масштабные экспериментальные исследования по оценке возможности повышения тепловой производительности теплообменников. Наиболее простые способы решения этой проблемы, связанные с увеличением скорости теплоносителя или уменьшением диаметра теплообменных труб, в данном случае не являются энергетически выгодными, как и применение активных методов интенсификации теплообмена. Широкое применение в теплообменных аппаратах нашли пассивные способы интенсификации теплообмена, основанные на принципах турбулизации пограничного слоя за счет создания искусственной шероховатости и использования интенсификаторов теплообмена, применения закрутки потока, увеличения площади поверхности теплообмена за счет оребрения и усложнения конструкции каналов.

В настоящей работе рассмотрен способ повышения теплогидравлической эффективности теплообменных каналов прямотрубных парогенераторов за счет использования концепции двустороннего обогрева рабочего тела. В 1980-х гг. авторами книги [2] был разработан экспериментальный стенд и проведено исследование теплообменного канала с внутренней спирально навитой трубой при двустороннем обогреве. Подобное конструкционное решение объединяет в себе сразу два механизма интенсификации теплообмена: увеличение площади поверхности теплообмена за счет двустороннего обтекания нагреваемой среды теплоносителем и закрутку потока обеих сред, обеспечиваемые геометрией канала.

Экспериментальный участок представлял собой теплообменный элемент типа “труба в трубе” с двусторонним обогревом. В наружную круглую трубу вставлялась спирально навитая труба. Она касалась частью внешней поверхности внутренней стенки наружной трубы по винтовой линии. Наружная труба образовывала с корпусом теплообменного элемента кольцевой канал. Теплоноситель поступал в исследуемый теплообменный элемент сверху вниз. Часть его двигалась с внешней стороны теплообменного элемента, а часть – по внутренней спирально навитой трубе.

Движение нагреваемой среды было организовано в противоположном направлении в межтрубном эксцентричном кольцевом зазоре, образованном наружной цилиндрической и внутренней спирально навитой трубами. Значения температур стенок и текучих сред измерялись хромель-никелевыми термопарами и термозондами на различных участках по высоте канала. Схема теплотехнических измерений была разработана с учетом достижения необходимой точности при исследовании коэффициентов теплоотдачи (погрешность до 7%) и гидравлического сопротивления (погрешность до 5%).

В результате проведенных экспериментов получены зависимости коэффициента теплоотдачи, выраженного через параметр $K = \mathrm{Nu}/[(\mathrm{Pr}_f)^{0.43}(\mathrm{Pr}_f/\mathrm{Pr}_w)^{0.25}]$ и осредненного по пяти замеряемым участкам по высоте теплообменного канала. На рис. 2 представлены экспериментальные точки для серий измерений и обобщающие осредненные зависимости для различных относительных шагов навивки внутренней спирально навитой трубы S/d_2 и различного соотношения диаметра каналов $\theta = d_2/d_1$ в диапазоне Re от 2×10^3 до 3×10^4. Число Рейнольдса определялось по эквивалентному диаметру проходного сечения канала d' и среднерасходной скорости потока $\bar{u}$.

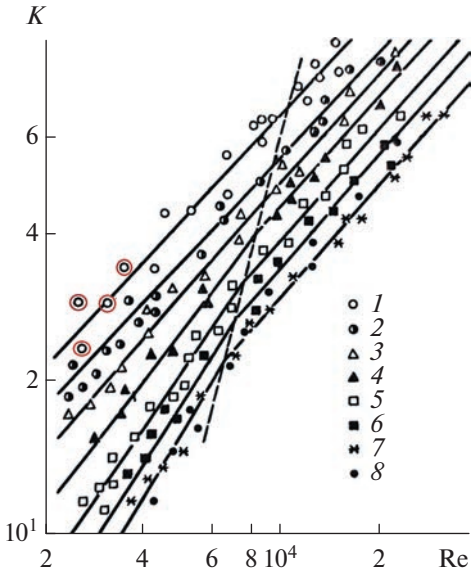

Рис. 2. Экспериментальная зависимость [2] параметра K от Re для различной геометрии каналов: *1* – S/d_2 = = 3.08, θ = 0.77; *2* – 4.92, 0.615; *3* – 4.92, 0.77; *4* – 7.39, 0.615; *5* – 8.62, 0.615; *6* – 7.39, 0.77; *7* – 8.62, 0.77; *8* – ∞, 0.77; красным обведены точки, выбранные для сравнения с теоретическим расчетом.

КРИЗИС ЗАКРУЧЕННОГО ПОТОКА

В работе [3] показано, что сложная конфигурация гидродинамического тракта в водо-водяных ЯЭУ, заключающая в себе огромное разнообразие элементов криволинейных каналов, в частности изгибов различного направления, а также участков с изменением проходного сечения каналов, формирует сложное закрученное течение теплоносителей в трубных системах, которое может приводить к явлению кризиса закрученного потока.

Теоретическое описание кризиса закрученного потока дано в работах академика И.И. Новикова [4, 5] применительно к открытым системам. На основании выполненных исследований было доказано, что кризис закрученного потока – это режим течения, при котором расходная скорость движения жидкости достигает скорости распространения длинных центробежных волн.

В [6] теоретическое описание условий возникновения кризиса закрученного потока распространено на замкнутые циркуляционные контуры.

Также в работе [3] была произведена серия исследований, посвященная математическому моделированию теплогидравлических процессов в каналах судовых ЯЭУ как на участках змеевиковых трубных систем парогенераторов (рис. 3а), так и в каналах системы компенсации давления (рис. 3б).

По результатам проведенных вычислительных экспериментов можно сделать вывод, что явление кризиса закрученного потока проявляется в случае, когда расходная скорость сложного вихревого дви-

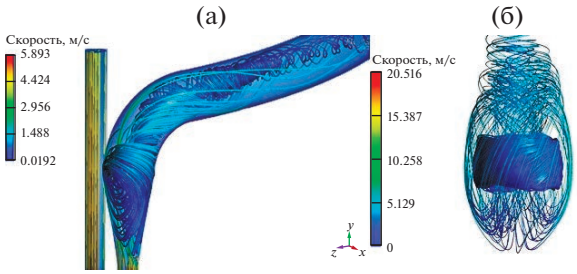

Рис. 3. Зона рециркуляционного течения в условиях кризиса закрученного потока (линии тока в 3D-геометрии): (а) – элемент гидравлического тракта парогенератора, (б) – элемент гидравлического тракта компенсатора давления.

жения теплоносителя достигает своего критического значения, равного скорости распространения длинных центробежных волн в рассматриваемой среде. В результате этого в канале происходит перераспределение давления, при котором продольный градиент давления сравнивается с его радиальным значением. Образовавшаяся при таких условиях область реверсивного спирально-винтового течения занимает большую часть проходного сечения канала. Данный эффект не только создает дополнительное гидравлическое сопротивление в канале, повышая мощность, требуемую для прокачки теплоносителя, но и усиливает низкочастотную составляющую акустического спектра, влекущую за собой появление в системе резонансных эффектов и вибрационных процессов, вследствие низкого собственного частотного диапазона оборудования ЯЭУ.

ПОСТРОЕНИЕ РАСЧЕТНОЙ СХЕМЫ КАНАЛА

В настоящей работе для вычислительного эксперимента рассмотрен одиночный канал с внутренней спирально навитой трубой, являющийся прототипом теплообменного канала парогенератора кассетного типа ЯЭУ РИТМ-200. Элемент расчетной модели и сеточное разбиение области нагреваемой среды приведены на рис. 4.

Граничные условия для решения задачи соответствовали двустороннему обогреву рабочего тела второго контура, который поступает в канал снизу вверх *5* и течет в асимметричном кольцевом зазоре *2*, образованном поверхностями, обтекаемыми теплоносителем первого контура. Теплоноситель первого контура в свою очередь течет сверху вниз как снаружи прямой трубы *3*, так и внутри спирально навитой трубы *1* с круглым поперечным сечением, а затем выходит через торцевую область канала *4*.

На рис. 4б представлено сеточное разбиение исследуемой области рабочего тела второго контура. Элементарная расчетная ячейка имеет форму тетраэдра. Для лучшего разрешения пограничного гидродинамического слоя применялось дополнительное сеточное разбиение из десяти тонких линейно возрастающих пристенных слоев с коэффициентом увеличения 1.3. Вырезанная область является математическим допущением, так как в зоне контакта внутренней и наружной труб толщина пристенного слоя меньше, чем размер элементарной сеточной ячейки.

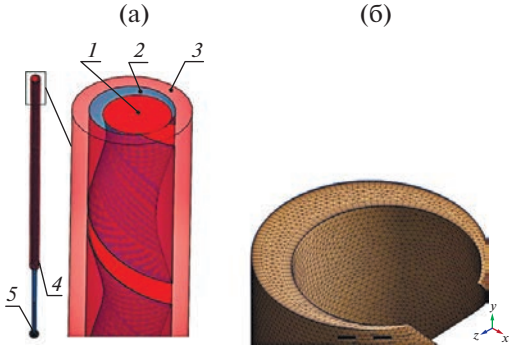

Рис. 4. Модель канала с внутренней спирально навитой трубой с двусторонним обогревом (а) и сеточное разбиение области второго контура (б).

РЕЗУЛЬТАТЫ ГИДРАВЛИЧЕСКОГО РАСЧЕТА

Моделирование процессов гидродинамики и теплообмена осуществлялось с помощью универсального программного обеспечения ANSYS, включающего расчетный пакет CFX.

Результаты гидродинамического расчета показали, что сложное винтовое течение имеет различную вихревую структуру и может привести к явлению кризиса закрученного потока. Объемное распределение поля скорости на участке поступления рабочего тела второго контура из прямой подводящей трубы в кольцевую область теплообменного канала представлено на рис. 5.

Аналогично области диффузорного расширения в змеевиковых трубных системах и системе компенсации давления (рис. 3) в рассмотренном канале также наблюдается эффект возвратного течения по сложным винтовым траекториям. Отличительной особенностью постановки задачи относительно двух вышеперечисленных случаев является тот факт, что в кольцевом канале отсутствует тангенциальный подвод теплоносителя на

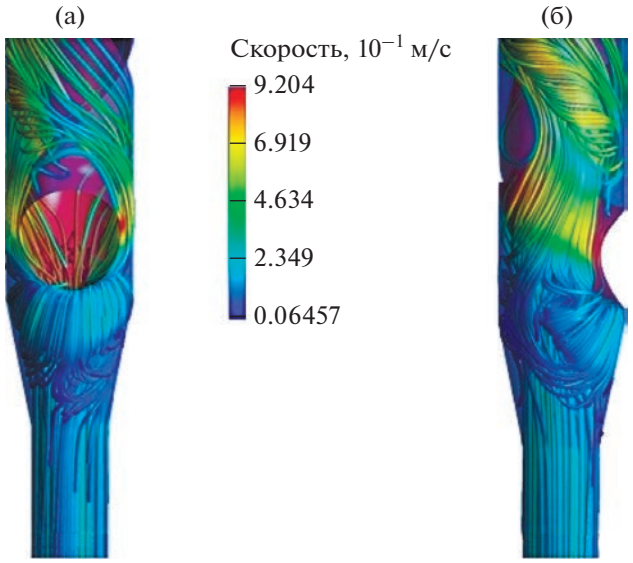

Рис. 5. Объемное распределение линий тока скорости в теплообменном канале с внутренней спирально навитой трубой: (а) – вид спереди, (б) – вид сбоку.

входе в трубу. Как было отмечено ранее, одним из условий кризиса закрученного потока является необходимый уровень интенсивности закрученного течения, однако даже без него в исследуемой задаче наблюдается область интенсивного реверсивного течения. Вследствие этого могут возникнуть эффекты пульсации давления, термоциклирования и возбуждения акустических колебаний, наличие которых отрицательно повлияет на прочность и шумность ЯЭУ [7, 8].

На рис. 6 представлены распределения полного давления и завихренности в поперечном сечении диффузора перед входом в кольцевой канал. Представленные характеристики демонстрируют переход к формированию сложной крупномасштабной вихревой структуры и относительно небольшой уровень частот в потоке жидкости, находящийся в диапазоне 10–50 Гц, близком к собственным частотам оборудования ЯЭУ, что может привести к резонансным взаимодействиям [9].

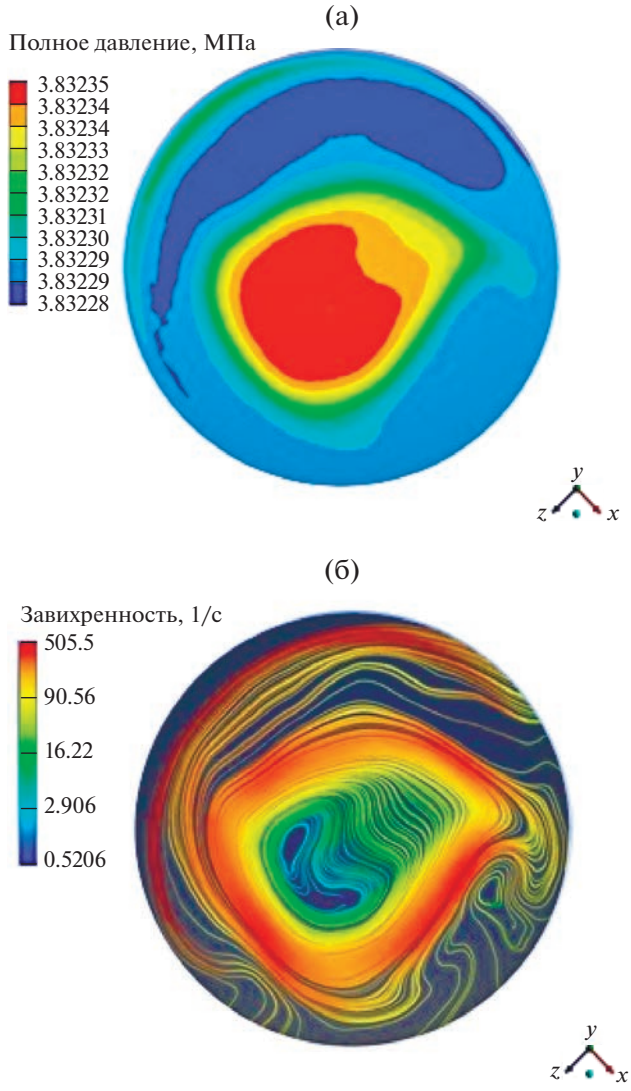

Рис. 6. Распределение полного давления (а) и завихренности (б) рабочего тела в поперечном сечении диффузора.

На рис. 7 приведены распределения характеристик потока: спиральности, полного давления, скорости и завихренности на теплообменном участке канала. После входа в кольцевую область распределения полного давления (рис. 7б) и продольной скорости (рис. 7в) по поперечному сечению выравниваются и сохраняют свою форму до конца расчетного участка, не имея ярко выраженных градиентов. При этом в потоке возникают два небольших по размеру стабильных вихря с противоположной закруткой (рис. 7а), вынесенных в наиболее затесненную область проходного сечения и примыкающих к наружной стенке внутренней спирально навитой трубы. Уровень частот (рис. 7г) в потоке жидкости внутри кольцевого канала отдаляется от частотного спектра, способного привести к резонансным взаимодействиям, и находится преимущественно выше значения 100 Гц.

ВЕРИФИКАЦИЯ РАСЧЕТНОЙ СХЕМЫ ТЕПЛООБМЕНА

Апробация предложенного метода для определения характеристик теплообмена кольцевого канала с внутренней спирально навитой трубой осуществлялась сравнением полученных результатов с экспериментальными данными, полученными в работе [2] и представленными на рис. 2.

Сложность данной задачи связана с тем, что расчетная область является зоной ламинарно-турбулентного перехода, т.е. выполнение расчета с применением моделей турбулентности может не дать точной картины теплообмена. К тому же, как видно по графику экспериментальных данных (рис. 6), значения точек могут отличаться на 20% при одних и тех же начальных условиях. На первом этапе решения из всего массива экспериментальных точек для сравнения были выбраны четыре, числа Рейнольдса которых соответствуют рабочим характеристикам ядерного реактора. Результаты сравнения при условии, что движение потока является турбулентным, показали, что полученные в ANSYS CFX значения коэффициента теплоотдачи попадают в доверительный интервал экспериментальных данных. Результаты сравнения коэффициентов теплоотдачи приведены в таблице.

Особое внимание при проведении вычислений уделено корректному определению коэффициента теплоотдачи.

По определению коэффициент теплоотдачи является интегральной характеристикой теплообмена, учитывающей вклад двух механизмов теплообмена: теплопроводности жидкости вблизи нагретой поверхности и конвекции в области развитого течения вдали от стенки. Поэтому для корректного сравнения значений коэффициента теплоотдачи,

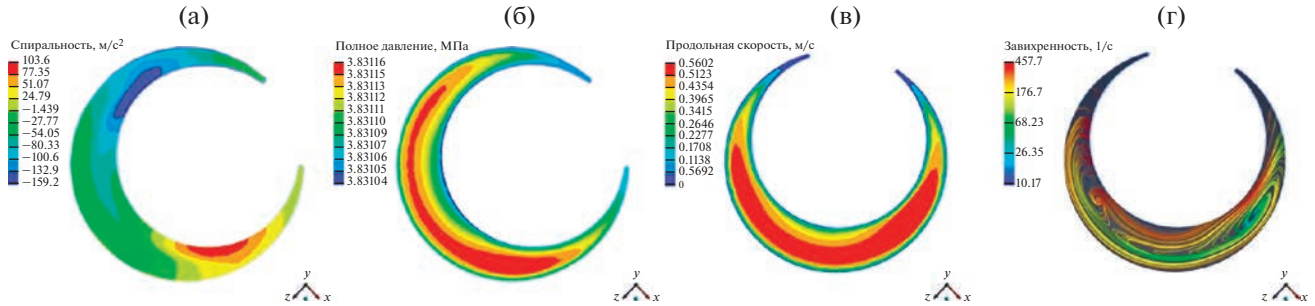

Рис. 7. Поле спиральности (а), полного давления (б), продольной скорости (в) и завихренности (г) в поперечном сечении кольцевого канала.

Значения коэффициентов теплоотдачи в исследуемом канале

Коэффициент теплоотдачи α, кВт/(м^2 K)			
Re	ANSYS(CFX) скорректированное значение	ANSYS(CFX) базовое значение	эксперимент*
2700	9.4	73.3	9.0 ± 0.7
2800	9.5	73.3	9.2 ± 0.7
3300	9.9	73.4	10.4 ± 0.8
3700	10.2	73.5	11.2 ± 0.9

* Значения приведены с учетом погрешности эксперимента.

получаемого в процессе вычислений, с данными экспериментов необходимо учитывать влияние на его величину поля температур по всей ширине канала как в пристенной области, так и в ядре потока. В ANSYS CFX в свою очередь применяется следующая схема расчета: коэффициент теплоотдачи теплообменного канала вычисляется как отношение теплового потока q, падающего на стенку со стороны первого контура, к разнице температур между значениями на стенке T_w и в пристенной области внутри канала T_f, являющейся первым рядом сеточных элементов:

$$\alpha = q/(T_w - T_f).$$

Очевидно, что подобная схема расчета противоречит научному пониманию термина коэффициента теплоотдачи. Поэтому авторами данной статьи предложена другая, более корректная, методика вычисления. В качестве перепада температур бралась разница между значениями температуры на стенке T_w и средней температуры потока по выбранному сечению канала. Области определения расчетных параметров подобраны таким образом, чтобы смоделировать положения хромель-никелевых термопар и термозондов по высоте исследуемого участка, как было произведено на экспериментальной установке.

По результатам, приведенным в таблице, можно сделать вывод, что предложенная методика расчета коэффициента теплоотдачи дает совпадение с экспериментальными данными в пределах погрешности, в то время как базовый алгоритм ANSYS CFX напрямую зависит от сеточного разбиения расчетной модели, а именно от толщины первого пристенного слоя элементов сетки. Моделируемая сложная вихревая картина течения в исследуемых каналах лежит за пределами возможностей стандартных кодов. Поэтому необходимы разработка и верификация кластеров, позволяющих охватить и интерпретировать все многообразие наблюдаемых эффектов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показана возможность численного расчета процессов гидродинамики и теплообмена в сложных каналах парогенерирующих систем судовых ЯЭУ интегрального типа с помощью вычислительных методов на основе использования универсального программного комплекса ANSYS CFX с целью выявления конструкционных и режимных особенностей работы установки и их оптимизации.

Описана методика построения расчетной модели теплообменного канала с внутренней спирально навитой трубой с двусторонним обогревом с указанием схемы движения теплоносителя и рабочего тела. Приведена структура сеточного разбиения исследуемой области.

Результаты гидродинамического расчета выявили режим движения потока в рассматривае-

мом канале, схожий по своей структуре с явлением кризиса закрученного потока, что может приводить к акустическим, вибрационным и прочностным эффектам.

Проведен тепловой расчет с целью верификации предложенного расчетного метода на примере сравнения характеристик теплообмена в исследуемом канале с экспериментальными данными. Описана схема экспериментальной установки теплообменного канала с двусторонним обогревом. В качестве сравнения коэффициента теплоотдачи с экспериментальными данными рассмотрены два варианта вычисления: базовый алгоритм программы ANSYS CFX и предложенный авторами статьи метод.

Как показали результаты проведенного исследования, предложенный алгоритм вычисления удовлетворяет экспериментальным данным и может быть использован для дальнейшего анализа теплообменных каналов парогенераторов судовых ядерных энергетических установок интегрального типа.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 23-29-00373, http://rscf.ru/project/23-29-00373/).

Обозначения. Nu – число Нуссельта; Pr_f – число Прандтля в потоке жидкости; Pr_w – число Прандтля на стенке; d_1 – внутренний диаметр наружной трубы, м; d_2 – внешний диаметр внутренней спирально навитой трубы, м; S – шаг закрутки, м; Re – число Рейнольдса; q – плотность теплового потока, Вт/м^2; T_w – температура стенки, °C; T_f – температура потока в пристенной области, °C; $\bar{u}$ – среднерасходная скорость потока, м/с; d' – эквивалентный диаметр, м.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Митрофанова О.В., Ивлев О.А., Уртенов Д.С., Федоринов А.В.* Оценка влияния кризисного течения закрученного потока на теплогидравлическую эффективность судовых ядерных энергетических установок // Тепловые процессы в технике. 2019. Т. 11. № 6. С. 242.
2. *Будов В.М., Дмитриев С.М.* Форсированные теплообменники ЯЭУ. М.: Энергоатомиздат, 1989. С. 98.
3. *Mitrofanova O.V., Bayramukov A.S., Ivlev O.A., Urtenov D.S., Fedorinov A.V.* Modeling of Thermal-Hydraulic Processes in the Marine Power Installation Elements // J. Phys.: Conf. Ser. 2020. V. 1683. № 2. 022078.
4. *Новиков И.И.* Термодинамика. М.: Машиностроение, 1984. С. 316.
5. *Новиков И.И., Скобелкин В.И., Абрамович Г.Н., Клячко Л.А.* Закономерность расхода жидкости в закрученном потоке. Открытие № 389. Гос. реестр открытий СССР 18.10.1990.
6. *Митрофанова О.В.* Гидродинамика и теплообмен закрученных потоков в каналах ядерно-энергетических установок. М.: Физматлит, 2010. 288 с.
7. Гидродинамика и безопасность ядерных энергетических установок. Сб. тр. ФЭИ в 3-х т. Т. 2. Обнинск: ГНЦ РФ ФЭИ, 1999. 388 с.
8. *Патрашев А.Н.* Турбулентные течения в потоках жидкости с крупными локальными вихреобразованиями // Механика турбулентных потоков. Сб. М., 1980. С. 166.
9. *Аркадов Г.В., Повелко В.И., Усанов А.И.* Виброшумовая диагностика ВВЭР. М.: Энергоатомиздат, 2004.

ТЕПЛОФИЗИКА ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР, 2023, том 61, № 4, с. 632–640

НОВАЯ ЭНЕРГЕТИКА И СОВРЕМЕННЫЕ ТЕХНОЛОГИИ

УДК 544.032.65; 57.017.642

ВЛИЯНИЕ ЛАЗЕРНОЙ МИКРОДИССЕКЦИИ БЛЕСТЯЩЕЙ ОБОЛОЧКИ ЭМБРИОНОВ НА ДИНАМИКУ ЕЕ ИСТОНЧЕНИЯ ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ПРОТОКОЛОВ КРИОКОНСЕРВАЦИИ

© 2023 г. Д. С. Ситников[1, *], Д. Е. Мухдина[1], Д. С. Коршунова[1, 2], Ю. Ю. Силаева[1, 2], М. А. Филатов [1, 2], И. В. Ильина[1]

[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 19.06.2023 г.
После доработки 01.09.2023 г.
Принята к публикации 03.10.2023 г.

В работе изучена динамика истончения блестящей оболочки эмбриона мыши в результате процедуры вспомогательного лазерного хетчинга, проводимой на стадии бластоцисты. В качестве модельных выбраны эмбрионы мыши, предварительно подвергнутые циклу заморозки–разморозки (криоэмбрионы). Для микрохирургии оболочки использовались лазерные импульсы фемтосекундной длительности (длина волны излучения – 512 нм, длительность импульса – 100 фс, интенсивность – 2.5 ТВт/см^2). Толщина оболочки измерялась перед микрохирургией на стадии бластоцисты (~E3.5, т.е. 3.5 дня эмбрионального развития) и на стадии хетчинга (т.е. вылупления эмбриона из оболочки, ~E5). Обнаружено, что блестящая оболочка эмбрионов контрольной группы (криоэмбрионы, не подвергнутые лазерному воздействию) истончается сильнее (с 6.6 (E3.5) до 4.9 мкм (E5)) по сравнению с экспериментальными эмбрионами после процедуры вспомогательного лазерного хетчинга (с 7.1 (E3.5) до 6.4 мкм (E5)). И в первом, и во втором случаях изменения толщины оболочки являлись статистически значимыми. Полученные результаты сопоставлены с данными для “свежих” эмбрионов, не подвергавшихся процедуре криоконсервации. Выраженного эффекта “затвердевания” блестящей оболочки у криоэмбрионов по сравнению со “свежими” эмбрионами не выявлено. Применение процедуры вспомогательного лазерного хетчинга криоэмбрионов позволило повысить вероятность успешного хетчинга по сравнению с эмбрионами контрольной группы с 38.5 до 52.5%.

DOI: 10.31857/S0040364423040142

ВВЕДЕНИЕ

Несмотря на то что лазеры появились только в середине прошлого столетия, область их применения быстро расширялась и не ограничивалась фундаментальными физическими исследованиями. Уже в середине 1960-х гг. доктор медицины, дерматолог Л. Голдман (University of Cincinnati College of Medicine), восхищенный возможностями, которые открывали лазерные технологии, опубликовал первое исследование, оказавшееся основополагающим для областей лазерной эпиляции, лечения варикоза и лазерного удаления татуировок [1]. Примерно в это же время отечественные ученые из Института квантовой электроники “НИИ Полюс” под руководством профессора М.Ф. Стельмаха проводили пионерские исследования в области лазерной медицины, и в 1970 г. был создан первый отечественный лазерный хирургический комплекс на базе непрерывного углекислотного лазера (“Скальпель-1”) [2], обеспечивший возможность проведения бескровных операций на поверхностных тканях и внутренних органах. Помимо данного комплекса и других лазерных аппаратов общемедицинского назначения (УФЛ-01 – “Ягода”, “Узор”, “Квант-15” и др.) разработаны специализированные лазерные комплексы для отдельных областей медицины, в частности для стоматологии (“Ланцет”, “Оптодан” и “Стокос”).

В настоящее время применение лазеров в медицине не ограничивается стоматологией, офтальмологией, дерматологией, оториноларингологией и другими областями, где воздействие осуществляется на органном и тканевом уровнях [3, 4]. Развиваются новые направления, в которых высокоселективное лазерное воздействие выполняется на клеточном уровне, в частности, для проведения различных манипуляций на половых клетках человека и животных. Еще в 1981 г. М. Бернс [5], а позднее и другие исследователи [6] отмечали преимущества применения лазеров в биологии развития и эмбриологии. Важно отметить, что положительный эффект наблюдается при воздействии лазерного излучения как на мужские, так и на

женские половые клетки. В многочисленных исследованиях показана возможность улучшения подвижности сперматозоидов [6], а также их эффективная лазерная иммобилизация (например, для дальнейшей интрацитоплазматической инъекции сперматозоида в цитоплазму яйцеклетки) [7, 8]. Применительно к женским половым клеткам (неоплодотворенным яйцеклеткам и оплодотворенным яйцеклеткам (зиготам) на ранних стадиях развития) воздействие лазерного излучения в основном осуществляется на так называемую блестящую оболочку – *zona pellucida* (ZP), которая схематично изображена на рис. 1а. Основной целью такого воздействия является нарушение целостности оболочки, в результате чего становится возможным или значительно упрощается выполнение целого ряда процедур. К ним относятся интрацитоплазматическая инъекция сперматозоида с целью оплодотворения, биопсия бластомеров (забор клеток эмбриона для дальнейшей преимплантационной генетической диагностики), процесс "вылупления" эмбриона (рис. 1б) из оболочки (хетчинг от англ. to hatch – вылупляться) для последующей имплантации в стенку матки и др.

Настоящая работа посвящена изучению особенностей вылупления эмбрионов после лазерного воздействия на оболочку и оценке динамики изменения самой оболочки при наличии и отсутствии лазерного воздействия. Следует отметить, что хетчинг эмбриона (рис. 1б) является важнейшим этапом развития, необходимым для его дальнейшей успешной имплантации. Для эмбрионов, которые по оценке специалиста могут иметь сложности с естественным вылуплением из оболочки, показано применение процедуры локальной деструкции или истончения блестящей оболочки, так называемого вспомогательного хетчинга. Со временем механические и химические средства деструкции ZP были практически вытеснены лазерными инструментами, а метод получил название вспомогательного лазерного хетчинга (ВЛХ). В клинической практике для выполнения ВЛХ в основном применяются лазеры с длительностью импульсов от сотен микросекунд до нескольких миллисекунд. Воздействие лазерного импульса с типовыми параметрами мощности 300 мВт и длительностью порядка 0.6 мс приводит к локальному нагреву среды в области фокусировки до нескольких сотен градусов [9] и разрушению белков ZP в радиусе ~5 мкм. Для сведения к минимуму риска термического повреждения клеток эмбриона указанную процедуру рекомендовано выполнять на ранних сроках развития эмбриона, когда расстояние между клетками и оболочкой (перивителлиновое пространство) достаточно велико (~20 мкм) [10]. В то же время локальная деструкция оболочки на более поздних стадиях преимплантационного развития эмбриона имеет свои преимущества. Поэтому для решения данной проблемы в настоящей работе предлагается использовать лазерный источник излучения, генерирующий импульсы более короткой длительности, а именно фемтосекундной. Фемтосекундные лазерные источники нашли широкое применение в различных областях науки: от создания источников ТГц-излучения и проведения исследований с их использованием [11] до изучения процессов сверхбыстрого переноса энергии в веществе в сильно неравновесном состоянии [12].

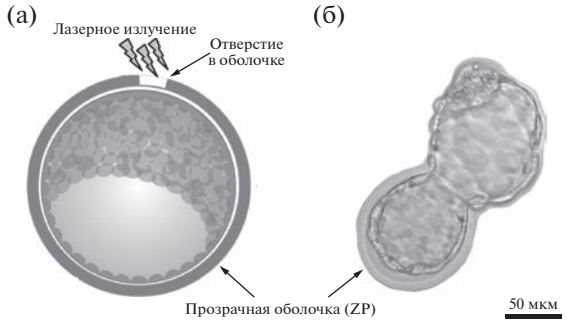

Рис. 1. Лазерная микрохирургия блестящей оболочки эмбриона млекопитающего на одной из преимплантационных стадий развития (стадии бластоцисты) в рамках процедуры ВЛХ: (а) – схематическое представление лазерной микрохирургии блестящей оболочки эмбриона млекопитающего на стадии бластоцисты, (б) – пример эмбриона мыши спустя 24 ч после микрохирургии оболочки, успешно проходящего стадию хетчинга.

Возможность успешного применения пико- и фемтосекундных лазерных импульсов для решения актуальных задач биологии развития и репродуктивной медицины продемонстрирована в многочисленных исследованиях (см. обзоры [13, 14]). В основе механизма взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов с водной средой (к которым можно отнести и биологические объекты) лежат процессы многофотонного (а не линейного, как в случае с миллисекундными импульсами) поглощения [15]. При этом процесс разрушения белков, составляющих основу ZP, носит преимущественно нетепловой характер – увеличение температуры в области фокусировки лазерного пучка при микрохирургии ZP ультракороткими лазерными импульсами не превышает 3°C [16] (механизмы разрушения и критерии их действия на биообъекты рассмотрены подробно в [15]). Совокупность этих факторов обеспечивает возможность предельной локализации области воздействия и формирование надреза на оболочке шириной порядка 1 мкм, что меньше размера сфокусированного лазерного пучка. Преимущества использования импульсов фемтосекундной длительности, включая минимальное тепловое воздействие и предельно узкую ширину надреза блестящей оболочки, были использованы ранее

для деликатной диссекции ZP при биопсии полярного тельца [17], а также воплощены в технологиях управляемого вспомогательного хетчинга [18] и лазерной маркировки преимплантационных эмбрионов [19, 20].

Процедура ВЛХ может осуществляться как на свежих эмбрионах, так и на эмбрионах, подвергнутых процедуре криоконсервации. Успешное применение фемтосекундных лазерных импульсов для ВЛХ свежих эмбрионов, находящихся на поздних стадиях преимплантационного развития (на стадии бластоцисты), продемонстрировано в [18]. Но с учетом того, что в клинической практике все чаще в циклах экстракорпорального оплодотворения применяется технология криоконсервации эмбрионов, актуальным является исследование возможности применения фемтосекундных лазерных импульсов для ВЛХ эмбрионов, подвергнутых заморозке и последующему размораживанию (криоконсервированные или криоэмбрионы). Одной из особенностей ВЛХ эмбрионов после криоконсервации и размораживания может быть факт того, что блестящая оболочка частично изменила свои свойства. Гипотеза об уплотнении/“затвердевании” блестящей оболочки криоэмбрионов в настоящее время активно обсуждается среди специалистов [21]. В связи с этим получение данных о динамике изменения толщины блестящей оболочки эмбрионов, подвергнутых циклу заморозки–разморозки и лазерному воздействию при выполнении процедуры ВЛХ, является важной задачей. В рамках настоящей работы исследована динамика изменения толщины блестящей оболочки криоэмбрионов в результате процедуры ВЛХ, когда нарушение целостности ZP проводится не на стадии зиготы (как описано в [20]), а на более поздней стадии – стадии бластоцисты. Проведено сравнение с данными для эмбрионов, не подвергавшихся циклу заморозки–разморозки, что позволяет получить дополнительную информацию об изменении характеристик оболочки и представляет интерес как с научной, так и с практической точек зрения.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Для микрохирургии эмбрионов использовалась установка – фемтосекундный лазерный скальпель (рис. 2), созданная в ОИВТ РАН [22]. Источником импульсов фемтосекундной длительности служила лазерная система ТЕТА (“Авеста”, Троицк). Лазерное излучение, заведенное в боковой порт инвертированного микроскопа Olympus IX-71, фокусировалось в пятно диаметром ~2 мкм по полувысоте. Для микрохирургии эмбрионов использовались лазерные импульсы со следующими параметрами: длительность импульса – 280 фс, энергия – 20 нДж, длина волны излучения – 514 нм, частота следования импульсов – 2.5 кГц. Эмбрионы помещались в чашки Петри со стеклянным дном толщиной 170 мкм в среду для культивирования. Эмбрион в чашке Петри, установленной на моторизованном предметном столике микроскопа (Märzhäuser Wetzlar; Германия), перемещался относительно неподвижного лазерного луча. Излучение фокусировалось в экваториальной плоскости – плоскости максимального сечения эмбриона. Интенсивность в фокусе микрообъектива (20 × 0.5 UPlanFL, Olympus, Япония) при выполнении микрохирургических процедур составляла 2.5 ТВт/см^2. Изображение эмбриона, регистрируемое камерой DFK 72AUC02 (The Imaging Source; Германия), выводилось на экран персонального компьютера. Микрохирургия эмбриона осуществлялась в автоматизированном режиме. Оператор задавал траекторию движения лазерного луча поверх изображения эмбриона в специализированном программном обеспечении, управляющем работой лазера и моторизованного столика, и запускал процедуру на выполнение.

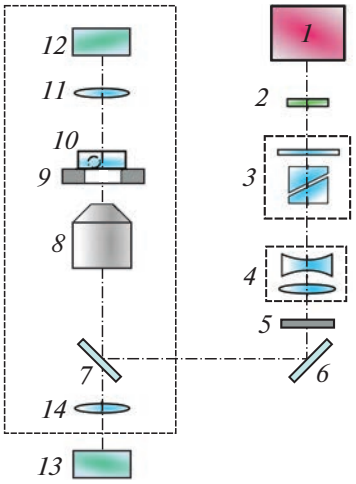

Рис. 2. Схема экспериментальной установки: *1* – фемтосекундный лазер; *2* – преобразователь излучения во вторую гармонику; *3* – узел ослабления лазерного излучения; *4* – узел телескопа; *5* – механический прерыватель лазерного излучения; *6*, *7* – зеркала на длину волны лазерного излучения; *8* – микрообъектив; *9* – моторизованный предметный столик; *10* – чашка Петри с эмбрионами; *11* – конденсор микроскопа; *12* – осветитель; *13* – видеокамера; *14* – инвертированный микроскоп.

ОБЪЕКТ ИССЛЕДОВАНИЯ

Лазерной микрохирургии блестящей оболочки подвергались эмбрионы мыши, предварительно прошедшие цикл заморозки/разморозки, находящиеся на стадии бластоцисты. Эмбрионы мыши достигают данной стадии развития спустя примерно 3.5 сут после оплодотворения (обозначение E3.5). Подробная информация о получении эмбрионов, протоколе криоконсервации–

разморозки и их последующем культивировании представлена в Приложении. Для получения экспериментальных данных эмбрионы мыши (всего 116 штук) разделены на две группы: экспериментальную (Э) – 59 штук и группу параллельного контроля (ПК) – 57 штук. Лазерная диссекция проводилась вне CO_2-инкубатора при комнатной температуре. Эмбрионы из группы параллельного контроля находились вне инкубатора столько же времени, сколько и эмбрионы экспериментальной группы, но не подвергались воздействию лазерного излучения. Каждая чашка Петри содержала три капли со специализированной средой, в двух каплях находились эмбрионы экспериментальной группы, а в третьей – эмбрионы из группы параллельного контроля.

На рис. 3а представлен эмбрион с нанесенной типовой траекторией лазерного воздействия, которая состоит из трех элементов. Надрез вдоль линии *1* предназначен для нарушения целостности блестящей оболочки и выполнялся на глубину 80–90% от ее толщины. Линии *2*, *3* являются вспомогательными и служат для подтверждения вылупления эмбриона через сформированный надрез *1*.

Каждый эмбрион подвергался фоторегистрации до и после лазерной микродиссекции. Микродиссекция по заданной траектории осуществлялась с помощью управления включением/выключением лазерного излучения, синхронизованного с движением моторизованного предметного столика. Время диссекции оболочки одного эмбриона при скорости перемещения столика 10 мкм/с составляло несколько секунд. Общее время, затрачиваемое на фоторегистрацию и лазерную микродиссекцию одного эмбриона (включая поиск эмбриона в чашке Петри и его разметку), не превышало 1.5 мин. Отчетливо видимый сформированный надрез оболочки (рис. 3б), соответствующий заданной траектории, свидетельствовал об успешном выполнении микрохирургии оболочки эмбриона. Вылупление эмбрионов происходило, как правило, на пятые сутки после оплодотворения (E5). В этот же день осуществлялась повторная фоторегистрация эмбрионов, позволяющая оценить динамику изменения толщины блестящей оболочки эмбрионов.

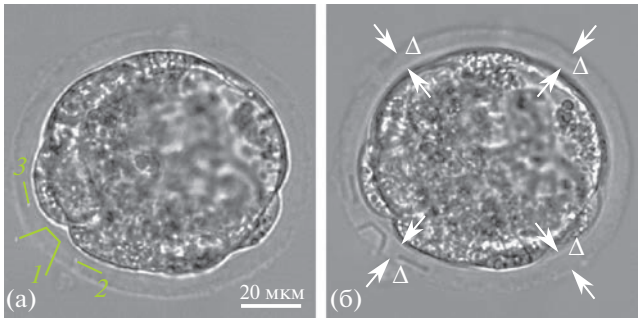

Рис. 3. Фотографии эмбриона: (а) – до проведения микрохирургии оболочки с нанесенной поверх изображения траекторией движения лазерного луча: *1* – надрез для истончения оболочки; *2*, *3* – вспомогательные надрезы; (б) – результат лазерного воздействия; стрелки – области измерения толщины оболочки Δ.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Измерение толщины оболочки Δ проводилось в четырех разных областях с угловым шагом ~90° для каждого эмбриона экспериментальной группы на момент выполнения операции (стадия E3.5). Расстояние от внешней до внутренней границы блестящей оболочки эмбриона измерялось по выполненным фотографиям в пикселях в программе ImageJ. Для перевода полученных значений в мкм использовался коэффициент переноса $K = 0.108$ мкм/пиксель, измеренный с помощью шпальной миры (решетка Ронки), временно установленной на предметный столик микроскопа. Аналогичные измерения выполнены и для эмбрионов контрольной группы (E3.5), а впоследствии – на стадии вылупления эмбриона (стадия E5) или после ее окончания в обеих группах.

Данные о толщине блестящей оболочки эмбрионов экспериментальной и контрольной групп, подвергнутых процедуре криоконсервации, представлены на рис. 4а, 4б. Анализ данных выявил распределения значений величин, отличные от нормального, поэтому при поиске статистически значимых и незначимых различий использованы непараметрические критерии оценки. Медианное значение Δ_{av} толщины ZP эмбрионов контрольной группы (рис. 4б) демонстрирует статистически значимое уменьшение с 6.63 мкм (интерквартильный размах (ИКР) 6.05–7.37) на стадии E3.5 до 4.94 (4.63–5.37) на стадии E5 (использован критерий Уилкоксона для связанных выборок $p < 0.05$). В экспериментальной группе истончение блестящей оболочки выражено существенно меньше – Δ_{av}(E3.5) = 7.12 мкм (ИКР – 6.51–7.63) и 6.36 (5.76–7.2) на стадии E5, однако это изменение также является статистически значимым. Проведенная статистическая обработка экспериментальных данных (с использованием *U*-критерия Манна–Уитни) подтвердила статистически значимое различие ($p < 0.05$) значений толщины ZP (E5) криоэмбрионов в цикле естественного вылупления и после процедуры ВЛХ.

Для сравнения на рис. 4в, 4г представлены данные, полученные для эмбрионов [23], не подвергавшихся процедуре криоконсервации (в иностранной литературе fresh embryos – свежие эмбрионы). И если для контрольной группы изменение толщины оказалось также статистически значимо – с 6.35 мкм (5.48–6.75, E3.5) до 5.18 (4.77–5.69, E5), то для экспериментальной изменения оказались

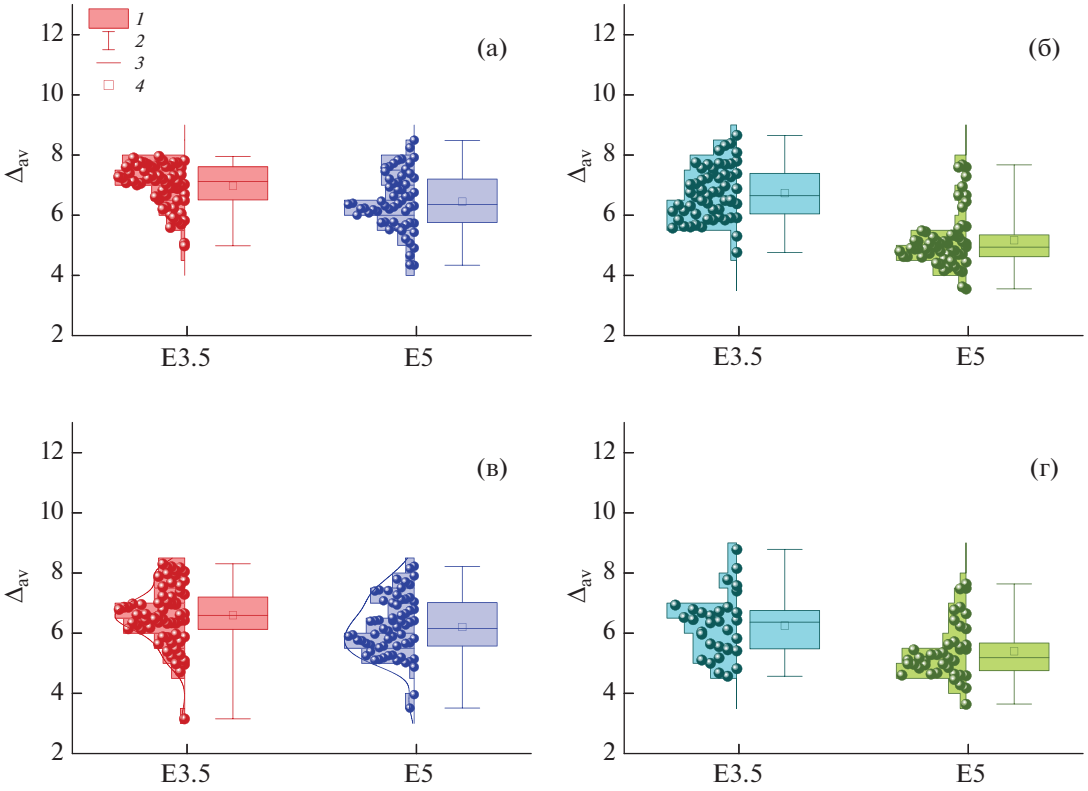

Рис. 4. Изменение толщины ZP в процессе развития криоэмбрионов в (а) экспериментальной и (б) контрольной группах в сравнении с данными для свежих эмбрионов (в) экспериментальной и (г) контрольной групп из [23] на стадиях E3.5 и E5: *1* – 25–75% ИКР, *2* – вариация, *3* – медиана, *4* – среднее.

несущественными: 6.58 мкм (6.15–7.22, E3.5) против 6.15 (5.57–7.02, E5). Проводя сравнение имеющихся данных, можно сделать следующие выводы. В контрольных группах как для криоэмбрионов, так и для свежих эмбрионов истончение блестящей оболочки более значительно по сравнению с эмбрионами экспериментальных групп. При сравнении данных для экспериментальных групп можно предположить, что в группе свежих эмбрионов лазерная микрохирургия блестящей оболочки практически останавливала процесс дальнейшего истончения оболочки (что тем не менее не мешало успешному хетчингу), а в группе криоэмбрионов истончение оболочки после процедуры микрохирургии продолжалось, хоть и не было столь активным, как в контрольной группе.

Для интерпретации полученных результатов важно понимание механизма хетчинга эмбрионов млекопитающих в целом. В работе [24] отмечено, что данный механизм и предикторы его эффективности известны исследователям не в полной мере и требуют дальнейшего изучения. Несмотря на это, схему процесса вылупления эмбриона в общих чертах можно описать следующим образом [25]. Достигая стадии бластоцисты, эмбрион начинает активно транспортировать воду в полость бластоцисты, увеличиваясь при этом в диаметре и оказывая механическое воздействие на оболочку. Блестящая оболочка испытывает растягивающие напряжения и постепенно истончается. При превышении определенного порогового значения растягивающих напряжений происходит разрыв оболочки с образованием щелевидного отверстия, через которое бластоциста может покинуть оболочку, совершая при этом серию сжатий и раздуваний и увеличиваясь в размере. Что касается самой оболочки, то при превышении растягивающими напряжениями предела текучести среда перестает демонстрировать упругие свойства и испытывает пластические деформации. Это объясняет тот факт, что толщина оболочки после вылупления эмбриона не возвращается к своему первоначальному значению, несмотря на прекращение действия растягивающих напряжений.

Помимо динамических механизмов хетчинга существуют еще и молекулярные, к которым можно отнести ферментативную деградацию блестящей оболочки, а также участие цитокинов, гормонов, факторов роста и пр. в регуляции хетчинга. Тем не менее, несмотря на наличие сразу нескольких механизмов хетчинга (биомеханического и молекулярного), исследования *in vitro* показали, что в некоторых случаях более 75% всех морфологически нормальных бластоцист челове-

Измеренные средние толщины блестящей оболочки криоэмбрионов на стадиях E3.5 и E5 для исследованных эмбрионов

	Δ_{av} криоэмбрионов экспериментальной группы, мкм				Δ_{av} криоэмбрионов контрольной группы, мкм			
	группа А (31 эмбрион)		группа Б (28 эмбрионов)		группа А (22 эмбриона)		группа Б (35 эмбрионов)	
	E3.5	E5	E3.5	E5	E3.5	E5	E3.5	E5
Медиана	7.13	6.21	7.12	6.84	6.55	4.98	6.75	4.94
ИКР	6.26–7.66	5.77–6.37	6.68–7.49	5.74–7.42	6.15–7.33	4.73–5.42	6.0–7.47	4.62–5.33
Вариация	5.07–7.96	4.67–7.91	4.98–7.82	4.34–8.48	5.68–8.65	4.92–7.67	4.76–8.38	3.55–7.6

ка не могут успешно завершить хетчинг. В частности, в [26] показано, что при использовании для оплодотворения метода интрацитоплазматической инъекции сперматозоида (ИКСИ) успешно завершить хетчинг смогли только 23.2% бластоцист. В подобных случаях для повышения вероятности успешного вылупления целесообразным является применение процедуры ВЛХ (в [26] с ее помощью удалось увеличить количество успешно вылупившихся ИКСИ-эмбрионов до 77.8%). Локальное истончение оболочки с помощью лазерного излучения приводит к тому, что разрыв оболочки происходит при меньших значениях растягивающих напряжений, чем в контрольной группе. Это подтверждается сравнением полученных значений Δ_{av} в экспериментальной и контрольной группах (6.4 и 4.94 мкм соответственно).

В [26] отмечается, что используемый метод оплодотворения (ЭКО или ИКСИ) может оказывать влияние на затвердевание блестящей оболочки и ее структуру. Однако это не единственный фактор, способный изменить характеристики оболочки. Полагают, что криоконсервация ооцитов/эмбрионов тоже может вызывать “затвердевание” оболочки [21, 27]. Данный эффект обусловлен слиянием кортикальных гранул с плазматической мембраной и высвобождением их содержимого в слои блестящей оболочки (см. обзор [28]). Процесс слияния мембран является кальций-зависимым и применение таких криопротекторов, как диметилсульфоксид (DMSO) и этиленгликоль, приводит к увеличению его уровня в клетках, усиливая эффект затвердевания [29, 30]. В настоящей работе для криоконсервации эмбрионов использованы растворы B-VIT, отличающиеся сниженным содержанием DMSO – 10% (в отличие от зарубежных аналогов, содержащих порядка 15% DMSO), и B-REV, не содержащий DMSO (ЗАО “Протеинсинтез”, Россия). Это увеличило допустимое время нахождения эмбрионов в растворах и повысило безопасность метода в целом. Полагается, что это может объяснить отсутствие эффекта затвердевания блестящей оболочки, исходя из полученных экспериментальных данных.

Фоторегистрация эмбрионов на этапе хетчинга позволила получить данные об успешности вылупления эмбрионов в разных группах. Несмотря на то что все криоэмбрионы вступили в стадию хетчинга на момент фоторегистрации, не все смогли полностью вылупиться из оболочки, т.е. завершить хетчинг. Эмбрионы, успешно завершившие хетчинг (группа А), и эмбрионы, не сумевшие вылупиться (группа Б), объединены в две группы, для каждой из которых вычислено медианное значение толщины оболочки на стадиях E3.5, E5.

Выполнена проверка того, насколько толщина блестящей оболочки может отличаться в данных группах и, соответственно, влиять на успешность хетчинга. Данные измерений представлены в таблице. На стадии E3.5 медианные толщины оболочек не отличаются для групп А и Б как для экспериментальных (в скобках ИКР) – 7.13 мкм (6.26–7.66) и 7.12 (6.68–7.49), так и для контрольных эмбрионов: 6.55 мкм (6.15–7.33) и 6.75 (6.0–7.47). Сравнение медианных значений толщин ZP контрольных эмбрионов на стадии E5 также показало отсутствие статистически значимых различий в группах А и Б: 4.98 мкм (4.73–5.42) против 4.94 (4.62–5.33). В группах экспериментальных эмбрионов E5 значения толщин оболочки превышают значения толщин для группы контрольных эмбрионов, но статистически значимой разницы в толщинах между вылупившимися и не вылупившимися эмбрионами не обнаружено: 6.21 мкм (5.77–6.37) против 6.84 (5.74–7.42). С учетом того, что разницы в толщинах оболочек между эмбрионами групп А и Б оказались статистически незначимыми, можно предположить, что после начала хетчинга толщина блестящей оболочки уже не является фактором, определяющим успешность полного вылупления эмбриона.

Нужно отметить, что полученные экспериментальные данные подтверждают целесообразность применения процедуры ВЛХ для криоэмбрионов, так как успешное завершение хетчинга в экспериментальной группе наблюдалось в 52.5% случаев (31 из 59 эмбрионов) по сравнению с 38.5% для контрольной группы (22 из 57 эмбрионов). По всей видимости, в результате проведения проце-

дуры криоконсервации происходит изменение не структуры блестящей оболочки, а профиля экспрессии генов, отвечающих за выработку ферментов, проводящих к лизису блестящей оболочки. Данное предположение согласуется с полученными результатами в виде близких значений толщин оболочки в обеих группах и снижением доли вылупившихся эмбрионов в результате криоконсервации по сравнению со свежими эмбрионами [18].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Толщина блестящей оболочки является важным параметром, оказывающим влияние на развитие эмбриона с момента оплодотворения до имплантации. В частности, слишком толстая оболочка эмбриона может препятствовать его успешному вылуплению и последующей имплантации. Для решения данной проблемы зачастую прибегают к процедуре вспомогательного хетчинга, когда целостность блестящей оболочки нарушается искусственным образом (например, с помощью лазерного излучения). Несмотря на длительное применение (более 30 лет) лазерной микрохирургии оболочки в рамках ВЛХ, полноценные данные о том, как меняются свойства и характеристики оболочки на разных стадиях преимплантационного развития, практически отсутствуют в литературе. Детального изучения динамики изменения толщины оболочки в разных случаях (для свежих или криоэмбрионов, подвергавшихся процедуре ВЛХ или вылупившихся естественным образом) также не проводилось.

В настоящей работе проведены исследования толщины блестящей оболочки эмбрионов мыши, подвергнутых процедурам криоконсервации и лазерной микрохирургии. Измерение толщины осуществлялось как на стадии бластоцисты (E3.5), так и на стадии вылупления (E5). Эмбрионы разделены на две группы: контрольную (цикл естественного вылупления) и экспериментальную (после процедуры ВЛХ). Микрохирургия эмбрионов экспериментальной группы осуществлялась фемтосекундными лазерными импульсами. Проведенный анализ выявил статистически значимые различия в толщине оболочки эмбрионов экспериментальной и контрольной групп на стадии вылупления бластоцисты – 6.4 и 4.9 мкм соответственно. При этом растяжение блестящей оболочки эмбрионов, подвергнутых ВЛХ, выражено слабее (7.1 мкм на стадии E3.5 и 6.4 на стадии E5) по сравнению с контрольной группой (6.6 мкм (E3.5) и 4.9 (E5)). Сравнение полученных результатов с данными для свежих эмбрионов, не подвергавшихся процедуре криоконсервации, не обнаружило проявления эффекта затвердевания блестящей оболочки криоэмбрионов. Целесообразность применения процедуры ВЛХ для криоэмбрионов подтверждается повышением количества эмбрионов, успешно завершивших хетчинг, до 52.5% по сравнению с 38.5% в контрольной группе.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-24-00608 (https://rscf.ru/project/22-24-00608/) на оборудовании УНУ “Лазерный тераваттный фемтосекундный комплекс”, входящей в состав ЦКП “Лазерный фемтосекундный комплекс” ОИВТ РАН.

Все манипуляции с животными производились в соответствии с требованиями Хельсинкской декларации и рекомендациями комиссии по биоэтике Института биологии гена РАН.

ПРИЛОЖЕНИЕ

Животные. Для получения эмбрионов использовались гибридные мыши F_1 C57Bl/6JxCBA из питомника Федерального медико-биологического агентства России (филиал “Столбовая”, Россия). Животных содержали в контролируемых условиях (22–24°C при световом режиме 14 : 10 день : ночь) с доступом к питанию (специализированный экструдированный комбикорм для разведения мышей) и воде *ad libitum*.

Гормональная стимуляция овуляции. Для получения большого числа эмбрионов единовременно применялся широко используемый протокол стимуляции овуляции. В качестве доноров использовались неполовозрелые самки весом 10–12 г в возрасте около 3 нед. Гормональная стимуляция осуществлялась в соответствии с двухступенчатым протоколом: в 13:00 первого дня внутрибрюшинно вводился ГСЖК (препарат Фоллимаг, “Мосагроген”, Россия) из расчета 5 МЕ на одно животное, через 48 ч внутрибрюшинно вводился ХГЧ (препарат Хорулон, Merck Animal Health, США) из расчета 10 МЕ на одно животное, после чего данные самки ссаживались с самцами для спаривания.

Получение эмбрионов. Умерщвление животных осуществлялось путем дислокации шейных позвонков. Получение эмбрионов на стадии зиготы производилось в день обнаружения вагинальной пробки. Из животного с помощью ножниц вырезали яйцеводы и помещали их в предварительно нагретую до 37°C HEPES-содержащую среду Ооклин (“Пан-Эко”, Россия). Затем под контролем стереомикроскопа с помощью игл от шприцев вскрывались ампулярные части яйцеводов и извлекались из них ооцит-кумулюсные комплексы. Затем в данную каплю вносилось примерно 0.03 г гиалуронидазы (препарат Лидаза, “Микроген”, Россия) для очистки зигот от клеток кумулюса. Полученные зиготы последовательно отмывались в четырех каплях среды Ооклин, после чего переносились в среду для культивирования.

Культивирование эмбрионов до заморозки. Культивирование эмбрионов до стадии морулы (при-

мерно 2.5 дня эмбрионального развития, E2.5) осуществлялось в четырехлуночных планшетах (Thermo Fisher Scientific Nunc; США) с использованием среды для культивирования гамет и эмбрионов CSCM-C (Fujifilm Irvine Scientific; США).

Перевозка эмбрионов. Для транспортировки из ИБГ РАН в ОИВТ РАН замороженные эмбрионы помещались в сосуд Дьюара с жидким азотом.

Заморозка и разморозка эмбрионов. Криоконсервация и размораживание эмбрионов осуществлялись с помощью коммерческих наборов B-VIT (для витрификации) и Z-REV (для размораживания) в соответствии с рекомендациями производителя (ЗАО "Протеинсинтез", Россия). Эмбрионы на стадии морулы последовательно помещались в растворы №№ 1, 2, 3 для криоконсервации со временем инкубации 5, 5, 0.5 мин соответственно. Инкубация производилась в каплях объемом 200 мкл одновременно группами по 10 эмбрионов. После чего эмбрионы помещались на носитель закрытого типа (криосоломину) для замораживания и хранения в жидком азоте (Minitube, Германия), защитный колпачок на носитель надевался непосредственно в жидком азоте.

Для размораживания образцы с эмбрионами изымались из жидкого азота, защитный колпачок снимался с носителя и носитель с эмбрионами помещался в каплю объемом 400 мкл раствора № 1 для размораживания. Данная капля имела продолговатую форму, чтобы обеспечить полное погружение части носителя для криоконсервации, несущей эмбрионы, в раствор. Затем эмбрионы отбирались и последовательно переносились в растворы для размораживания №№ 2, 3, 4 на время инкубирования в них 2, 3, 4 мин соответственно. Объем капель растворов №№ 2–4 составлял 200 мкл. Далее эмбрионы помещались в отмывочную среду (Ооклин, ПанЭко) на 5 мин, после чего производился их перенос в среду для культивирования.

Культивирование эмбрионов после разморозки. После разморозки эмбрионы пересаживались в чашки Петри со стеклянным дном (кат. № 200350; SPL Lifesciences, Корея) в каплю среды "Бластоциста" ("Пан-Эко", Россия) объемом 20 мкл по 2–3 эмбриона в капле. В одной чашке формировалось по три капли среды, которые покрывались минеральным маслом (Origio, Дания) для предотвращения испарения. Чашки убирались в инкубатор и эмбрионы доращивались до стадии бластоцисты (примерно 3.5 дня эмбрионального развития, E3.5).

Статистическая обработка данных. Статистическая обработка результатов исследований проводилась с помощью пакета прикладных программ Statistica 7.0 (Dell, США), Microsoft Excel 2013 (Microsoft corporation, США). С использованием критериев Колмогорова–Смирнова и Шапиро–Уилка проверены гипотезы о нормальности распределений исследуемых показателей. Поскольку представленные в работе данные имели распределения, отличные от нормального, то для их анализа использовались непараметрические критерии. В данном случае значимыми показателями служили медиана, квартили (25–75%) и вариация (минимальное и максимальное значения) исследуемой величины. Для сравнения двух независимых групп использовался критерий Манна–Уитни (U-критерий), для сравнения двух зависимых групп – критерий Уилкоксона для связанных выборок. Критический уровень значимости для всех статистических критериев принимался равным 0.05.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Goldman L., Rockwell R.J., Meyer R., Otten R., Wilson R.G., Kitzmiller K.W.* Laser Treatment of Tattoos. A Preliminary Survey of Three Year's Clinical Experience // JAMA. London: Springer London, 1967. V. 201. № 11. P. 841.
2. *Кузнецов Е.В.* АО "НИИ "Полюс" им. М.Ф. Стельмаха – 60 лет // Лазер-информ: информационный бюллетень Лазерной ассоциации. 2022. Т. 717. № 6. С. 1.
3. *Шахно Е.А.* Физические основы применения лазеров в медицине. СПб.: НИУ ИТМО, 2012. С. 77.
4. *Minaev V.P.* 2011–2021 – Ten More Years of Development of Laser Medical Equipment and Technologies // Laser Med. 2021. V. 25. № 2. P. 63.
5. *Berns M.W., Aist J., Edwards J., Strahs K. et al.* Laser Microsurgery in Cell and Developmental Biology // Science. 1981. V. 213. № 4507. P. 505.
6. *Kohli V., Elezzabi A.Y.* Prospects and Developments in Cell and Embryo Laser Nanosurgery // Wiley Interdiscip. Rev. Nanomedicine Nanobiotechnology. 2009. V. 1. № 1. P. 11.
7. *Ebner T., Yaman C., Moser M., Sommergruber M., Hartl J., Tews G.* Laser Assisted Immobilization of Spermatozoa Prior to Intracytoplasmic Sperm Injection in Humans // Hum. Reprod. 2001. V. 16. № 12. P. 2628.
8. *Nahum R.T., Eroglu A., Toth T.L., Perez G., Isaacson K., Leykin L.* P-061. Laser-assisted Intracytoplasmic Sperm Injection in Human Oocytes // Hum. Reprod. 1999. V. 14. Suppl. 3. P. 171.
9. *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.
10. *Douglas-Hamilton D.H., Conia J.* Thermal Effects in Laser-assisted Pre-embryo Zona Drilling // J. Biomed. Opt. 2001. V. 6. № 2. P. 205.
11. *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.
12. *Аштков С.И., Иногамов Н.А., Комаров П.С., Петров Ю.В., Ромашевский С.А., Ситников Д.С., Струлева Е.В., Хохлов В.А.* Сверхбыстрый перенос энергии в металлах в сильно неравновесном состоянии, индуцируемом фемтосекундными лазерны-

ми импульсами субтераваттной интенсивности // ТВТ. 2022. Т. 60. № 2. С. 218.

13. *Ilina I., Sitnikov D.* From Zygote to Blastocyst: Application of Ultrashort Lasers in the Field of Assisted Reproduction and Developmental Biology // Diagnostics. 2021. V. 11. № 10. P. 1897.
14. *Ilina I.V., Sitnikov D.S.* Application of Ultrashort Lasers in Developmental Biology: A Review // Photonics. 2022. V. 9. № 12. P. 914.
15. *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.
16. *Ситников Д.С., Ильина И.В., Пронкин А.А.* Оценка теплового воздействия лазерных импульсов фемто- и миллисекундной длительности при выполнении микрохирургических процедур в эмбрионах млекопитающих // Квантовая электроника. 2022. Т. 52. № 5. С. 482.
17. *Sitnikov D.S., Ovchinnikov A.V., Il'ina 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.
18. *Ilina I.V., Khramova Y.V., Ivanova A.D., Filatov M.A., Silaeva Yu.Yu., 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. Journal of Assisted Reproduction and Genetics. 2021. V. 38. № 2. P. 517.
19. *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.
20. *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. Express. 2019. V. 10. № 6. P. 2985.
21. *Choi J.K., Yue T., Huang H., Zhao G., Zhang M., He X.* The Crucial Role of Zona Pellucida in Cryopreservation of Oocytes by Vitrification // Cryobiology. 2015. V. 71. № 2. P. 350.
22. *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.
23. *Ситников Д.С., Ильина И.В., Филатов М.А., Силаева Ю.Ю.* Исследование влияния микродиссекции блестящей оболочки эмбрионов млекопитающих на ее толщину // Вестник РГМУ. 2023. Т. 1. С. 41.
24. *Dolgushina N.V., Ibragimova E.O., Romanov A.Yu., Burmenskaya O.V., Makarova N.P., Shafei R.A., Syrkasheva A.G.* Predictors of Spontaneous Human Blastocyst Hatching in ART Programs // Akush. Ginekol. (Sofiia). 2018. V. 2. P. 88.
25. *Шафеи Р.А., Сыркашева А.Г., Романов А.Ю., Макарова Н.П., Долгушина Н.В., Семёнова М.Л.* Хетчинг бластоцисты у человека // Онтогенез. 2017. Т. 48. № 1. С. 8.
26. *Inoue T., Uemura M., Miyazaki K., Yamashita Y.* Failure of Complete Hatching of ICSI-derived Human Blastocyst by Cell Herniation via Small Slit and Insufficient Expansion Despite Ongoing Cell Proliferation // J. Assist. Reprod. Genet. 2019. V. 36. № 8. P. 1579.
27. *Larman M.G., Sheehan C.B., Gardner D.K.* Calcium-free Vitrification Reduces Cryoprotectant-induced Zona Pellucida Hardening and Increases Fertilization Rates in Mouse Oocytes // Reproduction. 2006. V. 131. № 1. P. 53.
28. *Sun Q.-Y.* Cellular and Molecular Mechanisms Leading to Cortical Reaction and Polyspermy Block in Mammalian Eggs // Microsc. Res. Tech. 2003. V. 61. № 4. P. 342.
29. *Wiesak T., Złotkowska A., Milewski R.* Effect of Vitrification on the Zona Pellucida Hardening and Follistatin and Cathepsin B Genes Expression and Developmental Competence of *in vitro* Matured Bovine Oocytes // Cryobiology. 2017. V. 76. P. 18.