

## МЕТОДЫ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ И ИЗМЕРЕНИЙ

УДК 536.52;537.523.9

### ТЕРМОМЕТРИЯ СВЧ-РАЗРЯДА В ПОРОШКОВЫХ СМЕСЯХ ПО СПЕКТРУ ТЕПЛООВОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

© 2008 г. Г. М. Батанов, Н. К. Бережецкая, В. А. Копьев, И. А. Косый, А. Н. Магунов

*Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва*

Поступила в редакцию 10.10.2006 г.

Проведено определение температуры в импульсных СВЧ-разрядах в порошковых смесях при атмосферном давлении. СВЧ-излучение гиротрона (длина волны 4 мм, мощность до 200 кВт, длительность импульса 1–10 мс) при воздействии на мелкодисперсную среду приводит к возникновению плазмы в газовой среде между твердыми частицами, причем пороги (по мощности) плазмообразования в порошковых смесях в сотни раз ниже, чем в газе. Метод определения температуры разряда состоит в регистрации излучения в широком спектральном диапазоне (200–850 нм) и сопоставлении полученного спектра с планковским спектром в области Вина. В случае подобия двух спектров температура разряда определяется как параметр наблюдаемого спектра. При этом для определения температуры никакие данные об излучательной способности разряда не требуются. Показано, что плазма СВЧ-разряда в порошках характеризуется температурой 2000–3000 К.

PACS: 78.70.Gq, 44.40.+a, 07.20.Ka

#### ВВЕДЕНИЕ

Температура многих объектов (плазмы, пламен, взрывов), спектр излучения которых заранее не изучен, а тепловая природа спектра лишь предполагается, не всегда может быть надежно определена путем измерения интенсивности излучения на одной или двух длинах волн. Для повышения надежности результатов необходимо регистрировать спектр излучения непосредственно во время измерения температуры, чтобы убедиться в том, что неравновесное излучение (атомарные линии, молекулярные полосы) отсутствует в тех спектральных диапазонах, где измеряется интенсивность. Существенной трудностью пирометрии таких объектов является недостаток или полное отсутствие данных по излучательной способности (коэффициенте излучения)  $\epsilon(\lambda, T)$ , где  $\lambda$  – длина волны,  $T$  – температура объекта.

Измерение температуры объекта с неизвестной излучательной способностью нельзя провести с высокой точностью, используя традиционные методы радиационной пирометрии. Определение коэффициента излучения исследуемого объекта требует проведения сложного эксперимента и применения независимого метода измерения температуры. Для ряда объектов такой эксперимент неосуществим. Поэтому желательно так модифицировать метод пирометрии, чтобы возможность определения искомой температуры достигалась в отсутствие данных об излучательной способности.

В данной работе обсуждается модификация метода оптической пирометрии. В эксперименте регистрируется спектр излучения объекта в обла-

сти Вина, а температура определяется как параметр распределения интенсивности в спектре, при этом никакие априорные представления о коэффициенте излучения не требуются [1]. Спектральная пирометрия применена для определения температуры в плазме СВЧ-разряда, возникающего в порошковой смеси при импульсном облучении.

#### МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ

Спектральная интенсивность теплового излучения реального объекта описывается формулой Планка и коэффициентом излучения

$$I = \epsilon C_1 \lambda^{-5} / [\exp(C_2/\lambda T) - 1], \quad (1)$$

где  $C_1 = 37418$  Вт мкм<sup>4</sup>/см<sup>2</sup>,  $C_2 = 14388$  мкм град, длина волны в микрометрах, интенсивность в Вт/см<sup>2</sup> мкм.

После преобразования получаем для области Вина ( $C_2/\lambda T \gg 1$ )

$$\ln(\lambda^5 I) - \ln(\epsilon C_1) = -C_2/(\lambda T). \quad (2)$$

В случае серого тела, когда  $\epsilon = \text{const}$ , это выражение описывает прямую в координатах  $x = \ln(\lambda^5 I)$  и  $y = C_2/\lambda$ . Наклон прямой определяется температурой. Таким образом, построив экспериментальный спектр в координатах  $(x, y)$ , можно определить температуру объекта без привлечения гипотез о величине коэффициента излучения. Влияние коэффициента излучения проявляется лишь в параллельном переносе прямой, но наклон остается неизменным.

Приемники с переносом заряда регистрируют не интенсивность света ( $\text{Вт}/\text{см}^2$ ), а полное число фотоэлектронов за время накопления (для примененной линейки время накопления сигнала  $\Delta t = 2$  мс). Полное число электронов  $n$ , соответствующих каждому пикселю, связано с интенсивностью в выражении (2) соотношением  $I = n(h\nu)\Delta t$ , где  $h\nu$  – энергия кванта,  $h$  – постоянная Планка, частота  $\nu = c/\lambda$  ( $c$  – скорость света). Поэтому выражение (2) принимает вид

$$\ln(\lambda^4 n) - \ln(\epsilon C_1/hc) = -C_2/\lambda T, \quad (3)$$

в котором спрямление планковского спектра происходит в координатах  $x = \ln(\lambda^4 n)$  и  $y = C_2/\lambda$ .

Такой способ определения температуры имеет преимущества перед традиционной пирометрией (на одной или двух длинах волн). Регистрация достаточно широкого участка спектра позволяет непосредственно наблюдать распределение интенсивности в спектре излучения, выбирать участки спектра, где распределение соответствует закону Планка, и исключать участки, в которых имеется неравновесное излучение (линии излучения атомов, полосы излучения молекул).

Если имеется зависимость  $\epsilon(\lambda)$ , ее влияние на наклон зависимости  $y(x)$  сказывается лишь логарифмически, т.е. намного слабее, чем  $I(\lambda)$ . Это – особенность области Вина, где интенсивность излучения экспоненциально зависит от температуры. Влияние изменений коэффициента излучения снижается при переходе в коротковолновую область спектра. Для использования преимуществ термометрии в области Вина необходимо применять чувствительные фотоприемники, так как интенсивность излучения в этой области быстро падает с уменьшением длины волны: например, в спектральном диапазоне  $\lambda \leq 2898/2T$  (т.е. для длин волн, более коротких, чем половина длины волны, соответствующей максимуму функции Планка) заключен лишь 1% всей мощности, излучаемой черным или серым телом.

## ЭКСПЕРИМЕНТ

Исследуемым объектом являлся СВЧ-разряд в смеси порошков. Порошковый слой толщиной 0.5 мм помещен между двумя кварцевыми пластинами толщиной 1 мм и диаметром 8 см. Импульсное СВЧ-излучение гиротрона (длина волны 4 мм) падает на порошковый слой по нормали к поверхности. Диаметр СВЧ-пучка в плоскости образца составляет примерно 4 см. Мощность гиротрона 100–200 кВт, длительность импульса 1–10 мс. Регистрировалась мощность падающего и прошедшего сквозь образец СВЧ-пучка. Схема эксперимента приведена ранее в [2].

Наблюдалось образование плазмы в различных смесях, содержащих частицы металла и диэлектрика, например, Fe + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sn + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Mo + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,

Ti + CuO. Размер частиц железа не превышает 1 мкм, размеры других частиц лежат в диапазоне 5–50 мкм. Содержание металла в смеси составляет 5–50 объемных процентов. В отсутствие металла СВЧ-пробоя в диэлектрическом порошkovом слое (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, SnO<sub>2</sub> и др.) не происходит. Пробой без добавления частиц металла наблюдался при облучении слоя, состоящего из частиц полупроводника CrO<sub>3</sub> (размер частиц около 200 мкм).

Динамика интегрального излучения разряда регистрировалась с помощью фотоэлектронного умножителя. Спектр излучения плазмы записывался при помощи дифракционного спектрометра и линейки из 2048 кремниевых фотоприемников, чувствительных в спектральном диапазоне 200–850 нм. Поскольку фоточувствительность приемников неоднородна по спектру, проводилась коррекция: для каждого пикселя определялся коэффициент чувствительности путем регистрации спектра лампы СИ-8-200. Полученный после коррекции спектр строился в координатах, в которых функция Вина спрямляется.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

При импульсном СВЧ-облучении гетерогенной смеси металл–диэлектрик происходят низкороговой пробой и образование плазмы в порах между частицами порошка [3]. Это явление наблюдалось авторами еще в 70-е годы и использовалось для инициирования СВЧ-разряда в газах при давлениях порядка атмосферного [4]. Однако механизмы, приводящие к снижению порогов СВЧ-пробоя гетерогенных сред, до настоящего времени неизвестны и изучаются [5–7].

При пробое возникает сильное поглощение СВЧ-излучения в порошkovом слое и наблюдается свечение в оптическом диапазоне. На рис. 1 показано, как падает во времени интенсивность СВЧ-излучения, проходящего через слой Fe + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (содержание железа – 10 объемных процентов), и растет интенсивность оптического излучения разряда. Спектр свечения разряда в этом импульсе приведен на рис. 2.

Основным источником излучения является газоразрядная плазма атмосферного давления, образующаяся в промежутках между частицами порошка. Состав плазмы по спектру в данном случае определить невозможно, так как в нем отсутствуют как полосы молекул воздуха, так и линии элементов (Fe и Al), входящих в порошковую смесь. Единственная сильная спектральная линия принадлежит натрию ( $\lambda = 590$  нм), который является неконтролируемой примесью. Характерное время нагревания частиц порошка в плазме, определяемое скоростью кондуктивного теплообмена на границе плазмы с поверхностью, составляет по порядку величины 1 мс, т.е. к моменту окон-

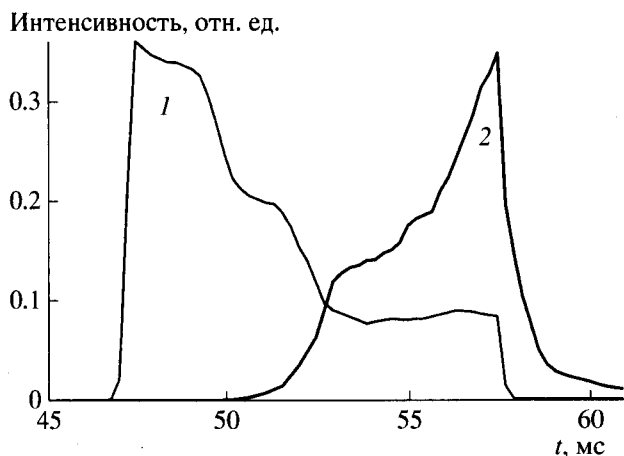


Рис. 1. Эволюция СВЧ-мощности – 1, проходящей через слой порошковой смеси Fe + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> толщиной 0.5 мм, и интенсивности интегрального оптического излучения разряда – 2. Начало СВЧ-импульса при t = 47 мс.

чания импульса твердая фаза (по крайней мере, ее непрозрачная компонента) также может быть источником теплового излучения. К нагреванию порошковой смеси может приводить также поглощение СВЧ-излучения диэлектрическими частицами вследствие фотопроводимости, вызванной ультрафиолетовым излучением разряда (с энергией квантов, превышающей ширину запрещенной зоны диэлектрика). Металлические частицы в слое нагреваются по крайней мере до температуры плавления (для железа  $T_{пл} = 1811$  К). Слой расплава имеет толщину порядка 0.1 мм, что в несколько раз меньше толщины порошкового слоя, и локализован у той пластины кварца, через которую падает СВЧ- пучок. При этом происходят также плавление поверхности кварца и со-

единение его с расплавом порошка. Вопрос о соотношении температуры плазмы с температурой твердых частиц порошковой смеси требует дальнейшего изучения (для одновременного определения температур различных твердых частиц в смеси, нагреваемой СВЧ-излучением, применяется, например, термометрия рамановского рассеяния [8]).

На рис. 3 приведен спектр разряда в координатах, соответствующих выражению (3). Спектр выглядит отрезком прямой линии. Это означает, что спектр подобен (с точностью до постоянного множителя) планковскому спектру в области Вина, т.е. является спектром серого тела, для которого выполняется условие  $\epsilon(\lambda) = const$ . По наклону прямой в области 450–760 нм (края области обозначены вертикальными отрезками) определяем температуру излучения:  $T = 2430 \pm 10$  К (погрешность определена по разбросу экспериментальных точек около прямой). Заранее предполагать выполнение условия  $\epsilon(\lambda) = const$  нельзя, так как объект является сложным: порошковая смесь состоит из частиц с разными оптическими свойствами, при плавлении эти свойства изменяются, о параметрах плазмы в ячейках между частицами пока нет никаких данных. Регистрация спектра позволила определить температуру как параметр наблюдаемого равновесного распределения интенсивности без привлечения гипотез о неизвестной излучательной способности объекта.

Спектр излучения разряда в смеси Sn + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> показан на рис. 4. На фоне континуума наблюдается несколько спектральных линий атома Sn, входящего в состав смеси, а также резонансная линия примеси Na. Температура сплошного излучения, определенная по наклону прямой (рис. 5), построенной с использованием примерно 1000 точек в диапазоне  $\lambda = 490–820$  нм, составляет  $1990 \pm \pm 10$  К. В следующем импульсе получено значе-

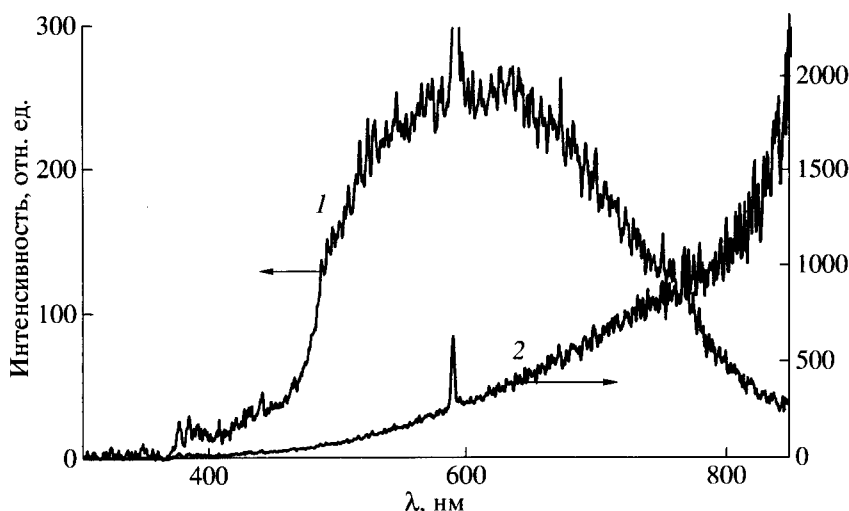


Рис. 2. Спектр излучения СВЧ-разряда в смеси Fe + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> до (1) и после (2) коррекции.

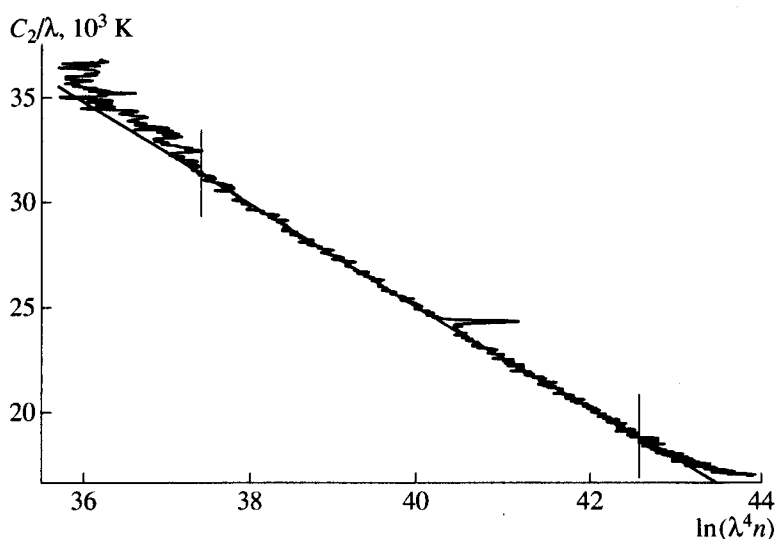


Рис. 3. Спектр излучения СВЧ-разряда в планковских координатах для смеси Fe + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Вертикальные отрезки обозначают диапазон ( $\lambda = 450\text{--}760$  нм), для которого проводилось определение температуры ( $T \approx 2430$  К).

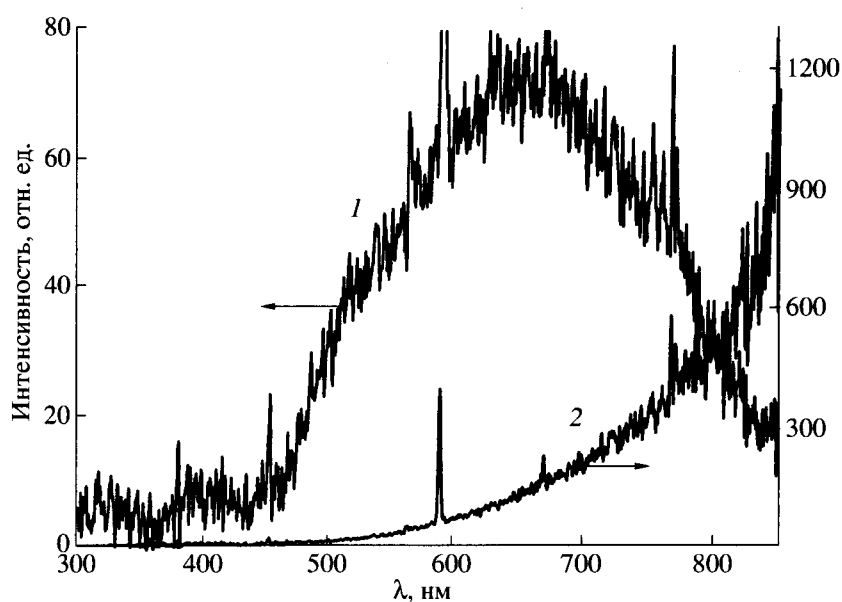


Рис. 4. Спектр излучения СВЧ-разряда в смеси Sn + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> до (1) и после (2) коррекции.

ние  $T = 2130 \pm 10$  К. Температура разряда в соседних импульсах отличается для всех смесей, разница достигает 200–400 К. Вероятно, это обусловлено тем, что в каждом импульсе происходит изменение свойств порошковой смеси (сплавление частиц, химические реакции), поэтому условия взаимодействия СВЧ-пучка с образцом в соседних импульсах нельзя считать одинаковыми. Например, для смеси Fe + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> температура в импульсе, соседнем с импульсом, приведенным на рис. 3, составляет 2620 К.

Спектры, подобные приведенным на рис. 3 и 5, получены для ряда порошковых смесей. В спектрах чаще всего наблюдаются линии элементов, входящих в состав порошков (как металлических, так и диэлектрических частиц). Во всех случаях спектр излучения спрямляется в широком диапазоне, что позволило определить температуры разрядов в смесях Mo + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $T \approx 2900$  К), Mo + SnO ( $T \approx 2800$  К), Mo + PbO ( $T \approx 3000$  К), Mo + CuO ( $T \approx 2900$  К).

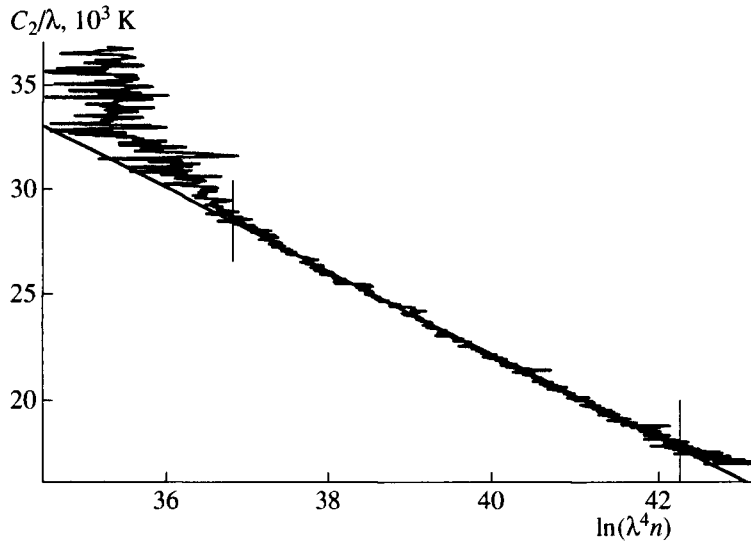


Рис. 5. Спектр излучения СВЧ-разряда в планковских координатах. Смесь Sn + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Вертикальные отрезки ограничивают диапазон ( $\lambda = 490\text{--}820$  нм), для которого проводилось определение температуры ( $T \approx 1990$  К).

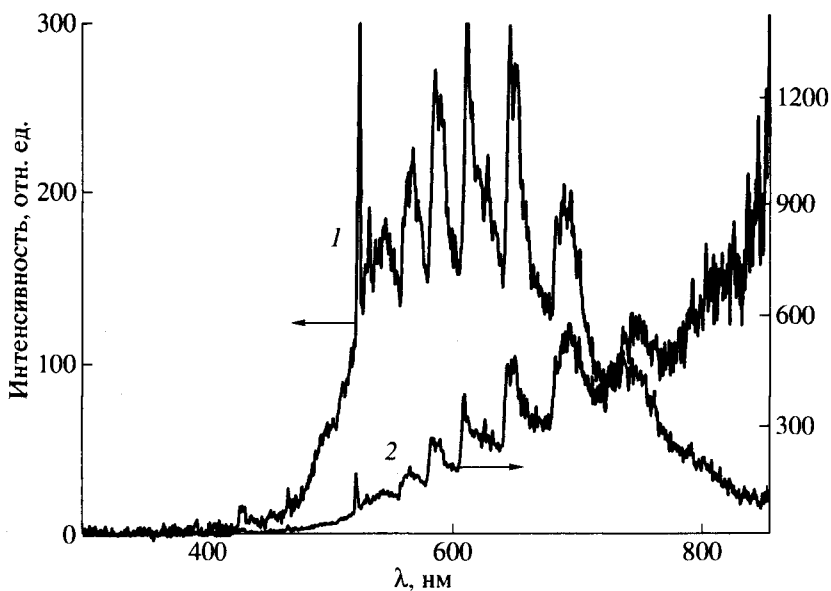


Рис. 6. Спектр излучения СВЧ-разряда в порошке CrO<sub>3</sub> до (1) и после (2) коррекции.

Возникновение СВЧ-разряда в порошке хромового ангидрида CrO<sub>3</sub> сопровождается химическим превращением вещества, при этом образуются низшие окислы (CrO<sub>2</sub>, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и др.). Спектр свечения разряда (рис. 6) содержит сильную спектральную линию атома Cr (неразрешенный триплет  $\lambda = 520.6, 520.63$  и  $520.8$  нм), а также полосы молекул, идентифицировать которые не удалось. Спектр после коррекции не спрямляется в той области, где имеются молекулярные полосы (рис. 7). Прямую в данном случае можно провести, используя те участки спектра, в которых нет полос излучения. Такими участками являются  $\lambda = 430\text{--}$

$500$  нм (в этом диапазоне 200 точек) и  $\lambda = 750\text{--}840$  нм (300 точек). Точки, лежащие в интервале  $\lambda = 500\text{--}750$  нм, содержащем полосы излучения, не использовались при построении прямой. Температура, определенная таким образом, равна  $T = 2185$  К. В течение действия импульса происходят разложение порошка в области максимума СВЧ-поля и радиальный выброс порошка. В следующем СВЧ-импульсе температура разряда понижается до  $T = 2020$  К.

Для разных порошковых смесей и условий облучения получено несколько десятков спектров,

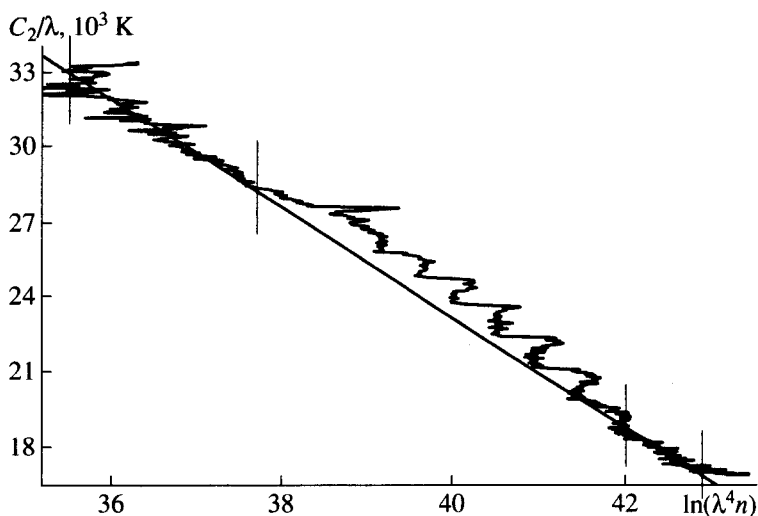


Рис. 7. Спектр излучения СВЧ-разряда в планковских координатах для порошка  $\text{CrO}_3$ . Вертикальные отрезки ограничивают диапазоны ( $\lambda = 430\text{--}500$  и  $\lambda = 750\text{--}840$  нм), по которым проводилось определение температуры ( $T \approx 2185$  К).

по которым определены температуры разрядов, лежащие в диапазоне от 2000 до 3000 К. Регистрируемый спектр излучения во всех случаях усреднен по времени и по светящейся площади образца (угол зрения волоконного световода составляет примерно  $20^\circ$ , при этом в поле зрения попадает весь образец). Вероятно, в течение СВЧ-импульса происходят значительные изменения температуры как во времени, так и по площади образца. Тем не менее спектр излучения в большинстве случаев спрямляется и результатом является единственное значение температуры. Возможность получения такого результата при усреднении заранее неочевидна и требует объяснения.

Чтобы выяснить, как происходит усреднение температуры по площади неоднородного излучателя, проведено численное моделирование с использованием разных распределений температуры по радиусу образца (или, что то же самое, по времени). Применялись модели гауссова, ступенчатого и треугольного распределений температуры при постоянной излучательной способности вдоль радиуса. Вычислив распределение полной интенсивности излучения в диапазоне длин волн 200–850 нм и построив спектр в координатах, заданных выражением (2), авторы получали среднюю температуру, восстановленную по всему спектральному диапазону. При усреднении данных для неоднородного источника по всему спектру всегда определяется температура, достаточно близкая к максимальной. При этом возможность более точного нахождения максимальной температуры состоит в расширении спектрального диапазона в коротковолновую область.

Для неоднородных распределений температуры полученные графики не спрямляются. Наклон зависимости (2) в коротковолновой области (и,

следовательно, искомая температура) больше, чем в длинноволновой. Различие температур лежит в диапазоне от десятых долей процентов до 10–15%. В длинноволновом диапазоне заметный вклад в полную интенсивность дают (за счет их большей площади) участки с более низкой температурой, что приводит к понижению средней температуры, определяемой по этому диапазону спектра. Однако полученные с помощью вычислений спектры переменного наклона заметно отличаются от экспериментальных спектров, показанных на рис. 3 и 5. Надежно установленный экспериментальный факт состоит в том, что для СВЧ-разряда в порошковых смесях спектр излучения чаще всего спрямляется с высокой точностью. Вероятно, гипотеза о постоянстве излучательной способности, принятая при вычислении спектров и температур модельных источников, не выполняется для газоразрядной плазмы. Более достоверной представляется сильная температурная зависимость излучательной способности разряда (для нагретых газов это явление хорошо известно [9]). Такая температурная зависимость излучательной способности должна приводить к тому, что определяющий вклад в полную интенсивность излучения неоднородного источника в области Вина дают участки с максимальной температурой. В этом существенное отличие измерений в области Вина от измерений в области Релея–Джинса, где в результате усреднения определяется среднеарифметическая (или среднемассовая) температура.

Спрявление спектра в широком диапазоне, полученное для разрядов в разных порошковых смесях, может быть также следствием того, что имеются механизмы, ограничивающие рост температуры. В таком случае по всей поверхности образца со временем должна установиться практически

одинаковая температура, которая и определяется с помощью спектральной пирометрии. Этот вопрос не исследован. Тепловое излучение разряда таким механизмом не является, так как поглощаемая мощность СВЧ-излучения на один-два порядка величины выше, чем мощность радиационного теплоотвода.

Высокие температуры разряда в порошковой смеси делают возможным быстрый (в течение ~1 мс) нагрев твердых частиц и импульсное инициирование экзотермических химических реакций между компонентами, что наблюдалось ранее для ряда смесей [10]. В отсутствие плазмообразования на поверхности образца требуется намного более длительное (порядка сотен секунд) СВЧ-воздействие на порошковую смесь, приводящее к инициированию самоподдерживающейся химической реакции [11].

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Спектры излучения импульсных СВЧ-разрядов атмосферного давления в порошковых смесях подобны спектрам излучения черного тела, что показано экспериментально для области Вина. Это подобие проверяется в каждом импульсе и позволяет определять максимальную температуру излучателя без привлечения каких-либо модельных или экспериментальных данных о коэффициенте излучения. Получены значения максимальных температур в плазме СВЧ-разряда для ряда порошковых смесей металл-диэлектрик.

В случае пространственно однородного излучателя температуру, определенную как параметр наблюдаемого распределения интенсивности в широком спектральном диапазоне, можно назвать спектральной. Представляется, что спектральная температура в наибольшей степени (в сравнении с яркостной, цветовой и радиационной) соответствует термодинамической температуре такого излучателя. Для нахождения систематической погрешности измерения требуется проведение экспериментов по определению температуры стационарных эталонных объектов, для которых ее пространственная и временная неоднородность несущественны.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 06-02-16959).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Копьев В.А., Косый И.А., Магунов А.Н., Тарасова Н.М.* Термометрия по распределению интенсивности в спектре излучения // Тез. II Всеросс. конф. по проблемам термометрии "Температура-2004". Обнинск. 2004. С. 66.
2. *Batanov G.M., Berezhetzkaya N.K., Kossyi I.A. et al.* Interaction of High-Power Microwave Beams with Metal-Dielectric Media // *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* 2004. V. 26. P. 11.
3. *Батанов Г.М., Бережецкая Н.К., Копьев В.А. и др.* Микроволновый "ячеистый" разряд в мелкодисперсных порошковых смесях // *Физика плазмы.* 2002. Т. 28. № 10. С. 945.
4. *Батанов Г.М., Грищанин С.И., Косый И.А. и др.* СВЧ-разряды высокого давления. Тр. ФИАН. Т. 160. М.: Наука, 1985. С. 174.
5. *Sugiyama K., Kiyokawa K., Matsuoka H. et al.* Generation of Non-Equilibrium Plasma at Atmospheric Pressure and Application for Chemical Process // *Thin Solid Films.* 1998. V. 316. P. 117.
6. *Kiyokawa K., Sugiyama K., Tomimatsu M.* Role of Perovskite-Type Metal Oxides on Atmospheric Pressure Non-Equilibrium Plasma Generation // *Thin Solid Films.* 2001. V. 386. P. 147.
7. *Kiyokawa K., Sugiyama K., Tomimatsu M. et al.* Microwave-Induced Non-Equilibrium Plasmas by Insertion of Substrate at Low and Atmospheric Pressures // *Appl. Surf. Sci.* 2001. V. 169. P. 599.
8. *Vaucher S., Catala-Civera J.M., Sarna A. et al.* Phase Selectivity of Microwave Heating Evidenced by Raman Spectroscopy // *J. Appl. Phys.* 2006. V. 99. № 11. P. 1350.
9. *Блох А.Г., Журавлев Ю.А., Рыжков Л.Н.* Теплообмен излучением. М.: Энергоатомиздат, 1991. С. 451.
10. *Батанов Г.М., Бережецкая Н.К., Косый И.А., Магунов А.Н.* Иницирование твердофазных химических реакций в порошковых смесях микроволновым разрядом // *Физика плазмы.* 2006. Т. 32. № 6. С. 571.
11. *Peng J., Binner J., Bradshaw S.* Microwave Initiated Self-Propagating High-Temperature Synthesis of SiC // *J. Materials Synthesis and Processing.* 2001. V. 9. № 6. P. 363.