

**ИЗВЕСТИЯ КАБАРДИНО-БАЛКАРСКОГО
ГОСУДАРСТВЕННОГО УНИВЕРСИТЕТА**

**PROCEEDING OF THE
KABARDINO-BALKARIAN
STATE UNIVERSITY**

ТОМ IV, № 3, 2014

Учредитель: Кабардино-Балкарский государственный
университет им. Х.М. Бербекова (КБГУ)

Главный редактор **Б.С. КАРАМУРЗОВ**
Первый зам. главного редактора **А.П. САВИНЦЕВ**
Зам. главного редактора **С.К. БАШИЕВА**
Зам. главного редактора **Х.Б. ХОКОНОВ**
Зам. главного редактора **А.А. ШЕБЗУХОВ**
Зам. главного редактора **Г.Б. ШУСТОВ**
Зам. главного редактора **М.М. ЯХУТЛОВ**
Ответственный секретарь **М.Ч. ШОГЕНОВА**

Редакционная коллегия

Волков Ю.Г., Гуфан Ю.М., Муратова Е.Г., Карлик А.Е., Матузов Н.И., Радченко В.П., Радченко О.А.,
Рубаков В.А., Фельдштейн Д.И., Фортов В.Е., Хавинсон В.Ц., Хохлов А.Р., Хуснутдинова Э.К., Гукешоков М.Х.,
Мустафаева З.А., Кетенчиев Х.А., Кочесоков Р.Х., Мизиев И.А., Шхануков-Лафишев М.Х.
Свидетельство о регистрации ПИ № ФС 77-44485 от 31.03.2011 г.
Подписной индекс в Каталоге «Пресса России» 43720.

Журнал включен в Перечень рецензируемых научных журналов и изданий для опубликования основных научных результатов диссертаций.

Доступ к рефератам статей журнала осуществляется на сайте научной электронной библиотеки «eLIBRARY.RU» (<http://elibrary.ru>).

ISSN 2221-7789

Адрес редакции: Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х.М. Бербекова
360004. г. Нальчик, ул. Чернышевского, 173

Телефоны: (88662) 722313

E-mail: rio@kbsu.ru, <http://izvestia.kbsu.ru>

© Авторы, 2014

© Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х.М. Бербекова, 2014

Founder: Kabardino-Balkarian State University (KBSU)

Editor in chief **B.S. KARAMURZOV**
The 1st Deputy Editor **A.P. SAVINTSEV**
Deputy Editor **S.K. BASHIEVA**
Deputy Editor **H.B. KHOKONOV**
Deputy Editor **A.A. SHEBZUHOV**
Deputy Editor **G.B. SHUSTOV**
Deputy Editor **M.M. YAHUTLOV**
Executive sekretary **M.Ch. SHOGENOVA**

Editorial board

Volkov Yu.G., Gufan Yu.M., Dзамikhov K.F., Karlik A.E., Matuzov N.I.,
Radchenko O.A., Radchenko V.P., Rubakov V.A., Feldshtein D.I., Fortov V.E.,
Khavinson V.Ts., Hohlov A.R., Khusnutdinova E.K., Gukeshokov M.Kh., Zhambekova R.L.,
Ketenchiev Kh.A., Kochesokov R.Kh., Miziev I.A., Shkhanukov-Lafishev M.Kh.

Registration certificate PI № FS 77-44485 from 31.03.2011

Subscription index in the catalog «Russian Press» 43720

Access to abstracts of articles of the magazine is carried out on the Scientific Electronic Library Online «eLIBRARY.RU» (<http://elibrary.ru>).

ISSN 2221-7789

Editorial address: Kabardino-Balkarian State University, 360004, Nalchik, Chernyshevsky st. 173

Phone number: (88662)722313

E-mail: rio@kbsu.ru, <http://izvestia.kbsu.ru>

© Authors, 2014

© Kabardino-Balkarian State University
of H.M. Berbekov, 2014

ПРЕДИСЛОВИЕ

Этот выпуск журнала «Известия Кабардино-Балкарского государственного университета» содержит доклады, представленные участниками XXVIII Международной конференции «Взаимодействие интенсивных потоков энергии с веществом», проходившей на ЭУНБ КБГУ в поселке Эльбрус с 1 по 6 марта 2013 года.

Конференция была организована Объединенным институтом высоких температур (ОИВТ) РАН, Москва, Институтом проблем химической физики (ИПХФ) РАН, Черноголовка, и КБГУ, Нальчик.

Программа конференции состояла из 70 устных и 114 стендовых докладов. В этих работах представлены результаты, полученные 438 соавторами из 80 институтов из 10 стран (Россия, Украина, Беларусь, Германия, США, Великобритания, Франция, Италия, Швеция и Индия). Для участия в заседаниях в поселок Эльбрус приехали 127 ученых из разных городов России, Украины и Беларуси.

Тематика сделанных докладов включает следующие направления:

- вопросы взаимодействия интенсивного электромагнитного излучения и мощных пучков заряженных частиц с веществом;
- способы генерации интенсивных потоков энергии;
- методы диагностики быстрых процессов;
- физические явления в ударных и детонационных волнах;
- модели и результаты теоретических расчетов уравнений состояния вещества при высоких плотностях энергии;
- физика низкотемпературной плазмы;
- физико-технические проблемы энергетики и технологические проекты.

Доклады на устных заседаниях и стендовой секции вызвали искренний интерес участников. Выступления сопровождались активной дискуссией представленных результатов как фундаментальных, так и прикладных исследований физики высоких плотностей энергии.

Статьи, подготовленные участниками, получили одобрение программного комитета конференции, прошли предусмотренные правилами рецензирование и были рекомендованы к публикации в журнале. Рецензентами статей выступили член редколлегии журнала «Известия Кабардино-Балкарского государственного университета», профессор А.П. Савинцев, а также профессора М.Б. Агранат, Н.Е. Андреев, Е.М. Апфельбаум, Г.В. Белов, М.Е. Вейсман, В.С. Воробьев, Л.Г. Дьячков, В.П. Ефремов, И.Л. Иосилевский, член-корр. РАН Г.И. Канель, А.В. Конюхов, И.К. Красюк, В.В. Милявский, член-корр. РАН В.Б. Минцев, член-корр. РАН О.Ф. Петров, М.Е. Поварницын, Н.И. Талуц, А.В. Уткин, Л.Р. Фокин, К.В. Хищенко и Г.В. Шпатаковская.

Мы очень благодарны всем, кто участвовал в подготовке, организации и проведении конференции, а также всем участникам, которые представили свои интересные доклады и плодотворно обсудили результаты других авторов.

Также мы выражаем благодарность Российской академии наук и Российскому фонду фундаментальных исследований за финансовую поддержку, оказанную конференциям по физике экстремальных состояний в 2013–2014 годах (проекты РФФИ 13-02-06012 и 13-02-06212).

*Сопредседатели XXVIII Международной конференции
«Взаимодействие интенсивных потоков энергии с веществом»
директор ОИВТ РАН, академик РАН В.Е. Фортвов
ректор КБГУ, профессор Б.С. Карамурзов*

СОДЕРЖАНИЕ

Предисловие	3
Запорожец Ю.Б., Минцев В.Б., Грязнов В.К., Фортов В.Е., Рейнгольц Х., Репке Г. Исследование переходного слоя сильнонеидеальной ударно-сжатой плазмы ксенона	6
Петров Ю.В., Иногамов Н.А., Мигдал К.П. Эффективные частоты электронных s-s- и s-d-столкновений в никеле при высоких температурах электронов, вызванных действием фемтосекундных лазерных импульсов	15
Пугачев Л.П., Левашов П.Р., Андреев Н.Е. PIC-моделирование генерации горячих электронов из неоднородной плазмы под воздействием фемтосекундного лазерного импульса	21
Ивлев Г.Д., Гацкевич Е.И., Дворецкий С.А., Михайлов Н.Н., Власенко А.И., Гнатыук В.А., Велешук В.П. Наноимпульсное лазерное воздействие на твердые растворы $Cd_xHg_{1-x}Te$	25
Шеманин В.Г., Аткарская А.Б., Мкртычев О.В. Аналитическое исследование энергетических коэффициентов отражения и преломления света от многослойных плоскопараллельных наносистем	29
Кяров А.Х., Савинцев А.П. Дисперсионное взаимодействие атомов инертных газов	35
Куготова А.М., Кунижев Б.И. Сравнительный анализ процессов разрушения полиметилметакрилата высокоскоростным ударом и импульсным лазерным воздействием	44
Янковский Б.Д., [Милявский В.В.], Ананьев С.Ю. Неидеальный режим химического преобразования RDX в цилиндрических образцах	48
[Горельский В.А.], Орлов М.Ю., Орлов Ю.Н., Богомолов Г.Н. Исследование процесса пробития преград удлиненными ударниками	55
Воробьев Ю.В., Майер А.Е. Локализация пластической деформации в окрестности микро- и наноразмерных пор при высокоскоростной деформации металлов	60
Кадатский М.А., Хищенко К.В. Термодинамические свойства латуни при высоких температурах по модели Хартри – Фока – Слэтера	67
Корец А.Я., Королькова И.В., Крылов А.С., Миронов Е.В., Рабчевский Е.В. Исследование влияния последовательной термообработки детонационного алмазосодержащего материала	74
Кузнецов Д.Л., Сурков Ю.С., Уварин В.В., Филатов И.Е., Угодников Г.Г., Никифоров С.А. Конверсия сероуглерода в несамостоятельных и самостоятельных импульсных разрядах в воздухе	79
Филатов И.Е., Никифоров С.А., Сурков Ю.С., Уварин В.В. Действие высокоэнергетического пучка электронов на экотоксичные хлорсодержащие соединения в слое адсорбента	86
Дарьян Л.А., Козлов А.В., Котов А.В., Поварешкин М.Н., Полищук В.П., Шурупов А.В., Шурупова Н.П. Дуговой разряд в минеральном и органическом масле	92
Печеркин В.Я., Василяк Л.М., Ветчинин С.П., Молотков В.И. Возможный механизм отрыва макрочастиц с катода в стримерном разряде	99
Аракелян С.М., Итина Т.Е., Кутровская С.В., Кучерик А.О., Ширкин Л.А., Махалова Е.Ю., Волкова А.Ю., Поварницын М.Е. Исследование процессов получения наночастиц благородных металлов при лазерном воздействии на мишени в жидких средах	104
Попова Т.В., Майер А.Е., Хищенко К.В. Моделирование распространения ударных волн по полиметилметакрилату	109
Быстрый Р.Г., Морозов И.В. Исследование динамики электронов в ионизованных наноразмерных кластерах	115
Требования к оформлению научной статьи, представляемой в журнал «Известия Кабардино-Балкарского государственного университета»	120

CONTENTS

Foreword	3
Zaporozhets Yu.B., Mintsev V.B., Gryaznov V.K., Fortov V.E., Reinholz H., Röpke G. Transitive layer investigation of explosively driven strongly coupled xenon plasma	6
Petrov Yu.V., Inogamov N.A., Migdal K.P. Effective frequencies of s-s- and s-d-electron collisions in nickel at high temperatures of electrons caused by the action of femtosecond laser pulses ..	15
Pugachev L.P., Levashov P.R., Andreev N.E. PIC modeling of hot electrons generation from inhomogeneous plasma under the action of femtosecond laser pulses	21
Ivlev G.D., Gatskevich E.I., Dvoretzky S.A., Mikhailov N.N., Vlasenko A.I., Gnatyuk V.A., Veleschuk V.P. Nanopulsed laser action on Cd _x Hg _{1-x} Te solid solutions	25
Shemanin V.G., Atkarskaya A.B., Mkrtychev O.V. The energy reflecting coefficients and refractive indexes at multilayers nanosystems analytical studies	29
Kyarov A.Kh., Savintsev A.P. Dispersion interaction of atoms inert gases	35
Kugotova A.M., Kunizhev B.I. Comparative analysis of processes of polymethylmethacrylate destruction by high-speed impact and pulse laser action	44
Yankovskiy B.D., Milyavskiy V.V., Anan'ev S.Yu. Nonideal regime of chemical conversion of RDX in cylindrical sample.....	48
Gorelsky V.A., Orlov M.Yu., Orlov Yu.N., Bogomolov G.N. The investigation of the process of penetration of layered barriers long projectiles	55
Vorobyov Yu.V., Mayer A.E. Localization of plastic deformation in surrounds of micro- and nano-pores at high strain rates in metals	60
Kadatsky M.A., Khishchenko K.V. Thermodynamic properties of brass at high temperatures in the framework of Hartree – Fock – Slater model	67
Korets A.Ya., Korolkova I.V., Krylov A.S., Mironov E.V., Rabchevskii E.V. Research into influence of continual thermal treatment on the detonation diamond-containing material	74
Kuznetsov D.L., Surkov Yu.S., Uvarin V.V., Filatov I.E., Ugodnikov G.G., Nikiforov S.A. Carbon disulfide conversion in non-self-sustained and self-sustained pulsed discharges in air	79
Filatov I.E., Nikiforov S.A., Surkov Yu.S., Uvarin V.V. Action of high-energy electron beam on ecotoxic chlorinated compounds in adsorbent layer	86
Darian L.A., Kotov A.V., Kozlov A.V., Povareskin M.N., Polistchok V.P., Shurupov A.V., Shurupova N.P. Arc discharge in mineral and organic oil	92
Pecherkin V.Ya., Vetchinin S.P., Molotkov V.I., Vasilyak L.M. The possible mechanism of macroparticle ejection from the cathode in streamer discharge	99
Arakelyan S.M., Itina T.E., Kutrovskaaya S.V., Kucherik A.O., Shirkin L.A., Mahalova E.Yu., Volkova A.Yu., Povarnitsyn M.E. Study of producing noble metal nanoparticles by laser irradiation of targets in liquid media.....	104
Popova T.V., Mayer A.E., Khishchenko K.V. Modeling of shock wave propagation in polymethylmethacrylate	109
Bystryi R.G., Morozov I.V. Study of electron dynamics in ionized nanosized clusters	115
The demand to the design of the scientific article, represented in the journal «Proceeding of the Kabardino-Balkarian State University»	120

ИССЛЕДОВАНИЕ ПЕРЕХОДНОГО СЛОЯ СИЛЬНОНЕИДЕАЛЬНОЙ УДАРНО-СЖАТОЙ ПЛАЗМЫ КСЕНОНА

*Запорожец Ю.Б.¹, Минцев В.Б.¹, Грязнов В.К.¹, Фортвов В.Е.², Рейнгольд Х.³, Репке Г.³

¹Институт проблем химической физики РАН

²Объединенный институт высоких температур РАН

³Университет Ростока, Германия

*yubz@icp.ac.ru

Выполнены новые эксперименты, в которых изучались поляризационные свойства сильнонеидеальной ударно-сжатой плазмы ксенона, имеющей параметр кулоновской неидеальности до $\Gamma = 2.4$ с использованием зондирующего излучения с $\lambda_{\text{лаз}} = 1064$ нм, $\lambda_{\text{лаз}} = 694$ нм и $\lambda_{\text{лаз}} = 532$ нм при углах взаимодействия плазменного объекта и электромагнитной волны до $\theta = 75^\circ$. Моделирование взаимодействия плазменного объекта с электромагнитной волной осуществлено на основе численного интегрирования системы уравнений Максвелла с учетом рассеяния электронов на атомах и изменения температуры в переходном слое плазмы.

Ключевые слова: сильнонеидеальная плазма, ударно-сжатая плазма, переходной слой, поляризационные характеристики.

TRANSITIVE LAYER INVESTIGATION OF EXPLOSIVELY DRIVEN STRONGLY COUPLED XENON PLASMA

Zaporozhets Yu.B.¹, Mintsev V.B.¹, Gryaznov V.K.¹, Fortov V.E.², Reinholz H.³, Röpke G.³

¹Institute of Problem of Chemical Physics RAS

²Joint Institute for High Temperatures RAS

³Rostock University (Universität Rostock), Germany

The results of new experiments on angular dependence of s – and p-polarized reflectivities of strongly correlated xenon plasma at several wavelengths are presented. The study of polarized reflectivity properties of explosively driven dense plasma was accomplished using laser light of wavelength $\lambda = 1064$ nm, $\lambda = 694$ nm and $\lambda = 532$ nm at incident angles up to $\theta = 75$. With density $\rho = 3.5$ g/cm³, pressures $P = 14$ GPa and temperatures up to $T \sim 3 \cdot 10^4$ K of the investigated plasma, conditions with strong Coulomb interaction (the nonideality parameter up to $\Gamma \sim 2.4$) were present. For determination of the equilibrium properties of explosively driven plasma, appropriate gas dynamics calculations were carried out. The integration of Maxwell equations are based on an interpolation formula for dc conductivity. Results of the calculations with layer temperature profile and ea-collisions as factor are presented too.

Keywords: strongly correlated plasma, shock-compressed plasma, polarized reflectivity, transitive layer.

Введение. Неидеальная плазма представляет собой объект исследований, вызывающий большой интерес как с точки зрения фундаментальной науки, поскольку наиболее распространенное состояние вещества во Вселенной – это состояние с сильным межчастичным взаимодействием, так и с точки зрения практического использования в перспективных энергетических проектах и устройствах, таких как инерционный термоядерный синтез, МГД-генераторы, генераторы сжатых потоков, новые технологии обработки материалов и т.д. [1]. В настоящее время методы квантовой механики и статистической физики позволяют корректно описывать поведение среды, имеющей низкие или весьма высокие плотности вещества в случае, когда взаимодействие частиц не слишком велико и может учитываться в рамках формализма Дебая-Хюккеля или, квазиклассически, применением приближения Томаса-Ферми, соответственно. Строгое теоретическое описание поведения вещества с сильным межчастичным взаимодей-

ствием затруднено в связи с невозможностью использования идеологии теории возмущений в квантово-механической задаче многих тел из-за отсутствия малого параметра в такой неупорядоченной системе с электронной статистикой, промежуточной между статистиками Больцмана и Ферми. Прямое численное моделирование подобных систем также имеет весьма ограниченные возможности.

В этой ситуации результаты физических экспериментальных исследований приобретают особую ценность, играя роль критерия для определения точности и области применимости «упрощенных» теоретических моделей или используемых для выбора численных параметров функциональных зависимостей, описывающих поведение вещества в условиях сильного взаимодействия частиц и созданных на основе строгих асимптотических решений, справедливых для анализа слабонеидеальных состояний.

Методические подходы экспериментального изучения физических свойств вещества, находящегося в условиях высокоинтенсивного внешнего энерговклада, основанные на взаимодействии электромагнитной волны с локализованным в пространстве плазменным образованием всегда приводят к необходимости оценок характеристик пограничного слоя подобного объекта – слоя плазмы, непосредственно примыкающего к границе раздела системы «плазма–свободное пространство». Данное обстоятельство предопределяется, как правило, имеющей место сильной зависимостью результатов измерения параметров собственно плазмы от свойств ее переходного слоя. В случае плотной ударно-сжатой плазмы это приобретает особую актуальность: с одной стороны, анализ экспериментальной зависимости коэффициента отражения плазмы инертных газов от нормированной плазменной частоты, полученной нами ранее в опытах ударно-волновой генерации сильнонеидеальных плазменных состояний [2-4] позволяет обнаружить сильное влияние пограничных слоев шириной в доли длины волны внешнего поля на процесс распространения пробного излучения в среде, с другой стороны, точность теоретических оценок характеристик этого слоя, получаемых с применением имеющихся в настоящее время моделей таких сред, недостаточна для корректной интерпретации данных физического эксперимента.

Исследование переходного слоя ударно-сжатой сильнонеидеальной плазмы может быть осуществлено с применением методики наклонного зондирования плазменного объекта, дополненного спектральными поляризационными измерениями. Ниже представлены результаты динамических экспериментов, в которых определялись компоненты вектора Стокса для невырожденной плазмы экстремально высоких термодинамических параметров – индекс кулоновской неидеальности изучаемого плазменного объекта достигал значения

$$\Gamma = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 k_B T} \left(\frac{4\pi n_e}{3} \right)^{1/3} \approx 2.6. \quad (1)$$

Изучение поляризационных свойств сильнонеидеального ударно-сжатого плазменного объекта осуществлено с использованием зондирующего излучения с $\lambda_{\text{лаз}}=694$ нм и $\lambda_{\text{лаз}}=1064$ нм при варьировании углов взаимодействия динамического плазменного образования и электромагнитной волны в диапазоне $\theta = 0^\circ \div 75^\circ$, а также представлены первые эксперименты с применением пробной волны с $\lambda_{\text{лаз}}=532$ нм.

Методика исследования и экспериментальная установка. Для изучения свойств переходного слоя плотной ударно-сжатой плазмы экстремально высоких термодинамических параметров была разработана соответствующая методика и создана многоканальная лазерная система диагностики динамических объектов.

На рис. 1 представлена схема стенда для проведения исследования поляризационных характеристик отраженной от динамического плазменного объекта зондирующей волны. В данной диагностической системе реализация плазменных состояний с высокой степенью кулоновской неидеальности (электронная концентрация до 10^{22} см⁻³, параметр кулоновской неидеальности Γ до 2.6) осуществляется с применением экспериментальной техники, позволяющей генерировать однородный динамический плазменный объект достаточной протяженности вдоль направления зондирования.

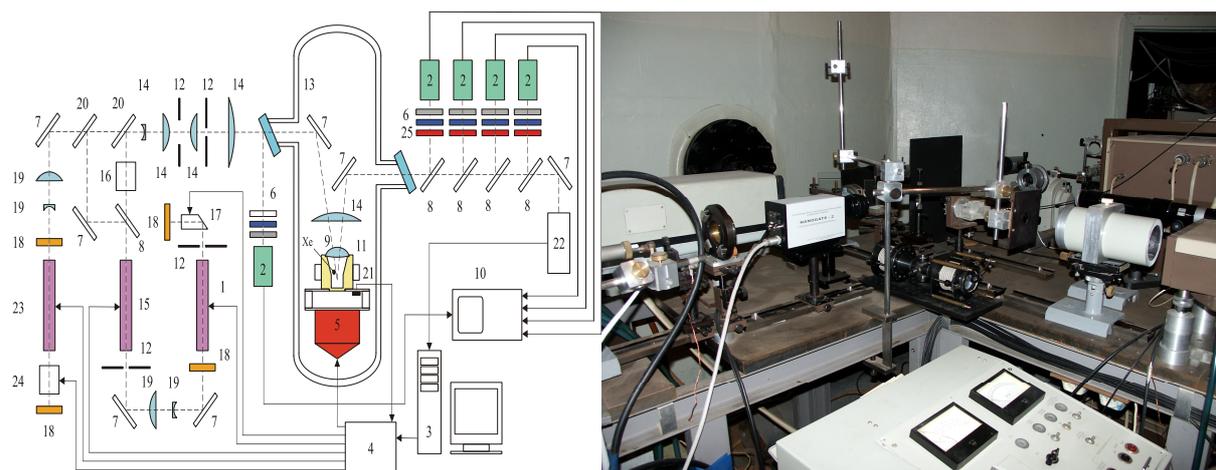


Рис. 1. Многочастотная и многоканальная по азимутальным углам лазерная система измерения поляризационных характеристик динамических короткоживущих объектов, находящихся в условиях высокоэнергетического импульсного воздействия: 1 – $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$ -задающий каскад, 2 – фотодетектор, 3 – управляющий компьютер, 4 – высокоскоростной блок управления, 5 – взрывной генератор, 6 – интерференционные фильтры, 7 – диэлектрическое зеркало, 8 – диэлектрический делитель, 9 – асферическая линза, 10 – цифровой осциллограф, 11 – газовая ячейка с термостатом, 12 – диафрагма, 13 – взрывная камера, 14 – линза, 15 – оптический усилительный каскад на $Y_3Al_5O_{12}:Nd^{3+}$, 16 – монокристалл дидейтерофосфата калия (DKDP), 17 – четвертьволновый затвор Поккельса, 18 – диэлектрические зеркала резонатора задающего каскада, 19 – телескоп сопряжения, 20 – параметрическое зеркало, 21 – детектор положения и скорости ударника, 22 – цифровой спектрометр, 23 – $Al_2O_3:Cr^{3+}$ -лазер, 24 – затвор Поккельса, 25 – поляризатор

Плазменное образование экстремальных термодинамических параметров создавалось с использованием гидродинамического метода генерации сильных ударных волн. Соударение металлического диска (ударника), разогнанного до гиперзвуковой скорости (~ 6 км/сек), с покоящейся мишенью (газовой кюветой) вызывало появление ударной волны в газовом объеме и последующие необратимый разогрев и ионизацию изучаемого инертного газа (ксенон) во фронте волны. На рис. 2 показан взрывной генератор сильнонеидеальных плазменных состояний с установленной газовой кюветой (для наглядности часть стенки кюветы удалена). Кювета имеет систему термостатирования для точного измерения и поддержания начальной температуры инертного газа (с точностью ~ 0.1 °C), систему измерения начального давления газа, а также блок электроионизационных и оптических датчиков положения для измерения скорости движения и положения ударника, разгоняемого продуктами детонации.

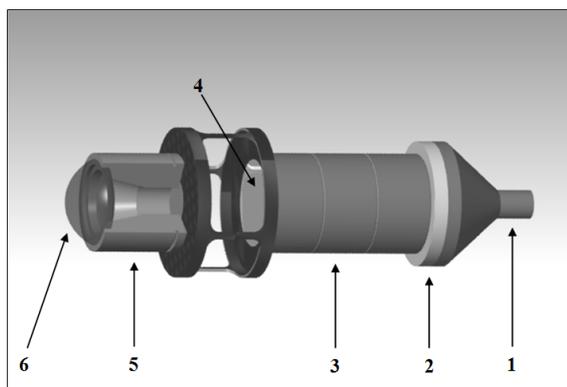


Рис. 2. Генератор сильнонеидеальных плазменных состояний: 1 – детонатор, 2 – детонационная линза, 3 – основной объем ВВ, 4 – разгоняемый ударник, 5 – газовая кювета, 6 – асферическая линза

Тщательный подбор геометрических параметров и материала ударника, базы разгона, а также материала и конструкции газовой кюветы позволил получить в режиме плоского однократного сжатия динамические плазменные образования высокой степени подобия и являющиеся хорошим приближением к объекту, имеющему одномерное распределение носителей заряда. С целью контроля пространственно-

временных параметров плазменного образования была выполнена запись оптического изображения ударной волны в ксеноне с помощью РСО камеры (рис. 3).

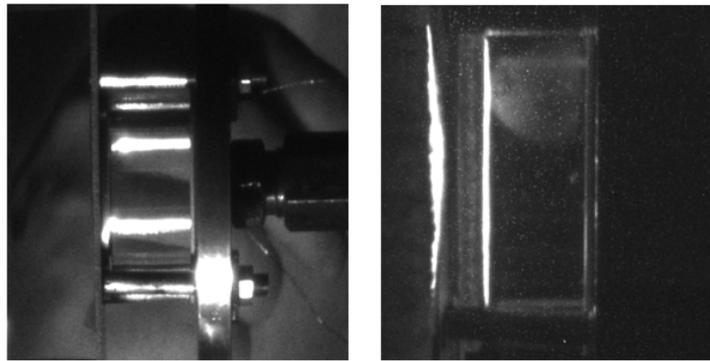


Рис. 3. Снимок течения в газовой кювете

На верхнем снимке показан исходный вид газовой кюветы. Газ заключен в кварцевый цилиндр диаметром 45 мм и высотой 30 мм. В системе координат снимка движение ударника происходило слева направо. На нижнем снимке зафиксирован фронт ударной волны спустя 1 мкс после выхода ударной волны в газ. Экспозиция – 5 нс. Оптическая ось РСО камеры наклонена к плоскости фронта ударной волны под углом в несколько градусов. На снимке видна также отраженная ударная волна в воздухе. Для диагностики плазмы использовалась область на фронте ударной волны в 2 мм. Видна хорошая плоскостность и однородность плазменного объекта, что имеет принципиальное значение для достижения требуемой точности измерения индексов отражения s- и p-волн от ударно-сжатой плазмы. Варьирование плотности и электронной концентрации плазмы достигалось изменением начального давления газа, значения которого составляли $2 \div 5.7$ МПа.

Чрезвычайно сильная собственная тепловая эмиссия плазменных образований предопределила использование импульсного метода зондирования, для реализации которого применены $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$ – (длина волны зондирующего излучения $\lambda_{\text{лаз.}} = 694$ нм) и $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Nd}^{3+}+\text{DKDP}$ – (длина волны зондирующего излучения $\lambda_{\text{лаз.}} = 532$ нм и $\lambda_{\text{лаз.}} = 1064$ нм) лазерные блоки, управляемые компьютерной подсистемой.

Анализ состояния поляризации отраженного от плазмы излучения выполняется четырехканальным импульсным эллипсометром параллельного типа, каждый канал которого снабжен соответствующим поляризатором, настроенным на определенный азимутальный угол и быстродействующим фотодетектором с элементом выделения требуемой длины волны излучения. Сигналы фотодетекторов используются для вычисления компонент вектора Стокса. Для проверки корректности работы системы диагностики были проведены тестовые измерения поляризационных характеристик эталонных объектов.

Равновесные термодинамические параметры ударно-сжатой плазмы определялись из соответствующих расчетов, в которых использовались уравнения состояния материала ударника, кюветы и ксеноновой плазмы, а также измеренная в опыте скорость металлического ударника. Кулоновское взаимодействие частиц учитывалось в соответствии с кольцевым дебаевским приближением в большом каноническом ансамбле, отталкивание тяжелых частиц на малых расстояниях – в приближении модели мягких сфер [5].

Экспериментальное изучение поляризационных характеристик ударно-сжатой плазмы ксенона. Изучение поляризационных свойств ударно-сжатой плазмы проводилось с применением зондирующего электромагнитного излучения с $\lambda_{\text{лаз.}} = 694$ нм ($\nu_{\text{лаз.}} = 4.33 \cdot 10^{14}$ Гц) и $\lambda_{\text{лаз.}} = 1064$ нм ($\nu_{\text{лаз.}} = 2.83 \cdot 10^{14}$ Гц) при варьировании углов взаимодействия плазменного объекта и пробной волны в диапазоне $\theta = 0^\circ \div 75^\circ$, а также с $\lambda_{\text{лаз.}} = 532$ нм ($\nu_{\text{лаз.}} = 5.66 \cdot 10^{14}$ Гц) при углах до $\theta = 45^\circ$. Были определены минимумы зависимости величины индекса отражения от угла взаимодействия для p-волны (для $\lambda_{\text{лаз.}} = 1064$ нм и $\lambda_{\text{лаз.}} = 694$ нм).

В ходе экспериментов термодинамические параметры плазменного объекта поддерживались на одном уровне для измерений на конкретной длине волны. В табл. 1, 2 и 3 представлены результаты динамических поляризационных экспериментов, выполненных нами ранее и новые данные.

Таблица 1

Результаты измерения индексов отражения для s- и p-волны с применением зондирующего излучения с длиной волны $\lambda_{\text{лаз}} = 1064 \text{ нм}$

Θ, ГРАД	R _s	R _p	P, ГПА	T, °K	P, Г·CM ⁻³	N _E , CM ⁻³	N _A , CM ⁻³	α _{ИОН}	Γ	Θ
0	0.36	0.36	10.5	29000	2.70	7.1×10 ²¹	5.4×10 ²¹	0.57	1.8	1.9
10	0.41	0.35								
20	0.47	0.32								
30	0.52	0.25								
40	0.64	0.17								
45	0.65	0.152								
50	0.7	0.163								
55	0.74	0.165								
60	0.73	0.17								
65	0.8	0.223								
70	0.85	0.28								
75	0.89	0.52								

Таблица 2

Результаты измерения индексов отражения для s- и p-волны с применением зондирующего излучения с длиной волны $\lambda_{\text{лаз}} = 694 \text{ нм}$

Θ, ГРАД	R _s	R _p	P, ГПА	T, °K	P, Г·CM ⁻³	N _E , CM ⁻³	N _A , CM ⁻³	α _{ИОН}	Γ	Θ
0	0.26	0.26	12	32000	2.8	7.8×10 ²¹	5.5×10 ²¹	0.56	1.7	1.9
10	0.31	0.24								
20	0.37	0.18								
30	0.384	0.15								
35	0.52	0.12								
40	0.57	0.13								
45	0.585	0.12								
50	0.55	0.15								
55	0.6	0.14								
60	0.7	0.19								
65	0.79	0.33								
70	0.78	0.3								
75	0.82	0.56								

Таблица 3

Результаты измерения индексов отражения для s- и p-волны с применением зондирующего излучения с длиной волны $\lambda_{\text{лаз}} = 532 \text{ нм}$

Θ, ГРАД	R _s	R _p	P, ГПА	T, °K	P, Г·CM ⁻³	N _E , CM ⁻³	N _A , CM ⁻³	α _{ИОН}	Γ	Θ
0	0.16	0.16	12	32000	2.8	7.8×10 ²¹	5.5×10 ²¹	0.56	1.7	1.9
10	0.2	0.12								
20	0.21	0.11								
30	0.3	0.085								
35	0.39	0.07								
40	0.37	0.83								
45	0.48	0.14								

В таблицах использованы следующие обозначения: θ – угол падения зондирующей волны на плазму, R_s – индекс отражения зондирующей волны s-поляризации, R_p – индекс отражения зондирующей волны p-поляризации, P – давление, T – температура, ρ – плотность плазмы, n_e – плотность электронов, n_a – плотность нейтральных частиц, $\alpha_{\text{ион}} = n_e / (n_a + n_e)$ – степень ионизации, Γ – параметр кулоновской неидеальности, Θ – степень вырождения.

В каждом физическом опыте s- и p-индексы регистрировались одновременно. Каждая точка таблицы – усредненное значение индекса, полученное в серии из 3-4-х опытов.

Анализ экспериментальных данных. Моделирование распространения электромагнитной волны умеренной интенсивности в ударно-сжатой плазменной среде, имеющей переходной слой, выполнялось на основе численного решения уравнения Гельмгольца. Для случая s- и p-поляризации удобно записать два таких уравнения, описывающих электрическое и магнитное поля зондирующей волны соответственно:

$$\frac{d^2 E_0(z)}{dz^2} + k_0^2 (\varepsilon - \sin^2 \theta) E_0(z) = 0, \quad (2)$$

$$\frac{d^2 H_0(z)}{dz^2} - \frac{d[\log \varepsilon]}{dz} \frac{dH_0(z)}{dz} + k_0^2 (\varepsilon - \sin^2 \theta) H_0(z) = 0. \quad (3)$$

Представив поле вне плазмы как суперпозицию отраженной и падающей волн, можно из численного решения приведенных выше уравнений определить коэффициенты отражения плазмы для s- и p-поляризаций. Сравнение расчетных значений коэффициентов отражения и значений, полученных в эксперименте, можно использовать для реконструкции профиля распределения электронной концентрации в переходном слое, что необходимо для вычисления истинных значений коэффициента отражения собственно плазмы и оценки характерного времени релаксационно-ионизационных процессов в такой среде.

Таблица 4

Коэффициенты интерполяционной формулы (4) для проводимости плазмы

a ₀	0.0306
a ₁	1.1590
a ₂	0.6980
a ₃	0.4876
a ₄	0.1748
a ₅	0.1000
a ₆	0.2580
b ₁	1.9500
b ₂	2.8800
b ₃	3.6000
c ₁	1.5000
c ₂	2.6000
c ₃	0.3000
c ₄	0.3500
c ₅	0.1000

Для конструирования функции диэлектрической проницаемости исследуемой среды применялось обобщенное соотношение Друде [2] и интерполяционная формула (Esser A., Redmer R., Röpke G.) для DC проводимости плазмы [6]:

$$\sigma_{\omega} = a_0 \Gamma^{\frac{3}{2}} \left(1 + \frac{b_1}{\Gamma^{\frac{3}{2}}}\right) \left[\ln(1 + A + B) D - C - \frac{b_2}{b_2 + \Gamma \Theta}\right]^{-1}, \quad (4)$$

$$A = \Gamma^{-3} \frac{1 + \frac{a_4}{\Gamma^2 \Theta}}{1 + \frac{a_2}{\Gamma^2 \Theta} + \frac{a_3}{\Gamma^4 \Theta^2}} [a_1 + c_1 \ln(c_2 \Gamma^{\frac{3}{2}} + 1)]^2, \quad (5)$$

$$B = \frac{b_3 (1 + c_3 \Theta)}{\Gamma \Theta (1 + c_3 \Theta^{\frac{4}{5}})}, \quad (6)$$

$$C = \frac{c_4}{\ln(1 + \Gamma^{-1}) + c_5 \Gamma^2 \Theta}, \quad (7)$$

$$D = \frac{\Gamma^3 + a_5 (1 + a_6 \Gamma^{\frac{3}{2}})}{\Gamma^3 + a_5}. \quad (8)$$

Здесь

$$\Gamma = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 k_B T} \left(\frac{4\pi n_e}{3} \right)^{\frac{1}{3}}, \quad (9)$$

$$\Theta = \frac{2m_e k_B T}{\hbar^2} (3\pi^2 n_e)^{-\frac{2}{3}}. \quad (10)$$

Коэффициенты для формул (4-8) указаны в табл. 4.

При моделировании распространения зондирующей волны в градиентной плазме использовался профиль электронной концентрации, полученный нами в работе [3]. На рис. 4 представлены также значения индекса отражения сильнонеидеальной плазмы ударно-сжатого ксенона, полученные в эксперименте для случая нормального падения пробного излучения на объект. Расчетные зависимости индекса отражения для s- и p-зондирующей волны от угла взаимодействия электромагнитного излучения с ударно-сжатой плазмой для частот зондирования $\nu_{\text{лаз}} = 2.83 \cdot 10^{14}$ Гц ($\lambda_{\text{лаз}} = 1064$ нм) и $\nu_{\text{лаз}} = 4.33 \cdot 10^{14}$ Гц ($\lambda_{\text{лаз}} = 694$ нм) представлены на рис. 5 и рис. 6. Здесь же показаны экспериментальные значения соответствующих индексов.

На рис. 7 представлены значения индексов отражения для $\nu_{\text{лаз}} = 5.66 \cdot 10^{14}$ Гц ($\lambda_{\text{лаз}} = 532$ нм).

Для каждой частоты зондирования имеются две p-кривые, которые получены в предположении фиксированной ширины переходного слоя (переходным слоем можно считать область пространства, в которой величина электронной плотности меняется от значения, не оказывающего влияние на распространение пробной электромагнитной волны $- 1.0 \times 10^{19}$ см⁻³ до $0.95n_s$, где n_s – электронная плотность в основном слое плазменного образования) ударно-сжатого плазменного объекта в 200 нм и 800 нм. Хорошо видно смещение минимума p-кривой при изменении протяженности переходной области плазмы.

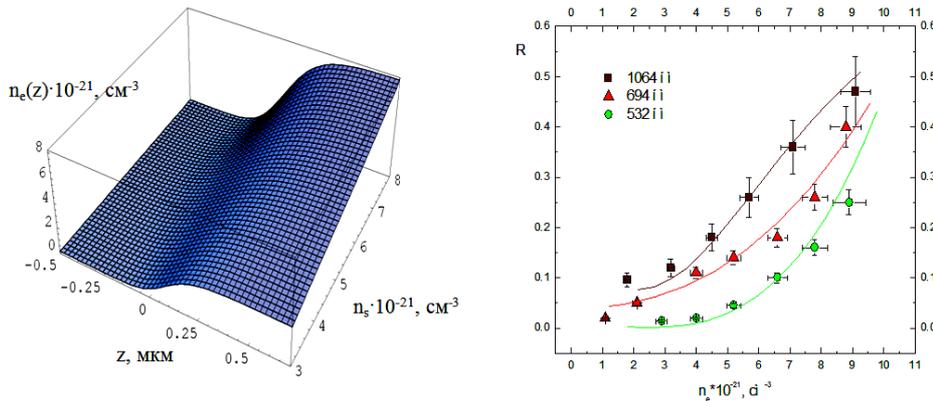


Рис. 4. Расчетная зависимость коэффициента отражения ударно-сжатой плазмы ксенона от электронной концентрации, полученная в модели, которая учитывает влияние переходного слоя (график слева, n_s – плотность электронов в основном слое плазменного образования) ударно-сжатой плазмы

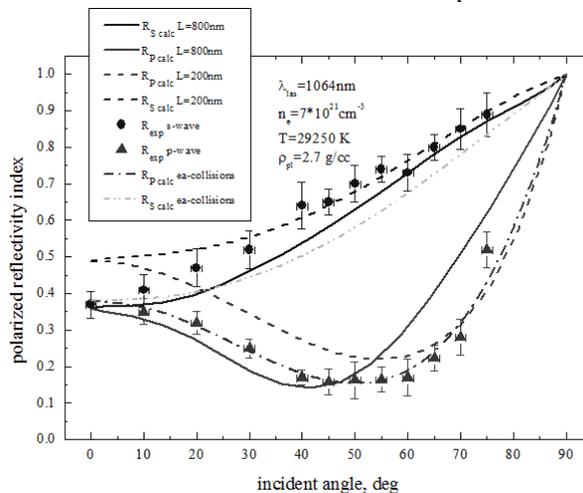


Рис. 5. Зависимость индекса отражения для s- и p-волн от угла взаимодействия электромагнитного излучения с ударно-сжатой плазмой. Длина волны зондирующего излучения $\lambda = 1064$ нм

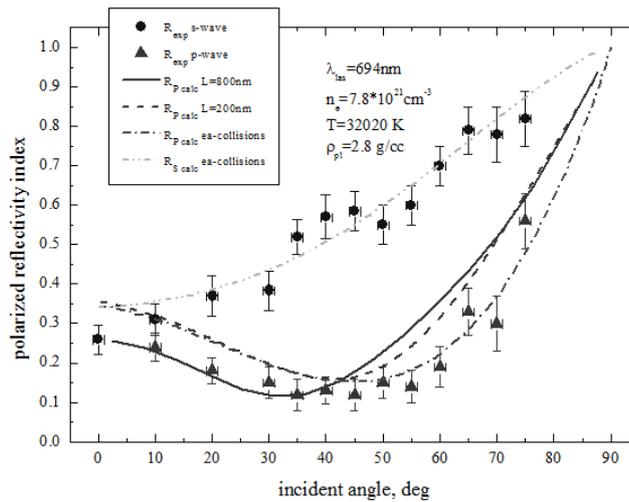


Рис. 6. Зависимость индекса отражения для s- и p-волны от угла взаимодействия электромагнитного излучения с ударно-сжатой плазмой. Длина волны зондирующего излучения $\lambda = 694\text{ nm}$

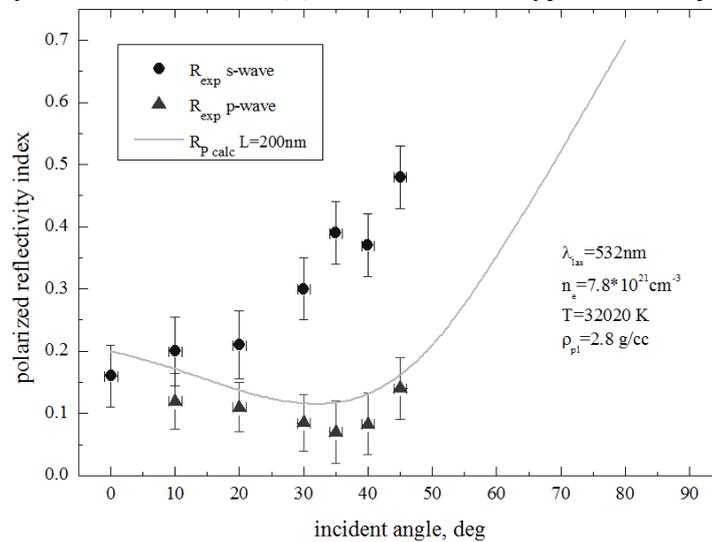


Рис. 7. Зависимость индекса отражения для s- и p-волны от угла взаимодействия электромагнитного излучения с ударно-сжатой плазмой. Длина волны зондирующего излучения $\lambda = 532\text{ nm}$

Расчет с учетом рассеяния электронов на атомах и изменения температуры в переходном слое показан также на рис. 5 и рис. 6 [7]. Хорошо видно, что введение в расчет указанных выше процедур позволяет лучше описать данные эксперимента.

Заключение. Выполнены новые эксперименты, в которых изучались поляризационные свойства сильнонеидеальной ударно-сжатой плазмы ксенона в широком диапазоне оптического спектра. Определены углы взаимодействия плазмы с зондирующей электромагнитной волной, соответствующие минимуму p-кривой для $\nu_{\text{лаз}} = 2.83 \cdot 10^{14}\text{ Гц}$ ($\lambda_{\text{лаз}} = 1064\text{ nm}$) и $\nu_{\text{лаз}} = 4.33 \cdot 10^{14}\text{ Гц}$ ($\lambda_{\text{лаз}} = 694\text{ nm}$).

Расчеты зависимостей индекса отражения для s- и p-волны от угла взаимодействия с плазменным объектом с учетом диссипативных процессов в плазме и новых экспериментальных данных демонстрируют лучшее согласие с экспериментом. Сравнение расчетных зависимостей положения минимума индекса отражения от угла взаимодействия с экспериментально наблюдаемым углом (для $\lambda_{\text{лаз}} = 1064\text{ nm}$ и $\lambda_{\text{лаз}} = 694\text{ nm}$) позволяет сделать предварительную оценку ширины переходного слоя, которая составляет $\sim 200\text{ nm}$.

Улучшению описания экспериментальных данных будет способствовать численное решение системы уравнений Максвелла с использованием более объемного массива индексов отражения, что может быть осуществлено при изучении поляризационных свойств ударно-сжатой плазмы с применением зондирующего излучения в коротковолновой области спектра с $\nu_{\text{лаз}} = 5.66 \cdot 10^{14}\text{ гц}$ ($\lambda_{\text{лаз}} = 532\text{ nm}$).

Библиография

1. Фортгов В.Е., Храпак А.Г., Якубов И.Т. Физика неидеальной плазмы. М.: Физматлит, 2004. 368 с.
2. Reinholz H., Zaporoghets Yu., Mintsev V., Fortov V., Morozov I., Röpke G. Frequency-dependent reflectivity of shock-compressed xenon plasmas // *Phys. Rev. E*. 2003. V. 68. P. 036403-1-10.
3. Zaporoghets Yu., Mintsev V., Gryaznov V., Fortov V., Reinholz H., Raitza T., Röpke G. Reflectivity of nonideal plasmas // *J. Phys. A: Math. Gen.* 2006. V. 39. P. 4329–4333.
4. Запорожец Ю.Б., Минцев В.Б., Грязнов В.К., Фортгов В.Е. Коэффициент отражения плотной плазмы ксенона в красной области спектра (694 нм) // *Физика экстремальных состояний вещества-2004*. Черногловка: ИПХФ РАН, 2004. С. 140-141.
5. Fortov V.E., Gryaznov V.K., Mintsev V.B., Ternovoi V.Ya., Iosilevski I.L., Zhernokletov M.V., Mochalov M.A. Thermophysical properties of shock compressed argon and xenon // *Contrib. Plasma Phys.* 2001. V. 41. N. 2–3. P. 215–218.
6. Esser A., Redmer R., Röpke G. Interpolation formula for the electrical conductivity of nonideal plasmas // *Contrib. Plasma Phys.* 2003. V. 43. P. 33–41.
7. Zaporoghets Yu., Mintsev V., Gryaznov V., Fortov V., Winkel M., Reinholz H., Röpke G. Laser radiation interaction with strongly correlated plasma // *Physics of Extreme States of Matter-2012*. Chernoglovka: IPCP RAS, 2012. P. 244–249.

**ЭФФЕКТИВНЫЕ ЧАСТОТЫ ЭЛЕКТРОННЫХ S-S- И S-D-СТОЛКНОВЕНИЙ
В НИКЕЛЕ ПРИ ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ ЭЛЕКТРОНОВ, ВЫЗВАННЫХ
ДЕЙСТВИЕМ ФЕМТОСЕКУНДНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ИМПУЛЬСОВ**

*Петров Ю.В.¹, Иногамов Н.А.¹, Мигдал К.П.²

¹ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН

²Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л. Духова

*uvp49@mail.ru

Вычисляются эффективные частоты межэлектронных s-s- и s-d-столкновений в переходном металле (никель), в котором при действии фемтосекундных лазерных импульсов оптического диапазона частот происходит нагрев как s-, так и d-электронов. Показан большой вклад s-d-рассеяния в общую частоту столкновений s-электронов с другими электронами в металле при умеренных (до 1 эВ) электронных температурах.

Ключевые слова: фемтосекундные лазерные импульсы, электрон-электронные столкновения, переходные металлы.

**EFFECTIVE FREQUENCIES OF S-S AND S-D ELECTRON COLLISIONS
IN NICKEL AT HIGH TEMPERATURES OF ELECTRONS CAUSED
BY THE ACTION OF FEMTOSECOND LASER PULSES**

Petrov Y.V.¹, Inogamov N.A.¹, Migdal K.P.²

¹Landau ITP RAS

²VNIIA

Effective frequencies of s-s and s-d electron collisions are calculated for the transition metal (nickel) with electrons heated by the femtosecond laser pulses of the optical frequency diapazone. It is shown that s-d scattering contributes to a great extent to the frequency of collisions of s-electrons with other electrons in the transition metal at moderate electron temperatures (up to 1 eV).

Keywords: femtosecond laser pulses, electron-electron collisions, transition metals.

Введение. При действии фемтосекундных лазерных импульсов на металлы в течение времени, превышающего длительность импульса, возникает уникальное состояние, характеризующееся большой разницей температур электронов зоны проводимости и кристаллической решетки. Энергия лазерного импульса поглощается электронами и, вследствие большой разницы в массах электронов и ионов, сравнительно медленно передается в кристаллическую решетку. Небольшая величина электронной теплоемкости при низких температурах приводит к существенному повышению температуры электронов сразу после окончания действия импульса лазера в поверхностном слое мишени толщиной порядка длины проникновения лазерного излучения. Затем тепловая энергия, полученная электронной подсистемой металла, распространяется внутрь мишени за счет теплопроводности, преимущественно электронной, и обмена энергией между электронами и ионами. Это приводит в итоге к появлению в мишени нагретого слоя вещества. Толщина этого слоя повышенной температуры и давления и дальнейшая динамика его расширения вплоть до абляции существенно зависят от величины электронной теплопроводности. Для простых металлов (в которых при воздействии фемтосекундных лазеров оптического диапазона частот происходит возбуждение только s- и p-электронов), таких, как алюминий, коэффициент теплопроводности с учетом как электрон-ионного, так и электрон-электронного рассеяния был вычислен в широком интервале электронных температур в работе [1]. В переходных металлах, в частности, в никеле, который мы здесь рассматриваем, имеются две группы электронов, которые влияют на электронную теплопроводность. Первая из них – это s-электроны с малой эффективной массой, они обладают высокой подвижностью и дают основной вклад в теплопередачу. Другая группа электронов – это d-электроны с большей эффективной массой и, как следствие, с меньшей подвижностью и меньшим вкладом в передачу тепла. Но на d-электронах происходит эффективное рассеяние s-электронов в дополнение к s-s-рас-

сеянию. Мы вычислим эффективные частоты s-s- и s-d-рассеяния в никеле и определяемый ими коэффициент электронной теплопроводности в широком диапазоне температур электронов, характерном для взаимодействия фемтосекундных лазерных импульсов умеренной интенсивности с поверхностной плотностью энергии до 1 Дж/см^2 , когда существенно термическое возбуждение как s-, так и d-электронов.

Эффективные частоты электрон-электронных столкновений. Рассмотрим столкновение s-электрона, имеющего импульс \mathbf{p} , с электроном, имеющим импульс \mathbf{p}' :

$$\mathbf{p} + \mathbf{p}' \rightarrow (\mathbf{p} + \mathbf{q}) + (\mathbf{p}' - \mathbf{q}),$$

где \mathbf{q} – переданный импульс. Частота столкновений s-электрона с импульсом \mathbf{p} с другими электронами может быть записана как

$$\nu(\mathbf{p}) = \frac{2\pi}{\hbar} \int |U_{\mathbf{q}}|^2 \frac{d^3 q}{(2\pi\hbar)^3} \int \frac{d^3 p'}{(2\pi\hbar)^3} \Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) \times \delta[\varepsilon(\mathbf{p}) + \varepsilon'(\mathbf{p}') - \varepsilon(\mathbf{p} + \mathbf{q}) - \varepsilon'(\mathbf{p}' - \mathbf{q})].$$

Здесь $U_{\mathbf{q}}$ – матричный элемент электрон-электронного взаимодействия, в качестве которого рассматриваем экранированное кулоновское взаимодействие

$$U(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{e^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} e^{-\kappa|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}$$

с длиной экранирования $\lambda(T_e) = \frac{1}{\kappa(T_e)}$.

Тогда
$$U_{\mathbf{q}} = \frac{4\pi e^2}{q^2 / \hbar^2 + \kappa^2},$$

и
$$\nu(\mathbf{p}) = \frac{2\pi}{\hbar} \int \left(\frac{4\pi e^2}{q^2 / \hbar^2 + \kappa^2} \right)^2 \frac{d^3 q}{(2\pi\hbar)^3} \int \frac{d^3 p'}{(2\pi\hbar)^3} \Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) \times \delta[\varepsilon(\mathbf{p}) + \varepsilon'(\mathbf{p}') - \varepsilon(\mathbf{p} + \mathbf{q}) - \varepsilon'(\mathbf{p}' - \mathbf{q})] \quad (1)$$

Статистический фактор $\Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q})$ в выражении (1) определяется энергетическими зонами тех электронов, которые участвуют в рассеянии.

Для процесса s-s рассеяния, детально рассмотренного в [1], статистический фактор имеет вид:

$$\Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) = f_s(\mathbf{p}') [1 - f_s(\mathbf{p} + \mathbf{q})] [1 - f_s(\mathbf{p}' - \mathbf{q})] + f_s(\mathbf{p} + \mathbf{q}) f_s(\mathbf{p}' - \mathbf{q}) [1 - f_s(\mathbf{p}')],$$

где f_s – фермиевская функция распределения s-электронов. На электронной плотности состояний никеля (рис. 1) четко выделяются состояния, принадлежащие как s- и d-зонам. Мы рассмотрим обе эти зоны в параболическом приближении с эффективными массами электронов соответственно $m_s = 1.1 m$ и $m_d = 7.7 m$ (m – масса свободного электрона).

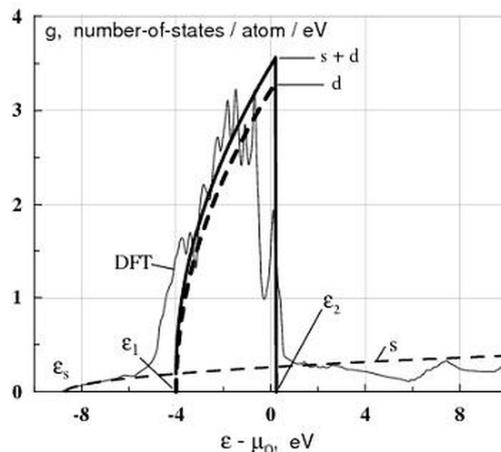


Рис. 1. Плотность состояний никеля, рассчитанная методом функционала плотности, и ее двухпараболическая аппроксимация (μ_0 – химический потенциал электронов при нулевой температуре)

Рассмотрим s-d-рассеяние как процесс $sd \rightarrow sd$ и передачу тепла, связанную с таким процессом. Энергии электронов в s- и d-зонах в приближении эффективных масс могут быть записаны в виде:

$$\varepsilon(\mathbf{p}) = \varepsilon_s + \frac{p^2}{2m_s}, \quad \varepsilon'(\mathbf{p}') = \varepsilon_1 + \frac{p'^2}{2m_d},$$

где ε_s – дно s-зоны, ε_1 – дно d-зоны с потолком, равным ε_2 . Статистический фактор в этом случае есть

$$\Phi(\mathbf{p}, \mathbf{p}', \mathbf{q}) = f_d(\mathbf{p}') [1 - f_s(\mathbf{p} + \mathbf{q})] [1 - f_d(\mathbf{p}' - \mathbf{q})] + f_s(\mathbf{p} + \mathbf{q}) f_d(\mathbf{p}' - \mathbf{q}) [1 - f_d(\mathbf{p}')],$$

f_d – фермиевская функция распределения d-электронов. Вследствие сохранения энергии при электрон-электронном рассеянии имеем:

$$\varepsilon_s + \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{q})^2}{2m_s} + \varepsilon_1 + \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} = \varepsilon_s + \frac{p^2}{2m_s} + \varepsilon_1 + \frac{p'^2}{2m_d}.$$

Введем обозначения:

$$\alpha = \frac{p^2}{2m_s} - \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{q})^2}{2m_s}; \quad \beta = \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} - \frac{p'^2}{2m_d}; \quad \varepsilon = \frac{p^2}{2m_s}; \quad \varepsilon' = \frac{p'^2}{2m_d}.$$

Тогда:

$$\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{q})^2}{2m_s} = \varepsilon - \alpha, \quad \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} = \varepsilon' + \beta,$$

и статистический фактор принимает вид

$$\Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) = f_d(\varepsilon') [1 - f_s(\varepsilon - \alpha)] [1 - f_d(\varepsilon' + \beta)] + f_s(\varepsilon - \alpha) f_d(\varepsilon' + \beta) [1 - f_d(\varepsilon')].$$

Здесь при температуре электронов T , согласно предположению о локальном термодинамическом равновесии внутри электронной подсистемы,

$$f_s(\varepsilon) = \frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}} + 1}, \quad f_d(\varepsilon) = \frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon - \mu}{kT}} + 1},$$

(k – постоянная Больцмана, $\mu(T)$ – химический потенциал, общий для s- и d-электронов). Тогда:

$$\Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) = \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right)}{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \alpha - \mu}{kT}\right) + 1} \cdot \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon + \beta - \alpha - \mu}{kT}\right) + 1}{\left(\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' + \beta - \mu}{kT}\right) + 1\right) \left(\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right) + 1\right)}.$$

С введенными обозначениями δ -функция в (1), отвечающая за сохранение энергии, приобретает вид $\delta(\alpha - \beta)$, и частота столкновений s-электрона, имеющего импульс \mathbf{p} , с d-электронами, может быть записана как

$$v(\mathbf{p}) = v(p) = \frac{2\pi}{\hbar} \int \left(\frac{4\pi e^2}{q^2 / \hbar^2 + \kappa^2} \right)^2 \frac{d^3 q}{(2\pi\hbar)^3} \int \frac{d^3 p'}{(2\pi\hbar)^3} \Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) \delta(\alpha - \beta).$$

Вводя полярный θ и азимутальный φ углы для вектора \mathbf{q} (θ – угол между \mathbf{p} и \mathbf{q}), мы можем написать $d^3 q = 2\pi q^2 dq dt$, где $t = -\cos \theta$, а по азимутальному углу φ проведено интегрирование от 0 до 2π . Учитывая, что

$$\alpha = \frac{p^2}{2m_s} - \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{q})^2}{2m_s} = \frac{2pqt - q^2}{2m_s},$$

имеем: $dt = \frac{m_s}{pq} d\alpha$. Для заданного \mathbf{q} введем полярный и азимутальный углы θ' и φ' для вектора

\mathbf{p}' (θ' – угол между \mathbf{p}' и \mathbf{q}). Тогда, $d^3 p' = 2\pi p'^2 dp' dt'$ (снова в $d^3 p'$ произведено интегрирование по φ' от 0 до 2π). Используя переменную $t' = -\cos \theta'$, мы можем написать для β :

$$\beta = \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} - \frac{p'^2}{2m_d} = \frac{2p'qt' + q^2}{2m_d},$$

откуда $dt' = \frac{m_d}{p'q} d\beta$. Тогда мы получаем:

$$\begin{aligned} & \frac{d^3q}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2d^3p'}{(2\pi\hbar)^3} \Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) \delta(\alpha - \beta) = \\ & \frac{dq}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2dp'}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2\pi m_s}{p} 2\pi m_d p' \Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \beta) \delta(\alpha - \beta) d\alpha d\beta. \end{aligned} \quad (2)$$

После интегрирования по β из-за наличия δ -функции это выражение трансформируется в

$$\frac{dq}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2dp'}{(2\pi\hbar)^3} \frac{2\pi m_s}{p} 2\pi m_d p' \Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \alpha) d\alpha,$$

где статистический фактор имеет вид

$$\Phi(\varepsilon, \varepsilon', \alpha, \alpha) = \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right)}{\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right) + 1} \cdot \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}\right) + 1}{\left(\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \alpha - \mu}{kT}\right) + 1\right) \left(\exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' + \alpha - \mu}{kT}\right) + 1\right)}.$$

Вычисляя интеграл от него по α , получаем функцию

$$\tilde{\Phi}(\alpha', \alpha'') = \int_{\alpha'}^{\alpha''} \Phi(\alpha, \alpha) d\alpha = \frac{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}\right) + 1}{\exp\left(\frac{\mu - \varepsilon_1 - \varepsilon'}{kT}\right) + 1} \cdot \frac{kT}{\exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}\right) \exp\left(\frac{\varepsilon_1 + \varepsilon' - \mu}{kT}\right) - 1} \times \ln \frac{\exp\left(\frac{\alpha}{kT}\right) + \exp\left(\frac{\mu - \varepsilon_1 - \varepsilon'}{kT}\right)}{\exp\left(\frac{\alpha}{kT}\right) + \exp\left(\frac{\varepsilon_s + \varepsilon - \mu}{kT}\right)} \Bigg|_{\alpha'}^{\alpha''}$$

от пределов интегрирования $\alpha'(p, p', q)$ и $\alpha''(p, p', q)$, определяемых из ограничений, накладываемых sd \rightarrow sd-рассеянием и условием отличия от нуля результата интегрирования по β выражения (2), содержащего δ -функцию. sd \rightarrow sd-рассеяние накладывает условие

$$\varepsilon_1 \leq \varepsilon_1 + \frac{(\mathbf{p}' - \mathbf{q})^2}{2m_d} \leq \varepsilon_2$$

или

$$\beta = \frac{p'^2 + 2p'qt' + q^2}{2m_d} \leq \varepsilon_2 - \varepsilon_1.$$

Обозначим $p_d = \sqrt{2m_d(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}$ граничный импульс d -электронов. Тогда $p \leq p_d$ и $p'^2 + 2p'qt' + q^2 \leq p_d^2$. Отсюда следует $t' \leq t_0(p', q) = \frac{p_d^2 - p'^2 - q^2}{2p'q}$. В зависимости от положения

точки t_0 по отношению к интервалу $[-1, 1]$ возникают два случая. В случае 1 $t_0 \geq 1$. В этом случае интегрирование по t' ведется по всему интервалу $[-1, 1]$. В случае 2 $-1 \leq t_0 \leq 1$, и интегрирование по t' проводится в пределах $-1 \leq t' \leq t_0$. Рассматривая теперь все варианты интегрирования по β , выражения (2) с функцией $\delta(\alpha - \beta)$, дающие ненулевой вклад, мы получаем различные области двумерного интегрирования в плоскости переменных $p' - q$ для заданного импульса электрона p , рассматриваемого как параметр. Выполняя в этих областях численное двумерное интегрирование по p' и q , мы получаем частоту столкновений $\nu(p)$ s-электрона с заданным импульсом p с d-электронами в процессе sd \rightarrow sd.

Тогда можно определить коэффициент электронной теплопроводности, обусловленный s-d-рассеянием электронов:

$$\kappa_{sd}(T) = \frac{k}{3} \int (\varepsilon - \mu) \left(-\frac{\partial f_s}{\partial \varepsilon}(\varepsilon) \right) \left(\frac{\partial \mu}{\partial T} + \frac{\varepsilon - \mu}{T} \right) \frac{v_s^2(p)}{v(p)} \frac{p^2 dp}{\pi^2 \hbar^3}. \quad (3)$$

Здесь $v_s(p)$ скорость s-электрона. Мы используем вычисленный с помощью выражения (3) коэффициент электронной теплопроводности за счет s-d-рассеяния, чтобы определить среднюю частоту s-d-столкновений $\bar{v}_{sd}(T)$, определяющую этот коэффициент в Друде-соотношении:

$$\kappa_{sd}(T) = \frac{1}{3} \frac{C_s(T) \bar{v}_s^2}{\bar{v}_{sd}(T)},$$

откуда зависящая от температуры электронов средняя частота s-d-электронных столкновений

$$\bar{v}_{sd}(T) = \frac{1}{3} \frac{C_s(T) \bar{v}_s^2}{\kappa_{sd}(T)}. \quad (4)$$

Результаты и обсуждение. Вычисленный коэффициент электронной теплопроводности никеля, обусловленный как s-s-, так и s-d-электронным рассеянием, как функция температуры электронов показан на рис. 2 в сравнении с электронным коэффициентом теплопроводности алюминия, в котором отсутствует возбуждение d-электронов.

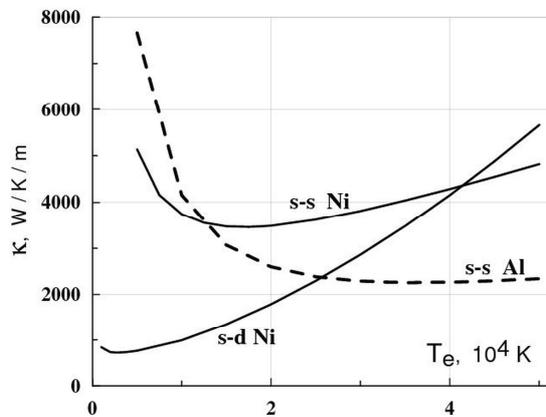


Рис. 2. Коэффициент электронной теплопроводности, обусловленный s-s- и s-d-столкновениями в никеле (переходный металл), в сравнении с коэффициентом электронной теплопроводности алюминия (простой металл)

Средние частоты s-s- и s-d-электронных столкновений, полученные с помощью соотношения (4), как функции электронной температуры, приведены на рис. 3 для никеля и для алюминия.

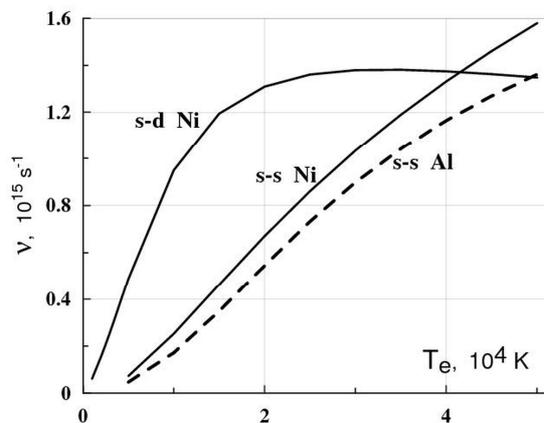


Рис. 3. Эффективные частоты электронных s-s- и s-d-столкновений в никеле в зависимости от температуры электронов в сравнении с эффективной частотой электрон-электронных столкновений в алюминии

Как и для алюминия, частота s-s-столкновений в никеле растет с увеличением температуры электронов. В то же время у частоты s-d-столкновений как функции электронной температуры наблюдается немонотонное поведение.

Суммарная частота электрон-электронных столкновений s-электронов (ν_{se}) в переходном металле никеле значительно превосходит таковую в простом металле алюминии. В никеле при температурах электронов $T < 1$ эВ частота s-d-столкновений существенно больше частоты s-s-рассеяния. Частоты электрон-электронных столкновений вместе с частотами электрон-ионных столкновений определяют суммарную электронную релаксацию, ответственную за электронную теплопроводность [2–6].

Работа поддержана Программой РАН «Вещество при высоких плотностях энергии» и Российским фондом фундаментальных исследований, проект 13-02-01078.

Библиография

1. Иногамов Н.А., Петров Ю.В. Теплопроводность металлов с горячими электронами // ЖЭТФ. 2010. Т. 137. Вып. 3. С. 505–529.
2. Eidmann K., Meyer-ter-Vehn J., Schlegel T., Hüller S. Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter // Phys. Rev. E. 2000. V. 62. P. 1202–1214.
3. Fisher D., Fraenkel M., Henis Z., Moshe E., Elieser S. Interband and intraband (Drude) contributions to femtosecond laser absorption in aluminum // Phys. Rev. E. 2001. V. 65. P. 016409 (1–8).
4. Vidal F., Johnston T.W., Laville S., Barthélemy O., Chaker M., Le Drogoff B., Margot J., Sabsabi M. Critical-point phase separation in laser ablation of conductors // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. P. 2573–2576.
5. Агранат М.Б., Андреев Н.Е., Ашитков С.И., Вейсман М.Е., Левашов П.Р., Овчинников А.В., Ситников Д.С., Фортгов В.Е., Хищенко К.В. Определение транспортных и оптических свойств неидеальной плазмы твердотельной плотности при фемтосекундном лазерном воздействии // Письма в ЖЭТФ. Т.85. Вып. 6. С. 328–333.
6. Colombier J.P., Combis P., Audouard E., Stoian R. Transient optical response of ultrafast nonequilibrium excited metals: effect of electron-electron contribution to collisional absorption // Phys. Rev. E. 2008. V. 77. P. 036409 (1–12).

РIS-МОДЕЛИРОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ ГОРЯЧИХ ЭЛЕКТРОНОВ ИЗ НЕОДНОРОДНОЙ ПЛАЗМЫ ПОД ВОЗДЕЙСТВИЕМ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ЛАЗЕРНОГО ИМПУЛЬСА

*Пугачев Л.П.^{1,2}, Левашов П.Р.^{1,2}, Андреев Н.Е.^{1,2}

¹Объединенный институт высоких температур РАН

²Московский физико-технический институт

*pugachev@ihed.ras.ru

При воздействии на твердотельную мишень предимпульса, которым обладают лазерные системы, основанные на технике усиления чирпированных импульсов, вещество ионизируется, образуя поверхностный слой плазмы. Под воздействием основного импульса электроны плазмы нагреваются. В настоящей работе численно исследуется зависимость спектра горячих электронов от размера неоднородности поверхностного слоя плазмы при воздействии на него основного лазерного импульса.

Ключевые слова: фемтосекундный лазерный импульс, твердотельная мишень, лазерно-плазменное взаимодействие, генерация горячих электронов, энергетические электронные спектры.

PIC MODELING OF HOT ELECTRONS GENERATION FROM INHOMOGENEOUS PLASMA UNDER THE ACTION OF FEMTOSECOND LASER PULSES

Pugachev L.P.^{1,2}, Levashov P.R.^{1,2}, Andreev N.E.^{1,2}

¹Joint Institute for High Temperatures RAS

²Moscow Institute of Physics and Technology (State University)

The irradiation of the prepulse of the laser system based upon the chirped-pulse amplification technique on the solid target causes the ionization of matter to form the surface plasma layer. Under the action of the main pulse plasma electrons are heated. In this paper the dependence of hot electron spectra on the initial scale length of plasma inhomogeneity created by the prepulse are investigated numerically.

Keywords: femtosecond laser pulse, solid target, laser-plasma interaction, hot electrons generation, electron energy spectra.

Введение. Лазерные системы, основанные на технике усиления чирпированных импульсов (CPA), которая в настоящее время является основной для получения импульсов наибольшей мощности, обладают предимпульсом. Обычно контраст, который в момент времени t определяется как отношение интенсивности предимпульса $I(t)$ к пиковой интенсивности основного лазерного импульса I_0 , в момент времени ~ 1 нс до основного лазерного импульса равен 10^{-6} . Для пиковых интенсивностей $I_0 \geq 10^{17}$ Вт/см² энергия, содержащаяся в наносекундном предимпульсе, является достаточной для образования плазмы на поверхности твердотельной мишени до прихода основного импульса. Далее основной лазерный импульс может использоваться для генерации горячих электронов из слоя плазмы, созданной предимпульсом на поверхности твердотельной мишени [1].

Подобные эксперименты с твердотельными металлическими мишенями проводятся в Институте тяжелых ионов (GSI) на лазерной установке PHELIX [2]. Получаемые таким образом электроны с энергией в несколько МэВ могут использоваться для генерации рентгеновского излучения, которое находит применение в диагностике лазерно-плазменных экспериментов, в медицине и других областях. Пучки электронов с такой энергией при условии моноэнергичности спектра и малой угловой расходимости могут использоваться в качестве инжекторов для радиочастотных и лазерно-плазменных ускорителей частиц. В настоящей работе численно исследуется зависимость спектра горячих электронов от размера неоднородности поверхностного слоя плазмы при воздействии на него основного лазерного импульса.

РЭС-моделирование. Для исследования генерации горячих электронов используется одномерное и трехмерное моделирование методом Particle-in-cell (PIC) [3, 4] с помощью кода VLPL [5]. В этом методе решается полная система уравнений Максвелла для электромагнитных полей:

$$\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = \nabla \times \vec{B} - \frac{4\pi}{c} \vec{j}, \quad (1)$$

$$\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = -\nabla \times \vec{E}, \quad (2)$$

и релятивистские уравнения движения частиц под действием силы Лоренца (каждая частица представляет некоторое множество электронов или протонов):

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = q\vec{E} - \frac{q}{c} \vec{v} \times \vec{B} - \vec{F}_{rad}, \quad (3)$$

$$y \frac{d\vec{r}}{dt} = \frac{\vec{p}}{mc\gamma}, \quad (4)$$

$$\gamma = \sqrt{1 + (p/mc)^2}. \quad (5)$$

Здесь \vec{E} и \vec{B} – векторы напряженности электрического поля и магнитной индукции, \vec{j} – вектор плотности электрического тока; \vec{r} , \vec{v} и \vec{p} – радиус-вектор, скорость и импульс частицы с массой m и зарядом q , \vec{F}_{rad} – сила реакции излучения, обусловленная излучением высокоэнергичных фотонов релятивистскими частицами, движущимися по криволинейным траекториям. \vec{F}_{rad} учитывает фотоны, длина волны которых не может быть разрешена на вычислительной сетке.

Постановка задачи и параметры моделирования. В работе моделируется генерация электронов из слоя плазмы на поверхности мишени под воздействием основного импульса и последующее распространение электронов вглубь мишени с целью изучения энергетических спектров электронов. Процесс образования слоя плазмы под воздействием предимпульса в работе не рассматривается. Принимается, что слой плазмы имеет неоднородный возрастающий профиль плотности. Импульс имеет гауссов временной профиль с длительностью (шириной на полувысоте) $\tau_{FWHM} = 70$ фс для поля и гауссов пространственный поперечный профиль с экспоненциальной полушириной $r_0 = 10$ мкм для поля.

Длина волны лазерного импульса $\lambda = 1$ мкм, безразмерная амплитуда $a_0 = \frac{eE}{m_e c \omega} = 1$, где e и m_e –

заряд и масса электрона, c – скорость света, ω – лазерная частота, что соответствует интенсивности $I \approx 1.37 \cdot 10^{18} a_0^2 / (\lambda[\text{мкм}])^2 = 1.37 \cdot 10^{18}$ Вт/см² и мощности $P \approx 21.5(a_0 r_0 / \lambda)^2 = 2150$ ГВт. Размер области моделирования вдоль оси x – 100 мкм, по осям y и z – 60 мкм. В начальный момент времени центр лазерного импульса находится в точке $x = 0$ мкм, $y = z = 30$ мкм.

Импульс линейно поляризован вдоль оси y и распространяется вдоль оси x перпендикулярно к поверхности твердотельной мишени с поверхностным слоем неоднородной плазмы. Плазма, образованная под воздействием предимпульса, в моделировании имеет линейный профиль плотности вдоль оси x , начинающийся в точке $x = 20$ мкм (область I на рис. 1) с размером неоднородности, принимающим

значения $l = 5, 20, 40$ мкм. Мишень имеет плотность $n = 10n_{cr}$, где $n_{cr} = \frac{m_e \omega^2}{4\pi e^2}$, и толщину $d = 20$ мкм вдоль оси x (область II на рис. 1). Плотность имеет однородный профиль вдоль осей y и z в трехмерном случае. Размер ячейки в трехмерном моделировании – 0.05 мкм по оси x , 0.5 мкм по осям y и z , в одномерном – 0.01 мкм. Число частиц на ячейку в трехмерном случае – 4, а в одномерном – 10.

Анализ энергетических спектров электронов в одномерном и трехмерном случаях проводится для трех моментов времени, соответствующих положению центра лазерного импульса при распространении в вакууме, в точке начала плазмы (1), на передней (2) и задней (3) поверхности мишени (пронумерованные кружки на рис. 1). В начальный момент времени плазма считается холодной.

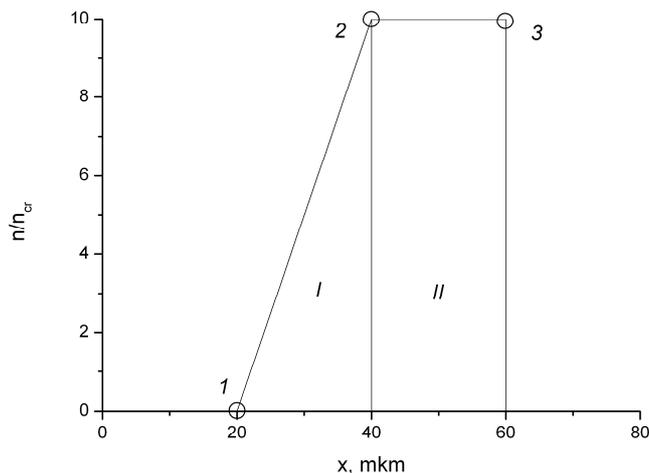


Рис. 1. Профиль плотности плазмы с размером неоднородности $l = 20$ мкм и мишени с толщиной $d = 20$ мкм вдоль оси x . Пронумерованными кружками изображены положения центра лазерного импульса, при распространении в вакууме, в моменты времени, для которых проводится анализ электронных энергетических спектров

Одномерное моделирование. При одномерном моделировании энергетические распределения электронов приблизительно максвелловские $\sim \exp(-E/T_h)$, где E – кинетическая энергия с температурами $T_h = 0.18, 0.24, 0.35$ МэВ для 5, 20 и 40 мкм соответственно, максимальная энергия горячих электронов увеличивается с размером неоднородности слоя плазмы и равна 1 МэВ для 5 мкм, 1.5 МэВ для 20 мкм и 2.5 МэВ для 40 мкм (рис. 2).

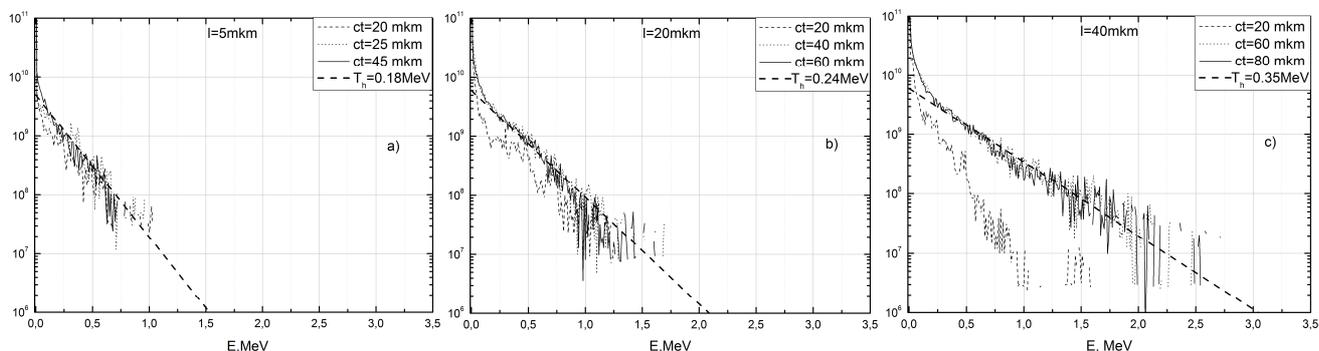


Рис. 2. Электронные энергетические спектры при одномерном моделировании (количество электронов, приходящееся на сечение λ^2 , с данной кинетической энергией) для размеров неоднородности: а) 5 мкм, б) 20 мкм и в) 40 мкм сверху вниз для трех моментов времени $t \cdot c$, где c – скорость света: 20 мкм – пунктир, 60 – точки, 80 мкм – сплошная линия. Прямой линией показана аппроксимирующая зависимость $\sim \exp(-E/T_h)$, где температура $T_h = 0.18, 0.24, 0.35$ МэВ для 5, 20 и 40 мкм, соответственно.

Трехмерное моделирование. При трехмерном моделировании энергетические распределения электронов приблизительно максвелловские $\sim \exp(-E/T_h)$ с температурами $T_h = 0.22, 0.31$ МэВ для 5 и 20 мкм соответственно. Для 40 мкм энергетическое распределение электронов до энергий ≤ 1.75 МэВ приблизительно максвелловское $\sim \exp(-E/T_{h1})$ с температурой $T_{h1} = 0.24$ МэВ, для энергий ≥ 1.75 МэВ – приблизительно максвелловское $\sim \exp(-E/T_{h2})$ с температурой $T_{h2} = 0.5$ МэВ. Максимальная энергия горячих электронов имеет большую величину в сравнении с одномерным случаем и равна 2.5 МэВ для 5 мкм и 3 МэВ для 20 и 40 мкм (рис. 3).

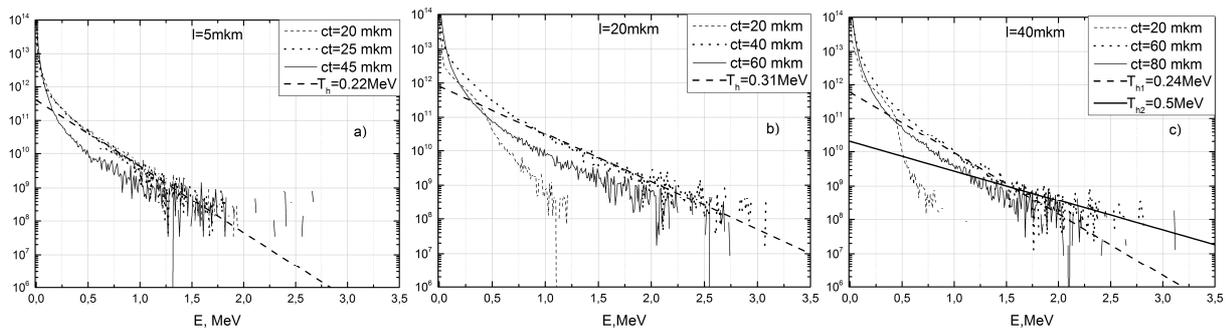


Рис. 3. Электронные энергетические спектры при трехмерном моделировании (количество электронов с данной кинетической энергией) для размеров неоднородности: а) 5 мкм, б) 20 мкм и в) 40 мкм сверху вниз для трех моментов времени $t \cdot c$, где c – скорость света: 20 мкм – пунктир, 60 – точки, 80 мкм – сплошная линия. Прямой линией показана аппроксимирующая зависимость $\sim \exp(-E / T_h)$, где температура $T_h = 0.22, 0.31$ МэВ для 5 и 20 мкм, соответственно. Для 40 мкм проведены две прямые линии, аппроксимирующие энергетическое распределение, $\sim \exp(-E / T_{h1})$ и $\sim \exp(-E / T_{h2})$, где $T_{h1} = 0.24$ и $T_{h2} = 0.5$ МэВ.

Заключение. Для релятивистских интенсивностей лазерного импульса ($a_0 \geq 1$) наиболее часто используется оценка температуры быстрых электронов, предложенная в работе [6], $T_h^W = mc^2((1 + a_0^2)^{1/2} - 1) = 0.21$ МэВ, что примерно соответствует температуре электронов при одномерном ($T_h = 0.18$ МэВ) и трехмерном моделировании ($T_h = 0.22$ МэВ) с наиболее коротким размером неоднородности $l = 5$ мкм. С увеличением размера неоднородности температура электронов возрастает и оказывается больше T_h^W . Энергетическое распределение электронов, полученное при трехмерном моделировании с $l = 40$ мкм, аппроксимируется двумя максвелловскими распределениями с температурами $T_{h1} = 0.24$ и $T_{h2} = 0.5$ МэВ для более горячей группы электронов.

При одномерном и трехмерном моделировании наблюдается возрастающая зависимость максимальной энергии горячих электронов от размера неоднородности плазмы, которая выражена слабее в трехмерном случае. Подобная закономерность для средней и максимальной энергий горячих электронов при безразмерных амплитудах лазерного импульса a_0 в диапазоне 2.7-27, размерах неоднородности слоя плазмы 1-15 мкм и плотности мишени $895n_{cr}$ получена при одномерном моделировании другими авторами [7]. Увеличение максимальной энергии объясняется тем, что электроны дольше взаимодействуют с электромагнитным полем лазерного импульса до его отражения от границы критической плотности при большем размере неоднородности.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Президента РФ № НШ-6614.2014.2 и проекта Министерства образования и науки РФ №3.522.2014/К.

Библиография

1. Zastrau U., Audebert P., Bernshtam V., Brambrink E., Kämpfer T., Kroupp E., Loetzsch R., Maron Y., Ralchenko Y., Reinholz H., Röpke G., Sengebusch A., Stambulchik E., Uschmann I., Weingarten L., Förster E. Temperature and $K\alpha$ -yield radial distributions in laser-produced solid-density plasmas imaged with ultrahigh-resolution x-ray spectroscopy // Physical Review E – Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics. 2010. V. 81. No 2. P. 026406.
2. Quinn M.N., Yuan X.H., Lin X.X., Carroll D.C., Tresca O., Gray R.J., Coury M., Li C., Li Y.T., Brenner C.M., Robinson A.P.L., Neely D., Zielbauer B., Aurand B., Fils J., Kühl T., McKenna P. On the investigation of fast electron beam filamentation in laser-irradiated solid targets using multi-MeV proton emission // Plasma Phys. Control Fusion. 2011. V. 53. N 12. P. 124012.
3. Бэдсел Ч., Ленгдон А. Физика плазмы и численное моделирование. М.: Энергоатомиздат, 1989. 456 с.
4. Хокни Р., Иствуд Дж. Численное моделирование методом частиц. М.: Мир, 1987. 640 с.
5. Pukhov A. Three-dimensional electromagnetic relativistic particle-in-cell code VLPL (virtual laser plasma lab) // Journal of Plasma Physics. 1999. V. 61. N 3. P. 425–433.
6. Wilks S.C., Krueer W.L., Tabak M., Langdon A.B. Absorption of ultra-intense laser pulses // Physical Review Letters. 1992. V. 69. No 9. P. 1383–1386.
7. Paradkar B.S., Wei M.S., Yabuuchi T., Stephens R.B., Haines M.G., Krashenninnikov S.I., Beg F.N. Numerical modeling of fast electron generation in the presence of preformed plasma in laser-matter interaction at relativistic intensities // Physical Review E – Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics. 2011. V. 83. N 4. P. 046401.

УДК 621.315.592

НАНОИМПУЛЬСНОЕ ЛАЗЕРНОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ НА ТВЕРДЫЕ РАСТВОРЫ $Cd_xHg_{1-x}Te$

Ивлев Г.Д.¹, *Гацкевич Е.И.², Дворецкий С.А.³, Михайлов Н.Н.³,
Власенко А.И.⁴, Гнатюк В.А.⁴, Велешук В.П.⁴

¹ Белорусский государственный университет

² Белорусский национальный технический университет

³ Институт физики полупроводников СО РАН

⁴ Институт физики полупроводников им. В.Е. Лашкарева НАН Украины

*gatskevich_elen@yahoo.com

Методом оптического зондирования исследовано воздействие импульсов излучения рубинового лазера длительностью 80 нс на эпитаксиальные слои твердого раствора $Cd_xHg_{1-x}Te$ на подложках GaAs. Оптическое зондирование проводилось с помощью лазера на стекле, активированном неодимом на длинах волн $\lambda_1=1,06$ и $\lambda_2=0,53$ мкм. Установлено, что в указанных режимах облучения плавление образцов начинается при плотности энергии в импульсе рубинового лазера ≈ 60 мДж/см², порог разрушения образцов соответствует ≈ 300 мДж/см². При превышении порога плавления динамика отражательной способности на λ_1 определяется интерференционными эффектами при отражении зондирующего излучения от системы, состоящей из жидкого и нагретого слоев $Cd_xHg_{1-x}Te$ и подложки. На λ_2 изменения в отражательной способности не зафиксированы.

Ключевые слова: оптическое зондирование, импульсное лазерное облучение, CdHgTe, отражательная способность.

NANOPULSED LASER ACTION ON $Cd_xHg_{1-x}Te$ SOLID SOLUTIONS

Ivlev G.D.¹, Gatskevich E.I.², Dvoretzky S.A.³, Mikhailov N.N.³,
Vlasenko A.I.⁴, Gnatyuk V.A.⁴, Veleschuk V.P.⁴

¹Belarusian State University

²Belarusian National Technical University

³Institute of Semiconductor Physics SB RAS

⁴V.E. Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics NAS of Ukraine

The action of 80 ns pulses of ruby laser radiation on epitaxial layers of $Cd_xHg_{1-x}Te$ solid solution on GaAs substrate has been studied by optical probing method. Time-resolved reflectivity measurements on wavelengths $\lambda_1=1,06$ and $\lambda_2=0,53\mu m$ were carried out by use of a Nd:Glass laser. It is shown that sample surface melting starts at ruby laser energy density ≈ 60 mJ/cm² in indicated regimes of laser irradiation, the breakdown threshold corresponds to ≈ 300 mJ/cm². At the exceeding of melting threshold, reflectivity dynamics at λ_1 is determined by interference effects under reflection of probing radiation from the system consisting of $Cd_xHg_{1-x}Te$ liquid and heated layers and substrate. The changes in reflectivity at λ_2 are not detected.

Keywords: optical probing, pulsed laser irradiation, CdHgTe, reflectivity.

Введение. Твердые растворы $Cd_xHg_{1-x}Te$ широко применяются в современной оптоэлектронике. Фотодиоды на основе $Cd_xHg_{1-x}Te$ используются в матричных фотоприемных устройствах среднего и дальнего инфракрасных диапазонов [1]. Для целей аэрокосмического зондирования важно, чтобы полосы fotocувствительности таких фотоприемников соответствовали окнам прозрачности земной атмосферы [2]. Изменением соотношения кадмия и ртути в исходном твердом растворе можно получить материалы с оптимальными свойствами для регистрации ИК-излучения в основных окнах прозрачности: диапазон 1–2,5 мкм при $x \approx 0,4$; 3–5 мкм при $x \approx 0,3$; 8–12 мкм при $x \approx 0,2$ [1]. Фотодетекторы на основе $Cd_xHg_{1-x}Te$ обладают большей стойкостью к проникающим излучениям по сравнению с детекторами на основе InAs и Si [1].

Для изменения и улучшения свойств полупроводниковых материалов широко используются различные методики отжига. Однако любые термические обработки, которые требуют нагрева до температур, сравнимых с температурой плавления, могут приводить к существенным изменениям в химическом составе, к перераспределению примесей и к другим нежелательным эффектам. Импульсная лазерная обработка поверхности полупроводников является хорошо обоснованным методом для локализации теплового воздействия и эффективным методом целенаправленного изменения физических свойств субмикронных поверхностных слоев полупроводниковых материалов.

В настоящей работе методом оптического зондирования исследованы лазерно-индуцированные процессы в слоях Cd_xHg_{1-x}Te на подложках GaAs. Образцы Cd_xHg_{1-x}Te выращивались методом молекулярно-лучевой эпитаксии [3]. Основные параметры образцов показаны в табл. 1. Твердые растворы Cd_xHg_{1-x}Te могут кристаллизоваться в диапазоне составов 0 < x < 1, при этом ширина запрещенной зоны E_g непрерывно меняется от -0,3 до 1,6 эВ. В области малых составов x < 0,3 (значений E_g < 0,3 эВ) эти материалы характеризуются непараболическим законом дисперсии [4].

Таблица 1

Параметры образцов Cd_xHg_{1-x}Te/GaAs

Номер образца	1	2
Материал подложки (ориентация)	GaAs(013)	GaAs(013)
Толщина буферного слоя ZnTe, мкм	0,05	0,05
Толщина буферного слоя CdTe, мкм	6,3	6,3
Толщина нижнего варизонного слоя, мкм	1,5	2,1
Толщина верхнего варизонного слоя, мкм	0,6	0,45
Толщина рабочего слоя Cd _x Hg _{1-x} Te, мкм	8,0	6,0
Состав рабочего слоя, x	0,220±0,002	0,300±0,005
Ширина запрещенной зоны, 300 К, эВ	0,163	0,287

Эксперимент. Образцы с рабочими слоями Cd_xHg_{1-x}Te облучались одиночными импульсами излучения рубинового лазера (λ=0,69 мкм, длительность импульса по полувысоте 80 нс) в диапазоне плотностей энергий E от 10 до 360 мДж/см². Оптическая схема лазера обеспечивала высокую однородность облучения. Неравномерность распределения энергии моноимпульса в пятне не превышала ± 5 %. Энергия облучения воспроизводилась от импульса к импульсу с отклонением не выше ± 1,5–2 %. Область лазерного воздействия составляла 2,5 мм в диаметре.

В эксперименте проводилась оптическая диагностика *in situ* лазерно-индуцированных теплофизических процессов путем детектирования отраженного от облучаемой зоны потока зондирующего излучения (ЗИ) [5]. В качестве источника ЗИ использовался лазер на стекле, активированном неодимом (длина волн λ₁ = 1,06 мкм). Часть излучения с помощью кристалла KDP преобразовывалась во вторую гармонику (λ₂ = 0,53 мкм). Зондирующий пучок р-поляризации (угол падения 40°) фокусировался в центр зоны лазерного нагрева в пятно размером ~ 1 мм. Интенсивность зондирующего пучка, падающего на образец, была на 5–6 порядков меньше интенсивности воздействующего излучения рубинового лазера; тем самым полностью исключался дополнительный нагрев образца.

Обсуждение результатов. Из осциллограмм отражения ЗИ на длине волны 1,06 мкм видно, что изменения содержания Cd x от 0,22 до 0,3 (или, соответственно, содержания Hg от 0,78 до 0,7) ведет к увеличению начального уровня отражательной способности R, но не влияет на характер изменений R вследствие лазерного воздействия (рисунок). При плотности энергии облучения E < 60 мДж/см², изменения R не наблюдаются для обеих длин волн. Увеличение E до 60 мДж/см² ведет к увеличению отражательной способности на λ₁ (рисунок «1» и «2»). Это значение E, вероятно, соответствует порогу лазерно-индуцированного плавления поверхности изучаемого твердого раствора.

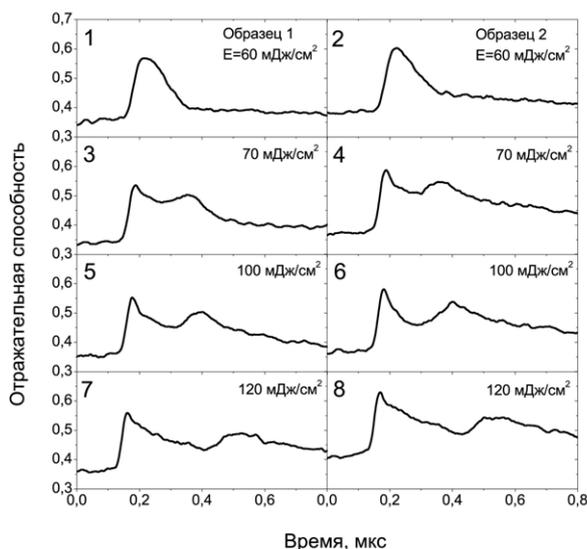


Рисунок. Динамика отражательной способности $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$ на длине волны 1,06 мкм при наносекундном лазерном облучении с указанными плотностями энергии

При возрастании E динамика отражательной способности аналогична наблюдаемой ранее в наших экспериментах с CdTe [6] и CdMnTe [7]. При $E=70$ мДж/см² мы наблюдаем резкое возрастание $R(t)$ до значений 0,55 для первого образца и 0,6 для второго образца (рисунок «3» и «4»). Затем отражательная способность плавно уменьшается до минимального значения, которое выше начального уровня R . После этого наблюдается возрастание R до значений слегка меньших, чем первый максимум. По мере остывания образца происходит плавное уменьшение R до первоначального уровня.

Дальнейшее возрастание E до 300 мДж/см² не изменяет динамику отражательной способности, но ведет к увеличению расстояния между пиками. Следует отметить, что в отличие от образцов CdTe и CdMnTe излучение с λ_1 попадает в область фундаментального поглощения для обоих образцов. По всей видимости, длительность между пиками соответствует времени существования жидкой фазы. Из измерений методом оптического зондирования следует, что времена существования расплава приблизительно равны для обоих образцов. Наблюдаемая динамика R может быть обусловлена интерференционными эффектами при отражении пробного пучка от многослойной системы, состоящей из жидкого слоя $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$, нагретого твердого слоя $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$ и многослойной подложки.

В отличие от прежних результатов измерений [6, 7] в данной экспериментальной ситуации не наблюдалось выраженной динамики $R(t)$ на λ_2 , что может быть объяснено слабым изменением оптических параметров $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$ на длине волны 0,53 мкм при переходе из кристаллического состояния в жидкое.

Превышение критической плотности энергии облучения ~ 300 мДж/см² ведет к разрушению поверхности образцов, что вызывает резкое падение отражения зондирующего пучка.

Заключение. Основные результаты по исследованию воздействия импульсов излучения рубинового лазера длительностью 80 нс на слои $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$ могут быть сформулированы следующим образом:

1. Порог плавления $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$ слоев с содержанием x от 0,22 до 0,3 соответствует ≈ 60 мДж/см²; порог разрушения поверхности ≈ 300 мДж/см².

2. Динамика $R(t)$ при превышении порога плавления в слоях $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$ на длине волны 1,06 мкм определяется интерференционными эффектами при отражении зондирующего излучения от системы, состоящей из жидкого и нагретого слоев $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$ и подложки.

3. Времена существования жидкой фазы приблизительно одинаковы для обоих типов образцов.

Работа выполнена при частичной поддержке БРФФИ (проект Ф13К-117) и ГФФИ Украины (проект № Ф 54.1/0.33).

Библиография

1. Стафеев В.И., Болтарь К.О., Бурлаков И.Д., Акимов В.М., Климанов Е.А., Сагинов Л.Д., Соляков В.Н., Мансветов Н.Г., Пономаренко В.П., Тимофеев А.А., Филачев А.М. Матричные фотоприемные устройства среднего и дальнего инфракрасных диапазонов спектра на основе фотодиодов из $Cd_xHg_{1-x}Te$ // ФТП. 2005. Т.39. Вып.10. С. 1257–1264.
2. Власенко А.И., Власенко З.К., Гнатюк В.А., Смирнов А.Б., Курило И.В., Рудый И.А., Ижнин И.И. Варизонные слои на основе твердых растворов $CdHgTe$ для двухполосных ИК-фоторезисторов // Технология и конструирование в электронной аппаратуре. 2001. № 9. С. 25–29.
3. Осадчий В.М., Сусяков А.О., Васильев В.В., Дворецкий С.А. Эффективное время жизни неосновных носителей заряда в МЛЭ-слоях $CdHgTe$ с переменным профилем состава по глубине // Автометрия. 1998. № 4. С. 71–77.
4. Баженов Н.Л., Шиляев А.В., Мынбаев К.Д., Зегря Г.Г. Оптические переходы в квантовых ямах на основе $Cd_xHg_{1-x}Te$ и их анализ с учетом особенностей зонной структуры // ФТП. 2012. Т. 46. Вып. 6. С. 792–797.
5. Ивлев Г.Д., Гацкевич Е.И. Оптико-пирометрическая диагностика состояния кремния при наноимпульсном лазерном облучении // ЖТФ. 2012. Т. 82. В. 6. С. 69–72.
6. Ivlev G.D., Gatskevich E.I., Zhvavyi S.P., Cerny R., Prikryl P., Chab V., Cibulka O. Phase transformation induced in CdTe single crystal by ruby laser pulsed irradiation // Proc. SPIE. 2004. V. 5449. P. 10–18.
7. Gatskevich E.I., Ivlev G.D., Rarenko A.I., Savchuk A.I., Strebegev V.N., Zakharuk Z.I. Modification of $Cd_{1-x}Mn_xTe$ crystal surface layers by nanopulsed laser irradiation // Appl. Surf. Sci. 2007. V. 254. P. 993–995.

**АНАЛИТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ КОЭФФИЦИЕНТОВ
ОТРАЖЕНИЯ И ПРЕЛОМЛЕНИЯ СВЕТА
ОТ МНОГОСЛОЙНЫХ ПЛОСКОПАРАЛЛЕЛЬНЫХ СИСТЕМ**

Шеманин В.Г.¹, Аткарская А.Б.², *Мкртычев О.В.²

¹*Новороссийский политехнический институт, филиал КубГТУ*

²*Филиал Белгородского государственного технологического университета им. В.Г. Шухова в г. Новороссийске*

*oleg214@ya.ru

Проведён теоретический анализ и компьютерное моделирование взаимодействия монохроматического излучения с системой плоскопараллельных слоёв. Проведено экспериментальное исследование оптических свойств тонкоплёночных покрытий на длине волны 632 нм, точнее, определение показателя преломления и толщин тонких плёнок по результатам теоретического рассмотрения.

Ключевые слова: оптика тонких плёнок, многослойные покрытия, преломления.

**THE ENERGY REFLECTING COEFFICIENTS AND REFRACTIVE INDEXES
AT MULTYLAYERS NANOSYSTEMS ANALYTICAL STUDIES**

Shemanin V.G.¹, Atkarskaya A.B.², Mkrtychev O.V.²

¹*KubSTU, Novorossiysk Polytechnic Institute*

²*V.G. Shukhov BSTU, Novorossiysk branch*

The theoretical analysis and computer simulation of the monochromatic laser radiation interaction with the nanofilms system have been fulfilled. These nanofilms optical properties at the 632,8 wave length were experimental studied. The nanofilms refractive index and thickness values have been determined by the theoretical treatment.

Keywords: nanofilms optics, multylayers cover, refractive index.

Задачи исследования. Проблемы взаимодействия излучения с плоскопараллельными слоями рассматривались многими авторами [1–9]. Существует огромное число способов определения оптических и геометрических параметров тонких плёнок [3–7, 9], многие из которых требуют довольно сложных вычислений, особенно при значительных нелинейных эффектах [4, 5]. Но часто достаточно иметь уравнения, необходимые для анализа экспериментальных результатов при нескольких полученных в ходе измерений значениях параметров. Соотношение между оптическими величинами и параметрами плёнки часто можно записать в математической форме [1, 6, 9]. Однако для окончательного анализа необходимы «рабочие» алгебраические выражения. Во многих работах приводятся наиболее полезные формулы (из огромного числа подобных формул), которые используются экспериментаторами [9]. Эти выражения зачастую зависят от метода определения оптических констант (спектрофотометрического, поляризационного, поляризационно-интерференционного). Многие формулы находятся в стандартных руководствах или учебных пособиях по оптике.

Результаты измерений оптических констант, как и сами эти константы, у плёнок во многих случаях очень критичны к условиям их изготовления. Серьёзные трудности представляет зачастую контроль большого числа параметров, влияющих на свойства плёнки. В связи с важностью применения в современных технологиях тонкоплёночных покрытий необходимо улучшать методы и способы исследований и измерений различных характеристик плёнок (среди них наиболее информативными является такая геометрическая характеристика плёнки, как её толщина, и такая оптическая характеристика, как показатель преломления вещества плёнки). В статье моделируется распространение монохроматической поляризованной волны в линейных изотропных средах без пространственной дисперсии. В экспериментах, проводимых авторами статьи, параметры плёнок определялись спектрофотометрическими методами, путём сравнения энергии падающей и отражённой волны и последующими вычислениями по хорошо известным формулам [1–3]. Изучалась угловая зависимость энергетических коэффициентов отражения и преломления лазерного излучения от слоёв оксидов кремния и титана, нанесённых на стеклянную подложку золь-гель-способом, при условии, что энергия падающего, отражённого и преломлённого излучения данной поляризации известна. Оптические и геометрические параметры плёнок и подложки

предполагались неизвестными. Эти параметры и требовалось найти по результатам экспериментов. Результаты натуральных и численных экспериментов сопоставлялись со значениями тех же параметров, полученных методами эллипсометрии и интерферометрии. В связи с этим встал вопрос о получении удобной для практического применения формулы для энергетических коэффициентов системы сред.

Результаты исследования. Рассмотрим взаимодействие волны со слоистой структурой, исходя из принципов геометрической оптики.

Примем границу раздела сред за координатную плоскость XU . За ось X возьмём линию пересечения плоскости раздела сред с плоскостью падения волны. Ось Z направим влево, т.е. в сторону второй среды. Будем считать далее, что падающая волна поляризована вдоль одной из главных составляющих, например, вдоль составляющей \perp , и опускать этот индекс в обозначениях.

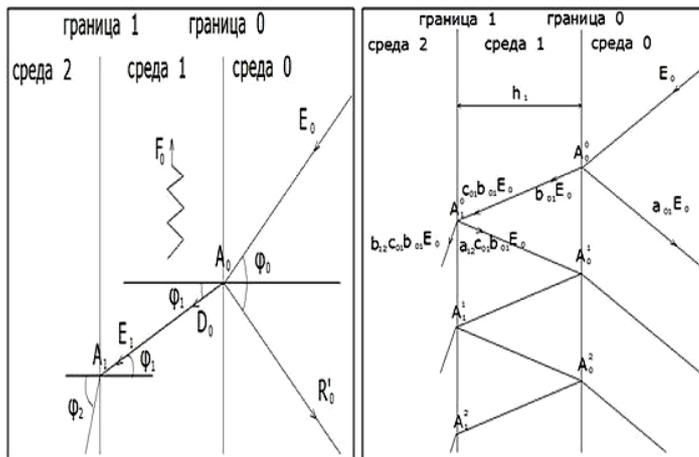


Рис. 1. Однократное (слева) и многократное (справа) прохождение света через границы трёх сред. E_0, R_0, D_0, F_0 – энергии падающей, отражённой, преломлённой и поглощённой волн

Обозначим a_{ij}, b_{ij}, c_{ij} – энергетические коэффициенты однократного отражения и преломления на границе i -й и j -й сред и энергетический коэффициент прохождения от i -й границы к j -й, соответственно. Например, для рис. 1 (слева) получатся выражения $a_{01} = R_0/E_0$, $b_{01} = D_0/E_0$, $c_1 = E_1/D_0$.

Если проследить значения энергий по всем точкам, то легко заметить, что они образуют бесконечные убывающие геометрические прогрессии с одинаковым множителем $q_{01} = a_{01} a_{12} c_{01} c_{10}$. Пренебрегая геометрическим различием точек, найдём сумму этих прогрессий и будем считать, что такой энергией обладает первая точка на каждой границе (рис. 2). Стягивающий коэффициент $k_{01} = 1/(1 - q_{01})$, который образуется в формуле суммы геометрической прогрессии, как бы стягивает многократные отрезки, проходимые световым лучом между границами, в первые точки на этих границах. Отметим, что значение этого коэффициента не зависит от направления падения первичного луча.

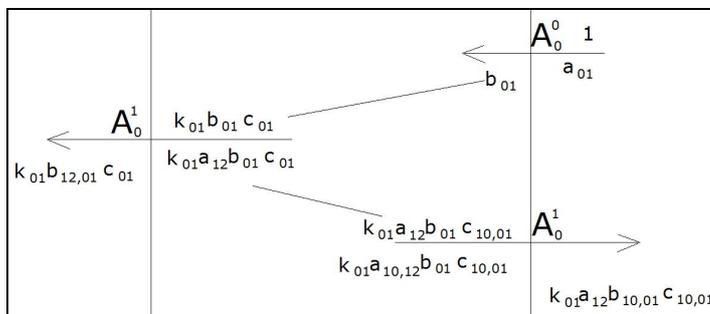


Рис. 2. Стягивание многократно отражённого и преломлённого луча к однократному отражению и преломлению в первых точках на каждой границе

Как видно, общая отражённая в начальную среду падения энергия равна (подстрочные индексы через запятую означают произведение соответственных коэффициентов: $b_{10,01} = b_{10} b_{01}$)

$$R_{0-2} = (a_{01} + k_{01} a_{12} b_{10,01} c_{10,01}) E_0$$

общая преломлённая в среду 2 энергия

$$D_{0-2} = k_{01} b_{12,01} c_{01} E_0$$

Применяя подобные рассуждения для большего количества сред, получим аналогичные выражения (с соответственной заменой индексов):

для четырёх сред –

$$\begin{aligned} R_{0-3} &= R_{0-2} + k_{02,12,01^2} a_{23} b_{10,21,12,01} c_{10,21,12,01} E_0 = \\ &= (a_{01} + k_{01} a_{12} b_{10,01} c_{10,01} + k_{02,12,01^2} a_{23} b_{10,21,12,01} c_{10,21,12,01}) E_0, \\ D_{0-3} &= k_{02,12,01} b_{23,12,01} c_{12,01} E_0, \end{aligned}$$

где $k_{12} = \frac{1}{1-q_{12}} = \frac{1}{1-a_{23,21} c_{21,12}}$, $q_{02/2} = k_{12,01} a_{10,23} b_{21,12} c_{10,21,12,01}$, $k_{02} = \frac{1}{1-q_{02/2}}$ (после косой черты в подстрочном индексе знаменателя прогрессии написано количество промежуточных слоёв, для которой вычисляется знаменатель);

для пяти сред –

$$\begin{aligned} R_{0-4} &= R_{0-3} + k_{03,02^2,23,12^2,01^2} a_{34} b_{10,21,32,23,12,01} c_{10,21,32,23,12,01} E_0, \\ D_{0-4} &= k_{03,23,02,12,01} b_{34,23,12,01} c_{23,12,01} E_0 \end{aligned}$$

где $q_{21/3} = k_{23,12} a_{21,34} b_{23,32} c_{23,12,21,32}$,

$$q_{20/3} = k_{23,02,12^2,01} a_{10,34} b_{23,12,21,32} c_{23,12,01,10,21,32}, \quad k_{03} = \frac{1}{1-(q_{21/3}+q_{20/3})}.$$

Для некоторых из этих выражений можно написать общую формулу (например, для стягивающих коэффициентов, для общей преломлённой энергии).

Данный алгоритм применим для нахождения выражения для энергетических коэффициентов в следующей модели: будем считать каждые два промежуточных слоя разделёнными слоем вакуума бесконечно тонкой толщины. Рекуррентная последовательность получится в следующем виде: её первые члены будут равны

$$\begin{cases} A_{01} = a_{01} + k_{01} a_{12} b_{01,10} c_{01,10}, \\ B_{01} = k_{01} b_{01,12} c_{01}, \end{cases}$$

рекуррентная формула примет вид

$$\begin{cases} A_{0n} = A_{0(n-1)} + k_{(n-1)n,n-(n-1)0} A_{(n-1)0} B_{(n-1)0,(n-1)}, \\ B_{0n} = k_{n-(n-1)0,(n-1)n} B_{(n-1)n,0(n-1)}, \end{cases}$$

где

$$\begin{cases} k_{(n-1)n,n-(n-1)0} = \frac{1}{1 - A_{(n-1)n,(n-1)0}}, \\ k_{n-(n-1)0,(n-1)n} = \frac{1}{1 - A_{(n-1)0,(n-1)n}}. \end{cases}$$

Рассмотрим ещё одну модель [1]: все слои считаем прозрачными. То есть, отражение от каждого слоя очень мало. Следовательно, можно пренебречь отражениями внутри промежуточных слоёв и считать, что энергия луча отражается только один раз от каждой границы. Введём следующие обозначения: энергия волны, падающей на границу раздела двух сред – E ; отражённая энергия – R ; преломлённая энергия – D ; поглощённая энергия – F ; точку на границе раздела i -ой и $(i+1)$ -й сред – A_i ; энергетический коэффициент однократного отражения на границе раздела i -й и j -й сред – a_{ij} ; энергетический коэффициент однократного преломления на границе раздела i -й и j -й сред – b_{ij} ; энергетический коэффициент однократного поглощения в i -й среде – c_i . Штрихами отметим волны, идущие в обратном направлении. Для случая падения волны из одной среды в другую (рис. 1, слева) получим формулы вида $a_{01} = R'_0/E_0$, $b_{01} = D_0/E_0$, $c_1 = F_0/E_0$.

В таких обозначениях общая отражённая в нулевую среду и преломлённая во вторую среду энергии будут равны

$$R'_{0-2} = (a_{01} + f_1 b_{10} g_{12} d_{01}) E_0.$$

$$D_{0-2} = f_1 b_{12} d_{01} E_0,$$

где $d_{01} = d_{01} - c_1$, $g_{12} = a_{12} - c_1$, $g_{10} = a_{10} - c_1$, $f_1 = 1/(1 - g_{10,12})$.

В этом случае получаются следующие выражения для энергетических коэффициентов отражения и преломления при прохождении лучом света произвольного количества сред в плоскопараллельной системе в компактной форме:

$$A_{0-n} = a_{01} + f_1 b_{10} g_{12} d_{01} + b_{10} \sum_{i=2}^{n-1} [g_{i+1,i+2} \prod_{k=1}^{i+1} (f_k d_{k-1,k}) \prod_{j=1}^i (f'_j d_{j+1,j})],$$

$$B_{0-n} = b_{n-1,n} \prod_{i=1}^{n-1} (f_i d_{i-1,i}).$$

Обсуждение результатов. Модель однородных слоёв хорошо исследована в оптике тонкослойных покрытий [3–10]. Все работы практически ограничиваются рассмотрением изотропных систем. Обычно для расчётов используются либо матричные методы, либо рекуррентные формулы. Однако модель однородных изотропных слоёв представляет интерес и при изучении неоднородных слоёв, которые заменяются системой однородных, и при изучении однородных плёнок на поверхностях, имеющих собственные переходные слои.

Определение характеристик многослойных структур, в общем случае неоднородных, проводится многими методами. Рассмотрим для примера два эллипсометрических метода [6–9] описания взаимодействия волны, падающей на многослойную структуру, методы Скандоне-Баллерини и Абеде (формулы справедливы для обеих компонент излучения: и для p -, и для s -компоненты).

Формулы для вычислений по первому методу приводятся к виду

$$R_{j,0} = \frac{r_{j+1,j} + R_{j-1,0} e^{-2i\delta_j}}{1 + r_{j+1,j} R_{j-1,0} e^{-2i\delta_j}},$$

где $r_{j+1,j}$ – коэффициенты Френеля для границы верхняя среда – j -ый слой; $R_{j-1,0}$ – обобщённые коэффициенты Френеля, описывающие целиком всю систему, лежащую ниже ($j-1$)-й границы; δ_j – фазовая толщина слоя:

$$\delta_j = \frac{2\pi}{\lambda} N_j d_j \cos \varphi_j,$$

где λ – длина волны в вакууме; N_j , d_j , φ_j – показатель преломления, геометрическая толщина и угол преломления для j -го слоя (индекс j относится и к слою, и к его границе сверху).

Формулы для вычислений по второму методу имеют вид

$$R_{j,0} = \pm \frac{U_{j+1} - Y_j}{U_{j+1} + Y_j},$$

где «плюс» берётся для p -компоненты и «минус» – для s -компоненты, а Y_j вычисляется по рекуррентности

$$Y_j = U_j \frac{Y_{j-1} + Y_j i \operatorname{tg} \delta_j}{U_j + Y_{j-1} i \operatorname{tg} \delta_j},$$

где Y_j – адмиттансы (поверхностные проводимости) верхней границы системы, рассматриваемой как целое, а U_j – поверхностные адмиттансы полубесконечной среды с показателем преломления N_j для угла преломления φ_j

$$U_j^p = \frac{N_j}{\cos \varphi_j} \quad U_j^s = N_j \cos \varphi_j.$$

Оба метода выведены строгим применением уравнений Максвелла и дают одинаковые численные результаты.

Приведём алгоритм вычислений для одного из этих методов [6]: нумерация слоёв вводится следующим образом: свет падает из $(m+1)$ -й среды, проходит через m слоёв (т.е. через $(m+1)$ границу) последовательно с номерами m , $m-1$, ..., 2, 1 и попадает в подложку с показателем N_0 . Угол преломления в i -й среде обозначается φ_i .

Отражение от системы, содержащей m слоёв, можно описать отношением обобщённых коэффициентов Френеля $R_{p,m+1}$, $R_{s,m+1}$.

Величины R_{m+1} (с соответствующими индексами) определяются через величины r_{m+1} и r_m по формуле

$$R_{m+1} = \frac{r_{m+1} + r_m e^{-4i \frac{\pi}{\lambda_0} d_m N_m \cos \varphi_m}}{1 + r_{m+1} r_m e^{-4i \frac{\pi}{\lambda_0} d_m N_m \cos \varphi_m}},$$

где

$$r_1 = \frac{g_1 - g_0}{g_1 + g_0} \equiv \frac{z}{M_1},$$

$$r_2 = \frac{(g_2 - g_1)M_1 e^{\beta_1 d_1} + (g_2 + g_1)z_1 e^{-\beta_1 d_1}}{(g_2 + g_1)M_1 e^{\beta_1 d_1} + (g_2 - g_1)z_1 e^{-\beta_1 d_1}} \equiv \frac{z_2}{M_2},$$

$$\dots\dots\dots$$

$$r_m \equiv \frac{z_m}{M_m},$$

$$r_{m+1} = \frac{(g_{m+1} - g_m)M_m e^{\beta_m d_m} + (g_{m+1} + g_m)z_m e^{-\beta_m d_m}}{(g_{m+1} + g_m)M_m e^{\beta_m d_m} + (g_{m+1} - g_m)z_m e^{-\beta_m d_m}}.$$

Здесь использованы обозначения:

$$g_m = \begin{cases} N_m \cos \varphi_m & \text{для } s \text{ - поляризаций,} \\ \frac{\cos \varphi_m}{N_m} & \text{для } p \text{ - поляризаций,} \end{cases}$$

$$\beta_m = 2i \frac{\pi}{\lambda_0} d_m N_m \cos \varphi_m,$$

где комплексные (в общем случае) показатели преломления N_m определяются из обобщённого закона Снеллиуса:

$$N_m \sin \varphi_m = N_{m-1} \sin \varphi_{m-1}.$$

Поскольку N_m комплексная величина ($N_m = n_m - ik_m$), углы φ_m , определяемые по закону Снеллиуса, тоже являются комплексными и сохраняют лишь формальный смысл.

По данному алгоритму было проведено компьютерное моделирование с использованием пакета MatLab. Результаты численного эксперимента и их сравнение с результатами натурального эксперимента представлены на рис. 3.

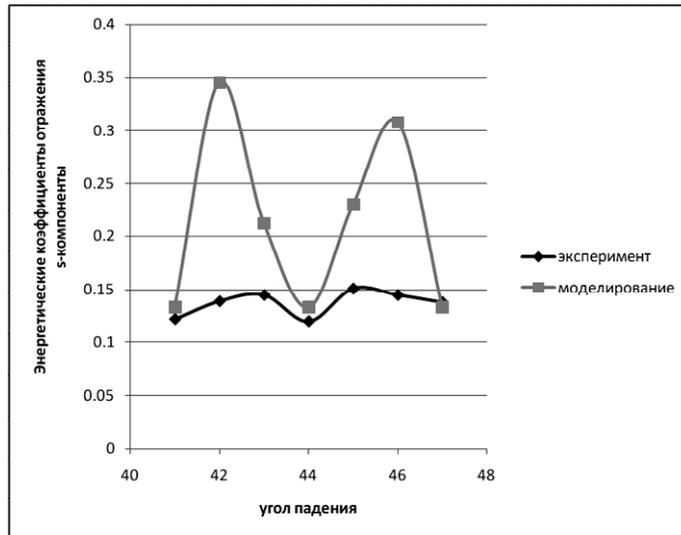


Рис. 3. Энергетические коэффициенты для s -компоненты отражённой волны при прохождении ею плоскопараллельной системы 5 сред: воздух – диоксид кремния – стекло – диоксид кремния – воздух

Также были проведены экспериментальные исследования энергетических коэффициентов при взаимодействии лазерного излучения с образцом. Образец представлял из себя стеклянную подложку, на которую была нанесена тонкая плёнка кремнезёма с обеих сторон. В экспериментах исследования проводились на образцах с разной толщиной осаждённой плёнки. Толщина плёнки, измеренная независимыми методами, колеблется в пределах от 20 до 200 нм, и зависит от технологических условий образования. Результаты измерения энергетического коэффициента отражения показаны на рис. 3.

Выводы. Результаты компьютерного моделирования просчитаны для s -компоненты и представлены на рис. 3 верхней кривой. Они соотносятся с результатами экспериментов для однослойного образца, представленными на рис. 3 нижней кривой.

Сравнение результатов компьютерного моделирования с экспериментальными значениями, полученными при взаимодействии лазерного излучения с системой плоскопараллельных сред, показывает

хорошее качественное совпадение рассматриваемых теоретических моделей. В то же время говорить о количественном совпадении результатов вычислений и эксперимента нельзя. Различие рассчитанных по формулам значений энергетических коэффициентов и полученных в ходе эксперимента значительно, что вполне ожидаемо. Во всех исследованиях слои представляются в виде идеально однородных сред с абсолютно гладкими границами. Но в действительности, каждая среда имеет многочисленные дефекты. Кроме того, граница между средами является шероховатой поверхностью, не говоря уже о возможных физико-химических отличиях граничного слоя, которые могут варьироваться в зависимости от материалов двух соседних слоёв и технологических способов их нанесения [2]. Поэтому каждую границу между двумя соседними средами в теоретических выкладках лучше моделировать как новую среду, с неизвестными оптическими параметрами. В этом случае рассматриваемый в статье пример взаимодействия с 5 средами превратится во взаимодействие излучения с 9 средами. При этом параметры 4 из них (показатели преломления, поглощения и толщины) будут заведомо неизвестны. Варьируя значения этих параметров, можно добиться лучшего количественного совпадения.

Библиография

1. Мкртычев О.В. Аналитическое исследование энергетических коэффициентов отражения и преломления света // Известия вузов. Северо-Кавказский регион. Естественные науки. 2012. № 4. С. 36–37.
2. Шеманин В.Г., Аткарская А.Б., Мкртычев О.В. Изменение показателя преломления нанопленок при модификации их поверхности // Известия вузов. Физика. 2012. № 8/2. С. 238–239.
3. Биленко Д.И., Сагайдачный А.А., Галушка В.В., Полянская В.П. Определение оптических свойств и толщины нанослоев по угловым зависимостям коэффициента отражения // ЖТФ. 2010. Т. 80. Вып. 10. С. 89–94.
4. Хевенс О.С. Измерение оптических констант тонких плёнок // Физика тонких пленок / под ред. Г. Хасса и Р.Э. Туна. Т. 2. М.: Мир, 1967. С. 136–185.
5. Хомченко А.В. Нелинейность оптических свойств тонких пленок при низкой интенсивности света // ЖТФ. 2000. Т. 70. Вып. 12. С. 124–143.
6. Ржанов А.В. Эллипсометрия – метод исследования поверхности // Новосибирск: СО РАН СССР. Наука, 1983. 182 с.
7. Горшков М.М. Эллипсометрия. М.: Сов.радио, 1974. 200 с.
8. Аззам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет. М.: Мир, 1981. 584 с.
9. Scandone F., Ballerini L. Studio delle proprieta ottiche delle lamine metalliche sottili // Nuovo Chimento. 1946. V. 3. N 2. P. 81–115.
10. Кадрик К.А., Мкртычев О.В. К динамике и кинематике энергетического взаимодействия с системой плоскопараллельных или концентрических сред // Вестник Белгородского государственного технологического университета им. В.Г. Шухова. 2014. № 1. С. 238–242.

ДИСПЕРСИОННОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ АТОМОВ ИНЕРТНЫХ ГАЗОВ

Кяров А.Х., *Савинцев А.П.

Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х.М. Бербекова

*pnr@kbsu.ru

В рамках теории функционала плотности получены выражения для определения Ван-дер-Ваальсовских констант атомов инертных газов. Расчет флуктуационных моментов осуществлен с использованием вариационной процедуры.

Ключевые слова: теория функционала плотности, силы Ван-дер-Ваальса, флуктуация, вариационный параметр, атом, инертный газ.

DISPERSION INTERACTION OF ATOMS INERT GASES

Kyarov A.Kh., Savintsev A.P.

Kabardino-Balkarian State University

Within the theory of inhomogeneous electron gas model is considered for the calculation of static quadrupole and octupole polarizabilities of rare gas atoms. The analysis confirms the high accuracy of the new model. Highlighted as one of its main advantages – simplicity and physical transparency, and lack of computational problems.

Keywords: density functional theory, Van der Waals forces, fluctuation, variational parameter, atom, inert gas.

Теория функционала плотности дает возможность теоретического обоснования приближенных методов в исследовании межатомных взаимодействий в молекулах [1, 2], интерметаллических соединений и хемосорбции [3]. Несмотря на наличие широкого круга приближенных методов расчета характеристик атомов и ионов, позволяющих получать значения параметров с достаточно высокой точностью, статистическая модель продолжает развиваться и использоваться во многих приложениях. Метод функционала плотности широко используется для расчета рентгеновских термов, атомных формфакторов, плотности электронов, ионизационного равновесия, поведения атомов и ионов во внешних электрическом и магнитном полях и т.д.

Общие вопросы теории функционала плотности и, в частности, метода Томаса-Ферми, представлены в монографиях [3–5].

Рассмотрим два или несколько электрически нейтральных тел, находящихся в основном или статистически равновесном состоянии. Это могут быть атомы, молекулы, малые частицы конденсированной фазы. Предположим, что данные тела не обладают постоянными электрическими моментами, во всяком случае, когда тела изолированы друг от друга. При сближении на каждое из тел будет действовать со стороны других сила электромагнитного происхождения. Силы такого рода называют силами Ван-дер-Ваальса. Эти силы при выполнении сделанных предположений доминируют на сравнительно больших расстояниях, когда перекрытием волновых функций можно пренебречь.

Ван-дер-Ваальсово взаимодействие между макроскопическими телами допускает непосредственное экспериментальное изучение. Сведения же о силах между отдельными атомами и молекулами получают по их косвенным проявлениям в различных физических процессах и эффектах. В некоторых задачах Ван-дер-Ваальсовы силы целиком определяют характер рассматриваемых эффектов. В большинстве случаев, однако, силы Ван-дер-Ваальса проявляются совместно с другими взаимодействиями. В молекулярных газах и жидкостях, жидких кристаллах и твердых телах Ван-дер-Ваальсовы силы представляют лишь часть межмолекулярного взаимодействия. Так, например, коэффициенты переноса и вириальные коэффициенты для инертных газов, энергия связи и другие свойства димеров и кристаллов инертных атомов обусловлены в основном совместным действием Ван-дер-Ваальсова притяжения и сил отталкивания обменного происхождения.

Квантовая природа межмолекулярного взаимодействия связана в первую очередь с квантовым характером поведения электронной подсистемы атомов и молекул [6]. Так, например, согласно квантовой

механике, дипольный момент атома в основном состоянии испытывает квантовые флуктуации, хотя среднее значение дипольного момента при этом равно нулю, но, например, среднее значение для квадрата дипольного момента уже не равно нулю. Учет этого обстоятельства приводит к новому, имеющему флуктуационное происхождение механизму возникновения Ван-дер-Ваальсова взаимодействия – к так называемым диполь-дипольным дисперсионным силам. Взаимодействие между невозбужденными инертными атомами на далеких расстояниях целиком обусловлено дисперсионными силами.

Для статического случая расчет дисперсионных сил сводится к следующему. При попадании атома во внешнее электрическое поле его электронная оболочка деформируется, а уровни энергии изменяются, причем смещение уровней энергии определяется соответствующими матричными элементами возмущения:

$$V = -\vec{d}\vec{\varepsilon} = -\varepsilon d_z. \quad (1)$$

Диагональные матричные элементы дипольного момента равны нулю, и поэтому расщепление уровней в электрическом поле является эффектом второго порядка по полю. Смещение ΔE_n уровня E_n выражается формулой:

$$\Delta E_n = -\frac{1}{2} \alpha_{ij}^{(n)} \varepsilon_i \varepsilon_j, \quad (2)$$

где тензор $\alpha_{ij}^{(n)}$ представляет собой поляризуемость атома во внешнем электрическом поле.

Рассмотрим две нейтральные системы, находящиеся на расстоянии, существенно превышающем размеры системы. Энергия взаимодействия:

$$U = \frac{\langle \vec{d}_1 \rangle \langle \vec{d}_2 \rangle - 3 \langle \vec{d}_1 \rangle \vec{n} \langle \vec{d}_2 \rangle \vec{n}}{R^3}, \quad (3)$$

где $\langle \vec{d}_i(\vec{r}, t) \rangle$ – средние дипольные моменты системы (или атомов) 1 и 2, находящихся в момент t в точках \vec{r}_1 и \vec{r}_2 , соответственно:

$$\vec{R} = \vec{r}_1 - \vec{r}_2, \quad \vec{n} = \frac{\vec{R}}{R}. \quad (4)$$

Под средним понимается результат квантово-механического и статистического усреднения.

Рассмотрим случай, когда ни у одного из атомов нет среднего дипольного момента. В этом случае взаимодействие осуществляется за счет флуктуаций.

Пусть в системе 1 спонтанно возник флуктуационный момент, создающий электромагнитное поле. Это вызовет во втором атоме индуцированный дипольный момент:

$$\vec{d}_2^{ind}(\vec{r}_2, t) = \hat{\alpha}_2 \vec{E}_1(\vec{r}_2, t), \quad (5)$$

где $\hat{\alpha}_2$ – диполь-дипольная поляризуемость системы 2, являющаяся при учете частотной дисперсии интегральным оператором, то есть:

$$d_{2,i}^{ind}(\vec{r}_2, t) = \int_{-\infty}^t dt' \alpha_{2,ik}(t-t') E_{1,k}(\vec{r}_2, t'). \quad (6)$$

Поле

$$\vec{E}_1(\vec{r}_2, t) = \frac{3\vec{n}(\vec{d}_1^{sp}(\vec{r}_1, t)\vec{n}) - \vec{d}_1^{sp}(\vec{r}_1, t)}{R^3} \quad (7)$$

есть электрическое поле, создаваемое флуктуационным дипольным моментом первого атома в месте нахождения второго.

Усредненное взаимодействие флуктуационного диполя одного атома с индуцированным им диполем в другом и обуславливает дисперсионное диполь-дипольное взаимодействие между атомами.

Энергия взаимодействия:

$$U(R) = \delta \left[-\frac{1}{2} \langle \vec{d}_2(\vec{r}_2, t) \vec{E}(\vec{r}_2, t) \rangle \right], \quad (8)$$

где $\vec{d}_2(\vec{r}_2, t)$ – полный флуктуационный дипольный момент второго атома с учетом как спонтанных, так и индуцированных первым атомом флуктуационных слагаемых. Поле $\vec{E}(\vec{r}_2, t)$ – есть полное флуктуационное электрическое поле в месте нахождения второго атома. Знак вариации в (8) означает, что из вы-

ражения в квадратных скобках следует вычесть его значение, получающееся при устремлении к бесконечности расстояния между атомами. Тем самым исключается энергия самодействия, не имеющая отношения к взаимодействию.

Энергия мультипольного Ван-дер-Ваальсова взаимодействия:

$$U = \delta \left(-\frac{1}{2} \langle \vec{d}_2(t) \vec{E}(\vec{r}_2, t) \rangle - \frac{1}{6} \langle Q_{2,lj}(t) \nabla_j E_l(\vec{r}_2, t) \rangle - \frac{1}{30} \langle L_{2,ljm}(t) \nabla_j \nabla_m E_l(\vec{r}_2, t) \rangle \right). \quad (9)$$

Сферическая симметрия накладывает существенные ограничения на число независимых компонент и тензорную структуру мультипольных поляризуемостей, определенных в системе координат с началом в центре симметрии. В частности, для электрических мультипольных поляризуемостей имеем:

$$\alpha_{ik,lj}^{(2,2)}(\omega) = \frac{1}{12} \alpha^{(2)}(\omega) \left(\delta_{il} \delta_{kj} + \delta_{ij} \delta_{kl} - \frac{2}{3} \delta_{ik} \delta_{jl} \right), \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \alpha_{ljm,pkn}^{(3,3)}(\omega) = \frac{1}{540} [& [(\delta_{pl} \delta_{kj} \delta_{nm} + \delta_{pl} \delta_{km} \delta_{nj} + \delta_{pj} \delta_{ki} \delta_{nm} + \delta_{pj} \delta_{km} \delta_{nl} + \delta_{pm} \delta_{kl} \delta_{nj} + \delta_{pm} \delta_{kj} \delta_{nl})] - \\ & - \frac{2}{5} (\delta_{pk} \delta_{lj} \delta_{nm} + \delta_{pk} \delta_{mj} \delta_{nl} + \delta_{lj} \delta_{km} \delta_{pn} + \delta_{lm} \delta_{jk} \delta_{pn} + \delta_{pk} \delta_{lm} \delta_{nj} + \\ & + \delta_{mj} \delta_{kl} \delta_{pn} + \delta_{lj} \delta_{mp} \delta_{kn} + \delta_{lm} \delta_{pj} \delta_{kn} + \delta_{mj} \delta_{pl} \delta_{kn})], \quad (11) \end{aligned}$$

$$\alpha_{i,lj}^{(1,2)}(\omega) = \alpha_{lj,i}^{(2,1)}(\omega) = \alpha_{i,ljm}^{(1,3)}(\omega) = \alpha_{ljm,i}^{(3,1)}(\omega) = \alpha_{ljm,ik}^{(3,2)}(\omega) = \alpha_{ik,ljm}^{(2,3)}(\omega) = 0. \quad (12)$$

Из формулы (12) следует, что в сферически симметричных телах равновесные флуктуации дипольного момента не коррелированы с флуктуациями квадрупольного и октупольного моментов. Не коррелируют в этом случае также флуктуации квадрупольного и октупольного моментов.

В результате можно найти, что энергия Ван-дер-Ваальсова взаимодействия в рассматриваемом приближении имеет вид:

$$U = U_{d-d} + U_{d-Q} + U_{Q-Q} + U_{d-L}. \quad (13)$$

Величина U_{d-d} – энергия диполь-дипольного Ван-дер-Ваальсова взаимодействия. Второе слагаемое в (13) представляет энергию диполь-квадрупольного Ван-дер-Ваальсова взаимодействия. Последние два слагаемых – квадруполь-квадрупольное и диполь-октупольное взаимодействие, соответственно.

Существенным недостатком стандартных статистических моделей являются нефизические бесконечности, возникающие в окрестности ядра. Результатом этой особенности является систематическое занижение полной энергии атомов и ионов.

В ряде случаев одночастичное приближение для вычисления поляризуемости оказывается недостаточным вследствие важности многочастичных эффектов. Это имеет место, например, для атомов с заполненными оболочками. Здесь необходимо использовать методы многочастичной теории возмущений. Поляризуемости атомов благородных газов в приближении случайных фаз с обменом были рассчитаны в [7]. Показано, что без учета многочастичных корреляций формы координаты и формы импульса в определении гамильтониана взаимодействия дает различные результаты для поляризуемости. В приближении случайных фаз оба подхода дают практически совпадающие значения, причем весьма близкие к экспериментальным данным. Было также установлено, что определяющий вклад в поляризуемость атомов благородных газов дают виртуальные переходы из внешней оболочки в d-состояния непрерывного спектра. Вклад переходов в дискретный спектр составляет 10–20 %.

В свете этих недостатков становится очевидным необходимость использования электронных распределений, учитывающих оболочечную структуру атома, таких, как Хартри-Фоковские электронные плотности.

Далее рассмотрим Ван-Дер-Ваальсовскую константу C_6 в теории функционала электронной плотности.

Существует значительное количество моделей для определения дисперсионных констант. Условно их можно разделить на два класса: квантово-механические и статистические.

Первый из них достаточно сложен для расчетов, хотя для легких атомов здесь получены в разных приближениях достаточно хорошие результаты целым рядом авторов [6].

Успехи в определении дисперсионной константы C_6 в рамках статистических подходов гораздо скромнее. Основные проблемы здесь можно разделить на три основных:

1. Некорректность статистического подхода для легких атомов.
2. Неучет особенностей поведения электронного распределения различных атомов.
3. Некорректность в описании возмущенной электронной плотности атома (иона) во внешнем поле.

Поэтому актуальным является создание такой модели расчетов дисперсионных констант, в которой в той или иной мере описанные выше недостатки будут учтены или устранены полностью.

Основные предположения новой модели сводятся к следующему:

1. Корреляционные функции, описывающие временные корреляции спонтанных флуктуаций компонент электрических моментов любой мультипольности, в каждом из атомов равны нулю.

2. Возникновение флуктуационных электрических моментов любой мультипольности обусловлено флуктуацией электронной плотности атома, среднее значение от которой имеет соответствующий данной мультипольности вид, дающий отличный от нуля соответствующий момент и сохраняющий условие нормировки.

При этом энергия диполь-дипольного взаимодействия:

$$U^{d-d} = -\frac{1}{2} \langle d_m E_m \rangle, \quad (14)$$

где d_m – полный флуктуационный момент второй системы (или атома) с учетом как спонтанных, так и индуцированных первой системой флуктуационных слагаемых. E_m – есть полное флуктуационное электрическое поле в месте нахождения второй системы (атома).

После усреднения для диполь-дипольной дисперсионной константы для гетероатомной пары атомов получим:

$$C_6^{d-d} = \frac{2}{9} (\alpha_2 \lambda_1^2 \langle r_1 \rangle^2 + \alpha_1 \lambda_2^2 \langle r_2 \rangle^2). \quad (15)$$

Для гомоатомной пары, соответственно:

$$C_6^{d-d} = \frac{4}{9} \alpha \lambda^2 \langle r \rangle^2. \quad (16)$$

Для определения дисперсионной константы C_6 необходимо знать значения дипольной поляризуемости. Основной проблемой, таким образом, остается вычисление вариационных параметров. В данном случае необходимо получение формул для определения параметра λ .

Для решения поставленной задачи в рамках метода функционала плотности выберем энергию в виде:

$$E[\rho(r)] = U_{en} + U_{ee} + T_{kin} + T_W + U_{exc} + U_{corr}, \quad (17)$$

где первое слагаемое – энергия электрон-ядерного взаимодействия, второе – энергия электрон-электронного взаимодействия. T_{kin} – кинетическая энергия электронного газа в локальном приближении, T_W – градиентная поправка к кинетической энергии в приближении Киржница [8]. U_{exc} – обменная поправка, U_{corr} – корреляционная поправка в локальном приближении.

Общая схема вычисления вариационных параметров такова. При изменении электронной плотности в атоме изменение его энергии:

$$\delta E = E[\rho_0(r) + \delta\rho(r)] - E[\rho_0(r)]. \quad (18)$$

Считая вариационный параметр (например, дипольный λ) малым ($\lambda \ll 1$), изменение энергии (18) можно представить в виде:

$$\delta E = \lambda E_1 + \lambda^2 E_2. \quad (19)$$

В этой формуле (по сравнению с (18)) отброшены слагаемые, содержащие более высокие степени λ . Условие минимума энергии

$$\frac{\delta E}{\delta \lambda} = 0 \quad (20)$$

позволяет определить вариационный параметр в виде:

$$\lambda = -\frac{E_1}{4E_2}. \quad (21)$$

Рассмотрим дипольный вариационный параметр λ . Выпишем отдельные вклады:

$$\delta U_{en} = -\frac{\lambda Z}{2} \int \frac{D(r)}{r} dr, \quad (22)$$

где

$$D(r) = 4\pi r^2 \rho(r). \quad (23)$$

Остальные вклады:

$$\delta T_W = \frac{\lambda}{144} \int \frac{D'^2}{D} dr + \frac{\lambda^2}{108} \int \frac{D(r)}{r^2} dr, \quad (24)$$

$$\delta T_{kin} = \frac{5\chi_k \lambda}{(4\pi)^{2/3}} \left(\frac{1}{6} + \frac{\lambda}{27} \right) \int \frac{D^{5/3}}{r^{4/3}} dr, \quad (25)$$

$$\delta U_{exc} = -\frac{2\chi_e \lambda}{3(4\pi)^{1/3}} \left(1 + \frac{\lambda}{9} \right) \int \frac{D^{4/3}}{r^{2/3}} dr, \quad (26)$$

$$\delta U_{corr} = u_1 + u_2, \quad (27)$$

$$u_1 = -0.0094\lambda \int D(r) dr \left(\rho^{1/3} \frac{4a + 3\rho^{1/3}}{(a + \rho^{1/3})^2} \right), \quad (28)$$

$$u_2 = -0.00052\lambda^2 \int D(r) dr \left(\rho^{1/3} \frac{8a^2 + 4a\rho^{1/3} - 3\rho^{2/3}}{(a + \rho^{1/3})^3} \right), \quad (29)$$

(где параметр $a = 0.079$),

$$\delta U_{ee} = (2\lambda + \lambda^2)S, \quad (30)$$

$$S = \frac{4\pi^2}{3} \int_0^\infty dr \rho(r) \left\{ \int_0^r [(r^2 + r'^2)^{3/2} - r^3] \rho(r') dr' + \int_r^\infty [(r^2 + r'^2)^{3/2} - r'^3] \rho(r') dr' \right\}. \quad (31)$$

Определим дисперсионную константу C_8 ; в рамках представленной модели она содержит несколько вкладов.

Рассмотрим первый из вкладов, а именно квадруполь-дипольный. Физически картина состоит в следующем. Спонтанно в первом (втором) атоме возник квадруполь, квадрупольный момент которого

$$Q_{v\tau}^{sp} = \frac{1}{2} \int (3r_v r_\tau - r^2 \delta_{v\tau}) \delta\rho(\vec{r}) dV, \quad (32)$$

$$\delta\rho = \mu \frac{1}{2} (3\cos^2\theta - 1) \rho(r). \quad (33)$$

Поле этого квадруполя

$$E_l = -\frac{1}{3} Q_{v\tau}^{sp} \nabla_\tau T_{lv}(\vec{R}) \quad (34)$$

индуцирует во втором (первом) атоме дипольный момент

$$d_i^{ind} = \alpha E_l. \quad (35)$$

Энергия взаимодействия

$$U_8^{Q-d} = -\frac{1}{2} \langle d_i^{ind} E_i \rangle = -\frac{\alpha}{18} \langle Q_{ij}^{sp} \nabla_j T_{il} \rangle^2. \quad (36)$$

После усреднения для квадруполь-дипольного вклада для гетероатомных пар получим:

$$C_8^{Q-d} = \frac{9}{50} \left\{ \alpha_2 \mu_1^2 \langle r_1^2 \rangle^2 + \alpha_1 \mu_2^2 \langle r_2^2 \rangle^2 \right\}. \quad (37)$$

Для гомоатомных пар:

$$C_8^{Q-d} = \frac{9}{25} \alpha \mu^2 \langle r^2 \rangle^2. \quad (38)$$

Следующим вкладом будет диполь-квадрупольный. В этом случае в первом (втором) атоме спонтанно возникает дипольный момент:

$$\vec{d}_1^{sp} = \int \vec{r} \delta\rho(\vec{r}) dV, \quad (39)$$

$$\delta\rho = \lambda \rho(r) \cos\theta. \quad (40)$$

Поле диполя

$$E_l = \frac{3R_l d_k^{sp} R_k - R^2 d_l^{sp}}{R^5} = T_{lk}(\vec{R}) d_k \quad (41)$$

индуцирует во втором (первом) атоме квадрупольный момент:

$$Q_{ik} = 3\alpha_{ik,lj}^{(2,2)} \nabla_j E_l. \quad (42)$$

Энергия диполь-квадрупольного взаимодействия:

$$U^{d-Q} = -\frac{1}{6} \langle Q_{ms} \nabla_m E_s \rangle = -\frac{1}{2} \alpha_{ms,lj}^{(2,2)} (\nabla_j E_l) (\nabla_m E_s). \quad (43)$$

После усреднения для диполь-квадрупольной части дисперсионной константы для гетероатомной пары получим:

$$C_8^{d-Q} = \frac{1}{2} (\alpha_2^{(2)} \lambda_1^2 \langle r_1 \rangle^2 + \alpha_1^{(2)} \lambda_2^2 \langle r_2 \rangle^2). \quad (44)$$

Для гомоатомной пары, соответственно:

$$C_8^{d-Q} = \alpha^{(2)} \lambda^2 \langle r \rangle^2. \quad (45)$$

Таким образом, с учетом всех вкладов, для гетероатомных пар получим дисперсионную константу C_8 в виде:

$$C_8 = \frac{9}{50} (\alpha_2 \mu_1^2 \langle r_1^2 \rangle^2 + \alpha_1 \mu_2^2 \langle r_2^2 \rangle^2) + \frac{1}{2} (\alpha_2^{(2)} \lambda_1^2 \langle r_1 \rangle^2 + \alpha_1^{(2)} \lambda_2^2 \langle r_2 \rangle^2). \quad (46)$$

Для гомоатомной пары:

$$C_8 = \frac{9}{25} \alpha \mu^2 \langle r^2 \rangle^2 + \alpha^{(2)} \lambda^2 \langle r \rangle^2. \quad (47)$$

В данном случае необходимо получение формул для определения параметров λ и μ .

Вариационный параметр λ определяется по формулам (22)–(31).

Для квадрупольного вариационного параметра μ можно получить аналогичные выражения.

$$\delta U_{en} = -\frac{2}{3\sqrt{3}} Z\mu \int \frac{Ddr}{r}, \quad (48)$$

$$\delta T_W = \frac{\mu}{36} \left(\frac{1}{3\sqrt{3}} \int \frac{|D|^2 dr}{D} + \frac{\mu}{5} \int \frac{D}{r^2} dr \right), \quad (49)$$

$$\delta T_{kin} = t_1 + t_2, \quad (50)$$

$$t_1 = \frac{10\mu\chi_k}{9\sqrt{3}(4\pi)^{2/3}} \int \frac{D^{5/3} dr}{r^{4/3}}, \quad (51)$$

$$t_2 = \frac{\chi_k \mu^2}{9(4\pi)^{2/3}} \int \frac{D^{5/3} dr}{r^{4/3}}, \quad (52)$$

$$\delta U_{exc} = -\frac{8\mu\chi_e}{9\sqrt{3}(4\pi)^{1/3}} \int \frac{D^{4/3} dr}{r^{2/3}} - \frac{2\mu^2\chi_e}{45(4\pi)^{1/3}} \int \frac{D^{4/3} dr}{r^{2/3}}, \quad (53)$$

$$\delta U_{corr} = u_1 + u_2, \quad (54)$$

$$u_1 = -0.0072\mu \int Ddr \rho^{1/3} \frac{4a + 3\rho^{1/3}}{(a + \rho^{1/3})^2}, \quad (55)$$

$$u_2 = -0.00031\mu^2 \int Ddr \rho^{1/3} \frac{8a^2 + 4a\rho^{1/3} - 3\rho^{2/3}}{(a + \rho^{1/3})^3}, \quad (56)$$

$$\delta U_{ee} = \left(\frac{\mu}{8} + \frac{\mu^2}{12\sqrt{3}} \right) S_2, \quad (57)$$

$$S_2 = \int_0^\infty D(r) dr \int_0^\infty D(r') dr' \varphi(r, r'), \quad (58)$$

$$\varphi(r, r') = P(1) - P(-1) + 2P\left(-\frac{1}{\sqrt{3}}\right) - 2P\left(\frac{1}{\sqrt{3}}\right), \quad (59)$$

$$P(x) = \frac{\sqrt{r^2 + r'^2 - 2rr'x}}{rr'} \left(1 - \frac{3}{4(rr')^2} \left\{ \frac{(r^2 + r'^2 - 2rr'x)^2}{5} - \frac{2}{3}(r^2 + r'^2)(r^2 + r'^2 - 2rr'x) + (r^2 + r'^2)^2 \right\} \right).$$

В рамках представленной модели C_{10} содержит несколько вкладов.

Рассмотрим первый из вкладов, а именно квадруполь-квадрупольный. Физически картина состоит в следующем. Спонтанно в первом (втором) атоме возник квадруполь, квадрупольный момент которого

$$Q_{\nu\tau}^{sp} = \frac{1}{2} \int (3r_\nu r_\tau - r^2 \delta_{\nu\tau}) \delta\rho(\vec{r}) dV, \quad (60)$$

$$\delta\rho = \mu \frac{1}{2} (3 \cos^2 \theta - 1) \rho(r). \quad (61)$$

Поле этого квадруполя

$$E_l = -\frac{1}{3} Q_{\nu\tau}^{sp} \nabla_\tau T_{l\nu}(\vec{R}) \quad (62)$$

индуцирует во втором (первом) атоме квадрупольный момент:

$$Q_{ik}^{ind} = 3\alpha_{ik,lj}^{(2,2)} \nabla_j E_l. \quad (63)$$

Энергия взаимодействия

$$U_{10}^{Q-Q} = -\frac{1}{6} \langle Q_{ik}^{ind} \nabla_k E_i \rangle = -\frac{1}{2} \langle \alpha_{ik,lj}^{(2,2)} \nabla_j E_l \nabla_k E_i \rangle. \quad (64)$$

После усреднения для квадруполь-квадрупольного вклада для гетероатомных пар получим:

$$C_{10}^{Q-Q} = \frac{83}{150} \left\{ \alpha_2^{(2)} \mu_1^2 \langle r_1^2 \rangle^2 + \alpha_1^{(2)} \mu_2^2 \langle r_2^2 \rangle^2 \right\}. \quad (65)$$

Для гомоатомных пар:

$$C_{10}^{Q-Q} = \frac{83}{75} \alpha^{(2)} \mu^2 \langle r^2 \rangle^2. \quad (66)$$

Следующим вкладом будет диполь-октупольный. В этом случае в первом (втором) атоме спонтанно возникает дипольный момент:

$$\vec{d}_1^{sp} = \int \vec{r} \delta\rho(\vec{r}) dV, \quad (67)$$

$$\delta\rho = \lambda \rho(r) \cos \theta, \quad (68)$$

Поле диполя

$$E_l = \frac{3R_l d_k^{sp} R_k - R^2 d_l^{sp}}{R^5} = T_{lk}(\vec{R}) d_k \quad (69)$$

индуцирует во втором (первом) атоме октупольный момент:

$$L_{ljm} = 15\alpha_{ljm,pkn}^{(3,3)} \nabla_k \nabla_n E_p. \quad (70)$$

Энергия диполь-октупольного взаимодействия:

$$U^{d-L} = -\frac{1}{30} \langle L_{ljm} \nabla_j \nabla_m E_l \rangle = -\frac{1}{2} \alpha_{ljm,pkn}^{(3,3)} (\nabla_k \nabla_n E_p) (\nabla_j \nabla_m E_l). \quad (71)$$

После усреднения для диполь-октупольной части дисперсионной константы для гетероатомной пары получим:

$$C_{10}^{d-L} = \frac{8}{9} \left(\alpha_2^{(3)} \lambda_1^2 \langle r_1^2 \rangle^2 + \alpha_1^{(3)} \lambda_2^2 \langle r_2^2 \rangle^2 \right). \quad (72)$$

Для гомоатомной пары, соответственно:

$$C_{10}^{d-L} = \frac{16}{9} \alpha^{(3)} \lambda^2 \langle r^2 \rangle^2. \quad (73)$$

И наконец, последним вкладом является октуполь-дипольный вклад. В этом случае в первом (втором) атоме спонтанно возникает октупольный момент:

$$L_{ljm}^{sp} = \frac{1}{2} \int [5r_l r_j r_m - r^2 (\delta_{lj} r_m + \delta_{im} r_j + \delta_{jm} r_l)] \delta\rho(\vec{r}) dV, \quad (74)$$

где

$$\delta\rho = \tau\rho(r)\frac{1}{2}(5\cos^3\theta - 3\cos\theta). \quad (75)$$

Поле октуполя

$$E_i = \frac{1}{15}L_{ijm}^{sp}\nabla_j\nabla_m T_{il}(\vec{R}) \quad (76)$$

индуцирует дипольный момент

$$d_i^{ind} = \alpha E_i. \quad (77)$$

Энергия взаимодействия спонтанного октупольного момента и индуцированного дипольного момента:

$$U = -\frac{1}{2}\langle d_i^{ind} E_i \rangle. \quad (78)$$

После усреднения октуполь-дипольный вклад для гетероатомной пары получим в виде:

$$C_{10}^{L-d} = \frac{1}{2}\left(\alpha_1\tau_2^2\langle r_2^3 \rangle^2 + \alpha_2\tau_1^2\langle r_1^3 \rangle^2\right). \quad (79)$$

Для гомоатомной пары:

$$C_{10}^{L-d} = \alpha\tau^2\langle r^3 \rangle^2. \quad (80)$$

Таким образом, с учетом всех вкладов для гетероатомных пар получим дисперсионную константу C_{10} в виде:

$$C_{10} = \frac{83}{150}\left(\alpha_1^{(2)}\mu_1^2\langle r_1^2 \rangle^2 + \alpha_1^{(2)}\mu_2^2\langle r_2^2 \rangle^2\right) + \frac{8}{9}\left(\alpha_2^{(3)}\lambda_1^2\langle r_1 \rangle^2 + \alpha_1^{(3)}\lambda_2^2\langle r_2 \rangle^2\right) + \frac{1}{2}\left(\alpha_1\tau_2^2\langle r_2^3 \rangle^2 + \alpha_2\tau_1^2\langle r_1^3 \rangle^2\right). \quad (81)$$

Для гомоатомной пары:

$$C_{10} = \frac{83}{75}\alpha^{(2)}\mu^2\langle r^2 \rangle^2 + \frac{16}{9}\alpha^{(3)}\lambda^2\langle r \rangle^2 + \alpha\tau^2\langle r^3 \rangle^2. \quad (82)$$

Для определения дисперсионной константы C_{10} необходимо знать значения дипольной, квадрупольной и октупольной поляризуемостей. Существует множество работ, в которых данная задача решается в тех или иных приближениях [9–13].

Дипольный вариационный параметр λ определяется по формулам (22)–(31). Квадрупольный вариационный параметр μ получен (формулы (48)–(59)).

Наконец, приведем выражения для определения октупольного вариационного параметра τ :

$$\delta U_{en} = -\frac{13}{40}Z\tau\int\frac{Ddr}{r}, \quad (83)$$

$$\delta T_W = \frac{1}{72}\frac{13\tau}{40}\int\frac{|D'|^2 dr}{D} + \frac{1}{72}\frac{12\tau^2}{7}\int\frac{Ddr}{r^2}, \quad (84)$$

$$\delta T_{kin} = \frac{13\tau\chi_k}{24(4\pi)^{2/3}}\int\frac{D^{5/3} dr}{r^{4/3}} + \frac{5\tau^2\chi_k}{63(4\pi)^{2/3}}\int\frac{D^{5/3} dr}{r^{4/3}}, \quad (85)$$

$$\delta U_{exc} = -\frac{13\tau\chi_e}{30(4\pi)^{1/3}}\int\frac{D^{4/3} dr}{r^{2/3}} - \frac{2\tau^2\chi_e}{63(4\pi)^{1/3}}\int\frac{D^{4/3} dr}{r^{2/3}}, \quad (86)$$

$$\delta U_{corr} = u_1 + u_2, \quad (87)$$

$$u_1 = -0.006\tau\int D\rho^{1/3}\frac{4a+3\rho^{1/3}}{(a+\rho^{1/3})^2}dr, \quad (88)$$

$$u_2 = -0.00022\tau^2\int D\rho^{1/3}\frac{8a^2+4a\rho^{1/3}-3\rho^{2/3}}{(a+\rho^{1/3})^3}dr, \quad (89)$$

$$\delta U_{ee} = \frac{\tau}{8}S_2 + \frac{13\tau^2}{320}S_2, \quad (90)$$

$$S_2 = \iint D(r)D(r')\varphi_2(r, r')drdr', \quad (91)$$

где

$$\varphi_2(r, r') = P(1) + P(-1) + 2P(0) - 2P\left(\frac{\sqrt{3}}{5}\right) - 2P\left(\frac{-\sqrt{3}}{5}\right). \quad (92)$$

Библиография

1. Gordon R.G., Kim Y.S. Theory for the forces between closed-shell atoms and molecules // The Journal of Chemical Physics. V. 56. N 6. P. 3133–3138.
2. Clugston M.J., Pyper N.C. Relativistic effects on interatomic potentials: comparison of the inert gases and group IIB elements // Chemical Physics Letters. V. 58. N 3. P. 457–461.
3. Теория неоднородного электронного газа / под ред. С. Лундквиста, Н. Марча. М.: Мир, 1987. 400 с.
4. Ухов В.Ф., Кобелева Р.М., Дедков Г.В., Темроков А.И. Электронно-статистическая теория металлов и ионных кристаллов. М.: Наука, 1982. 104 с.
5. Гомбаш П. Статистическая теория атома. М.: Иностранная литература, 1951. 326 с.
6. Бараш Ю.С. Силы Ван-дер-Ваальса. М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1988. 433 с.
7. Амусья М.Я., Черепков Н.А., Шапиро С.Г. Расчет мультипольных поляризуемостей и констант Ван-Дер-Ваальса для атомов инертных газов // ЖЭТФ. 1973. Т. 63. Вып. 3. С. 889–898.
8. Киржниц Д.А., Лозовик Ю.Е., Шпатаковская Г.В. Статистическая модель вещества // УФН. 1975. Т. 117. Вып. 9. С. 3–47.
9. Кяров А.Х., Темроков А.И. Дисперсионные силы в рамках вариационного метода // ЖЭТФ. 1994. Т. 106. Вып. 1. С. 69–76.
10. Кяров А.Х., Темроков А.И. Самосогласованный подход в расчете дисперсионных сил // Оптика и спектроскопия. 1997. Т. 82, № 5. С. 732–733.
11. Иванов О.В., Максимов Е.Г. Микроскопические вычисления электронной поляризуемости и динамики решетки ионных кристаллов // ЖЭТФ. 1995. Т. 108. Вып. 5. С. 1841–1859.
12. Уланцев А.Д., Шевелько В.П. Статическая мультипольная поляризуемость атомов и ионов в модели Томаса – Ферми // Труды ФИАН. 1989. Т. 195. С. 179–194.
13. Krainov V.P., Roshchupkin A.S. Dynamic polarizability of metal Thomas-Fermi clusters // Laser Physics. 2000. V. 10. N 3. P. 816–819.

СРАВНИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ПРОЦЕССОВ РАЗРУШЕНИЯ ПОЛИМЕТИЛМЕТАКРИЛАТА ВЫСОКОСКОРОСТНЫМ УДАРОМ И ИМПУЛЬСНЫМ ЛАЗЕРНЫМ ВОЗДЕЙСТВИЕМ

*Куготова А.М., Кунижев Б.И.

Кабардино-Балкарский государственный университет им Х.М. Бербекова

*kam-02@mail.ru

В работе показано, что использование лазерных импульсов более эффективно для создания условий для откольного разрушения по сравнению с высокоскоростным ударом, хотя общая схема развития гидродинамических процессов остается одной и той же в том и другом случае. Сделан вывод о том, что механизмы кратерообразования и разрушения при этих импульсных ударных разрушениях существенно различаются.

Ключевые слова: кратерообразование, высокоскоростной удар, полиметилметакрилат, хрупкое разрушение, осевое напряжение, глубина кратера.

COMPARATIVE ANALYSIS OF PROCESSES OF POLYMETHYLMETHACRYLATE DESTRUCTION BY HIGH-SPEED IMPACT AND PULSE LASER ACTION

Kugotova A.M., Kunizhev B.I.

Kabardino-Balkarian State University

It has been shown in this paper that the use of the laser pulses is more effective in creating conditions for the split destruction compared to the high-speed impact in spite of the fact that the general scheme of percolation of the hydrodynamical processes remains the same in both cases. The conclusion has been deduced that the mechanisms of the crater formation and of the destruction at these impulse shock impacts differ in a great extent.

Keywords: crater formation, high-speed impact, polymethylmethacrylate, brittle destruction, axial strain, depth of a crater.

Процессы кратерообразования и разрушения полиметилметакрилата (ПММА) при высокоскоростном ударе подробно исследованы в работах [1, 2]. Показано, что кратеры в ПММА отличаются от кратеров в металлах не только формой, но и характером образования: если в металлах каверна образуется в результате пластического течения, то в ПММА – за счет хрупкого разрушения, образования трещин и выброса вещества в виде осколков, поэтому процесс кратерообразования в ПММА в работе [1] назван лицевым отколом. Такой откол по ряду признаков отличается от тыльного откола, возникающего в результате отражения ударной волны от тыльной поверхности.

В работах [3, 4] продолжены эти исследования и установлены аналитические связи между временем проникновения ударника в мишень, скоростью и глубиной кратера.

В работе [5] исследованы процессы лазерного воздействия на мишень из ПММА и проведены сопоставления полученных результатов с данными по ударному воздействию на мишень при тех же энергиях. Изучены эволюции напряженного состояния в материале мишени, процессы разрушения материала, определены зоны повреждения и степень поврежденности материала мишени. Сопоставление результатов в том и другом случае воздействия приводит авторов работы [5] к выводу о том, что лазерный импульс действует более разрушительно, нежели ударное нагружение, так как в этом случае область разрушений занимает больший объем.

В табл. 1 представлены зависимости диаметра кратера D и глубины проникания ударника из полиэтилена в мишень из ПММА от скорости ударника, полученные в экспериментах на магнитно-плазменном ускорителе микрочастиц рельсотронного типа [4].

Таблица 1

Зависимости глубины и диаметра кратера в мишени из ПММА от скорости ударного нагружения

№ п/п	$v \cdot 10^3$, км/с	$h \cdot 10^3$, м	$D \cdot 10^3$, м	$E \cdot 10^{-3}$, Дж
1	0,80	4,1	12,1	0,52
2	1,25	5,5	12,5	1,27
3	1,75	6,2	13,2	2,49
4	2,20	8,0	14,3	3,97
5	3,0	12,0	14,4	7,38
6	3,7	17,8	14,6	11,23
7	4,8	18,5	14,8	13,12

Здесь же показано, что, несмотря на существенные отличия, при импульсном лазерном воздействии и высокоскоростном ударе, общая схема развития гидродинамических процессов в каждом случае остается одной и той же: создание области сжатия материала мишени, генерация ударной волны, деструкция мишени волнами разгрузки от свободных поверхностей. Эта идентичность происходящих процессов позволила авторам работы моделировать названные воздействия. Идея использования энергии лазерного импульса для исследования высокоскоростного удара базируется на предположении, что действие лазерного импульса с энергией E длительностью τ и пятном облучений D_l аналогично действию ударника диаметром D толщиной L скоростью v . Такой способ исследования высокоскоростного удара методом воздействия лазерного импульса позволил авторам [5] получить картину напряженного состояния в материале мишени, положение и размеры зон разрушения, степень поврежденности материала, оценить глубину проникновения ударника в мишень и диаметр кратера в данных условиях воздействия. На основании полученных значений энергии ударника из ранее проведенных исследований [1] были определены характерные значения параметров лазерного импульса по уравнению

$$\frac{mv^2}{2} = \alpha \cdot J \cdot \tau \cdot S, \quad (1)$$

где m – масса ударника, v – его скорость, α – коэффициент поглощения лазерного импульса, J – плотность мощности на облучаемой поверхности, τ – длительность лазерного импульса, S – площадь пятна облучения.

На рис. 1 представлены зависимости безразмерной глубины проникания ударника из ПЭ (прямая 1) и лазерного импульса (прямые 2 и 3) в мишень h/D , рассчитанные нами по экспериментальным данным работ [1, 5]. В высокоскоростных экспериментах скорость ударника варьировалась от 0,8 до 4,8 км/с, а энергии импульса воздействия в обоих видах динамического нагружения изменялась от $(0,50 \div 13,2) \cdot 10^3$ Дж.

В обеих работах [1, 5] материал мишени из ПММА выбран таким образом, чтобы после интенсивного динамического воздействия он оставался прозрачным, тем самым позволял подробно исследовать картину проникания ударника в мишень.

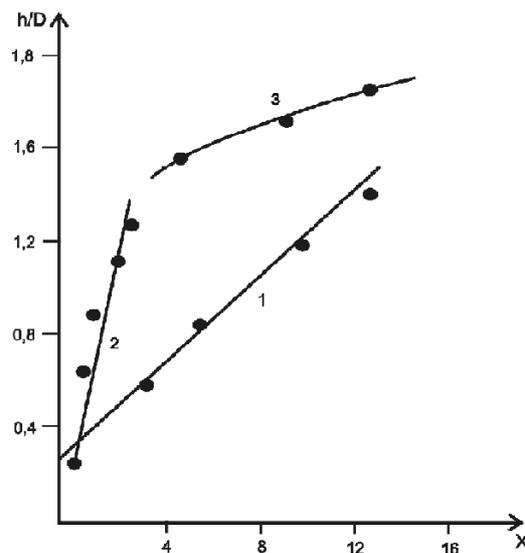


Рис. 1. Зависимость безразмерной глубины проникания ударника из ПЭ (прямая 1) и фронта лазерного импульса (прямые 2 и 3) в мишень из ПММА

Авторами работы [6] показано, что безразмерная величина h/D кратеров, образуемых в мишенях при ударах макрочастицами со скоростями 2–10 км/с, приводится для разных материалов ударника к единой зависимости от параметра $x = \frac{\rho_y v_0^2}{\rho_\mu} \cdot \frac{\text{км}^2}{\text{с}^2}$. Поэтому были построены зависимости h/D для наших расчетов от этой переменной x (рис. 1).

Прямая 1 на этом рисунке соответствует уравнению

$$\frac{h}{D} = 0,86x_1 \quad (2)$$

и получена методом наименьших квадратов при обобщении всех высокоскоростных экспериментов, проведенных в [1, 2] для ударника из ПЭ и мишени из ПММА.

По уравнению (1) рассчитаны h/D в зависимости от энергии лазерного импульса. Они представлены на рис. 1 (прямые 2 и 3). Прямая 2 соответствует уравнению

$$\frac{h}{D} = 2,2x_2 \quad (3)$$

Прямая (2) описывается зависимостью

$$\frac{h}{D} = 0,45x_3 \quad (4)$$

Сравнения данных, представленных на рис. 1, показывает, что механизмы разрушения ПММА при высокоскоростном ударе и импульсном лазерном воздействии при одинаковых энергиях нагружения существенно различаются. Если сравнить коэффициенты при x на зависимостях (2) и (3) до энергий ударника $E = 5 \cdot 10^3$ Дж, то коэффициент при x_2 больше коэффициента при x_1 в 2,56 раза, а по отношению к коэффициенту x_3 в 4,8 раза.

Механизм разрушения ПММА подробно исследован в работе [4]. Основываясь на трехмерных зависимостях $\sigma_x(t, h)$ осевого напряжения от времени и глубины проникания, приведенных в этой работе, можно качественно и количественно описать зависимость h/D от E при высокоскоростном ударе. Анализ данных по высокодинамическому разрушению мишени из ПММА, приведенных в работах [1, 4], и их сравнение с данными рис. 1 (прямая 1) показывает, что при высоких скоростях нагружения мишеней в начале идет процесс хрупкого разрушения с образованием лицевого откола, затем происходит повышение температуры в мишени, хрупкое разрушение мишени переходит в хрупко-пластическое. При одноосном сжатии возрастают как продольные, так и поперечные компоненты напряжений. В начале высокоскоростного нагружения изменения продольного и поперечного напряжений происходят согласованным образом, затем порог разрушения быстро возрастает с увеличением поперечного напряжения сжатия, и при некотором критическом ее значении имеет место хрупко-пластический переход: сдвиговые напряжения становятся достаточными для активации механизмов пластического деформирования, а раскрытие трещин подавляется поперечными напряжениями.

Анализ прямых (2) и (3) показывает, что при импульсном лазерном воздействии скорость роста глубины проникания почти в три раза больше в начале воздействия, по сравнению с высокоскоростным ударом, а затем более чем в четыре раза замедляется (прямая 3). Дальнейший анализ картины разрушения ПММА при импульсном лазерном воздействии показал, что каналы, образуемые лазерным импульсом, при их движении вглубь мишени схлопываются. Вблизи каналов образуются области интенсивного пластического течения с высокодисперсной структурой. Образование таких структур невозможно объяснить предложенной выше концепцией. Расположение прямых 2 и 3 на рис. 1 и отношение коэффициентов при x_2 и x_3 соответствует тому, что в самом начале (до 6 мкс) импульсного лазерного воздействия начинается и развивается хрупкое разрушение, которое переходит в пластическое разрушение материала мишени в областях, расположенных вдоль оси образца на всю глубину мишени в радиусе одного сантиметра.

Такой механизм разрушения ПММА, в случае импульсного лазерного воздействия, объясняет отсутствие зон, растягивающих осевых и радиальных напряжений, уже на глубине 0,5 см от лицевой поверхности мишени, а также появление тыльного откола, который отсутствовал в экспериментах и расчетах по высокоскоростным ударным воздействиям [1, 2, 4].

Из вышеизложенного анализа можно сделать вывод о том, что использование лазерных импульсов более эффективно для создания условий для откольного разрушения по сравнению с высокоскоростным ударом, хотя предполагалось, что общая схема развития гидродинамических процессов остается одной и той же в том и другом случае [5]. Таким образом, в настоящей работе показано, что механизмы кратерообразования и разрушения при этих импульсных ударных разрушениях существенно различаются.

Библиография

1. Костин В.В., Кунижев Б.И., Сучков А.С., Темроков А.И. Динамическое разрушение полиметилметакрилата при ударе // ЖТФ. 1995. Т. 65. В. 7. С. 176–179.
2. Пилюгин Н.Н. Моделирование формы кратера в мишени из оргстекла при высокоскоростном ударе // ТВТ. 2004. Т. 42, № 3. С. 477–483.
3. Пилюгин Н.Н., Ермолаев И.К., Виноградов Ю.А., Баулин Н.Н. Экспериментальное исследование протекания твердых тел в мишень из оргстекла при ударе со скоростями 0,7–2,1 км/ч // ТФТ. 2002. Т. 40, № 5. С. 732–738.
4. Куготова А.М. Высокоскоростное нагружение и разрушение полиметилметакрилата: диссертация на соискание ученой степени кандидата физ.-мат. наук. Нальчик, 2009. 133 с.
5. Костин В.В., Кунижев Б.И., Красюк И.К., Кунижев Б.И., Темроков А.И., Фортон В.Е. Исследование ударно-волновых и деструкционных процессов при высокоскоростном ударе и лазерном воздействии на мишень из органического материала // ТВТ. Т. 33, № 6. 1997. С. 962–967.
6. Титов В.М., Фадеенко Ю.И., Швецов Г.А. Удар тела с высокой скоростью по горным породам // ДАН СССР. 1970. Т. 191, № 2. С. 288–295.

НЕИДЕАЛЬНЫЙ РЕЖИМ ХИМИЧЕСКОГО ПРЕОБРАЗОВАНИЯ RDX В ЦИЛИНДРИЧЕСКИХ ОБРАЗЦАХ

*Янковский Б.Д., Милявский В.В., Ананьев С.Ю.

Объединенный институт высоких температур РАН

*yiy2004@mail.ru

Проведено экспериментальное определение скорости ударно-волнового химического преобразования порошкообразного RDX ((CH₂)₃N₃(NO₂)₃) в цилиндрических образцах разной плотности в диапазоне изменения диаметра 10–36 мм. Экспериментальные результаты проанализированы в рамках общепринятых эмпирических соотношений о зависимости скорости ударно-волнового преобразования либо от плотности, либо от диаметра образца. На основе анализа получены два эквивалентных в геометрическом представлении соотношения, обобщающие функциональную связь названных параметров образца.

Ключевые слова: ударные волны, химические преобразования, неидеальный режим, цилиндрические образцы.

NONIDEAL REGIME OF CHEMICAL CONVERSION OF RDX IN CYLINDRICAL SAMPLE

Yankovskiy B.D., Milyavskiy V.V., Anan'ev S.Yu.

Joint Institute for High Temperatures RAS

Experimental definition of speed of chemical conversion of powdered RDX ((CH₂)₃N₃(NO₂)₃) induced by shock wave in cylindrical samples of different density in the range 10–36 mm of diameter change is carried out. Experimental results in the framework of standard empirical relations about dependence of speed of shock-wave conversion or from density or diameter of a sample are analyzed. On the basis of the analysis two relationship are received which generalize functional connection of named parameters of a sample and are equivalent in geometrical form.

Keywords: shock waves, chemical conversion, a nonideal regime, parameters.

Введение. Понятие идеального ударно-волнового химического преобразования (УВХП) относится к процессам в образцах, размеры которых не влияют на значение скорости процесса. Скорость УВХП таких образцов $D_{as}(\rho)$ выражают в виде эмпирической зависимости от скорости УВХП D_{bp} при насыпной плотности ρ_{bp} , реальной плотности образца ρ и некоторого коэффициента M [1]:

$$D_{as}(\rho) = D_{bp} + M(\rho - \rho_{bp}). \quad (1)$$

Неидеальный режим УВХП проявляется в реальных образцах в виде зависимости скорости УВХП от поперечных размеров. Для цилиндрических образцов конкретной плотности ρ_k скорость УВХП в неидеальном режиме выражают в виде эмпирической зависимости от его скорости УВХП в идеальном режиме $D_{as}(\rho_k)$ диаметра образца d и некоторого коэффициента K [2]:

$$D(d) = D_{as}(\rho_k)(1 - K/d). \quad (2)$$

Эмпирические соотношения (1) и (2) определены для разных сочетаний параметров образца. Поэтому прямое обобщение соотношений (1) и (2) в зависимость вида не корректно.

$$D(\rho, d) = (D_{bp} + M(\rho - \rho_{bp}))(1 - K/d)$$

Кроме того, $D_{as}(\rho)$ в зависимости (1) является функцией, а $D_{as}(\rho_k)$ в зависимости (2) – числа. В то же время имеется значительный экспериментальный материал, указывающий на зависимость скорости УВХП от плотности образца во всем диапазоне изменения значений его диаметра ($d_{cr} < d$). Это означает, что размерные коэффициенты M и K в соотношениях (1) и (2) должны зависеть от диаметра и плотности материала, соответственно.

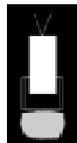
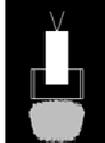
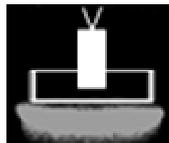
В работе [3] предложены эмпирические выражения для нахождения скорости УВХП в зависимости от диаметра образца в трех интервалах его плотности (1,0÷1,152; 1,152÷1,26; 1,26÷1,8 г/см³). Выражения используют безразмерные коэффициенты и фиксированное значение критического диаметра УВХП RDX. Причем значение критического диаметра принято одинаковым для образцов разной плотности, что не соответствует действительности.

Целью данной работы является формулировка на основе экспериментальных данных эмпирического соотношения, адекватно описывающего связь скорости УВХП с параметрами цилиндрических образцов RDX конечных размеров.

Экспериментальная часть. Было проведено измерение скорости УВХП длинных образцов из порошкообразного RDX разной плотности ρ (1,0–1,3 г/см³) в тонкостенных (0,75–1,0 мм) стеклянных цилиндрах. Порошок RDX представлял собой кристаллиты неправильной формы с плотностью 1,789 г/см³. Размер основной массы кристаллитов RDX составлял 130 мкм в диапазоне 80–220 мкм. Измерения повторяли при разных диаметрах образца d (10, 16, 24 и 36 мм). Параметры образцов и результаты измерений сведены в табл. Там же приведены характерные фотографии зоны свечения химической реакции образца с плотностью 1,0 г/см³ (экспозиция 40 нс) в одном масштабе с размерами инициатора и диаметром образца.

Таблица

Параметры образцов и результаты измерений

Диаметр образца RDX d_i , мм ($i=1, 2, 3, 4$)							
9.9-11.4		15.9-16.1		23.8-24.9		35.3-37.1	
Отношение массы оболочки к массе образца $m_{об}/M_{вв}$							
0,48		0,55		0,25		0,26	
							
ρ , г/см ³	D , км/с	ρ , г/см ³	D , км/с	ρ , г/см ³	D , км/с	ρ , г/см ³	D , км/с
1,03	6,13	1,00	6,00	1,00	6,00	1,00	6,02
1,13	6,36	1,13	6,44	1,06	6,21	1,19	6,73
1,17	6,44	1,18	6,45	1,15	6,60	1,29	7,03
1,30	6,86	1,24	6,82	1,28	6,98	–	–
–	–	1,34	7,00	–	–	–	–

Результаты. Графическое представление экспериментальных данных позволило констатировать, что образцы меньшего диаметра ($d_1 < d_2 < d_3 < d_4$) при одинаковой плотности ($\rho_k = \text{const}$) имеют меньшие значения скорости УВХП ($D_1 < D_2 < D_3 < D_4$). Это свидетельствует, что имеет место режим неидеального УВХП.

Средствами регрессионного анализа мы построили зависимости экспериментально найденной скорости УВХП RDX $D = D(\rho)$ от плотности для образцов с диаметрами 10, 16, 24 и 36 мм (рис. 1). Эти зависимости имеют линейный вид $D(\rho) = D_{бр} + M(\rho - \rho_{бр})$ и характеризуются разным наклоном $M(d_i) = \Delta D(d_i) / \Delta \rho$ (рис. 1), причем $M_1 < M_2 < M_3 < M_4$. Здесь и далее возрастание значений индексов i и k соответствует увеличению значений параметров образца.

Зависимости рис. 1 позволили сгруппировать три типа данных.

Первый тип фиксирует, что при насыпной плотности RDX исследованных нами образцов $\rho_{бр} \sim 1$ г/см³ скорость УВХП $D_{бр}$ равна $\sim 6,0$ км/с и не зависит от его диаметра: $D_{бр} \neq D(d_i)$.

Второй тип дает возможность построить зависимости скорости УВХП от диаметра образца $D_i(\rho_k = \text{const}) = D(d_i)$ для разных, произвольно выбранных значений плотности RDX ρ_k .

Третий тип дает возможность определить зависимость коэффициента пропорциональности M в соотношении (1) от диаметра образца: $M_i = M(d_i)$.

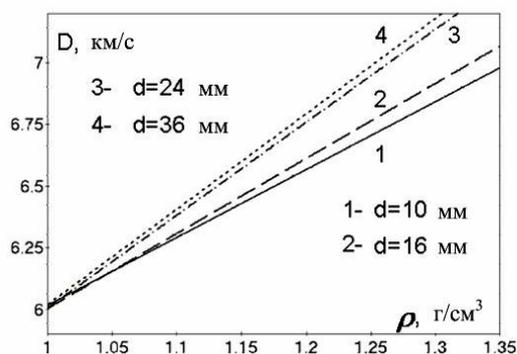


Рис. 1. Аппроксимация экспериментальных данных линейными зависимостями скорости УВХП от плотности образца $M(d_i) = \Delta D(d_i) / \Delta \rho$

Каждая зависимость на рис. 1 была построена на основе 3-5 точек с коэффициентом детерминации (R^2) не менее 0,96.

Ради чистоты рис. 1 экспериментальные данные также представлены в табл.

Данные первого типа совпадают с результатами [4], где экспериментально установлено асимптотическое стремление скорости УВХП цилиндрических образцов RDX с диаметрами более 2 мм к значению ~ 6 км/с.

Второй тип данных обсуждается в литературе [5–7], как правило, с целью нахождения размера зоны химической реакции.

Третий тип данных в литературе не обсуждается в явной форме.

Малое различие ($\sim 1\%$) значений скорости УВХП для образцов исследованных размеров указывает, что для RDX насыпной плотности значение предельного диаметра меньше 10 мм. Именно этот факт позволяет использовать данные рис. 1 для нахождения эмпирической зависимости коэффициентов $M(d)$ и $K(\rho)$ в соотношениях (1) и (2) от диаметра и плотности образца, соответственно. Ниже описана эта процедура.

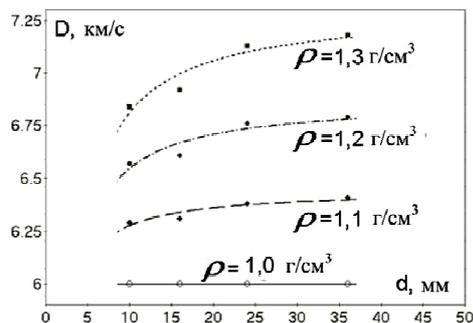


Рис. 2. Зависимости скорости УВХП $D(\rho_k, d) = D_{as}(\rho_k)(1-K/d)$ от диаметра образцов различной плотности. Зависимости построены на основе данных аппроксимации рис. 1

Процедура. На основе данных второго типа (рис. 1) построен ряд зависимостей $D(d)$ для нескольких значений плотности образца ρ_k (рис. 2), и сделана их аппроксимация выражениями:

$$D(\rho_k, d) = D_{as}(\rho_k)(1-K/d). \quad (3)$$

Из выражений (3) определены значения их асимптотик, как скорость идеального УВХП $D_{as}(\rho_k)$ RDX заданной плотности, на основе которых построена зависимость $D_{as}(\rho)$ (рис. 3). Там же приведены чужие экспериментальные [6, 8, 9] и расчетные [10] результаты. Наблюдается вполне удовлетворительное согласие, особенно при относительно низкой плотности образца. Определяется также и асимптотическое значение коэффициента $M_{as} \sim 3,9$ (км/с)/(г/см³), что в совокупности с данными первого типа позволяет конкретизировать соотношение (1) для образцов RDX с $d > 10$ мм:

$$D_{as}(\rho) = 6,0 + 3,9(\rho-1). \quad (4)$$

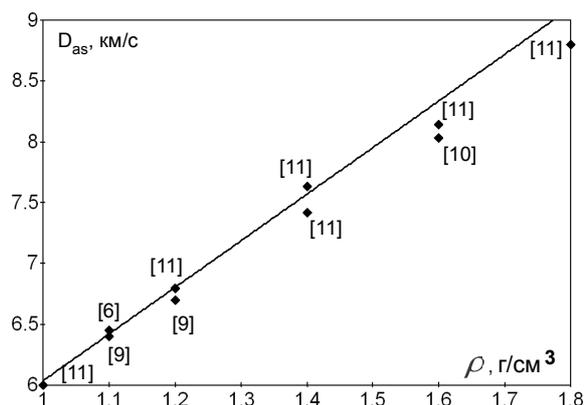


Рис. 3. Зависимость скорости идеальной УВХП D_{as} от плотности образца в сравнении с экспериментальными [6, 8, 9] и расчетными [10] результатами. Зависимость D_{as} построена на основе данных аппроксимации кривых рис. 2

Из выражений (3) для данных рис. 2 мы установили, что коэффициент K является переменной величиной, изменение значений $K(\rho_k)$ которой можно аппроксимировать зависимостью от плотности RDX ρ в виде (рис. 4):

$$K(\rho) = A(1 - B/\rho). \quad (5)$$

Коэффициент $K(\rho)$ имеет размерность длины (мм). Константы A и B в зависимости (5) имеют значение $3,1$ мм и $1,03$ г/см³, соответственно. Можно оценить, что при изменении плотности образца от 1 г/см³ до плотности монокристалла RDX $1,8$ г/см³ значение коэффициента K будет меняться в пределах $0,0-1,38$ мм, т.е. влияние этого коэффициента на значение скорости УВХП сильнее проявляется в образцах с меньшими диаметрами, но с большей плотностью RDX. Физическое содержание зависимости $K(\rho)$ и коэффициентов A и B в этой работе мы не обсуждаем.

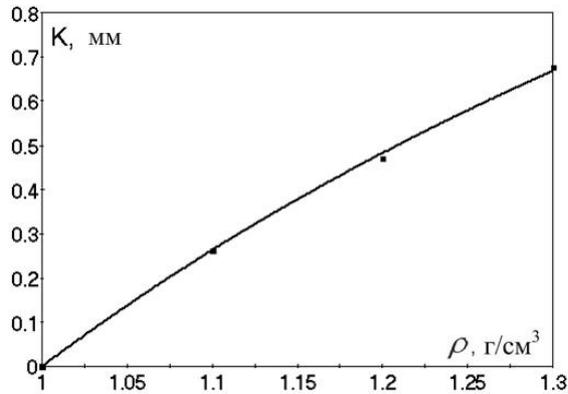


Рис. 4. Зависимость $K(\rho) = 3,1(1 - 1,03/\rho)$ коэффициента K от плотности образца построена по данным рис. 2

В итоге мы подставили зависимости (4) для скорости идеального УВХП $D_{as}(\rho)$ и (5) для коэффициента K в выражение (2) и получили зависимость скорости неидеального УВХП от параметров образца RDX в виде:

$$D(\rho, d = (6,0 + 3,9(\rho - 1)) (1 - (3,1(1 - 1,03/\rho))/d), \quad (6)$$

графическое изображение которой представлено на рис. 5.

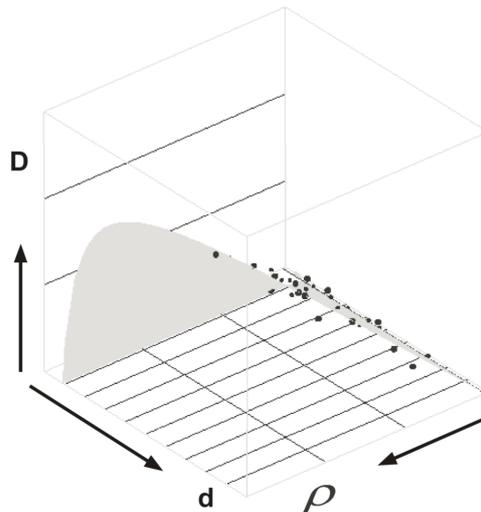


Рис. 5. Графическое представление выражения (6). Точки на рисунке представляют экспериментальные данные. Точки малого диаметра представляют наши экспериментальные данные.

Точки большого диаметра представляют экспериментальные данные из работ [6, 8, 11]

Для аппроксимации данных третьего типа следует иметь в виду, что вид зависимости $M = M(d)$ должен иметь одинаковый вид с зависимостью $D = D(d)$ от диаметра образца, т.е. $M(d) = M_{as}(1 - C/d)$. Это обусловлено взаимной независимостью плотности и диаметра образца, а также достоверностью эмпирического соотношения $M(d) = \Delta D(d)/\Delta \rho$. Может оказаться, что для значений точек $M(d)$, взятых из данных рис. 1, найдется другой вид функции, лучшим образом описывающей их общность. Однако, она не может быть принята к рассмотрению ввиду противоречия общепринятым соотношениям (1) и (2).

Поэтому данные третьего типа (рис. 6) мы аппроксимировали зависимостью $M(d)$ в виде:

$$M(d) = M_{as}(1 - C/d), \quad (7)$$

из которой установили, что значение M_{as} равно $3,9 \text{ (км/с)/(г/см}^3\text{)}$, так же как и значение производной в зависимости скорости идеального УВХП D_{as} от плотности RDX (рис. 3), а константа C имеет значение $\sim 4,2$ и размерность длины (мм). Мы подставили эти значения в выражение (1) и получили другой аналитический вид зависимости скорости неидеального УВХП RDX от диаметра и плотности образца:

$$D(\rho, d) = 6,0 + 3,9(1 - 4,2/d)(\rho - 1). \quad (8)$$

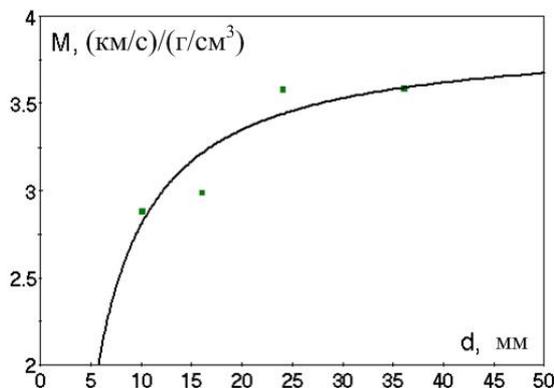


Рис. 6. Зависимость $M(d) = M_{as}(1 - C/d)$ коэффициента M от диаметра образца построена по данным аппроксимации рис. 1

Здесь также принято, что скорость УВХП RDX D_{bp} при насыпной плотности $\rho_{bp}=1 \text{ г/см}^3$ равна $6,0 \text{ км/с}$. Обращает внимание факт, что при значении диаметра образца $4,2 \text{ мм}$ значение скорости УВХП отвечает образцам RDX насыпной плотности 1 г/см^3 . Однако, как и ранее, физический смысл коэффициента M и константы B мы не обсуждаем. Графическое изображение зависимости (8) представлено на рис. 7.

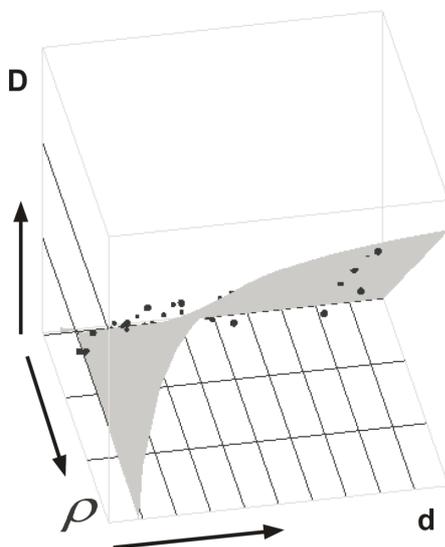


Рис. 7. Графическое представление выражения (6). Точки на рисунке представляют экспериментальные данные. Точки малого диаметра представляют наши экспериментальные данные.

Точки большого диаметра представляют экспериментальные данные из работ [6, 8, 11]

На рис. 8 приведены совместные графические изображения выражений (6) и (8) с нашими и сторонними экспериментальными данными в одном координатном пространстве. Оказалось, что выражения (6) и (8) имеют весьма похожие изображения, которые практически совпадают между собой для экспериментально найденных значений коэффициентов в зависимостях $K(\rho)$ и $M(d)$. Кроме того, наблюдается вполне удовлетворительное их соответствие с экспериментальными данными разных авторов для образцов с примерно одинаковыми размерами кристаллитов RDX ($0,1 \text{ мм}$).

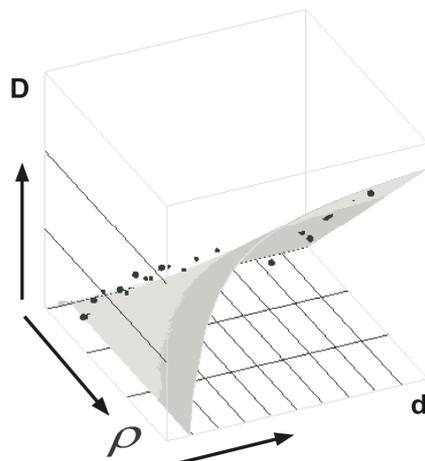


Рис. 8. Графическое представление выражений (4) и (6). Изображение выражения (4) помечено более светлым тоном. Точки малого диаметра представляют наши экспериментальные данные. Точки большого диаметра представляют экспериментальные данные из работ [6, 8, 11]

На рис. 9 приведено сопоставление экспериментальных данных [6, 8, 11] с двумерными проекциями на соответствующие плоскости координат зависимостей (6) и (8) и работы [3] при фиксированном значении одного из параметров заряда. Видно, что проекции наших соотношений (6) и (8) (линия 2) располагаются ближе к экспериментальным точкам на ~10 %.

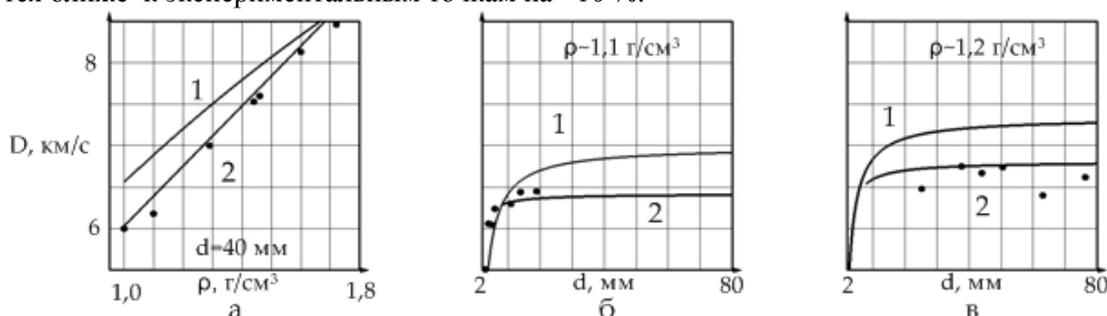


Рис. 9. Графическое сопоставление эмпирических зависимостей с экспериментальными данными: а – [11], б – [6], в – [8]. Линия 1 соответствует зависимостям работы [3]; линия 2 соответствует зависимостям (6) и (8)

Обсуждение. Достаточно формальным образом мы получили два эмпирических соотношения, адекватно описывающие изменение скорости УВХП с параметрами цилиндрических образцов RDX конечных размеров. При этом соотношения (6) и (8), как результаты работы, базируются на полученных многими авторами экспериментальных данных, описываемых общепринятыми эмпирическими соотношениями (1) и (2).

Наши дополнительные экспериментальные данные с образцами относительно малого диаметра позволили обобщить соотношения (1) и (2) как функции разных аргументов посредством определения и учета в каждом из них зависимостей используемых коэффициентов от параметров образца. Подстановка найденных зависимостей в соотношения (1) и (2) дают при разном аналитическом виде графически эквивалентные изображения. Разный аналитический вид соотношений обусловлен тем, что в соотношении (1), базовом для зависимости (8), используется коэффициент M , зависящий от диаметра образца, а в соотношении (2), базовом для зависимости (6), используется коэффициент K , зависящий от плотности образца, хотя и присутствует значение $M_{ас}$.

В работе [12] в результате качественного анализа предложена диаграмма характеристик RDX в координатах скорость УВХП, диаметр, плотность цилиндрического образца без масштабирования осей. Диаграмма характеризует скорость УВХП образцов в предельном, критическом и неидеальном режимах. Высказана мысль, что зависимости диаграммы в форме соотношений (1) и (2) являются двумерными проекциями линий пересечения трехмерной поверхности характеристик с секущими плоскостями, параллельными соответствующим плоскостям координат. Иными словами, базовые соотношения (1) и (2) являются частными случаями одной зависимости. В этом смысле можно рассматривать зависимости (6)

и (8) как трехмерные, но частные представления одной трехмерной зависимости скорости УВХП от параметров образца. Поэтому изображения зависимостей (6) и (8) близки к массиву наших и чужих [6, 8, 11] экспериментальных данных (рис. 7, 8).

Следует отметить, что графическая эквивалентность изображений (6) и (8) и их близость с массивом экспериментальных данных (рис. 8) как свидетельство их правомочности обусловлена конкретными значениями входящих эмпирических коэффициентов А, В и С. В физическом содержании за значениями этих коэффициентов могут стоять дополнительные параметры, характеризующие образец и условия его УВХП: протяженность зоны химической реакции, размер кристаллита RDX, кривизна граничной зоны образца, обратная удельная поверхность кристаллитов RDX, наличие оболочки, условия инициирования химической реакции, а также комбинация этих и других величин. Исследование влияния этих многофакторных связей требует организации и проведения специальных экспериментов.

Выводы

1. На основе минимального объема экспериментальных данных и без привлечения каких-либо представлений о процессе и параметрах химического превращения RDX получены два эмпирических соотношения зависимости скорости УВХП от параметров образца в неидеальном режиме.

2. Увеличение числа экспериментальных точек и расширение диапазона начальных параметров образца позволит более точно провести линейную аппроксимацию зависимости скорости УВХП от плотности RDX. В результате обработки большего объема данных в русле вышеприведенной процедуры могут быть получены выражения с эмпирическими коэффициентами, более адекватно отражающими экспериментальную статистику. Это позволит более обоснованно предлагать физическое содержание взаимозависимости параметров УВХП в неидеальном режиме.

Библиография

1. Cook M.A. The science of high explosives // London: Reinhold Publ. Corp. 1958.
2. Eyring H., Powell R.E., Duffy G.H., Parlin R.B. // Chem. Rev. 1949. V. 45. P. 69.
3. Котомин А.А. // Российский химический журнал. 1997. Т. 41. № 4. С.89.
4. Боболев В.К. Кандидатская диссертация. М.: Институт химической физики АН СССР, 1945.
5. Дубнов Л.В., Бахаревич Н.С., Романов А.И. Промышленные ВВ. М.: Недра, 1988. 358 с.
6. Стесик Л.Н., Акимова Л.Н. // Журнал физической химии. 1959. Т. 33, № 8. С. 1762–1768.
7. Кузнецов Н.М., Азарова О.А., Давыдова О.Н. // Химическая физика. 2002. Т. 21, № 11. С. 69–74.
8. Кук М.А. Наука о промышленных ВВ. М.: Недра, 1980. 456 с.
9. Шведов К.К. // Труды международной конференции «IX Харитоновские тематические научные чтения». 2007. Саров. РФЯЦ-ВНИИЭФ. С. 79–87.
10. Айзенштадт И.Н. // Физика горения и взрыва. 1976. Т. 12, № 5. С. 754–757.
11. Дремин А.Н., Савров С.Д., Трофимов В.С., Шведов К.К. Детонационные волны в конденсированных средах. М.: Наука, 1970. 146 с.
12. Пырьев В.А., Соловьев В.С. // Физика горения и взрыва. 1992. № 3. С. 69–72.

**ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ПРОБИТИЯ СЛОИСТЫХ ПРЕГРАД
УДЛИНЕННЫМИ УДАРНИКАМИ****Горельский В.А., * Орлов М.Ю., Орлов Ю.Н., Богомолов Г.Н.***Национальный исследовательский Томский государственный университет*** orloff_m@mail.ru*

Представлены результаты численных исследований процесса пробития удлиненными ударниками слоистых преград. В качестве ударников выбраны одинаковые по массе и диаметру стальные цилиндры с различными формами головных частей. Объект исследования – это трехслойные преграды с дополнительным «усиливающим» слоем, который располагался в различных частях преграды. Серия вычислительных экспериментов проведена в осесимметричной постановке при помощи пользовательского многофункционального программного комплекса для расчета динамических многоконтактных задач МДТТ. Результаты приведены в виде текущих конфигураций взаимодействующих тел, а также графиков и таблиц.

Ключевые слова: модель, метод, расчет, удар, ударник, преграда, пробитие.

**THE INVESTIGATION OF THE PROCESS OF PENETRATION OF
LAYERED BARRIERS LONG PROJECTILES****Gorelsky V.A., Orlov M.Yu., Orlov Yu.N., Bogomolov G.N.***Tomsk State University*

The results of numerical studies of the process of penetration of elongated projectiles laminated targets are presented. The projectiles were the same mass and diameter steel cylinders with various forms of warheads. The object of research are three-layer barrier with additional "reinforcing" layer. The layer was located in different parts of the barriers. A series of computational experiments carried out in axisymmetric formulation using the software package. The results are given in the form of the current configurations of the projectile and barriers, as well as graphs and tables.

Keywords: model, method, numerical, impact, projectile, plate, penetrating.

Введение. Постоянное совершенствование средств кинетического воздействия на защищаемые объекты заставляет разработчиков современных противоударных защит искать принципиально новые пути для повышения ударной стойкости. В настоящее время большинство защитных конструкций, как и средства их поражения, являются структурно-неоднородными конструкциями (сэндвич-панели, слоисто-скрепленные преграды, пластины, армированные инородными включениями и т.п.). В связи с этим существует потребность в создании численного метода расчета их ударного и взрывного нагружения, т.к. современные экспериментальные методы являются весьма дорогостоящими и малоинформативными.

В НИИ прикладной математики и механики Томского госуниверситета был разработан такой метод расчета, оригинальность которого заключается в новом способе выделения поверхностей разрыва сплошности материала, который накладывает серьезные ограничения на решение современных динамических задач МДТТ. Параметрические исследования выполнены в упруго-пластической постановке с учетом ударно-волновых явлений и совместного образования отрывных и сдвиговых разрушений [1].

Очевидно, что наиболее простой способ повышения ударной стойкости преград заключается в добавлении «усиливающего» слоя к защитной конструкции. Однако расположить дополнительный слой можно как с внешней стороны защищаемого объекта, так и с внутренней. При этом необходимо подобрать его оптимальную толщину и способ скрепления с основным слоем. На данном этапе целесообразно воспользоваться приемами математического моделирования как надежным инструментом исследования быстропротекающих процессов, сопутствующих процессу удара [2, 3].

Цель работы заключается в изучении процесса пробития трехслойной преграды с дополнительным слоем на предмет ее ударной стойкости. Четырехслойные преграды содержали дополнительный слой, который располагался в лицевой, средней и тыльной частях. Слой состоял из двух стальных пластин одинакового материала, высоты и диаметров. Введены следующие обозначения: (6) – однородная стальная

преграда толщиной $h = 6$ мм, (2+2+2) – трехслойная преграда с одинаковыми толщинами слоев по 2 мм каждый, (D+2+2), (2+D+2) и (2+2+D) – четырехслойные преграды с дополнительным слоем в лицевой, средней и тыльной частях преграды. На контактной границе задавалось условие скольжения без трения.

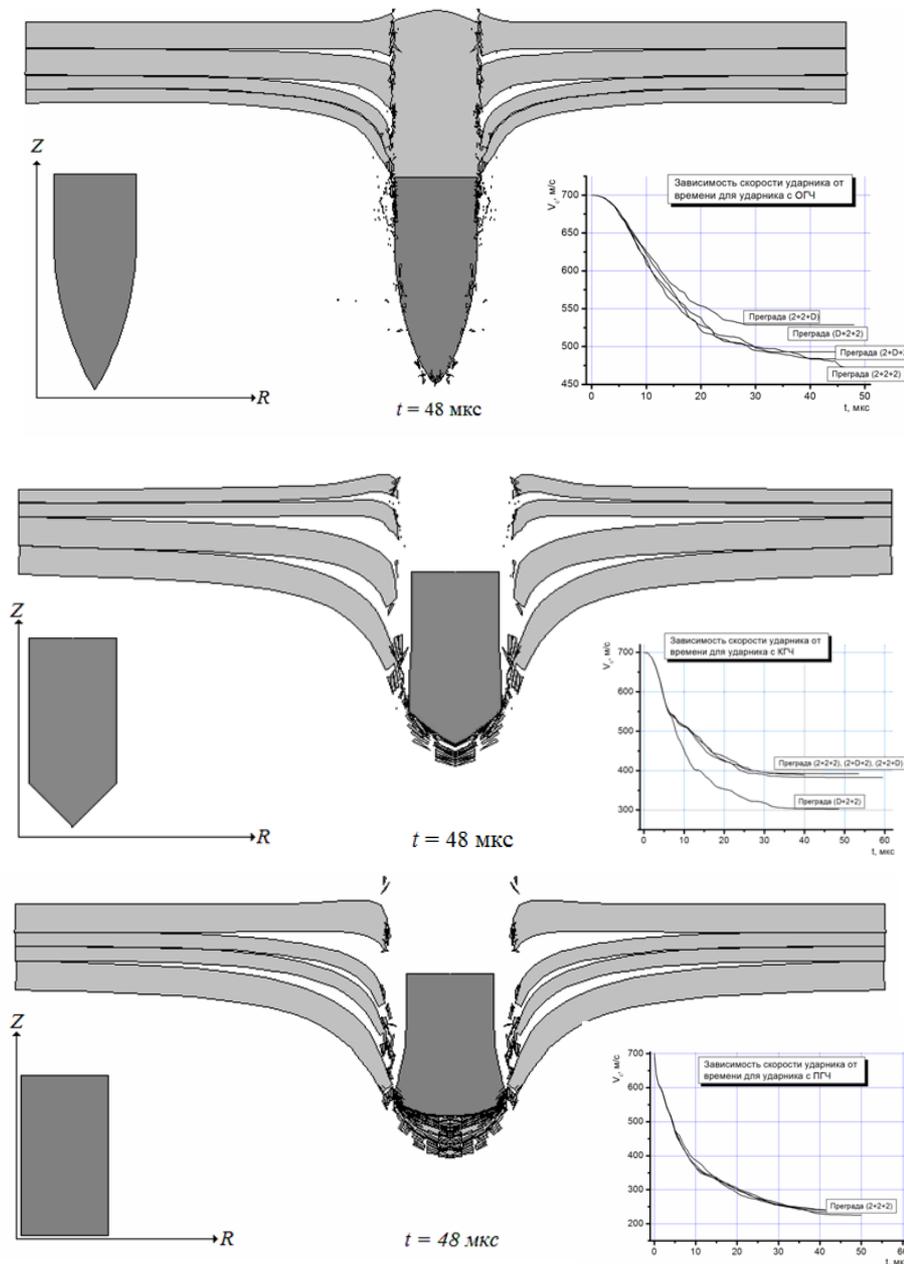


Рис. 1. Результаты расчетов пробития преграды

В качестве ударников выбраны одинаковые по массе и диаметру стальные цилиндры с оживальной, конической и плоской головными частями. Обозначение ОГЧ, КГЧ и ПГЧ соответственно. Исходная конфигурация ударников представлена на рис. 1. Диаметр ударников в цилиндрической части составлял 6,1 мм, а масса была равной 2,55 г. Начальная скорость была равной 700 м/с. Материал ударника – сталь ШХ-15, преграда моделировалась низкоуглеродистой сталью Ст.3. Физико-механические характеристики были взяты из работы [4].

Исследование процесса пробития слоистых преград удлиненными ударниками. Серия вычислительных экспериментов проведена для двумерного осесимметричного случая при помощи программного комплекса «Удар.2D» [5]. Расчетным путем установлено, что процесс пробития преград проходил по механизму «прокола» и выбивания «пробки». В процессе пробития ударника с ОГЧ-преграды (2+2+2) слабые очаги разрушения образовывались на 2-й мкс процесса в зоне контакта «ударник – мишень». Выявлено, что на 4-й мкс носик ударника достиг тыльной стороны верхнего слоя преграды, при этом имело место небольшое уплотнение материала преграды. На 14-й мкс процесса оживальная часть

полностью внедрилась в преграду, причем носик ударника уже достиг тыльной поверхности. Процесс пробития сопровождался выплеском приповерхностных слоев материала в направлении, противоположном вектору скорости ударника.

Анализ деформационных картин и областей разрушения преграды при действии ударника с КГЧ показал, что пробитие верхнего слоя зафиксировано на 7-й мкс процесса. В данный момент времени имело место пластическая деформация среднего слоя и выпучивание с тыльной стороны преграды материала нижнего слоя. В процессе пробития отмечено отслоение слоев и увеличение диаметра пробоины преграды. В процессе пробития зафиксирована пластическая деформация ударника.

Процесс пробития преграды ударником с ПГЧ проходил по механизму выбивания «пробки» с пластическим деформированием ударника. Было зафиксировано укорочение его длины и радиальная деформация. Первые очаги разрушения образовывались на 4-й мкс в материале ударника.

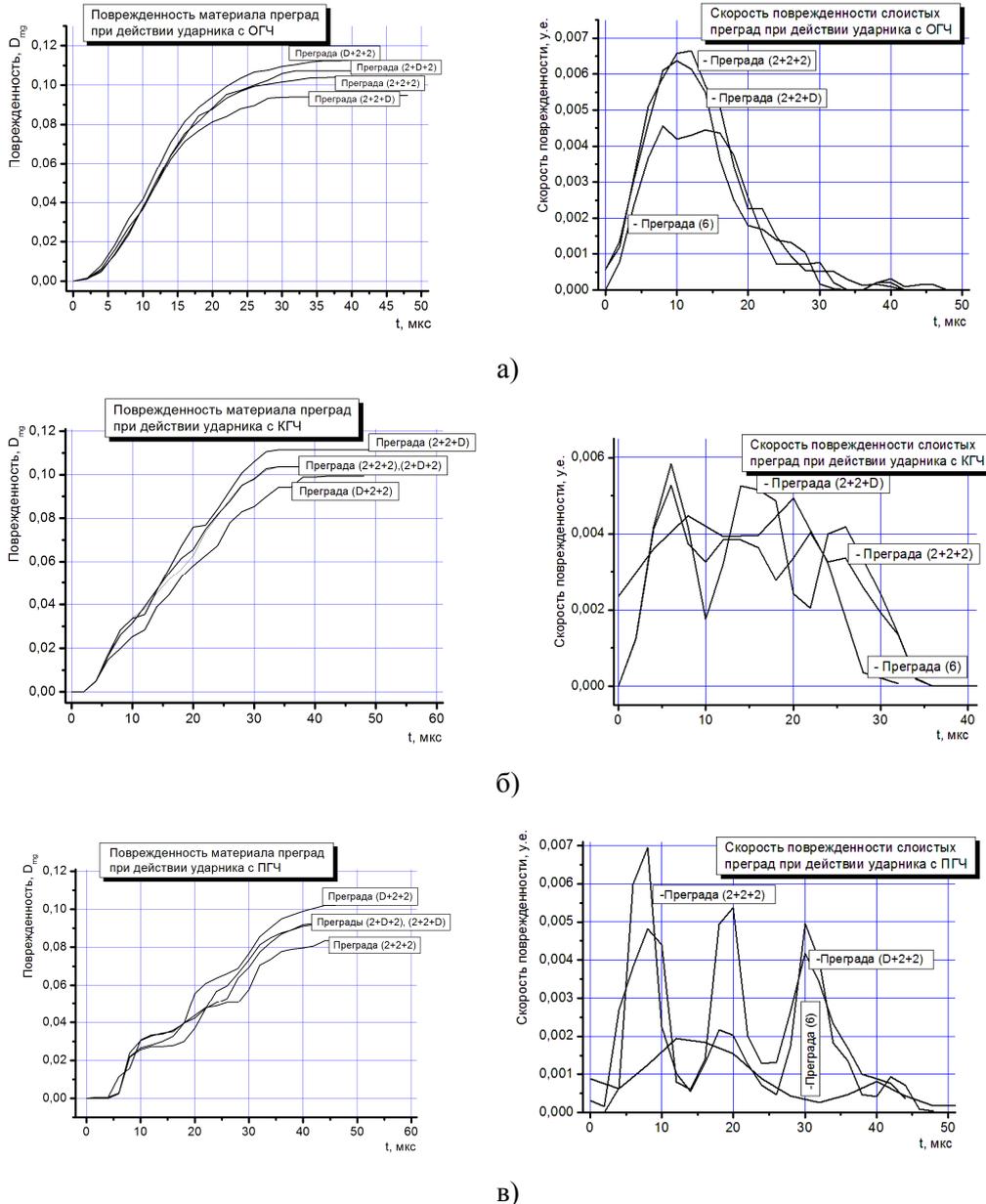


Рис. 2. График зависимости поврежденности и скорости поврежденности материала преград от времени

Видно, что снижение скорости ударника проходило по гиперболическому закону. На кривых были отмечены участки быстрого и медленного снижения скорости ударника. Установлено, что при действии ударника с ОГЧ и КГЧ кривые на графике расходились, при действии ударника с ПГЧ практически все кривые сливались в одну.

На рис. 2а, в приведены графические зависимости поврежденности и скорости поврежденности материала преград от времени для 12 вариантов расчетов. Параметр поврежденности впервые был предложен в

работе [6]. Видно, что развитие поврежденности в материале преград происходит практически в течение всего процесса взаимодействия. Объем разрушенного материала при действии всех типов ударников практически одинаковый. При действии ударника с ОГЧ начало процесса разрушения преград совпадает с началом процесса пробития и протекает вплоть до 30 мкс. При действии ударников с КГЧ и ПГЧ начало процесса разрушения фиксировалось на 3 и 5 мкс соответственно. При действии ударников с ПГЧ на кривых наблюдаются «ступеньки», которые можно объяснить деформационным характером процесса.

Графическая зависимость скорости поврежденности материала преград от времени для каждого типа ударников несколько отличается. При действии ударников с ОГЧ кривые скорости поврежденности имеют вид перевернутой параболы, вершина которой указывает на максимум скорости. Расчетным путем установлено, что максимум скорости поврежденности при действии ударников с ОГЧ фиксировался с 10-й по 12-ю мкс, т.е. когда оживало ударника вплотную взаимодействовало со слоями преграды. При действии ударников с КГЧ и ПГЧ на кривых скорости поврежденности имели место многочисленные локальные максимумы и минимумы, наличие которых связано контактными поверхностями внутри преград.

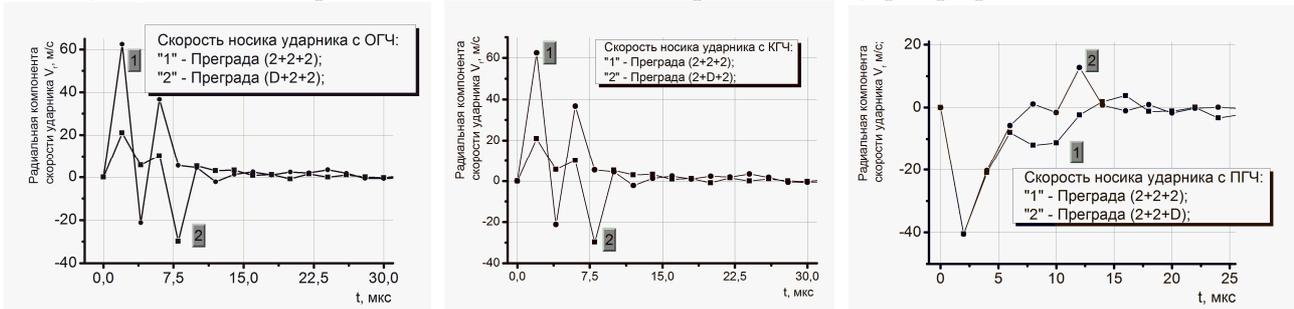


Рис. 3. График зависимости радиальных скоростей носика ударника от времени

График зависимости радиальной компоненты скорости носика ударника представлен на рис. 3. Видно, что в случае действия ударников с ОГЧ и КГЧ по преградам (2+2+2), (D+2+2) и (2+D+2) характер кривых был похожим. В случае пробития ударниками трехслойных преград на кривых радиальной скорости наблюдались два локальных максимума в начале процесса взаимодействия, а после 10-й мкс скорость стремилась к нулю. Максимум скорости зафиксирован на 2 мкс и составил 62,5 м/с. При действии ударника с ПГЧ по трех- и четырехслойным преградам кривые скорости имели иной характер. В начале процесса пробития на обоих кривых имел место резкий отрицательный выброс скорости. Максимум скорости был отмечен в случае четырехслойной преграды на 12-й мкс.

Обсуждение результатов. В таблице представлены результаты расчетов процесса пробития слоистых преград удлиненными ударниками. Для сравнительного анализа в таблицу введены расчетные данные процесса пробития однородной преграды толщиной 6 мм, которые были получены ранее.

Таблица

Результаты расчетов процесса пробития слоистых преград удлиненными ударниками

Ударник/ преграда	ОГЧ – ударник				КГЧ – ударник				ПГЧ – ударник			
	t_k [мкс]	V_3 [м/с]	D_{mg} [%]	d_p [мм]	t_k [мкс]	V_3 [м/с]	D_{mg} [%]	d_p [мм]	t_k [мкс]	V_3 [м/с]	D_{mg} [%]	d_p [мм]
(6)	44	444	10,3	6,9	35	349	10,3	7,8	70	40	9,8	9,1
(2+2+2)	47	472	10,4	7,4	49	382	10,3	9,1	48	226	8,3	8,5
(D+2+2)	37	493	11,2	7,4	42	302	9,9	8,5	42	232	10,2	9,2
(2+D+2)	42	483	10,7	7,12	38	390	10,3	8,9	45	238	9,3	9,4
(2+2+D)	32	528	9,47	6,82	40	392	11,1	9,2	48	237	9,5	8,9

где t_k – окончательное время процесса пробития; V_3 – запреградная скорость ударника; D_{mg} – поврежденность преград; d_p – диаметр пробоины

Из таблицы видно, что максимальное время внедрения зафиксировано при действии ударника с ПГЧ в варианте (6), а минимальное при действии ударника с ОГЧ в варианте (D+2+2). В целом время пробития слоистых преград удлиненными ударниками приблизительно одинаково.

Наибольшие значения запреградных скоростей получились при действии ударников с ОГЧ, затем ударников с КГЧ, а наименьшие – при действии ударников с ПГЧ. Это легко объяснить, если вспомнить механизмы пробития преград каждым типом ударников в отдельности. В общем, полученные тенденции

соответствуют общезначимым предположениям, за исключением двух вариантов ((2+2+D) при действии ударника с ОГЧ и (D+2+2) при действии ударника с КГЧ), которые в них не вписываются. Данный факт требует экспериментальной проверки.

Максимальный объем повреждений зафиксирован в варианте (D+2+2) при действии ударника с ОГЧ, а минимальный – в варианте (2+2+2) при действии ударника с ПГЧ. Минимальный диаметр пробоины был отмечен в случае «прокалывания» однородной преграды, а максимальный – при выбивании из нее «пробки».

В заключение отметим, что полученные результаты позволили сделать лишь промежуточный вывод, который заключается в следующем: расположение дополнительного слоя в разных частях слоистых преград (лицевой, средней и тыльной) на процесс их пробития и разрушения практически не влияло. При решении поставленной задачи необходимо увеличить диапазон начальных скоростей, а также рассмотреть другие типы ударников. С точки зрения авторов, это поспособствует увеличению научных знаний о данной проблеме, и может дать ответ на некоторые ее нерешенные аспекты.

Работа выполнена при поддержке РФФИ 13-08-00509.

Библиография

1. Орлов М.Ю., Орлов Ю.Н. Некоторые аспекты процесса пробития слоистых преград удлиненными ударниками // Известия вузов. Физика – 2010. Т. 53, № 12/2. С. 175–181.
2. Gerasimov A.V., Pashkov S.V. Numerical simulation of the perforation of layered barriers // Composites: mechanics, computations, application. An international journal. 2013. V. 4. N 2. P. 97–111.
3. Коняев А.А., Толкачев В.Ф., Платова Т.М. Экспериментальные закономерности разрушения бетонных плит при ударе с учетом масштабных эффектов // Известия высших учебных заведений. Физика. 2012. Т. 55, № 7–2. С. 93–99.
4. Канель Г.И., Разоренов С.В., Уткин А.В., Фортов В.Е. Ударно-волновые явления в конденсированных средах. М.: Янус-К, 1996. 408 с.
5. Орлов Ю.Н., Глазырин В.П., Орлов М.Ю. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №2010610911 от 28.01.2010 «Удар-ОС1. Ударно-волновое нагружение конструкций. Осесимметричная задача».
6. Глазырин В.П., Орлов Ю.Н., Орлов М.Ю. Разрушение льда при ударном и взрывном нагружении // Вычислительные технологии. 2008. Т. 13. Ч. 1. Спец. выпуск. С. 425–432.

ЛОКАЛИЗАЦИЯ ПЛАСТИЧЕСКОЙ ДЕФОРМАЦИИ В ОКРЕСТНОСТИ МИКРО- И НАНОРАЗМЕРНЫХ ПОР ПРИ ВЫСОКОСКОРОСТНОЙ ДЕФОРМАЦИИ МЕТАЛЛОВ

Воробьев Ю.В., * Майер А.Е.

Челябинский государственный университет

* mayer@csu.ru

В данной статье представлены результаты континуального (на основе модели дислокационной пластичности) и молекулярно-динамического моделирования высокоскоростной пластической деформации металлов с порами. Показано, что поры выступают в качестве концентраторов напряжений и вызывают локализацию пластического течения на масштабах много больше собственных размеров. Эффективность поры как инициатора локализации существенно больше, чем эффективность возмущения поля плотности дислокаций или температуры, исследованных ранее.

Ключевые слова: локализация пластической деформации, металл, поры, континуальное моделирование, молекулярная динамика.

LOCALIZATION OF PLASTIC DEFORMATION IN SURROUNDS OF MICRO- AND NANO-PORES AT HIGH STRAIN RATES IN METALS

Vorobyov Yu.V., Mayer A.E.

Chelyabinsk State University

In this paper we present the results of the continuous modeling (based on dislocation plasticity model) and molecular dynamics simulations of high strain rate plastic deformation of metal with pores. It is shown that pores act as stress concentrators which cause localization of plastic flow at the spatial scale much larger than their size. Effectiveness of pore as a localization initiator is much higher than the effectiveness of perturbations of dislocation density and temperature, which were studied before.

Keywords: localization of plastic deformation, metal, pore, continuous modeling, molecular dynamics.

Введение, задачи исследования. Многочисленные экспериментальные исследования показывают, что локализация пластического течения имеет место как при квазистатической, так и при динамической деформации металлов. Она приводит к образованию выделенных областей (линий, полос сдвига), в которых величина пластической деформации и плотность дефектов кристаллической решетки в разы превышают значения этих величин в окружающем металле [1–4]. Традиционно локализация считается проявлением термопластической неустойчивости пластической деформации [1–3], при которой происходит связанный рост величины деформации, температуры и уменьшение сдвиговой прочности (тепловое разупрочнение). В то же время во многих материалах, подверженных локализации, пластическая деформация приводит лишь к незначительному росту температуры, который недостаточен для ошутимого теплового разупрочнения [5, 6]. Высокоскоростная инфракрасная съемка [7, 8] показывает, что даже в областях локализации пластического течения рост температуры не превышает 10 К в железе [7] и 100 К в титане [8]. Все это ставит под сомнение роль механизма термопластической неустойчивости в явлении локализации.

В работах [9, 10] на основе модели дислокационной пластичности [11, 12] проведено численное исследование влияния начальных возмущений температуры и плотности дислокаций на локализацию пластического течения при высокоскоростном сдвиге. Показано, что развитие термопластической неустойчивости не наблюдается, а основной причиной локализации является неоднородность распределения сдвиговых напряжений. В [9,10] высказано предположение, что наличие в материале различных неоднородностей, таких как поры или включения, должно приводить к иницированию локализации. В данной работе на основе континуального подхода, изложенного в [9], численно исследуется влияние пор микрометровых размеров на однородность пластической деформации при высокоскоростной деформации сдвига. Также методом молекулярной динамики исследована картина пластического течения в образцах с нанометровыми порами, подвергаемых всестороннему сжатию.

Результаты исследования

Континуальное моделирование. Аналогично [9] рассмотрим высокоскоростную деформацию чистого сдвига в следующей двумерной постановке. Образец металла до деформации имеет квадратное сечение $L \times L$. Нижняя грань ($y = 0$) покоится $\vec{v}(y = 0) = 0$, а верхняя грань ($y = L$) движется вдоль нижней грани с постоянной скоростью $v_x(y = L) = L \cdot \dot{\varepsilon}$ и $v_y(y = L) = 0$, где $\dot{\varepsilon}$ – скорость деформации, ε – текущая деформация. На боковых гранях задаются периодические граничные условия. Размер образца L выбирается достаточно малым, чтобы в случае однородного образца без пор и включений реализовывалась однородная деформация. Начальное поле скоростей $v_x(x, y) = y \cdot \dot{\varepsilon}$, $v_y(x, y) = 0$ соответствует однородному простому сдвигу, таким образом, начальная скорость деформации одинакова по всему образцу. В центре образца задавалась пора (полость) квадратного либо круглого сечения с поперечным размером h (сторона квадрата либо радиус круга). В случае периодических граничных условий это эквивалентно деформации бесконечно длинного в направлении сдвига образца с системой пор, центры которых удалены друг от друга на L .

Наличие поры вызывает перераспределение сдвиговых напряжений в ее окрестности, то есть пора выступает в роли концентратора напряжений. Характерное поле интенсивности сдвиговых напряжений в окрестности поры приведено на рис. 1, оно соответствует моменту времени перед началом пластического течения, когда сдвиговые напряжения максимальны. По диагональным направлениям происходит ослабление сдвиговых напряжений (светлые полосы), а между ними образуются расходящиеся лепестками области повышенных напряжений (темные области).

Неоднородное распределение напряжений вызывает неоднородное распределение интенсивности пластической деформации, характерное распределение представлено на рис. 2. Формируется область интенсивной пластической деформации в непосредственной окрестности поры, а также расходящиеся лепестками области повышенной пластической деформации, в которых деформация максимальна по границам «лепестков». Деформация неоднородна во всем объеме образца, то есть на масштабе $L \gg h$.

Приведенные на рис. 1 и 2 распределения соответствуют случаю поры квадратного сечения, но характер распределения интенсивности пластической деформации в образце практически не зависит от формы поры. Аналогичные результаты были получены для пор круглого сечения.

На рис. 3 приведены зависимости $\Delta w(\varepsilon)$, где Δw – среднеквадратичное отклонение интенсивности пластической деформации, характеризующее эффективность локализации. Рассмотрены случаи наличия поры и начального возмущения поля плотности дислокаций в виде случайного распределения или в виде горизонтальной полосы с повышенной плотностью дислокаций. На начальных этапах пластического течения, при $\varepsilon = (0.5 \div 0.8)\%$, эффективности локализации во всех случаях сопоставимы, но при больших ε пора обеспечивает существенно более эффективную локализацию пластического течения. Аналогичные сравнения показывают, что механизм локализации, связанный с наличием поры, существенно эффективнее начального возмущения температуры и сопоставим с наличием свободных границ [9], которые можно интерпретировать как наличие пор с размером $h \approx L$.

На рис. 4 представлены результаты расчетов для пор различных размеров с квадратным поперечным сечением. Видно, что чем больше размер поры, тем больше вызываемая ею степень неоднородности. Результаты для пор круглого сечения с диаметром h с хорошей степенью точности совпадают кривыми для пор квадратного сечения с теми же h . Таким образом, степень локализации зависит от максимального линейного размера поры, а не от ее формы или, например, не от площади поперечного сечения.

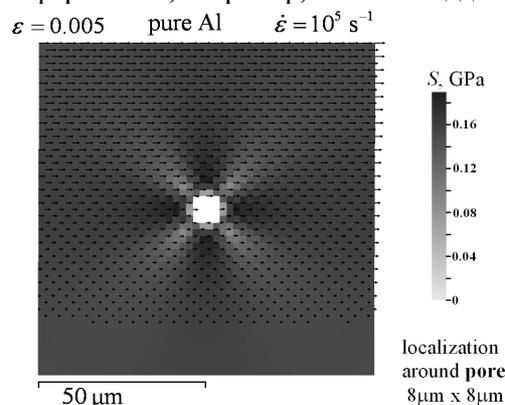


Рис. 1. Распределение интенсивности сдвиговых напряжений вокруг поры (в центре картинке пора квадратного сечения 8×8 мкм). Чистый алюминий, сдвиговая деформация со скоростью 10^5 c^{-1} , текущая деформация 0.5 %

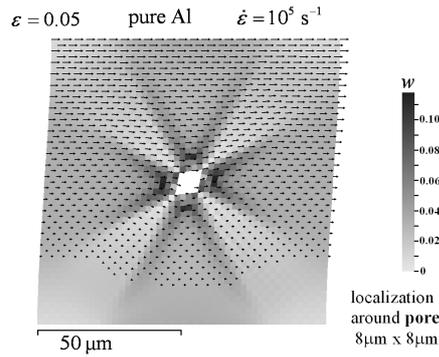


Рис. 2. Распределение интенсивности пластической деформации вокруг поры (в центре картинки пора квадратного сечения 8x8 мкм)

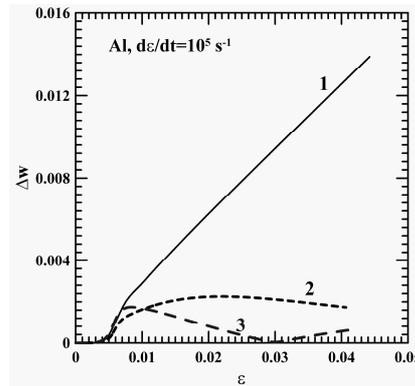


Рис. 3. Сравнение эффективности локализации пластической деформации, вызванной: наличием поры квадратного сечения размером $h = 4$ мкм (кривая 1), случайным возмущением поля плотности дислокаций (кривая 2) и наличием узкой горизонтальной полосы с повышенной в 10 раз плотностью дислокаций

На рис. 5 представлена зависимость $\Delta w(h)$ при фиксированном $\varepsilon = 4\%$. Видно, что в определенном диапазоне размеров зависимость хорошо аппроксимируется линейной функцией, но для очень малых пор такая линейная зависимость нарушается, а расчеты дают $\Delta w = 0$ при $h = 0$.

Численные исследования проводились для различных материалов при разных скоростях деформации. На рис. 6 приведены зависимости интенсивности пластической деформации от полной деформации для чистого алюминия и сплава алюминий-медь. Пластическое течение и его локализация в сплаве начинаются позже, чем в чистом металле. Это обусловлено большей величиной статического предела текучести для сплава. Наклон кривых $\Delta w(\varepsilon)$ для сплава больше, чем для чистого металла, поэтому вскоре после начала пластического течения степень локализации в нем превышает величину Δw в чистом алюминии. С ростом скорости деформации увеличивается значение ε , при котором начинается пластическая деформация, а наклон кривых $\Delta w(\varepsilon)$ на соответствующих участках меняется слабо.

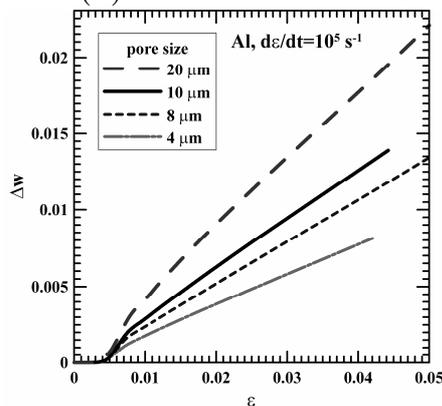


Рис. 4. Зависимости степени локализации пластической деформации от полной деформации в чистом алюминии при наличии пор различных размеров

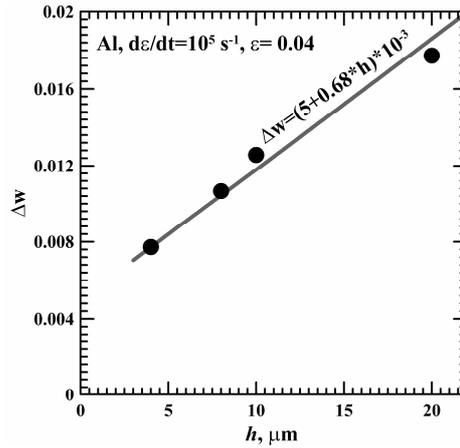


Рис. 5. Зависимости степени локализации пластической деформации в чистом алюминии от размера поры

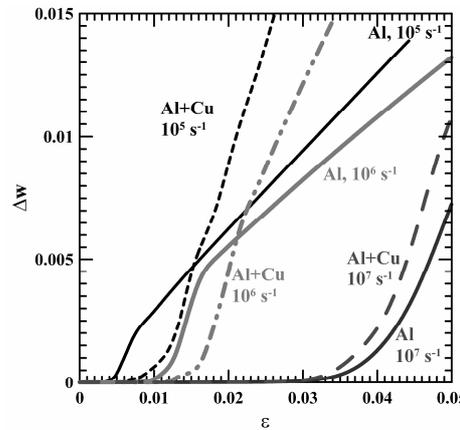


Рис. 6. Степень локализации пластической деформации в зависимости от полной деформации в чистом алюминии и сплаве алюминий-медь. Расчеты при различных скоростях деформации сдвига

На рис. 7 приведены результаты расчетов для чистой меди, алюминия и железа. Характер кривых зависимостей $\Delta w(\varepsilon)$ одинаков для всех металлов. Количественно результаты для алюминия и меди близки друг к другу, поскольку эти металлы имеют близкое значение статического предела текучести. Локализация в железе оказывается более интенсивной.

Во всех исследованных случаях поры вызвали существенную локализацию пластического течения в масштабах много больше собственных размеров. Наличие в материале хаотически распределенных пор с объемной долей менее 0.5 % способно, по-видимому, вызывать появление системы полос сдвига при прохождении по материалу ударной волны – аналогично возмущению поля плотности дислокаций [10].

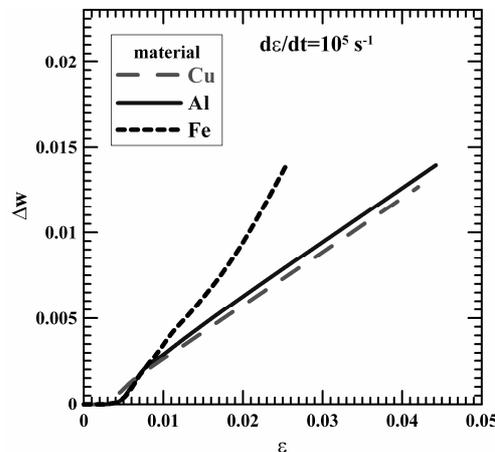


Рис. 7. Зависимости степени локализации пластической деформации от полной деформации в алюминии (Al), меди (Cu) и железе (Fe). Пора квадратного сечения, $h = 10$ мкм

Молекулярно-динамическое моделирование. Проводилось молекулярно-динамическое моделирование всестороннего сжатия металлических образцов с порами нанометровых размеров. Чётко выделяются упругая фаза сжатия и фаза пластического течения. Наличие пор приводит к перераспределению, концентрации напряжений, в результате вокруг пор начинается пластическое течение, приводящее к их схлопыванию.

Метод молекулярной динамики используется при исследовании систем, состоящих из большого числа атомов. При этом рассматривается движение каждого атома в классическом приближении. Использовался пакет молекулярной динамики LAMMPS [13]. Этот пакет реализует распараллеливание вычислений по методу «зоны перекрытия» для алгоритмов молекулярной динамики. Разные виды потенциалов поддерживаются в составе множества модулей внутри интерактивной оболочки. Командный набор оболочки LAMMPS позволяет задавать параметры моделирования. Вычисления проводились на компьютерном кластере научно-исследовательского центра «Суперкомпьютерных технологий и открытого программного обеспечения» ФГБОУ ВПО «ЧелГУ», кластер включает 12 узлов по 12 ядер Intel Xeon X5650 со средой коммутации InfiniBand DDR 20 Gbit/s.

Было разработано специальное программное обеспечение «хузодумп», которое позволяет (1) создавать и изменять конфигурации атомов, подходящие для использования в LAMMPS, а также (2) анализировать конфигурацию атомов на предмет объёмной пористости с последующим построением графической диаграммы распределения вещества и дислокаций в заданном слое образца. С помощью «хузодумп» были созданы конфигурации атомов для образца ГЦК меди, в которой имеются наноразмерные поры. Было промоделировано обжатие кубического образца пористой ГЦК меди с длиной стороны 46 нм, состоящего из 8 миллионов атомов. Для меди использовался потенциал «universal3», соответствующий модели погруженного атома (EAM). Теоретические основы для разработки EAM потенциалов были хорошо изучены в конце 80-х гг. [14,15]. В расчетах варьировался начальный размер пор и количество пор. Были также проведены симуляции при удвоенной скорости обжатия и с потенциалом взаимодействия «universal6». С помощью «хузодумп» на каждом шаге моделирования проводился анализ образца – оценивалась текущая объёмная пористость, автоматически строились схематические диаграммы распределения вещества и дислокаций в образце.

Для визуализации дислокаций использовался центросимметрический коэффициент, вычисляемый LAMMPS по алгоритму невязки кристаллической решётки (суммирование антисимметричных векторов для 12 позиций кристаллической решётки вокруг данного атома). Начальная кристаллическая решётка вокруг пор идеальная, без дефектов.

На рис. 8 показано изменение давления в системе со временем. Термодинамическое состояние системы управлялось термобаростатом Нозе-Гувера, для которого было задано увеличение целевого давления с постоянной скоростью. В момент, когда в образце начнётся процесс пластического течения, давление в системе станет существенно отличаться от целевого давления, которое используется термобаростатом.

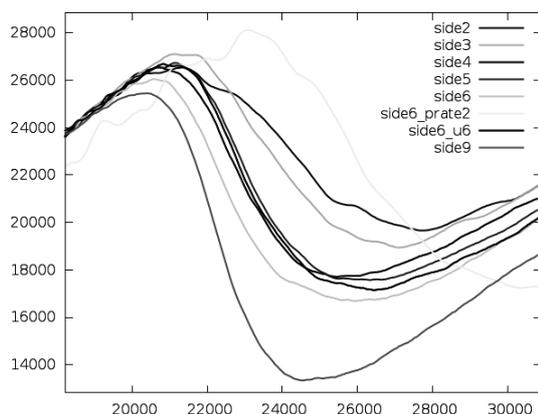


Рис. 8. Изменение давления в системе во время симуляции. По вертикальной оси давление в системе [бар]. По горизонтальной оси время в виде номера текущей итерации, каждая итерация 0.002 пс. Для образца «side6_u6» используется потенциал «universal6». Для образца «side6_prate2» использовалась более быстрая деформация (в 2 раза быстрее)

На рис. 9, 10 показаны схематические диаграммы дислокационных областей для следующих стадий: достижение упругого предела (рис. 9) и разрастание дислокационной сети (рис. 10). Объёмная скорость деформации сжатия составляла 10^9 с^{-1} .

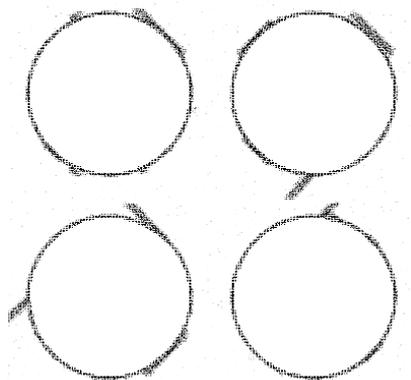


Рис. 9. Начало процесса генерации дислокационных участков возле границ пор; 0.04 нс.
Скорость деформации сжатия 10^9 с^{-1}

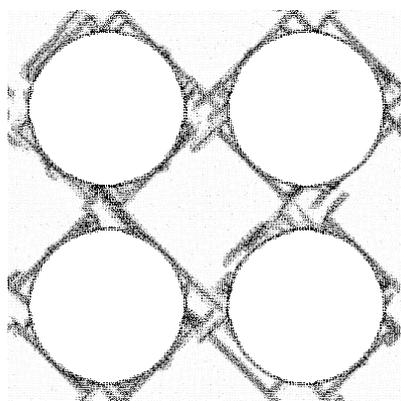


Рис. 10. Начало процесса генерации дислокационных участков возле границ пор; 0.05 нс.
Скорость деформации сжатия 10^9 с^{-1}

Общее время моделирования составляло 150 пс (75 пс для симуляции с обозначением «grate2»). Время расчёта одной симуляции в конфигурации openmpi 4x4x4 процессорных ядер составляло 8-9 часов.

За время одной симуляции давление увеличивалось с 0 до 100 килобар (10^{10} Па). Температура поддерживалась постоянной и составляла 300 К. До сжатия начальные положения атомов были выбраны равновесными, так чтобы не возникало напряжений. Затем с помощью специального ПО конфигурация атомов корректируется – выбирается конфигурация пор, новая конфигурация атомов подготавливается для моделирования. На старте симуляции скорости каждого атома выбираются случайно, но достаточно быстро (менее 2 пс) приходят в тепловое равновесие с термобаростатом.

Выводы. На основе дислокационной модели пластичности проведены численные исследования локализации пластической деформации в окрестностях пор. Наличие поры вызывает локализацию пластического течения в масштабах много больше размеров самой поры. Степень локализации пропорциональна линейному размеру поры и слабо зависит от ее формы, также форма поры практически не оказывает влияния на картину распределения сдвиговых напряжений и пластической деформации, за исключением непосредственной окрестности дефекта. Эффективность поры как инициатора локализации существенно больше, чем эффективность возмущения поля плотности дислокаций или температуры [9, 10]. Наличие в материале хаотически распределенных пор с объемной долей менее 0.5 % способно, по видимому, вызывать появление системы полос сдвига при прохождении ударной волны. Последнее утверждение является нашим предположением, основанным на аналогии с дислокациями [10], и нуждается в дальнейшей проверке путем прямого моделирования образца материала с большим количеством пор.

Молекулярно-динамическое моделирование всестороннего сжатия металла с нанопорами подтверждает общий вывод о том, что поры выступают в роли инициаторов пластического течения. Наличие пор приводит к перераспределению, концентрации напряжений, появлению сдвиговых напряжений, которые даже при изначально идеальной кристаллической решетке вокруг пор вызывают гомогенное зарождение дислокаций и инициируют пластическое течение, приводящее к схлопыванию пор.

Работа выполнена при поддержке гранта Президента Российской Федерации (№ МД-286.2014.1) и Минобрнауки Российской Федерации по ФЦП «Кадры» (соглашение № 14.В37.21.0384).

Библиография

1. Zener C., Hollomon J.H. Effect of strain rate upon plastic flow of steel // *Journal of Applied Physics*. 1944. V. 15. P. 22–32.
2. Bai Y., Dodd B. *Adiabatic shear localization: occurrence theories and applications*. Oxford: Pergamon Press, 1992.
3. Wright T. *The physics and mathematics of adiabatic shear bands*. Cambridge: Cambridge University Press, 2002.
4. Walley S.M. Shear localization: a historical overview // *Metallurgical and Material Transactions A*. 2007. V. 38. P. 2629–2654.
5. Marchand A., Duffy J. An experimental study of the formation process of adiabatic shear bands in a structural steel // *Journal of Mechanics and Physics of Solids*. 1988. V. 36. P. 251–283.
6. Rittel D., Wang Z.G. Thermo-mechanical aspects of adiabatic shear failure of AM50 and Ti6Al4V alloys // *Mechanics of Materials*. 2008. V. 40. P. 629–635.
7. Plekhov O.A., Naimark O.B., Saintier N., Palin-Luc T. Elastic-plastic transition in iron: structural and thermodynamic features // *Technical Physics*. 2009. V. 54. N 8. P. 1141–1146.
8. Plekhov O., Chudinov V., Leont'ev V., Naimark O. Experimental investigations of the laws of energy dissipation during dynamic deformation of nanocrystalline titanium // *Technical Physics Letters*. 2009. V. 35. N 1. P. 92–95.
9. Mayer A.E., Borodin E.N., Mayer P.N. Localization of plastic flow at high-rate simple shear // *International Journal of Plasticity*. 2013. V. 51. P. 188–199.
10. Mayer A.E., Borodin E.N., Mayer P.N. Numerical simulation of plastic flow localization in metals at high strain rate simple shear and at shock compression // *Physics of Extreme States of Matter – 2013*. Moscow, 2013. P. 66–69.
11. Krasnikov V.S., Mayer A.E., Yalovets A.P. Dislocation based high-rate plasticity model and its application to plate-impact and ultra short electron irradiation simulations // *International Journal of Plasticity*. 2011. V. 27. N 8. P. 1294–1308.
12. Mayer A.E., Khishchenko K.V., Levashov P.R., Mayer P.N. Modeling of plasticity and fracture of metals at shock loading // *Journal of Applied Physics*. 2013. V. 113. N 19. P. 193508.
13. LAMMPS: <http://lammps.sandia.gov>.
14. Plimpton S.J., Thompson A.P. Computational aspects of many-body potentials // *MRS Bulletin*. 2012. V. 37. P. 513–521.
15. Daw M.S., Baskes M.I. Semiempirical, quantum mechanical calculation of hydrogen embrittlement in metals // *Physical Review Letters*. 1983. V. 50. P. 1285.

**ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ЛАТУНИ ПРИ ВЫСОКИХ
ТЕМПЕРАТУРАХ В РАМКАХ МОДЕЛИ ХАРТРИ – ФОКА – СЛЭТЕРА**

***Кадатский М.А., Хищенко К.В.**

*Объединенный институт высоких температур РАН
Московский физико-технический институт*

***makkad@yandex.ru**

Представлены некоторые результаты расчетов термодинамических характеристик латуни ЛА90-1 (сплава меди 90 % по весу, цинка 9 % по весу и алюминия 1 % по весу) при высоких температурах по модели Хартри – Фока – Слэтера. Проводится анализ взаимодействия вещества малой добавки (алюминия) с другими компонентами сплава. Дано сравнение расчетных характеристик с результатами других теоретических подходов: модели Томаса – Ферми и модели постоянной плотности электронов.

Ключевые слова: квантово-статистические расчеты, модель Хартри – Фока – Слэтера, модель Томаса – Ферми, сплав, латунь, медь, цинк, алюминий, высокие температуры.

**THERMODYNAMIC PROPERTIES OF BRASS AT HIGH TEMPERATURES
IN THE FRAMEWORK OF HARTREE – FOCK – SLATER MODEL**

Kadatsky M.A., Khishchenko K.V.

*Joint Institute for High Temperatures RAS
Moscow Institute of Physics and Technology*

Some results of calculations of thermodynamic properties of brass LA90-1 (alloy of copper 90 % by weight, zinc 9 % by weight, and aluminum 1 % by weight) at high temperatures in the framework of Hartree – Fock – Slater model are presented. Interaction of substance of small addition (aluminum) with other components of the alloy is analyzed. Calculated characteristics are compared with results of other theoretical approaches: Thomas – Fermi model as well as constant-electron-density model.

Keywords: quantum-statistical calculations, Hartree – Fock – Slater model, Thomas – Fermi model, alloy, brass, copper, zinc, aluminum, high temperatures.

Введение. Для построения уравнения состояния вещества в широком диапазоне температур и плотностей успешно применяются различные квантово-статистические модели, в том числе модифицированная модель Хартри – Фока – Слэтера (ХФС) [1].

Модель ХФС имеет широкое практическое применение. Помимо уравнения состояния, она позволяет определять коэффициенты теплопроводности и спектральные коэффициенты поглощения вещества при высоких плотностях энергии [1]. Важной и отдельной задачей при этом является расчет свойств веществ, представляющих собой смесь различных химических элементов (соединения, сплавы и другие смеси). В частности, даже небольшие примеси способны сильно изменить коэффициенты непрозрачности материала [2]. Для подобных расчетов были предложены методы определения самосогласованных потенциалов для смеси простых веществ [3].

В настоящей работе метод [3] применяется для расчета термодинамических функций смеси, что имеет важное практическое значение, поскольку сплавы и соединения широко применяются в качестве материалов различного назначения, в том числе при интенсивных силовых и тепловых нагрузках [4]. Знание уравнения состояния вещества необходимо для проведения численного моделирования процессов, протекающих в этих условиях [4–6].

Рассчитаны характеристики латуни марки ЛА90-1 (сплав меди 90 % по весу, цинка 9 % по весу и алюминия 1 % по весу) при высоких температурах с помощью модели ХФС без учета релятивистских эффектов и зонной структуры электронного спектра. Проведено сравнение с результатами других квантово-статистических моделей в заданном диапазоне температур и плотностей. В качестве других (более простых) моделей для сравнения были выбраны модель постоянной плотности электронов (ППЭ) [1] и модель Томаса – Ферми (ТФ) [7].

Метод согласования химических потенциалов для смеси веществ. Задача определения самосогласованных атомных потенциалов для смеси химических элементов является более сложной, по сравнению с задачей для простых веществ, поскольку при термодинамическом равновесии накладывается дополнительное условие на равенство химических потенциалов каждого из компонентов смеси.

Для ячеечных моделей строения вещества ранее был разработан метод [3], который позволяет согласовать химические потенциалы, рассчитанные отдельно для каждого из компонентов. Подробное описание этого метода приведено в работе [3], здесь остановимся лишь на основных его особенностях.

Рассмотрим смесь из N компонентов с атомными весами A_i , парциальными плотностями ρ_i и массовыми долями m_i/A_i . Температура T и плотность смеси ρ_m известны.

В условиях термодинамического равновесия приведенные химические потенциалы компонентов $\eta_i = -\mu_i/\theta$, где $\theta = 36.75T$, T – температура в кэВ, должны быть равны между собой. Кроме того, сумма объемов компонентов смеси и объем самой смеси равны. Это дает связь между парциальными плотностями и средней плотностью.

Радиус атомной ячейки для i -того компонента r_{0i} [1] и парциальные плотности связаны соотношением (использована атомная система единиц):

$$r_{0i} = 1.3882(A_i/\rho_i)^{1/3}. \quad (1)$$

Тогда, учитывая связь плотностей, в итоге можно получить для смеси:

$$\sum_{i=1}^N \frac{m_i}{A_i} r_{0i}^3 = \rho_m^{-1} \sum_{i=1}^N m_i = B. \quad (2)$$

Здесь B – величина, прямо пропорциональная объему смеси, отнесенному к среднему атому.

Далее приведем итерационный метод согласования химических потенциалов. На шаге итерации (p) для каждого из компонентов смеси, по заданной ячейечной модели, определяются значения $\eta_i(r_{0i}^{(p)})$. Тогда значения на следующем шаге $(p+1)$ для радиуса ячейки находятся как

$$(r_{0i}^3)^{(p+1)} = (r_{0i}^3)^{(p)} + \frac{Y - \eta(r_{0i}^{(p)})}{\eta'(r_{0i}^{(p)})}, \quad (3)$$

$$Y = \left[B + \sum_{i=1}^N \frac{m_i}{A_i} \frac{\eta(r_{0i}^{(p)})}{\eta'(r_{0i}^{(p)})} - \sum_{i=1}^N \frac{m_i}{A_i} (r_{0i}^3)^{(p)} \right] \left[\sum_{i=1}^N \frac{m_i}{A_i} \frac{1}{\eta'(r_{0i}^{(p)})} \right]^{-1}. \quad (4)$$

Для вычисления производной η_i' используем разностную формулу

$$\eta_i'(r_{0i}^{(p)}) \approx \frac{\eta_i(r_{0i}^{(p)}) - \eta_i(r_{0i}^{(p-1)})}{r_{0i}^{(p)} - r_{0i}^{(p-1)}}. \quad (5)$$

Это итерационный метод ньютоновского типа можно представить в виде

$$(r_{0i}^3)^{(p+1)} = A(r_{0i}^3)^{(p)},$$

где A – некоторый нелинейный оператор. Значения при $p = 0$ задаются через заранее определенное начальное приближение данного ячейечного метода. Если начальное приближение плохо согласуется с основным методом, то итерации будут расходиться. Поэтому для улучшения сходимости используем линейную комбинацию итераций:

$$(r_{0i}^3)^{(p+1)} = (1 - \alpha)(r_{0i}^3)^{(p)} + \alpha A(r_{0i}^3)^{(p)}, \quad (6)$$

$\alpha \in [0, 1]$.

Итерации выполняются до совпадения последовательных радиусов ячейки с определенной точностью. Окончательное значение для химического потенциала смеси задается как $\eta = Y$.

Модель ХФС для выделенного компонента смеси. Модель ХФС – квантово-статистическая ячейечная модель свойств вещества. Она является модификацией модели Хартри, в которой дополнительно учтены обменные эффекты.

Аналогично модели Хартри, электронная плотность $\rho_e(r)$ рассматривается разделенной на две части, соответствующие электронам дискретного и непрерывного спектров:

$$\rho_e(r) = \rho_1(r) + \rho_2(r). \quad (7)$$

Вклад в (7) от электронов непрерывного спектра вычисляется в квазиклассическом приближении:

$$\rho_2(r) = \frac{2}{(2\pi)^3} \int_0^\infty \frac{4\pi p^2 dp}{1 + \exp[(p^2/2 - U(r) - \mu)/\theta]}; \quad \frac{p^2}{2} \geq U(r) + \varepsilon_0. \quad (8)$$

Здесь ε_0 – энергия, определяющая границу между состояниями дискретного и непрерывного спектра, $V(r)$ – самосогласованный потенциал. В потенциале $V(r)$ кроме кулоновского вклада, дополнительно учтем обменную поправку:

$$V(r) = V_{\bar{e}}(r) + V_{\text{ex}}(r), \quad (9)$$

для которой построена следующая интерполяционная формула [1]:

$$V_{\text{ex}}(r) = \frac{\pi\rho_e}{\theta} \left[1 + 5.7 \frac{\rho_e}{\theta^{3/2}} + \frac{\pi^4}{3} \frac{\rho_e^2}{\theta^3} \right]^{-1/3}. \quad (10)$$

Кулоновский вклад в самосогласованный потенциал считается аналогично другим ячеечным моделям:

$$V_{\bar{e}}(r) = \frac{Z}{r} - 4\pi \left[\frac{1}{r} \int_0^r \rho_e(r') r'^2 dr' + \int_r^{r_0} \rho_e(r') r' dr' \right]. \quad (11)$$

Вклад от электронов дискретного спектра вычисляется непосредственно по волновым функциям:

$$\rho_1(r) = \frac{1}{4\pi r^2} \sum_{nl} N_{nl} R_{nl}^2(r). \quad (12)$$

Числа заполнения электронных состояний вычисляются по формуле Ферми – Дирака:

$$N_{nl} = \frac{2(2l+1)}{1 + \exp[(\varepsilon_{nl} - \mu)/\theta]}. \quad (13)$$

Здесь ε_{nl} и $R_{nl}(r)$ – собственные значения и волновые функции, соответствующие главному квантовому числу n и орбитальному квантовому числу l . Они являются решениями уравнения Шредингера:

$$\left[-\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - U(r) \right] R_{nl}(r) = \varepsilon_{nl} R_{nl}(r) \quad (14)$$

с краевыми условиями $R_{nl}(0) = 0$, $R_{nl}(r_0) = 0$ и условием нормировки:

$$\int_0^{r_0} R_{nl}^2(r) dr = 1. \quad (15)$$

Условие электронейтральности атомной ячейки, из которого можно уточнить химический потенциал, записывается в виде:

$$4\pi \int_0^{r_0} \rho(r) r^2 dr = Z. \quad (16)$$

Использованный алгоритм расчета. В качестве начального приближения используем модель ППЭ. В рамках этой модели парциальные плотности компонентов смеси не зависят от температуры вещества и выражаются как

$$\rho_i = \rho_m \left[\sum_i m_i \right]^{-1} \frac{A_i}{Z_i} \sum_i m_i \frac{Z_i}{A_i}, \quad (17)$$

радиус ячейки находится по формуле (1), а используя простую аппроксимацию функции Дирака, можно выразить безразмерный химический потенциал:

$$\eta = \frac{1}{2} \ln \frac{\pi}{6} - \frac{3}{2} \ln \left[\exp^3 \sqrt{\frac{2q^2}{3}} - 1 \right], \quad q = \frac{3}{2} \pi Z_i (2\theta)^{-3/2} r_{0i}^{-3}, \quad (18)$$

дифференцируя его по r_{0i} , найдем значение для $\eta'_i(r_{0i}^{(0)})$.

Электронный вклад в давление и внутреннюю энергию по модели ППЭ ищутся по формулам [8]:

$$P_{ei} = \frac{m_i}{A_i} Z_i \left(\frac{4\pi}{3} r_{0i}^3 \right)^{-1}, \quad (19)$$

$$E_{ei} = \frac{3\theta}{2Z_i} - \frac{9}{10} \frac{36.75 r_{0i}}{Z_i^2} - E_{0i}. \quad (20)$$

Далее вычисляются самосогласованные потенциалы по модели ТФ. Значения при $p = 0$ берутся по модели ППЭ. Затем для каждого из компонентов необходимо вычислить значения $\eta_i(r_{0i}^{(p)})$. Расчет производился методом стрельбы [8]. Одновременно с этим определяется атомный потенциал $V_i(r)$ для i -того компонента. С помощью итерационного процесса (3) получим итоговые значения для радиусов ячеек.

Для электронного давления и энергии по модели ТФ справедливы соотношения:

$$P_{ei} = \frac{m_i (2\theta)^{5/2}}{A_i 6\pi^2} I_{3/2}(-\eta), \quad (21)$$

$$E_{ei} = E_{ki} + E_{pi} = \frac{3\sqrt{2}}{\pi^2} v_i \theta^{5/2} \int_0^1 x^2 I_{3/2} \left(\frac{\varphi(x)}{x} \right) dx - \frac{3}{\sqrt{2}\pi^2} v_i \theta^{5/2} \int_0^1 x^2 \left[\frac{\varphi(x)}{x} + \eta + \frac{Z_i}{\theta r_{0i} x} \right] I_{1/2} \left(\frac{\varphi(x)}{x} \right) dx - E_{0i}, \quad (22)$$

где $I_k(x)$ – функции Ферми – Дирака; $v_i = (4/3)\pi r_{0i}^3$ – объем сферической атомной ячейки; $\varphi(x)$ – безразмерный атомный потенциал, $\varphi(x) = V(r)/\theta - \eta$, $0 \leq x \leq 1$, $x = r/r_0$. Для вычисления $I_k(x)$ были использованы аппроксимации высокой точности, описанные в работах [9, 10].

При нахождении самосогласованных потенциалов по модели ХФС в качестве начального приближения используем результат по модели ТФ. Величина $\eta'_i(r_{0i}^{(0)})$ берется из последней итерации по начальной модели. Расчет для отдельных компонентов проводится с помощью итерационной схемы, описанной в монографии [1]. Поиск уровней энергии и радиальных функций, необходимых для решения, проводится с помощью фазового метода [11, 12].

В рамках допущений модели ХФС важно правильно определить эффективную границу между энергиями электронов дискретного и непрерывного спектра. Для каждого из компонентов смеси задается некоторое максимальное главное квантовое число $n_{\max i}$ и для уровней энергии, которые соответствуют главным квантовым числам больше $n_{\max i}$, спектр электронов принимается непрерывным. Тогда для значения энергетической границы спектра ε_{0i} будет справедливо соотношение

$$\frac{8\sqrt{2}}{3\pi} \int_0^{r_{0i}} (\max[0, \varepsilon_{0i} + V_i(r)])^{3/2} r^2 dr = \sum_{nl} 2(2l+1), \quad \varepsilon_{nl} < \varepsilon_{0i}, \quad n \leq n_{\max i}, \quad (23)$$

решение которого эффективно находится методом деления пополам.

При расчетах величина $n_{\max i} \geq 2$ задавалась так, чтобы для получаемого значения ε_{0i} выполнялись условия $\varepsilon_{0i} < 10$ эВ и $\varepsilon_{0i} < T$. Для алюминия было зафиксировано значение $n_{\max} = 2$, для меди и цинка – $n_{\max} = 3$.

С помощью найденных значений самосогласованных потенциалов вычисляются термодинамические функции модели ХФС [1]:

$$P_{ei} = \frac{m_i}{A_i} \left(\frac{2\sqrt{2}}{3\pi^2} \theta^{5/2} \int_{y_0(r_{0i})}^{\infty} \frac{y^{3/2} dy}{1 + \exp[y - V_i(r_{0i})/\theta + \eta]} + \int_0^{\rho_e(r_{0i})} V_{ex}(\rho') d\rho' - \rho_e(r_{0i}) V_{ex}(\rho_e(r_{0i})) \right), \quad (24)$$

$$E_{ei} = \sum_{nl} \frac{2(2l+1)}{1 + \exp[\varepsilon_{nl}/\theta + \eta]} \int_0^{r_{0i}} [\varepsilon + V_i(r)] R_{nl}^2(r) dr + \frac{4\sqrt{2}}{\pi} \theta^{5/2} \int_0^{r_{0i}} r^2 dr \int_{y_0(r)}^{\infty} \frac{y^{3/2} dy}{1 + \exp[y + V_i(r)/\theta - \eta]} -$$

$$- 2\pi \int_0^{r_{0i}} \left[\frac{Z}{r} + V_i(r) - V_{ex}(r) \right] \rho(r) r^2 dr - 4\pi \int_0^{r_{0i}} \left[\int_0^{\rho(r)} V_{ex}(\rho') d\rho' - \theta \frac{\partial}{\partial \theta} \int_0^{\rho(r)} V_{ex}(\rho') d\rho' \right] r^2 dr - E_{0i}. \quad (25)$$

Здесь $y_0 = y_0(r) = \max[0, (V_i(r) + \varepsilon_{0i})/\theta]$.

Параметры E_{0i} во всех формулах для внутренней энергии (20), (22) и (25) находятся из условия нормировки $E_{ei} = 0$ при $T = 0$, $\rho = 0$ для каждого компонента смеси. После этого можно перейти к парциальным величинам энергии, помножив результат расчета по формулам (20), (22) и (25) на m_i/A_i .

Для всех моделей атомные потенциалы $V(r)$, электронные плотности $\rho_e(r)$ и радиальные функции $R_{nl}(r)$ вычислялись на неравномерной сетке, с шагом по переменной $x = r^{1/2}$, равным $dx = r_0^{1/2}/N$. Интегрирование дифференциальных уравнений и вычисление определенных интегралов проводилось методом Рунге – Кутты 4-го порядка точности с использованием уточняющего правила Рунге – Ромберга [13]. Итерации проводились до получения 5–6 верных значащих цифр результата.

Термодинамические функции латуни. Рассмотрим результаты расчетов для латуни марки ЛА90-1, которая является сплавом меди и цинка, легированным малой добавкой алюминия (1 % по весу). Компоненты сплава (табл. 1) – простые вещества, не образующие устойчивых химических соединений. Кроме того, выбор именно металлических элементов удобен, т.к. моделируется лишь уравнение состояния для электронной подсистемы. Заряды ядер компонентов этой смеси относительно невелики, и можно использовать нерелятивистские формулы без большой потери точности.

Таблица 1

Компонентный состав латуни марки ЛА90-1

	Cu	Zn	Al
Z_i	29	30	13
A_i , а.е.м.	63.55	65.39	26.92
m_i/A_i	0.9	0.09	0.01

На примере латуни удобно рассмотреть как влияние примесей на термодинамические свойства чистых веществ, так и проследить за взаимодействием вещества малой добавки с окружением (алюминия с другими компонентами сплава).

На рис. 1–3 можно видеть основные особенности результатов расчета изохоры латуни $\rho_m = 1 \text{ г/см}^3$ по моделям ХФС и ТФ. При большой температуре ($T > 5 \text{ кэВ}$) парциальные плотности компонентов перестают зависеть от T , и обе модели сравниваются с моделью ППЭ. Тогда как при малых температурах ($T < 10 \text{ эВ}$) наблюдается максимальное расхождение результатов, что говорит о неприменимости одной из моделей или обеих (ХФС и ТФ) в этой области температур.

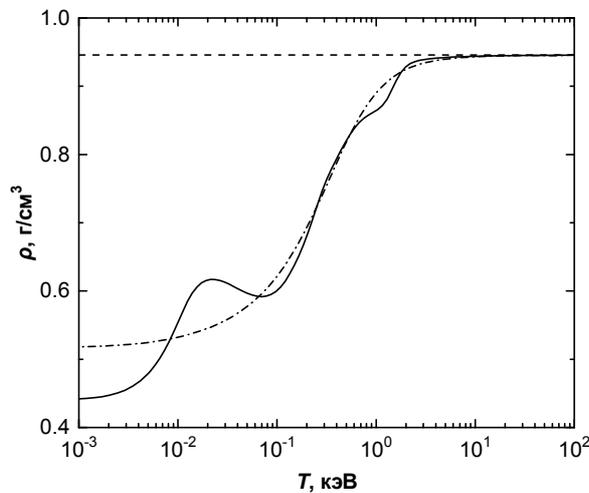


Рис. 1. Парциальная плотность алюминия в латуни в зависимости от температуры при постоянной плотности сплава $\rho_m = 1 \text{ г/см}^3$, рассчитанная по разным моделям: сплошная линия – ХФС, штрихпунктирная линия – ТФ, штриховая линия – ППЭ

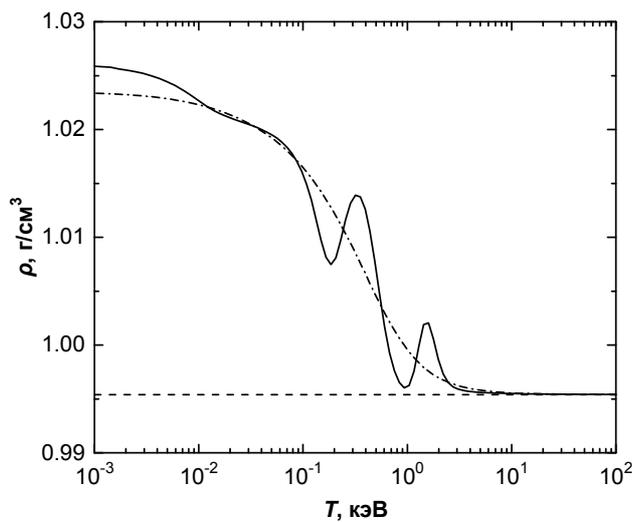


Рис. 2. Парциальная плотность цинка в латуни в зависимости от температуры при постоянной плотности сплава $\rho_m = 1 \text{ г/см}^3$, рассчитанная по разным моделям: обозначения аналогичны рис. 1

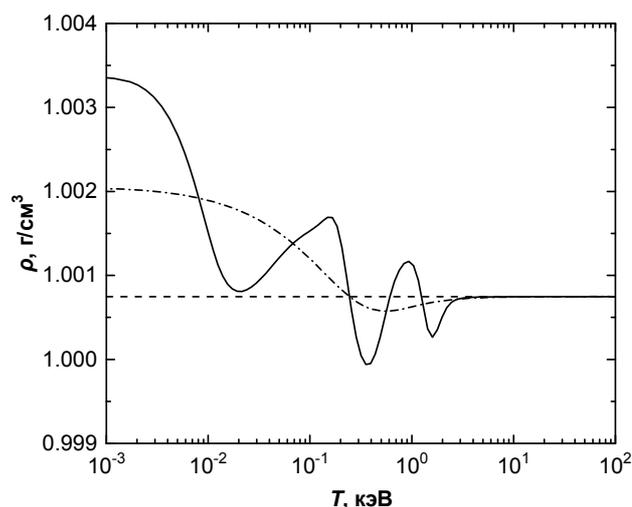


Рис. 3. Парциальная плотность меди в латуни в зависимости от температуры при постоянной плотности сплава $\rho_m = 1 \text{ г/см}^3$, рассчитанная по разным моделям: обозначения аналогичны рис. 1

Из особенностей поведения зависимостей в модели ХФС в области $T < 10 \text{ эВ}$ стоит отметить заметное уменьшение концентрации малой добавки (Al) и одновременное увеличение концентраций остальных компонентов (Cu и Zn). Причем относительное изменение парциальной плотности алюминия велико, а относительные изменения близких по заряду ядра и атомной массе меди и цинка минимальны (рис. 2 и 3), и их парциальные плотности мало отличаются от значений, полученных в модели ППЭ.

При невысоких температурах результаты по моделям ТФ и ХФС существенно различаются в области промежуточных плотностей $1\text{--}100 \text{ г/см}^3$. Это соответствует представлениям об этих моделях в случае простого вещества: для разреженного вещества ($\rho_m < 0.1 \text{ г/см}^3$ на изотерме $T = 10 \text{ эВ}$) справедлив высокотемпературный предел (модели ТФ и ХФС ему удовлетворяют) [1], а при больших плотностях ($\rho_m > 10^3 \text{ г/см}^3$) выполняется приближение вырожденного идеального Ферми-газа для свободных электронов [14]. Расчетная изотерма $T = 10 \text{ эВ}$ для латуни по моделям ТФ и ХФС в координатах давление – плотность показана на рис. 4, который иллюстрирует вышесказанное.

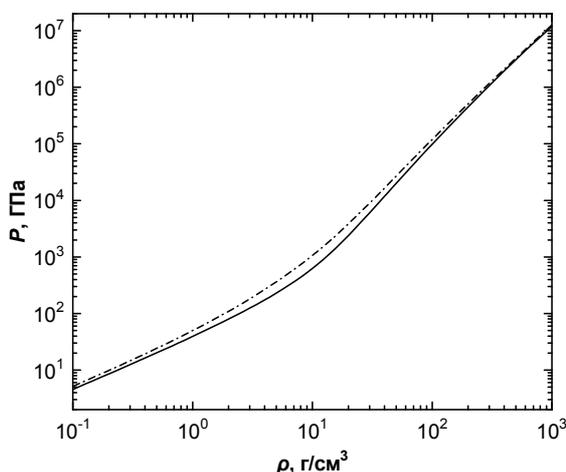


Рис. 4. Электронное давление в латуни при постоянной температуре $T = 10 \text{ эВ}$, рассчитанное по разным моделям: обозначения аналогичны рис. 1

Следует отметить недостаточную эффективность метода поиска самосогласованных потенциалов [3] для смесей, у которых имеются в составе малые по весу примеси (менее 5 %). Это выражается в том, что при плохом выборе начального приближения относительное изменение плотности таких примесей на определенных шагах итерации могут составить более 100 %, что соответствует нефизическим отрицательным значениям плотности. Это ставит вопрос об использовании в таком случае других моделей для начального приближения либо другой методики для самосогласования потенциалов компонентов смеси. Решение этой проблемы позволит провести исследование при более низких температурах, чем в данной работе, т.е. при $T < 1 \text{ эВ}$.

Заключение. В настоящей работе метод согласования химических потенциалов смеси химических элементов был применен для расчета термодинамических характеристик металлического сплава по модифицированной модели ХФС. Полученные по этой модели зависимости сравнивались с результатами по другим моделям (ТФ и ППЭ). Выявлено хорошее согласие результатов ХФС и ТФ в обширной области температур и плотностей, что свидетельствует в пользу предпочтения (из этих двух) более простой модели ТФ соответственно при высоких температурах или при высоких плотностях, или при высоких удельных объемах.

В рамках модели ХФС в области малых температур ($T < 5$ эВ) получено свидетельство существенного влияния даже небольших примесей на термодинамические свойства вещества. Тем не менее это не доказывает полной достоверности модели ХФС в данной области, и для уточнения этого результата могут потребоваться более совершенные модели строения вещества, к примеру, можно перейти от модели среднего атома к учету индивидуальных состояний ионов в смеси веществ [15].

Авторы благодарны Орлову Н.Ю. за важные советы и обсуждение результатов. Работа выполнена при поддержке Президента Российской Федерации (грант № НШ-6614.2014.2), Российского фонда фундаментальных исследований (проекты № 13-08-12248, 14-08-00967 и 14-29-06099) и Президиума РАН (программа № 2П «Вещество при высоких плотностях энергии»).

Библиография

1. Никифоров А.Ф., Новиков В.Г., Уваров В.Б. Квантово-статистические модели высокотемпературной плазмы и методы расчета росселандовых пробегов и уравнений состояния. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2000. 400 с.
2. Orlov N.Yu., Denisov O.B., Vergunova G.A., Rosmej O.N. Mathematical modeling of the Au-doping effect on the radiative properties of porous polymers in experiments with laser and heavy-ion beams // J. Russ. Laser Res. 2014. V. 35, N 2. P. 119–123.
3. Орлов Н.Ю. Метод расчета самосогласованных потенциалов для смеси химических элементов // ЖВММФ. 1986. Т. 26, № 8. С. 1215–1233.
4. Бушман А.В., Канель Г.И., Ни А.Л., Фортов В.Е. Теплофизика и динамика интенсивных импульсных воздействий. Черногловка: ОИХФ АН СССР, 1988. 200 с.
5. Фортов В.Е. Физика высоких плотностей энергии. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2012. 712 с.
6. Фортов В.Е. Уравнения состояния вещества: от идеального газа до кварк-глюонной плазмы. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2013. 492 с.
7. Feynman R.P., Metropolis N., Teller E. Equations of state of elements based on the generalized Fermi – Thomas theory // Phys. Rev. 1949. V. 75, № 10. P. 1561–1573.
8. Калиткин Н.Н., Кузьмина Л.В. Таблицы термодинамических функций вещества при высокой концентрации энергии: препринт № 35. М.: ИПМ АН СССР, 1975. 73 с.
9. Калиткин Н.Н., Кузьмина Л.В. Интерполяционные формулы для функций Ферми – Дирака // ЖВММФ. 1975. Т. 15, № 3. С. 768–771.
10. Калиткин Н.Н., Ритус И.В. Гладкая аппроксимация функций Ферми – Дирака // ЖВММФ. 1986. Т. 26, № 3. С. 461–465.
11. Уваров В.Б., Алдонясов В.И. Фазовый метод определения собственных значений энергий для уравнения Шредингера // ЖВММФ. 1967. Т. 7, № 2. С. 436–439.
12. Никифоров А.Ф., Новиков В.Г. Применение фазового метода для определения собственных значений энергий // Математическое моделирование. 1998. Т. 10, № 10. С. 64–78.
13. Петров И.Б., Лобанов А.И. Лекции по вычислительной математике. М.: Интернет-Университет, 2006. 523 с.
14. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Статистическая физика. Ч. I. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2002. 616 с.
15. Орлов Н.Ю. Квантово-статистический расчет свойств смеси химических элементов с учетом флуктуаций чисел заполнения электронных состояний // ЖВММФ. 1987. Т. 27, № 7. С. 1058–1067.

**ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ДЛИТЕЛЬНОЙ ТЕРМООБРАБОТКИ
НА ДЕТОНАЦИОННЫЙ АЛМАЗОСОДЕРЖАЩИЙ МАТЕРИАЛ**

***Корец А.Я.¹, Королькова И.В.², Крылов А.С.³, Миронов Е.В.¹, Рабчевский Е.В.²**

¹*Сибирский федеральный университет*

²*ИХХТ КНЦ СО РАН*

³*Институт физики, КНЦ СО РАН*

*korets1947@rambler.ru

С целью исследования изменений, происходящих в структуре частиц, полученных в высокоэнергетических условиях взрыва, была произведена термообработка образцов детонационного алмазосодержащего материала в интервале так называемого «кислородного окна» 430 °С. Продолжительность термообработки изменялась от 0,5 часа до 48 часов. Были проведены эксперименты и проанализированы результаты ИК-поглощения, комбинационного рассеяния света, рентгеновской дифракции и динамического рассеяния света термообработанных образцов.

Ключевые слова: детонационный синтез материалов, структурная неоднородность, детонационный алмазосодержащий материал.

**RESEARCH INTO INFLUENCE OF CONTINUAL THERMAL TREATMENT
ON THE DETONATION DIAMOND-CONTAINING MATERIAL**

Korets A.Ya.¹, Korolkova I.V.², Krylov A.S.³, Mironov E.V.¹, Rabchevskii E.V.²

¹*Siberian Federal University*

²*Institute of Chemistry and Chemical Technology SO RAS*

³*Institute of Physics SO RAS*

Thermal treatment of detonation diamond-containing material in the interval of so-called «oxygen window» 430 C to investigate changes in the structure of the particles obtained under explosion conditions was performed. The duration of the thermal treatment varied from 0.5 to 48 hours. Infrared and Raman experiments and data of X-Ray diffraction and dynamic light scattering of the treatment samples were carried out.

Keywords: detonation synthesis, structural heterogeneity, detonation diamond-containing material.

Формирование детонационного алмазосодержащего материала (ДАМ) является сложным физико-химическим процессом, который определяется как термодинамическими, так и кинетическими параметрами [1–2]. Большинство авторов признают, что реальный детонационный алмазосодержащий продукт, формирующийся в экстремальных энергетических условиях взрыва, является неоднородным и состоит из нескольких фазовых компонентов [3–4]. Структурная неоднородность ДАМ связана, во-первых, с высокотемпературными неравновесными условиями синтеза, и, во-вторых, с процессами выделения и очистки ДАМ [5]. Следовательно, можно ожидать, что исследование структуры этого неоднородного материала может быть информативно с позиции понимания процессов детонационного синтеза.

Структурные особенности этого материала, в том числе и структурную неоднородность, часто объясняют [6–7] как следствие только наноразмерности частиц ДАМ, вследствие чего возникает, в частности, особая система агрегирования и особая поверхностная химия этих компонент. В рамках такого подхода предполагается [6–7], что при определенных искусственных условиях можно устранить эту структурную неоднородность ДАМ и получить чистый или почти чистый наноалмаз, то есть тот наноалмаз, который изначально содержался во взрывной шихте, и который по каким-то причинам не мог быть выделен в чистом виде. Условия синтеза как фактор, влияющий на формирование этого материала, в этом случае не рассматривается.

Одним из путей получения «чистого наноалмаза» является технически несложная процедура термообработки вблизи температуры окисления, в интервале так называемого «кислородного окна» [6]. В литературе существуют довольно противоречивые публикации [6–8], описывающие преобразование ДАМ при термообработке до температуры окисления. Некоторые работы [8], наоборот, не подтверждают резкого уменьшения неалмазных компонент в таких условиях.

Целью данной работы является выявление структурных изменений этого материала при последовательной температурной обработке аналитическими методами, способными идентифицировать как примесную часть, так и алмазное зерно ДАМ.

Приборы и материалы. Исследуемые образцы ДАМ были синтезированы в атмосфере CO_2 из смеси взрывчатых веществ тринитротолуола и гексогена. Выделение осуществлялось термоокислением в присутствии борного ангидрида.

Инфракрасные спектры поглощения были получены в диапазоне волновых чисел $400\text{--}4000\text{ см}^{-1}$ на Фурье – спектрометре Tensor 27 (Bruker) при «таблетировании» образцов: 2 мг ДАМ смешивались с 1000 мг КВг и запрессовывались в таблетку.

Спектры комбинационного рассеяния света (КРС) регистрировались на спектрометре T64000 Jobin Yvon в области $100\text{--}4000\text{ см}^{-1}$. Возбуждение осуществлялось аргоновым лазером с длиной волны 514.5 нм и мощностью 37 мВт.

Спектры рентгеновской дифракции были записаны на дифрактометре XRD-6000 Shimadzu.

Распределение частиц по размерам исследовалось с помощью светорассеяния на лазерном анализаторе FRITSCHE ANALYSETTE-22 (He-Ne лазер, $\lambda = 655\text{ нм}$, 7 мВт).

Термообработка осуществлялась в атмосфере воздуха при температуре $430\text{ }^\circ\text{C}$, т.е. внутри так называемого температурного «кислородного окна». Время термоэкспозиции ДАМ составляло 0,5 часа (образец ДАМ0.5), 1 час (ДАМ1), 4 часа (ДАМ4), 9 часов (ДАМ9), 12 часов (ДАМ12), 24 часа (ДАМ24) и 48 часов (ДАМ48), соответственно.

Экспериментальная часть. Спектры рентгеновской дифракции образцов представлены на рис. 1. Размеры d алмазного зерна, вычисленные на основе формулы Шерера по данным рентгеновской дифракции, дают следующие значения: для исходного образца – 5.3 нм, для ДАМ0.5 – 5.0 нм, для ДАМ9 – 5.0 нм, для ДАМ12 – 4.9 нм, ДАМ24 – 4.7 нм, ДАМ48 – 5.0 нм. Наблюдается нелинейное изменение размера частиц ДАМ в зависимости от времени термообработки.

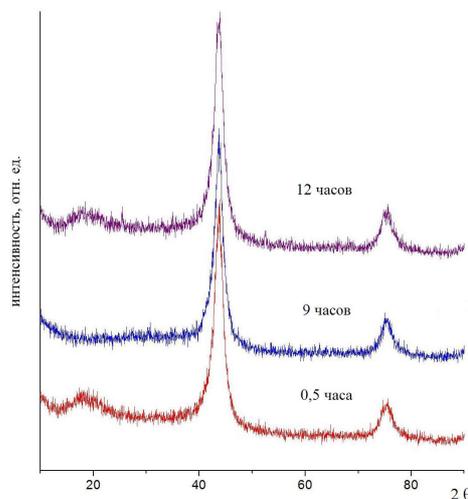


Рис. 1. Спектры рентгеновской дифракции образцов детонационного алмазосодержащего материала, подвергнутого термической обработке в атмосфере воздуха в интервале «кислородного окна» в течение 0,5 часа, 9 часов, 12 часов, соответственно

Результаты работы [4], где изучалось разделение ДАМ с помощью центрифугирования, позволяют связать эту особенность с неоднородностью фракционного состава ДАМ. Фракции частиц ДАМ, которые изучались в этой работе, значительно отличались по среднему размеру частиц, по составу фазовых компонентов, следовательно, физико-химическая устойчивость этих фракций имеет отличия.

Были получены и проанализированы инфракрасные спектры термообработанных образцов. ИК-спектры позволяют получить информацию как об интенсивности полос поглощения, которые определяются функциональными примесными группами, так и об интенсивности полосы поглощения азотного А-дефекта (максимум поглощения в области $1250\text{--}1280\text{ см}^{-1}$), который характеризует алмазное зерно частицы ДАМ. Эти данные позволяют сравнить изменения, происходящие при термовоздействии в алмазном зерне и в примесной части ДАМ.

Качественно ИК-спектры всех образцов, подвергнутых последовательной термической обработке, значительных отличий не имеют (рис. 2а, б). В спектральной области $1200\text{--}1300\text{ см}^{-1}$ прослеживается

характерная ступенчатая полоса азотного А дефекта [3–4, 9], который представляет собой включение двух соседних атомов азота в алмазном зерне ДАМ. В ИК-спектрах идентифицируются карбонильные, карбоксильные и гидроксильные функциональные группы, проявляющиеся на характеристических частотах $1700\text{--}1800\text{ см}^{-1}$ (C=O колебание), $1600\text{--}1700\text{ см}^{-1}$ (O-H колебание) [3–4, 9].

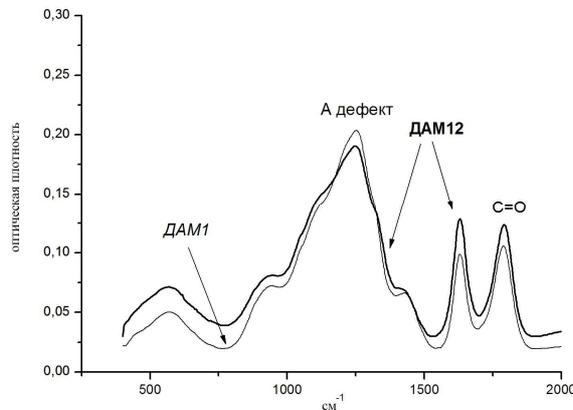


Рис. 2а. ИК-спектры поглощения термообработанных образцов: время термообработки 1 час (ДАМ1) и 12 часов (ДАМ12)

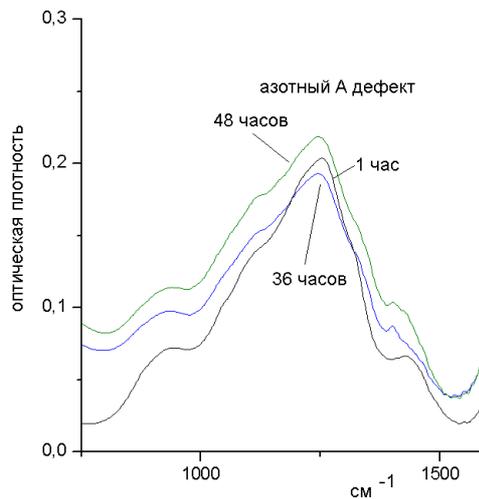


Рис. 2б. ИК-спектры поглощения термообработанных образцов: время термообработки 1 час (ДАМ1) и 36 часов и 48 часов

Сравнительная оценка интенсивности ИК-спектров образцов, подвергнутых термической обработке в течение 1 часа (ДАМ1) и 12 часов (ДАМ12), видна на рис. 2а. Оптическая плотность D полос поглощения, связанных с кислородсодержащими группами (карбонильными, карбоксильными и др.), для образца ДАМ12 несколько больше, чем для ДАМ1, что является следствием окисления при термообработке в условиях кислородсодержащей атмосферы (на воздухе). Поглощение в полосе азотного А-дефекта, которое характеризует алмазное зерно частицы ДАМ, уменьшается с увеличением времени термовыдержки. Это свидетельствует о разрушительных процессах, происходящих в углеродном (алмазном) зерне, что коррелирует с уменьшением размеров зерна до 4.9 нм (ДАМ12) от исходных значений 5.3 нм, оцененных с помощью спектров рентгеновской дифракции.

Минимальное значение оптическая плотность А полосы (азотного А дефекта) достигает в интервале обработки 24–36 часов (рис. 2б). При времени термообработки 48 часов оптическая плотность А полосы возрастает. Эти результаты согласуются с данными, полученными на основе спектров рентгеновской дифракции, где также наблюдалось нелинейное поведение в изменении размера алмазных зерен. Логично предположить, что основная причина связана с неоднородностью фракционного состава ДАМ. Наиболее вероятно, что в этом интервале термической обработки происходило разрушение фракций с самыми минимальными размерами частиц.

Небольшие изменения в ИК-полосах поглощения неалмазных компонентов ДАМ отражает относительную устойчивость функционального покрова в образцах до и после термообработки. Устойчивость функционального покрова ДАМ в условиях термообработки и разрушение алмазного зерна в тех же условиях означает, что основные компоненты ДАМ расположены несимметричным образом в исходной частице. Эта структурная особенность предполагает наличие перепада плотности для частицы ДАМ. Предположение о перепаде плотности для частицы ДАМ основывается на влиянии неравновесных условий синтеза (флуктуаций плотности) на структуру частицы при ее формировании, что уже обсуждалось в работах [4, 9].

Распределение частиц ДАМ по размерам, полученное из экспериментов по светорассеянию, представлено на рис. 3. Результаты показывают, что частицы ДАМ имеют характерные размеры в диапазоне сотен нанометров: видимо, это агрегаты частиц.

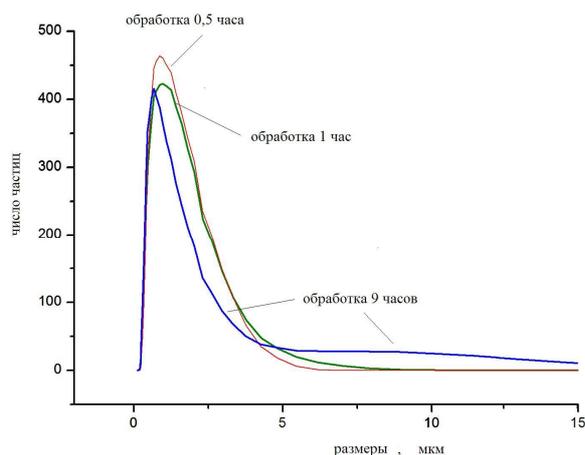


Рис. 3. Распределение частиц ДАМ по размерам

Значения и изменения размеров, полученные на основе методики светорассеяния, не согласуются с изменениями размеров алмазного зерна ДАМ. Вероятно, агрегирование в большей степени определяется примесной частью ДАМ, то есть связано с полярными фрагментами частиц, которые, как показала ИК-спектроскопия, сохраняются при термообработке.

Спектры КРС термообработанных образцов ДАМ представлены на рис. 4.

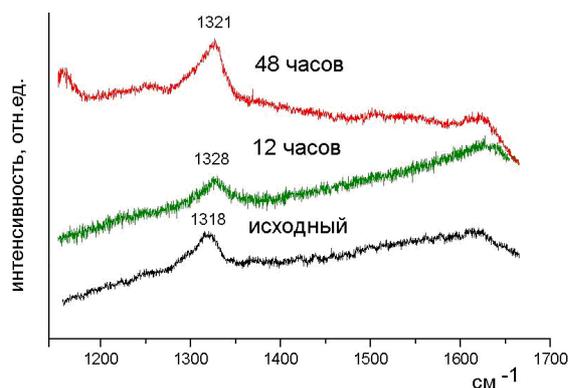


Рис. 4. Спектры комбинационного рассеяния света термообработанных образцов: исходного образца ДАМ, образца ДАМ12 (время обработки 12 часов), и ДАМ48 (время обработки 48 часов)

Считая контуры полос лоренцевскими, были определены максимумы алмазной полосы для ДАМ образцов. Положение максимума этой полосы меняется с 1318 см^{-1} (для исходного образца) до 1322 см^{-1} (ДАМ9), 1328 см^{-1} для ДАМ12, 1321 см^{-1} для ДАМ48.

Для максимумов обработанных образцов наблюдается, так же как и в ИК-спектрах, особенность при примерно той же продолжительности термообработки. Полученные результаты согласуются с данными, полученными по инфракрасному поглощению и рентгеновской дифракции для образцов ДАМ, где примерно в этом же интервале термообработки наблюдались особенности. Причина смещения, скорее всего, связана с влиянием D-полосы, которая ответственна за включения разупорядоченного углерода, с максимумом в области $1300\text{--}1500\text{ см}^{-1}$. Так как алмазное зерно постепенно разрушается в процессе

термообработки, то можно ожидать возникновения областей разупорядоченного углерода, которые влияют на структуру спектра, формируя D-полосу, которая и сдвигает максимум «алмазной» полосы.

Таким образом, полученные экспериментальные результаты и их анализ показывают, что длительная термообработка вызывает изменения во всех составных фазовых компонентах частицы ДАМ.

Некоторые выводы отличаются от результатов других авторов, например [6]: полученные экспериментальные результаты не подтверждают того факта, что для данного типа образцов возможно получение так называемого чистого наноалмаза, характеристики которого не зависят от условий синтеза и выделения.

Выводы. Эксперименты подтверждают структурную неоднородность детонационного алмазосодержащего материала и неизотропное расположение составных компонентов в частице ДАМ. Это означает, что частицы детонационного алмазосодержащего материала характеризуются неоднородной плотностью, что является следствием влияния неравновесных высокоэнергетических условий синтеза (флуктуаций плотности) на формирование этого материала.

Полученные эксперименты не подтверждают высказанного суждения [6] о существовании температурного «кислородного окна». Наблюдающиеся особенности в ИК-, КРС-спектрах и спектрах рентгеновской дифракции логично объяснить с позиции фракционной неоднородности детонационного продукта.

Библиография

1. Titov V.M., Anisichkin V.F., Mal'kov I.Yu. Synthesis of ultradispersed diamond in detonation waves // *Combustion, Explosion and Shock Waves (CESW)*. 1989. V. 25. P. 372–379.
2. Greiner R.N., Phillips D.S., Johnson J.D., Volk F. Diamonds in detonation soot // *Nature*. 1988. V. 333. P. 440–442.
3. Korets A.Ya., Krylov A.S., Mironov E.V. Molecular structural nonuniformity of ultradispersed diamond-containing material and the reasons why it arises // *Russian J. Phys. Chem. B*. 2007. V. 1. P. 485–492.
4. Korets A., Krylov A., Mironov E. Structural heterogeneity of diamond-containing detonation material // *European Physical Journal-Applied Physics*. 2010. V. 52. P. 10901–10906.
5. Gubarevich T.M., Kulagina L.S., Larionova I.S. Features of the element composition of carbon products from detonation synthesis // *Proc. V All-Union Conf. on Detonation*. 1991. V. 1. P. 130–134.
6. Mochalin V., Osswald S., Gogotsi Y. Contribution of functional groups to the raman spectrum of nanodiamond powders // *Chem. Mater.* 2009. V. 21. P. 273–279.
7. Baidakova M., Vul' A. New prospects and frontiers of nanodiamond clusters // *J. Phys.D: Appl. Phys.* 2007. V. 40. P. 6300–6311.
8. Pichot V., Comet M., Fousson E., Baras C., Senger A., Le Normand F., Spitzer D. An efficient purification method for detonation nanodiamonds // *Diamond and Related Materials (DRM)*. 2008. V. 17. P. 13–22.
9. Mironov E., Koretz A., Petrov E. Detonation synthesis ultradispersed diamond structural properties investigation by infrared absorption // *DRM*. 2002. V. 11. P. 872–876.

КОНВЕРСИЯ СЕРОУГЛЕРОДА В НЕСАМОСТОЯТЕЛЬНЫХ И САМОСТОЯТЕЛЬНЫХ ИМПУЛЬСНЫХ РАЗРЯДАХ В ВОЗДУХЕ

Кузнецов Д.Л., Сурков Ю.С., Уварин В.В., Филатов И.Е., Угодников Г.Г., Никифоров С.А.

Институт электрофизики Уральского отделения Российской академии наук

kdl@iep.uran.ru

Приведены результаты экспериментальных исследований процессов конверсии сероуглерода в воздухе под действием импульсного несамостоятельного разряда, инициируемого электронным пучком. Исследовано влияние напряженности электрического поля в разряде на эффективность конверсии. Создана установка для исследования конверсии сероуглерода в плазме, создаваемой стримерным коронным разрядом. Обнаружено влияние концентрации сероуглерода в воздухе на параметры формируемой стримерной короны.

Ключевые слова: сероуглерод, конверсия, несамостоятельный разряд, стримерная корона, плазма.

CARBON DISULFIDE CONVERSION IN NON-SELF-SUSTAINED AND SELF-SUSTAINED PULSED DISCHARGES IN AIR

Kuznetsov D.L., Surkov Yu.S., Uvarin V.V., Filatov I.E., Ugodnikov G.G., Nikiforov S.A.

Institute of Electrophysics of the Ural Branch of the Russian Academy of Sciences

Results of experimental researches of processes of carbon disulfide conversion in air under action of pulsed non-self-sustained discharge initiated by electron beam are presented. An influence of electric field strength in the discharge on efficiency of the conversion was investigated. An installation for research of carbon disulfide conversion in streamer corona generated plasma is created. An influence of carbon disulfide concentration in air on parameters of the formed streamer corona is discovered.

Keywords: carbon disulfide, conversion, non-self-sustained discharge, streamer corona, plasma.

Введение. Сероуглерод CS_2 является токсичным веществом, примеси которого содержатся в газообразных отходах ряда химических производств. Наиболее высокие концентрации сероуглерода присутствуют в отходящих газах производства вискозы. Один из способов очистки воздуха от этой токсичной примеси – это создание в потоке газа при помощи электронных пучков или электрических разрядов различных типов области слабоионизированной низкотемпературной плазмы, в которой активизируются плазмохимические процессы, приводящие к удалению токсичного компонента.

Преимущества использования импульсных электронных пучков для ионизации воздуха с целью удаления токсичных примесей по сравнению с непрерывными пучками продемонстрированы в [1] на примере диоксида серы SO_2 . Аналогичный подход был использован для исследования процессов конверсии сероуглерода в воздухе. В Институте электрофизики УрО РАН исследовалась конверсия CS_2 в плазме, создаваемой импульсными электронными пучками [2]. Было обнаружено, что механизм и продукты конверсии зависят от параметров используемых пучков и разрядов. Так, при воздействии сильного пучка электронов наносекундной длительности осуществляется цепной механизм конверсии CS_2 , конечными продуктами которого являются оксиды серы, азота и углекислый газ. При воздействии слаботочного электронного пучка микросекундной длительности конверсия осуществляется по ионному каналу через образование кластеров и полимеризацию примеси в форме соединения $(-CS)_n$ в жидком или твердом состоянии. В обоих случаях конверсия осуществлялась с низкими удельными энергозатратами, которые в пересчете на одну молекулу CS_2 составляли величину, существенно меньшую, чем энергии связи атомов в молекуле сероуглерода. В [2] также исследовано влияние слабого электрического поля на процесс конверсии сероуглерода при воздействии слаботочного пучка электронов. Выяснилось, что эффективность удаления молекул CS_2 из ионизованного воздуха становится очень чувствительной к электрическому полю в области его малых значений (до 200 В/см). Это связано с резкой не-

монотонной зависимостью скорости генерации ионов, образующих кластеры, от напряженности поля. Ранее было исследовано влияние сильного электрического поля на процесс конверсии CS_2 [3].

Несамостоятельный разряд, инициируемый электронным пучком, зажигался в воздушных смесях атмосферного давления, содержащих сероуглерод. Было показано, что в плазме, создаваемой сильноточным пучком электронов, наложение сильного электрического поля (1–10 кВ/см) приводит к образованию оксидов азота NO и NO_2 , и, соответственно, снижению интенсивности главного механизма конверсии – цепного окисления CS_2 . Это означает, что использование несамостоятельных разрядов, инициируемых электронными пучками, при высоких напряженностях электрического поля на разрядном промежутке оказывается малоэффективным при конверсии сероуглерода. Однако использование электрического поля с умеренными напряженностями (200–1000 В/см), при которых возможно увеличение эффективности конверсии CS_2 , требует дальнейших исследований.

Несмотря на высокую эффективность конверсии, широкое использование электронных пучков в реальных очистных системах сдерживается под влиянием трех факторов. Во-первых, электронно-пучковые системы сложны и дорогостоящи. Во-вторых, такие системы недостаточно надежны. И, в-третьих, при их эксплуатации требуется создание биологической защиты от ионизирующего излучения. В связи с этим широкое распространение получили электроразрядные методы, в которых чаще всего используются самостоятельные разряды, например, стримерная корона. Такие установки относительно дешевы, просты в эксплуатации и не требуют создания биологической защиты. Эти преимущества в большинстве случаев компенсируют основной недостаток электроразрядных систем – достаточно высокие удельные энергозатраты на конверсию токсичных примесей по сравнению с электронно-пучковыми системами.

Таким образом, требуется разработка электроразрядного (например, использующего стримерную корону) метода конверсии сероуглерода в воздухе, позволяющего создавать простые, надежные и относительно дешевые очистные установки с минимально возможными для данного метода удельными энергозатратами на конверсию CS_2 .

Цель работы. Исследование процессов конверсии сероуглерода в воздухе под действием несамостоятельного разряда, инициируемого сильноточным электронным пучком наносекундной длительности при умеренных напряженностях электрического поля на разрядном промежутке. Создание установки для исследования процессов конверсии сероуглерода в воздухе под действием стримерного коронного разряда, которая позволит оптимизировать параметры воздействия на газовые смеси для достижения минимально возможных удельных энергозатрат на конверсию сероуглерода.

Экспериментальные установки и методики. Для исследования процессов конверсии сероуглерода в воздухе под действием несамостоятельного разряда, инициируемого сильноточным электронным пучком наносекундной длительности, использовалась установка, аналогичная представленной в [3]. Разряд зажигался в смеси $N_2:O_2:CS_2 = 89:10:1$ при атмосферном давлении в промежутке длиной 1 см между плоским стальным анодом и катодом из мелкоячеистой сетки, через которую в газ инжектировался электронный пучок. Источником высокоэнергетичных электронов являлся малогабаритный ускоритель РАДАН, генерирующий пучок с энергией электронов ~180 кэВ, током ~800 А и длительностью импульса 3 нс при частоте следования импульсов 10 Гц. Объем, занимаемый разрядом, составлял 8 см³ при общем объеме всей газоразрядной камеры 3 л. Для питания разряда использовалась батарея конденсаторов емкостью 13.2 нФ, заряжаемая до напряжения $U_0 = 0.3–5$ кВ. Длительность импульса тока разряда не превышала 150 нс. Газовая смесь непрерывно перемешивалась встроенным вентилятором по замкнутому контуру. Измерение концентраций компонентов смеси проводилось до и после серии импульсов облучения с помощью газового хроматографа ЛХМ-8МД на колонке длиной 3 м, заполненной сорбентом марки «Силохром С-120». В экспериментах изменение концентрации CS_2 отслеживалось как при воздействии пучка и разряда, так и без этого воздействия, чтобы отделить процессы, связанные с облучением, от других химических процессов.

Для исследования процессов конверсии сероуглерода в воздухе под действием стримерного коронного разряда создана установка, состоящая из специального сменного блока, присоединяемого к многофункциональному лабораторному стенду. Устройство и характеристики стенда представлены в [4]. Общее устройство и особенности созданной установки рассмотрены в [5]. Схема и основные элементы установки приведены на рис. 1. Сменный блок представляет собой цилиндрическую газовую камеру 1 с окном из оргстекла 2 и устройством 3 для крепления высоковольтного проводника, представляющего собой никелевую проволоку 4 диаметром 0.24 мм, расположенную на оси камеры и служащую катодом стримерного коронного разряда. Внутри камеры размещен полый цилиндр 5 из нержавеющей стали диаметром 88 мм, который служит анодом разряда. Камера оснащена устройством ввода сероуглерода и отбора проб для анализа 6. Анод 5 соединяется с камерой через шунт 7 и проводник 8, расположенный внутри проходного изолятора 9. Импульсы высокого напряжения поступают на катод 4 с выхода им-

пульсного высоковольтного наносекундного генератора СМ-4Н 14 с индуктивным накопителем и полупроводниковым прерывателем тока через проводник 11, проложенный внутри изолятора 12. Импульсы выходного напряжения $U_{вых}$ и выходного тока $I_{вых}$ контролируются с помощью четырехканального цифрового запоминающего осциллографа Tektronix TDS5054 с полосой пропускания 500 МГц через разъемы 15 с емкостного делителя напряжения и 16 с пояса Роговского 13, соответственно.

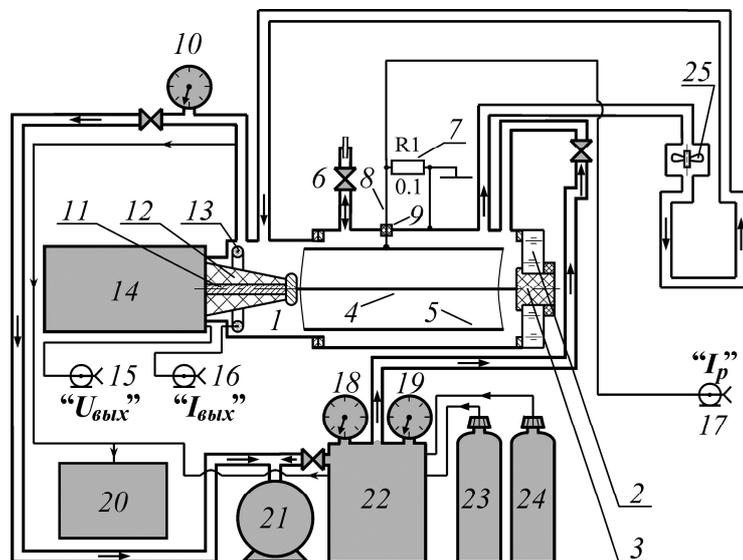


Рис. 1. Устройство установки для конверсии сероуглерода под действием стримерной короны

Импульсный коронный разряд формируется между катодом 4 и анодом 5. Ток разряда I_p контролируется через разъем 17 с шунта 7, установленного в разрядной цепи.

Газовакуумная система установки состоит из форвакуумного насоса 2НВР-5ДМ 21, вакуумметра ВИТ-2 20, газового смесителя 22, газовых баллонов с азотом 23 и кислородом 24, мановакуумметров МВПЗ-УУ2 10 и 18, образцового вакуумметра ВО11201 19, шлангов и вентиля.

Установка оборудована системой прокачки газовой смеси. Эта система обеспечивает эффективное движение и перемешивание газовой смеси в замкнутом контуре путем прокачки смеси через камеру 1 и трубы контура при помощи вентилятора 25. Возможно регулирование скорости прокачки смеси через газовую камеру. Изменение скорости прокачки позволяет выбирать различные режимы прокачки смеси для разных частот следования импульсов разряда.

Внешний вид установки показан на рис. 2.



Рис. 2. Внешний вид установки для конверсии сероуглерода под действием стримерной короны

Блок на стенде перед газовой камерой – это специально разработанный источник питания частотой 400 Гц для вентилятора прокачки смеси.

Результаты экспериментов. В ходе исследования процессов конверсии сероуглерода в воздухе под действием несамостоятельного разряда, инициируемого сильноточным электронным пучком наносекундной длительности, наблюдалось линейное снижение концентрации CS_2 в зависимости от числа импульсов облучения, а значит, и от введенной в газ энергии. Линейный характер зависимости наблюдался во всем применяемом диапазоне напряжений. При проведении опытов определялась величина затрат энергии ϵ пучка и разряда на разрушение одной молекулы CS_2 . Значение ϵ вычислялось как отношение суммарного удельного энергозклада в газ от пучка и разряда к изменению концентрации CS_2 . Ошибка измерения ϵ не превышала 0.1.

На рис. 3 приведена зависимость $\epsilon(U_0)$, где U_0 – зарядное напряжение.

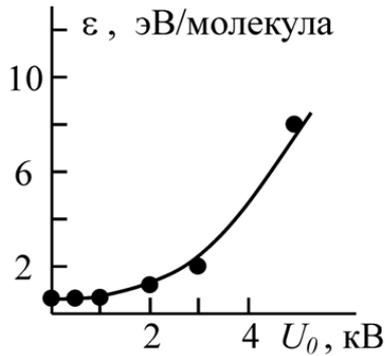


Рис. 3. Зависимость энергозатрат ϵ на разрушение одной молекулы сероуглерода от зарядного напряжения U_0

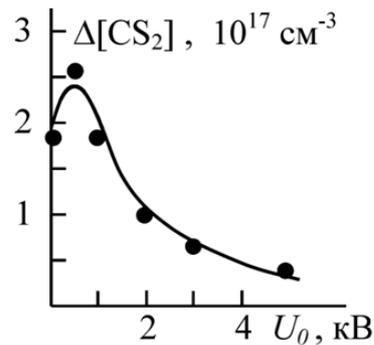


Рис. 4. Зависимость количества удаленных молекул $\Delta[\text{CS}_2]$ в 1 см^3 от зарядного напряжения U_0 . Начальная концентрация $[\text{CS}_2]_0 = 2.9 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$

Видно, что при воздействии на смесь только электронного пучка ($U_0 = 0$) и при невысоких напряжениях на разрядном промежутке ($U_0 \leq 1000 \text{ В}$) затраты ϵ составляют величину ~ 0.6 эВ/молекула. Это существенно меньше, чем энергии связи атомов в молекуле сероуглерода. Характер зависимости $\epsilon(U_0)$ коррелирует с данными, приведенными на рис. 4, где показана зависимость количества удаленных молекул CS_2 в 1 см^3 от зарядного напряжения при суммарной вложенной в газ энергии за серию импульсов пучка и разряда ~ 70 Дж. Ошибка измерений величины $\Delta[\text{CS}_2]$ не превышала 0.05. Видно, что при малых U_0 величина $\Delta[\text{CS}_2]$ значительна. Она достигает максимума в интервале значений $U_0 \sim 100\text{--}1000 \text{ В}$ (то есть при напряженности поля на промежутке $\sim 100\text{--}1000 \text{ В/см}$), а при дальнейшем увеличении напряжения снижается. Поскольку при этом растет и энергозклад в газовую смесь от разряда, значение ϵ повышается.

Перед началом исследований процессов конверсии сероуглерода в воздухе под действием стримерного коронного разряда необходимо было получить осциллограммы тока и напряжения стримерной короны в исследуемых смесях. Для этого были проведены эксперименты по формированию стримерной короны в воздухе при различных концентрациях примеси CS_2 .

Было обнаружено, что при добавлении в воздух 25–10000 ppm сероуглерода амплитуда импульсов тока снижается, а формы импульсов напряжения и тока изменяются незначительно.

Осциллограммы выходного напряжения генератора СМ-4Н и тока стримерной короны для чистого воздуха представлены на рис. 5, а для воздушной смеси, содержащей 5000 ppm CS_2 – на рис. 6. Видно, что в обоих случаях импульс напряжения имеет амплитуду $\sim 170 \text{ кВ}$ и длительность на полувысоте $\sim 20 \text{ нс}$. Формы импульсов тока существенно отличаются от формы импульса напряжения: импульсы разрядного тока представляют собой совокупность трех импульсов различной амплитуды с длительностью на полувысоте $\sim 7\text{--}10 \text{ нс}$ для каждого импульса и интервалом между импульсами $\sim 12\text{--}15 \text{ нс}$. Из сравнения рис. 5 и 6 видно, что при содержании в воздухе 5000 ppm сероуглерода амплитуды трех пиков на импульсе тока стримерной короны снижаются на $\sim 30 \%$ по сравнению с разрядом в чистом воздухе, причем формы, длительности пиков и интервалы между ними, а также соотношение между амплитудами пиков в одном импульсе разрядного тока меняются незначительно.

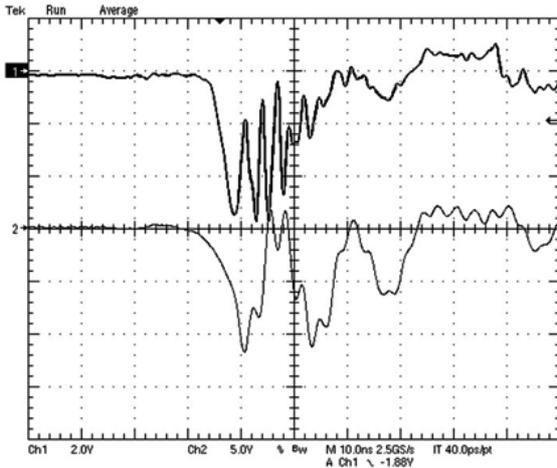


Рис. 5. Осциллограммы выходного напряжения $U_{\text{вых}}$ генератора СМ-4Н (1) и тока стримерной короны I_p (2) в чистом воздухе атмосферного давления с прокачкой. Частота следования разрядных импульсов $F = 10$ Гц. Вертикальная шкала: 74 кВ/клетка (1), 270 А/клетка (2).
Горизонтальная шкала: 10 нс/клетка

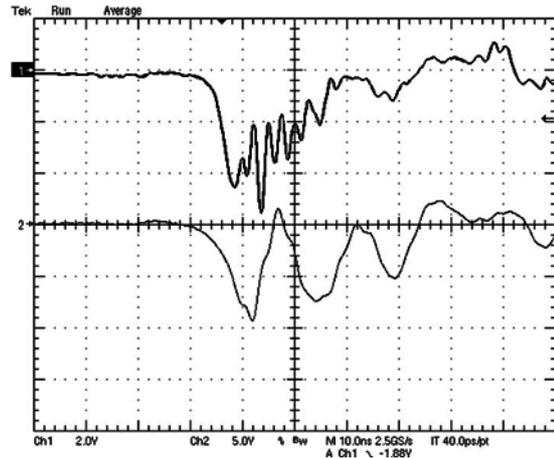


Рис. 6. Осциллограммы выходного напряжения $U_{\text{вых}}$ генератора СМ-4Н (1) и тока стримерной короны I_p (2) в воздухе атмосферного давления с содержанием 5000 ppm CS_2 с прокачкой. Частота следования разрядных импульсов $F = 10$ Гц. Вертикальная шкала: 74 кВ/клетка (1), 270 А/клетка (2). Горизонтальная шкала: 10 нс/клетка

Для определения энергии, вкладываемой в газовую смесь за один разрядный импульс, производилось интегрирование произведения импульсов напряжения и тока стримерной короны по времени. Полученные значения энерговклада за один разрядный импульс в зависимости от концентрации примеси CS_2 в воздухе меняются незначительно и лежат в интервале 0.4–0.5 Дж.

Обсуждение результатов. Причиной снижения энергозатрат ε на разрушение одной молекулы CS_2 при использовании несамостоятельного разряда, инициируемого сильноточным электронным пучком наносекундной длительности, как и в случае электронно-пучковой обработки [2], может быть реализация цепного механизма [2–3] конверсии сероуглерода с участием атомарного кислорода. Цепной механизм инициируется реакцией диссоциации кислорода [3]:



В слабых полях $E_0 \sim 100\text{--}1000$ В/см энергия разряда эффективно расходуется на колебательное возбуждение O_2 [6]. Это предполагает участие в реакции (1) молекул O_2^* , что повышает эффективность наработки атомарного кислорода. Возможно, с этим связано некоторое увеличение количества удаленных молекул при $E_0 \sim 100\text{--}1000$ В/см (рис. 4). При этом степень очистки смеси от CS_2 $\eta = \Delta[\text{CS}_2]/[\text{CS}_2]_0$ достигает значения $\sim 85\%$. В случае обработки стримерной короной всего газового объема суммарная энергия, необходимая для достижения такой степени очистки, может быть существенно ниже, чем 70 Дж.

Образование атомарного кислорода может также происходить в реакции диссоциативного прилипания [7]:



где M – молекула O_2 или N_2 .

Причиной снижения значения $\Delta[\text{CS}_2]$ с увеличением зарядного напряжения и напряженности поля в разряде при $U_0 \geq 1000$ В (рис. 4) могут быть различные конкурирующие реакции, приводящие к снижению концентрации атомарного кислорода как во время протекания тока, так и в рекомбинирующей плазме после прекращения тока разряда. Такими реакциями могут быть процессы образования озона O_3 и оксидов азота NO и NO_2 [3].

Как уже было отмечено, формы импульсов напряжения и тока стримерной короны существенно отличаются друг от друга (рис. 5, 6). Поскольку стримерную корону можно рассматривать как активную нагрузку для генератора СМ-4Н, форма импульса тока должна повторять форму импульса напряжения. Так как формы импульсов разные, можно предположить, что помимо активной составляющей (собственно стримерной короны) в нагрузке имеется реактивная составляющая. В качестве реактивной составляющей может выступать конструкция газовой камеры, которая имеет некие значения индуктивности и емкости. Это означает, что в упрощенном виде нагрузку генератора можно представить как параллельно

подключенные активную нагрузку (собственно стримерная корона) и колебательный LC-контур (конструктивная индуктивность и емкость камеры). В этом случае ток нагрузки будет представлять сумму тока стримерной короны (повторяющего форму импульса напряжения) и тока LC-контура (форма этого тока – затухающие гармонические колебания). Значения конструктивной индуктивности и емкости камеры были вычислены по формулам для цилиндрического коаксиального проводника и составили 0.7 мкГн и 5 пФ, соответственно. Отсюда период собственных колебаний данного LC-контура – 12 нс, что хорошо согласуется с осциллограммами тока.

Поскольку в эксперименте невозможно разделить активную и реактивную составляющую тока нагрузки, для вычисления энерговыклада в газ от стримерной короны за один импульс были использованы осциллограммы суммарного тока. Следует отметить, что хотя осциллограмма суммарного тока существенно отличается от осциллограммы тока стримерной короны, погрешность определения энерговыклада будет незначительна, поскольку реактивная составляющая тока не производит работы, и чередование положительных и отрицательных полупериодов взаимно компенсируется. Проверочное сравнение двух способов вычисления энерговыклада (по суммарному импульсу тока и по полученному путем расчетного вычитания затухающей компоненты реальному импульсу тока стримерной короны) дало значения, отличающиеся на ~ 5 %. Это означает, что предложенный способ определения энерговыкладов является корректным.

Проанализируем зависимость амплитуды разрядного тока от концентрации примеси CS₂. С одной стороны, в воздухе содержится около 20 % кислорода, который является электроотрицательным газом и определяет процессы прилипания электронов к молекулам кислорода. Это ведет к снижению концентрации электронов в плазме и, следовательно, к снижению тока разряда. Добавка в воздух небольшого количества другого вещества, даже в случае, если его молекулы электроотрицательны и к ним будут прилипать электроны, не должна существенно повлиять на параметры плазмы и разряда, в которых и в отсутствие примеси протекают процессы прилипания. С другой стороны, из экспериментов и расчетов известно [8], что при зажигании несамостоятельного разряда в воздухе небольшая добавка диоксида серы приводит к существенному снижению тока разряда. Причина заключается в том, что молекула SO₂ обладает более высокой энергией сродства к электрону, чем молекула кислорода, и константа скорости прилипания электрона к молекуле SO₂ выше соответствующей константы для молекулы кислорода.

Было проведено сравнение констант скорости прилипания электрона к молекулам O₂ и SO₂ с соответствующими константами для молекулы CS₂, приведенными в [9]. Выяснилось, что константа скорости прилипания к CS₂, в зависимости от концентрации этой примеси в воздухе либо соизмерима с константой скорости прилипания к SO₂, либо превосходит ее более чем на два порядка. Это означает, что небольшие добавки сероуглерода будут приводить к еще более резкому снижению тока разряда, чем в случае с добавкой диоксида серы, а значит, и к существенному снижению энерговыклада в воздушную смесь. Однако нужно учитывать и тот факт, что результаты для SO₂, представленные в [8], получены при длительности импульса тока разряда 50 мкс, а длительность импульса тока стримерной короны в наших экспериментах лежит в наносекундном диапазоне. Такое отличие длительностей может существенно повлиять на протекание процессов прилипания и, соответственно, на параметры разряда. Осциллограммы тока стримерной короны (рис. 5 и 6) позволяют предположить, что рассмотренные два фактора (высокая константа скорости прилипания электрона к CS₂ и малое время формирования и горения стримерного коронного разряда) частично компенсируют друг друга, в результате чего наблюдается лишь незначительное снижение разрядного тока и энерговыклада в газовую смесь.

Выводы. При обработке воздушных смесей несамостоятельным разрядом, инициируемым сильноточным электронным пучком наносекундной длительности, разрушение CS₂ эффективно протекает при невысокой (~ 100-1000 В/см) напряженности электрического поля в разряде. Вероятная причина этого – реализация в ионизированном воздухе цепного механизма с низкими энергозатратами на удаление одной молекулы CS₂ (~ 0.6 эВ/молекула).

Создана экспериментальная установка для исследования процессов конверсии CS₂ в воздухе под действием стримерной короны. Получены и проанализированы осциллограммы разрядных токов и напряжений при различных концентрациях сероуглерода. Установка позволит преодолеть главные недостатки электронно-пучкового метода очистки воздуха, а оптимизация ее параметров должна обеспечить достижение приемлемых значений удельных энергозатрат на конверсию сероуглерода.

Работа выполняется при поддержке РФФИ (проект № 12-08-00130-а).

Библиография

1. Novoselov Yu.S., Mesyats G.A., Kuznetsov D.L. Plasma-chemical oxidation of SO₂ in air by pulsed electron beams // J. Phys. D: Appl. Phys. 2001. V. 34. No. 8. P. 1248–255.
2. Новоселов Ю.Н., Суслов А.И., Кузнецов Д.Л. Воздействие импульсных пучков электронов на примесь сероуглерода в воздухе // Журнал технической физики. 2003. Т. 73. Вып. 6. С. 123–29.
3. Денисов Г.В., Новоселов Ю.Н., Филатов И.Е. Разложение CS₂ в несамостоятельном объемном разряде атмосферного давления // Письма в журнал технической физики. 1995. Т. 21. Вып. 18. С. 89–93.
4. Devisilov D.N., Filatov I.E., Kuznetsov D.L., Salaev S.A., Surkov Yu.S., Novoselov Yu.N. Electron beam, X-ray, and non-thermal plasma source on the base of compact rep-rated high-voltage generator // Electronics + Electrical Engineering. 2006. V. 5–6. P. 252–256.
5. Kuznetsov D.L., Filatov I.E., Surkov Yu.S., Uvarin V.V., Ugodnikov G.G., Nikiforov S.A. Installation for research of CS₂ conversion processes in streamer corona generated plasma // In Compendium of Papers: «Physics of Extreme States of Matter – 2012». V.E. Fortov et al. ed. Chernogolovka: Institute of Problems of Chemical Physics RAS, 2012. P. 164–167.
6. Александров Н.Л., Высикайло Ф.И., Исламов Р.Ш. и др. Функция распределения электронов в смеси N₂:O₂=4:1 // Теплофизика высоких температур. 1981. Т. 19, № 1. С. 22–27.
7. Месси Г. Отрицательные ионы. М.: Мир, 1979. 754 с.
8. Кольман Е.В., Кузнецов Д.Л. Влияние процессов прилипания на эффективность удаления диоксида серы из воздуха под действием импульсных электронных пучков // IV Международный симпозиум по теоретической и прикладной плазмохимии: сборник трудов: в 2-х т. Т. 1. Иваново: ИГХТУ, 2005. С. 229–232.
9. Александров Н.Л. Трехчастичное прилипание электрона к молекуле // Успехи физических наук. 1988. Т. 154. Вып. 2. С. 177–206.

ДЕЙСТВИЕ ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧНОГО ПУЧКА ЭЛЕКТРОНОВ НА ЭКОТОКСИЧНЫЕ ХЛОРСОДЕРЖАЩИЕ СОЕДИНЕНИЯ В СЛОЕ АДсорбЕНТА

*Филатов И.Е., Никифоров С.А., Сурков Ю.С., Уварин В.В.

Институт электрофизики Уральского отделения РАН

*fil@iep.uran.ru

В работе приведены результаты исследования воздействия высокоэнергетического пучка электронов на хлорфенолы и полихлорбифенилы в слое адсорбента. Анализ продуктов превращения выполнялся с помощью хроматомасс-спектрометрического метода. Показаны основные направления превращения хлорфенолов и полихлорбифенилов в слое адсорбента: окисление, дехлорирование и миграция хлора.

Ключевые слова: пучок электронов, конверсия экологических токсинов, реакции в слое адсорбента, полихлорфенолы, полихлорбифенилы, хроматомасс-спектрометрия, PCB, GC/MS.

ACTION OF HIGH-ENERGY ELECTRON BEAM ON ECOTOXIC CHLORINATED COMPOUNDS IN ADSORBENT LAYER

Filatitov I.E., Nikiforov S.A., Surkov Yu.S., Uvarin V.V.

Institute of Electrophysics UB RAS

This paper presents the results of research on the action of high-energy electron beam on chlorophenols and PCBs in the adsorbent layer. Analysis of the transformation products is made with help of GC/MS method. The basic directions of the transformation of chlorophenols and polychlorinated biphenyls in a layer of adsorbent are: oxidation, dechlorination, and migration of chlorine atom.

Keywords: electron beam, conversion of environmental toxins, reaction in adsorbent layer, polychlorophenols, polychlorinated biphenyls, chromatography-mass spectrometry, PCBs, GC/MS.

Введение. Хлорсодержащие органические соединения благодаря своим уникальным свойствам широко используются в различных отраслях промышленности. Однако, как было показано в конце прошлого века, многие из них способны накапливаться в природных объектах и могут служить источником сверхтоксичных соединений – диоксинов [1]. С другой стороны, известно, что галогенсодержащие соединения отличаются малой стойкостью по отношению к ионизирующему излучению из-за высоких констант диссоциативного прилипания электрона к молекуле хлорсодержащего соединения [2]. Эта особенность делает актуальными исследования воздействия пучка электронов на хлорсодержащие соединения. Данные исследования полезны для поиска эффективных реагентов-перехватчиков с целью направления процессов в сторону образования конечных продуктов с заданными свойствами. Для интенсификации исследований необходим портативный ускоритель электронов и высоко избирательный метод анализа для фиксирования малейших изменений химического состава в процессе облучения исследуемых материалов высокоэнергетичным пучком электронов. Высокоэнергетичный пучок электронов выводится в атмосферные условия с относительно малыми потерями – этим обусловлен его выбор. На первом этапе нами были выбраны хорошо известные экотоксиканты: хлорфенолы и полихлорбифенилы (PCB). Первые из них производились в прошлом столетии как полупродукты для производства гербицидов. Последние – как изолирующие масла. Те и другие могут быть источниками более опасных супер-экотоксикантов – диоксинов. В настоящее время существует проблема разработки эффективного способа их утилизации. С другой стороны, исследование воздействия пучка электронов на экотоксиканты в слое адсорбента интересно с точки зрения изучения эволюции их в природе под влиянием ряда факторов: старения, фотолиза, радиолиза и т.п.

Экспериментальная установка схематически показана на рис. 1. Основой установки является портативный ускоритель электронов РАДАН I [3]. Он формирует пучок электронов 2 со следующими параметрами: энергия электронов – 180 кэВ, ток пучка – 500 А, длительность импульса тока пучка – 3 нс, площадь выводного окна круглого сечения – 1 см². Частота повторения импульсов во время экспе-

римента устанавливалась на уровне 2 имп./с. Доза в исследуемых образцах, измеренная с помощью пленочного дозиметра, составляла 1.2 кГр за импульс. Исследуемые вещества и их смеси наносились в виде 1 %-х спиртовых растворов на слой адсорбента – силикагеля 3 в виде круга диаметром 20 мм, сформированного на пластине для ТСХ. Толщина слоя адсорбента была 0.1 мм, толщина подложки из алюминия 4 – также 0.1 мм. В качестве связующего для силикагеля был крахмал (1 % от массы силикагеля). Общий вес адсорбента в образце составлял 15 мг, а количество нанесенных объектов – порядка 0.5–1 мг. После нанесения спиртовых растворов растворитель высушивался при температуре 40 °С в течение 5 минут. Для уменьшения эффекта испарения образцы заворачивались в Al фольгу 5 толщиной 10 мкм.

Один образец помещался на расстоянии 20 мм от выводного окна ускорителя, другой аналогичный образец использовался как контрольный. После проведения серии импульсов облучения образцы экстрагировались 1 мл ацетона и анализировались методом GC/MS на хроматомасс-спектрометрическом комплексе Varian Saturn 2100 T. Для анализа использовалась хроматографическая колонка VF-5ms внутренним диаметром 0.2 мм и толщиной фазы 0.25 мкм, длиной 30 м. Параметры хроматографирования следующие: расход газа носителя (гелия) – 1 мл/мин; температуры инжектора, ловушки, коллектора и переходной линии – 280, 150, 35 и 170 °С, соответственно. Температура колонки для анализа хлорфенолов программировалась: 100 °С, выдержка 9 минут, увеличение температуры до 200 °С со скоростью 20 °С/мин. Для анализа РСВ: 100 °С, выдержка 3 мин, повышение до 200 °С со скоростью 10 °С/мин, выдержка 18 мин и повышение до 280 °С со скоростью нагрева 2 °С/мин.

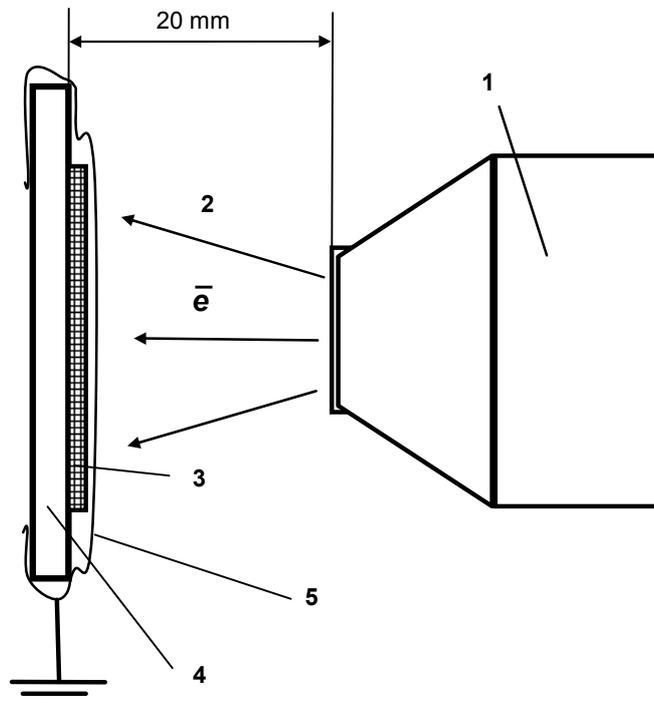


Рис. 1. Принцип действия экспериментальной установки

Действие пучка электронов на хлорфенолы в слое адсорбента. Согласно стандартной методике, описанной выше, на адсорбент (силикагель) наносилась смесь хлорфенолов в виде 1 %-х спиртовых растворов следующего состава: 2-хлорфенол (0.5 мг), 2,4-дихлорфенол (0.6 мг) и 4-хлорфенол (0.5 мг). На рис. 2 показано содержание хлорфенолов в слое силикагеля в зависимости от количества импульсов облучения. Обращает на себя внимание линейная зависимость содержания исходных компонентов от поглощенной дозы. Такая зависимость, по-видимому, свидетельствует о том, что удаление хлорфенолов является основным каналом дезактивации активных частиц, генерируемых в адсорбенте под действием пучка электронов. Так как адсорбент (силикагель) находился в контакте с воздухом, часть активных частиц может быть активными формами кислорода.

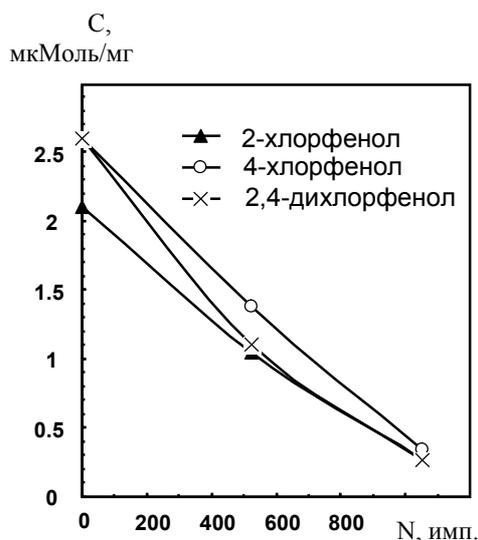


Рис. 2. Зависимость содержания хлорфенолов в слое силикагеля С, мкмоль/мг от количества импульсов облучения N

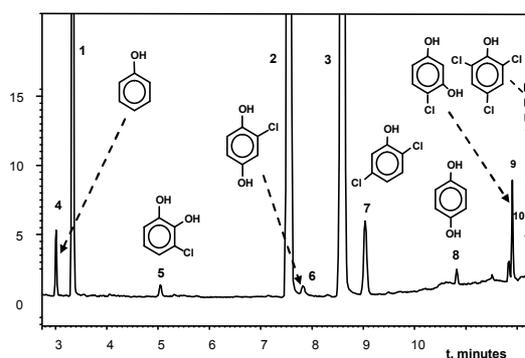
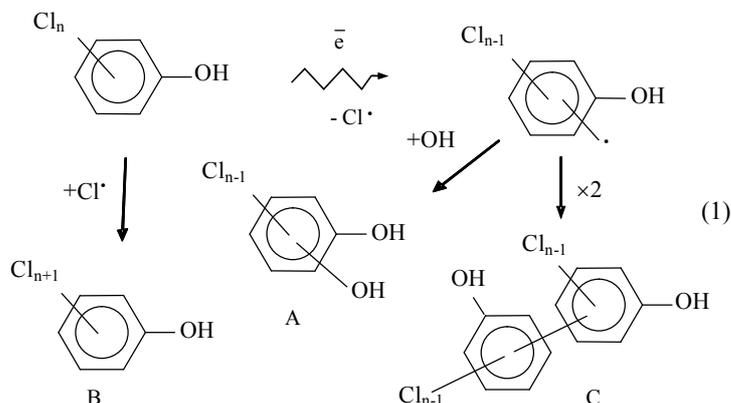


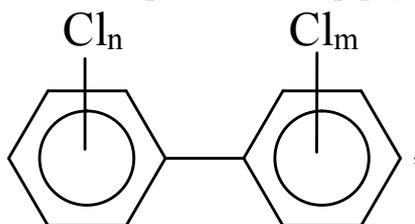
Рис. 3. Хроматограмма смеси после 1150 импульсов облучения пучком электронов. Показаны пики исходных компонентов (1–3) и продуктов реакции

Для того чтобы определить конечные продукты превращения хлорфенолов, был проведен анализ концентрированного образца конечной смеси после 1150 импульсов облучения. На рис. 3 приведена хроматограмма конечной смеси, на которой проявились дополнительные пики продуктов. Пикам 1–3 соответствуют исходные компоненты: 2-хлорфенол, 4-хлорфенол и 2,4-дихлорфенол, соответственно. С помощью базы данных масс-спектров NIST [4] сделано наиболее вероятное отнесение хроматографического пика к конкретной химической структуре. Основными продуктами являются бифенолы – продукты окисления фенолов. Кроме того, зафиксировано наличие трихлорфенола – продукта передислокации атома хлора вследствие равновесного процесса дехлорирования / хлорирования. Совокупность возможных превращений может быть показана на схеме 1:



На схеме 1 показаны продукты: **A** – окислительного дехлорирования, **B** – продукт миграции атома хлора и **C** – продукт сшивки. Это неполный список возможных превращений. Ранее показано [5], что по методике, близкой к описываемой здесь, фенол образует заметное количество продуктов сшивки – производного бифенила (вида **C**, показанного на схеме). Хлорфенолы аналогично дают продукты сшивки [6]. Однако принципиальное отличие описываемой здесь методики – использование малого содержания исследуемого соединения в адсорбенте. Из-за этого бимолекулярные процессы сшивки молекул по направлению **C** не реализуются. Возможно также, что соединения **C** обладают пониженной летучестью и поэтому методом GC не определяются. Очевидно, что при значении концентрации компонента в адсорбенте выше какого-то значения, он будет вести себя как сплошной слой, и адсорбент не будет оказывать значительного влияния на процессы взаимодействия пучка электронов на вещество. Исследование особенностей механизмов превращения хлорфенолов продолжают.

Действие пучка электронов на технологическую смесь РСВ СОВОЛ. СОВОЛ – технологическая смесь РСВ, получаемая хлорированием бифенила общей формулы:



где обычно соблюдается условие: $3 < n + m < 10$.

Различным аспектам РСВ: экологии, анализу и химическим превращениям посвящен обзор [7].

Экспериментальная процедура исследования была следующей: 1 %-й спиртовой раствор смеси РСВ СОВОЛ наносился на слой силикагеля аналогично стандартной процедуре. Общее содержание РСВ, нанесенных на силикагель, составляло 1 мг. Хроматограмма смеси СОВОЛ, полученная с контрольного образца, показана на рис. 4. Каждый из пиков хроматограммы был соотнесен конкретному соединению с помощью данных, приведенных в обзоре [7].

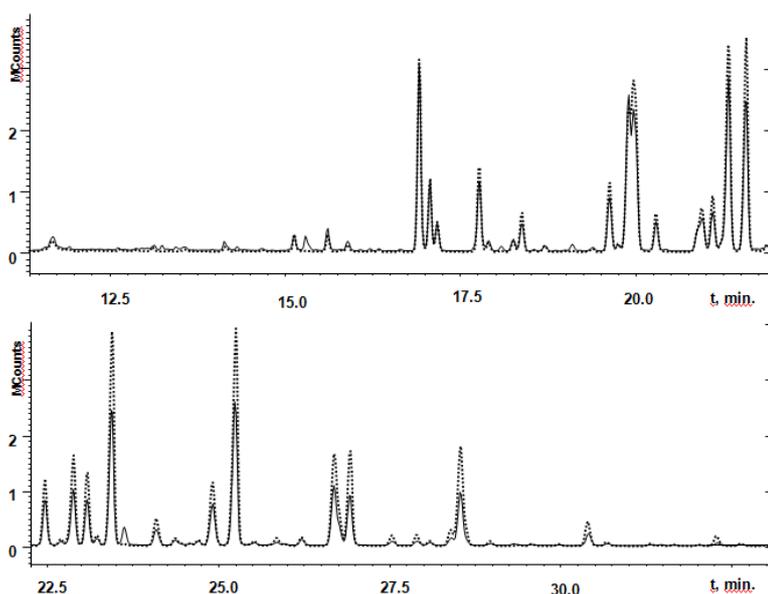


Рис. 4. Хроматограмма технологической смеси РСВ СОВОЛ

Компоненты с большим содержанием атомов хлора, имея более высокое время удерживания, расположены в правой части хроматограммы, с меньшим – в левой, соответственно. После обработки 1150 импульсами облучения была получена аналогичная хроматограмма с уменьшенной на 20–30 % площадью всех пиков. При этом отмечена слабая зависимость эффективности разложения компонента от содержания хлора в молекуле. Известно, что хлорированные соединения в процессе радиолитического разложения дают активный хлор [2], поэтому использование компонентов, перехватывающих активный хлор, должно в значительной степени влиять на эффективность конверсии хлорированных компонентов.

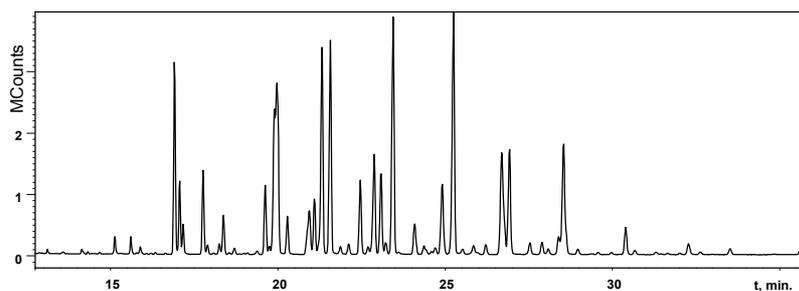
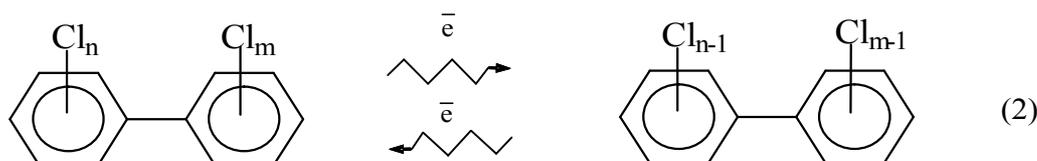


Рис. 5. Хроматограмма экстракта смеси СОВОЛ до облучения (точечная линия) и после облучения – сплошная линия. В исходную смесь добавлено 25 % (вес.) дифенила. Количество импульсов облучения – 1150

Для перехвата хлора был добавлен бифенил – нехлорированный аналог РСВ. Изучение конечных хроматограмм показало, что в случае добавления бифенила наблюдается совсем другая картина: компоненты с высоким содержанием хлора удаляются более эффективно, концентрация компонентов с малым содержанием хлора, наоборот, увеличивается, а содержание компонентов со средним количеством хлора остается без изменений. В качестве примера на рис. 5 показано изменение вида хроматограммы после воздействия 1150 импульсов облучения. Видно, что концентрация компонентов с повышенным содержанием хлора уменьшается, в то время как концентрация компонентов с пониженным содержанием хлора, наоборот, увеличивается. Некоторые компоненты со средним содержанием хлора не изменяют концентрацию. Следует отметить, что такое избирательное поведение компонентов РСВ в растворах при облучении пучком электронов отмечалось ранее другими исследователями [8, 9]. Нами впервые наблюдались подобные превращения в слое адсорбента. Основываясь на этих фактах, можно сделать вывод, что радиолиз РСВ в слое адсорбента под действием пучка электронов активирует равновесные процессы, показанные на схеме 2:



При этом соединения-доноры протонов являются катализаторами этих процессов. А соединение – бифенил, кроме того, может быть и источником РСВ. Равновесие, показанное на схеме 2, объясняет высокую радиационную стойкость смесей РСВ с добавлением бифенила. Для того, чтобы направить процессы в сторону разрушения РСВ, следует добавлять вещества, перехватывающие активный хлор. Исследование влияния таких добавок является отдельным перспективным исследованием. Кроме того, адсорбент может оказывать активное влияние на ход процессов, поэтому исследования по влиянию вида адсорбента на превращения РСВ при воздействии высокоэнергетического пучка электронов будут продолжены.

Выводы

1. Разработан метод исследования воздействия пучка электронов на компоненты в слое адсорбента. Вместе с высокоизбирательным и высокочувствительным методом анализа GC / MS он позволяет проводить исследования с количеством образцов 1 мг и менее, что очень важно при работе с потенциально токсичными соединениями.

2. Показано, что пучок электронов эффективно удаляет хлорфенолы, нанесенные на слой адсорбента. Одним из процессов, ведущих к снижению концентрации хлорфенолов – окисление в бифенолы. В качестве источника кислорода (окислителя) выступает кислород, содержащийся в адсорбенте и кислород воздуха, находящегося в контакте с адсорбентом. Другой процесс – дехлорирование. При этом в отсутствие перехватчиков активного хлора происходит образование компонентов с повышенным по сравнению с исходными компонентами содержанием хлора. Третий процесс – сшивка молекул, реализуется лишь при повышенной концентрации хлорфенолов.

3. Технологическая смесь РСВ СОВОЛ, облученная пучком электронов в слое адсорбента (силикагеля), эффективно разрушается. Наблюдается уменьшение концентрации всех компонентов смеси при облучении. Добавление соединения-донора атомов водорода (например, бифенила) приводит к снижению содержания компонентов с повышенным количеством атомов хлора и повышению содержания компонентов с пониженным содержанием хлора. Это свидетельствует о наличии в облучаемом слое адсорбента, содержащего РСВ, равновесного процесса перераспределения атомов хлора аналогичного тому, что наблюдается при облучении разбавленных растворов РСВ пучком электронов. Для эффективного разрушения РСВ, таким образом, необходимо добавление компонентов, перехватывающих активный хлор.

Работа выполнена при поддержке программы фундаментальных исследований УрО РАН – проект № 12-У-2-1027 и РФФИ – проект № 10-08-01085-а.

Библиография

1. [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <http://www.ejnet.org/dioxin/>.
2. Пикаев А.К. Современная радиационная химия: радиолиз газов и жидкостей. М.: Наука, 1986. 360 с.

3. Mesyats G.A., Shpak V.G., Yalandin M.I. and Shunailov S.A. Compact RAD AN electron accelerators for testing new radiation technologies and sterilization // *Radiat. Phys. Chem.* 1995. V. 46. N 4–6. P. 489–492.
4. NIST Chemistry WebBook [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <http://webbook.nist.gov/>.
5. Новоселов Ю.Н., Филатов И.Е., Шпак В.Г., Шунайлов С.А. Воздействие наносекундного пучка электронов на фенол в слое адсорбента // *Химия высоких энергий.* 1997. Т. 31, № 2. С 86–88.
6. Новоселов Ю.Н., Филатов И.Е. Синтез бифенильных соединений в слое адсорбента из фенолов под действием импульсного пучка электронов // *Труды 3 Международного симпозиума по теоретической и прикладной плазмохимии.* 2002. Т. 2. С. 243–246.
7. Горбунова Т.И., Первова М.Г., Забелина О.Н., Салоутин В.И., Чупахин О.Н. Полихлорбифенилы. Проблемы экологии, анализа и химической утилизации. М.: КРАСАНД, Екатеринбург: УрО РАН, 2011. 400 с.
8. Můčka V., Silber R., Pospíšil M., Čampa M., Bartoníček B. Radiolytic dechlorination of PCBs in presence of active carbon, solid oxides, bentonite and zeolite // *Radiat. Phys. Chem.* 2000. V. 59. P. 399–404.
9. Chaychian M., Jones C., Poster D., Silverman J., Neta P., Huie R., Al-Sheikhly M. Radiolytic dechlorination of polychlorinated biphenils in transformer oil and in marine sediment // *Radiat. Phys. Chem.* 2002. V. 65. P. 473–478.

ДУГОВОЙ РАЗРЯД В МИНЕРАЛЬНОМ И ОРГАНИЧЕСКОМ МАСЛЕ

Дарьян Л.А.¹, Козлов А.В.², Котов А.В.², Поварешкин М.Н.²,
Полищук В.П.², *Шурупов А.В.², Шурупова Н.П.²

¹ЗАО «Техническая инспекция ЕЭС»

²Объединенный институт высоких температур РАН

*shurupov@fites.ru

Представлены экспериментальные исследования дугового разряда в различных маслах в условиях, реализующихся при коротком замыкании в высоковольтном маслонаполненном электрооборудовании. Ток разряда до 15 кА, длительность разряда около 9 мс. Получены данные о вольт-амперной характеристике разряда, давлении в жидкости, коэффициенте газообразования. Приведены оценки параметров плазмы в дуге.

Ключевые слова: дуговой разряд, изоляционная жидкость, импульсное давление.

ARC DISCHARGE IN MINERAL AND ORGANIC OIL

Darian L.A.¹, Kotov A.V.², Kozlov A.V.², Povareskin M.N.²,
Polistchook V.P.², Shurupov A.V.², Shurupova N.P.²

¹JSC «UES Technical Inspection»

²Joint Institute for High Temperatures RAS

Experimental researches of arc discharge in a variety of oils are presented. The tests conditions were typical for the short circuit in high-voltage oil-filled electrical equipment. Discharge current was up to 15 kA, the duration of the discharge was about 9 milliseconds. Data on current-voltage characteristic of the discharge, pressures in the fluid, and the rates of gas formation were obtained. Estimations of plasma parameters in arc have been presented.

Keywords: arc discharge, insulating liquid, pulse pressure.

Постановка задачи. Взрывы высоковольтного маслонаполненного электротехнического оборудования (ВМЭО) происходят вследствие дугового разряда (ДР), возникающего в результате внутреннего короткого замыкания (КЗ). Ущерб от таких аварий значительно усугубляется пожаром, который может начаться при попадании в воздух горячих газообразных продуктов разложения изоляции. В этом случае только прямые потери, связанные с разрушением и повреждением оборудования подстанции, могут исчисляться десятками миллионов долларов США. Поэтому задача повышения взрывобезопасности ВМЭО является весьма актуальной.

Причина взрыва ВМЭО – резкий рост давления внутри корпуса вследствие интенсивного разложения трансформаторного масла (ТМ) в ДР. Необходимость исследования ДР в ВМЭО продиктована недостатком данных об особенностях силового воздействия разряда на корпус оборудования. Эти данные требуются для проектирования эффективных систем защиты ВМЭО от взрыва. Внедрение таких систем позволит значительно уменьшить вероятность взрыва нового оборудования.

Проблема повышения взрывобезопасности оборудования, находящегося в эксплуатации, может быть отчасти решена при использовании других типов изоляционных жидкостей, так как темп роста давления в ДР зависит от физических свойств жидкости. При меньшем темпе роста давления при прочих равных условиях уменьшается вероятность взрывного разрушения корпуса. Кроме того, вероятность возникновения пожара после взрыва ВМЭО определяется температурой вспышки образовавшихся газов. Для минерального ТМ температура вспышки составляет 145 °С, для эфира *BIOTEMP*, производимого фирмой *ABB* из растительных масел, эта температура достигает 360 °С [1]. Приведенные обстоятельства поясняют актуальность проводимых исследований. В данной работе, являющейся продолжением работ [2, 3], приведены результаты исследования характеристик ДР в минеральном ТМ марки ГК и органических маслах – соевом, рапсовом и касторовом.

Экспериментальная установка и система диагностики. Эксперименты проводились в условиях, типичных для ДР, возникающего при внутреннем КЗ в промышленном ВМЭО. Ток нарастал до 5–50 кА за время 1–3 мс при общей длительности горения дуги 3–20 мс. Источником энергии служил емкостной накопитель энергии (ЕНЭ) с максимальным напряжением зарядки $V_0 = 4$ кВ. Использовался индуктор, чтобы обеспечить зависимость тока от времени, близкую к синусоиде на промышленной частоте (50 Гц). Электрическая схема позволяла получать две полуволны тока разной полярности. Однако большинство экспериментов проводились с одной полуволной. Энергия Q_a , выделившаяся в ДР, достигала 100 кДж. Эксперименты проводились в камере с внутренним диаметром 310 мм. Камера имела пять окон диаметром 150 мм для наблюдений. Две пары окон, установленные на разной высоте, находились на боковой поверхности камеры, одно окно – на верхнем фланце. Общий объем камеры – 61 л. Объем, занимаемый жидкостью, составлял 35 л, остальной объем в большинстве экспериментов заполнялся азотом при атмосферном давлении. В качестве рабочей жидкости использовалось масло (минеральное или органическое), а также дистиллированная вода.

Основные эксперименты проводились в геометрии, когда разряд зажигался между двумя параллельными электродами диаметром 15–24 мм, находившимися на расстоянии 48 мм друг от друга. Длина электродов, установленных на нижнем фланце камеры, была 210 мм. Верхний край электродов находился на расстоянии 50 мм ниже границы раздела «жидкость-газ». На нижнем фланце, на расстоянии 85 мм от электродов, были установлены потенциальные зонды для контроля процесса расширения плазмы. На нижнем фланце также монтировались датчики движения жидкости, которые представляли собой натянутые медные проволочки диаметром 40 мкм, через которые пропускался ток. Проволочки были установлены на расстоянии 40 и 85 мм от оси электродного узла. Под действием динамического напора за время порядка 0,1 мс происходил обрыв проволочки.

В экспериментах измерялись ток и напряжение дуги, давление на стенках камеры и в газовой полости над жидкостью. Время отклика датчиков давления составляло 0,05 мс. Один датчик давления был установлен вблизи нижнего фланца камеры, практически напротив места инициации разряда. Второй датчик давления монтировался на расстоянии 50 мм от верхнего уровня жидкости. Датчик давления в газе устанавливался на верхнем фланце, на расстоянии 0,3 м от верхнего уровня жидкости. Проводилась видеосъемка процесса развития разряда со скоростью до 2000 кадров в секунду. Одновременно использовались две видеокамеры. Одна камера снимала сам разряд, другая – границу раздела «жидкость-газ». Выполнялась съемка начальной стадии развития разряда с временным разрешением 0,12 мс при помощи высокоскоростной камеры ВСК-6. После экспериментов определялся состав растворенных газов, образовавшихся после горения дуги.

При исследовании начальной стадии разряда использовался катод в виде сетки с размером ячейки 15 мм. При такой геометрии электродного узла значительно уменьшалась скорость движения дуги под действием собственного магнитного поля.

Дуговой разряд возникал после электрического взрыва медной проволочки диаметром 0,1 мм, соединявшей электроды. Инициатор находился на расстоянии 50 мм от нижнего фланца.

Экспериментальные результаты. На рис. 1 приведена осциллограмма напряжения на разряде в начальный момент времени при разряде в ТМ, $V_0 = 2,5$ кВ. В этом эксперименте использовался катод в виде сетки.

Напряжение на промежутке достигает своего максимума (1,7 кВ) к моменту взрыва инициатора. Как показывают оценки, при начальном темпе роста тока $2 \cdot 10^6$ А/с взрыв инициатора произошел примерно через 20 мкс после подачи напряжения. Напряжение через 0,1 мс после взрыва инициатора уменьшилось примерно втрое, до 0,5 кВ, и удерживалось на этом уровне в течение 0,1 мс, а затем за такой же промежуток времени снизилось до 0,25 кВ. В дальнейшем напряжение уменьшалось значительно медленнее, оно обратилось в ноль вместе с током через ≈ 5 мс после возникновения ДР, при этом повторное зажигание дуги не сопровождалось скачком напряжения. Сравнительно большое падение напряжения в начальный момент времени обусловлено высоким давлением плазмы в столбе ДР. По мере расширения канала давление уменьшается, и напряжение снижается.

Скоростная съемка показала, что в течение 0,1–0,3 мс после возникновения ДР свечение плазмы наблюдалось только вблизи электродов. Начальная скорость расширения области свечения была около 0,2 км/с. Спустя ≈ 1 мс после подачи напряжения вблизи анода образовалось светящееся шарообразное облако размером ≈ 5 см. К этому времени ток дуги достиг ≈ 7 кА, а напряжение уменьшилось до 0,2 кВ. Пока ток дуги возрастал, облако расширялось, но скорость фронта свечения упала до 0,05 км/с. Размер области свечения был максимален (≈ 7 см) спустя ≈ 2 мс после появления дуги, когда ее ток был около

11 кА. После этого размер области свечения начал уменьшаться. В этом эксперименте максимум тока ($\cong 12$ кА) был зафиксирован через $\cong 2,5$ мс после начала разряда.

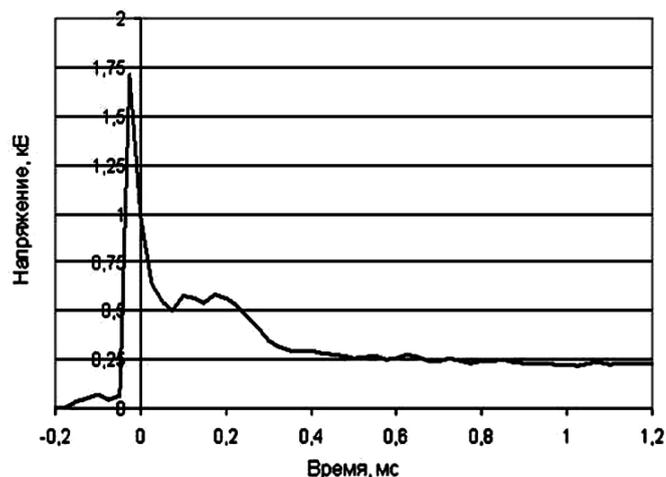


Рис. 1. Напряжение в начальный момент горения дуги в ТМ

Далее рассматриваются эксперименты с параллельными цилиндрическими электродами. На рис. 2 приведены типичные осциллограммы тока и напряжения дугового разряда в минеральном масле при такой геометрии электродного промежутка. Видно, что на стадии роста тока напряжение на разряде более стабильно по сравнению со стадией спада тока, когда наблюдаются интенсивные пульсации напряжения.

На осциллограмме тока и напряжения наблюдается характерная особенность, которая, по-видимому, связана с воздействием на дугу сил собственного магнитного поля. Для режима, представленного на рис. 2, эта особенность проявилась через 3,6 мс после возникновения разряда. ДР под действием магнитных сил скользит вверх по электродам, при этом столб-дуга вытягивается, и длина ее увеличивается. Это вызывает рост напряжения на дуге, который заканчивается возникновением шунтирующего пробоя, и напряжение резко уменьшается. После этого изменяется и характер зависимости тока от времени. Были зафиксированы режимы, в которых после резкого снижения напряжения ток ДР начинал возрастать. Из анализа осциллограмм напряжения следует, что характерная скорость скольжения ДР по электродам составляет около 10 м/с. Это значение скорости дуги согласуется со значением, определенным из длины эрозийного следа, возникшего на поверхности катода за время горения ДР.

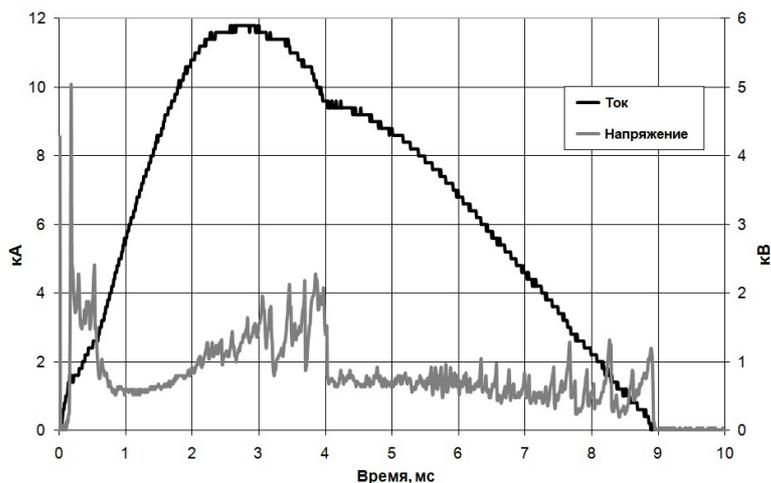


Рис. 2. Ток и напряжение при разряде в минеральном масле, $V_0 = 2,5$ кВ

Из рис. 1 и 2 следует, что характерное значение напряженности электрического поля в столбе дуги составляет около 0,2 кВ/см. Если принять, что характерный поперечный размер столба ДР того же порядка, что и ширина эрозийного следа, который составлял около 1 см, то характерное значение плотности тока в столбе ДР должно быть порядка 10 кА/см². При средней напряженности электрического поля 0,2 кВ/см электропроводность плазмы должна быть порядка 50 Ом⁻¹·см⁻¹. Такое значение электропроводности является типичным для плазмы дугового разряда при высоком давлении [4].

Характерное напряжение на потенциальных зондах составляло $\cong 20$ В, к моменту погасания разряда достигло $\cong 200$ В. По-видимому, к этому моменту расширяющееся плазменное облако «накрывало» зонд. Зонд находился в стороне от столба ДР, и, вероятно, сигнал на зонде появлялся вследствие амбиполярной диффузии заряженных частиц. Из полученных данных следует, что эффективный коэффициент амбиполярной диффузии в рассматриваемых условиях составляет $\cong 1$ м/с².

Можно отметить, что напряжение на разряде в органических маслах не испытывало столь резких скачков, как в минеральном. При этом ток дуги в растительных маслах изменялся более плавно, и излом на спаде тока был менее выражен, чем в минеральном ТМ. По-видимому, это может свидетельствовать о сравнительно низкой скорости движения дуги в органических маслах и большей электропроводности плазмы продуктов разложения этих масел. При этом длительность горения дуги в минеральном масле оказалась несколько больше. Можно отметить, что видеосъемка фиксировала свечение в области электродного узла в течение 5 мс после того, как ток ДР уменьшался до нуля. По-видимому, это было свечение нагретого газа, высокая температура которого поддерживалась энергией, выделяющейся в процессах рекомбинации.

На рис. 3 приведена вольт-амперная характеристика дуги в исследованных жидкостях на стадии роста тока, то есть, примерно в течение 3 мс после возникновения ДР. Для касторового масла напряжение зарядки ЕНЭ V_0 было 2 кВ, для других масел – 2,5 кВ. Из этого рисунка следует, что характерное сопротивление ДР в органических маслах в полтора-два раза ниже, чем в минеральном. Видно также, что сопротивление ДР для разных типов растительных масел в диапазоне токов от 4 до 10 кА практически одинаково.

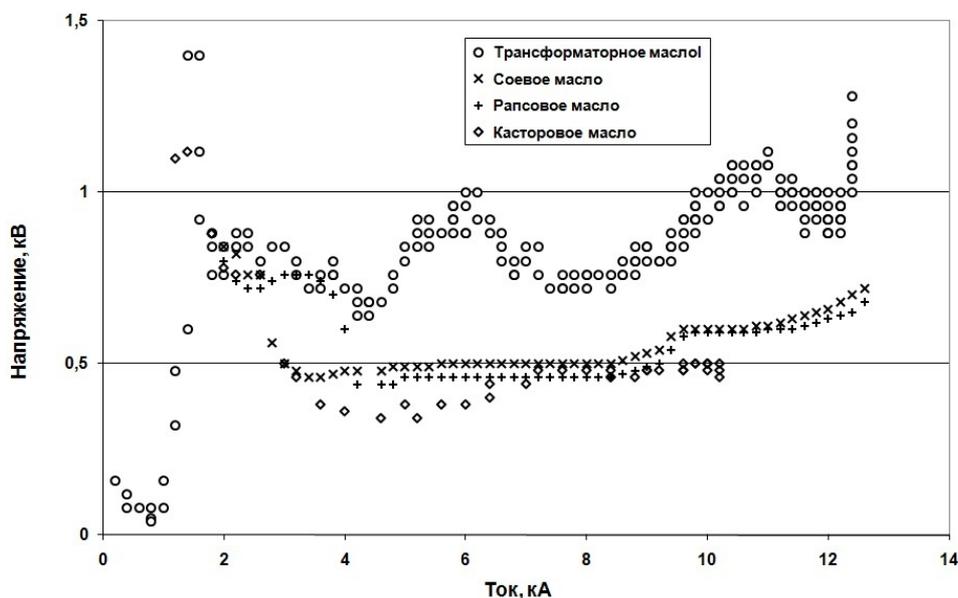


Рис. 3. Вольт-амперная характеристика разряда на стадии роста тока

Нами также проводились контрольные эксперименты, в которых в качестве изоляционной жидкости использовалась дистиллированная вода. Качественного отличия вольт-амперных характеристик ДР в воде и в ТМ не было выявлено.

На рис. 4 представлены данные о давлении в исследуемых жидкостях, измеренном вблизи дна камеры. Напряжение на ЕНЭ было таким же, как и при измерении вольт-амперных характеристик, показанных на рис. 3. Детальная «расшифровка» осциллограмм давления требует учета отражения волн давления от стенок камеры и границы раздела «жидкость-газ».

Рассмотрим более подробно данные о давлении в ТМ. Как видно из рис. 4, на фоне растущего давления наблюдаются периодические пульсации, в которых за время 0,2–0,3 мс давление увеличивается на 30–50 %. При этом со временем скорость набора давления в жидкости увеличивается. Скорость снижения давления была несколько меньше, чем скорость его роста. Характерный темп изменения давления составлял 0,5 МПа/мс. В наших опытах максимальное давление в жидкости на расстоянии $\cong 0,15$ м от области горения дуги достигало $\cong 2$ МПа. Давление вблизи границы раздела «жидкость-газ» было примерно на порядок меньше, чем вблизи нижнего фланца.

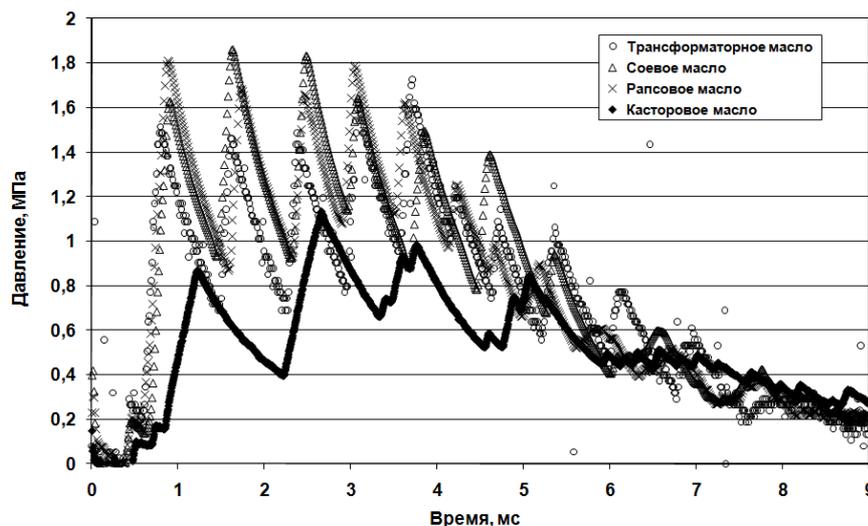


Рис. 4. Давление вблизи дна камеры

Существовала корреляция сигналов с датчиков, измерявших давление на разной глубине. Особенно отчетливо это проявлялось в первое время горения ДР, примерно в течение 3 мс. Первые шесть экстремумов давления (максимумы и минимумы), зарегистрированные с помощью разных датчиков, отличались по времени примерно на 0,1 мс. Это задержка по времени согласуется с разницей по времени распространения звука в масле от области горения ДР до места установки датчиков давления. Примерно через 3 мс после возникновения ДР корреляция сигналов с разных датчиков давления ослабевала. По всей видимости, это было связано с движением разряда по электродам и расширением парогазового пузыря, образующегося в результате разложения масла в ДР.

Первые экстремумы давления следуют с интервалом $\cong 0,8$ мс, потом шаг их следования уменьшается до $\cong 0,6$ мс. Прослеживалась некоторая корреляция между сигналами с датчиков давления и осциллограммой напряжения на разряде. Так, первому максимуму давления на рис. 4 соответствовал «размазанный» максимум напряжения. Абсолютному максимуму давления в масле, который был зафиксирован через 3,71 мс после возникновения ДР и составил $\cong 1,7$ МПа (рис. 4), предшествовал скачок напряжения до 2,2 кВ, который в этом эксперименте произошел через 3,64 мс после возникновения ДР (рис. 2). Разница по времени между максимумом напряжения и максимумом давления примерно соответствует времени распространения звуковой волны от зоны горения ДР до места установки датчика.

Характер зависимости давления от времени в рапсовом и соевом масле, как следует из данных на рис. 4, примерно такой же, как в минеральном масле: количество экстремумов давления и его пиковые значения в этих трех жидкостях близки. В касторовом масле зависимость давления от времени качественно отличается: заметно медленнее происходит рост давления, пиковые значения давления в касторовом масле примерно вдвое меньше, и само количество экстремумов меньше, чем в других жидкостях.

Под действием давления расширяющегося парогазового пузыря граница раздела «масло-газ» приходит в движение. Скоростная видеосъемка этой границы позволила получить представление о динамике расширения парогазового пузыря. При электрической мощности ДР порядка 10 МВт подъем уровня жидкости становился заметным примерно через 1 мс после возникновения ДР. Во всех экспериментах жидкость поднималась сначала однородно по всему сечению камеры; интенсивное перемешивание ее с расширяющимся парогазовым пузырем происходило после того, как граница раздела оказывалась несколько выше уровня окна. По внешним признакам срыв режима однородного подъема масла был связан с воздействием волн давления, отраженных от стенок и дна камеры.

Характерная скорость движения границы раздела «масло-азот» составляла около 10 м/с. Скорость течения масла вблизи области горения разряда, как следует из разности времени срабатывания датчиков движения, была примерно вдвое больше, около 20 м/с. Из величины скорости границы раздела можно оценить давление в парогазовом пузыре к моменту начала движения жидкости. Эти оценки показывают, что давление в пузыре достигло порядка 5 МПа. По порядку величины это значение давления соответствует давлению, измеренному на стенках камеры.

Полученные данные свидетельствуют о том, что воздействие дугового разряда на масло в условиях внутреннего короткого замыкания не сопровождается возникновением ударных волн. Скорость течения жидкости значительно меньше скорости звука, которая для ТМ составляет около 1,5 км/с. Ударная

волна, если и возникала на начальной стадии пробоя, то за времена порядка 0,1 мс она вырождалась в интенсивную звуковую волну.

Подъем уровня жидкости приводил к адиабатическому сжатию газа, находящемуся над ней. Можно отметить, что измеренные значения давления газа хорошо согласуются с расчетом давления по формуле Пуассона, в которой объем, занятый газом, определялся из данных о положении границы раздела «жидкость-газ», полученных с помощью скоростной видеосъемки. Максимальное давление в азоте достигало $\cong 0,5$ МПа, после чего происходило интенсивное его охлаждение вследствие перемешивания с расширяющейся жидкостью. Примерно через 0,1 с в газовой полости устанавливалось избыточное давление, которое оставалось постоянным на протяжении нескольких часов. Значение избыточного давления достигало 50 кПа.

Величина избыточного остаточного давления пропорциональна объему газов V_g , выделившихся при разложении масла в ДР. Объем этих газов является важнейшей величиной, определяющей величину давления, которое возникает при дуговом разряде внутри ВМЭО. Для характеристики интенсивности процессов газообразования при электрических разрядах в ТМ обычно используют коэффициент удельного газообразования B_g , который представляет собой отношение объема образовавшихся газов V_g к энергии, выделившейся в разряде Q_a . Коэффициент газообразования для минерального масла составил 0,11 л/кДж. Это значение было измерено в самых различных конструкциях электродного узла. В органических маслах значение B_g оказалось примерно на 5–10 % меньше, чем в минеральном. Отметим, что это отличие практически находится в пределах погрешности измерений B_g .

Если в качестве рабочей жидкости использовалась вода, то после эксперимента давление азота за время порядка 30 мс возвращалось к исходному значению. Это означает, что большая часть молекул водяного пара, распавшихся в ДР на водород и кислород, после окончания эксперимента восстанавливалась в ходе обратной реакции. Затем происходила частичная конденсация образовавшихся молекул воды.

В некоторых экспериментах с ТМ газовая подушка заполнялась воздухом при атмосферном давлении. При достаточно большой энергии ДР, свыше 50 кДж, в газовой подушке фиксировалась вспышка. Это происходило вследствие воспламенения газообразных продуктов разложения ТМ, перемешавшихся с воздухом. В условиях рассматриваемых экспериментов процесс воспламенения облегчался тем, что подъем уровня жидкости под действием расширяющегося парогазового пузыря сопровождался нагревом воздуха вследствие адиабатического сжатия.

После эксперимента при помощи хроматографа был измерен состав газов, растворенных в масле. После разряда в минеральном масле наибольшую концентрацию имели углеводороды C_2H_2 и C_2H_4 . Это объясняется глубоким развалом молекул углеводородных жидкостей под действием энергии дугового разряда. В растительных маслах помимо этих углеводородов также присутствовал водород, метан и окислы углерода.

Заключение. Представленные результаты могут использоваться для оценки динамического воздействия импульсного дугового разряда на ВМЭО и для разработки новых методов защиты ВМЭО от взрыва. В наших экспериментах энергия, выделившаяся в дуговом разряде, не превышала 100 кДж. В мощных ДР, возникающих в силовых и измерительных трансформаторах вследствие внутреннего КЗ, энергия дуги может быть на один-два порядка больше. Тем не менее, не следует ожидать качественного отличия динамического воздействия ДР на промышленное ВМЭО от рассмотренного выше. Во-первых, более высокие значения энергии ДР в промышленном ВМЭО определяются большей длительностью горения и большей длиной столба ДР. Типичное время горения ДР в промышленном ВМЭО составляет порядка 50 мс, а длина столба дуги – порядка 0,1 м. При этом электрическая мощность, приходящаяся на единицу длины столба дуги, – примерно такого же порядка, что была получена в наших экспериментах, а именно этот параметр определяет главным образом темп роста давления внутри корпуса. Во-вторых, вероятность взрыва ВМЭО достигает максимального значения через 10–20 мс после возникновения ДР. Позднее вероятность взрыва уменьшается. Это связано с тем, что из-за увеличения электропроводности изоляционной жидкости в два-три раза уменьшается напряжение на дуге. Кроме того, к этому времени начинает сказываться увеличение объема бака ВМЭО вследствие пластической деформации, что частично компенсирует рост давления вследствие разложения ТМ в дуговом разряде.

Интенсивность силового воздействия ДР на корпус ВМЭО определяется энергией, выделившейся в дуговом разряде. Для оценок величины этой энергии необходимо знать величины тока и напряжения на разряде, а также длительность его горения. Время существования разряда определяется характеристиками отключающих устройств, величина тока в ДР-параметрами внешней цепи. Напряжение на ДР оценивается из значений ожидаемой длины столба дуги и средней напряженности электрического поля, которое составляет около 0,2 кВ/см.

Характеристики дугового разряда в минеральном и растительном масле при одинаковых условиях во внешней цепи заметно отличаются друг от друга. При этом с точки зрения повышения взрывобезопасности ВМЭО соевое и рапсовое масло не имеют заметного преимущества перед минеральным маслом. В касторовом масле темп роста давления был заметно меньше, чем в ТМ. Этот факт уменьшает вероятность взрывного разрушения корпуса ВМЭО при возникновении ДР. Перспективы использования этого растительного масла в качестве изоляционной жидкости в ВМЭО требуют специального анализа. Можно заметить, что касторовое масло широко используется в высоковольтных импульсных конденсаторах.

На основании полученных результатов был создан бездуговой источник импульсного давления, предназначенный для моделирования воздействия дугового разряда, возникающего в результате внутреннего короткого замыкания, на высоковольтное маслonaполненное электрооборудование [5].

Библиография

1. Girgis R., Bernesjö M., Frimpong G.K. Detailed performance of a 50 MVA transformer filled with a natural ester fluid versus mineral oil // 43th SIGRE Session. Report A2-107. Paris. 2010 (cd).
2. Daryan L.A., Kozlov A.V., Kotov A.V., Povareshkin M.N., Polistchok V.P., Shurupov A.V., Shurupova N.P. Pulse arc discharge in mineral and organic oils // Physics of Extreme States of Matter-2012. Chernogolovka: IPCP RAS, 2012. P. 168–169.
3. Дарьян Л.А., Козлов А.В., Лузганов С.Н., Поварешкин М.Н., Полищук В.П., Шурупов А.В., Шурупова Н.П. Импульсный дуговой разряд в минеральном и органическом масле // Тр. конф. «Физика низкотемпературной плазмы – 2011». Петрозаводск: ПетрГУ, 2011. Т. 1. С. 106–111.
4. Райзер Ю.П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1987. 590 с.
5. Дарьян Л.А., Козлов А.В., Поварешкин М.Н., Полищук В.П., Сон Э.Е., Фортов В.Е., Шурупов А.В. Бездуговой метод испытания высоковольтного маслonaполненного оборудования на взрывобезопасность // Известия РАН. Энергетика. 2011. № 5. С. 74–78.

ВОЗМОЖНЫЙ МЕХАНИЗМ ОТРЫВА МАКРОЧАСТИЦ С КАТОДА В СТРИМЕРНОМ РАЗРЯДЕ

*Печеркин В.Я., Василяк Л.М., Ветчинин С.П., Молотков В.И.

Объединенный институт высоких температур РАН

*vpecherkin@yandex.ru

Исследован поляризационный механизм зарядки макрочастиц, связанный с разделением заряда на поверхности частиц под действием сильного внешнего электрического поля. Показана возможность получения экстремально высоких значений заряда на металлических и диэлектрических частицах при атмосферном давлении в воздухе в однородном электрическом поле с напряженностью $E_0 \sim 1-10$ кВ/см.

Ключевые слова: макрочастица, коронный разряд, стример, поляризация.

THE POSSIBLE MECHANISM OF MACROPARTICLE EJECTION FROM THE CATHODE IN STREAMER DISCHARGE

Pecherkin V.Ya., Vetchinin S.P., Molotkov V.I., Vasilyak L.M.

Joint Institute for High Temperatures RAS

We are studied polarization mechanism of particle charging, which is acted to the separation of charge on the surface of particles under the influence of the strong external electric field. The possibility of extremely high values of the charge on metal and dielectric particles in the air of atmospheric pressure in the homogeneous electric field with the strength of 1–10 kV/cm is showed.

Keywords: particulate, corona discharge, streamer, polarization.

Процессы зарядки макрочастиц в настоящее время хорошо изучены в неравновесной плазме, в разрядах различных типов: в тлеющем разряде постоянного тока, в ВЧ разряде, в самостоятельном разряде, а также в коронных разрядах, которые широко используются в системах очистки [1–4]. Зарядка частиц происходит под действием потоков электронов и ионов на поверхность частицы из плазмы. Для частиц микронных размеров заряд в таких условиях может достигать значений 10^3-10^4 элементарных зарядов. Получение макрочастиц с экстремально большим значением заряда $q \sim 10^6-10^7e$ возможно только с помощью электронного пучка либо в вакууме, либо в газе низкого давления [5]. При атмосферном давлении этот способ зарядки не позволяет получить больших значений заряда из-за сильной ионизации газа.

Рассмотрен механизм отрыва поляризованных частиц от электрода под действием сильного электрического поля в плоском конденсаторе при напряжениях, меньших пробойного, когда ионизация газа мала. Показано, что при больших напряженностях поля $E_0 \sim 10$ кВ/см неизбежное возникновение стримеров приводит к уменьшению поляризационного заряда на инжектируемых с электрода частицах.

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1.

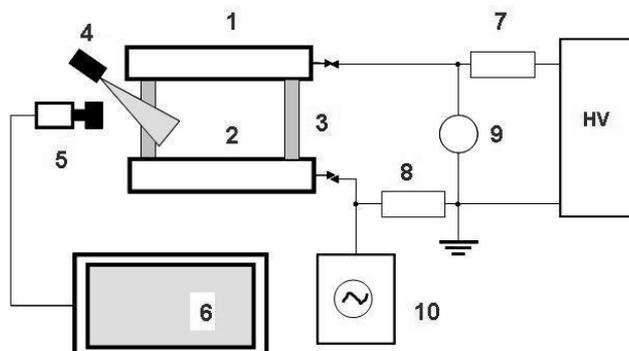


Рис. 1. Схема экспериментальной установки для исследования зарядки частиц при атмосферном давлении: 1. Верхний электрод. 2. Нижний электрод. 3. Изоляторы. 4. Лазер. 5. Регистрирующая видеокамера. 6. Компьютер. 7. Балластный резистор. 8. Токовый шунт. 9. Высоковольтный вольтметр. 10. Осциллограф. HV-источник высокого напряжения постоянного тока

Источник высокого напряжения (HV) позволял плавно регулировать выходное напряжение постоянного тока в пределах от 0 до 40 кВ. Величина напряжения регистрировалась высоковольтным статическим вольтметром (9). Напряжение на разрядную ячейку типа конденсатор подавалось от регулируемого высоковольтного источника напряжения через балластное сопротивление (7) 100 Мом. Ток через разрядный промежуток измерялся с помощью безиндукционного токового шунта (8) величиной 1 кОм высокоскоростным осциллографом, который позволял регистрировать возникновение стримеров. Разрядная ячейка состояла из двух параллельных медных пластин, двух диаметров: одна пара 50 мм, другая 150 мм. Расстояние между электродами (L_0) можно было изменять от 0,5 до 56 мм. При этом напряженность поля изменялась от 0.1 до 10 кВ/см. Для измерения заряда частиц был изготовлен дополнительный верхний электрод, в котором имелось отверстие диаметром 25 мм (рис. 2). Отверстие было закрыто латунной сеткой с ячейкой 0.7x0.7 мм.

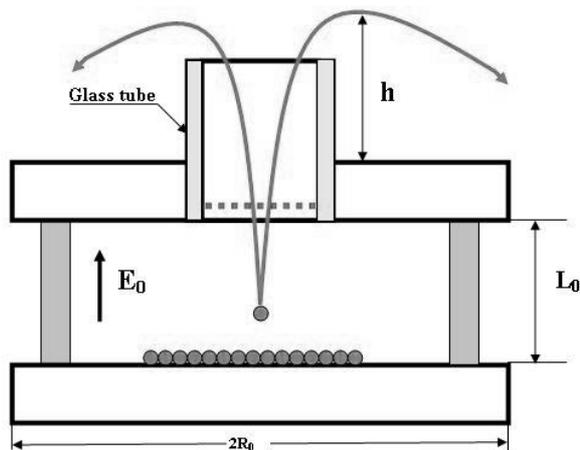


Рис. 2. Схема разрядной ячейки для определения заряда частиц, оторвавшихся от нижнего электрода

Динамика частиц регистрировалась высокоскоростной видеокамерой HiSpec (5) с максимальным разрешением 1280x1024 пикселей. Для регистрации частиц с размерами 10–150 мкм использовался полупроводниковый лазер с длиной волны 650 нм с регулируемой мощностью от 10 до 100 мВт (4). Подсветка пылевых частиц осуществлялась как цилиндрическим лазерным лучом, так и лазерным ножом с толщиной луча 150 мкм. Использовались три вида полидисперсных металлических частиц и три вида диэлектрических частиц с различной диэлектрической проницаемостью и разных размеров. Типы частиц, их размеры, средняя масса и диэлектрические проницаемости представлены в табл. 1.

Таблица 1

Типы частиц, их размеры, средняя масса и диэлектрические проницаемости

Material	Al	Brass	W	Diamond	Al ₂ O ₃	SiO ₂
2a, μ	20–60	50–150	5–150	5–7	20–40	40–60
<M>, μgr	0,7	34	77	3x10 ⁻³	0,43	1,3
ε				16,5	8,5	6

Первоначально частицы насыпались в центре нижнего электрода тонким слоем толщиной не более 0.5 мм. Когда электрическое поле достигало определенной величины, частицы начинали отрываться от электрода и ускорялись в промежутке. Часть частиц вылетала сквозь сетку вверх, а другая часть перезаряжалась и отражалась от верхнего электрода и двигалась вниз. Отраженные частицы осциллировали между электродами. При этом потоки частиц,двигающиеся вверх и вниз, были равны.

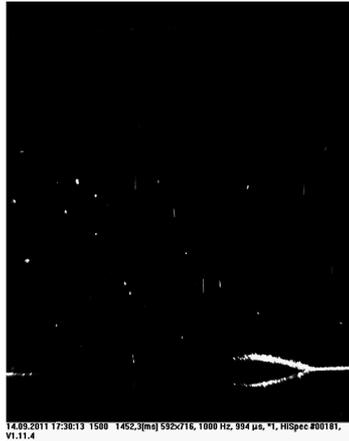


Рис. 3. Фото движущихся латунных частей в электрическом поле плоского конденсатора: $V_0 = 26$ кВ, расстояние между электродами $L_0 = 28$ см, длительность одного кадра 1 мс

Покадровая съемка (рис. 3) полидисперсных частиц алюминия с диаметрами $2a$ в диапазоне 20–60 мкм в зазоре показала, что они двигаются вверх равноускоренно, и их ускорение может достигать 20g. По ускорению частиц в однородном электрическом поле можно было бы определить заряд частицы. Однако мы не знаем ее массы. Поэтому заряд частиц, вылетевших через сетку, мы определяли по высоте их подъема h в тормозящем электрическом поле верхнего электрода. Учитывались только частицы, вылетающие вертикально вверх над сеткой вблизи оси отверстия. Для этого их радиальное отклонение было ограничено стеклянной трубкой, длина которой могла меняться. Для определения максимального заряда отбирались частицы с наибольшей высотой подъема. Пренебрегая вязкостью воздуха, средний заряд частиц определялся исходя из закона сохранения энергии:

$$qV_0 \left[1 - \frac{h}{2L_0} \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{R_0^2}{h^2}}} \right) \right] = \langle M \rangle gh \quad (1)$$

где $V_0 = E_0 L_0$ – напряжение на конденсаторе, R_0 – радиус верхнего электрода, $\langle M \rangle$ – средняя масса частиц. Второй член в квадратных скобках учитывает осевую составляющую тормозящей силы, действующей на частицу со стороны верхнего электрода. Отрыв тяжелых металлических частиц происходит в сильных электрических полях $E_0 > 5$ кВ/см. В таких полях фиксируется появление стримеров. Характерный импульс тока одиночного стримера показан на рис. 4.

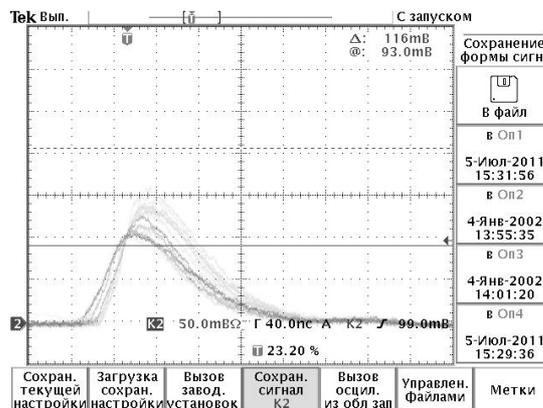


Рис. 4. Осциллограммы импульсов тока серии одиночных стримеров при напряженности поля в разрядном промежутке 5,8 кВ/см

Амплитуда импульса его тока порядка 10 мкА, а длительность примерно равна 80 нс. В первую очередь развиваются катодонаправленные стримеры, которые стартуют с положительного заряженного электрода. Они образуются, если критическое поле в промежутке $E_{s+} = 4,7$ кВ/см. Регулярное появление стримеров вызывает преждевременный отрыв частиц с катода. При приближении положительно заря-

женного стримера к поляризованной частице на катоде происходит локальное усиление электрического поля вблизи частицы, что может привести к ее отрыву. В свою очередь, оторвавшаяся отрицательно заряженная частица, подлетая к аноду, вызывает усиление электрического поля, что может привести к рождению нового катодонаправленного стримера. Отрицательно направленные стримеры могут развиваться с вершины поляризованной частицы на катоде, если величина поля превышает $E_s = 10$ кВ/см. Появление анодонаправленных стримеров вызывает возникновение положительно заряженного ионного следа вблизи катода, что также способствует преждевременному отрыву частиц. Частота появления стримеров увеличивается с увеличением длины разрядного промежутка. В воздухе атмосферного давления в однородном электрическом поле лавинный механизм развития разряда сменяется на стримерный в промежутках с межэлектродным расстоянием, большим 3 см [6].

Частичка, находящаяся во внешнем однородном электрическом поле, поляризуется, и на ее поверхности возникает разделение зарядов. Поле вблизи частицы E складывается из внешнего поля E_0 и поля индуцированного диполя. На поверхности частицы образуется распределение плотности заряда $\sigma(\theta)$, где θ – угол между направлением внешнего поля E_0 и нормали к поверхности частицы. Если поляризованная частица находится на электроде, то часть ее заряда, которая противоположна заряду электрода, стекает на электрод. В случае металлической частицы положительный заряд стекает на катод, и частица приобретает отрицательный заряд.

В случае диэлектрика, на поверхности которого имеются связанные заряды, происходит частичная компенсация заряда. Однако, если поляризованные частицы лежат на электроде в несколько слоев, то такую компенсацию заряда можно считать почти полной, так как диэлектрическая частица со своей тыльной стороны соприкасается, по крайней мере с пятью вершинами других поляризованных частиц, имеющих противоположный заряд. Поэтому в дальнейшем будем учитывать только силу электрического поля, действующую на половину поверхности частицы, обращенную в сторону внешнего поля E_0 . Полная сила, действующая на поляризованную частицу, может быть записана через тензор максвелловских напряжений в виде интеграла по поверхности частицы [7]. Наиболее просто эта сила вычисляется в случае металлического шара. Учитывая, что у поверхности металла напряженность $E = 4\pi\sigma(\theta)$, где $\sigma(\theta) = 3\sigma_0 \cos\theta$, $\sigma_0 = E_0/4\pi$, и подъемная сила, действующая со стороны поля на единицу поверхности металла, равна $E^2/8\pi$, получим:

$$F = q^2/a^2. \tag{2}$$

Здесь $q = 3E_0 a^2/4$ – заряд на металлической полусфере радиуса a . В случае диэлектрического шара необходимо учесть, что поле внутри шара однородно $E_1 = 3E_0/(\epsilon+2)$, а на внешней поверхности $E_r = \epsilon E_1 \cos\theta$, а $E_\theta = -E_1 \sin\theta$. Поверхностная плотность связанных зарядов на диэлектрическом шаре в этом случае равна $\sigma(\theta) = 3\sigma_0 \cos\theta (\epsilon-1)/(\epsilon+2)$. Тогда вычисление интеграла по поверхности дает силу электрического поля, действующую на диэлектрический шар. Эта сила по виду совпадает с силой в формуле (2), но $q = 3E_0 a^2 (\epsilon-1)/4(\epsilon+2)$. Отрыв частицы происходит, когда сила, действующая на нее со стороны электрического поля, превосходит ее вес, $F > Mg$.

На рис. 5 показана зависимость приведенного заряда q/ea на частицах и падения потенциала на размере частицы $E_0 a$, необходимого для отрыва частиц, от их веса.

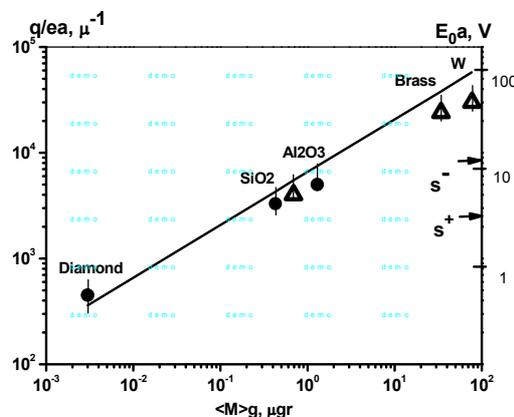


Рис. 5. Зависимость приведенного заряда частиц и напряженности электрического поля, соответствующего их отрыву от электрода от среднего веса частиц

Сплошная линия – расчет по формуле (2), точки – экспериментальные значения среднего заряда q для различных частиц. Вертикальными линиями показан разброс экспериментального заряда q . Из меха-

низма поляризационной зарядки следует, что заряд частиц возрастает с увеличением их веса при тех же размерах частиц, в отличие от всех других способов зарядки. Полученные экспериментальные значения зарядов, приведенные на рис. 5, подтверждают этот вывод. Измеренные значения q для тяжелых металлических частиц лежат ниже теоретической зависимости, что связано с тем, что отрыв тяжелых частиц происходит в достаточно сильных электрических полях E_0 , когда в промежутке наблюдаются стримеры. Появление стримеров вызывает преждевременный отрыв частиц с катода в электрических полях E_0 меньшей напряженности. На оси справа стрелками указаны критические значения напряженности электрического поля E_s , когда в промежутке появляются стримеры. Предельная величина заряда на металлических частицах в несколько десятков микрон может достигать значений $q \sim 10^6 e$.

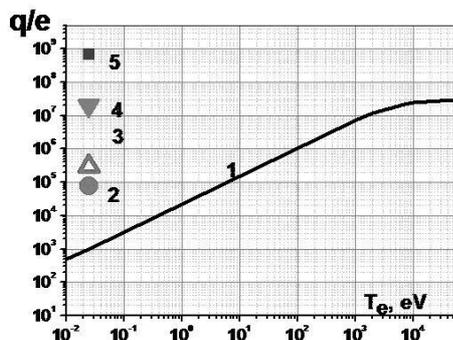


Рис. 6. Сравнение максимальных поляризационных зарядов частиц в воздухе атмосферного давления с зарядами частиц в неравновесной плазме и в вакууме: 1 – [5] ($a=10\mu$, gas – Ar); 2 – [8] ($a=10\mu$ Al-частицы в ловушке Пауля в вакууме); 3 – исследованные в данной работе SiO_2 -частицы ($a=10-20\mu$); 4 – то же самое W-частицы ($a=25\mu$); 5 – заряд, соответствующий пределу прочности Al

На рис. 6 приведено сопоставление значений поляризационного заряда q , полученных в настоящей работе (3, 4), с величиной максимального заряда, который приобретают макрочастицы в неравновесной плазме под действием потока электронов и ионов, а также под действием электронного пучка. На рис. 6 видно, что поляризационная зарядка металлических частиц в сильном однородном электрическом поле может обеспечить сверхвысокие значения заряда $q \sim 10^6 e$, сопоставимые с зарядом частиц под действием электронного пучка с энергией электронов ~ 10 кэВ в плазме.

Библиография

1. Fortov V.E., Morfill G.E. Complex and dusty plasmas. From Laboratory to Space. CRC Press. Taylor&Francis Group. Boca Raton, 2009. 418 p.
2. Piel A., Melzer A. Dynamical processes in complex plasmas // Plasma Physics and Control Fusion. 2002. V. 44. P. R1–R26.
3. Филиппов А.В., Бабичев В.Н., Дятко Н.А., Паль А.Ф., Старостин А.Н., Таран М.Д., Фортов В.Е. Механизм образования плазменно-пылевых структур при атмосферном давлении // ЖЭТФ. 2006. Т. 129. № 2. С. 386–399.
4. Верещагин И.П. Коронный разряд в аппаратах электронно-ионной технологии. М.: Энергоатомиздат, 1985. 159 с.
5. Филиппов А.В., Васильев М.Н., Гавриков А.В., Паль А.Ф., Петров О.Ф., Старостин А.Н., Фортов В.Е. Сверхвысокая зарядка пылевых частиц в неравновесной плазме // Письма в ЖЭТФ. 2007. Т. 86. Вып. 1. С. 16–21.
6. Райзер Ю.П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1992. 535 с.
7. Ландау Л.Д., Лившиц Е.М. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. 620 с.
8. Wuerker R.F., Shelton H., Langmuir R.V. Electrodynamic containment of charged particles // Journal of Applied Physics. 1959. V. 30. N 3. P. 342–349.

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ПОЛУЧЕНИЯ НАНОЧАСТИЦ БЛАГОРОДНЫХ МЕТАЛЛОВ ПРИ ЛАЗЕРНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ НА МИШЕНИ В ЖИДКИХ СРЕДАХ

¹Аракелян С.М., ²Итина Т.Е., ¹Кутровская С.В., ¹Кучерик А.О. *,
¹Ширкин Л.А., ¹Махалова Е.Ю., ¹Волкова А.Ю., ³Поварницын М.Е.

¹*Владимирский государственный университет
им. А.Г. и Н.Г. Столетовых*

²*Лаборатория Хуберта Курьена в Сент-Этьене*

³*Объединенный институт высоких температур РАН*

*kucherik@vlsu.ru

В работе представлены результаты исследования процессов формирования наночастиц благородных металлов (Au, Ag), помещенных в жидкость. Для получения коллоидных растворов наночастиц использовано непрерывное/квазинепрерывное лазерное излучение умеренной интенсивности $I = 10^5 - 10^6 \text{ Вт/см}^2$. Исследована зависимость размеров получаемых частиц от условий лазерного воздействия и выбора вещества жидкой фазы формируемого коллоида.

Ключевые слова: лазерное воздействие на вещество, коллоидные системы, наночастицы благородных металлов.

STUDY OF PRODUCING NOBLE METAL NANOPARTICLES BY LASER IRRADIATION OF TARGETS IN LIQUID MEDIA

¹Arakelyan S.M., ²Itina T.E., ¹Kutrovskaya S.V., ¹Kucherik A.O., ¹Shirkin L.A.,
¹Mahalova E.Yu., ¹Volkova A.Yu., ³Povarnitsyn M.E.

¹*Stoletovs' Vladimir State University*

²*Hubert Curien Laboratory Saint-Etienne*

³*Joint Institute for High Temperatures RAS*

The paper presents the results of investigations of the formation of nanoparticles of noble metals (Au, Ag) in liquids. For nanoparticle generation in colloids, a continuous-wave/quasi-continuous-wave laser radiation of moderate intensity $I = 10^5 - 10^6 \text{ W/cm}^2$ is used. The dependence of the nanoparticle size on the parameters of laser radiation and choice of the liquid phase substance is investigated.

Keywords: laser-matter interaction, colloidal systems, nanoparticles of noble metals.

Введение

Наночастицы благородных металлов широко применяются в нанофотонике, нано- и микроэлектронике, фотохимии, разработке биосенсоров и т.д. Их активное использование связано с тем, что при достижении субмикронных масштабов $\delta < 100 \text{ нм}$ свойства материалов начинают сильно отличаться от значений, присущих макроскопическим объектам [1, 2]. Изменение диаметра наночастиц, приводит к размерным эффектам, меняющим характерные параметры различных процессов (частота плазмонного резонанса, длина свободного пробега электрона и т.д.). Поэтому размер наночастиц является одной из основных характеристик физико-химических свойств наносистем.

В настоящее время активно развиваются методы получения наночастиц при лазерной абляции в жидких средах [3–5]. В отличие от наночастиц, синтезируемых химическими методами, наночастицы, получаемые в результате лазерной абляции твердых мишеней в жидкостях, могут быть свободны от поверхностно-активных веществ и посторонних ионов [1, 6, 7].

Свойства наночастиц, образующихся в процессе лазерной абляции твердых тел в жидкостях, зависят от многих параметров (длина волны лазерного излучения, длительность импульса, плотность энергии пучка на мишени, тип жидкости и т.д.) [8–10]. В настоящее время наибольшее распространение получили методы абляции материалов с использованием коротких и ультракоротких лазерных импульсов. При воздействии на систему импульсно-периодического излучения с короткой длительностью импуль-

сов существенно усиливаются процессы образования кластеров [7, 9–11], в то же время к механизму выброса материала в объем жидкости добавляется действие ударной волны, образующейся при схлопывании газового пузыря, что в свою очередь изменяет функцию распределения частиц по размерам [12]. Существует два основных процесса, ответственных за образование наночастиц в жидкости: 1) конденсация из пересыщенного газового состояния, возникшего из-за лазерного испарения вещества с поверхности мишени; 2) объемный выброс жидких капель из расплавленного поверхностного слоя мишени [7, 13].

При воздействии фемтосекундного лазерного излучения существенное влияние на функцию распределения частиц оказывает вторичная фрагментация уже имеющихся частиц [1, 9, 14]. За счет взаимодействия лазерного излучения с жидкостью наблюдается генерация суперконтинуума [13], который приводит к уширению диапазона размеров наночастиц, способных эффективно поглощать лазерное излучение.

Таким образом, с одной стороны, использование источников с короткими и ультракороткими длительностями импульсов позволяет производить эффективную генерацию наночастиц, а с другой, контроль за размерами получаемых частиц сложно реализуем по причине влияния большого количества факторов на процесс роста и распада частиц.

В данной работе показано, что использование непрерывного лазерного излучения умеренной интенсивности ($I = 10^5\text{--}10^6 \text{ Вт/см}^2$) в схеме лазерного воздействия на металлические мишени, помещенные в жидкость, позволяет получать наночастицы со средними диаметрами до 30 нм и малым отклонением от этого среднего значения.

Эксперимент по получению наночастиц при лазерном воздействии на мишени в жидкости

В данной работе исследовались механизмы формирования наночастиц благородных металлов при лазерном воздействии на мишени, помещенные в жидкие среды. В качестве мишеней использовались пластины серебра (Ag – 99,9 %) и золота (Au – 99 %).

В качестве жидкой фазы коллоидной системы использовались жидкости с разными значениями вязкости, теплопроводности, температуры кипения и испарения, определяющими особенности поведения и гидродинамические эффекты для наночастиц в объеме коллоида: этанол ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$) и глицерин $\text{C}_3\text{H}_5(\text{OH})_3$; кроме того, применение данных растворителей предотвращает образование окислов [8]. В экспериментах исследовалось влияние типа жидкого растворителя на размеры образующихся наночастиц (ср. с [7, 10]), а также роль интенсивности и времени лазерного воздействия. Используемые источники лазерного излучения приведены в табл. 1.

Таблица 1

№	Длительность лазерного излучения	Тип лазера (активная среда)	Вид накачки	λ , мкм	Средняя мощность, Вт	Длит. импульса, с	Частота импульсов, Гц	Качество пучка, M^2
1	непрерывное	иттербиевый волоконный	диодная	1.06	1–200	-	-	1.05
2	квази-непрерывное	YAG:Nd	диодная	1.06	1–100	$2 \cdot 10^{-3}$	3-150	1.2

При непрерывном лазерном воздействии умеренной интенсивности ($I = 10^5\text{--}10^6 \text{ Вт/см}^2$) реализуется синтез наночастиц в условиях «термодиффузии» дефектов в приповерхностном слое [4]. Однако при этом концентрации полученных коллоидных систем чрезвычайно малы и не превышают 10^{10} см^{-3} . Применение лазера, работающего в квазинепрерывном режиме, может обеспечить повышение концентрации раствора без существенного увеличения времени роста размеров частиц.

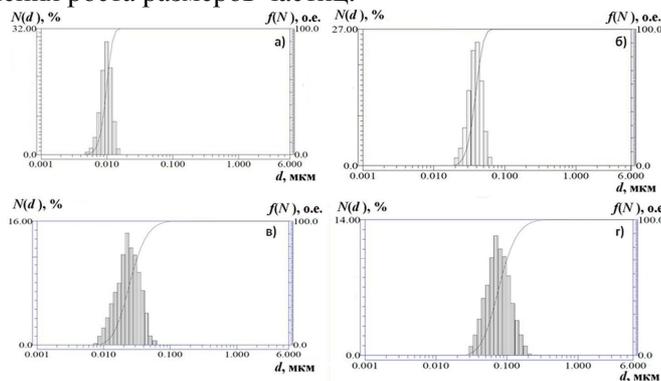


Рис. 1. Гистограммы распределения частиц золота по размерам при различных режимах лазерного воздействия в глицерине: а) непрерывное $I=10^5 \text{ Вт/см}^2$; б) непрерывное $I=10^6 \text{ Вт/см}^2$; в) квазинепрерывное, $I=10^5 \text{ Вт/см}^2$; г) квазинепрерывное $I=10^6 \text{ Вт/см}^2$

Размеры образовавшихся частиц определялись на основе динамического рассеяния света с использованием анализатора Horiba LB-550. Гистограммы распределения частиц по размерам представлены на рис. 1. Приведены усредненные значения, рассчитанные на основе шести последовательных измерений диаметров частиц с разницей во времени между каждым измерением – одна минута. В процессе измерений не наблюдалось сдвига гистограмм во времени.

Полученные результаты демонстрируют особенности лазерного воздействия умеренной интенсивности (см. табл. 2). Необходимо отметить, что образование газового пузыря с ростом интенсивности приводит к существенному увеличению размеров формирующихся наночастиц из-за распространения плазменного факела в газе. По всей видимости, в этом случае на размер наночастиц влияет стадия распространения частиц в воздушном пузыре, что позволяет им увеличить степень агрегации. Наночастицы, образующиеся при интенсивности лазерного излучения 10^5 Вт/см² в глицерине имеют очень близкие значения диаметров для обоих материалов. С ростом интенсивности разброс в наблюдаемых диаметрах наночастиц существенно увеличивается.

Таблица 2

п/п	Параметры лазерного воздействия (источник, интенсивность I, время воздействия t)	Жидкая компонента коллоида	Материал мишени	Средний диаметр синтезированных частиц, нм
1	Непрерывное лазерное воздействие $I = 10^5 - 10^6$ Вт/см ² $t = 1$ мин	C ₃ H ₅ (OH) ₃	Au	8–34
		C ₂ H ₅ OH		42–81
		C ₃ H ₅ (OH) ₃	Ag	8–32
		C ₂ H ₅ OH		45–96
2	Квазинепрерывное воздействие $I = 10^5 - 10^6$ Вт/см ² $t = 1$ мин	C ₃ H ₅ (OH) ₃	Au	17–80
		C ₂ H ₅ OH		73–233
		C ₃ H ₅ (OH) ₃	Ag	19–92
		C ₂ H ₅ OH		77–190

В проводимых экспериментах на размеры частиц влияют механизмы стабилизации их поверхности, возникающие из-за конкуренции кулоновских сил, вызванных наведением заряд, сил поверхностного натяжения [15, 16], химической активации и пассивизации поверхности и т.д. Из анализа гистограмм видно, что в большинстве случаев они нецентросимметричны – в коллоиде большее количество частиц имеет диаметр меньше среднего значения. В то же время замена жидкой фазы коллоида на этанол во всех случаях энергетического воздействия приводит к тому, что гистограмма распределения частиц существенно расширяется: наравне с наноразмерными частицами образуются частицы субмикронного размера (500–3000 нм). Количество таких частиц сравнительно невелико – менее 4 % от общего количества частиц в коллоиде. Появление субмикронных частиц/капель может быть связано с действием кавитационного пузыря [8], приводящего к выбросу расплава в жидкость, что наиболее заметно при воздействии квазинепрерывного лазерного излучения на серебряную мишень в этаноле, когда за время действия импульса (2 мс) успевает образоваться достаточное количество расплава.

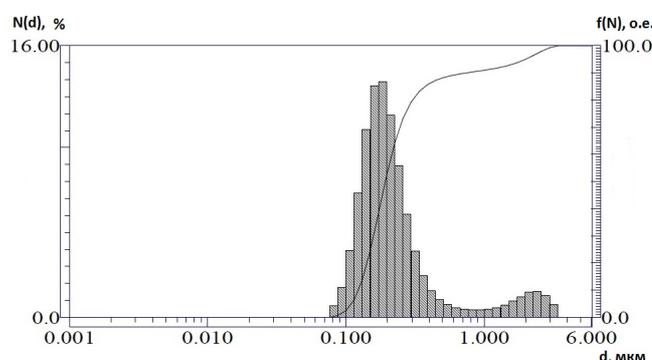


Рис. 2. Гистограмма распределения частиц серебра по размерам при воздействии квазинепрерывного лазерного излучения с интенсивностью $I = 10^6$ Вт/см² на мишень, помещенную в этанол

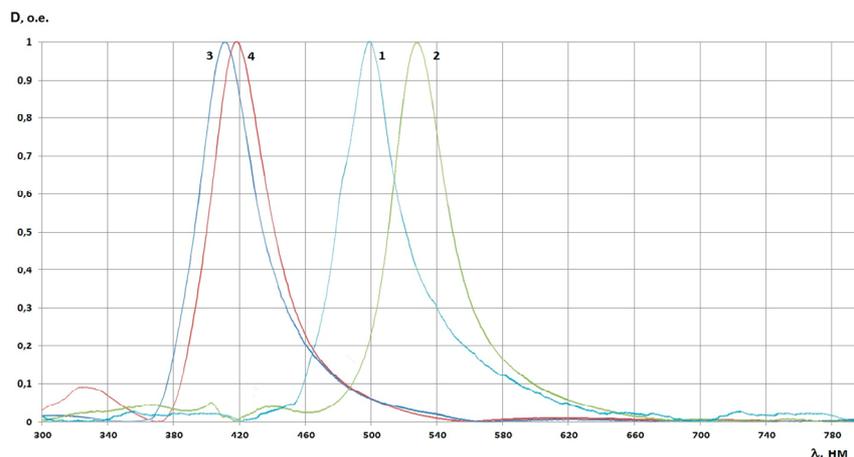


Рис. 3. Оптические спектры нормированного коэффициента поглощения коллоидов наночастиц полученных при непрерывном лазерном воздействии на мишени серебра и золота, размещенные в различных жидких фазах: 1 – золотые частицы в глицерине, 2 – золотые частицы в этиловом спирте, 3 – серебряные частицы в глицерине, 4 – серебряные частицы в этиловом спирте

Результаты измерения оптических свойств получаемых коллоидных систем представлены на рис. 3, и показывают, что при воздействии непрерывного лазерного излучения на мишень, помещенную в глицерин, формируются наночастицы меньшего размера, чем при воздействии на такую же мишень, помещенную в этиловый спирт. Это видно по характерному сдвигу максимумов поглощения, соответствующих плазмонному резонансу для серебра (390 нм) и золота (540 нм), соответственно. В случае воздействия лазера с миллисекундной длительностью импульсов наблюдалось незначительное уширение области поглощения, что позволяет говорить об увеличении дисперсии размеров частиц. Принципиально важно отметить, что измеренные спектры поглощения серебра указывают на то, что в процессе лазерного воздействия не образуются окислы. Получаемые коллоидные системы достаточно стабильны, изменение в структуре спектра за счет агрегации частиц в кластеры наблюдалось через 7–12 дней после получения.

Заключение

В данной работе представлены результаты экспериментов по лазерному воздействию на массивные металлические мишени, помещенные в жидкость. Исследована возможность получения наночастиц с заданными размерами и функцией распределения по размерам [17]. Анализ функций распределения по размерам полученных частиц после лазерного воздействия показал, что использование в качестве жидкой среды глицерина в условиях непрерывного лазерного воздействия позволяет получать частицы со средним размером 10–30 нм с малым отклонением относительно данного среднего размера. Проведенные сравнительные эксперименты позволяют утверждать, что в отличие от методики использования высокоинтенсивного лазерного воздействия с короткой длительностью импульсов, непрерывное лазерное излучение позволяет избежать проявления неконтролируемых процессов образования наночастиц в процессе воздействия ударной волны и/или схлопывания кавитационного пузыря.

Работа выполнена частично в рамках проектной части государственного задания ВлГУ № 16.440.2014/К на выполнение государственных работ в сфере научной деятельности, а также грантов РФФИ № 13-02-91057 и Президента РФ № НШ-89.2014.2, НШ-6614.2014.2 и МК-4321.2014.2.

Библиография

1. Кириченко Н.А., Сухов И.А., Шафеев Г.А., Щербина М.Е. Эволюция функции распределения наночастиц Au в жидкости под действием лазерного излучения // Квантовая Электроника. 2012. Т. 42, № 2. С. 175–180.
2. Mafune F., Kohno J., Takeda Y., Kondow T., Sawabe H. Structure and stability of silver nanoparticles in aqueous solution produced by laser ablation // The Journal of Chemical Physics B. 2003. V. 107. P. 4218–4223.
3. Simakin A.V., Voronov V.V., Shafeev G.A., Brayner R. Bozon-Verduraz Nanoparticles produced by laser ablation of solids in liquid environment // Chemical Physics Letters. 2001. V. 182. P. 348–350.

4. Антипов А.А., Аракелян С.М., Бухаров Д.Н., Кутровская С.В., Кучерик А.О., Осипов А.В., Прокошев В.Г., Ширкин Л.А. Лазерный синтез микро- и наночастиц в жидких средах // *Химическая физика и мезоскопия*. 2012. Т. 14, № 3. С. 401–406.
5. Бармина Е.В., Стратакис Э., Фотакис К., Шафеев Г.А. Генерация наноструктур при лазерной абляции металлов в жидкостях: новые результаты // *Квантовая электроника*. 2010. Т. 40, № 11. С. 1012–1020.
6. Суздальев И.П. Нанотехнология: физико-химия нанокластеров, наноструктур и наноматериалов. М.: КомКнига, 2006. 592 с.
7. Riabinina D., Chaker M., Margot J. Dependence of gold nanoparticle production on pulse duration by laser ablation in liquid media // *Nanotechnology*. 2012. V. 23. P. 135–603.
8. Barcikowski S., Menéndez-Manjón A., Chichkov B., Brikas M., Raiukaitis G. Generation of nanoparticle colloids by picosecond and femtosecond laser ablation in liquid flow // *Applied Physics Letters*. 2007. V. 91, No. 8. P. 83–113.
9. Besner S., Kabashin A.V., Meunier M. Two-step femtosecond laser ablation-based method for the fabrication of ultra-pure colloidal metal nanoparticles in water // *Applied Physics A*. 2007. V. 88, No 2. P. 269–272.
10. Patskovsky S., Bah S., Kabashin A. V., Meunier M. Characterization of high-refractive index semiconductor films by Si-based Surface Plasmon Resonance // *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*. 2006. V. 45, No 25. P. 6640–6645.
11. Pyatenko A., Wang H., Yoshizaki N., Tsuji T. Mechanism of pulse laser interaction with colloidal nanoparticles // *Laser&Photonics Review*. 2013. V. 7, No 4. P. 596–604.
12. Takada N., Fujikawa A., Koshizaki N., Sasaki K. Effect of ultrasonic wave on the syntheses of Au and ZnO nanoparticles by laser ablation in water // *Applied Physics A*. 2013. V. 110. P. 835–839.
13. Макаров Г.Н. Применение лазеров в нанотехнологии: получение наночастиц и наноструктур методами лазерной абляции и лазерной нанолитографии // *УФН*. 2013. Т. 183, № 7. С. 673–718.
14. Laser ablation in liquids. Principles and application in the preparation of nanomaterials / Edited by Guowei Yang. Pan Stanford Publishing Pte. Ltd., 2012. 1151 p.
15. Васютин Е.В., Погосов В.В. О кулоновской неустойчивости заряженных кластеров // *Физика твердого тела*. 2004. Т. 46. Вып. 10. С. 1861–1865.
16. Ширяева С.О., Григорьев А.И., Ширяев А.А. О равновесных формах проводящей капли в однородном и неоднородных электростатических полях // *Журнал технической физики*. 2013. Т. 83. Вып. 11. С. 44–51.
17. Povarnitsyn M.E., Itina T.E., Levashov P.R., Khishchenko K.V. Mechanisms of nanoparticle formation by ultra-short laser ablation of metals in liquid environment // *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2013. V. 15, No 9. P. 3108–3114.

**МОДЕЛИРОВАНИЕ РАСПРОСТРАНЕНИЯ УДАРНЫХ ВОЛН
ПО ПОЛИМЕТИЛМЕТАКРИЛАТУ****Попова Т.В.¹, *Майер А.Е.¹, Хищенко К.В.²**¹*Челябинский государственный университет*²*Объединенный институт высоких температур РАН****mayer@csu.ru**

На основе моделей вязкоупругих сред Фойгта и Максвелла проводится моделирование высокоскоростного соударения плоских пластин из полиметилметакрилата. Рассчитаны профили скорости свободной поверхности и скорость ударной волны при разных скоростях соударения, представлены результаты сравнения численных расчетов с экспериментальными данными. Модель Максвелла с постоянным временем релаксации позволяет описать структуру фронта ударной волны, волна разрежения описывается существенно хуже. Учет вязкоупругих свойств материала позволяет лучше описать зависимость скорости ударной волны от скачка скорости вещества на ней в области малых скоростей соударения.

Ключевые слова: полимерные материалы, полиметилметакрилат, ударная волна, скорость свободной поверхности, вязкоупругие среды, модель Максвелла.

MODELING OF SHOCK WAVE PROPAGATION IN POLYMETHYLMETHACRYLATE**Popova T.V.¹, Mayer A.E.¹, Khishchenko K.V.²**¹*Chelyabinsk State University*²*Joint Institute for High Temperatures RAS*

High-velocity impact of plane plates of polymethylmethacrylate is modeled basing on viscoelastic medium models of Voigt and Maxwell. Calculated profiles of the free-surface velocity and the dependence of the shock-wave velocity upon the particle velocity jump are compared with experimental data. Maxwell model with constant relaxation time allows us to describe the structure of the shock wave front, rarefaction wave is described significantly worse. Taking into account the viscoelastic properties of the material allows one to describe better the dependence of the shock-wave velocity upon the particle velocity jump at low velocities of impact.

Keywords: polymer materials, polymethylmethacrylate, shock wave, free-surface velocity, viscoelastic media, Maxwell model.

1. Введение

Характеристики многочисленных веществ, в особенности металлов, тщательно изучены в высокоскоростных испытаниях [1]. Меньше исследованы высокомолекулярные соединения, которые представляют ценный класс веществ. К ним принадлежат полимерные материалы, в частности, полиметилметакрилат (ПММА, оргстекло). Полимерные материалы имеют широкое распространение в природе и технике, что обуславливает необходимость исследований их свойств [2]. ПММА, как конструкционный полимерный материал, обширно применяется в нанотехнологиях и при проведении взрывных испытаний [1]. Это соединение служит, в частности, совершенным материалом для оболочек слоистых сферических мишеней, при решении задач контролируемого термоядерного синтеза, а также является промежуточной прослойкой в высокоскоростных метательных устройствах [3].

Многим физическим явлениям, связанным с динамической деформацией полимерных материалов, сопутствует формирование и взаимодействие ударных волн. Техника ударных волн является мощным инструментом изучения свойств материалов при экстремально высоких скоростях деформирования [4]. Метание пластин с известными скоростями создает хорошо контролируемые условия нагружения. Изучению деформирования и разрушения ПММА при квазистатическом и динамическом нагружении посвящен ряд экспериментальных работ [5–9]. В статье [6] ударно-волновые характеристики исследовались с помощью лазерного интерферометра. Измерены профили скорости свободной поверхности и скорость ударной волны при разных скоростях соударения. Было обнаружено, что при уменьшении амплитуды ударной волны скорость стремится к значению больше объемной скорости звука. Авторы [6] объясняли эту особенность наличием структурного перехода.

В настоящей работе для моделирования высокоскоростного соударения плоских пластин ПММА используются вязкоупругие модели Фойгта и Максвелла. Для проверки полученных результатов проводится сравнение численных расчетов с экспериментальными данными [6]. Учет упругопластических свойств позволяет описывать особенность, наблюдаемую в экспериментах [6], без привлечения дополнительных предположений о структурных переходах.

2. Система уравнений механики сплошной среды

Математическое описание состояния движущейся сплошной среды осуществляется с помощью функций, определяющих распределение скорости сплошной среды $v = v(x, y, z, t)$ и каких-либо двух термодинамических величин, например, давления $P = P(x, y, z, t)$ и плотности $\rho = \rho(x, y, z, t)$. Запишем основную систему уравнений механики сплошных сред [10] в одномерном виде:

$$d\rho/dt = -\rho(\partial v/\partial z), \quad (1)$$

$$dv/dt = \rho^{-1}(\partial S_{zz}/\partial z - \partial P/\partial z), \quad (2)$$

$$\rho dE/dt = (-P + S_{zz})(\partial v/\partial z). \quad (3)$$

Система состоит из уравнения непрерывности (1), уравнения движения (2) и уравнения для внутренней энергии (3). Систему следует дополнить уравнением для девиатора напряжений:

$$S_{zz} = 2G[(2/3)u_{zz} - w_{zz}], \quad (4)$$

где G – модуль сдвига; w_{zz} – компонента тензора пластической деформации; u_{zz} – компонента тензора макроскопической деформации, определяемая макроскопическим движением вещества:

$$du_{zz}/dt = \partial v/\partial z. \quad (5)$$

Скорость, давление и плотность будем относить к определённым частицам сплошной среды, перемещающимся в пространстве с течением времени.

3. Модели вязкоупругости

Поведение полимерных материалов можно классифицировать как вязкоупругое [11, 12]. К настоящему времени известны модели вязкоупругости, которые были предложены Максвеллом, Фойгтом и Кельвином [13], пригодные для описания полимерных материалов. Далее используем модели Фойгта и Максвелла для моделирования высокоскоростного соударения плоских пластин из ПММА.

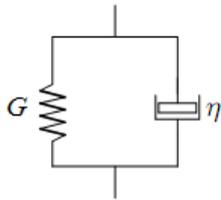


Рис. 1. Модель Фойгта [13]

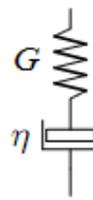


Рис. 2. Модель Максвелла [13]

Модель Фойгта. Одна из простейших моделей твердого тела состоит из параллельно соединенных двух основных элементов – упругости и вязкости (рис. 1). При таком соединении деформация элементов будет одинаковой, а общее напряжение состоит из суммы напряжений. В результате, для девиатора напряжений можно записать:

$$S_{zz} = (4G/3)u_{zz} + \eta(du_{zz}/dt). \quad (6)$$

Из уравнений (4) и (6) получаем выражение для пластической деформации:

$$w_{zz} = -(\eta/(2G))(du_{zz}/dt). \quad (7)$$

Модель Максвелла. Последовательное соединение элементов упругости и вязкости (рис. 2) дает модель твердого тела, обладающего свойствами очень вязкой жидкости. При последовательном соединении напряжение в каждом элементе одно и то же, а общая деформация складывается из деформации упругого элемента и деформации вязкого. В этом случае можно записать:

$$dS_{zz}/dt = (4G/3)(du_{zz}/dt) - GS_{zz}/\eta, \quad (8)$$

где η – коэффициент вязкости. Аналогично предыдущему, подставив девиатор напряжения (6) в (8) можно найти уравнение для компоненты тензора пластической деформации:

$$dw_{zz}/dt = ((2/3)u_{zz} - w_{zz})\tau^{-1}, \quad (9)$$

где $\tau = \eta/G$ – характерное время релаксации сдвиговых напряжений. У полимеров пластическое течение начинается при значении сдвиговых напряжений S_{zz} больше пороговой величины y_b – статического предела текучести. Обобщением уравнения (9) является следующее:

$$dw_{zz}/dt = ((2/3)u_{zz} - w_{zz})\tau^{-1} \cdot \theta(|S_{zz}| - y_b), \quad (10)$$

где θ – функция Хэвисайда.

4. Калорическое уравнение состояния полимерных материалов

Для расчета зависимости давления от удельного объема и внутренней энергии используется уравнение состояния [14, 15]:

$$P(V, E) = P_c(V) + \Gamma(V, E)/V[E - E_c(V)], \quad (11)$$

где $E_c(V)$ и $P_c(V) = -dE_c/dV$ – упругие составляющие энергии и давления; а коэффициент $\Gamma(V, E)$ задает вклад тепловых компонент в уравнение состояния. В рамках калорического потенциала может быть определена адиабатическая скорость звука:

$$c_s = V(-\partial P/\partial V)_s^{1/2} = V[P(\partial P/\partial E)_V - (\partial P/\partial V)_E]^{1/2}. \quad (12)$$

Для коэффициента Грюнайзена в модели [14, 15] может быть получено аналитическое выражение:

$$\gamma = V(\partial P/\partial E)_V = \gamma_i + (\Gamma(V, E) - \gamma_i)/(1 + \sigma_c^{-2/3}[E - E_c(V)]/E_a). \quad (13)$$

Коэффициенты уравнения состояния ПММА [14, 15] равны $V_0 = 0.847 \text{ см}^3/\text{г}$, $V_{0c} = 0.83641 \text{ см}^3/\text{г}$, $B_{0c} = 8.06123 \text{ ГПа}$, $m = 1$, $n = 2.7$, $\sigma_m = 0.7$, $\sigma_n = 1$, $\gamma_{0c} = 0.4$, $\gamma_i = 0.5$, $E_a = 40 \text{ кДж/г}$.

5. Численное решение

Будем использовать численный метод решения системы уравнений механики сплошных сред, предложенный Яловцом А.П. [16]. Область, занятая средой, разбивается на ячейки, причем масса, плотность, энергия определяются в центрах ячейки, а скорость – на их границах. Уравнения (1)–(3) в разностной по координате форме записываются в виде [16]:

$$\dot{v}_i = 2(-\sum_{i+1/2} + \sum_{i-1/2})/(m_{i+1/2} + m_{i-1/2}), \quad (14)$$

$$\dot{\xi}_{i+1/2} = v_{i+1} - v_i, \quad \xi_{i+1/2} = m_{i+1/2} / \rho_{i+1/2}, \quad (15)$$

$$\dot{E}_{i+1/2} = -P_{i+1/2}\dot{\xi}_{i+1/2} / m_{i+1/2}, \quad (16)$$

где $m_{i+1/2}$ – масса вещества в ячейке; $\xi_{i+1/2} = z_{i+1} - z_i$ – ширина (объем) ячейки; $\Sigma = -P + S_{zz}$ – полное напряжение. Зависимость напряжения от объема представляют в виде разложения в ряд Тейлора, ограничиваясь для малых времен первым порядком [16]. После подстановки данного разложения в уравнение (14) и дополнительного дифференцирования по времени получают следующее уравнение для скорости границ ячеек [16]:

$$\ddot{v}_i = \left[(c_s^2 \rho / \xi)_{i+1/2}^n \dot{\xi}_{i+1/2} - (c_s^2 \rho / \xi)_{i-1/2}^n \dot{\xi}_{i-1/2} \right] / m_i. \quad (17)$$

Из (17) с учетом уравнения непрерывности (15) получают систему уравнения для вынужденных колебаний связанных осцилляторов [16]:

$$\ddot{v}_i + \omega_i^2 v_i = L_i, \quad (18)$$

где

$$\omega_i^2 = 2(m_{i+1/2}\omega_{i+1/2}^2 + m_{i-1/2}\omega_{i-1/2}^2)/(m_{i+1/2} + m_{i-1/2}), \quad \omega_{i+1/2}^2 = (c_s^2 \rho / m \xi)_{i+1/2}^n;$$

$$L_i = (m_{i+1/2}\omega_{i+1/2}^2 v_{i+1} + m_{i-1/2}\omega_{i-1/2}^2 v_{i-1})/m_i.$$

Начальные условия для (18) имеют вид:

$$v_i(t_n) = v_i^n; \quad \dot{v}_i(t_n) = \dot{v}_i^n = 2(-\sum_{i+1/2} + \sum_{i-1/2})/(m_{i+1/2} + m_{i-1/2}). \quad (19)$$

Уравнение (18), записанное для всех i , представляет полную систему, решение которой позволило бы найти скорости всех границ ячеек. Однако для большого числа ячеек это решение имеет весьма сложный вид. Полагая, что на шаге интегрирования правая часть уравнения (18) остается постоянной, а также используя начальные условия (19), можно получить следующее решение [16]:

$$v_i = v_i^n \cos(\omega_i \tau) + \dot{v}_i^n \sin(\omega_i \tau)/\omega_i + L_i^n (1 - \cos(\omega_i \tau))/\omega_i, \quad (20)$$

где τ – шаг интегрирования по времени.

Интегрирование по времени позволяет вычислить координату границы ячейки:

$$z_i = z_i^n + v_i^n \sin(\omega_i \tau) / \omega_i + \dot{v}_i^n (1 - \cos(\omega_i \tau)) / \omega_i^2 + L_i^n (\tau - \sin(\omega_i \tau) / \omega_i) / \omega_i^2. \quad (21)$$

Аналогично, для внутренней энергии можно записать:

$$E_{i+1/2}(t) = \left[E^n + \Sigma^n (\xi - \xi^n) / m + \omega^2 (\xi - \xi^n)^2 / 2 \right]_{i+1/2}. \quad (22)$$

Тензор деформации:

$$u_{zz}(t) = u_{zz}^n + [(z_{i+1} - z_{i+1}^n) - (z_i - z_i^n)] / (z_{i+1}^n - z_i^n).$$

Временной шаг выбирается исходя из условия Куранта [4, 16]:

$$\Delta \tau = K \min_i (\xi / c_s), \quad (10)$$

где константа $K \approx 0.01$.

Если данные уравнения дополнить уравнением состояния полимерных материалов (11) и уравнением для дивергенции напряжения (4) с учетом моделей вязкоупругости (7) или (10), то получится полная система, позволяющая описать деформацию полимерных материалов.

6. Сравнение результатов моделирования с экспериментальными данными

Стандартная схема испытаний состоит в плоском высокоскоростном соударении пластины ударника и пластины мишени [17]: ударник налетает на образец, инициируя ударную волну. Ударная волна представляет собой скачок уплотнения, распространяющийся со сверхзвуковой скоростью – это тонкая переходная область, в которой происходит резкое увеличение плотности, давления и скорости вещества.

В экспериментах [6] ударная волна распространяется по образцу толщиной 6.35 мм. Толщина ударника также составляет 6.35 мм. Материалом ударника и мишени является ПММА. Предметом изучения являются волновые взаимодействия при отражении импульса сжатия от свободной поверхности. В опытах реализуется непрерывная регистрация скорости свободной поверхности образцов $u_{fs}(t)$ для различных скоростей удара до 600 м/с.

На рис. 3 и 4 представлены результаты сравнения численных расчетов с использованием модели Фойгта и Максвелла с экспериментальными данными [6]. В расчетах использовалась сетка из 600 ячеек.

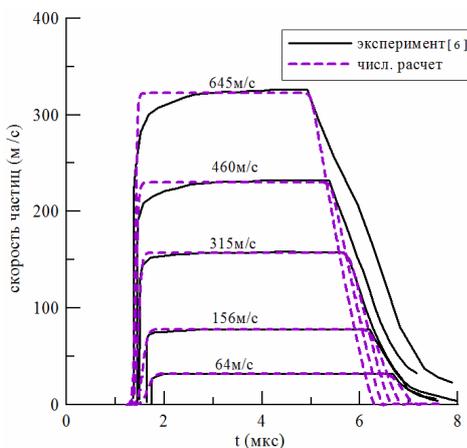


Рис. 3. Профили скорости тыльной поверхности образцов ПММА. Расчеты по модели Фойгта

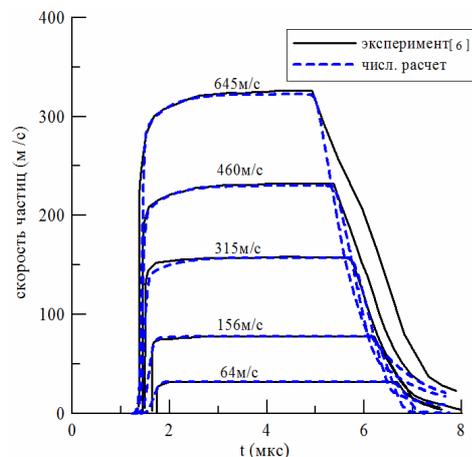


Рис. 4. Профили скорости тыльной поверхности образцов ПММА. Расчеты по модели Максвелла

Результаты расчетов по модели Фойгта представлены на рис. 3. Модель Фойгта не описывает ни фронт ударной волны, ни структуру волны разрежения. Подбор параметров модели не позволил получить совпадение с экспериментом. Форма кривых соответствует таковой для случая гидродинамических расчетов. Представленные на рис. 3 результаты были рассчитаны со следующими параметрами для модели Фойгта: $G = 1.5$ ГПа [18], $\eta = 10^{-2}$ Па с.

Результаты расчетов по модели Максвелла представлены на рис. 4. Профиль волны характеризуется первоначальным резким (в течение времени порядка наносекунды) ростом скорости вещества до значения около двух третей от максимальной величины. Далее следует плавное нарастание скорости вещества до пикового значения, затем скорость некоторое время остается постоянной вплоть до прихода волны разрежения. На рис. 4 наблюдается хорошее совпадение расчетных и экспериментальных данных для фронта ударной волны, в области волны разрежения имеет место существенное расхождение. Представленные на рис. 4 результаты были рассчитаны со следующими параметрами для модели Максвелла: $G = 1.5$ ГПа [18], $\tau = 0.4$ мкс, $y_b = 38$ МПа. Эти параметры соответствуют наилучшему совпадению с экс-

периментальными данными. Результаты наших расчетов качественно соответствуют результатам моделирования из работ [11, 12], также полученным с использованием модели Максвелла.

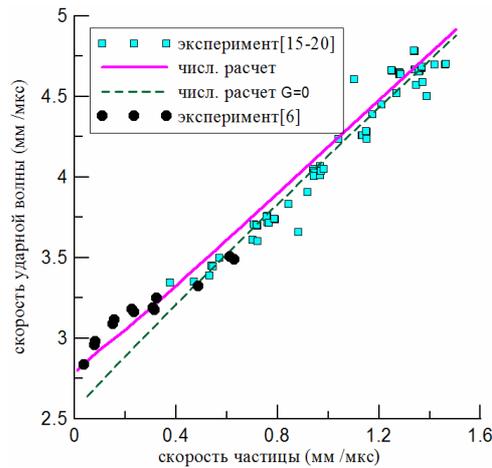


Рис. 5. Зависимость скорости ударной волны от массовой скорости

На рис. 5 представлены результаты сравнения численных расчетов с экспериментальными данными [6, 19–24] для зависимости скорости ударной волны от скачка скорости вещества на ней. Расчеты выполнены в вязкоупругом приближении (модель Максвелла), а также в гидродинамическом приближении. Для интенсивных ударных волн результаты расчетов по обеим моделям различаются несущественно и соответствуют экспериментальным данным. В интервале низких массовых скоростей учет вязкоупругих свойств позволяет добиться лучшего совпадения с экспериментальными данными.

7. Заключение

Проведено моделирование высокоскоростного соударения пластин из ПММА на основе моделей вязкоупругих сред Фойгта и Максвелла. Для расчета зависимости давления от плотности и внутренней энергии использовано калорическое уравнение состояния. Представлены результаты сравнения численных расчетов с экспериментальными данными. Построены профили скорости свободной поверхности и зависимость скорости ударной волны от скачка скорости вещества на ней. Модель Максвелла с постоянным временем релаксации позволяет лучше описать структуру фронта ударной волны, чем модель Фойгта, волна разрежения описывается плохо в обоих случаях, как и в гидродинамическом приближении. Учет упругопластических свойств материала позволяет лучше описать зависимость скорости ударной волны от скачка скорости вещества на ней в области малых скоростей соударения. Согласно данным [9] упругопластические свойства играют важную роль также в процессе разрушения ПММА под воздействием импульсов лазерного излучения.

Работа выполнена при поддержке грантов Президента РФ (МД-286.2014.1, НШ-6614.2014.2), Российского фонда фундаментальных исследований (№ 14-08-00967) и Министерства образования и науки РФ (проектная часть государственного задания, задание № 3.1334.2014/К).

Библиография

1. Канель Г.И., Разоренов С.В., Уткин А.В., Фортвов В.Е. Ударно-волновые явления в конденсированных средах. М.: Янус-К, 1996. 408 с.
2. Глухих В.А., Беляков В.А., Минеев А.Б. Физико-технические основы УТС: курс лекций. Курчатов: НИЦ Республики Казахстан, 2004. 330 с.
3. Адаменко Н.А., Казуров А.В., Фетисов А.В., Агафонова Г.В. Получение полимерных наноконпозитов взрывной обработкой // Российские нанотехнологии. 2009. Т. 4, № 1–2. С. 137–144.
4. Уилкинс М.Л. Расчет упругопластических течений // Вычислительные методы в гидродинамике. М.: Мир, 1967. С. 185–211.
5. Liddiard Jr T. P. The Compression of Polymethyl Methacrylate by Low Amplitude Shock Waves // Fourth Symposium on Detonation, 1965. P. 214–221.
6. Barker L. M., Hollenbach R. E. Shock-Wave Studies of PMMA, Fused Silica, and Sapphire // Journal of Applied Physics 1970. V. 41. P. 4208–4226.

7. Пархоменко И.П., Уткин А.В. Откольная прочность плексигласа // Исследование свойств вещества в экстремальных условиях. М.: ИВТАН, 1990. С. 126–130.
8. Аржаков М.С., Луковкин Г.М., Аржаков С.А. Особенности физико-механического поведения полиметилметакрилата при компрессионном сжатии // ДАН. 2002. Т. 382, № 1. С. 62–65.
9. Куготова А.М., Кунижев Б.И. Сравнительный анализ процессов разрушения полиметилметакрилата высокоскоростным ударом и импульсным лазерным воздействием // Известия Кабардино-Балкарского государственного университета. 2014. Т. 4, № 3. С. 44–47.
10. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика. Т. 6. Гидродинамика. М.: Наука, 1988. 736 с.
11. Мержиевский Л.А., Воронин М.С. Моделирование деформирования и разрушения полимеров на основе максвелловского подхода // Известия Алтайского государственного университета. 2012. № 11. С. 95–98.
12. Мержиевский Л.А., Воронин М.С. Моделирование ударно-волнового деформирования полиметилметакрилата // Физика горения и взрыва. 2012. Т. 48, № 2. С. 113–123.
13. Биргер И.А., Мавлютов Р.Р. Соппротивление материалов: учебное пособие. М.: Наука, 1986. 560 с.
14. Ломоносов И.В., Фортов В. Е., Хищенко К. В. Модель широкодиапазонных уравнений состояния полимеров при высоких плотностях энергии // Химическая физика. 1995. Т. 14, № 1. С. 47–52.
15. Khishchenko K. V., Lomonosov I. V., Fortov V. E. Equations of state for organic compounds over wide range of densities and pressures // Shock Compression of Condensed Matter – 1995 / Eds.
16. Яловец А.П. Расчет течений среды при воздействии интенсивных потоков заряженных частиц // Прикладная механика и техническая физика. 1997. Т. 38, № 1. С. 151–166.
17. Канель Г.И., Фортов В.Е., Разоренов С.В. Ударные волны в физике конденсированного состояния // Успехи физических наук. 2007. Т. 177, № 8. С. 809–830.
18. Farshad M., Wildenberg M.W., Fliieler P. Determination of shear modulus and Poisson's ratio of polymers and foams by the anticlastic plate-bending method // Materials and Structures. 1997. V. 30. P. 377–382.
19. Баканова А.А. Дудолодов И.П., Трунин Р.Ф. Сжатие щелочных металлов сильными ударными волнами // Физика твердого тела. 1965. Т. 7. Вып. 6. С. 1615–1622.
20. McQueen R.G., Marsh S.P., Taylor J.W., Fritz J.N., Carter W.J. The equation of state of solids from shock wave studies // High Velocity Impact Phenomena / Ed. Kinslow R. New-York: Academic Press, 1970. P. 293–417.
21. Van Thiel M. Compendium of shock wave data. Lawrence Livermore Laboratory Report UCRL-50108. Livermore, 1977. P. 528–539.
22. Marsh S.P. LASL Shock Hugoniot Data. Berkeley: Univ. California Press, 1980.
23. Trunin R.F. Shock compressibility of condensed matters in strong shock waves caused by underground nuclear explosions // Physics–Uspekhi. 1994. V. 37, No. 11. P. 1215–1237.
24. Максанова Л.А., Аюрова О.Ж. Полимерные соединения и их применения: учебное пособие. Улан-Уде, 2005. 356 с.

ИССЛЕДОВАНИЕ ДИНАМИКИ ЭЛЕКТРОНОВ В ИОНИЗОВАННЫХ НАНОРАЗМЕРНЫХ КЛАСТЕРАХ

Быстрый Р.Г.^{1,2}, *Морозов И.В.^{1,2,3}

¹Объединенный институт высоких температур РАН

²Высшая школа экономики, НИУ

³Московский физико-технический институт, НИУ

*morozov@ihed.ras.ru

Методом молекулярной динамики исследованы основные моды коллективных колебаний электронов в неидеальной наноплазме, образованной при воздействии фемтосекундных лазерных импульсов на металлические кластеры. Определены относительные амплитуды и частоты колебаний Ми и плазменных колебаний (поверхностных и объемных плазмонов) в зависимости от размера кластера в диапазоне от 55 до 10⁵ атомов. Найдено пороговое значение размера кластера, при котором возможно возникновение плазменных колебаний. Результаты моделирования качественно сопоставлены с экспериментами по облучению кластеров двумя лазерными импульсами по схеме pump-probe.

Ключевые слова: молекулярная динамика, металлические кластеры, лазерная плазма, объемные плазмоны, поверхностные плазмоны, резонанс Ми, неидеальная плазма, графические ускорители.

STUDY OF ELECTRON DYNAMICS IN IONIZED NANOSIZED CLUSTERS

Bystryi R.G.^{1,2}, Morozov I.V.^{1,2,3}

¹Joint Institute for High Temperatures of RAS

²Higher School of Economics, State University

³Moscow Institute of Physics and Technology, State University

The method of molecular dynamics is used to study the dominant collective oscillation modes of electrons in nonideal nanoplasmas created by an impact of femtosecond laser pulses on metal clusters. Relative amplitudes and frequencies of Mie and plasma oscillations (surface and volume plasmons) are obtained depending on the cluster size ranging from 55 to 10⁵ atoms. A threshold value of the cluster size is found when the plasma oscillations can be observed. The simulation results are compared qualitatively with the experimental results for the cluster irradiation by two laser pulses with respect to the pump-probe scheme.

Keywords: molecular dynamics, metal cluster, laser plasma, volume plasmon, surface, plasmon, Mie resonance, nonideal plasmas, GPGPU.

Введение

Облучение наноразмерных кластеров фемтосекундным лазерным импульсом приводит к быстрой ионизации вещества, образованию так называемой «кластерной плазмы» и последующему взрывному разлету ионов в результате электростатического отталкивания. Взаимодействие лазерных импульсов с кластерами имеет как практические приложения, например, генерация коротких рентгеновских импульсов или потоков заряженных частиц [1–3], так и предоставляет уникальную возможность для изучения быстропротекающих процессов в неидеальной (плотной) плазме [4]. В то время как динамика ионов, определяющая поведение плазмы в пикосекундном временном масштабе изучалась достаточно подробно [5, 6], начальная стадия формирования плазмы на временах 10–100 фс, где основную роль играет динамика электронов, описывается, как правило, лишь оценочными моделями [1].

Коллективные колебания вырожденных электронов в кластерах натрия наблюдались в работах [7–9], причем эти колебания наблюдались, начиная с кластеров Na₆. В [9] Было показано, что наиболее выраженный резонанс Ми (поверхностные плазмоны) и несколько менее выраженный плазменный резонанс (объемные плазмоны) сдвинуты по частоте в красную область спектра, причем этот сдвиг увеличивается с уменьшением размера кластера. Этот эффект остался не до конца изученным.

Появление фемтосекундных лазерных установок позволило изучать не только колебания вырожденного электронного газа, но колебания классических электронов в наноплазме, образованной в результате быстрой ионизации кластеров короткими лазерными импульсами. В частности, электронные

колебания в наноплазме исследовались экспериментально в работе [10], в которой кластеры серебра облучались двумя последовательными лазерными импульсами с контролируемой задержкой. При этом первый импульс ионизировал мишень и инициировал ее разлет (кулоновский взрыв), а второй позволял определить характеристики резонансного поглощения лазерного излучения на плазмонах при той или иной плотности разлетающейся плазмы. С учетом температуры электронов в несколько электрон-вольт и почти твердотельной плотности исследуемая наноплазма оказалась существенно неидеальной, поэтому интерпретация результатов экспериментов потребовала теоретических исследований коллективных электронных колебаний в пространственно неоднородной плотной плазме.

Из-за неприменимости дебаевского приближения аналитическое описание кинетики неидеальной плазмы оказывается невозможным, поэтому основным методом исследования здесь является компьютерное моделирование. В частности, спектры колебаний электронов в наноплазме излучались с применением молекулярно-динамического (МД) моделирования в [11–14], а также с помощью численного решения уравнений Власова в [15]. Результаты данной работы основаны на МД моделировании и во многом являются продолжением работ [11–13]. Отдельное внимание уделено сопоставлению используемой модели и полученных результатов с работой [14].

Модель расчета

Применение метода молекулярной динамики для исследования динамических процессов в неидеальной плазме является широко применимой практикой [16]. Для исключения кулоновской расходимости и для приближенного учета квантово-механических эффектов, потенциал электрон-ионного взаимодействия обычно заменяется псевдопотенциалом, имеющим конечное значение при нулевом расстоянии. В частности, в работах [11–13] использовался псевдопотенциал

$$U_{\alpha\beta}^{\text{erf}}(r) = -\frac{q_\alpha q_\beta}{4\pi\epsilon_0 r} \operatorname{erf}\left(\frac{r}{\sigma_{\alpha\beta}}\right), \quad (1)$$

где $\alpha, \beta = \{e, i\}$, $\sigma_{\alpha\beta} = 6.02a_B$. Выбранное значение параметра $\sigma_{\alpha\beta} = 6.02a_B$ обеспечивает значение энергии ионизации изолированного атома натрия $I_p = U_{ei}^{\text{erf}}(r \rightarrow 0) = -5.1 \text{ эВ}$. Взаимодействие свободных электронов друг с другом описываются точным кулоновским потенциалом. Псевдопотенциал Плюммера $U_{\alpha,\beta}^{\text{plum}}(r) \sim q_\alpha q_\beta / \sqrt{r^2 + \sigma^2}$, использованный в [14], имеет схожую форму.

В начальном состоянии ионы располагаются в узлах икосаэдрической кристаллической решетки, обрезанной по сфере радиуса R . Эти условия несколько отличаются от работы [14], где рассматривались только кластеры натрия с заполненными оболочками без обрезания углов икосаэдрического кристалла на радиусе R . Однако, эти различия становятся несущественными с ростом размера кластера.

При моделировании использовалось адиабатическое приближение (схема «Restricted MD») в соответствии с [12, 13]. Вместо прямого расчета «кулоновского взрыва» после ионизации, выбирались статические конфигурации ионной подсистемы, соответствующие различным моментам динамики разлета кластера. Затем моделирование производилось с неподвижными ионами. Как показано в [12], расширение ионной подсистемы происходит на существенно больших временах, чем установление равновесия в электронной подсистеме, что оправдывает применение данного адиабатического приближения. Для интегрирования уравнений движения электронов применялась схема с перешагиванием (Leap-frog) с шагом по времени $3 \cdot 10^{-18} \text{ с}$.

В данной работе мы не проводили моделирование ионизации кластера, а рассматривали изначально ионизованную кластерную наноплазму при определенной температуре, задаваемой на начальном этапе ланжевеновским термостатом. По мере достижения стационарных значений температуры электронов T и заряда кластера Z термостат выключался, и основной расчет проводился для консервативной системы с сохранением полной энергии. В настоящее время проведены расчеты для температуры $T = 1 \text{ эВ}$. Полученные в результате моделирования результаты усреднялись по ансамблю начальных конфигураций ионов, полученных путем небольших случайных смещений ионов из узлов кристаллической решетки.

Анализ колебаний электронов в равновесной электронной подсистеме при неподвижных ионах проводился путем вычисления спектра автокорреляционной функции тока (АФТ), связанной, согласно теории линейного отклика, с внешней проводимостью и диэлектрической проницаемостью плазмы [16]:

$$\sigma(\omega) = \frac{\Omega_0}{k_B T} K_J(\omega) = \frac{\Omega_0}{k_B T} \int_0^\infty \frac{\langle \mathbf{J}(t+\tau) \mathbf{J}(t) \rangle_t}{\langle \mathbf{J}^2(t) \rangle_t} e^{-i\omega\tau} d\tau, \quad \epsilon(\omega) = 1 + 4\pi i \frac{\sigma(\omega)}{\omega}, \quad (2)$$

где $\mathbf{J}(t)$ – полный электронный ток в кластере, Ω_0 – нормировочный объем. Диэлектрическая проницаемость $\varepsilon(\omega)$ определяет оптические свойства ионизированной среды и, в частности, поглощение пробного лазерного импульса, измеряемое в эксперименте. Аналогичная методика расчета использовалась в [13], где дополнительно рассчитывалась АФТ с пространственным разрешением, что позволяет исследовать не только моды колебаний, в которых изменяется полный дипольный момент кластера, но также и другие типичные колебания электронного облака (сжатие, вращение и др.).

Усреднение АФТ проводилось по времени, а также по 15 независимым МД траекториям, рассчитанными из начальных условий с различными случайными смещениями ионов. Длина траекторий варьировалась от $3 \cdot 10^4$ шагов (100 фс) для $N_i = 10^5$ до $1 \cdot 10^7$ шагов (10 пс) для $N_i = 55$.

Для проведения расчетов использовалась программа, разработанная авторами статьи, которая была адаптирована для выполнения на графических ускорителях Nvidia.

Спектр электронных колебаний в ионизованном нанокластере

Рассчитанные на основе МД моделирования спектры АФТ для кластеров различного размера показаны на рис. 1. Анализ пространственной структуры основных мод колебаний, наблюдаемых на рис. 1, выполнен в [13] посредством расчета АФТ с пространственным разрешением. Как показано в [13], первый из наблюдаемых резонансов на частоте $4\text{--}5 \text{ fs}^{-1}$ соответствует колебаниям Ми (поверхностным плазмонам), при которых все электроны в кластере имеют одинаковую коллективную скорость. Максимум на частоте $9\text{--}9.5 \text{ fs}^{-1}$ соответствует ленгмюровским плазменным колебаниям (объемным плазмонам), ограниченным в пространстве размерами кластера. Пространственная структура колебаний, соответствующих промежуточному максимуму, не вполне идентифицирует их тип. Однако этот резонанс также наблюдается экспериментально (см. рис. 1 и 2 в статье [9]).

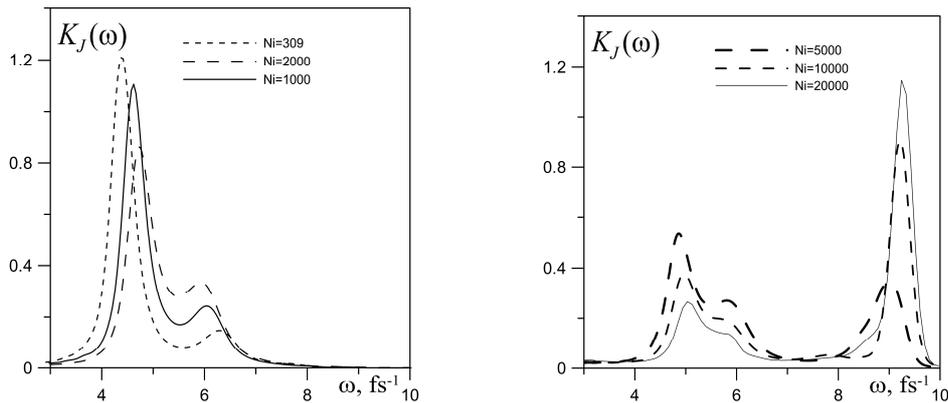


Рис. 1. Спектры автокорреляторов тока для кластеров с различным числом ионов N_i (указаны на графике). Положения максимумов соответствуют частотам собственных колебаний электронов в кластере

Хотя плазменный резонанс и наблюдается в расчетах для кластеров с числом частиц $N_i < 5000$, его амплитуда становится очень малой. С увеличением размера кластера амплитуда этого резонанса резко возрастает, и при $N_i \sim 10^5$ он становится доминирующим, в то время как резонанс Ми затухает. Резкий рост амплитуды плазменного резонанса может наблюдаться в эксперименте как некоторый порог для поглощения пробного импульса на плазменной частоте для кластеров с $N_i \approx 5000$.

Качественным подтверждением данного эффекта является явное наличие двух резонансов на экспериментальной кривой на рис. 3 в работе [10] для кластеров размером $2 \cdot 10^4$ атомов (в самой работе этот факт не акцентируется, и сглаживающая кривая проведена без учета второго максимума), в то время как для меньших кластеров, как правило, наблюдается только резонанс Ми (см., например, [9]).

Частоты и затухание основных мод электронных колебаний

Для определения положений и ширин максимумов на АФТ данная функция аппроксимировалась как сумма кривых Лоренца

$$\text{Re}(K(\omega)) = \sum_k^{N_{\text{peaks}}} \alpha_k \frac{\gamma_k}{\gamma_k + (\omega - \omega_k)^2} \quad (3)$$

Положения основных резонансов в зависимости от размера кластера показаны на рис. 2. Результаты подтверждают экспериментально наблюдавшийся сдвиг резонанса Ми в красную область спектра относительно теоретического значения $\omega_{\text{Mie}} = \sqrt{e^2 n_i / 3 \epsilon_0 m_e}$, при этом величина сдвига возрастает с уменьшением размера кластера. Теоретическое значение ω_{Mie} получено на основе модели, в которой сферическое облако отрицательного заряда осциллирует вокруг такого же по размеру облака положительного заряда. Однако, в действительности кластер имеет общий отрицательный заряд за счет вылетевших электронов, поэтому эффективный радиус электронного облака меньше. Как показано в [13], это частично объясняет сдвиг резонанса Ми в красную область спектра для малого размера кластера.

Теоретическое значение плазменной частоты для нулевого волнового числа (однородной плазмы) имеет вид $\omega_{\text{pl}} = \sqrt{e^2 n_e / \epsilon_0 m_e}$, однако оно также не вполне совпадает с наблюдающимся значением для кластерной плазмы. Определение плазменной частоты становится очень неточным для кластеров с $N_i < 5000$, поэтому эти данные не показаны на графике.

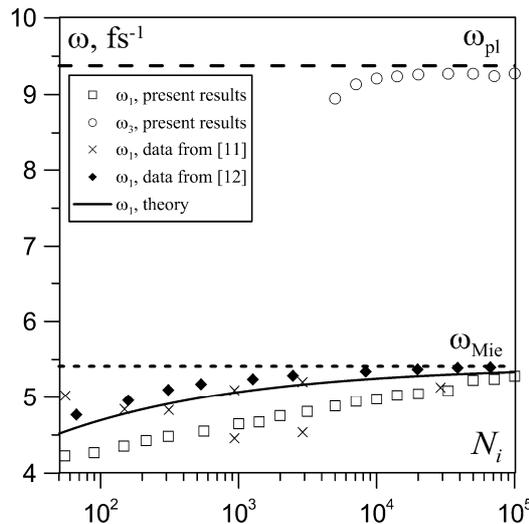


Рис. 2. Зависимость частоты колебаний электронов от размера кластера (количества ионов N_i).

Квадраты – результаты данной работы для резонанса Ми, крестики и ромбы – результаты резонанса Ми в работах [14] и [15], соответственно; круги – частота плазменного резонанса, пунктирные линии – теоретические значения для ω_{Mie} (снизу) и ω_{pl} (сверху). Параметры кластерной плазмы:

$$\text{температура электронов } T = 1 \text{ эВ, концентрация } n_i = 2.7 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$$

Как видно из рис. 2 для резонанса Ми согласие с результатами работы [14] (крестики) отсутствует. С нашей точки зрения это может быть связано со способом вычисления спектра электронных колебаний. В работе [14] этот расчет основан на определении дипольного момента $\mathbf{P}(t)$, для которого затем вычисляется спектр мощности $K_p(\omega) = |\mathfrak{F}\{\mathbf{P}(t)\}|^2$. Хотя этот метод эквивалентен нашему с математической точки зрения, он отличается численной погрешностью. За счет применения временного окна конечного размера при усреднении АФТ $\langle \mathbf{J}(t + \tau) \mathbf{J}(t) \rangle_t$, существенно снижается влияние численного шума, который может быть причиной появления множественных резонансов вблизи плазменной частоты в работе [14]. Более подробное обсуждение этой проблемы можно найти в [17].

Заключение

Основываясь на данных компьютерного моделирования методом молекулярной динамики, показано, что спектры колебаний электронов в ионизованных наноразмерных кластерах содержат явно выраженные резонансные частоты, соответствующие резонансу Ми (поверхностные плазмоны) и плазменному резонансу (объемные плазмоны). При этом частоты обоих резонансов несколько отличаются от случая пространственно-однородной плазмы, причем для резонанса Ми это отличие растет с уменьшением размера кластера. Для плазменного резонанса обнаружено пороговое значение размера кластера ($N_i \sim 2000$) при котором этот тип колебаний возникает. С дальнейшим ростом размера кластера плазменные колебания становятся все более выраженными, а резонанс Ми подавляется.

Полученная зависимость частот резонансов от размера кластера хорошо согласуется с результатом работы [13] и дополняет его в области больших кластеров. В то же время результаты [14] для частоты

колебаний Ми существенно отличаются от результатов данной работы, что связано, по нашему мнению, с численными погрешностями при вычислении спектра автокорреляционной функции тока в [14].

Работа выполнена при поддержке по программам фундаментальных исследований Президиума РАН №2 (коорд. чл.-к. Канель Г.И.), №14 (ак. Велихов Е.П., ак. Савин Г.И., ак. Жижченко А.Б.), ПФИ ПРАН по стратегическим направлениям развития науки №1 (коорд. ак. Бетелин В.Б.).

Расчеты проведены на кластерах «К-100 (ИМП РАН) и «Ломоносов» (НИВЦ МГУ).

Библиография

1. Крайнов В.П., Смирнов М.Б. Эволюция больших кластеров под действием ультракороткого сверхмощного лазерного импульса // УФН. 2000. Т. 170, № 9. С. 969–990.
2. Zhang L., Chen L.-M., Wang W.-M., et al. Electron acceleration via high contrast laser interacting with submicron clusters // Appl. Phys. Lett. 2012. V. 100. P. 014104.
3. Agranat M.B., Andreev N.E., Ashitkov S.I., et al. Interaction of intense femtosecond laser pulses with iron clusters formed by photo-dissociation of Fe(CO)₅ // Proc. SPIE. 2006. V. 5975. P. 505–597.
4. Ramunno L., Jungreuthmayer C., Reinholz H., Brabec T. Probing attosecond kinetic physics in strongly coupled plasmas // Journal of Physics B. 2006. V. 39. P. 4923–4931.
5. Last I., Jortner J. Scaling procedure for simulations of extreme ionizations and Coulomb explosion of large clusters // Phys. Rev. A. 2007. V. 75. P. 42–507.
6. Смирнов М.Б. Спектр ионов при возбуждении кластерного пучка лазерным импульсом // ЖЭТФ. 2014. Т. 146. С. 420–428.
7. Selby K., Kresin V., Masui J., et al. Photoabsorption spectra of sodium clusters // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. P. 4565–4572.
8. Tiggesbaumer J., Koeller L., Meiwes-Broer K.-H., Liebsch A. Blue shift of the Mie plasma frequency in Ag clusters and particles // Phys. Rev. A. 1993. V. 48. P. 1749–1752.
9. Xia C., Yin C., Kresin V.V. Photoabsorption by volume plasmons in metal nanoclusters // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 102. P. 156–802.
10. Doepfner T., Fennel T., Radcliffe P., et al. Ion and electron emission from silver nanoparticles in intense laser fields // Phys. Rev. A. 2006. V. 73. P. 31–202.
11. Belkacem M., Megi F., Reinhard P.-G., et al. A molecular dynamics description of clusters in strong laser fields // Eur. Phys. J. 2006. V. D 40. P. 247–255.
12. Raitza T., Reinholz H., Röpke G., Morozov I.V. Collision frequency of electrons in laser excited small clusters // J. Phys. A. 2009. V. 42. P. 214–248.
13. Raitza T., Röpke G., Reinholz H., Morozov I. Spatially resolved dynamic structure factor of finite systems from molecular dynamics simulations // Phys. Rev. E. 2011. V. 84. P. 36–406.
14. Winkel M., Gibbon P. Spatially Resolved Electronic Correlations in Nanoclusters // Contrib. Plasma Phys. 2013. V. 53. P. 254–262.
15. Fomichev S.V., Zaretsky D.F. Vlasov theory of Mie resonance broadening in metal clusters // Journal of Physics B. 1999. V. 32. P. 5083–5102.
16. Морозов И.В., Норман Г.Э. Столкновения и плазменные волны в неидеальной плазме // ЖЭТФ. 2005. Т. 127, № 2. С. 412–430.
17. Stoica P., Moses R.L. Spectral analysis of signals. New Jersey, USA: Prentice Hall, 2005. 427 p.

Требования к оформлению научной статьи, представляемой в журнал «Известия Кабардино-Балкарского государственного университета»

Для публикации в журнале «Известия Кабардино-Балкарского государственного университета» принимаются статьи на русском или английском языках, содержащие результаты актуальных фундаментальных и прикладных исследований, передовых наукоемких технологий, научных и научно-методических работ.

1. Основные документы, необходимые для публикации

1.1. Один экземпляр статьи в бумажном виде и на электронном носителе отдельным файлом (на диске); на наклейке диска (дискеты) (обязательно!) указываются фамилия автора (авторов) и название статьи.

1.2. Полные сведения об авторе (авторах) на русском и английском языках в бумажном виде и в электронном варианте, оформленном отдельным от статьи файлом, который включает в себя следующие данные:

- фамилия, имя, отчество (полностью) каждого автора;
- место работы (наименование организации), ученая степень, ученое звание, должность каждого автора;
- контактные телефоны, почтовый индекс и адрес, адрес электронной почты (e-mail) каждого автора.

1.3. Сопроводительное письмо на бланке учреждения, где выполнена работа.

1.4. Внешняя рецензия доктора наук (по желанию).

1.5. Акт экспертизы о возможности опубликования в открытой печати – для физико-математических, химических, биологических, технических, экономических наук и науки о земле.

1.6. Справка об учебе в аспирантуре или докторантуре для аспирантов и докторантов.

1.7. «Лицензионный договор» (один на авторский коллектив) в 2-х экз. Без Договора статья не будет опубликована. Текст Договора размещен на сайте журнала «Известия КБГУ».

2. Правила оформления статьи

2.1. Объем статьи – в пределах 15 страниц формата А4, интервал – 1,5, размер шрифта Times New Roman Cyr 14 пт; поля страницы: слева – 3 см, справа – 1 см, сверху – 2,0 см, снизу – 2,5 см.

Краткие сообщения – в пределах 4 машинописных страниц, включающих не более 2 рисунков и 2 таблиц.

2.2. Статья должна включать:

- индекс УДК (универсальная десятичная классификация) в верхнем левом углу;
- название статьи (на русском и английском языках);
- фамилия, имя, отчество автора (авторов) (на русском и английском языках);
- реферат статьи (до 500 знаков) (на русском и английском языках);
- ключевые слова (5–7 слов на русском и английском языках);
- текст статьи, отражающий цель исследования, методы работы, собственно исследования, конкретные выводы;
- библиография (в библиографическом списке нумерация источников должна соответствовать очередности ссылок на них в тексте; номер источника в тексте указывается в квадратных скобках – автоматическая нумерация ссылок не допускается);
- подпись автора (авторов).

2.3. Иллюстрации к статье (рисунки, фотографии) должны быть черно-белыми, четкими (разрешение не менее 300 dpi, расширение *.jpg) и вставлены в текст. Обычный размер иллюстраций – не более половины листа А4. Формулы и символы помещаются в текст с использованием редактора формул Microsoft Education. Таблицы вставляются в текст; ссылки на рисунки и таблицы обязательны; названия таблиц и подрисуночных подписей обязательны.

2.4. Нумерация страниц обязательна.

2.5. Тип файла в электронном виде – RTF.

Образцы оформления библиографии:

книга

Самарский А.А., Гулин А.В. Устойчивость разностных схем. М.: Наука, 1973. 210 с.

Интегральные схемы: Принципы конструирования и производства / под ред. А.А. Колосова. М.: Сов. радио, 1989. 280 с.

статья из книги, сборника, журнала

Петренко В.И., Доготь А.Я. Пневмогидравлический кавитационный процесс // Геодинамические основы прогнозирования нефтегазоносности недр: тезисы докладов 1-й Всесоюзной конференции. М., 1988. Ч. 3. С. 616–617.

Хлынов В.А. Общегосударственное планирование рыночной экономики: Опыт Японии // Экономист. 1994. № 4. С. 89–94.

Базаров А.Ж. О некоторых нелокальных краевых задачах для модельных уравнений второго порядка // Известия вузов. Математика. 1990. Т. 2, № 3. С. 11–15.

диссертации и авторефераты диссертаций

Ерков С.А. Формирование художественного восприятия произведений изобразительного искусства на уроках изобразительного искусства в 5, 6 классах средней общеобразовательной школы: дис... канд. пед. наук. М., 2006. 184 с.

Вахромов Е.Е. Психологические особенности самоактуализации подростков с отклоняющимся поведением: автореф. дис... канд. психол. наук. М., 2003. 30 с.

При несоблюдении указанных правил редакция оставляет за собой право не публиковать статью.

3. Порядок рецензирования

3.1. Рукопись направляется на рецензирование ведущим специалистам в данной области (внешнее и внутреннее рецензирование).

3.2. Результаты рецензирования редакция сообщает автору по электронной почте.

3.2. По результатам рецензирования редколлегия принимает решение о целесообразности опубликования материала, о чем дополнительно сообщается автору.

Статьи представляются в редакционно-издательский отдел ИПЦ КБГУ.

Адрес ИПЦ КБГУ: 360004, г. Нальчик, ул. Чернышевского, 173.

Контактный телефон: (8662) 72-23-13.

E-mail: rio@kbsu.ru, izvestia_kbsu@mail.ru. E-mail-адрес защищен от спам-ботов, для его просмотра у вас должен быть включен Javascript.

Ответственный секретарь редакции – **Шогенова Марина Чашифовна**.

После положительного решения редколлегии о публикации статьи в журнале «Известия КБГУ» автор (или авторы) статьи перечисляет на р. сч. КБГУ плату из расчета 500 руб. (в т.ч. НДС) за страницу рукописи.

Назначение платежа: редакционно-издательские услуги («Известия КБГУ»), код дохода 07430201010010000130, разрешение № 0732069510 от 30.03.05 г. пункт 1. В стоимость входят расходы по доставке журнала по территории России. Автор (или авторы) статьи получает 2 экземпляра журнала бесплатно.

Для выкупа дополнительных номеров журнала необходимо передать в редакцию (ИПЦ КБГУ) письмо-заявку с указанием номера и количества экземпляров журнала и перечислить на р. сч. КБГУ плату из расчета 250 руб. (в т.ч. НДС) за один экземпляр журнала с назначением платежа: редакционно-издательские услуги (за журнал «Известия КБГУ»), код дохода 07430201010010000130, разрешение № 0732069510 от 30.03.05 г. пункт 1.

Реквизиты КБГУ для платежей:

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х. М. Бербекова» (КБГУ)

Почтовый и юридический адрес:

360004, Кабардино-Балкарская Республика, г. Нальчик, ул. Чернышевского, 173

Телефон: 42-25-60,

Voice/fax: +7(495) 3379955

Телетайп: 257245 «Альфа»

E-mail: bsk@kbsu.ru

ОКПО 02069510

ОКОНХ 92110

ОГРН 1020700739234 от 22.07.11г.

ОКОГУ 13240

ОКАТО 83401000000

ОКЭВД 80.30.1

ОКОПФ 72

ОКФС 12

Банковские реквизиты:

Получатель:

ИНН 0711037537/ КПП 072501001

Отдел № 1 УФК по Кабардино-Балкарской Республике (0401 КБГУ л/с 20046Х17540)

Банк получателя:

ГРКЦ НБ Кабардино-Балкарск. Респ. Банка России г. Нальчика

БИК 048327001

Р/с 40501810100272000002

КБК 0000000000000000130

Копия платежного документа передается или высылается в редакцию журнала по электронной почте.

**ИЗВЕСТИЯ КАБАРДИНО-БАЛКАРСКОГО
ГОСУДАРСТВЕННОГО УНИВЕРСИТЕТА**

**PROCEEDING OF THE
KABARDINO-BALKARIAN
STATE UNIVERSITY**

ТОМ IV, № 3, 2014

Редактор *Л.З. Кулова*
Компьютерная верстка *Е.Л. Шериевой*
Корректор *Л.З. Кулова*

В печать 17.06.2014. Формат 60x84 ¹/₈.
Печать трафаретная. Бумага офсетная. 13.02 усл.п.л. 13.0 уч.-изд.л.
Тираж 1000 экз. Заказ № 7156.
Кабардино-Балкарский государственный университет.
360004, г. Нальчик, ул. Чернышевского, 173.

Полиграфическое подразделение КБГУ.
360004, г. Нальчик, ул. Чернышевского, 173.