

РОССИЙСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ ЯДЕРНЫЙ ЦЕНТР
ВСЕРОССИЙСКИЙ НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ ФИЗИКИ

ЭКСТРЕМАЛЬНЫЕ СОСТОЯНИЯ ВЕЩЕСТВА. ДЕТОНАЦИЯ. УДАРНЫЕ ВОЛНЫ

ТРУДЫ МЕЖДУНАРОДНОЙ КОНФЕРЕНЦИИ
VII ХАРИТОНОВСКИЕ
ТЕМАТИЧЕСКИЕ НАУЧНЫЕ ЧТЕНИЯ

14-18 марта 2005 г.

под редакцией
доктора технических наук
А.А.Михайлова

РФЯЦ-ВНИИЭФ

САРОВ

2005

5. Hereil P.L. et al., "GEPI: un generateur de rampe de compression isentropique pour l'étude du comportement dynamique des matériaux et la génération de projectiles hyperveloces", HDP V symposium, Saint-Malo, France, 2003, pp. 365-376
6. Mangeant C., PhD Thesis, University Paris 6, 2002
7. Hayes D. and Hall C.A. "Correcting free surface effects by integrating the equations of motion backward in space" same as [4] pp.1177-1180
8. Hall C.A. et al. "Recent advances in quasi-isentropic compression experiments (ICE) on the SANDIA Z accelerator", same as [4] pp.1163-1168
9. Barker L. M. and Hollenbach R.A., J. Appl. Phys. 45, 4872-4277(1974)
10. Asay J.R. et al., "Isentropic compression of iron with the Z accelerator", same as [2] pp.1151-1154
11. Mabire C. et Hérelil P.L., «Shock induced polymorphic transition and melting of tin» same as [2] pp.93-96
12. Ponsonnaille J.P. et Hérelil P.L., « Soft recovery device for shocked brittle materials », DYMAT meeting, Tolède (Spain), 1997

ИССЛЕДОВАНИЕ С ПОМОЩЬЮ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ДИНАМИКИ УДАРНО-ВОЛНОВОГО СЖАТИЯ АЭРОГЕЛЯ

*Л.А.Мержиевский¹, В.П.Ефремов², П.И.Зубков¹, Л.А.Лукьянчиков¹, К.А.Тен¹,
В.М.Титов¹, Б.П.Толочко³, В.Е.Фортвов², М.Р.Шарафутдинов³, М.А.Шеромов⁴*

¹Институт Гидродинамики им. М.А.Лаврентьева СО РАН, Новосибирск, Россия

²Институт Теплофизики Экстремальных Состояний РАН, Москва, Россия

³Институт Химии Твердого тела и Механохимии СО РАН, Новосибирск, Россия

⁴Институт Ядерной Физики СО РАН, Новосибирск, Россия

Введение. Аэрогели – высокопористые материалы, главными особенностями которых являются чрезвычайно низкая плотность и большое количество пор малого размера. Эти материалы – еще и своеобразные физические объекты, представляющие собой макроскопические кластеры, состоящие из жестко связанных макрочастиц. Характерный размер отдельных частиц – несколько нанометров. Жесткий каркас составляет малую долю объема аэрогеля, то есть почти весь его объем (до 98-99 % и выше) приходится на поры. Первый аэрогель был получен С. С. Кистлером в 1930 – 1931гг. из двуоксида кремния [1]. В дальнейшем удалось получить аэрогели из оксидов алюминия, вольфрама, железа, олова, углерода, ряда органических соединений и веществ. По существующим представлениям, отсутствуют принципиальные ограничения, по которым нельзя было бы получать аэрогели практически из любых материалов.

В силу названных особенностей строения, аэрогели обладают уникальными физическими свойствами, среди которых важнейшими являются низкая теплопроводность в сочетании с относительно высокой прозрачностью [2]. Скорость распространения звука в аэрогелях даже ниже скорости звука в газах. Первые сведения о размерах структурных элементов аэрогелей были получены с помощью релеевского светорассеяния. В литературе часто приводятся и обсуждаются результаты изучения распределения пор по размерам, получаемые с помощью ртутной порометрии, термoporометрии и на основе адсорбции и десорбции различных веществ, например, азота. Эти методы могут вносить в структуру аэрогелей сильные возмущения, что снижает доверие к получаемым результатам и требует их тщательного анализа. Не лишен недостатков и метод фотографирования образцов с помощью электронных микроскопов в проходящих и отраженных лучах, так как, как показывают исследования, воздействие электронных пучков может приводить к укрупнению структурных элементов аэрогеля. Наиболее надежный метод анализа структуры аэрогелей – малоугловое рассеяние рентгеновских лучей или нейтронов. Простейшая модель аэрогеля [3] может быть построена из сферических “первичных” частиц радиусом $r_0 \leq 1$ нм, которые объединяются

во “вторичные” сферические же частицы. “Вторичные” частицы образуют цепи, в которых связь между частицами возникает при их соприкосновении. Эти цепи и образуют высокопористую структуру аэрогеля. В области размеров $r_0 \leq r \leq R_0$, R_0 – максимальный размер пор, аэрогель является фрактальным кластером, а при $r \gg R_0$ его считают однородным телом.

Для измерения механических характеристик аэрогелей применяются стандартные методики трехточечного изгиба, одноосного и всестороннего сжатия и ультразвуковые исследования, в которых определяются продольные и поперечные скорости звука. Результаты для наиболее изученного аэрогеля из двуокиси кремния обобщены в виде зависимостей модуля Юнга E , модуля объёмного сжатия K , и скоростей звука C_l (продольная), C_t (поперечная) от плотности ρ степенного вида:

$$E = E_0 \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^a, \quad K = K_0 \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^b, \quad C_{l,t} = C_{0l,t} \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^g, \quad (1)$$

где E_0 , K_0 , $C_{0l,t}$ – значения соответствующих параметров при некоторой “опорной” плотности ρ_0 . Так при $\rho_0 = 0,13$ г/см³ $E_0 \approx 8,4$ кг/мм², $a = 2,8 \pm 0,2$, $g = 0,9 \pm 0,2$. Коэффициент Пуассона ν для данного аэрогеля считается не зависящим от плотности и равным $\approx 0,12$.

Так как в ряде возможных применений аэрогеля он подвергается высокоинтенсивным внешним воздействиям, то представляет интерес изучение его свойств и поведения при динамических и ударно-волновых нагружениях. В этой связи следует указать ряд работ, посвященных построению ударных адиабат и уравнений состояния кремниевого аэрогеля [4-8].

В данной работе для исследования поведения аэрогеля на основе двуокиси кремния SiO_2 при ударно-волновом нагружении используются возможности синхротронного излучения (СИ). Применимость СИ для исследования взрывных и ударно-волновых процессов показана в [9-11]. Наряду с этим определяются структурные и квазистатические механические характеристики.

Структурные и механические характеристики. Общее представление о структуре исследуемого в данной работе SiO_2 аэрогеля дает рисунок 1, где приведены фотографии микрообразцов разной плотности, сделанные с помощью просвечивающего электронного микроскопа. Плотность на рисунках материала 1-а-1-в соответственно 0,15; 0,04; 0,02 г/см³.

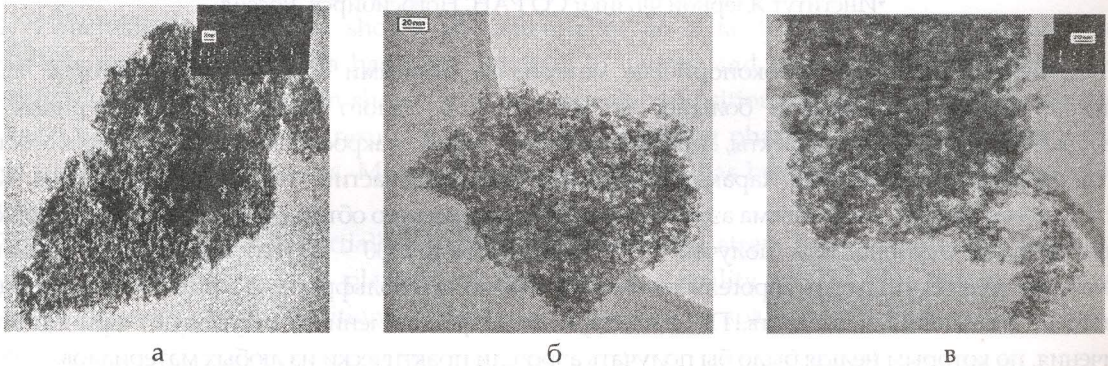


Рисунок 1.

Распределение пор по размерам для образца 1-а, полученное на основе метода адсорбции азота, приведено на рисунке 2 (число пор в относительных единицах в зависимости от размера). Максимум распределения приходится на поры диаметром ≈ 25 нм, а размеры основного количества пор заключены в диапазоне 20 – 40 нм. При уменьшении плотности максимум распределения сдвигается в сторону пор большего размера, а само распределение становится более широким за счет наличия более крупных пор (до 70-80 нм).

Упругие свойства исследуемого аэрогеля определялись в экспериментах по одноосному сжатию. Диаграмма деформирования образца с начальной плотностью 0,25 г/см³ приведена на рисунке 3 (точки – экспериментальные данные). Как следует из рисунка, связь между напряжением и деформацией линейна практически до момента разрушения, которому соответствует последняя экспериментальная точка. Вычисленный по приведенным данным модуль Юнга $\approx 8,3$ кг/мм², напряжение, при котором произошло

разрушение, $\approx 0,5$ кг/мм², соответствующая деформация $\approx 0,057$. Значение модуля упругости, как и величины, полученные при других начальных плотностях, практически совпадают с вычисленными по формуле (1).

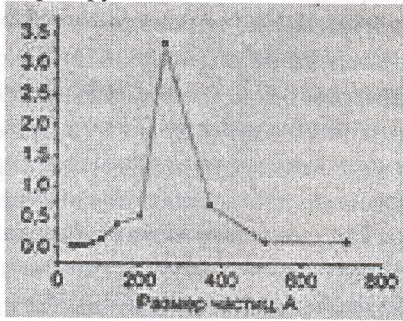


Рисунок 2.

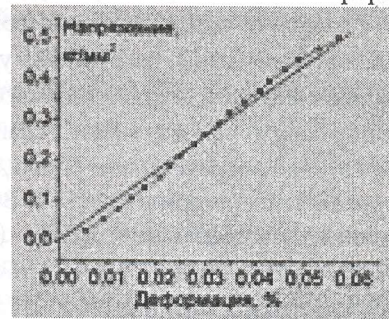


Рисунок 3.

Постановка ударно-волновых экспериментов. Схема постановки экспериментов по исследованию детонационных и ударно-волновых процессов детально описана в [9-10]. В данной работе нагружались цилиндрические образцы аэрогеля диаметром и длиной 10, 15 и 20 мм. Нагружение производилось двумя способами. При первом плоская ударная волна на одном из торцов образца возбуждалась с помощью подрыва цилиндрического же заряда взрывчатого вещества (ВВ), непосредственно или через прокладку контактировавшего с образцом. При этом предварительно с помощью скоростной фотосъёмки контролировалось кривизна фронта нагружающей детонационной волны. Как показали результаты съёмки,

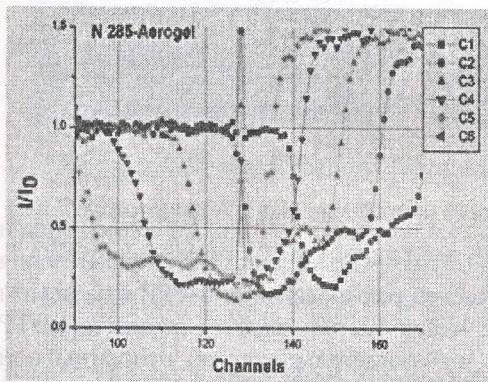


Рисунок 4.

для всех использовавшихся зарядов ВВ фронт можно было считать плоским с точностью $\sim 2\%$. Во втором варианте ударная волна в образцах возбуждалась ударом пластинки, ускоряемой продуктами детонации ВВ через воздушный зазор. Непосредственное измерение с помощью проходящего излучения СИ показало, что пластинка оставалась практически плоской во всё время проведения экспериментов.

Для измерения параметров ударно-сжатого аэрогеля использовался пучок СИ. Сборка из исследуемого образца и нагружающего устройства располагалась горизонтально вдоль плоскости сформированного пучка СИ, имевшего высоту 0,4 мм и ширину ≈ 18 мм. Ударная волна в аэрогеле находилась в зоне пучка СИ в течении 3–4 мкс. За это время удавалось сделать 6–8

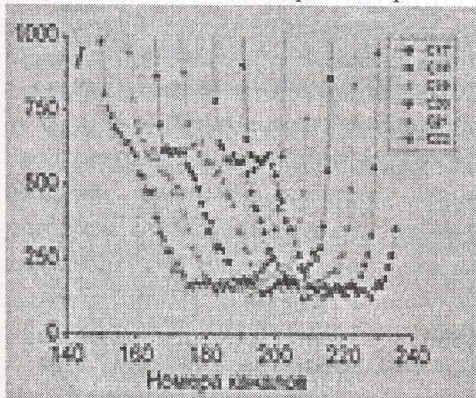


Рисунок 5.

мгновенных (с экспозицией 1 нс) снимков распределения проходящего и рассеянного на малые углы излучения вдоль оси образца. Время между кадрами составляло ≈ 500 нс. Регистрация излучения велась детектором DIMEX [9], который располагался также вдоль оси сборки на расстоянии 770 мм от нее. Размеры одного канала регистрации составляли 1 мм в высоту и 0,1 мм вдоль оси заряда, общее число каналов составляло 256 шт. (25,6 мм). Запуск детектора осуществлялся замыканием контактного датчика, установленного на расстоянии 15 мм за зоной попадания пучка. Изменение интенсивности проходящего через образец пучка дает информацию о распределении плотности в области измерения, а интенсивность части пучка, отклоняющейся на малые углы (малоугловое рентгеновское рассеяние, МУРР), дает возможность вычислить размеры и количество структурных элементов аэрогеля (подробнее см. [9]).

Измерения в проходящем луче. Представление о характере изменения интенсивности проходящего излучения по мере распространения ударной волны по аэрогелю дает рисунок 4 (нагружение зарядом ВВ, интенсивность отнесена к интенсивности после

образца в ненагруженном состоянии). Даже с учетом аппаратурного размазывания сигнала ("точечный" сигнал возбуждает 3 канала регистрации) видно, что фронт нагружающего импульса заметно размазан, что связано с высокой пористостью материала. Скорость ударной волны постоянна и равна $\sim 2,4$ км/с. Аналогичные данные в случае нагружения ударом пластины приведены на рисунке 5. В этом случае кроме скорости ударной волны измеряется и массовая скорость за её фронтом, которая равна скорости полета ударника. Полученные данные можно сравнивать с ударными адиабатами [4-8] и строить на их основе ударные адиабаты исследуемого материала для различной начальной плотности исследуемых образцов.

Измерение интенсивности МУРР. В каждом из опытов данной серии одновременно фиксировалось пространственное распределение МУРР (стрипы с 170 по 212 на приведенных ниже рисунках) и проходящего излучения (стрипы с 213 по 217). Такая постановка позволяла сопоставить наблюдаемое распределение МУРР с моментом прихода ударной волны и последующей разгрузкой в области наблюдения. Пример получаемых данных показан на рисунке 6 (скорость ударной волны $\sim 3,4$ км/с). На 6-а приведены результаты для исходного образца в ненагруженном состоянии. Большая структурная неоднородность материала, в котором мелкие высокоплотные частицы SiO_2 перемежаются порами больших размеров, приводит к интенсивному малоугловому рассеянию зондирующего пучка.

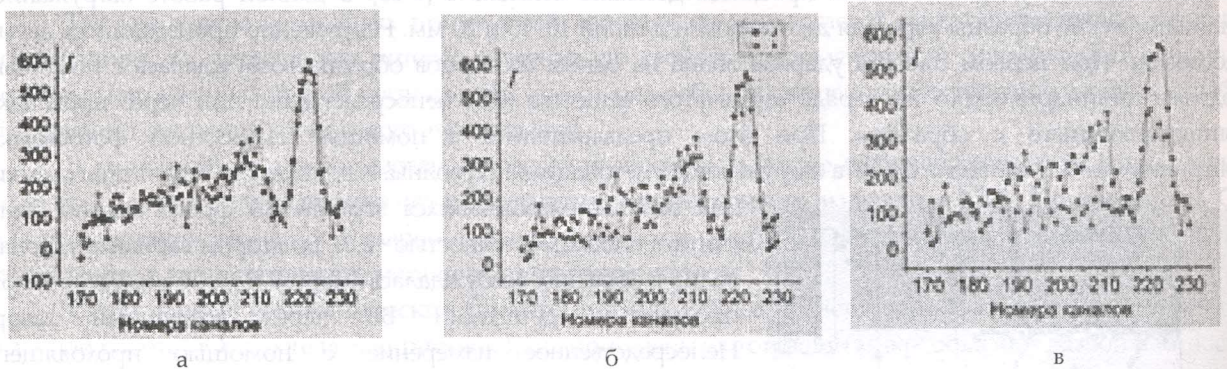


Рисунок 6.

Обработка по методу Гинье полученных после сглаживания по стандартным методикам зависимостей распределения интенсивности МУРР от угла рассеяния позволяет построить функцию распределения входящих в состав аэрогеля частиц по размерам. На 6-б сравниваются распределения МУРР в несжатом (точки С) и сжатом (точки D) материале. Данные показывают, что в ударно сжатом веществе МУРР практически отсутствует, что свидетельствует об относительной однородности материала (отсутствии флуктуаций плотности) в сжатом состоянии. На 6-в сравниваются распределения МУРР в исходном в исходном состоянии (точки J) и после прохождения ударной волны и последующей разгрузки (точки K). После разгрузки поровая структура материала восстановилась, но распределение размеров рассеивающих частиц изменилось, о чем свидетельствует различие кривых, соответствующих точкам J и K. По данным об интенсивности проходящего луча плотность материала после разгрузки близка к первоначальной.

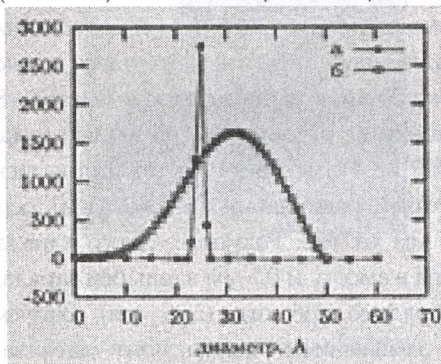


Рисунок 7

и разгруженном состоянии практически совпадают, что является следствием полного восстановления структуры аэрогеля после прохождения ударной волны и последующей разгрузки. По полученным данным, критическая амплитуда ударной волны, начиная с которой качественно меняется структурное состояние аэрогеля при ударно-волновом нагружении, соответствует скорости ударной волны $\sim 2,8$ км/с.

Обсуждение результатов. Исследованию упругих характеристик SiO_2 аэрогеля посвящено значительное число публикаций. Общий вывод этих работ заключается в том, что упругие модули связаны с плотностью аэрогеля степенными зависимостями вида (1). При этом оказывается, что показатели степени a , b , g не являются универсальными постоянными, а зависят от состояния исходных компонентов материала, условий протекания промежуточных реакций и теплового режима

высушивания. Для использованного в наших экспериментах аэрогеля с хорошей точностью можно считать, что $a = 2,8$.

В работах [4-8] построены ударные адиабаты аэрогелей различной начальной плотности в форме линейной связи между скоростью ударной волны D и массовой скоростью за её фронтом U . Экспериментальные данные для аэрогелей с плотностью от 0,008 до 0,36 г/см³ обобщаются в единую ударную адиабату в [7] в форме линейной, а в [8] – в форме квадратичной связи D с U . Результаты наших опытов с приемлемой точностью описываются этими обобщенными ударными адиабатами.

Методами адсорбции азота, электронной микроскопии и синхротронного излучения исследована мезоструктура аэрогеля в исходном состоянии. Оказалось, что средний размер пор (максимум функции распределения) примерно на порядок превосходит средний размер частиц, образующих аэрогель. Средствами СИ выявлено наличие в аэрогеле мезоструктурного перехода при достижении критических параметров ударной волны. Он заключается в том, что при скорости $D > D_k$ (приближенное значение $D_k \approx 2,8$ км/с еще подлежит уточнению) происходит изменение размеров частиц аэрогеля, рассеивающих излучение на малые углы. Сказанное иллюстрируется на рисунке 7, где точки а показывает распределение размеров частиц после нагружения ударной волной с $D < D_k$, б – после нагружения с $D > D_k$. В случае а имеется достаточно узкое распределение, которое практически совпадает с распределением размеров частиц аэрогеля в исходном состоянии (до нагружения). Распределение б показывает наличие существенно большего спектра размеров частиц, причем возросло число как более мелких, так и более крупных частиц. Средняя плотность аэрогеля после разгрузки в обоих случаях остается близкой к исходной (естественно, до момента начала диспергирования аэрогеля в волнах разрежения).

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 02-02-16799, Интеграционного проекта СО РАН № 120 и Программы Президиума РАН № 18.3.

Список литературы

1. S.S.Kistler. Coherent Expanded Aerogel and Jellies. // Nature, 1931, No. 3221, v. 127, p. 741.
2. Б.М.Смирнов. Аэрогели. // Успехи физических наук, 1987, т.152, в.1, с. 133 – 157.
3. Й.Фрике. Аэрогели. // В мире науки, 1988, № 7, с. 50 – 56.
4. R.Rabie, J.J.Dick. Equation of state and crushing dynamics of low-density silica aerogels. // Shock compr. of Cond. Matt., 1991, p. 87 – 90.
5. N.C.Holmes, E.F.See. Shock compression of low-density microcellular materials. // Shock compr. of Cond. Matt., 1991, p. 91 – 94.
6. V.E.Fortov, A.S.Filimonov, V.K.Gryaznov, D.N.Nikolaev, V.Ya.Ternovoi. The generation of a non-ideal plasma by shock compression of high-porosity SiO₂-aerogel. // Modern Physics Letters A, 2003, v. 18, No. 26, p. 1835 – 1840.
7. V.C.Vildanov, M.M.Gorshkov, V.M.Slobodenjukov, E.H.Rushkovan. Shock compression of low initial density quartz at pressures up to 100 GPa. // Shock compr. of Cond. Matt., 1995, p. 121 – 124.
8. M.V.Zhernokletov, T.S.Lebedeva, A.B.Medvedev, M.A.Mochalov, A.N.Shuykin, V.E.Fortov. Thermodynamic parameters and equation of state of low-density SiO₂ aerogel. // Shock compr. of Cond. Matt., 2001, p. 763 – 766.
9. А.Н.Алешаев, П.И.Зубков, Г.Н.Кулипанов, Л.А.Лукьянчиков, Н.З.Ляхов, С.И.Мишнев, К.А.Тен, В.М.Титов, Б.П.Толочко, М.Г.Федотов, М.А.Шеромов. Применение синхротронного излучения для исследования детонационных и ударно-волновых процессов. ФГВ, 2001, т.37, № 5, с.104 – 113.
10. П.И.Зубков, Г.Н.Кулипанов, Л.А.Лукьянчиков, Л.А.Мержиевский, К.А.Тен, В.М.Титов, Б.П.Толочко, М.Г.Федотов, М.Р.Шарафутдинов, М.А.Шеромов. Наблюдение волн сжатия и разрушения в ПММА с помощью синхротронного излучения. // Физика горения и взрыва, 2003, т.39, № 2, с. 137-139.
11. Л.А.Мержиевский, П.И.Зубков, Л.А.Лукьянчиков, К.А.Тен, В.М.Титов, Г.Н.Кулипанов, М.Г.Федотов, М.А.Шеромов, Б.П.Толочко, М.Р.Шарафутдинов. Использование синхротронного излучения для диагностики деформирования и разрушения материалов. // Вопросы атомной науки и техники, сер. Материаловедение и новые материалы, 2004, в. 2(63), с. 383 – 391.