

УДК 124.16+541.126.2

ВЛИЯНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ПОГЛОЩЕНИЯ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ТЕМПЕРАТУРУ РАЗОГРЕВА ВКЛЮЧЕНИЙ В ПРОЗРАЧНЫХ СРЕДАХ

В. Г. Кригер¹, А. В. Каленский¹, А. А. Звеков¹, И. Ю. Зыков¹, Б. П. Адуев²¹Кемеровский государственный университет, 650043 Кемерово, kriger@kemsu.ru²Институт углекислоты и химического материаловедения СО РАН, 650000, Кемерово

Рассчитаны коэффициенты эффективности поглощения света включениями различных металлов в прозрачных средах на примере азидов серебра, свинца и тэна. Показано, что эффективность поглощения, наряду с плотностью энергии лазерного импульсного излучения, оказывает решающее влияние на максимальную температуру разогрева включения. Построены зависимости максимальной температуры разогрева от радиуса включений при длительности импульса 30 нс. Получены асимптотические выражения для зависимости максимальной температуры разогрева от длительности импульса в случае ансамбля включений.

Ключевые слова: энергетические материалы, лазерное инициирование, микроочаговая модель теплового взрыва, теория Ми.

ВВЕДЕНИЕ

Разработка микроочаговых моделей инициирования теплового взрыва энергетических материалов началась с работ Мержанова [1]. Для адаптации модели теплового взрыва к лазерному импульсному инициированию было высказано предположение, что в объеме конденсированных взрывчатых веществ находятся поглощающие свет включения, разогрев которых приводит к образованию первичного очага реакции [2]. В рамках модели были выполнены расчеты максимальной температуры разогрева включений в инертной среде и критериев инициирования взрыва в случае включений одного размера и ансамбля включений [2–5].

Изначально модель предназначалась для объяснения закономерностей низкорогового инициирования взрывного разложения азидов тяжелых металлов импульсным лазерным излучением [2]. Для совпадения расчета с экспериментом приходилось дополнительно предполагать, что в результате полного внутреннего отражения освещенность внутри образца в $10 \div 12$ раз больше, чем на поверхности образца [2].

Позднее было показано, что добавки сильнопоглощающих включений сажи и наноразмерных карбида никеля и алюминия позволя-

ют снизить критическую плотность энергии лазерного инициирования вторичных взрывчатых веществ [6–8]. Благодаря этому, во-первых, была доказана роль малых включений как центров поглощения световой энергии в объеме вторичных взрывчатых веществ. Во-вторых, было высказано предположение, что вторичные взрывчатые вещества, содержащие наноразмерные примеси, могут быть использованы в качестве капсюльных составов для оптических систем инициирования. Данные обстоятельства вызвали новую волну интереса к микроочаговой модели лазерного инициирования теплового взрыва, от которой теперь требовалось не только описать кинетику образования очага реакции, но и теоретически обосновать природу и размеры примесных включений, позволяющих получить наименьшие значения критической плотности энергии лазерного инициирования.

Одним из основных постулатов модели является независимость эффективности поглощения света от размера включения. Более того, считается, что сечение поглощения излучения равно геометрическому сечению (πr^2 для сферы) включения [2]. То есть коэффициент поглощения Q_{abs} (отношение сечения поглощения света к геометрическому сечению) принимается равным единице. Данное предположение нуждается в дополнительном обосновании, так как размер включений сопоставим с длиной волны света, что должно приводить к сильным дифракционными эффектам.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 11-03-00897).

© Кригер В. Г., Каленский А. В., Звеков А. А., Зыков И. Ю., Адуев Б. П., 2012.

Теории рассеяния и поглощения электромагнитного излучения малыми частицами начали развиваться достаточно давно. Для сферической частицы была разработана теория Ми [9, 10]. Позднее были рассмотрены рассеивающие частицы более сложной формы [10].

Согласно [7] среднее расстояние между включениями тэна (пентаэритриттетрагидрата) в матрице, при котором достигается минимальная плотность энергии инициирования, составляет ≈ 2 мкм. Данное расстояние на порядок превышает размеры включения (≈ 100 нм), что позволяет пренебречь их взаимным влиянием. Если предположить, что металлические включения в матрице энергетических материалов имеют сферическую форму, для оценки эффективности поглощения света можно использовать теорию Ми.

Цели работы — в рамках теории Ми оценить эффективность поглощения лазерного излучения малыми металлическими включениями в объеме азида серебра, азида свинца и тэна; построить зависимость температуры разогрева импульсным излучением от радиуса включений с учетом рассчитанных коэффициентов эффективности поглощения излучения материалом включения.

МЕТОДИКА РАСЧЕТА

Коэффициент эффективности поглощения излучения сферическим включением радиуса r в рамках теории Ми определяется как разность коэффициентов экстинкции (Q) и рассеяния (Q_{sca}) [9, 10]:

$$Q_{abs} = Q - Q_{sca}.$$

Последние рассчитываются как сумма бесконечного ряда от коэффициентов разложения электрического и магнитного полей рассеянной световой волны по специальным функциям Риккати — Бесселя:

$$Q_{sca} = \frac{2}{\rho^2} \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1)(|c_l|^2 + |b_l|^2),$$

$$Q = \frac{2}{\rho^2} \operatorname{Im} \sum_{l=1}^{\infty} (2l+1)(c_l - b_l),$$

где $\rho = 2\pi r n / \lambda$, λ — длина волны света, n — показатель преломления среды, коэффициенты c_l и b_l определяются из граничных условий на поверхности включения [7, 8]:

$$c_l = i \frac{\psi_l(\rho)\psi'_l(m\rho) - m\psi'_l(\rho)\psi_l(m\rho)}{\zeta_l(\rho)\psi'_l(m\rho) - m\zeta'_l(\rho)\psi_l(m\rho)},$$

$$b_l = -i \frac{\psi'_l(\rho)\psi_l(m\rho) - m\psi_l(\rho)\psi'_l(m\rho)}{\zeta'_l(\rho)\psi_l(m\rho) - m\zeta_l(\rho)\psi'_l(m\rho)},$$

где $m = n_i/n$ — комплексный показатель преломления включения относительно среды. Для вычисления специальных функций ψ_l и ζ_l и их производных использовались рекуррентные соотношения [8]:

$$\psi_{l+1}(z) = \frac{2l+1}{z}\psi_l(z) - \psi_{l-1}(z), \quad (1)$$

$$\psi'_l(z) = \psi_{l-1}(z) - \frac{l}{z}\psi_l(z). \quad (2)$$

Специальные функции при $l = 1$ и 2 имеют вид [8]:

$$\psi_0(z) = \sin z,$$

$$\psi_1(z) = \frac{\sin z}{z} - \cos z,$$

$$\zeta_0(z) = ie^{-iz},$$

$$\zeta_1(z) = -e^{-iz}(1 - i/z).$$

Применение рекуррентных соотношений (1), (2) позволило достичь высокой скорости вычислений. Для проверки правильности расчета использовалась также программа MiePlot (<http://www.philiplaven.com/index1.html>). Кроме того, для участка малых радиусов проверялась справедливость закона Рэлея.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 представлены типичные рассчитанные зависимости коэффициента эффективности поглощения излучения (Q_{abs}) с длиной волны 1064 нм (первая гармоника неодимового лазера) от радиуса включения серебра ($n_i = 0.15 - 6.0i$) в матрице азида серебра ($n = 2$), включения свинца ($n_i = 1.416 - 5.742i$) в матрице азида свинца ($n = 1.85$), включения свинца и алюминия ($n_i = 0.978 - 8.030i$) в матрице тэна ($n = 1.55$). Значения комплексных коэффициентов преломления металлов взяты из [11]. Были рассчитаны значения максимальных коэффициентов эффективности поглощения ($Q_{abs \max}$)

Металл	n_i [11]	PbN ₆ , $n = 1.85$			AgN ₃ , $n = 2$			ТЭн, $n = 1.55$		
		r_{\max} , нм	$Q_{abs \max}$	$Q_{abs \infty}$	r_{\max} , нм	$Q_{abs \max}$	$Q_{abs \infty}$	r_{\max} , нм	$Q_{abs \max}$	$Q_{abs \infty}$
Al	$0.978 - 8.030i$	81	0.3872	0.1943	74	0.4435	0.2111	100	0.2942	0.1612
V	$2.705 - 4.170i$	74	1.9271	0.8028	67	2.0506	0.8104	92	1.6438	0.7662
Fe	$2.953 - 3.970i$	76	1.9098	0.8367	69	2.0065	0.8442	94	1.6731	0.8019
Au	$0.179 - 6.044i$	76	0.1901	0.0795	69	0.2352	0.0886	95	0.1263	0.0624
Co	$3.85 - 5.27i$	80	1.5355	0.7269	73	1.6405	0.7476	97	1.3131	0.6704
Cu	$0.197 - 6.272i$	77	0.1832	0.0795	69	0.2241	0.0887	96	0.1241	0.0627
Ni	$2.65 - 5.93i$	77	1.3525	0.5987	70	1.4984	0.6216	96	1.0820	0.5386
Sn	$3.44 - 7.34i$	81	1.0511	0.5167	74	1.1531	0.5428	99	0.8589	0.4566
Pd	$2.52 - 6.33i$	78	1.2077	0.5446	70	1.3464	0.5691	96	0.9568	0.4839
Pb	$1.416 - 5.742i$	74	1.1798	0.4636	67	1.3727	0.4862	93	0.8628	0.4050
Cr	$4.234 - 4.742i$	81	1.6104	0.7814	74	1.6952	0.8006	98	1.4154	0.7279
Ag	$0.15 - 6.00i$	76	0.1646	0.0685	68	0.2045	0.0765	95	0.1087	0.0536

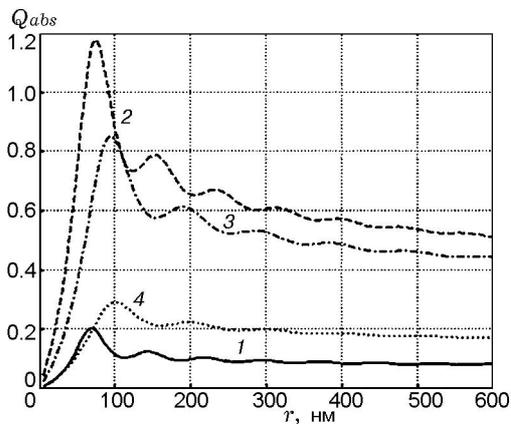


Рис. 1. Зависимость коэффициента эффективности поглощения света ($\lambda = 1064$ нм) металлическими включениями в матрице энергетических материалов от радиуса включений:

1 — серебро в матрице азидов серебра, 2 — свинец в матрице азидов свинца, 3 и 4 — свинец и алюминий в матрице тэна

и соответствующих им радиусов (r_{\max}) включений в матрицах тэна, азидов серебра и свинца, а также значения $Q_{abs \infty}$ при радиусе включений, стремящемся к бесконечности (фактически $Q_{abs \infty}$ достигается при $r > 1$ мкм). Результаты расчетов максимальных коэффициентов эффективности поглощения и соответствующих им радиусов наночастиц ряда металлов представлены в таблице.

Из рис. 1 следует, что включения серебра в матрице азидов серебра поглощают излучение малоэффективно. Максимальная эффективность поглощения ($Q_{abs \max} \approx 0.204$) наблюдается при $r = 68$ нм, что сопоставимо с радиусом наиболее прогретых включений при длительности импульса 30 нс [2–4]. При меньших радиусах включения коэффициент Q_{abs} монотонно уменьшается и стремится к нулю (при $r \rightarrow 0$ по закону Рэлея), при больших — уменьшается с затухающими осцилляциями, приближаясь к удвоенному коэффициенту поглощения массивного металла. Малые значения Q_{abs} в случае включений серебра связаны с выраженными металлическими свойствами серебра, которым соответствуют малые значения действительной части показателя преломления и большие — мнимой части. В результате для включений серебра в матрице азидов серебра коэффициент эффективности поглощения меньше единицы в 6 раз и более. В случае включений свинца в матрице азидов свинца максимальный коэффициент эффективности поглощения составляет 1.18 при $r = 74$ нм. Большее значение Q_{abs} обусловлено менее выраженными металлическими свойствами свинца. Как видно из таблицы, максимальный коэффициент эффективности поглощения для нановключений железа и вольфрама равен почти 2, а для серебра — более чем в десять раз меньше, поэтому при расчете разогрева включения необходимо учитывать природу метал-

ла и использовать реальные коэффициенты эффективности поглощения.

Рассмотрим влияние эффективности поглощения света включением на максимальную температуру разогрева. Согласно теоретическим работам [3, 4] максимальное изменение температуры δT в процессе разогрева лазерным импульсом с плотностью энергии H для включения радиусом r определяется выражением

$$\delta T = \frac{Hr/4c}{rh + h^2 + r^2/K^2}, \quad (3)$$

где $K = \sqrt{3c/c_1}$ — безразмерный коэффициент, определяемый отношением объемных теплоемкостей включения c_1 и матрицы c , $h = \sqrt{\alpha t_i}$ — толщина слоя, прогретого за время, равное длительности импульса t_i , α — температуропроводность матрицы. Радиус наиболее разогретого включения равен Kh и уменьшается при уменьшении длительности импульса пропорционально $\sqrt{t_i}$. В случае ансамбля включений максимальная температура разогрева определяется соотношением

$$\delta T = \frac{H}{4ch} \frac{K}{K+2}. \quad (4)$$

Для большинства металлов объемная теплоемкость находится в интервале $1.2 \div 3.6$ Дж/(К·см³). В случае азида серебра ($c_1 = 1.55$ Дж/(К·см³)) значение последнего множителя в формуле (4) приблизительно изменяется от 0.5 до 0.35, т. е. на 30 %. Формула (3), скорректированная на эффективность поглощения света, принимает вид

$$\delta T = Q_{abs}(r) \frac{Hr/4c}{rh + h^2 + r^2/K^2}. \quad (5)$$

Для иллюстрации изменений, вносимых эффективностью поглощения, на рис. 2 приведены рассчитанные при длительности лазерного импульса 30 нс и плотности энергии 50 мДж/см² значения максимальной температуры разогрева включений серебра и свинца в инертной матрице с теплофизическими параметрами азид свинца в предположении $Q_{abs} = 1$ (кривые 1 и 2 соответственно) и с учетом рассчитанных зависимостей $Q_{abs}(r)$ (3 и 4 соответственно). Из рис. 2 следует, что учет зависимости $Q_{abs}(r)$ приводит к увеличению температуры разогрева включения свинца и к значительному (в 6 раз) уменьшению температуры разогрева включения серебра.

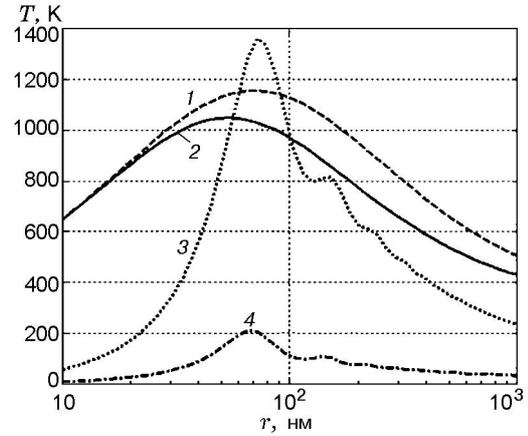


Рис. 2. Максимальная температура разогрева наночастиц металла в инертной матрице с теплофизическими параметрами азид свинца, рассчитанная при длительности лазерного импульса 30 нс и плотности энергии 50 мДж/см²:

1 — серебро ($Q_{abs} = 1$), 2 — свинец ($Q_{abs} = 1$), 3 и 4 — серебро и свинец соответственно с учетом зависимости $Q_{abs}(r)$

В заключение рассмотрим на качественном уровне изменение зависимости максимальной температуры разогрева от длительности импульса в случае ансамбля включений. В результате быстрого уменьшения Q_{abs} в области малых радиусов при длительностях импульса, меньших r_{\max}^2/α , наиболее разогретым будет включение радиусом r_{\max} и для оценки δT можно воспользоваться выражением

$$\delta T = Q_{abs \max} \frac{Hr_{\max}/4c}{r_{\max}h + h^2 + r_{\max}^2/K^2}.$$

Необходимо отметить, что в некоторых случаях $Q_{abs \max} > 1$, что приводит к нескольким большим температурам разогрева (например, для включений железа в матрицах азид серебра и тэна), чем при расчете без учета Q_{abs} . При $t_i \rightarrow 0$ величина δT стремится к $\frac{Q_{abs \max} H K^2}{4cr_{\max}}$.

При длительностях импульса, значительно больших r_{\max}^2/α , коэффициент эффективности поглощения очень слабо зависит от r , поэтому для оценки изменения температуры можно использовать скорректированное выражение (4):

$$\delta T = Q_{abs \infty} \frac{H}{4ch} \frac{K}{K+2}.$$

Так как всегда $Q_{abs\infty} < 1$ (см. таблицу), температуры разогрева будут меньше, чем в расчетах [2–5].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках теории Ми рассчитаны коэффициенты эффективности поглощения света включениями различных металлов в матрице тэна и азидов серебра и свинца. Показано, что в зависимости от природы металла и размера включения коэффициент эффективности поглощения может изменяться в пределах порядка этой величины, что оказывает решающее влияние на максимальную температуру разогрева включения лазерным импульсным излучением. Получены асимптотические выражения для зависимости максимальной температуры разогрева от длительности импульса в случае ансамбля включений.

Авторы благодарят проф. В. П. Ципилева, проф. В. М. Лисицина за полезные дискуссии, которые стимулировали данную работу.

ЛИТЕРАТУРА

1. Мержанов А. Г., Барзыкин В. В., Абрамов В. Г. Теория теплового взрыва от Н. Н. Семенова до наших дней // Хим. физика. — 1996. — № 6. — С. 3–45.
2. Александров Е. И., Ципилев В. П. Исследование влияния длительности возбуждающего импульса на чувствительность азид свинца к действию лазерного излучения // Физика горения и взрыва. — 1984. — Т. 20, № 6. — С. 104–108.
3. Кригер В. Г., Каленский А. В., Звекон А. А. Тепловая микроочаговая модель иницирования взрывчатых веществ импульсным излучением // Современные проблемы химической и радиационной физики. — М.: ОИХФ РАН, 2009. — С. 322–325.
4. Кригер В. Г., Каленский А. В. Локальный разогрев азидов тяжелых металлов импульсным излучением // 6 междунар. конф. «Радиационные гетерогенные процессы»: тез. докл. — Кемерово, 1995. — Ч. 1. — С. 96–97.
5. Ассовский И. Г. Физика горения и внутренняя баллистика. — М.: Наука, 2005.
6. Александров Е. И., Вознюк А. Г., Ципилев В. П. Влияние поглощающих примесей на зажигание ВВ лазерным излучением // Физика горения и взрыва. — 1989. — Т. 25, № 1. — С. 3–9.
7. Адуев Б. П., Нурмухаметов Д. Р., Пузынин А. В. Влияние добавок частиц монокарбида никеля на чувствительность тетранитропентаэритрита к лазерному иницированию // Хим. физика. — 2009. — Т. 28, № 11. — С. 50–53.
8. Yang Y., Sun Z., Wang S., Dlott D. Fast spectroscopy of laser-initiated nanoenergetic materials // J. Phys. Chem. B. — 2003. — V. 107, N 19. — P. 4485–4493.
9. Шифрин К. С. Рассеяние света в мутной среде. — М.; Л.: Гос. изд-во техн.-теорет. лит., 1951.
10. Ван де Хюлст Г. Рассеяние света малыми частицами. — М.: Изд-во иностр. лит., 1961.
11. Золотарев В. М., Морозов В. Н., Смирнова Е. В. Оптические постоянные природных и технических сред. — Л.: Химия, 1984.

*Поступила в редакцию 10/VI 2011 г.,
в окончательном варианте — 8/XII 2011 г.*