

УДК 546.882:536.24+537.311

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ТАНТАЛА  
ПРИ ТЕМПЕРАТУРАХ ВЫШЕ 1000°С

В. Э. Пелецкий, В. Ю. Воскресенский

Приведены описание методики измерения электропроводности и результаты исследования теплопроводности, электропроводности и интегральной степени черноты тантала в диапазоне температур 1300—2900° К. Полученные результаты сравниваются с данными других авторов. На основе экспериментального материала проверяется справедливость закона Видемана — Франца для тантала.

В настоящее время трудно сделать определенные выводы по ряду важных теплофизических свойств тантала. Имеющиеся в литературе данные по степени черноты и коэффициенту теплопроводности значительно

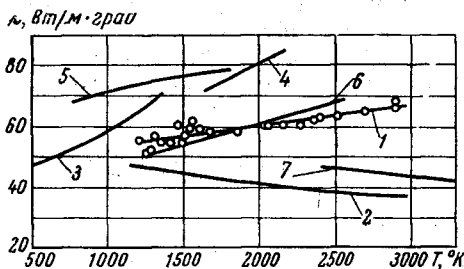


Рис. 1. Зависимость коэффициента теплопроводности  $\lambda$  от температуры для тантала

1 — данные авторов; 2 — [1], 3 — [2], 4 — [5], 5 — [6], 6 — [7], 7 — [8]

расходятся, а иногда, как это имеет место для теплопроводности, обнаруживают даже различный характер температурной зависимости (рис. 1).

Серьезным недостатком является отсутствие комплекса характеристик, полученных на одном образце. В лучшем случае [1, 2] приводятся данные по тепло- и электропроводности, но таких работ мало и они носят противоречивый характер. Накопление экспериментальных данных, постановка работ по комплексному изучению

свойств материала на одном образце — актуальная задача как для практических нужд, так и для дальнейшего развития теории.

Образец и методика измерений

Исследовавшийся в наших опытах образец был изготовлен из заготовки, полученной электронно-лучевой плавкой в вакууме. Химический состав образца: Ta — 99,61%; Nb — 0,33%; Fe < 0,01%; Ti < 0,01%; Si < 0,01%; Mo ~ 0,02%; W ~ 0,014%. Удельный вес и удельное электросопротивление при 20° С — 16,57 г/см<sup>3</sup> и  $\rho_0 = 13,7 \cdot 10^{-6}$  ом см соответственно. Образец был выполнен в виде цилиндра длиной 65,8 мм, диаметром 7,28 мм. По одной из образующих цилиндра были высверлены 11 радиальных каналов диаметром 0,8 мм и глубиной 4,5 мм. При измерениях температуры в опыте эти каналы играли роль моделей черного тела.

что позволило при работе с яркостным оптическим пирометром (типа ОМП-0,43 М) получать значения истинной температуры в фиксированных сечениях образца.

Исследования проводились на созданных в НИИВТ установках с электронным нагревом. Коэффициент теплопроводности  $\lambda$  и интегральная полусферическая степень черноты  $\varepsilon$  определялись по методике, описанной в [3]. В соответствии с последней максимальная величина относительной погрешности не превышала при измерении степени черноты  $\pm 10\%$ , при измерении  $\lambda \pm 12\%$ .

Измерения удельного электрического сопротивления были выполнены на том же образце на специальной экспериментальной установке, принципиальная схема которой представлена на рис. 2. В основу методики был положен компенсационный метод постоянного тока, развитый применительно к электронному нагреву образца, сущность которого заключается в следующем. Поток электронов, эмитированных катодом 1, ускоряется электрическим полем известной напряженности и попадает на образец 2, играющий роль анода.

При торможении электронов в веществе накопленная ими энергия идет на возбуждение тепловых колебаний атомов, т. е. на повышение температуры образца. Стационарное состояние характеризуется равенством между энергией, подведенной к образцу электронами, и теплом, отданным поверхностью образца в окружающее пространство. В данной схеме теплоотвод определяется потерями на излучение и оттоком тепла по вольфрамовым держателям 3, закрепляющим образец с двух сторон. В стационарном состоянии измеряется температура образца и электрическое сопротивление  $R$ . На рис. 2 представлены важнейшие элементы принятой схемы этих измерений. Два держателя 3 одновременно выполняют роль токоподводов для измерительного тока  $I$ . Последний определяется по падению напряжения  $U_0$  на образцовом сопротивлении  $R_0$  с помощью потенциометра ПМС-48. Этот же потенциометр используется для измерения разности потенциалов  $U$ , возникающей на рабочем участке образца длиной  $\Delta L = 3,001$  см. Следует отметить, что величина рабочей зоны устанавливается обычно меньше длины образца по крайней мере на два его диаметра, чтобы избежать погрешности в измерениях, обусловленных искривлением эквипотенциалов вблизи торцов образца при «точечном» токоподводе. Как показал расчет, в этом случае поправка на искривление эквипотенциалов пренебрежимо мала (менее 0,01%).

Потенциальные выводы из рабочей зоны выполнены в виде двух тонких вольфрамовых игл, прижимаемых специальной пружиной к боковой поверхности образца. Расстояние между иглами, т. е. длина рабочего участка определяется с помощью катетометра КМ-6. Электрическое сопротивление рабочего участка образца рассчитывается по формуле

$$R = R_0 \frac{U' - (-U'')}{U_0' - (-U_0'')}, \quad (1)$$

где  $U'$  и  $(-U'')$  — измеренная разность потенциалов на рабочем участке образца при противоположных направлениях измерительного тока;  $U_0'$  и  $(-U_0'')$  — соответствующая разность потенциалов на образцовой катушке

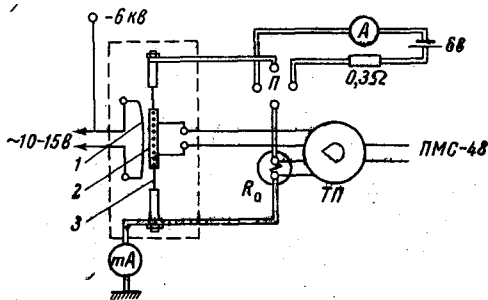


Рис. 2. Принципиальная схема установки для измерения удельного электрического сопротивления коротких стержней при высоких температурах

сопротивления  $R_0 = 0,001$  ом. Величины  $U'$  и  $U''$  зависят не только от измерительного тока  $I_u$ , но и от анодного тока  $I_a$ . Величина измерительного тока  $I_u \approx 10$  а, тогда как анодный ток в режимах с максимальной температурой достигает 0,5 а. Поскольку электроны, эмитируемые катодом, равномерно рассеиваются по всей поверхности образца, то часть из них, стекая к заземленному держателю по рабочему участку образца, создает на нем дополнительное падение потенциала

$$\delta U = k I_a R. \quad (2)$$

Общее падение потенциала на рабочем участке

$$U' = R(I_u + k I_a)$$

и при изменении направления измерительного тока

$$-U'' = R(-I_u + k I_a).$$

При их вычитании в формуле (1) дополнительное падение потенциала (2) исключается, поскольку величина анодного тока  $I_a$  и коэффициент  $k$  не зависят от направления тока в образце. Они определяются только анодным напряжением, температурой катода и геометрией электронного нагревателя.

Расчет удельного электрического сопротивления производится по формуле

$$\rho = R \frac{\pi D^2}{4 \Delta L} \frac{1}{1 + \eta}, \quad (3)$$

где  $D$  — средний по длине рабочего участка диаметр;  $\eta$  — поправка на уменьшение сечения образца за счет пирометрических полостей на рабочем участке. При выводе формулы (3) предполагается, что сопротивление  $R$  рабочего участка  $\Delta L$  можно представить в виде суммы последовательно соединенных сопротивлений участков со сплошным сечением  $S_0$  и участков, сечения которых уменьшены за счет радиальных пирометрических каналов диаметром  $d$  и глубиной  $h$ . В этом случае поправка  $\eta$  может быть рассчитана по соотношению

$$\eta = \frac{nd}{\Delta L} \left( \frac{R_d}{R_{0d}} - 1 \right) \quad (4)$$

$$\left( R_{0d} = \rho \frac{d}{S_0}, \quad R_d = \rho \int_0^d \frac{dz}{S(z)} \right),$$

где  $n$  — число пирометрических каналов на экспериментальном участке. Для цилиндрической полости последний интеграл легко берется и может быть представлен выражением

$$R_d = \frac{\rho}{h} \left( \frac{2}{\sqrt{1 - \kappa^2}} \arctg \sqrt{\frac{1 + \kappa}{1 - \kappa}} - \frac{\pi}{2} \right), \quad (5)$$

где  $\kappa = hd / S_0$ .

При работе используется график зависимости  $(R_d / R_{0d} - 1)$  от величины  $\kappa$ . Численное значение поправки  $\eta$  обычно не превышает 0,05.

Как показали специально поставленные эксперименты, при комнатной температуре влияние искривления эквипотенциалей измерительного тока вблизи пирометрической полости пренебрежимо мало (в пределах точности метода измерения сопротивления).

При определении температуры отнесения учитывается измеренная в опыте неравномерность температуры по длине рабочего участка и ослабление в смотровом стекле.

При подготовке экспериментов и наладке установки особое внимание было уделено изучению характера распределения электронов по периметру

образца. Постоянство температуры по периметру образца возможно лишь в условиях равномерного распределения электронов по нему и одинаковых условий теплообмена на его поверхности. Как показало исследование траекторий первичных электронов, в принятой системе можно ожидать достаточно равномерного распределения тепловой нагрузки.

Эти предположения были проверены двумя путями. Во-первых, специально поставленный опыт с секционированным образцом и одной нитью катода показал наличие значительного разброса первичных электронов по его периметру. Во-вторых, измерения электропроводности, выполненные при работе одного катода, но с разной ориентировкой его по отношению к оси пирометрического канала, дали результаты, не отличающиеся в пределах погрешности эксперимента. Все это позволяет полагать, что влияние неравномерности температурного поля по сечению образца несущественно.

Максимальная расчетная погрешность измерения удельного сопротивления составляет величину порядка  $0,8 \div 1,2\%$  при использовании пирометра ОП-48. Средний разброс экспериментальных точек не превышает  $0,3 \div 0,5\%$ .

Следует указать на основные достоинства описанного выше метода. Имеется возможность исследовать короткие образцы диаметром до 14 мм длиной порядка 5—6 диаметров, что представляет особую ценность для исследования монокристаллов и изделий порошковой металлургии. Повышается точность измерения геометрии образца. Появляется возможность выполнять на образце модели черного тела и измерять его температуру, исключая тем самым ошибки, связанные с измерением яркостной температуры и ее пересчетом в истинную.

Применение электронного нагрева с достаточно равномерным рассеянием электронов практически исключает радиальные градиенты температур, чем обеспечивается изотермичность моделей черного тела. Продольные градиенты температур настолько незначительны, что погрешность осреднения температуры по длине рабочего участка легко сводится к пренебрежимо малой. Нагрев конструктивных элементов установки незначителен по сравнению с температурой исследуемого образца, что позволяет практически исключить загрязнение металла в течение опыта продуктами возгонки посторонних веществ, а также облегчает выбор материалов для создания экспериментальной установки и позволяет получить на образце максимально высокие температуры.

Условия измерений удельного электрического сопротивления тантала в наших опытах характеризовались следующими величинами. Вакуум при испытаниях  $\sim 10^{-5}$  мм рт. ст., измерительный ток  $I_k \approx 10$  а, анодный ток изменялся от 8,0 ма при средней температуре образца  $T \approx 1210^\circ$  К до  $\sim 350$  ма при  $T = 2800^\circ$  К. Анодное напряжение не превышало 5,6 кВ. Максимальный перепад температур на рабочем участке не превышал 1% от максимума температурной кривой в данном режиме. Погрешность результатов  $1,5 \div 2\%$ , разброс точек не более 0,5%.

### Результаты эксперимента

В табл. 1 приведены сглаженные значения коэффициента теплопроводности  $\lambda$ , удельного электрического сопротивления  $\rho$ , интегральной полусферической степени черноты  $\epsilon$  и  $\epsilon^*$  исследованного тантала.  $\epsilon^*$  — полусферическая степень черноты с учетом изменения размеров поверхности при различных температурах.

Данные по коэффициенту линейного расширения взяты из [7].

Полученные опытные точки приведены на рис. 1, 3, 4, где показан разброс наших данных и сравнение их с результатами, полученными другими авторами.

Характерной особенностью большинства экспериментальных данных является положительный температурный ход теплопроводности тантала. Исключение составляют результаты работ [1, 8], где коэффициент теплопроводности уменьшается с ростом температуры. Наши данные в пределах погрешности эксперимента достаточно хорошо согласуются с результатами работы Резора и др. [7], но обнаруживают более слабую зависимость теплопроводности от температуры.

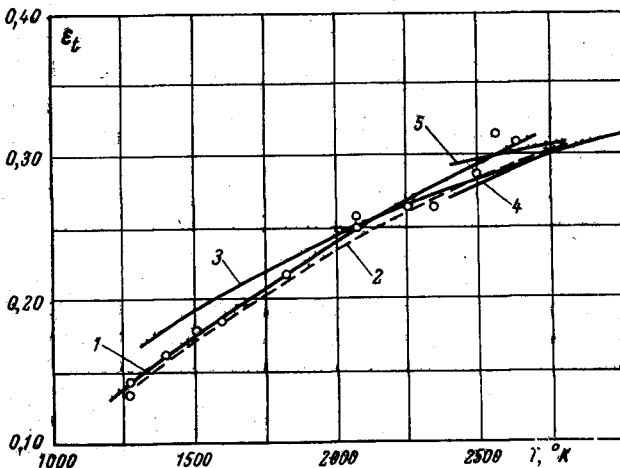


Рис. 3. Зависимость интегральной полусферической степени черноты  $\epsilon_t$  от температуры

1 — данные авторов, 2 — те же данные с поправкой на расширение, 3 — [4], 4 — [5], 5 — [6]

Заметим, что сравнение с этой работой носит, конечно, формальный характер, ибо материал, исследованный в [7], содержал почти 2% примесей различных элементов, среди которых на долю меди, циркония и железа приходилось 1,67%. Это значительно превышает содержание примесей в исследованном нами материале. Наиболее близок нам по химическому составу тантал, исследованный в [2]. Однако это исследование ограничено температурой  $\sim 1300^\circ \text{K}$ , что затрудняет сравнение данных. Можно лишь

Таблица 1

T °K	1300	1500	1700	1900	2100	2300	2500	2700	2900
$\lambda$ , $\text{вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{град}^{-1}$	55,2	56,5	57,9	59,3	60,7	62,1	63,5	64,8	66,2
$\rho \cdot 10^6$ , $\text{ом}\cdot\text{см}$	57,0	63,8	70,4	76,8	83,2	89,6	96,0	102,4	108,8
$\epsilon$	0,145	0,174	0,200	0,225	0,250	0,273	0,292	0,310	0,328
$\epsilon^*$	0,143	0,171	0,196	0,220	0,243	0,264	0,282	0,298	—

заметить, что экстраполяция их кривой в область высоких температур ведет к фантастическим для данного материала значениям теплопроводности.

Напротив, экстраполяция нашей кривой в зону низких температур, начиная с  $900^\circ \text{K}$ , дает значения, совпадающие в пределах погрешности эксперимента с данными [2]. Авторы [2] применяли метод, основанный на идеях Кольрауша. С ростом температур здесь резко возрастают погрешности, обусловленные нарушением адиабатичности боковой изоляции цилиндрического образца. Система поправок Егера и Диссельхорста, основанная на замене тепловых потерь на боковой поверхности образца отрицательными источниками тепла эквивалентной мощности, равномерно рас-

пределенными по сечению и линейно зависящими от температуры, становится неэффективной. Возникающие погрешности действуют в сторону завышения коэффициента теплопроводности.

Сопоставляя данные по теплопроводности, нельзя не обратиться к значениям удельного электрического сопротивления, найденным для данных материалов. По нашим измерениям значение удельного сопротивления тантала при комнатной температуре  $\rho = 13,7 \cdot 10^{-6}$  ом·см. На рис. 4 оно соединено пунктирной линией с данными основного диапазона измерений. Видно, что значения электросопротивления, полученные Н. З. Поздвяком и К. Г. Ахметзяновым, заметно выше найденных нами. Материалы близки как по составу, так и по способу приготовления, поэтому можно ожидать близких значений чисел Лоренца. В соответствии с законом Видемана-Франца следовало бы ожидать, что значения коэффициента теплопроводности в опытах [2] будут ниже, чем у нас. Из сравнения кривых 1 и 3 на рис. 1 видно, что указанное предположение выполняется лишь для зоны температур, меньших  $\sim 800^\circ \text{K}$ .

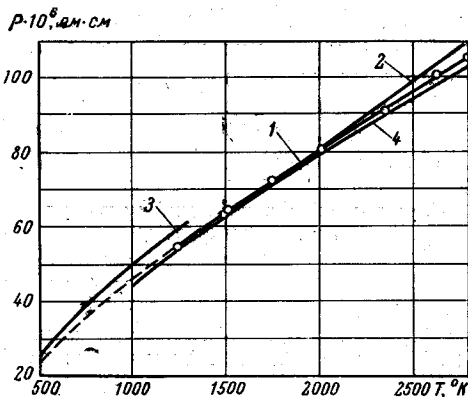


Рис. 4. Зависимость удельного электрического сопротивления  $\rho$  тантала от температуры

1 — данные авторов; 2 — [1], 3 — [2], 4 — [4]

Все это заставляет предполагать, что данные [2] содержат погрешность, возрастающую с повышением температуры, и завышающую значения теплопроводности тантала.

Обращают на себя внимание данные [1] (рис. 1 и рис. 4, кривые 2). К сожалению, они не охарактеризованы составом исследованного материала. Однако комплекс этих данных столь резко выпадает из общей картины, что на нем нельзя не остановиться. Судя по кривой 2 рис. 4, можно ожидать некоторого уменьшения данных [1] по теплопроводности по сравнению с нашими результатами. Однако это уменьшение весьма значительно, более того оно меняет знак температурной зависимости  $\lambda(T)$ .

Обратимся к табл. 2, где представлены значения чисел Лоренца, рассчитанные по различным данным.

Таблица 2

Литература	573° К	873° К	1173° К	1273° К	1300° К	1900° К	2500° К	2900° К
Данные авторов	—	—	—	—	2,42	2,40	2,44	2,48
[1]	—	—	2,03	1,96	1,94	1,68	1,53	—
[2]	2,48	2,72	3,04	3,17	—	—	—	—

Из таблицы видно, что в пределах точности эксперимента, по нашим данным, тантал характеризуется постоянным числом Лоренца, практически равным теоретическому значению в интервале температур 1300—2900° К. Это соответствует случаю отсутствия фоновой составляющей теплопроводности, когда перенос энергии осуществляется свободными электронами.

Данные [1] приводят к двум предположениям: либо для тантала вообще лишен смысла закон Видемана-Франца (ибо в соответствии с [1] он больше всего нарушается именно в той температурной области  $T > \theta_{\text{деб}}$ , где должен хорошо выполняться, либо в измерениях авторов [1]

имелась неучтенная систематическая ошибка. Судя по накопленным экспериментальным данным по теплопроводности и электропроводности различных металлов и их сплавов, более вероятно второе предположение.

Самостоятельное значение имеют данные по степени черноты материала, представленные на рис. 3. Наши данные, характеризующие лучистый поток с поверхности образца, обработанной по восьмому классу чистоты, достаточно хорошо согласуются с имеющимися литературными данными [4—6]. Расхождение кривых лежит в зоне погрешностей эксперимента. Однако интервал температур 1200—2000° К требует проведения дополнительных измерений.

В заключение авторы выражают признательность Д. Л. Тимроту за постоянное внимание и интерес к работе. В проведении экспериментов и их обработке принимали участие И. С. Миндова, Г. Д. Киселев.

Научно-исследовательский институт  
высоких температур

Поступила в редакцию  
23 VII 1965

#### ЛИТЕРАТУРА

1. В. С. Гуменюк, В. В. Лебедев, В. Е. Иванов. ПТЭ, № 1, 1962.
2. Н. З. Поздняк, К. Г. Ахметзянов. Теплофизика высоких температур, 1, № 2, 1963.
3. Д. Л. Тимрот, В. Э. Пелецкий. Теплофизика высоких температур, 3, № 2, 1965.
4. В. Эспе. Технология электровакuumных материалов. Госэнергоиздат, 1962.
5. A. G. Worthing. Phys. Rev., 4, № 6, 1914.
6. I. V. Fieldhouse, I. C. Hedge, I. E. Waterman. WADC, Techn. Report, 55—495, Part I, ASTIA, № AD 110404, 1956.
7. N. S. Rasor, I. D. McClelland. WADC, Techn. Report, 56-400, Part I, ASTIA, № AD 118144, 1957.
8. R. D. Allen, L. F. Glasier, Jordan. J. Appl. Phys., № 8, 1960.