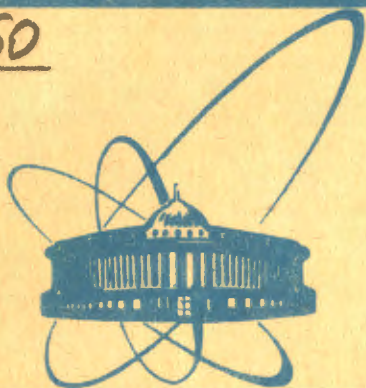


C350



сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

6342/83

18-83-578

В.И.Кузнецов, В.В.Овчинников,
В.Д.Селезнев, В.Д.Акиншин

ОПРЕДЕЛЕНИЕ РАДИУСА ПОР
МЕМБРАН СЕТЧАТОГО ТИПА
ГАЗОДИНАМИЧЕСКИМ СПОСОБОМ

1983

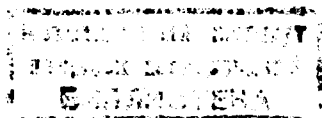
В последнее время в связи с массовым производством фильтрационных материалов сетчатого типа, получаемых, например, на ускорителях заряженных частиц бомбардировкой тонких полимерных пленок тяжелыми ионами с последующей химической обработкой^{/1/}, все острее возникает задача контроля их основных характеристик, таких, как диаметр пор и пористость. Пористость при известных геометрических размерах каналов легко определяется по абсолютному расходу газа^{/2/}, жидкости или кондуктометрией^{/3/}.

Для измерения среднего диаметра пор обычно применяют электронную микроскопию^{/2,4/} и так называемый "Метод пузырька"^{/5/}, который заключается в определении разности давлений, необходимой для продавливания газа через мембрану, пропитанную смачивающей ее жидкостью. Электронный микроскоп дает информацию только о внешнем размере пор фильтра, что может привести к большим ошибкам в предсказании проницаемости из-за возможной конусности каналов. Для контроля в массовом производстве этот способ мало пригоден из-за его дороговизны и трудоемкости. Упомянутый выше "Метод пузырька" является простым, удобным, но недостаточно точным, его погрешность при измерении малых диаметров пор /10-10² нм/ может достигать нескольких десятков процентов. Необходимость смачивания образца также ограничивает применение такого способа.

Весьма интересен также способ ртутной порометрии^{/4/} и электрического пробоя^{/8/}. Первый из них основан на вдавливании ртути в поры фильтра при больших давлениях /тысячи бар/, второй имеет ограничение в измерении фильтров малых диаметров /менее 0,1 мкм/ вследствие пробоя самого полимера.

В этой связи газодинамический метод контроля характеристик мембран, которому и посвящена настоящая работа, может оказаться предпочтительным из-за простоты, отсутствия причин понижения точности вплоть до самых малых размеров пор, слабого влияния адсорбированных слоев и возможной конусности канала.

Предлагаемая методика определения среднего радиуса пор основана на сравнении экспериментальной зависимости приведенного расхода газа через мембрану от обратного числа Кнудсена δ с соответствующей теоретической кривой^{/7/}. Экспериментальное исследование течения газов в различных каналах^{/8/} показывает, что для газов с малой зеркальностью отражения /ксенон, криптон, аргон, азот/ приведенный расход $\omega(\delta)$ является универсальной кривой, слабо зависящей от температуры, рода газа и поверхности, и отклоняется от теоретических предсказаний^{/7/} не более чем на 2-4% в широком диапазоне чисел Кнудсена. Значения $\omega(\delta)$ обычно находят как отношение потока газа, проходящегося на единичный перепад давления, к соответствующему теоретически рассчитанному потоку через ту же мембрану для свободно-молекулярного режима ($\delta \ll 1$). При неизвестной геометрии фильтра нельзя воспользоваться общепринятым методом определения приведенного расхода, поэтому предлагается $\omega(\delta)$ находить по экспериментальным значениям потока газа $J(\delta)$ и $J(\delta_1)$ в согласии с выражением:



$$\omega(\delta) = \frac{J(\delta)}{J(\delta_1)} \cdot \frac{\Delta P_1}{\Delta P}, \quad /1/$$

где δ - обратное число Кнудсена; $\Delta P, \Delta P_1$ - перепады давления газа на мембране, которые вызывают потоки $J(\delta)$ и $J(\delta_1)$ соответственно. Поток $J(\delta_1)$ измеряется при давлении, отвечающем обратному числу Кнудсена $\delta_1 < 10^{-2}$. Значения δ связаны со средним давлением P газа в порах фильтра следующим соотношением:

$$\delta = \pi^{-0,5} \cdot \frac{P \bar{R}}{V_t \cdot \eta} = \frac{\pi^{-0,5}}{2} \cdot \frac{\bar{R}}{\lambda}, \quad /2/$$

где V_t, λ - средняя тепловая скорость и длина свободного пробега газовых молекул, \bar{R} - средний радиус пор фильтра, η - коэффициент вязкости.

Таким образом, измерив расход газа при давлениях, отличающихся примерно в 10^3 раз, и вычислив приведенный расход согласно формуле /1/, по теоретической кривой $\omega(\delta)$ находят значение обратного числа Кнудсена, исходя из которого, в соответствии с выражением /2/, определяют искомый средний радиус пор.

Реальный фильтр имеет каналы с различными поперечными размерами. Представляя мембрану как набор n параллельных круглых капилляров с радиусами R_i , нетрудно получить следующее выражение для приведенного расхода:

$$\bar{\omega}(\delta) = \omega\left(\frac{\pi^{-0,5}}{2} \cdot \frac{\bar{R}}{\lambda}\right) = \frac{\sum_i^n J_i}{\sum_i^n J_i^{Kn}} = \frac{\sum_i^n J_i^{Kn} \cdot \omega\left(\frac{\pi^{-0,5}}{2} \cdot \frac{R_i}{\lambda}\right)}{\sum_i^n J_i^{Kn}} = \frac{\sum_i^n R_i^3 \omega\left(\frac{\pi^{-0,5}}{2} \cdot \frac{R_i}{\lambda}\right)}{\sum_i^n R_i^3}, \quad /3/$$

где J_i, J_i^{Kn} - произвольный и свободномолекулярный расход газа через i -тый канал мембраны. В пределе вязкого режима течения ($\delta \gg 1$), используя известное асимптотическое значение /9/

$$\omega(\delta \rightarrow \infty) = \frac{3\sqrt{\pi}}{32} \delta, \quad /4/$$

из формулы /3/ нетрудно получить

$$\bar{\omega}(\delta) = \frac{3\pi}{64\lambda} \cdot \frac{\sum_i^n R_i^4}{\sum_i^n R_i^3} = \frac{3\pi}{64} \cdot \frac{\bar{R}}{\lambda}. \quad /5/$$

Отсюда следует, что определяемый из условий наилучшего совпадения теоретических и экспериментальных кривых $\omega(\delta)$ средний радиус есть не что иное, как

$$\bar{R} = \frac{\sum_i^n R_i^4}{\sum_i^n R_i^3}. \quad /6/$$

Выражение /6/ можно интерпретировать как усреднение радиуса с весом, пропорциональным проводимости соответствующего канала.

Опыты по измерению расхода газообразного азота проводились на трех образцах ядерных фильтров из полиэтилентерефталатной пленки при комнатной температуре. Размеры пор образцов, предварительно определенные на электронном микроскопе и "методом пузырька", приведены в таблице. Использовался стационарный метод измерения потока при истечении газа в вакуум, который заключается в регистрации скорости движения поршня, необходимой для поддержания давления перед фильтром на постоянном уровне. Принципиальная схема экспериментальной установки и подробности метода измерения изложены в работе /10/.

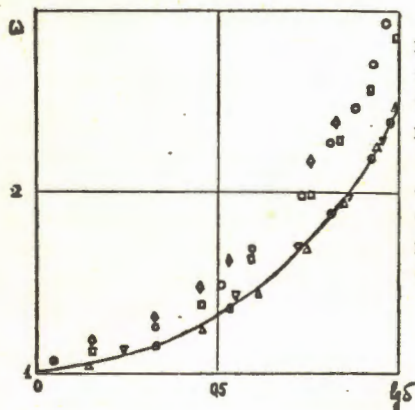
Таблица

Радиусы пор исследованных образцов ядерных фильтров

№ образца	R, мкм "Метод пузырька"	R, мкм электронный микроскоп	\bar{R} , мкм газодинамический метод
1.	0,10	0,20	0,15
2.	0,15	0,25	0,20
3.	0,20	0,31	0,25

Полученные экспериментальные данные нанесены на рисунке в терминах приведенного расхода ω как функции логарифма обратного числа Кнудсена δ , рассчитанного по значениям радиуса "метода пузырька". На том же рисунке приведена теоретическая кривая $\omega(\delta)$. Несовпадение опытных данных с теоретической зависимостью свидетельствует о неудачном выборе радиуса R при расчете значений δ . Если R подобрать из условия наилучшего совпадения теории с экспериментом, то опытные данные практически не отличаются от теоретической кривой $\omega(\delta)$ /см. рисунок/. Найденные таким образом радиусы пор фильтров приведены в 4 столбце таблицы. На основе выражения /5/ относительная ошибка определения поперечного размера каналов мембран описываемым методом равна относительной ошибке измерения приведенного расхода, которая в наших опытах составляла ~5%. Отличия опытных значений среднего радиуса пор, полученных разными методами, можно объяснить как ошибками методов измерения, так и возможной конусностью каналов.

Если поры являются конусными с наименьшим размером на середине длины, то электронная микроскопия даст наибольший внешний размер, "Метод пузырька" несет информацию о самом узком месте



ω - приведенный расход как функция логарифма обратного числа Кнудсена δ . \square , \circ , \blacksquare - экспериментальные данные, рассчитанные исходя из радиуса "метода пузырька"; \bullet , \triangle , ∇ - опытные данные, нанесенные с использованием размеров 4 столбца таблицы для 1, 2 и 3 образцов соответственно, сплошная кривая - теоретическая зависимость $\omega(\delta)$.

канала, а газодинамический способ связан с некоторым усреднением радиуса по длине.

Таким образом, газодинамическая методика позволяет получать средний диаметр пор фильтрационных материалов сетчатого типа /с малой дисперсией по размерам/ без учета такой дополнительной информации, как пористость, рабочая поверхность, толщина фильтра, и может быть рекомендована как для систем массового контроля, так и для прецизионных измерений геометрических характеристик пористых фильтров.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность академику Г.Н.Флерову за плодотворные обсуждения и постоянный интерес к работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. Флеров Г.Н. УФН, 1974, 114, вып.2, с.361-369.
2. Komaki Y. Nucl.Tracks, 1979, 3, p.33.
3. Somogyi G., Almasi Gy. Proc. 10th Int. Conf. on SSNTD's. Lyon, 1979.
4. Liabastre A.A., Orr C. J.Coll.Int.Sci., 1978, 64, p.1.
5. Ballew H.W. Basics of Filtration and Separation. Nuclepor Corp., Pleasanton, California, 1978.
6. Lück H.B., Nebelung A. Nucl.Instr. and Meth., 1982, 192, p.545.
7. Porodnov B.T. et al. J.Fluid Mech., 1974, 64, p.417.
8. Cercignani C., Sernagiotto F. Phys.Fluids, 1966, 9, p.40.
9. Породнов Б.Т., Тухфетов Ф.Т. ИФЖ, 1979, т.36, с.86-93.
10. Породнов Б.Т., Флягин А.Г. ПМТФ, 1978, № 4, с.17-23.

Рукопись поступила в издательский отдел
11 августа 1983 года.

Кузнецов В.И. и др.
Определение радиуса пор мембран сетчатого типа
газодинамическим способом

18-83-578

Предлагается методика определения радиуса пор фильтрационных материалов сетчатого типа, например, полиядерных фильтров, основанная на измерении приведенного потока газа при его истечении через мембрану в вакуум. Показано, что результат определения диаметра каналов не зависит от пористости, рабочей поверхности и толщины фильтра. Экспериментально найденные значения средних радиусов пор трех образцов ядерных фильтров удовлетворительно согласуются с другими методами измерений.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1983

Kuznetsov V.I. et al.
Pore Radius Measurement in Microporous Material
of Network Type by the Gas-Dynamical Method

18-83-578

Techniques is suggested for pore radius measurement in microporous materials of network type, for example, in nuclear track filters, is presented. It is based on a measurement of a reduced gas flow at its escape through a membrane into vacuum. It is shown that the result of pore size determination does not depend on porosity, working surface and filter thickness. Experimental values of mean pore radii of three nuclear track microfilters agree satisfactorily with other measurement methods.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1983

Перевод О.С.Виноградовой