

УДК 546.49:536.22

Измерение коэффициентов переноса тепла жидких металлов методом лазерной вспышки*

С.В. Станкус, И.В. Савченко

*Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск
Новосибирский государственный университет*

E-mail: stankus@itp.nsc.ru

Представлена новая методика измерений коэффициентов переноса тепла жидких металлов методом лазерной вспышки. Проведены измерения температуропроводности ртути при комнатных температурах. С привлечением литературных данных по теплоемкости и плотности рассчитан коэффициент теплопроводности. Анализ систематических погрешностей измерений показал, что погрешность данных составляет около 3 %. Сопоставление полученных результатов с известными литературными данными подтвердило их достоверность.

Ключевые слова: метод лазерной вспышки, ртуть, методика измерений, температуропроводность, теплопроводность.

Жидкие металлы и их сплавы находят широкое применение в самых различных областях науки и техники. Для проведения научных и инженерных расчетов тепловых условий проведения процессов, а также режимов работы устройств и установок, в которых используются расплавы, необходимы данные по коэффициентам переноса тепла. Теория еще не позволяет предсказывать свойства с требуемой для практики точностью, поэтому основным источником получения необходимой информации остается эксперимент. Несмотря на значительный объем уже проведенных исследований, теплопроводность жидких веществ и материалов остается одним из наименее изученных свойств. В настоящее время не существует данных по теплопроводности расплавов, которые можно рассматривать как эталонные. Результаты измерений расходятся за пределы суммарных погрешностей и достаточно часто имеют разные знаки температурных коэффициентов. Это связано со сложностью измерения потоков тепла при высоких температурах, когда существенно возрастают тепловые потери за счет радиационного и конвективного переносов. Поэтому вместо прямого измерения коэффициента теплопроводности его находят по известному соотношению (1), используя данные о теплоемкости (C_p), плотности (ρ) и температуропроводности (a) вещества:

$$\lambda = a\rho C_p. \quad (1)$$

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 07-08-00071) и Российского федерального агентства по образованию.

Динамические методы, которые используются для определения температуропроводности, не требуют прямого измерения тепловых потоков, что упрощает постановку экспериментов и повышает надежность получаемых результатов. Как правило, данные по плотности имеют более высокую точность, чем данные по температуропроводности, и если теплоемкость вещества также хорошо известна, то погрешность определения λ по (1) сопоставима с погрешностью a . Среди наиболее перспективных методов измерения температуропроводности расплавов выделяют метод лазерной вспышки. В этом методе одна сторона плоского образца нагревается коротким лазерным импульсом, после чего регистрируется временная зависимость температуры на противоположной его поверхности (термограмма). В адиабатическом случае и при бесконечно малой длительности лазерного импульса температуропроводность вычисляется по формуле [1]

$$a = \frac{1,38h^2}{\pi^2 t_{1/2}}, \quad (2)$$

где h — толщина образца, $t_{1/2}$ — время, необходимое для разогрева противоположной стороны образца до половины от максимальной температуры. Метод хорошо апробирован для твердого состояния, но достаточно редко применяется для исследования расплавов. В этой части для него остаются нерешенными некоторые методические вопросы, связанные с созданием измерительной ячейки, которая обеспечивает однородный и плоскопараллельный слой жидкости известной толщины, а также с разработкой математической модели, которая описывает распространение теплового импульса в сложной геометрии ячейки при наличии слоев разнородных материалов. Цель настоящей работы состояла в разработке новой методики измерения температуропроводности высокотемпературных металлических расплавов методом лазерной вспышки в широком интервале температур жидкого состояния и апробации ее в экспериментах с жидкой ртутью.

На рис. 1 приведена схема разработанной нами конструкции измерительной ячейки для измерения температуропроводности жидких металлов. Типичные толщины дна тигля и вставки составляют около 0,5 мм, слоя расплава — 1–2,5 мм, толщины боковых стенок тигля и вставки — около 0,3 мм, а их внешние диаметры 12,6 и 9 мм соответственно. Для определения температуропроводности расплавов по экспериментальным термограммам необходимо построить математическую модель, которая позволяет рассчитать временную эволюцию температурного поля в ячейке.

Будем считать, что свойства материала тигля, вставки и расплава в интервале нагрева лазерным импульсом не зависят от температуры, измерительная ячейка в начальный момент времени имеет постоянную температуру, а потери тепла определяются исключительно

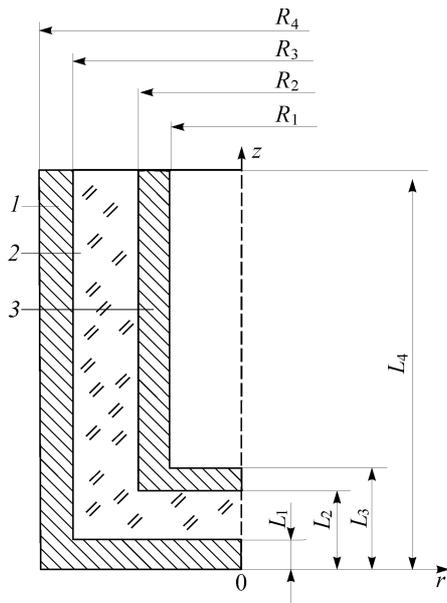


Рис. 1. Схема измерительной ячейки для измерения температуропроводности жидких металлов.

1 — тигель, 2 — расплав, 3 — вставка.

излучением с поверхности. Уравнения радиационного переноса были линеаризованы, т. к. в реальном эксперименте разогрев ячейки после воздействия лазерного импульса не превышает нескольких градусов. Такие приближения являются общепринятыми и всегда используются при обработке результатов измерений в методе лазерной вспышки [2]. В этих приближениях уравнение теплопроводности, описывающее распространение теплового импульса в ячейке, имеет вид

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = a \left(\frac{\partial^2 \theta}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \theta}{\partial r} \right) + a \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2}, \quad (3)$$

где $\theta = T - T_0$, T_0 — температура образца в Кельвинах до начала облучения тигля лазерным импульсом. Начальное условие:

$$\theta(r, z)|_{t=0} = 0. \quad (4)$$

Граничные условия:

$$\left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{z=0} = \begin{cases} -Af(t) + \frac{4\varepsilon\sigma T_0^3}{\lambda_1} \theta_{z=0}, & t \leq t_{im}, \\ \frac{4\varepsilon\sigma T_0^3}{\lambda_1} \theta_{z=0}, & t > t_{im}, \end{cases} \quad (5)$$

$$A = \frac{\Delta T_{\max}}{S \lambda_1 \int_0^{t_{im}} f(t) dt} \sum_{i=1}^3 V_i \rho_i C_{Pi}, \quad t_{im} \text{ — длительность лазерного импульса, } \varepsilon \text{ — степень}$$

черноты поверхностей тигля и вставки, σ — постоянная Стефана–Больцмана, ΔT_{\max} — увеличение температуры всей ячейки за счет теплового импульса в адиабатических условиях, $S = \pi R_4^2$, $f(t)$ — безразмерная временная зависимость амплитуды импульса, V — объем, индексы 1, 2, 3 относят соответствующие величины к тиглю, расплаву и вставке.

$$\lambda_1 \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{L1}^- = \lambda_2 \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{L1}^+, \quad \theta_{L1}^- = \theta_{L1}^+, \quad 0 \leq r < R_3, \quad (6)$$

$$\lambda_2 \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{L2}^- = \lambda_3 \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{L2}^+, \quad \theta_{L2}^- = \theta_{L2}^+, \quad 0 \leq r \leq R_2, \quad (7)$$

$$\left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)_{L3} = -\frac{4\varepsilon\sigma T_0^3 \theta_{L3}}{\lambda_3}, \quad 0 \leq r < R_1, \quad (8)$$

$$\theta_{L4} = 0, \quad R_1 \leq r \leq R_4, \quad (9)$$

$$\left(\frac{\partial \theta}{\partial r} \right)_{r=0} = 0, \quad 0 \leq z \leq L_3, \quad (10)$$

$$\left(\frac{\partial \theta}{\partial r} \right)_{R_1} = \frac{4\varepsilon\sigma T_0^3 \theta_{R_1}}{\lambda_3}, \quad L_3 < z \leq L_4, \quad (11)$$

$$\lambda_3 \left(\frac{\partial \theta}{\partial r} \right)_{R_2}^- = \lambda_2 \left(\frac{\partial \theta}{\partial r} \right)_{R_2}^+, \quad \theta_{R_2}^- = \theta_{R_2}^+, \quad L_2 \leq z \leq L_4, \quad (12)$$

$$\lambda_2 \left(\frac{\partial \theta}{\partial r} \right)_{R_3}^- = \lambda_1 \left(\frac{\partial \theta}{\partial r} \right)_{R_3}^+, \quad \theta_{R_3}^- = \theta_{R_3}^+, \quad L_1 < z \leq L_4, \quad (13)$$

$$\left(\frac{\partial \theta}{\partial r} \right)_{R_4} = - \frac{4\varepsilon\sigma T_0^3 \theta_{R_4}}{\lambda_1}, \quad 0 \leq z \leq L_4. \quad (14)$$

В качестве $f(t)$ в (5) использовалась аппроксимация, предложенная в [3]:

$$f(t) = \begin{cases} 0 & \text{при } t < 0, \\ [1 - \exp(-t/\tau_1)] \exp(-t/\tau_2) & \text{при } t \leq \tau_e, \\ [1 - \exp(-\tau_e/\tau_1)] \exp(-\tau_e/\tau_2) \exp(-[t - \tau_e]/\tau_3) & \text{при } t > \tau_e, \end{cases} \quad (15)$$

где τ_1 , τ_2 , τ_3 и τ_e — подгоночные параметры.

Система уравнений (3)–(14) решалась численно. Неявные локально-одномерные разностные схемы составлялись методом баланса энергии для ячеек и аппроксимировали уравнения с погрешностью, пропорциональной квадрату шага по координатам и первой степени шага по времени. Решение находилось методом прогонки. Пакет программ апробировался по известным аналитическим решениям и программному продукту фирмы NETZSCH. Эти численные эксперименты показали, что при должном выборе шага сеток по времени и координатам отличие рассчитанных по созданной математической модели профилей температуры от известных аналитических решений не превышает 0,01 %.

Обработка экспериментальных данных состояла в расчете временной зависимости нормированной на максимум температуры верхней поверхности (T_{\max}) полости вставки и сопоставлении ее с экспериментальной термограммой. При вычислении расчетной термограммы свойства материала измерительной ячейки, а также плотность и теплоемкость исследуемой жидкости считались заданными. Подгоночными параметрами служили теплопроводность жидкости и степень черноты внешних границ ячейки. Критерием завершения подгонки служило минимальное значение среднеквадратичного отклонения рассчитанных и опытных значений (невязки). При этом величина степени черноты, по сути, является эффективным параметром, который отвечает за все возможные тепловые потери образца в окружающую среду (в том числе и конвективной теплоотдачи) и предполагается одинаковой для всех границ. В качестве примера, на рис. 2 приведено сопоставление расчетной и экспериментальной кривых, полученных в опытах с ртутью. Расчеты показали, что согласование кривых в области разогрева (область подъема температуры до ее максимума) обеспечивалось, в основном, вариацией теплопроводности расплава, а в области спада (участок после максимума) — степенью черноты, характеризующей тепловые потери.

Эксперименты выполнялись на автоматизированной установке LFA-427 фирмы NETZSCH, предназначенной для измерений теплопроводности твердых материалов методом лазерной вспышки в интервале температур 20–2000 °С. Лазерный импульс с энергией до 30 Дж и длительностью 0,3–1,0 мс создавался твердотельным лазером на иттрий-алюминиевом гранате, легированном неодимом, с длиной волны 1,064 мкм. Излучение с помощью световода подводится к нижней поверхности образца, который находится в высокотемпера-

Рис. 2. Сопоставление расчетной (линия) и экспериментальной (точки) термограмм разогрева измерительной ячейки с жидкой ртутью.

$$\Delta(T/T_{\max}) = (T/T_{\max})_{\text{эксперимент}} - (T/T_{\max})_{\text{расчет}}$$

турной печи. Установка обеспечивает равномерное распределение интенсивности на пятне диаметром 13 мм. Изменение температуры верхней поверхности образца регистрируется ИК-детектором (InSb), охлаждаемым жидким азотом.

Инструментальная погрешность установки LFA-427 определялась в экспериментах со стандартными твердыми образцами инконеля и пирокерама. Они показали, что отличие от табулированных данных лежит в пределах 0,5–2,0 %.

Эксперименты с жидкой ртутью (чистотой 99,99 %) проводились при комнатной температуре на 7 разных ячейках, изготовленных из нержавеющей стали 12X18N10T. Толщина слоя жидкости в них изменялась от 1,5 до 2,5 мм. Температуропроводность стали была измерена в дополнительных экспериментах на образцах из того же материала, из которого изготовлены ячейки [4]. Значения плотности и теплоемкости стали 12X18N10T и ртути взяты из работ [5–6] и [7] соответственно.

На рис. 3 приведены результаты измерений температуропроводности ртути в области комнатных температур. Видно, что данные достаточно хорошо воспроизводятся, среднеквадратичное отклонение от аппроксимационной прямой составляет 0,7 %. Сглаженное значение температуропроводности ртути при 293,15 К составило

$$a(293 \text{ К}) = 4,40 \text{ мм}^2/\text{с}. \quad (16)$$

Погрешность измеренных значений температуропроводности ртути за счет погрешности свойств нержавеющей стали, а также теплоемкости (C_p) и плотности ртути (ρ), может быть оценена с помощью выражения

$$\delta a^2 = B_{a12X}^2 \delta a_{12X}^2 + B_{\rho12X}^2 \delta \rho_{12X}^2 + B_{Cp12X}^2 \delta C_{p12X}^2 + B_{\rho}^2 \delta \rho^2 + B_{Cp}^2 \delta C_p^2, \quad (17)$$

где

$$B_{a12X} = \frac{a_{12X}}{a} \left(\frac{da}{da_{12X}} \right), \quad B_{\rho12X} = \frac{\rho_{12X}}{a} \left(\frac{da}{d\rho_{12X}} \right),$$

$$B_{Cp12X} = \frac{C_{p12X}}{a} \left(\frac{da}{dC_{p12X}} \right), \quad (18)$$

$$B_{\rho} = \frac{\rho}{a} \left(\frac{da}{d\rho} \right), \quad B_{Cp} = \frac{C_p}{a} \left(\frac{da}{dC_p} \right),$$

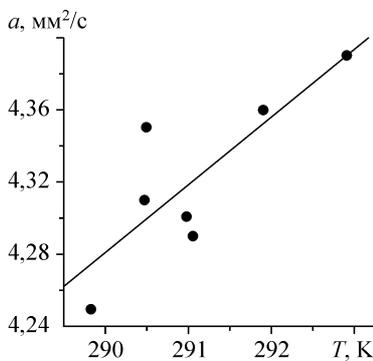


Рис. 3. Результаты измерений теплопроводности ртути.

Экспериментальные данные (точки), аппроксимация (линия).

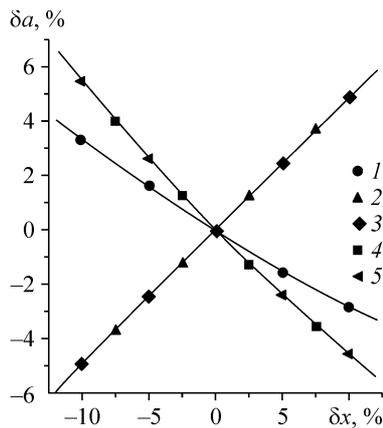


Рис. 4. Погрешность температуропроводности ртути (δa) за счет отклонения используемых в расчетах значений свойств от их истинных значений.

$$a_{12X} (1), \rho_{12} (2), C_{P12X} (3), \rho (4), C_P (5).$$

$a_{12X}, \rho_{12X}, C_{P12X}$ — температуропроводность, плотность и теплоемкость нержавеющей стали, $\delta a, \delta C_P, \delta \rho, \delta a_{12X}, \delta C_{P12X}, \delta \rho_{12}$ — относительные погрешности температуропроводности, теплоемкости и плотности ртути и 12X18Н10Т соответственно. Поскольку расчетная формула для температуропроводности не выражается в аналитическом виде, то функции влияния (18) определялись численно (рис. 4, табл.).

Подставляя данные таблицы в формулу (17) получаем, что ошибка в температуропроводности ртути за счет погрешностей свойств составляет 1 %. Погрешность геометрических размеров реально определяется не точностью их измерений (1–2 мкм), а качеством изготовления измерительных ячеек (неплоскостность и непараллельность торцевых поверхностей тиглей и вставок). В настоящих экспериментах эта величина составляла около 20 мкм или 1 % для двухмиллиметрового слоя расплава. Поскольку a квадратично зависит от размера образца (2), то этот вклад в погрешность определения температуропроводности составляет ~ 2 %.

Инструментальная погрешность установки LFA-427 в области комнатных температур не превышает 2 %, поэтому общую систематическую погрешность определения температуропроводности ртути за счет всех источников (выражение, аналогичное (17)) можно оценить в 3 %. Случайная погрешность имеет на порядок меньшее значение.

Дополнительную погрешность в определение коэффициентов переноса тепла может вносить конвективный теплоперенос. В нашем случае жидкий образец представляет плоский горизонтальный слой, ограниченный двумя поверхностями. Предположим, что между границами слоя поддерживается разность температур ΔT . Известно, что в таких условиях конвективные течения возникают при $Ra > Ra_K$, где Ra — число Рэлея, Ra_K — критическое число Рэлея [8]. Последний параметр характеризует условие устойчивости жидкости относительно бесконечно малых возмущений. Для случая с двумя жесткими границами $Ra_K \approx 1700$.

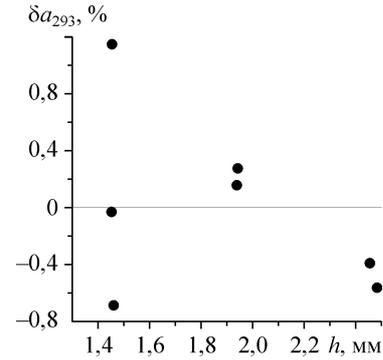
Число Рэлея определяется как

$$Ra = \frac{\beta g \Delta T h^3}{\alpha \nu}, \quad (19)$$

Таблица
Функции влияния и погрешности теплофизических свойств

x	B_x	$\delta_x, \%$
C_P	-0,50	0,15
ρ	-0,50	10^{-4}
a_{12X}	-0,31	2,0
C_{P12X}	0,49	1,5
ρ_{12X}	0,49	0,5

Рис. 5. Отклонение измеренных значений температуропроводности ртути, приведенных к 293 К от (16) в зависимости от толщины слоя расплава.

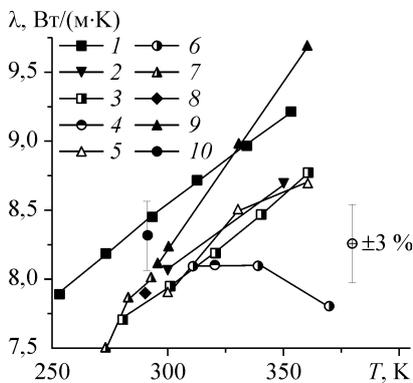


где β — объемный коэффициент теплового расширения жидкости, g — ускорение свободного падения, ν — кинематическая вязкость жидкости, ΔT — перепад температуры в слое, h — толщина слоя, a — температуропроводность расплава. В настоящих экспериментах величина ΔT не превышает 10 К. Рассчитанное значение числа Рэлея составило 123 для полумиллиметрового слоя и 333 — для 2,5-миллиметрового. Это существенно меньше критического числа Рэлея, поэтому можно предполагать, что в наших экспериментах не возникают свободно-конвективные течения. Однако следует помнить, что формула (19) справедлива для стационарного случая. В реальном эксперименте процесс не является стационарным, и имеет место не только вертикальный градиент температуры, но и горизонтальный. По этой причине была попытка оценить вклад конвекции экспериментально. Были проведены эксперименты с ртутью в ячейках с различной толщиной слоя расплава (рис. 5). Как видно на рисунке, в пределах погрешности определения h измеренные значения температуропроводности ртути не зависят от толщины слоя образца. Это указывает на незначительное влияние конвективного переноса тепла на результаты измерения a .

Используя литературные данные [7] по плотности и теплоемкости ртути, экспериментальное значение температуропроводности (16), а также соотношение (1), можно рассчитать коэффициент теплопроводности

$$\lambda(293 \text{ К}) = 8,32 \text{ Вт/(м·К)}. \quad (20)$$

Сопоставление авторских и известных литературных данных представлено на рис. 6. В работе [7] проведен критический обзор результатов измерений ртути, которые были выполнены до 1965 г. Совместной обработкой массива экспериментальных данных получено уравнение, которое описывает температурную зависимость теплопроводности ртути в интервале 234,3–1273 К. Авторы оценивают погрешность рекомендуемых значений при комнатных температурах в 1 %. Следует обратить внимание на то, что данные, которые были включены в обработку, получены стационарными методами. Все последующие эксперименты, за исключением [9], были проведены динамическими методами, в основном нестационарным методом нагретой нити [12–16]. Погрешность данных [9, 14, 16] по теплопроводности ртути составляет 2–2,5 %, а в работах [10–13, 15] — от 5 % до 10 %.



Результаты динамических методов лежат на 5–7 % ниже “стационарных” данных. Возможно, это связано с тем, что во втором случае гораздо труднее устранить влияние конвекции. Однако в работах, лежащих

Рис. 6. Сопоставление данных по коэффициенту теплопроводности жидкой ртути.

1 — [7], 2 — [9], 3 — [10], 4 — [11], 5 — [12], 6 — [13], 7 — [14], 8 — [15], 9 — [16], 10 — настоящая работа.

в основе рекомендаций [7], предпринимались специальные меры по ее подавлению, а также экспериментальному подтверждению незначительности ее влияния. С авторской точки зрения преждевременно считать, что причиной расхождения данных, полученных разными методами, является конвекция.

В пределах суммарных погрешностей измерений коэффициент теплопроводности ртути (20) совпадает со всеми литературными данными (рис. 6). Это свидетельствует о достоверности полученных результатов и возможности использования разработанной методики для исследований коэффициентов переноса тепла жидких металлов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана и апробирована новая методика измерения коэффициентов переноса тепла жидких металлов методом лазерной вспышки. Проведены измерения температуропроводности и теплопроводности ртути в области комнатных температур. Анализ систематических погрешностей метода и сопоставление литературных данных с полученными результатами показал, что погрешность последних составляет около 3 %.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Parker W.J., Jenkins R.J., Butler C.P., Abbott G.L.** Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity, and thermal conductivity // *J. Appl. Phys.* 1961. Vol. 32, No. 9. P. 1679–1684.
2. **Baba T., Ono A.** Improvement of the laser flash method to reduce uncertainty in thermal diffusivity measurements // *Meas. Sci. Technol.* 2001. Vol. 12. P. 2046–2057.
3. **Blumm J., Opfermann J.** Improvement of the mathematical modeling of flash measurement // *High Temp.–High Press.* 2002. Vol. 34, No. 5. P. 515–521.
4. **Станкус С.В., Савченко И.В., Багинский А.В. и др.** Коэффициенты переноса тепла нержавеющей стали 12Х18Н10Т в широком интервале температур // *Теплофизика высоких температур.* 2008. Т. 46, № 5. С. 795–797.
5. **Басин А.С., Ревенко М.А., Станкус С.В.** Изменение плотности стали Х18Н10Т при плавлении и кристаллизации // *Кристаллизация и процессы в кристаллизаторах: Сб. науч. тр. / Под ред. В.Е. Накорякова.* Новосибирск: Институт теплофизики СО АН СССР, 1979. С. 109–121.
6. **Вукалович М.П., Иванов А.И., Фомин Л.П. и др.** ГСССД 32—82. Стали 12Х18Н9Т и 12Х18Н10Т. Удельная энтальпия и удельная теплоемкость в диапазоне температур 400–1380 К при атмосферном давлении. М.: Изд-во стандартов, 1991. 17 с.
7. **Вукалович М.П., Иванов А.И., Фомин Л.П. и др.** Теплофизические свойства ртути. М.: Изд-во стандартов, 1971. 311 с.
8. **Гетлинг А.В.** Конвекция Рэля-Бенара. Структура и динамика. М.: Эдиториал УРСС, 1999. 248 с.
9. **Duggin M.J.** An apparatus the thermal conductivities of liquid metals: measurement of mercury // *Proc. 8th Conf. "Thermal conductivity".* New-York, Plen. Press. 1969. P. 727–735.
10. **Schriempf J.T.** A laser flash technique for determining thermal diffusivity of liquid metals at elevated temperatures: applications to mercury and aluminum // *High Temp.–High Press.* 1972. Vol. 4. P. 411–416.
11. **Sundqvist B.** Transport properties of liquid mercury under high pressure // *High Temp.–High Press.* 1986. Vol. 18, No. 6. P. 655–663.
12. **Nakamura S., Hibiya T.** Ceramic probe for measuring the thermal Conductivity of an electrically conductive liquid by the transient hot wire method // *Rev. Sci. Instrum.* 1988. Vol. 59. P. 2600–2603.
13. **Brooks R.F., Monaghan B., Barnicoat A.J. et al.** The physical properties of alloys in the liquid and "mushy" states // *Inter. J. Thermophysics.* 1996. Vol. 17, No. 5. P. 1151–1161.
14. **Yamasue E., Susa M., Fukuyama H., Nagata K.** Nonstationary hot wire method with silica-coated probe for measuring thermal conductivities of molten metals // *Metallurgical and Materials Transactions.* 1999. Vol. 30A. P. 1971–1979.
15. **Fukuyama H., Yoshimura T., Yasuda H., Ohta H.** Thermal conductivity measurements of liquid mercury and gallium by a transient hot-wire method in a static magnetic field // *Inter. J. Thermophysics.* 2006. Vol. 27, No. 6. P. 1760–1777.
16. **Peralta-Martinez M.V., Assael M.J., Dix M.J., Karagiannidis L., Wakeham W.A.** A novel instrument for the measurement of the thermal conductivity of molten metals. Part II: Measurements // *Inter. J. Thermophysics.* 2006. Vol. 27, No. 3. P. 681–698.

Статья поступила в редакцию 20 августа 2009 г.