

Получение температурной зависимости критической напряженности электрического поля в SF₆ и смесях SF₆ с C₂H₆ методом лазерного нагрева газа

А.А.Белевцев, С.Ю.Казанцев, И.Г.Кононов, К.Н.Фирсов

Получены температурные зависимости критической приведенной напряженности электрического поля $(E/N)_{cr}$ в SF₆ и смесях SF₆ с C₂H₆ в диапазоне температур газа $T_g = 293 - 1500$ К в отсутствие термической диссоциации. Нагрев газа осуществлялся в результате VT-релаксации молекул SF₆, возбуждаемых излучением импульсного CO₂-лазера. Значения $(E/N)_{cr}$ оценивались по квазистационарным напряжениям горения объемного самостоятельного разряда, зажигаемого с некоторой временной задержкой по отношению к лазерному импульсу. Показано, что в отсутствие диссоциации приведенная напряженность электрического поля в SF₆ и смесях SF₆ с C₂H₆ в исследуемом диапазоне температур увеличивается с ростом T_g . Проведено сравнение полученной температурной зависимости $(E/N)_{cr}$ в SF₆ с результатами работ других авторов.

Ключевые слова: CO₂-лазер, объемный самостоятельный разряд, SF₆, прилипание электронов, критическая напряженность электрического поля.

1. Введение

Приведенная критическая напряженность электрического поля $(E/N)_{cr}$ (где E – напряженность поля, N – концентрация молекул), при которой скорости образования и прилипания электронов к нейтральным молекулам уравновешивают друг друга, является важнейшей характеристикой электроотрицательного газа, определяющей, в частности, его электрическую прочность. Значительный интерес в последнее время вызывает вопрос о влиянии температуры газа на величину $(E/N)_{cr}$. Это связано с решением целого ряда фундаментальных и прикладных задач современной электрофизики, таких, например, как исследование динамики высокотемпературного лидерного канала искрового разряда [1] и использование сильно электроотрицательных газов в качестве высоковольтной изоляции в условиях, когда рабочие температуры могут существенно превышать нормальные.

Особое внимание привлекают SF₆ (элегаз) и смеси на его основе, которые сочетают высокую электрическую прочность с уникальными во многом теплофизическими свойствами. В настоящее время, однако, информация о температурной зависимости $(E/N)_{cr}$ в этих газах весьма ограничена и противоречива. Насколько нам известно, имеется лишь небольшое число работ [2–6], посвященных этому вопросу. В работе [2] утверждается, что напряжение зажигания разряда в SF₆ при постоянной плотности газа, а следовательно и величина $(E/N)_{cr}$, не зависят от температуры в интервале температур от комнатной до

1073 К. Однако какие-либо экспериментальные или теоретические свидетельства в пользу высказанного утверждения в [2] не приводятся. Напротив, исследования [3] движения электронов в однородном поле через элегаз, нагреваемый вплоть до температуры 600 К (прямые измерения напряжения зажигания в [3] не проводились), указывают на заметный рост $(E/N)_{cr}$ в SF₆ с увеличением температуры газа T_g . Например, согласно [3] значение $(E/N)_{cr}$ при $T_g = 600$ К должно превышать аналогичную величину при комнатной температуре примерно на 11 %.

В работах [4, 5] представлены результаты измерений пробивных напряжений в SF₆ при давлении 2 атм в температурном интервале 1300–2200 К. Они показывают резкое падение $(E/N)_{cr}$ с увеличением температуры. Аналогичная тенденция со всей определенностью усматривается и из результатов теоретической работы [6], и из расчетов М.Хаяси, представленных в [5]. Следует, однако, отметить, что и эти расчеты, и эксперименты [4,5] отвечают условиям, когда имеет место частичная тепловая диссоциация SF₆. Поэтому значения $(E/N)_{cr}$, полученные в [4–6], относятся не собственно к элегазу, а к смеси, содержащей продукты его термического разложения. Измерения $(E/N)_{cr}$ в SF₆ в диапазоне температур 600–1300 К вообще не проводились. Что же касается газовых смесей на основе SF₆, то какая-либо информация о температурной зависимости критической напряженности поля в них в настоящее время полностью отсутствует.

Экспериментальные методы, используемые в [3–5], позволяют определять приведенную напряженность электрического поля в SF₆, нагретом либо до сравнительно невысоких температур [3], либо до температур, характерных для дугового разряда [4, 5]. Измерение $(E/N)_{cr}$ в SF₆ при промежуточных температурах требует принципиально иного подхода.

В наших предыдущих работах [7,8] была показана возможность нагрева SF₆ и его смесей, в частности с этаном, излучением импульсного CO₂-лазера вплоть до температур 1500 К в результате перехода поглощенной

А.А.Белевцев, Институт теплофизики экстремальных состояний Объединенного института высоких температур РАН, Россия, 127412 Москва, ул. Ижорская, 13/19; e-mail: baa@hedric.msk.ru
С.Ю.Казанцев, И.Г.Кононов, К.Н.Фирсов, Институт общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38; e-mail: kazan@kapella.gpi.ru

Поступила в редакцию 27 декабря 2006 г., после доработки – 29 марта 2007 г.

лазерной энергии в тепловую в процессе VT-релаксации колебательно-возбужденных молекул SF₆. При этом удается избежать термической диссоциации газа. Существенным является и то обстоятельство, что квазистационарные значения приведенной напряженности электрического поля $(E/N)_{qs}$ в плазме объемного самостоятельного разряда (ОСР) в SF₆ при комнатной температуре (в отсутствие нагрева лазерным излучением) и энерговыкладах менее 100 Дж/л отличаются от $(E/N)_{cr}$, измеряемых в экспериментах по статическому пробою газов, очень незначительно (не более чем на 4 %) [9]. Небольшое различие может быть, по-видимому, связано с ограничением плотности тока в диффузном канале, экспериментально исследованном и качественно описанном в [9]. С учетом сказанного представляется вполне разумным предположить, что и при повышенных температурах значения $(E/N)_{qs}$ будут близки к $(E/N)_{cr}$.

В [10] нами установлено, что напряжение в квазистационарной фазе ОСР в SF₆ и смесях SF₆ с C₂H₆ при средних давлениях газов увеличивается с ростом удельной энергии W_a излучения импульсного СО₂-лазера, поглощенной молекулами SF₆ в зоне развития разряда. В [7, 8] показана возможность определения температуры газа по измеренным значениям W_a . Это создает предпосылки для экспериментального нахождения температурной зависимости $(E/N)_{qs}$ в исследуемых газах путем изменения плотности энергии лазерного излучения. Отмечавшаяся выше близость значений $(E/N)_{qs}$ и $(E/N)_{cr}$ позволяет составить адекватное представление и о поведении в этих газах приведенной критической напряженности электрического поля при высоких температурах.

Настоящая работа посвящена получению температурной зависимости приведенной критической напряженности электрического поля в SF₆ и смесях SF₆ с C₂H₆, нагретых излучением импульсного СО₂-лазера, в диапазоне $T_g = 293 - 1500$ К. Значения $(E/N)_{cr}$ оцениваются по напряжениям в квазистационарной фазе горения ОСР, зажигаемого в газе с некоторой временной задержкой по отношению к лазерному импульсу. Температура газа определяется по измеренным значениям удельной поглощенной энергии лазерного излучения с использованием рассчитанных удельных теплоемкостей компонентов смеси. Полученная температурная зависимость $(E/N)_{cr}$ в SF₆ сравнивается с имеющимися литературными данными.

2. Экспериментальная установка и методика измерений

Схема экспериментальной установки и методика эксперимента были аналогичны описанным в [7, 8, 10]. В процессе экспериментов измерялось напряжение U_{qs} в квазистационарной фазе горения ОСР, который зажигался в SF₆ и смесях SF₆ с C₂H₆ при парциальных давлениях $p_{SF_6} = 9 - 30$ Тор, предварительно облучаемых импульсом СО₂-лазера (линия Р(20) полосы 10.6 мкм). Удельная энергия лазерного излучения, поглощаемого SF₆ в зоне развития разряда, достигала 0.27 Дж/см³. Методика измерений W_a подробно описывалась нами в [7]. Пространственно однородный пучок излучения СО₂-лазера размером 60 × 60 мм вводился в разрядную камеру через окно из ВаF₂, часть излучения ответвлялась клиньями из NaCl на калориметр и фотоприемник для контроля энергии и формы импульса излучения лазера.

Энергия излучения лазера изменялась фильтрами из тефлоновой пленки, устанавливаемыми перед клиньями из NaCl.

Разряд зажигался между иглой (катод) и боковой поверхностью цилиндра диаметром 15 мм при межэлектродном расстоянии $d = 43$ мм. Роль иглы выполнял отрезок медного провода диаметром 1.5 мм в полиэтиленовой изоляции, препятствующей развитию разряда с боковой поверхности катода. Расстояние от кончика иглы до поверхности окна из ВаF₂ вдоль оптической оси внутри разрядной камеры составляло 25 мм. На промежуток разряжался конденсатор емкостью 1 нФ через индуктивность 2.5 мкГн. Зарядное напряжение варьировалось от 15 до 35 кВ в зависимости от давления и состава газовой смеси в камере. Задержка τ между лазерным и разрядным импульсами в настоящих экспериментах составляла 3 мкс при полной длительности лазерного импульса также 3 мкс. Задержка отсчитывалась от начала переднего фронта лазерного импульса, имевшего форму, типичную для СО₂-лазера с поперечным разрядом.

Напряжение и ток ОСР контролировались калиброванными высоковольтным делителем напряжения и токовым шунтом соответственно. Квазистационарное напряжение U_{qs} измерялось в момент времени, соответствующий максимуму тока. Удельные вклады электрической энергии в плазму разряда не превышали 20 Дж/л, что гарантировало отсутствие влияния на U_{qs} характерных для объемных разрядов в сильно электроотрицательных газах процессов ограничения плотности тока в диффузном канале [9].

Температура газа, устанавливающаяся к моменту приложения к промежутку напряжения (после окончания лазерного импульса), определялась из выражения

$$\frac{W_a}{N} = \int_{T_0}^{T_g} C_V(T') dT', \quad C_V(T') = \sum_i \xi_i C_{Vi}(T'), \quad (1)$$

где N – суммарная концентрация молекул; C_{Vi} и ξ_i – теплоемкость при постоянном объеме и исходная относительная концентрация i -го компонента смеси; $T_0 \approx 300$ К. Возможность использования этого выражения для определения T_g в условиях описываемого ниже эксперимента была теоретически обоснована нами в [7, 8] при рассмотрении процесса релаксации поглощенной молекулой SF₆ энергии лазерного излучения и экспериментально проверена в [8], где проводилось сравнение рассчитанных по формуле (1) и измеренных скоростей ударных волн, возникающих из-за температурного скачка на границе зоны облучения при воздействии на газовые смеси, содержащие SF₆, импульса СО₂-лазера.

3. Результаты экспериментов и их обсуждение

На рис.1 представлены зависимости напряжения U_{qs} в квазистационарной фазе горения ОСР от удельной поглощенной в зоне развития разряда энергии излучения W_a в SF₆ и смеси SF₆:C₂H₆ = 5:1 при разных значениях полного давления p . Для определения приведенной напряженности электрического поля $(E/N)_{qs}$ в квазистационарной фазе ОСР необходимо найти падение напряжения на положительном столбе ОСР. С этой целью нами были сняты зависимости U_{qs} от pd (рис.2) при комнатной температуре исследуемых газов (в отсутствие облуче-

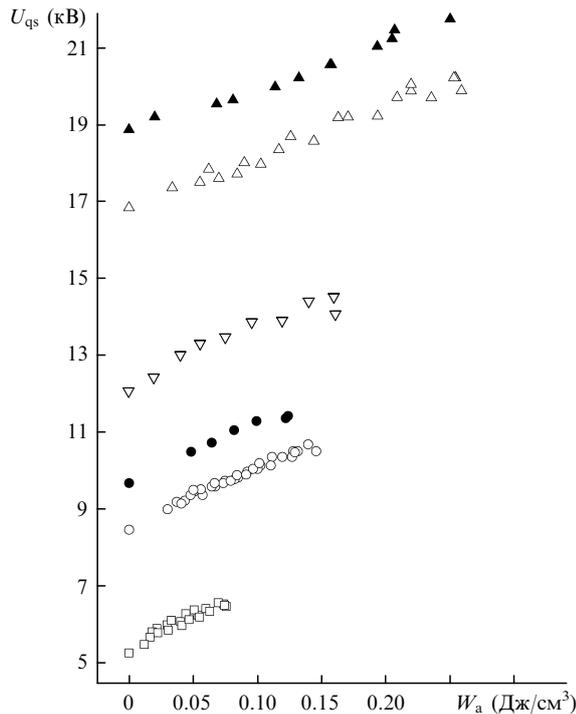


Рис.1. Зависимости напряжения U_{qs} в квазистационарной фазе горения ОСР от удельной энергии излучения W_a , поглощенного в зоне развития ОСР, в SF₆ при $p = 9$ (□), 15 (○), 21 (▽) и 30 Тор (△), а также в смеси SF₆:C₂H₆ = 5:1 при $p = 18$ (●) и 36 Тор (▲).

ния), из которых следует, что $U_{qs} = \Delta U + \text{const} \cdot pd$. В пренебрежении температурной зависимостью ΔU величина $(E/N)_{qs}$ определялась по формуле $(E/N)_{qs} = (U_{qs} - \Delta U) \times (Nd)^{-1}$. Зависимости $(E/N)_{qs}$ от температуры газа T_g , построенные по данным рис.1 и 2, представлены на рис.3. При вычислении T_g в соответствии с выражением (1) значения $C_{Vi}(T)$ брались из [11, 12]. Для сравнения на рис.3 приведены также взятые из работы [3] значения $(E/N)_{cr}$ в SF₆ при разных температурах. Видно, что результаты измерений $(E/N)_{cr}$ в [3] в пределах экспериментальной погрешности хорошо согласуются с полученными нами $(E/N)_{qs}$, однако наша экспериментальная методика позволила существенно расширить исследуемый температурный диапазон по сравнению с [3]. Температурные зависимости $(E/N)_{qs}$ в смеси SF₆ – C₂H₆, как следует из рис.3, имеют тот же характер, что и в чистом SF₆, т. е. величина $(E/N)_{qs}$ в исследуемом температурном интервале растет с увеличением T_g .

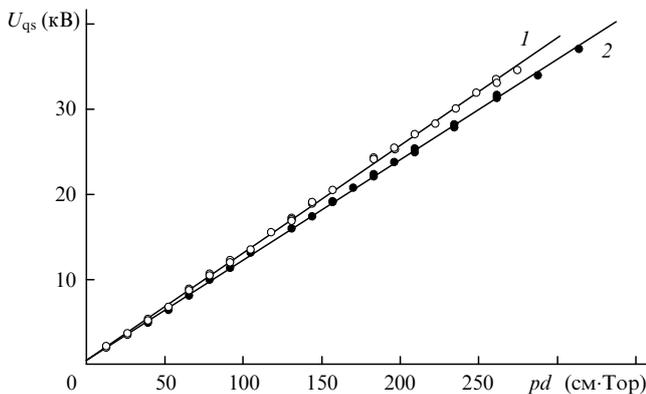


Рис.2. Зависимости напряжения U_{qs} в квазистационарной фазе горения ОСР от pd в SF₆ (1) и в смеси SF₆:C₂H₆ = 5:1 (2).

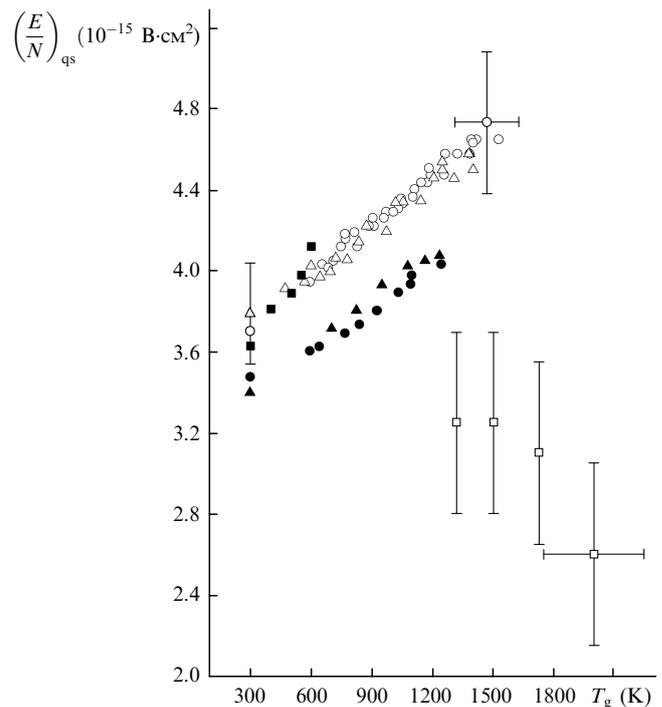


Рис.3. Зависимости $(E/N)_{qs} = (U_{qs} - \Delta U)/(Nd)$ от температуры газа T_g в SF₆ при $p = 15$ (○) и 30 Тор (△) и в смеси SF₆:C₂H₆ = 5:1 при $p = 18$ (▲) и 36 Тор (●), а также критическая приведенная напряженность поля в SF₆ по данным работ [3] (■) и [4, 5] (□).

Таким образом, учитывая, что значения $(E/N)_{qs}$ близки, как отмечалось выше, к $(E/N)_{cr}$, можно утверждать, что наши результаты и данные [3] со всей определенностью указывают на увеличение критической приведенной напряженности электрического поля в SF₆ и смесях SF₆ с C₂H₆ с ростом температуры газа, по крайней мере, в интервале $T_g = 293 - 1500$ К.

Совершенно иная тенденция усматривается из данных по температурной зависимости $(E/N)_{cr}$, полученных в [4, 5] и также представленных на рис.3. Видно, что $(E/N)_{cr}$ быстро уменьшается с увеличением T_g . В результате, даже с учетом довольно значительной погрешности измерений, полученные в [4, 5] значения $(E/N)_{cr}$, например при температуре $T_g = 1500$ К, оказываются заметно ниже найденного нами. Аналогичное поведение зависимостей $(E/N)_{cr}$ в SF₆ от T_g следует и из результатов расчетов, приведенных в [5, 6]. В них учитывалась тепловая диссоциация молекул SF₆, состав газа считался термически равновесным, а константы скоростей ионизации и прилипания рассчитывались с помощью функции распределения электронов по энергиям. Последняя находилась путем численного решения кинетического уравнения Больцмана для электронов во внешнем электрическом поле.

Согласно [5, 6] уменьшение $(E/N)_{cr}$ связано с относительным увеличением концентрации атомов фтора по мере нарастания температуры газа. Поскольку упругие и неупругие потери энергии электронов при их столкновениях с атомами фтора, включая и процессы прилипания, значительно меньше, чем при рассеянии электронов на молекулах SF₆ и остальных продуктах его разложения, равенство скоростей ионизации и прилипания в нагретом газе достигается при меньших значениях $(E/N)_{cr}$ по сравнению с $(E/N)_{cr}$ в SF₆ при комнатной температуре. В пользу такой точки зрения косвенно свидетельствуют и

результаты экспериментов [13], показывающие уменьшение $(E/N)_{cr}$ в смесях SF₆ с He при увеличении относительной концентрации гелия. Действительно, потери энергии электронов на атомах гелия, как и на атомах фтора, существенно меньше, чем на молекулах SF₆. Причина качественного отличия результатов работ [4, 5] от полученных нами состоит, по-видимому, в следующем.

В наших экспериментах длительность разрядного тока по половине амплитуды была равна ~ 100 нс, в то время как длительность лазерного импульса и временная задержка между лазерным и высоковольтным импульсами были одинаковыми и составляли 3 мкс. Поэтому диссоциация молекул SF₆ могла бы оказать заметное влияние на величину $(E/N)_{cr}$ лишь в том случае, если бы она успевала происходить за время, не превышающее 3 мкс. Диссоциация многоатомных молекул, подобных SF₆, является очень сложным процессом и включает в себя, как правило, много последовательных стадий разложения многоатомной молекулы. К сожалению, сколько-нибудь полная информация о стадиях диссоциации SF₆ и соответствующих константах в настоящее время отсутствует. Можно, однако, получить достаточно надежную оценку времени диссоциации τ_{dis} , исходя из следующих качественных соображений,

Ясно, что время τ_{dis} должно быть, по крайней мере, не меньше характерного времени τ_A протекания одиночной стадии процесса. Соответствующую константу k_A можно грубо оценить, используя известное соотношение Аррениуса [14]

$$k_A = S \left(\frac{8T_g}{\pi\mu} \right)^{1/2} \sigma_A \left(1 + \frac{D_A}{T_g} \right) \exp \left(- \frac{D_A}{T_g} \right). \quad (2)$$

Здесь S – стерический фактор, учитывающий различные взаимные ориентации сталкивающихся частиц; μ и σ_A – их приведенная масса и сечение столкновения; D_A – энергия активации, соответствующая равновероятному пути осуществления реакции. Фактор $S = 0.1 - 1$ для столкновений атомов между собой и с молекулами и $S = 10^{-6} - 10^{-3}$ для столкновений молекул друг с другом и с радикалами. Энергия D_A зависит от того, на какие фрагменты распадается молекула в одиночном столкновительном акте, и для SF₆ составляет примерно несколько электрон-вольт. Эта оценка D_A находится в согласии с данными [6, 15] по равновероятному составу нагретого SF₆ и эмпирическим соотношением между энергией активации и температурой на стадии развитой диссоциации [16].

Полагая для оценок $\sigma_A \sim 10^{-15}$ см² и $S = 1$, мы приходим к сильно завышенному значению k_A ($\sim 10^{-14}$ см³/с). Поскольку максимальная концентрация частиц в наших экспериментах не превышает 10^{18} см⁻³, то время τ_A и, следовательно, τ_{dis} заведомо больше 100 мкс. Это позволяет с уверенностью утверждать, что диссоциации молекул SF₆ в условиях данного эксперимента не происходит. Заметим также, что в работе [4] диссоциация SF₆ становилась заметной после его нагрева в течение 10 мс при температуре ~ 2000 К. Это можно рассматривать как дополнительное косвенное подтверждение приведенной выше оценки τ_{dis} . В экспериментах [3] диссоциация SF₆ отсутствовала вследствие чрезвычайно низкой плотности газа.

Наблюдаемое в наших экспериментах увеличение критической приведенной напряженности поля $(E/N)_{cr}$ в не-

диссоциированном SF₆ с ростом температуры газа T_g связано с увеличением потерь электронов вследствие их прилипания к колебательно-возбужденным молекулам SF₆. Это с необходимостью следует из наших предыдущих работ по исследованию ОСП в SF₆, предварительно облученном CO₂-лазером [7, 8, 10]. При температурах от 300 до 1100 К диссоциация в SF₆ полностью отсутствует (см., напр., [6, 15]), поэтому критическая напряженность поля в SF₆ при постоянной плотности газа всегда зависит от его температуры в указанном диапазоне, а именно растет с ростом T_g . Это находится в резком противоречии с утверждением автора работы [2].

4. Заключение

В работе получены температурные зависимости критической приведенной напряженности электрического поля $(E/N)_{cr}$ в SF₆ и смесях SF₆ с C₂H₆, предварительно нагретых излучением импульсного CO₂-лазера. Показано, что величина $(E/N)_{cr}$ в этих газах увеличивается с ростом температуры T_g в диапазоне 293 – 1500 К. Это согласуется с результатами измерений $(E/N)_{cr}$ в SF₆, выполненных в [3] при температурах вплоть до 600 К, и находится в противоречии с данными [2] по температурной зависимости $(E/N)_{cr}$ в SF₆ в интервале температур от комнатной до 1073 К. Рост $(E/N)_{cr}$ с увеличением температуры газа в условиях настоящего эксперимента обусловлен дополнительными потерями электронов в результате их прилипания к колебательно-возбужденным молекулам SF₆.

Работа частично поддержана РФФИ (гранты № 05-08-33704 и 06-08-00568) и Фондом содействия отечественной науке.

1. Базелян Э.М., Райзер Ю.П. *Искровой разряд* (М.: Изд-во МФТИ, 1997).
2. Бортник И.М. *Физические свойства и электрическая прочность шестифтористой серы* (М.: Энергоатомиздат, 1988).
3. Datskos P.G., Christophorou L.G., Carter J.G. *J. Chem. Phys.*, **99**, 8607 (1993).
4. Eliasson B., Schade E. *Proc. XIII Int. Conf. on Phenomena in Ionized Gases* (Leipzig, Germany, 1977, p. 409).
5. Shade E. *Proc. XVII Int. Conf. on Phenomena in Ionized Gases* (Budapest, Hungary, 1985, p. 277).
6. Александров Д.А., Александров Н.А., Базелян Э.М., Кончаков А.М. *Физика плазмы*, **29**, 182 (2003).
7. Belevtsev A.A., Firsov K.N., Kazantsev S.Yu., Kononov I.G. *Appl. Phys. B*, **82**, 455 (2006).
8. Белевцев А.А., Казанцев С.Ю., Кононов И.Г., Фирсов К.Н. *Квантовая электроника*, **36**, 646 (2006).
9. Аполлонов В.В., Белевцев А.А., Казанцев С.Ю., Сайфуллин А.В., Фирсов К.Н. *Квантовая электроника*, **30**, 207 (2000).
10. Belevtsev A.A., Firsov K.N., Kazantsev S.Yu., Kononov I.G. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37**, 1759 (2004).
11. Chervy B., Gleizes A., Razafinimanana M. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **27**, 1193 (1994).
12. Бабичев А.П., Бабушкина Н.А., Братковский А.М. В кн.: *Физические величины: справочник* (М.: Энергоиздат, 1991).
13. Urquijo J. *Plasma Sources Science and Technology*, **11**, A86 (2002).
14. Карлов Н.В., Кириченко Н.А., Лукьянчук Б.С. *Лазерная термодимика* (М.: Наука, 1992).
15. Ruchti C.B. *Proc. 5th Int. Symp. on Switching Arc Phenomena* (Lodz, Poland, 1985, p. 34).
16. Зельдович Я.Б., Райзер Ю.П. *Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений* (М.: Наука, 1966).