

Технические средства для прямого измерения теплопроводности твердых тел

В. И. БОЧЕГОВ*, В. М. ГРАБОВ*, А. С. ПАРАХИН**

* Российский государственный педагогический университет им. А. И. Герцена, С.-Петербург, Россия

** Курганский государственный университет, Курган, Россия, e-mail: max_vib@mail.ru

Рассмотрены технологические и теоретические основы повышения точности и надежности прямого измерения теплопроводности твердых тел. Предложены и испытаны методы минимизации погрешностей измерений коэффициента теплопроводности путем компенсации побочных оттоков тепловой энергии от градиентного нагревателя и с боковой поверхности образца вследствие теплоотдачи и излучения. Определены оптимальные методические и аппаратные решения, обеспечивающие минимизацию погрешностей коэффициента теплопроводности твердых тел в зависимости от конкретных условий измерения.

Ключевые слова: теплопроводность, излучение, компенсация.

The technological and theoretical bases of increase of accuracy and reliability of solids thermal conductivity direct measurements are examined. The methods of errors minimization at measurement of the thermal conductivity coefficient by compensation of lateral heat outflows due to heat and radiation from the sample — are proposed and tested. The optimal methodical and instrumental solutions ensuring the minimization of the solids thermal conductivity coefficient measurement errors depending on concrete conditions of measurement have been determined.

Key words: thermal conductivity, radiation, compensation.

Среди методов экспериментальных исследований свойств твердых тел, их фоновой и электронной структуры одним из важнейших является стационарный метод измерения теплопроводности при различных условиях. Существует значительное количество методик для проведения таких измерений, представленных в некоторых известных изданиях еще в 1960-е гг. [1, 2]. В настоящее время библиография по технике измерений теплопроводности, предназначенной для решения различных технико-технологических задач, пополняется [3–5].

Однако только применение прямого стационарного метода обеспечивает корректное измерение коэффициента

теплопроводности в материалах с существенным проявлением термоэлектрических эффектов Зеебека и Пельтье при одновременном градиенте температуры и не нулевой плотности электрического тока. В таких материалах при магнитном поле появляются еще и поперечные гальвано- и термомагнитные эффекты Холла и Нернста-Эттинсгаузена и при продольном перепаде температуры формируются стационарные вихревые токи, существенно деформирующие тепловое (температурное) поле [6]. Авторы считают, что такие методы, как динамический (нестационарный), электрический (в том числе на переменном токе с выделением тепловых гармоник, так называемый 3ω -метод) или сравнения [1, 2, 7], в указанных условиях не применимы.

Реализация прямого метода измерения теплопроводности сопряжена с рядом технических трудностей. В представленной работе изложены результаты исследований по минимизации погрешностей измерений теплопроводности прямым методом в стационарных условиях. Проведен сравнительный анализ методических и технических решений, и сформулированы рекомендации по выбору оптимальных способов минимизации указанных погрешностей в зависимости от условий опыта.

Компенсация теплового оттока от градиентного нагревателя помимо исследуемого образца. Суть метода прямого измерения проста: нагреватель известной мощности — градиентный нагреватель (ГН) — задает стационарный тепловой поток. Нагреватель закреплен на одном конце длинномерного образца, с другой стороны прикреплен термостат со стабилизированной температурой T_0 . По известной мощности ГН $P = UI$, где U — напряжение, и I — сила тока ГН, по измеренному перепаду температур $T_1 - T_2$ в заданных сечениях образца с помощью термопар или других термометров определяют коэффициент теплопроводности.

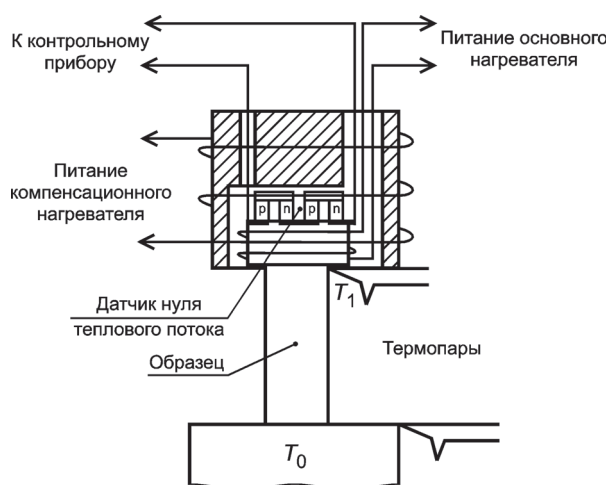


Рис. 1 Схема устройства измерения теплопроводности с термоэлектрическим датчиком паразитного оттока тепловой энергии

Возникает трудность с оценкой оттоков тепловой энергии от ГН по подводящим проводам питания из-за теплопередачи окружающей среде и излучения с его поверхности. Назовем этот отток тепловой энергии паразитным. Данный недостаток метода можно существенно нивелировать, используя методику компенсации оттоков тепловой энергии с помощью дополнительного компенсационного нагревателя (КН) специальной формы, и индикатора нуля паразитного теплового потока между градиентным и компенсационным нагревателями. Различные варианты компенсации паразитных потоков тепловой энергии от ГН и индикации состояния компенсации рассмотрены ниже.

Первый вариант. Индикатор нуля паразитного теплового потока, выполненный из промышленного модуля термоэлектрической батареи на основе Bi_2Te_3 [8], представлен на рис. 1.

При заданной мощности ГН путем регулировки электрического тока КН добиваются отсутствия ЭДС на термобатарее. Это означает отсутствие паразитного теплового потока через верхнюю и боковые поверхности ГН, а также через подводящие провода ГН, находящиеся в тепловом контакте с КН. Промышленный термоэлектрический модуль из восьми $p-n$ -пар высотой h около 5 мм, сечением теплового потока 5×5 мм дает вольт-ваттную чувствительность порядка 1 В/Вт. С этими параметрами нуль-индикатора при контроле паразитного сигнала разрешением 10^{-5} В при тепловом потоке через образец $P \approx (1...2) \cdot 10^{-2}$ Вт паразитный поток можно уменьшить до 0,1 %. Недостаток данной методики — сложность устройства и трудности, связанные с его монтажом на образце. Трудности усугубляются, когда монтаж двойного нагревателя ГН—КН с датчиком нуля потока между его частями происходит методом пайки. В этом случае существует опасность вывода из строя термобатареи, так как ее ветви, как правило, смонтированы с использованием легкоплавких припоев.

Второй вариант. Указанного недостатка можно избежать, заменив датчик нуля паразитного теплового потока на основе модульной термоэлектрической батареи датчиком на основе двух термометров сопротивления, включенных в мостовую цепь. Два медных эмалированных провода, равных по длине $l \approx 1$ м и диаметру 0,05 мм, сопротивлениями $R_1 = R_2 \approx 1$ Ом наматывают под нагревательные элементы ГН и КН и включают в мостовую цепь напряжением питания $U \approx 1$ В (рис. 2). Два других плеча с прецизионными сопротивлениями $R_0 \approx 100$ Ом каждый выводят за пределы измерительного устройства. При данных параметрах медных термометров сопротивления (МТС) и напряжении питания $U \approx 1$ В чувствительность моста составит $\alpha = \Delta V / \Delta T \approx 3,5 \cdot 10^{-4}$ В/К, где ΔV — измеряемый сигнал с диагонали моста, соответствующий перепаду температур ΔT между ГН и КН [9, 10].

При этой чувствительности и применении в качестве индикатора электронного измерительного прибора разрешением 1 мкВ перепад температур ΔT можно приблизить к нулю с погрешностью около $3 \cdot 10^{-3}$ К. Используя для механического и теплового соединения компенсационного и градиентного нагревателей материал с низкой теплопроводностью (тонкий стержень или трубку из медно-никелевого сплава диаметром 0,5—1,0 мм), паразитный отток тепловой энергии можно свести к значениям, не превышающим случайную погрешность. При этом МТС будет выделять дополнительную мощность на ГН $P_{\text{МТС}} \approx 10^{-4}$ Вт. Это значение примерно на два порядка меньше мощности $P \approx (1...2) \cdot 10^{-2}$ Вт,

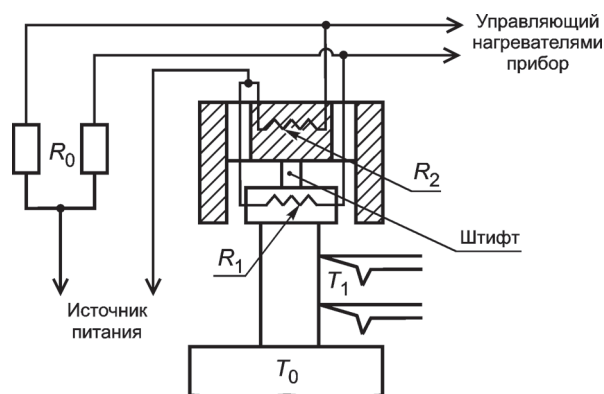


Рис. 2 Схема устройства измерения теплопроводности с датчиком на основе проволочных термометров сопротивления

необходимой для создания перепада температур на образце исследуемого материала $\Delta T \approx 2$ К на расстоянии 10^{-2} м при сечении образца $(2 \times 2) \cdot 10^{-6}$ м. Таким образом, систематическая погрешность, вносимая за счет нагрева током, протекающим через МТС, составляет менее 1 %.

Вместе с тем, использование мостового индикатора отсутствия перепада температур между ГН и КН значительно упрощает сборку измерительного устройства и практически устраняет возможность вывода его из строя при монтаже образца и нагревателя.

Третий вариант. Еще более простую и удобную методику организации индикатора нуля, минимизацию паразитного оттока тепловой энергии осуществляют с помощью проволочной дифференциальной термопары, например, медь-константановой. В этом случае один спай термопары крепят на ГН, а другой — на КН. При этом отсутствие сигнала на термопаре указывает на равенство температур этих нагревателей и на отсутствие паразитного оттока тепловой энергии от ГН. Конструкция измерительного блока (держателя образца) может быть такой же, как и в предыдущей методике, а точность измерения при смене мостового датчика на термопарный будет увеличиваться.

Четвертый вариант. В качестве индикатора нуля, минимизации паразитного оттока тепловой энергии можно использовать анизотропный термоэлектрический датчик теплового потока, который, как и в первом варианте, монтировали вместо модульной термобатареи между ГН и КН [11]. Монтаж осуществлялся с помощью клея электрически изолированно от корпусов ГН и КН с применением диэлектрической пленки и сохранением всех остальных элементов конструкции измерительного блока. При этом технологические сложности первого варианта монтажа исследуемого образца сохранялись, так как коммутация анизотропных элементов батареи этого датчика также проводилась посредством пайки. Вольт-ваттная чувствительность анизотропного датчика при том же сечении измеряемого теплового потока оказалась на два — три порядка ниже, чем в первом варианте, но осталась достаточной для того, чтобы при использовании прибора-индикатора с разрешением порядка 10^{-6} В погрешность измеряемого теплового потока можно было минимизировать до долей процента. Авторами был испытан анизотропный датчик из монокристаллических пластин висмута для сечения измеряемого теплового потока 5×5 мм с вольт-ваттной чувствительностью порядка $3 \cdot 10^{-3}$ В/Вт. До-

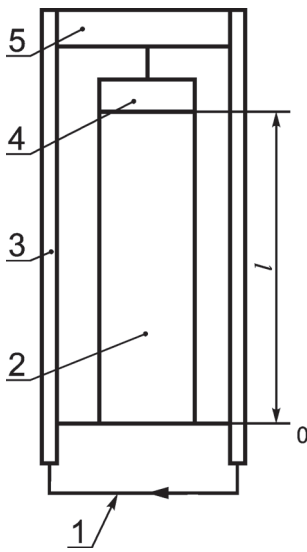


Рис. 3. Схема измерительного блока минимизации влияния атмосферы излучения:

1 — общий термостат установки; 2 — образец; 3 — градиентный нагреватель; 4 — компенсационный нагреватель; 5 — фоновый экран

стоинство этого анизотропного нуль-индикатора — его малая толщина (около 0,5—1,0 мм).

Таким образом, выполненные эксперименты показали, что при измерении коэффициента теплопроводности в диапазоне 1—100 Вт/м · К в интервале температур 77—400 К оптимально применять датчик компенсации паразитного теплового потока на основе анизотропного термоэлектрического преобразователя из пластин монокристаллического висмута [11]. При этом погрешность определения потока тепловой энергии через образец составляет около 1 %.

Вторым по значению является паразитный поток тепловой энергии через боковую поверхность образца, обусловленный теплопроводностью окружающей атмосферы и электромагнитным излучением. Такой поток приведет к искажению температурного поля внутри образца и погрешности в определении коэффициента теплопроводности, но его можно уменьшить, используя фоновый экран, охватывающий исследуемый образец с боков. В представленном испытании для минимизации погрешности измерения коэффициента теплопроводности рассчитывали оставшийся паразитный поток теплоты оценочным методом.

Учет тепловых притоков, обусловленных теплопроводностью атмосферы, при измерении теплопроводности. Теплопроводность воздуха уменьшается пропорционально уменьшению давления, при котором длина свободного пробега молекул воздуха превышает размеры камеры. Если расстояние от поверхности образца до стенок фонового экрана составляет около 10 мм, то его можно считать длиной свободного пробега молекул. Тогда тепловые потери, обусловленные атмосферой из двухатомных молекул, определяются как разность потока от образца к стенке экрана и обратного потока

$$q = 5[nVk(T - T_3)]/12.$$

Здесь n , V — концентрация молекул воздуха в камере и их скорость; T , T_3 — температуры образца и экрана, соответственно; k — постоянная Больцмана. Таким образом, коэффициент теплоотдачи стенок образца можно считать равным

$$\alpha = 5(nVk)/12. \quad (1)$$

Скорость движения молекул воздуха при температуре порядка 10^2 К составляет примерно $3 \cdot 10^2$ м/с, а концентрация при такой же температуре и остаточном давлении около 0,3 Па будет $n \approx 2 \cdot 10^{20}$ м⁻³. Подставив эти значения в (1), получим $\alpha \approx 0,4$ Вт/(м² · К).

Оценим влияние теплоотдачи на результаты измерений теплопроводности. Для этого решим уравнение теплового баланса с граничными условиями $T(0) = T_0$, $T(l) = T_l$; T_0 , T_l — температуры термостата и градиентного нагревателя, соответственно:

$$d^2T/dx^2 = (\alpha p/\chi S)(T - T_3), \quad (2)$$

где T — температура образца в данной точке; T_3 — температура экрана, также зависящая от координаты x ; χ — коэффициент теплопроводности образца; l — длина образца; S , p — площадь и периметр поперечного сечения образца (рис. 3).

Решение (2) представим в виде

$$T = ae^{\gamma x} + be^{-\gamma x} + c. \quad (3)$$

Подставим (3) в (2) и, используя граничные условия, найдем искомые коэффициенты a , b , c :

$$a = \frac{(T_l - T_3) - (T_0 - T_3)e^{\gamma l}}{2\text{sh}(\gamma l)}; \quad (4)$$

$$b = \frac{(T_0 - T_3)e^{\gamma l} - (T_l - T_3)}{2\text{sh}(\gamma l)}; \quad (5)$$

$$c = T_3. \quad (6)$$

Предположим, что температура внутри образца изменяется лишь вдоль него и не изменяется в поперечном сечении. Тогда

$$\gamma = \sqrt{\alpha p/\chi S}. \quad (7)$$

Это справедливо, когда плотности тепловых потоков между боковой поверхностью образца и атмосферой существенно меньше плотности потока внутри самого образца, что может быть достигнуто созданием вакуума примерно 10^{-1} — 10^{-3} Па. Вычислим производную выражения (3) с учетом (4—7) на верхнем торце образца и найдем тепловой поток, входящий в него:

$$W = \chi S \frac{(T_l - T_3) \text{ch}(\gamma l) - (T_0 - T_3)}{\text{sh}(\gamma l)}.$$

Этот тепловой поток, благодаря КН, компенсирующему тепловые потери, примерно равен мощности ГН, которую легко определить, измерив ток, протекающий через его обмотку, и падение напряжения на ней.

Предположим, что температура фонового экрана равна температуре КН, т. е. $T_3 = T_l$. Тогда тепловой поток через образец на верхнем торце будет выражаться через разность температур на концах образца следующим образом:

$$W = \chi S \frac{(T_l - T_0)}{\text{sh}(\gamma l)}.$$

Найдем коэффициент теплопроводности $\chi = \frac{Wl}{S(T_I - T_0)} \frac{\text{sh}(\gamma l)}{\gamma l}$.

В классических измерениях полагают, что $\text{sh}(\gamma l)/\gamma l = 1$, следовательно относительная погрешность

$$\delta = \text{sh}(\gamma l)/(\gamma l) - 1. \quad (8)$$

Подставив в (8) значения ранее найденных параметров и считая $l = 0,01$ м, $S = 4 \cdot 10^{-6}$ м², получим $\delta \approx 0,08$.

Если температура экрана равна температуре общего термостата, т. е. $T_3 = T_0$, то

$$W = \gamma \chi S \frac{(T_I - T_0) \text{ch}(\gamma l)}{\text{sh}(\gamma l)};$$

коэффициент теплопроводности определяют через гиперболический тангенс:

$$\chi = \frac{Wl}{S(T_I - T_0)} \frac{\text{th}(\gamma l)}{\gamma l};$$

относительная погрешность, обусловленная теплопритоками:

$$\delta = \text{th}(\gamma l)/(\gamma l) - 1.$$

При тех же параметрах δ составляет 0,14. Это означает, что первый вариант эксперимента более предпочтителен при классических измерениях теплопроводности.

Из приведенных результатов следует, что оценочный расчет значений тепловых потоков, обусловленных теплопроводностью окружающей атмосферы, позволяет в значительной степени снизить обусловленную ими систематическую погрешность определения коэффициента теплопроводности.

Измерение теплопроводности материалов с учетом тепловых потерь на излучение. Рассмотренные методы учета или минимизации тепловых потерь пригодны лишь для низких температур, когда интенсивность теплового излучения мала. При повышении температуры плотность потока тепловой энергии, вызванная излучением, быстро возрастает и может стать больше плотности потока тепловой энергии, обусловленного теплопроводностью атмосферы. В этом случае, кроме тепловых потерь, связанных с окружающей образец атмосферой, существенными и требующими учета будут потери на излучение.

Когда исследуемый образец обменивается тепловой энергией с окружающей средой посредством теплопроводности и излучения, уравнение теплового баланса принимает вид

$$d^2T/dx^2 = (\alpha p / \chi S)(T - T_3) + \sigma P(a_{\text{обп}}T^4 - a_3T_3^4),$$

где α , σ , S , p , $a_{\text{обп}}$ соответственно: коэффициент теплоотдачи образца, его удельная теплопроводность, площадь и периметр поперечного сечения и коэффициент поглощения электромагнитного излучения поверхности образца; T_3 , a_3 — температура и коэффициент поглощения поверхности фонового экрана (см. рис. 3). Граничными условиями для данного уравнения являются температуры образца на нижнем и верхнем торцах. Аналитического решения такой краевой

задачи не существует. Поэтому в работе это уравнение решалось методом разностных схем с использованием итерационного метода.

Возможны четыре варианта экспериментальной схемы относительно температуры фонового экрана:

фоновый экран приведен в тепловой контакт с общим термостатом и имеет, таким образом, температуру T_0 ;

фоновый экран приведен в контакт с компенсационным нагревателем и имеет температуру $T_3 = T_I$;

верхняя половина фонового экрана соединена с компенсационным нагревателем, а нижняя — с общим термостатом, половины нагревателя не имеют между собой непосредственного теплового контакта и имеют температуры КН и общего термостата, соответственно;

фоновый экран имеет тепловой контакт и с ГН и общим термостатом так, что температура в нем линейно изменяется от температуры ГН до температуры общего термостата.

В каждом из этих вариантов рассчитывали возможные погрешности в определении теплопроводности, обусловленные теплопроводностью атмосферы и излучением. Для оценочного расчета выбирали близкие к реальным параметры тепловых потоков и при заданной разности температур между ГН и общим термостатом вычисляли мощность теплового потока на верхнем торце образца. По этой мощности и разности температур, с использованием геометрических размеров образца, определяли коэффициент удельной тепло-

проводности $\tilde{\chi} = Wl/[S(T_I - T_0)]$.

Мощность вычисляли исходя из градиента температуры на верхнем торце образца:

$$W = \gamma \chi S \frac{dT}{dx} \quad (\text{при } x = l).$$

Погрешностью считали разность между вычисленным значением теплопроводности $\tilde{\chi}$ и заложенным в программу χ . Градиент температуры рассчитывали также численно. Параметры тепловых потоков выбирали следующими: $\chi = 10$ Вт/(м · К) (примерное значение теплопроводности висмута при $T = 100$ К), $\alpha = 0,4$ Вт/(м² · К) (для давления воздуха примерно 10^{-2} Па), коэффициент поглощения — единица. Температура ГН 100 К, температура общего термостата 90 К [11]. Ниже приведены расчетные значения коэффициентов теплопроводности и абсолютной погрешности.

В первом варианте рассчитанное значение $\tilde{\chi} = 10,032$, что соответствует абсолютной погрешности $\Delta\chi = 0,032$. Во втором варианте $\tilde{\chi} = 9,983$ с погрешностью $\Delta\chi = -0,017$. Таким образом, в первом варианте теплопроводность определялась с избытком, во втором варианте — с недостатком. Это обусловлено тем, что график температурного поля в первом случае вогнутый, во втором случае — выпуклый. Для уточнения результата можно взять среднее арифметическое этих значений. Тогда $\tilde{\chi} = 10,0075$ с погрешностью $\Delta\chi = 0,0075$, что существенно меньше погрешностей предыдущих результатов. В третьем варианте $\tilde{\chi} = 9,955$, погрешность $\Delta\chi = -0,005$, что меньше средней погрешности двух предыдущих результатов. И наконец, в четвертом варианте $\tilde{\chi} = 10,000002$ с погрешностью $\Delta\chi = 2,0 \cdot 10^{-6}$, что значительно меньше погрешности всех предыдущих результатов.

Несмотря на оценку приведенных результатов, можно сделать заключение, что погрешность определения теплопроводности с учетом излучения уменьшается с увеличением номера варианта.

Погрешности, вносимые в определение коэффициента теплопроводности, обусловленные теплопроводностью атмосферы и излучением, различным образом зависят от температуры. При температуре $T_0 = 300$ К абсолютная погрешность $\Delta\chi$, вносимая теплопроводностью атмосферы при давлении 10^{-1} Па примерно равна $1,5 \cdot 10^{-2}$, а погрешность, вносимая излучением, равна $2,7 \cdot 10^{-1}$, т. е. почти в 20 раз больше. При $T_0 = 90$ К эти погрешности соответственно равны $8,1 \cdot 10^{-3}$ и $8,8 \cdot 10^{-3}$, т. е. практически одинаковы. При низких температурах $T_0 = 10$ К погрешность из-за теплопроводности атмосферы становится равной $3,2 \cdot 10^{-3}$, погрешность из-за излучения $7,2 \cdot 10^{-5}$, т. е. уже существенно меньше. Из этих оценок следует, что при комнатной температуре теплопритоки, обусловленные излучением, превалируют над теплопритоками вследствие теплопроводности атмосферы.

В итоге, относительную погрешность определения коэффициента теплопроводности материала, вызванную теплопроводностью атмосферы и излучением с боковой поверхности образца, можно минимизировать до сотых долей процента.

Выводы. Выполненные эксперименты показали, что при измерении коэффициента теплопроводности твердых тел прямым стационарным методом при значении коэффициента теплопроводности исследуемого материала в диапазоне $1\text{—}100$ Вт/(м · К) в интервале температур $77\text{—}400$ К оптимальными являются: использование дополнительного нагревателя для компенсации паразитного оттока тепловой энергии от основного градиентного нагревателя помимо исследуемого образца; применение датчика компенсации паразитного теплового потока на основе анизотропного термоэлектрического преобразователя из пластин монокристаллического висмута; проведение измерений в вакууме при давлении атмосферы около $10^{-1}\text{—}10^{-3}$ Па; использование фонового экрана, имеющего тепловой контакт и с нижним и с верхним нагревателем, так что температура в нем линейно изменяется от температуры градиентного нагревателя до температуры общего термостата. В этих условиях при минимизации паразитного потока тепловой энергии с поверхности градиентного нагревателя путем его компенсации и оценочного расчета результирующую погрешность измерения коэффициента теплопроводности с учетом погрешностей определения разности температур и геометрических пара-

метров образца можно минимизировать до значений около 5 % [1, 2].

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках базовой части государственного задания № 2014/376 образовательным организациям высшего образования (проект № 59).

Л и т е р а т у р а

1. **Драйбл Дж., Голдсмит Г.** Теплопроводность полупроводников. М.: Иностранная литература, 1963.
2. **Глазов В. М. и др.** Методы исследования термоэлектрических свойств полупроводников. М.: Атомиздат, 1969.
3. **Бочегов В. И., Парахин А. С.** Измерение теплопроводности твердых тел с учетом теплопотерь на излучение // Вестник КГУ № 1 (15). 2009.
4. **Бочегов В. И., Дензанова Т. В.** Измерение теплопроводности твердых тел с компенсацией оттока тепла // Физические явления в конденсированном состоянии: Сб. Материалов Всерос. науч.-практ. конф. / Изд-во Забайкал. гос. гум.-пед. ун-та. Чита, 2009. С. 66—68.
5. **Анатычук Л. И., Лысько В. В.** Исследование влияния излучения на точность измерения теплопроводности абсолютным методом. Термоэлектричество. 2012. № 1. С. 70—80.
6. **Бочегов В. И., Дензанова Т. В., Нечаев И. А.** Влияние продольной градиентной неоднородности в полупроводниках на явления переноса в поперечном магнитном поле // Термоэлектрики и их применение. Докл. XII межгосуд. сем. С.-Петербург, 2010. С. 190—193.
7. **Chill D. G., Katiyar M., Abelson J. R.** Thermal conductivity of a-SiH thin films. Phys. Rev. B. 1994. V. 50. N. 9. P. 6077.
8. **Термоэлементы** и термоэлектрические устройства. Справочник / Под ред. Л. И. Анатычук. Киев: Наукова думка, 1979.
9. **Справочник** по электрическим материалам / Под ред. Ю. В. Корицкого Т. 3. Л.: Энергоатомиздат, 1988.
10. **Физические величины:** Справочник / Под ред. И. С. Григорьева, М.: Энергоатомиздат, 1991.
11. **Бочегов В. И., Дензанова Т. В.** Радиационный термометр с термодатчиком из анизотропного материала // Приборы и техника эксперимента. 2003. № 2. С. 156—157.

Дата принятия 27.01.2014 г.