

УДК 535.341,544.454

## ОСОБЕННОСТИ ЛАЗЕРНОГО ИНИЦИИРОВАНИЯ КОМПОЗИТОВ НА ОСНОВЕ ТЭНА С ВКЛЮЧЕНИЯМИ УЛЬТРАДИСПЕРСНЫХ ЧАСТИЦ АЛЮМИНИЯ

Б. П. Адуев<sup>1</sup>, Д. Р. Нурмухаметов<sup>1</sup>, А. А. Звеков<sup>1</sup>, А. П. Никитин<sup>1</sup>,  
А. В. Каленский<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Федеральный исследовательский центр угля и углекислоты СО РАН, 650000 Кемерово,  
lesinko-iuxm@yandex.ru

<sup>2</sup>Кемеровский государственный университет, 650000 Кемерово, kriger@kemsu.ru

Исследована зависимость критической плотности энергии взрывного разложения тэна от массовой концентрации включений ультрадисперсных частиц Al (100 ÷ 120 нм) в интервале 0.025 ÷ 1 % при воздействии первой и второй гармоник неодимового лазера (12 нс; 1064, 532 нм). Показано, что критическая энергия инициирования взрыва первой и второй гармониками лазерного излучения достигает минимального значения при одинаковых показателях поглощения излучения, но различных концентрациях включений. Оптоакустическим методом показано, что при поглощении энергии лазерного излучения амплитуда давления в нагретом слое становится максимальной при концентрации включений, соответствующей минимальному значению критической плотности энергии.

Ключевые слова: тэн, лазерное инициирование, оптоакустика, наночастицы.

DOI 10.15372/FGV20160611

### ВВЕДЕНИЕ

В плане решения прикладных задач представляет интерес использование лазерного инициирования взрывчатых веществ. В связи с этим актуальна разработка светочувствительных композиций с регулируемыми параметрами при данном способе инициирования. Возможность реализации такого подхода показана в работах [1–3].

Исследование композитов на основе тетрагидропентаэритрита (тэна) с включениями материалов ультрадисперсных размеров получило развитие в наших предыдущих работах [4–9]. Экспериментально и теоретически показано, что порог лазерного инициирования исследованных композитных материалов зависит от ряда факторов: длины волны излучения, типа и концентрации включений, размеров включений при фиксированной концентрации. Показано, что поглощение излучения происходит непосредственно включениями [8, 9] и должно их нагревать до высокой температуры.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ (НИР № 3603 по заданию № 2014/64).

© Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Звеков А. А.,  
Никитин А. П., Каленский А. В., 2016.

Целью настоящей работы является обобщение экспериментальных и теоретических результатов, позволяющих выявить факторы, обуславливающие минимальный порог лазерного инициирования тэна с включениями частиц Al характерного размера 100 ÷ 120 нм.

### ОБЪЕКТЫ И МЕТОДИКА

Для подготовки образцов использовался синтезированный нами порошок тэна с размером зерен 1 ÷ 2 мкм.

В качестве добавок использовали порошок алюминия, изготовленный, как и в работах [4, 6, 9], методом газофазного синтеза в Институте физики металлов УрО РАН А. Е. Ермаковым, со средним размером частиц 100 ÷ 120 нм. Срок хранения порошка на момент проведения экспериментов составлял 5 лет. Содержание алюминия рассчитывалось по результатам электронно-зондового микроанализа (рентгеновская флюоресценция) с использованием сканирующего электронного микроскопа JEOL JSM63901A, оснащенного спектрометром JEOL JED2400, и составило 75 %.

Образцы тэна с включениями алюминия изготавливались методом прессования. Мето-

дика подробно описана в работах [4, 6, 9]. В порошок тэна добавлялись наночастицы Al до получения нужной концентрации. Смесь помещалась в гексан и перемешивалась в ультразвуковой ванне для равномерного распределения частиц в объеме смеси. После этого проводились испарение гексана и сушка смеси. Далее на аналитических весах взвешивали необходимую для изготовления одного образца массу смеси  $12.0 \pm 0.1$  мг.

Образцы прессовали в медной пластине толщиной 1 мм, в центре которой имелось отверстие диаметром 3 мм. При прессовании давление в течение 30 мин поднималось до 1.8 ГПа. Как и в предыдущих экспериментах, использовались образцы плотностью  $\rho = 1.73 \pm 0.03$  г/см<sup>3</sup>.

Источником инициирования служил YAG:Nd<sup>3+</sup>-лазер, работающий в режиме модулированной добротности на основной частоте (1064 нм) и на частоте второй гармоники (532 нм) с длительностью импульса на половине амплитуды 12 нс. Распределение интенсивности излучения по сечению пучка близко к прямоугольному. Излучение с помощью линзы фокусировалось на образец в виде пятна диаметром 2.5 мм. Предварительные измерения показали, что нестабильность энергии лазера в серии из 50 импульсов составляет  $\pm 3$  %, поэтому в дальнейшем энергию единичных импульсов не контролировали. Для изменения энергии импульсов использовали набор нейтральных светофильтров.

Исследовалась зависимость вероятности взрыва от плотности энергии импульса лазера. Пластина с образцом устанавливалась на алюминиевую подложку, которая являлась пластиной-свидетелем. Облучаемая поверхность накрывалась оптическим стеклом толщиной 1 мм, затрудняющим газодинамическую разгрузку зоны повышенного давления. За факт взрыва образца принимали громкий звуковой сигнал, разрушение конструкции экспериментальной ячейки и наличие следа на пластине-свидетеле диаметром, равным диаметру образца.

В другой серии экспериментов с аналогичными образцами измерялась амплитуда оптоакустического сигнала, пропорционального давлению [10, 11]. В этом случае образцы находились в акустическом контакте с пьезопреобразователем на основе керамики ЦТС-19. Поверхность со стороны лазерного излучения,

как и в предыдущих экспериментах, накрывалась оптическим стеклом. Плотность энергии в импульсе на поверхности образцов составляла  $0.05$  Дж/см<sup>2</sup>, что достаточно для регистрации сигнала пьезопреобразователя и не вызывает повреждения образца. Сигнал с пьезопреобразователя регистрировался цифровым осциллографом LeCroy WJ332A.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для получения кривых частоты взрыва при фиксированной плотности энергии последовательно облучали 10 образцов единичными импульсами и определяли вероятность взрыва. Варьируя плотность энергии лазера, получали кривую вероятности взрыва на заданной длине волны излучения лазера при определенной концентрации включений Al. Использовались образцы с массовой концентрацией включений  $0.025 \div 1$  %. Взрыв инициировали излучением первой и второй гармоник лазера.

На рис. 1 представлены кривые частоты взрыва. Сплошные линии построены с использованием интегральной функции ошибок  $\Pi(H) = \frac{1}{2} \left( 1 + \operatorname{erf} \frac{H - H_{cr}}{\sqrt{2}\Delta H_{cr}} \right)$ . В таблице и на рис. 2 приведены значения критической плотности энергии  $H_{cr}$ , которую определяли как плотность энергии, соответствующую 50%-й вероятности взрыва. Среднеквадратическое отклонение  $\Delta H_{cr}$  на рис. 2 представлено в виде границ доверительных интервалов. Обе кривые на рис. 2 имеют немонотонный характер, однако минимальные значения критической плотности энергии ( $H_{cr} = 0.7$  Дж/см<sup>2</sup>) в пределах границ доверительных интервалов совпадают при содержании включений 0.2 % в образцах, инициированных первой гармоникой, и 0.1 % в образцах, инициированных второй гармоникой неодимового лазера.

Рассмотрим левые ветви кривых на рис. 2. В рамках микроочаговой концепции лазерного инициирования взрывчатых веществ с включениями металлов критическая плотность  $H_{cr}$  уменьшается при росте эффективности поглощения света  $Q_{abs}$ , зависящего от длины волны и размера включения [6]:

$$Q_{abs} = \sigma / \sigma_{geom}, \quad (1)$$

где  $\sigma$  — сечение поглощения света,  $\sigma_{geom}$  — геометрическое сечение включения. Эффективность поглощения излучения в тэне на первой

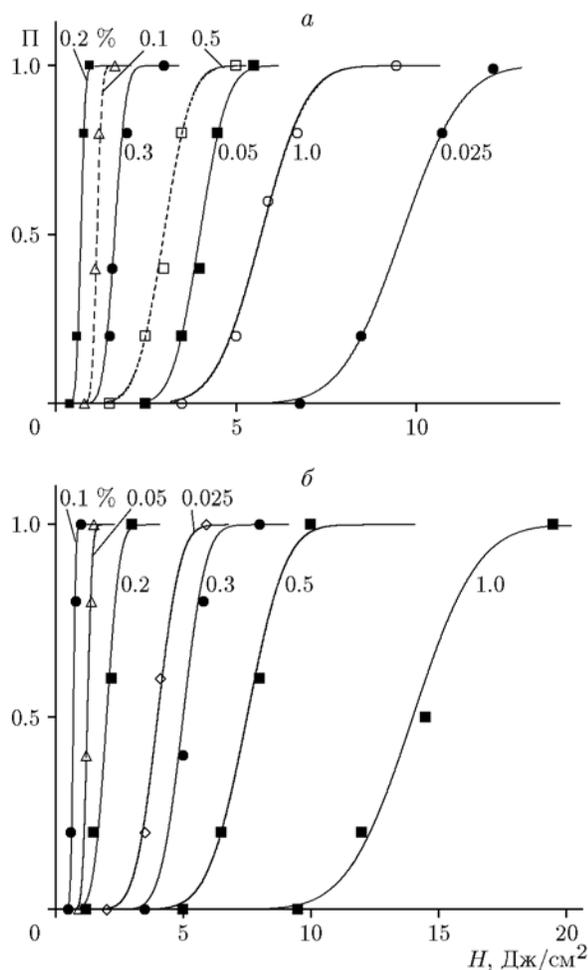


Рис. 1. Зависимость вероятности взрыва образцов тэн — Al от плотности энергии лазерного импульса:

*a* — инициирование взрыва первой гармоникой неодимового лазера, *б* — инициирование второй гармоникой; цифры около линий — массовая доля включений алюминия в образцах

и второй гармониках неодимового лазера в зависимости от размеров включений наночастиц алюминия рассчитана в [6].

В наших экспериментах, в том числе в данной работе, установлено, что  $H_{cr}$  зависит от концентрации включений  $n$ . Значение линейного показателя поглощения композита определяется концентрацией включений, их размерами и коэффициентом эффективности поглощения:

$$k = n\sigma_{geom}Q_{abs}. \quad (2)$$

Таким образом, для левых ветвей зависимостей  $H_{cr}(n)$  критическая плотность энергии

Зависимость критической плотности энергии инициирования взрыва от массовой концентрации частиц Al в образцах

Al, %	$H_{cr}$ , Дж/см <sup>2</sup>	$\Delta H_{cr}$ , Дж/см <sup>2</sup>
Инициирование на длине волны 1064 нм		
0.025	9.60	1.32
0.05	<b>4</b>	1
0.1	<b>1.15</b>	0.20
0.2	<b>0.7</b>	0.15
0.3	1.64	0.25
0.5	3	0.35
1	5.7	1.0
Инициирование на длине волны 532 нм		
0.025	<b>4.0</b>	0.7
0.05	<b>1.25</b>	0.15
0.1	<b>0.70</b>	0.08
0.2	2.0	0.4
0.3	5.0	0.7
0.5	7.5	1.2
1	14	2

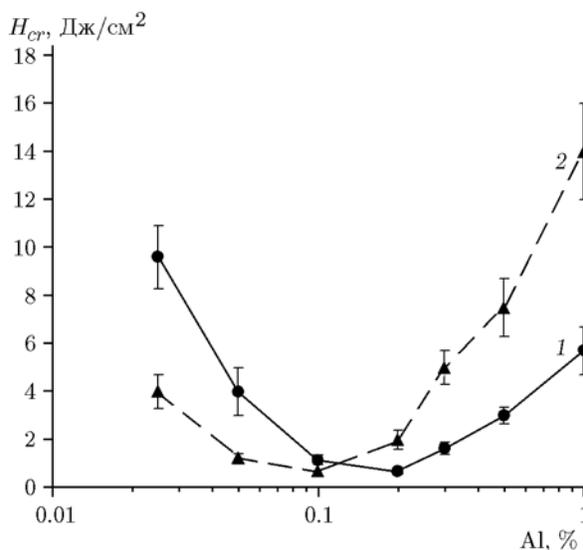


Рис. 2. Зависимость критической плотности энергии инициирования взрыва от массовой концентрации включений Al в образцах:

1 — инициирование взрыва первой гармоникой неодимового лазера, 2 — инициирование второй гармоникой

уменьшается при росте линейного показателя поглощения (см. рис. 2). Из значений  $H_{cr}$ , выделенных жирным шрифтом в таблице, видно, что для левых ветвей (в погрешности эксперимента) выполняется соотношение

$$H_{cr}^1 = H_{cr}^2 \text{ при } n_1 = 2n_2, \quad (3)$$

где верхний индекс у  $H_{cr}$  (и далее у  $Q_{abs}$ ) соответствует номеру гармоники лазера. Согласно теоретическим оценкам для наночастиц диаметром 120 нм [6]

$$Q_{abs}^2/Q_{abs}^1 \approx 2. \quad (4)$$

Следовательно, для таких частиц эффективность поглощения излучения второй гармоники неодимового лазера в два раза больше, чем первой гармоники. С учетом (3), (4) из (2) следует, что для левой ветви кривых на рис. 2 значения  $H_{cr}$  одинаковы при одинаковых показателях поглощения излучения в случае инициирования первой и второй гармониками лазера.

Однако при повышении концентрации включений выше значения, соответствующего  $H_{cr}^{\min}$  (такую концентрацию далее будем называть оптимальной), тенденция меняется на противоположную. Увеличение  $k$  ведет к росту  $H_{cr}$ , причем при фиксированной концентрации включений  $k_2 > k_1$  и  $H_{cr}^2 > H_{cr}^1$ . Подобный результат наблюдался для всех исследованных композитных материалов и пока не получил однозначной интерпретации.

Для понимания первичных процессов, происходящих при лазерном инициировании, будем ориентироваться на результаты более подробных исследований инициирования тонких (1 ÷ 1.5 мм) кристаллов тэна без включений импульсным пучком электронов (0.25 МэВ, 20 нс). В работах [12–16] показано, что при таком способе воздействия в результате поглощения энергии пучка, помимо нагрева в облученном слое кристалла толщиной  $\approx 0.2$  мм, инициируется химическая реакция, дающая дополнительное тепловыделение. В адиабатически нагретом слое резко повышается температура, в результате чего ударная волна распространяется в необлученную часть кристалла. Если на тыльной стороне кристалла находится акустически жесткая преграда, происходит усиление ударной волны при отражении, что приводит к детонации.

Экспериментально образование области повышенного давления при поглощении лазерного излучения зарегистрировано в работе

[17], где доказано поглощение излучения наночастицами алюминия, но амплитуда образующейся волны сжатия-растяжения не контролировалась. При оптимальной концентрации включений показатель поглощения равен  $k \approx 200 \text{ см}^{-1}$ , откуда эффективная толщина слоя поглощения энергии  $d = k^{-1} \approx 50 \text{ мкм}$ .

В связи с вышеизложенным в данной работе с помощью пьезодетектора измерены амплитуды давления акустических волн, распространяющихся из нагретого слоя к тыльной поверхности. Результаты экспериментов в условиях воздействия первой гармоники лазера представлены на рис. 3. В эксперименте варьировалась только концентрация включений, поэтому характер зависимости, согласно (2), определялся изменением показателя поглощения. Видно, что амплитуда оптоакустического сигнала (на рисунке значения нормированы на максимальное значение) возрастает до максимума при увеличении массовой концентрации включений до 0.2 %, соответствующей минимуму значения  $H_{cr}$ .

Для качественной интерпретации полученной зависимости проведены расчеты амплитуды давления, возникающего при воздействии лазерных импульсов длительностью 12 нс на вещество с теплофизическими параметрами тэна при варьировании показателя поглощения излучения. В расчетах использовали модель оптоакустического эффекта в жидкости со свободной границей [11], согласно которой кинетика изменения оптоакустического сигнала определяется выражением

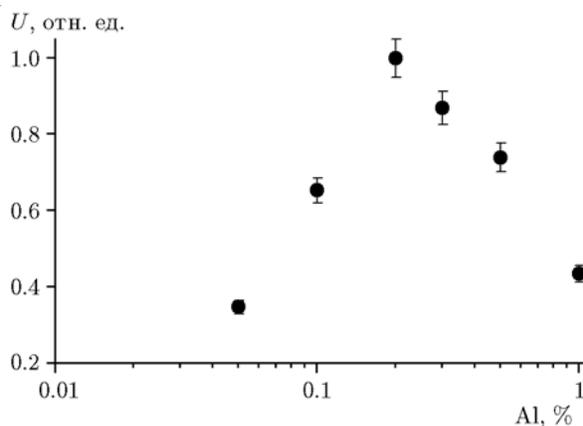


Рис. 3. Зависимость амплитуды оптоакустического сигнала от массовой концентрации включений Al в образцах

$$p(t) = \frac{kc_s^2\beta H}{4c_p} \exp\left(\frac{(kc_s\tau_L)^2}{4}\right) \times \\ \times \left\{ \left[ 2 - \operatorname{erfc}\left(\frac{t}{\tau_L} - \frac{kc_s\tau_L}{2}\right) \right] \exp(-kc_st) + \right. \\ \left. + \operatorname{erfc}\left(\frac{t}{\tau_L} + \frac{kc_s\tau_L}{2}\right) \exp(kc_st) \right\}, \quad (5)$$

где  $p(t)$  — давление,  $\beta = 2.32 \cdot 10^{-4} \text{ К}^{-1}$  — коэффициент термического расширения [17],  $c_s = 2500 \text{ м/с}$  — скорость звука при лазерном возбуждении [17],  $c_p = 2.22 \text{ Дж/см}^3$  — объемная теплоемкость [18],  $H = 0.1 \text{ Дж/см}^2$  — плотность энергии импульса,  $\tau_L = 7.2 \text{ нс}$  — половина длительности импульса на уровне  $1/e$  амплитуды.

Рассчитанные значения  $P_m$  амплитуды давления, нормированной на максимальное значение, показаны в зависимости от величины  $kc_s\tau_L$  на рис. 4. В эксперименте  $c_s$  и  $\tau_L$  постоянны, поэтому характер зависимости  $P_m(kc_s\tau_L)$  определяется изменением показателя поглощения. Формирование максимума на зависимости  $P_m(k)$  объясняется конкуренцией двух эффектов. При увеличении показателя поглощения возрастает объемная плотность поглощенной энергии импульса, что приводит к росту давления благодаря первому множителю в уравнении (5). По мере увеличения  $k$  толщина слоя, в котором поглощается энергия излучения, уменьшается. В результате сокращается время его механической релаксации и становится заметным расширение вещества во время действия импульса, что дает уменьшение

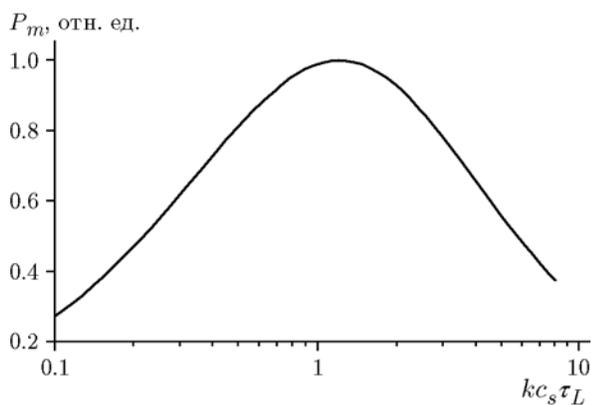


Рис. 4. Рассчитанная зависимость амплитуды давления от безразмерного параметра  $kc_s\tau_L$

давления. Максимум, показывающий границу между областями преобладания первого и второго эффектов, наблюдается при  $kc_s\tau_L = 1.2$  (см. рис. 4). При  $kc_s\tau_L \ll 1.2$  реализуется режим быстрого, «мгновенного», нагрева без релаксации давления за время действия импульса. В противоположном пределе  $kc_s\tau_L \gg 1.2$  термическое расширение поглощающего слоя толщиной  $d = k^{-1}$  позволяет давлению «подстроиться» под повышение температуры, что приводит к уменьшению амплитуды давления.

Как указывалось выше, во взрывных экспериментах медная пластина с образцом накрывалась стеклянной пластиной, иначе взрыв не происходил. Это объясняется снижением эффекта газодинамической разгрузки при наличии пластины (удерживанием выделяющихся газов на начальном этапе развития химической реакции) [19]. В эксперименте по измерению амплитуды оптоакустического сигнала плотность энергии была на порядок ниже критической. Поэтому в условиях выполненных оптоакустических измерений лазерное излучение не вызывает видимого разложения тэна, в том числе с выделением газообразных продуктов.

Отметим, что исследуемая система существенно отличается от жидкой среды. Образцы спрессованы до плотности, близкой к плотности монокристаллов, а поглощение излучения осуществляется наночастицами металлов. Поэтому можно говорить только о качественном подобии результатов экспериментов (см. рис. 3) и расчетов (см. рис. 4). Если качественно модель «ударного воздействия» верна, то можно объяснить зависимость  $H_{cr}$  от концентрации тем, что на иницирование химической реакции влияет не только температура горячей точки, но и ударные волны, возникающие в результате нагрева и повышения давления. Для левых ветвей зависимостей на рис. 3 и 4 ( $kc_s\tau_L < 1.2$ ) давление не успевает релаксировать в течение импульса излучения. При этом с ростом концентрации давление растет, а критическая плотность энергии импульса падает. Для правых ветвей характерное время релаксации давления меньше длительности импульса ( $kc_s\tau_L > 1.2$ ). Для компенсации уменьшения давления в расширяющемся слое вещества и поддержания его на уровне, соответствующем адиабатическому случаю, необходимо увеличение плотности энергии иницирующего импульса, что ведет к увеличению ее порогового значения.

Таким образом, приведенные экспериментальные данные свидетельствуют о том, что лазерное инициирование композитов не сводится только к нагреву образца до температуры вспышки, но следует учитывать и увеличение давления в нагретом слое и связанные с ним ударно-волновые процессы.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. В работе экспериментально получены зависимости порога лазерного инициирования взрыва композитов тэн — наночастицы алюминия первой и второй гармониками неодимового лазера от концентрации включений. Показано, что минимальные значения порога инициирования совпадают, но для первой гармоники минимум наблюдается при массовой доле наночастиц 0.2 %, а для второй — при 0.1 %.

2. При увеличении массовой доли включений до 0.2 и 0.1 % при инициировании взрыва соответственно первой и второй гармониками лазера показатель поглощения возрастает, что приводит к снижению критической плотности энергии инициирования  $H_{cr}$ . Дальнейшее увеличение доли включений и показателя поглощения вызывает рост  $H_{cr}$ , по-видимому, вследствие снижения пикового давления в слое за счет более эффективной механической релаксации нагретого слоя уменьшенной толщины.

3. На следующем этапе работы представляется интерес исследование критической энергии лазерного инициирования взрыва композитов и импульсного давления при использовании жестко закрепленной границы стекло — ВВ.

### ЛИТЕРАТУРА

- Zucker J. M., Tappan B. C., Oswald D. M., Preston D. N., Burnside N. J. Characterization of energetic formulations optimized for optical initiation // 14th Intern. Detonation Symp. — 2010. — P. 724.
- Oestmark H., Carlson M., Ekvall K. Laser ignition of explosives: Effects of laser wavelength on the threshold ignition energy // J. Energ. Mater. — 1994. — V. 12, N 1-2. — P. 63–83.
- Илюшин М. А., Судариков А. М., Целинский И. В. Металлокомплексы в высокоэнергетических композициях. — СПб.: Изд-во ЛГУ, 2010.
- Адуев Б. П., Белокуров Г. М., Нурмухаметов Д. Р., Нелюбина Н. В. Светочувствительный материал на основе смеси тэна и наночастиц алюминия // Физика горения и взрыва. — 2012. — Т. 48, № 3. — С. 127–132.
- Кригер В. Г., Каленский А. В., Звеков А. А., Зыков И. Ю., Адуев Б. П. Влияние эффективности поглощения лазерного излучения на температуру разогрева включений в прозрачных средах // Физика горения и взрыва. — 2012. — Т. 48, № 6. — С. 54–58.
- Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Фурега Р. И., Звеков А. А., Каленский А. В. Взрывчатое разложение тэна с нанодобавками алюминия при воздействии импульсного лазерного излучения различной длины волны // Хим. физика. — 2013. — Т. 32, № 8. — С. 39–42.
- Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Ципилев В. П., Фурега Р. И. Влияние добавок ультрадисперсных частиц Al—C на чувствительность тэна к лазерному воздействию // Физика горения и взрыва. — 2013. — Т. 49, № 2. — С. 102–105.
- Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Фурега Р. И., Звеков А. А. Регулирование чувствительности пентаэритриттетранитрата к лазерному воздействию с помощью добавок наночастиц металлов никеля и алюминия // Хим. физика. — 2014. — Т. 33, № 6. — С. 37–41.
- Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Белокуров Г. М., Звеков А. А., Каленский А. В., Никитин А. П., Лисков И. Ю. Исследование оптических свойств наночастиц алюминия в тетранитропентаэритрите с использованием фотометрического шара // Журн. техн. физики. — 2014. — Т. 84, № 9. — С. 126–131.
- Карабутов А. А., Пеливанов И. М., Подымова Н. Б., Скипетров С. Е. Измерение оптических характеристик рассеивающих сред лазерным оптоакустическим методом // Квант. электроника. — 1999. — Т. 29, № 3. — С. 215–220.
- Гусев В. Э., Карабутов А. А. Лазерная оптоакустика. — М.: Наука, 1991.
- Адуев Б. П., Белокуров Г. М., Гречин С. С., Лисков И. Ю. К вопросу о возбуждении детонации в бризантных взрывчатых веществах сильноточным электронным пучком // Журн. техн. физики. — 2014. — № 1. — С. 61–66.
- Адуев Б. П., Белокуров Г. М., Гречин С. С., Пузынин А. В. Детонация монокристаллов тэна, инициируемая электронным пучком // Физика горения и взрыва. — 2010. — Т. 46, № 6. — С. 111–118.
- Адуев Б. П., Белокуров Г. М., Гречин С. С., Швайко В. Н. Исследование ранних стадий взрывного разложения кристаллов тетранитропентаэритрита при инициировании импульсными пучками // Изв. вузов. Физика. — 2007. — Т. 50, № 2. — С. 3–9.
- Адуев Б. П., Белокуров Г. М., Гречин С. С., Пузынин А. В. Спектры нестационарного оптического поглощения кристаллов

- тетранитропентаэритрита при облучении импульсным пучком электронов // Изв. вузов. Физика. — 2008. — Т. 51, № 11/2. — С. 104–106.
16. **Адуев Б. П., Белокуров Г. М., Гречин С. С., Пузынин А. В.** Роль ударных волн при инициировании взрыва тетранитропентаэритрита импульсным пучком электронов // Хим. физика. — 2010. — Т. 29, № 6. — С. 54–57.
17. **Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Фурегга Р. И., Лисков И. Ю.** Исследование поглощения света компаундами на основе тэна и наночастиц алюминия при воздействии лазерных импульсов // Хим. физика. — 2014. — Т. 33, № 12. — С. 29–32.
18. **Олинджер Б., Кейди Г.** Ударная сжимаемость ТЭНа, ТАТБ,  $\text{CO}_2$  и  $\text{H}_2\text{O}$  при давлениях до 10 ГПа, рассчитанная на основании экспериментальных данных по гидростатическому сжатию // Детонация и взрывчатые вещества / под ред. А. А. Борисова. — М.: Мир, 1981. — С. 203–219.
19. **Гаржанов В. И., Зинченко А. Д., Сдобнов В. И., Токарев Б. Б., Погребов А. И., Волкова А. А.** Лазерное инициирование тэна // Физика горения и взрыва. — 1996. — Т. 32, № 4. — С. 113–119.

*Поступила в редакцию 22/V 2015 г.,  
в окончательном варианте — 20/V 2016 г.*

---