

## ВЛИЯНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ НА СКОРОСТЬ НАРАСТАНИЯ ПРЯМЫХ ПРЕДВЗРЫВНОЙ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ АЗИДА СЕРЕБРА

Б. П. Адуев, А. Г. Кречетов, Е. В. Тупицин, С. С. Гречин, Д. Э. Алукер

Кемеровский государственный университет, 650043 Кемерово, lira@kemsu.ru

Исследовано влияние температуры на скорость нарастания прямой предвзрывной люминесценции  $\text{AgN}_3$ . Экспериментально установлено, что скорость реакции взрывного разложения при температуре 300 К выше, чем при 80 К. Отсюда можно заключить, что лимитирующей стадией скорости цепной реакции является захват электрона на нейтральный центр (дивакансию). Полученные данные количественно и качественно хорошо согласуются с моделью иницирования азидов тяжелых металлов, что служит одним из доводов в пользу дивакансионной модели.

Ключевые слова: азид серебра, температура, лимитирующая стадия, сечение захвата, дивакансия.

### ВВЕДЕНИЕ

В работах [1, 2] было показано, что ранние стадии реакции взрывного разложения азидов тяжелых металлов, протекающие в еще не разрушенном образце, носят цепной характер и кинетика реакции на этих стадиях описывается уравнением

$$\dot{n} = \alpha n - \beta n^2, \quad (1)$$

где  $n$  — концентрация свободных дырок,  $\alpha$  и  $\beta$  — константы скорости развития и обрыва цепи соответственно.

В [3] предложена модель звена цепи, согласно которой ветвление цепи связано с захватом дырок ( $h$ ) на катионную вакансию ( $V_c^-$ ) и последующей реконструкцией центра ( $V_c^-, h$ ), приводящей к размножению дырок. В этом случае значение константы скорости  $\alpha$  определяется выражением

$$\alpha = v\sigma N, \quad (2)$$

где  $v$  — тепловая скорость дырок,  $\sigma$  — сечение захвата дырки на катионную вакансию,  $N$  — концентрация катионных вакансий.

В работах [4, 5] эта модель (далее будем называть ее «модель 1») была модифицирована в «модель 2». Согласно модели 2 активными центрами, ответственными за размножение, являются не катионные вакансии ( $V_c^-$ ), а дивакансии ( $V_c^-, V_a^+$ ), т. е. расположенные рядом катионная ( $V_c^-$ ) и анионная ( $V_a^+$ ) вакансии.

В модели 2 процесс носит двухстадийный характер.

1-я стадия — захват электрона на дивакансию, меняющий ее зарядовое состояние, т. е. переход нейтрального центра с сечением захвата дырки  $\sigma^0$  в отрицательно заряженный центр с сечением  $\sigma^-$  ( $\sigma^- \gg \sigma^0$  [6, 7]).

2-я стадия — захват дырки на дивакансию, захватившую электрон, вероятность которого в связи с условием  $\sigma^- \gg \sigma^0$  значительно (на 2 ÷ 3 порядка) превосходит вероятность захвата на нейтральную дивакансию\*.

В модели 2 скорость цепной реакции лимитируется захватом электронов на дивакансии (перезарядкой) и кинетика процесса описывается теми же выражениями (1), (2). Однако смысл величин, входящих в (2), меняется:  $v$  — тепловая скорость электронов,  $\sigma$  — сечение захвата электрона дивакансией,  $N$  — концентрация дивакансий.

Следует обратить внимание на весьма существенное обстоятельство. В модели 1 значение константы скорости реакции  $\alpha$  определяется захватом дырки на притягивающий центр  $V_c^-$  с сечением  $\sigma^-$ , а в модели 2 — захватом электрона на нейтральный центр ( $V_c^-, V_a^+$ ) с сечением  $\sigma^0$ . Величины  $\sigma^0$  и  $\sigma^-$  характеризуются различными температурными зависимостями [6, 7].

Это обстоятельство открывает возможность выбора между моделями 1 и 2 путем измерения скорости цепной реакции  $\alpha$  при раз-

Работа выполнена при поддержке МНТЦ (грант № 2180).

\* Анализ большой совокупности экспериментальных данных [4, 5] свидетельствует о том, что модель 2 значительно реалистичнее.

личных температурах. Это и явилось задачей данной работы.

### ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Температурная зависимость константы скорости  $\alpha$  в (1) определяется зависимостью величин  $v$  и  $\sigma$  от температуры. Зависимость  $v$  от температуры общеизвестна:

$$v = \sqrt{3kT/m^*}, \quad (3)$$

где  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура,  $m^*$  — эффективная масса электрона (дырки).

Зависимости величины  $\sigma$  от температуры существенно различаются для случаев нейтрального ( $\sigma^0$ ) и заряженного ( $\sigma^-$ ) центров. Для нейтрального центра величина  $\sigma^0$  не зависит от температуры [6, 7].

Гораздо сложнее обстоит дело с температурной зависимостью сечения в случае притягивающего (кулоновского) центра [7]. Здесь принципиальное значение имеет радиус захвата  $R$ , т. е. расстояние, на котором потенциальная энергия кулоновского взаимодействия носителя (электрона, дырки) сравнивается с его кинетической энергией. Зависимость радиуса  $R$  от температуры определяется следующим выражением:

$$R = \text{const} \cdot T^{-1}. \quad (4)$$

Обычно рассматривается два случая [7]: газокинетический, определяемый условием  $l > R$ , где  $l$  — длина свободного пробега носителя заряда, и диффузионный, определяемый условием  $l < R$ .

В газокинетическом случае

$$\sigma_g^- = \pi R^2, \quad (5)$$

в диффузионном

$$\sigma_d^- = \frac{4}{3}\pi Rl. \quad (6)$$

Для газокинетического случая из (4) и (5) получаем

$$\sigma_g^- = \text{const} \cdot T^{-2}. \quad (7)$$

Для диффузионного случая необходимо учесть зависимость  $l$  от температуры. В случае рассеяния на акустических фононах эта зависимость определяется выражением [8]

$$l = \text{const} \cdot T^{-1}. \quad (8)$$

Рассеяние на оптических фононах дает более сложную, но качественно аналогичную зависимость — увеличение  $l$  при уменьшении  $T$  [8]. Из (4), (6), (8) находим

$$\sigma_d^- = \text{const} \cdot T^{-2}. \quad (9)$$

Из (7) и (9) видно, что независимо от соотношения  $l$  и  $R$  в случае кулоновского центра сечение захвата пропорционально  $T^{-2}$ .

Таким образом, для модели 1 (захват на заряженный центр  $\sigma^-$ ) из (2), (7), (9) получаем

$$\alpha_1 = \text{const} \cdot T^{-3/2}. \quad (10)$$

Для модели 2 (захват на нейтральный центр) из (2) и (3) следует

$$\alpha_2 = \text{const} \cdot T^{1/2}. \quad (11)$$

Совершенно различный характер температурных зависимостей константы скорости  $\alpha$  в моделях 1 и 2 (выражения (10) и (11)) открывает возможность экспериментально обоснованного выбора между этими моделями путем измерения величины  $\alpha$  при различных температурах.

Как показано в [3, 9], кинетика цепной реакции взрывного разложения азидов тяжелых металлов определяет кинетику предвзрывной люминесценции и наиболее удобным методом экспериментального измерения величины  $\alpha$  является аппроксимация нарастающего участка предвзрывной люминесценции зависимостью  $I \sim \exp(\alpha t)$  [3, 9]. Именно этот подход и был использован в данной работе.

### МЕТОДИКА И РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследовались нитевидные кристаллы азида серебра с характерными размерами  $0,1 \times 0,05 \times 10$  мм. Образец помещался в азотный криостат. Инициирование осуществлялось импульсом электронного ускорителя (300 кэВ,  $1000 \text{ А/см}^2$ , 5 нс). Свечение регистрировалось фоторегистратором ФР-7 в спектральной области  $1,1 \div 3,5$  эВ. Подробное описание аппаратуры и методики приведено в [3, 9].

Результаты экспериментального измерения кинетики предвзрывной люминесценции для нескольких образцов представлены на рис. 1.

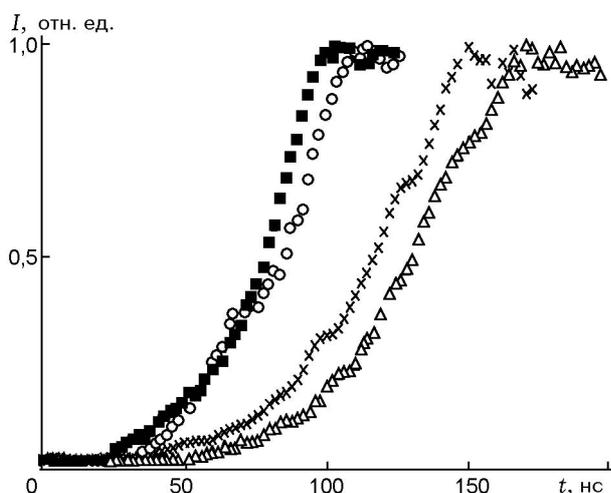


Рис. 1. Кинетика нарастания предвзрывной люминесценции азида серебра при  $T = 300$  К (■, ○) и  $T = 80$  К (△, ×):

данные для остальных образцов (10 образцов при каждой температуре) лежат в промежутке между кривыми, изображенными на рисунке

Примеры аппроксимации нарастающего участка предвзрывной люминесценции зависимостью  $I \sim \exp(\alpha t)$  приведены на рис. 2.

Результаты определения  $\alpha$  при  $T = 300$  и  $80$  К, осредненные по 10 образцам, составляют  $\alpha_{300} = (5,5 \pm 0,5) \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$ ,  $\alpha_{80} = (2,90 \pm 0,15) \times 10^7 \text{ c}^{-1}$ .

## ОБСУЖДЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Уже качественное рассмотрение результатов рис. 1 позволяет сделать вывод, что скорость реакции взрывного разложения при  $T = 300$  К выше, чем при  $T = 80$  К. Данный вывод подтверждается результатами количественной обработки результатов рис. 2:  $\alpha_{300} > \alpha_{80}$ . Этот результат на качественном уровне согласуется с моделью 2 (выражение (11)) и противоречит модели 1 (выражение (10)).

Более обоснованный вывод можно сделать на основе количественного сопоставления предсказаний модели 2 и экспериментальных результатов. Из (11) следует, что  $\alpha_{300}/\alpha_{80} = 1,94$ , а отношение экспериментальных значений  $\alpha_{300}/\alpha_{80} = 1,9 \pm 0,3$ .

Таким образом, имеет место не только качественное, но и хорошее количественное соответствие экспериментальных результатов предсказаниям модели 2. Следовательно, зависимость константы скорости  $\alpha$  от температуры

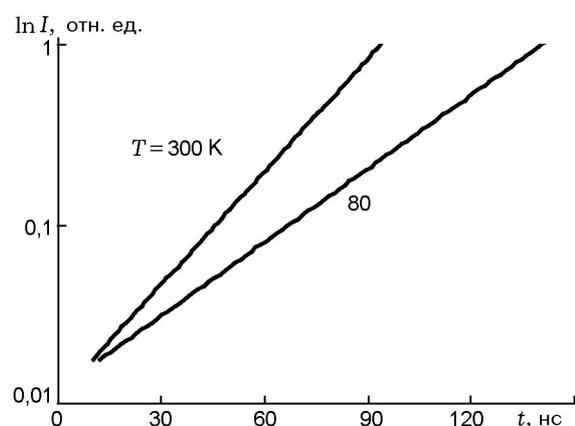


Рис. 2. Примеры аппроксимации нарастания предвзрывной люминесценции зависимостью  $I \sim \exp(\alpha t)$ :

при  $T = 300$  К  $\alpha_{300} = 5,38 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$ , при  $T = 80$  К  $\alpha_{80} = 2,93 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$

может рассматриваться как еще один серьезный довод в пользу модели 2.

Авторы благодарны Э. Д. Алукеру за постоянный интерес к работе и плодотворные дискуссии.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Белокуров Г. М., Кречетов А. Г. Предвзрывная проводимость азида серебра // Письма в ЖЭТФ. 1995. Т. 62, вып. 3. С. 203–204.
2. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Захаров Ю. А. и др. Взрывная люминесценция азидов серебра // Письма в ЖЭТФ. 1997. Т. 66, вып. 2. С. 101–103.
3. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Белокуров Г. М. и др. Взрывное разложение азидов тяжелых металлов // Журн. эксперим. и теор. физики. 1999. Т. 116, № 5(11). С. 1676–1693.
4. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Кречетов А. Г. Дивакансионная модель инициирования азидов тяжелых металлов // Физика горения и взрыва. 2004. Т. 40, № 2. С. 94–99.
5. Aduiev B. P., Aluker E. D., Krechetov A. G. Pre-detonation phenomena in heavy metal azides // Proc. VI Seminar New Trend in Research of Energetic Materials. Pardubice, Czech Republic, 2003. P. 30–35.
6. Stoneham A. M. Theory of Defects in Solids. Oxford: Clarendon Press, 1975. V. 2.
7. Антонов-Романовский В. В. Кинетика фотолуминесценции кристаллофосфоров. М.: Наука, 1966.
8. Шалимова К. В. Физика полупроводников. М.: Энергия, 1976.

9. **Предвзрывные** явления в азидах тяжелых металлов / А. Г. Захаров, Э. Д. Алукер, Б. П. Аду-

ев, Г. М. Белокуров, Ю. А. Кречетов. М.: ЦЭИ Химмаш, 2002.

*Поступила в редакцию 29/III 2004 г.*

---