

В заключение отметим, что объяснение в [10, 12] критичности зависимости степени фазоразделения от диаметра реакционного сосуда [7], связываемое преимущественно экспоненциальной зависимостью вязкости шлага от температуры, представляется менее убедительным, чем приведенное выше. Действительно, изменение вязкости (примерно на порядок в диапазоне 1000 К, от температуры плавления и выше [4]) существенно меньше сказывается на способности капли перемещаться в расплаве, чем изменение ее размера в результате коалесценции. Скорее надо говорить, что процесс фазоразделения резко замедляется (и прекращается) при температуре кристаллизации среды, в которой распределены капли металла, поскольку приближение Стокса (1) перестает работать при появлении и росте твердых образований в расплаве шлага.

ЛИТЕРАТУРА

1. Плинер Ю. Л., Игнатенко Г. Ф. Восстановление окислов металлов алюминием.— М.: Металлургия, 1967.— 248 с.
2. Лякишев И. П., Плинер Ю. Л., Игнатенко Г. Ф. и др. Аллюминотермия.— М.: Металлургия, 1978.— 428 с.
3. Левич В. Г. Физико-химическая гидродинамика.— М.: Физматгиз, 1959.— С. 699.
4. Маурах М. А., Митин Б. С. Жидкие тугоплавкие окислы.— М.: Металлургия, 1979.
5. Белащенко Д. К. Явления переноса в жидких металлах и полупроводниках.— М.: Атомиздат, 1970.— С. 47, 112.
6. Баграмян А. Р., Юхвид В. И., Мержанов А. Г. и др. Закономерности самораспространяющегося высокотемпературного синтеза литого карбида хрома/АН СССР. ОИХФ.— Препр.— М., 1979.— 23 с.
7. Мержанов А. Г., Юхвид В. И., Боровинская И. П. // Докл. АН СССР.— 1980.— 255, № 1.— С. 120.
8. Зельдович Я. Б., Баренблатт Г. И., Либрович В. Б. и др. Математическая теория горения и взрыва.— М.: Наука, 1980.— С. 39.
9. Алдушин А. П., Мержанов А. Г., Хайкин Б. И. // Докл. АН СССР.— 1972.— 204, № 5.— С. 1139.
10. Околович Е. В. Горение гетерогенных систем с плавящимися негазифицирующими компонентами/АН СССР. ОИХФ: Канд. дис.— 1982.— 128 с.
11. Фигуровский И. А. Седиментометрический анализ.— М.: Госхимиздат, 1954.
12. Юхвид В. И. Закономерности фазоразделения в металлотермических процессах // Изв. АН СССР. Металлы.— 1980.— № 6.— С. 61—64.
13. Булаев А. М., Стенанов Б. В. Взаимодействие высокотемпературного двухфазного расплава с металлической подложкой // АН СССР. ОИХФ.— Препр.— М., 1987.— 38 с.

п. Черноголовка

Поступила в редакцию 24/IX 1991

УДК 541.15 : 662.413 : 662.415.3

С. М. Рябых, В. С. Долганов

КРИТЕРИИ ВОЗБУЖДЕНИЯ ВЗРЫВНОГО РАЗЛОЖЕНИЯ АЗИДА СЕРЕБРА ИМПУЛЬСОМ ИЗЛУЧЕНИЯ¹

Методом скоростной оптической спектроскопии с временным разрешением проведено изучение процесса взрывного разложения азидов серебра в поле импульсного электронного излучения. Определены критерии возбуждения взрывного разложения, показано, что в случае «коротких» импульсов критическим параметром является интегральная энергия возбуждающего импульса, тогда как при использовании «длинных» импульсов — плотность потока энергии импульса.

При воспламенении взрывчатых веществ излучением высокой интенсивности (лазерные импульсы, импульсы быстрых электронов) одна из проблем — установление критических параметров излучения, инициирующего взрыв. При инициировании азидов свинца и серебра с помощью лазера установлено, что для импульсов длительностью $\tau \approx 10^{-8}$ и $\approx 10^{-3}$ с интегральная энергия возбуждающего импульса $W_{кр} \approx 0,1$ и ≈ 2 ÷

¹ Публикуется в порядке дискуссии.

Таблица 1

Иницирование прессованных таблеток импульсом электронов

W , Дж/см ²	τ , нс	$I \cdot 10^{-6}$, Дж/(см ² ·с)	N
0,064	15	4,3	— — — — —
0,083	17	4,9	— — 7 — —
0,096	17	5,6	— 2 — 9 —
0,13	25	5,2	1, 1, 1, 1, 1

Примечание. N — номер импульса излучения, приводящего к взрыву. В экспериментах использовалось пять таблеток.

Таблица 2

Иницирование кристаллов AgN_3 импульсом электронов

T , К	W , Дж/см ²	δ , мм	N
300	0,035	0,75	2
	0,053	0,62	2
	0,053	0,21	1
	0,063	0,2; 2,27	1
	0,018	0,4	8
90	0,035	0,85	3
	0,041	0,6; 0,75	1; 2

Примечание. δ — толщина кристалла.

$\div 4$ Дж/см² соответственно [1, 2]. Из сопоставления этих данных неясно, что является критичным — $W_{кр}$ или плотность потока энергии импульса $I_{кр} = W_{кр}/\tau$, которая в случае короткого импульса составляет 10^7 и для длинных — $(2 \div 4) \cdot 10^3$ Дж/(см²·с). В данной работе исследуется эта проблема.

Объектом изучения выбраны прессованные таблетки и кристаллы типичного иницирующего ВВ — AgN_3 . Кристаллы выращивались из насыщенного раствора AgN_3 в NH_4OH путем медленного испарения растворителя при комнатной температуре. Выращенные кристаллы имели форму игл размером $\sim 5 \times 1 \times 1$ мм. Таблетки диаметром 8 мм прессовались при давлении 3 т/см².

Источником излучения служил импульсный ускоритель электронов с регулируемой длительностью импульса и током пучка. Параметры быстрых электронов: средняя энергия электронов 0,22 МэВ, $\tau_{имп} = 5 \div 25$ пс, $I_{кр} \leq 1$ Дж/см². Дозиметрия излучения выполнялась абсолютным калориметрическим [3] и химическим методами с использованием в качестве дозиметра твердого KNO_3 [4]. Применение алюминиевых фильтров разной толщины показало, что электронное излучение эквивалентно монохроматическому γ -излучению с энергией около 3 кэВ и коэффициентом поглощения для AgN_3 $\mu = 320$ см⁻¹.

Время задержки взрыва определялось спектрально-кинетическим методом [5] как интервал между окончанием импульса и началом возрастания оптической плотности образца ввиду начавшегося химического разложения.

Импульсы подавались последовательно, регистрировался импульс взрыва, на певзорвавшиеся таблетки подавалось 50 последовательных импульсов. Из табл. 1 видно, что вероятность иницирования взрыва для импульса с $W_1 = 0,13$ Дж/см² и $I_1 = 5,2 \cdot 10^6$ Дж/(см²·с) гораздо выше, чем в случае $W_2 = 0,096$ Дж/см², $I_2 = 5,64 \cdot 10^6$ Дж/(см²·с). При этом $W_1 > W_2$, а $I_2 > I_1$. Отсюда вытекает, что для импульсов длительностью порядка 10^{-8} с критичным является не I , а W . Этот вывод кажется неожиданным, так как иницирование взрыва явно связано со сверхвысокой плотностью возбуждения электронной подсистемы азидов, следовательно, с интенсивностью облучения.

Для выяснения природы процесса иницирования взрыва кристаллы AgN_3 воспламеняли и определяли время задержки взрыва t при температурах $T = 90 \div 385$ К (табл. 2, 3). С понижением температуры от 300 до 90 К вероятность иницирования взрыва существенно не меняется, а время задержки взрыва несколько возрастает.

Приведенные данные заставляют для данного случая пересмотреть традиционные объяснения иницирования взрыва излучением за счет реализации теплового механизма. Среднее повышение температуры в адиабатическом приближении рассчитывается по формуле

$$\Delta T_{ср} = D_{ср}/c = W/Lc, \quad (1)$$

где $D_{\text{ср}}$ — средняя поглощенная доза в слое L , равном длине пробега быстрых электронов; c — теплоемкость. По эмпирической формуле [6]

$$L = 0,412E(1,265 - 0,0954 \lg E) \quad (2)$$

находим для $E \approx 0,3$ МэВ $L \approx 0,06$ г/см². Удельная теплоемкость AgN_3 равна 0,117 кал/(г·К) [7]. Расчет по (4) дает для приведенных в табл. 1 и 2 значений средний разогрев в слое L не более 30 К. Максимальное повышение температуры в точке максимальной дозы в поле доз составляет около 110 К.

Таким образом, макро- и микрозаогрев не могут обеспечить требуемую для взрыва AgN_3 температуру вспышки 520 К [8], тем более при $T = 90$ К. Нельзя в данном случае применить и модифицированный тепловой механизм, предложенный для лазерного инициирования, согласно которому взрывчатое вещество поджигается сильно поглощающим свет включением (частицы сажи, коллоидный металл) [2], поскольку коэффициент поглощения электронного излучения этими включениями меньше, чем у AgN_3 , а значение μ металлического серебра превышает соответствующее для AgN_3 не более чем в 2 раза.

Имеется еще одно противоречие для теплового механизма. Температурная зависимость времени задержки вспышки при термическом инициировании AgN_3 дает прямую линию в координатах $\ln t - 1/T$ [8]. Экстраполяция этой зависимости в область наблюдаемых времен задержки взрыва 200—600 нс дает нереальную величину ~ 2300 К.

Приведенные данные заставляют предполагать, что процесс инициирования взрыва AgN_3 импульсом быстрых электронов нетермический. Видимо, очаг инициирования — это область с высоким уровнем возбуждения электронной подсистемы и практически не возбужденной атомной подсистемой, т. е. аналог электронно-дырочной капли. В AgN_3 , где энергия экситона составляет 0,35 эВ [7], а радиус 7 Å [9], запасенная энергия в такой капле близка к избыточной энергии «горячей точки», а температура $T_{\text{кр}}$, выше которой капля не может существовать, оцененная из выражения $kT_{\text{кр}} \approx 0,1E_{\text{ex}}$ [10], составляет 393 К, т. е. выше температур в описываемых экспериментах. Таким образом, капля может образовываться и существовать и при превышении ею некоторого критического размера становиться очагом инициирования.

Рассмотрим кинетику роста единичной электронно-дырочной капли. Пусть в ней содержится n экситонов, ее сечение равно S , а константа распада равна a . Тогда

$$\frac{dn}{dt} = vSc - an, \quad (3)$$

где c — концентрация свободных электронов и дырок; v — скорость их миграции.

Возможны две крайние ситуации: 1) формирование капли, когда задана начальная концентрация свободных электронов и дырок $c_0 = GW/L$ (G — выход генерации излучения электронно-дырочных пар, далее убывающая во времени по экспоненциальному закону $c = c_0 e^{-t/t_1}$, t_1 — время жизни свободных электронов и дырок), 2) формирование капли в условиях стационарной концентрации электронов и дырок $c = G_0 t_1$.

В первом случае решение уравнения (3) имеет вид

$$n_1 = \frac{vSGW}{(a - 1/t_1)L} (e^{-t/t_1} - e^{-at}), \quad (4)$$

т. е. n_1 меняется во времени, проходя через максимум. Для второго варианта имеем стационарное значение

$$n_2 = vSGt_1/aL. \quad (5)$$

Таблица 3
Время задержки взрыва кристаллов AgN_3 при инициировании импульсом электронов

T , К	W , Дж/см ²	t , нс
90	0,21	320
100	0,125	310
120	0,14	290
210	0,11	200
295	0,153	160
383	0,150	180

Условия превращения капли в очаг инициирования — превышение $n_{1\max}$ и n_2 некоторого критического значения $n_{кр}$. Из выражения (4) видно, что критичным в этих условиях является интегральная энергия импульса W , а для выражения (5) — плотность потока энергии I .

Первый случай близок к ситуации возбуждения взрыва «коротким» импульсом, длительность которого τ много меньше времени жизни электронов и дырок t_1 , в то время как второй моделирует возбуждение взрыва «длинным» импульсом, когда ситуация противоположна: $t_1 \ll \tau$.

Для AgN_3 время жизни неравновесных носителей, определенное путем изучения релаксации фотопроводимости, составляет $\sim 10^{-6}$ с [11]. Следовательно, при использованных в экспериментах длительностях импульса быстрых электронов реализуется вариант, когда $t_1 \gg \tau$, и критерием для инициирующего импульса является W , а не I .

Помимо выяснения критерия возбуждения взрыва предложенная модель вполне объясняет и температурные зависимости W и времени задержки взрыва. В выражениях (4) и (5) от температуры зависят скорость миграции свободных электронов и дырок и константа распада капли. При этом ν , как известно, зависимость $\nu(T)$ имеет вид $\nu = (2kT/m^*)^{1/2}$, а константа a имеет энергию активации порядка энергии диссоциации экситонов, т. е. в данном случае $\sim 0,1$ эВ.

Таким образом, обе константы, во-первых, достаточно слабо зависят от температуры и, во-вторых, в формулах (4) и (5), находясь в числителе и знаменателе, обеспечивают своеобразный компенсационный эффект. Во всяком случае предложенная модель и вытекающие из нее критерияльные условия вполне объясняют приведенные в данной работе экспериментальные данные.

ЛИТЕРАТУРА

1. Карабанов Ю. Н., Боболев В. К. Зажигание инициирующих взрывчатых веществ импульсом лазерного излучения // Докл. АН СССР.— 1981.— 256, № 5.— С. 1152.
2. Александров Е. И., Вознюк А. Г. Иницирование азида свинца лазерным излучением // ФГВ.— 1978.— 14, № 4.— С. 86.
3. Шпак В. Г. Измерение электрических характеристик наносекундного электронного пучка, выведенного в воздух через фольгу // ПТЭ.— 1980.— № 3.— С. 165.
4. Кецкало В. М., Сериков Л. В., Юрмазова Т. А. О возможности применения поликристаллического KNO_3 в качестве твердотельного дозиметра // Тез. докл. VII Всесоюз. совещ. по дозиметрии интенсивных потоков ионизирующих излучений.— Обнинск, 1983.
5. Ланцман Л. С., Долганов В. С., Семенов С. В. и др. Установка для спектроскопических измерений в импульсном радиолизе // Современные методы физико-химических исследований твердофазных реакций: Сб. науч. тр.— Кемерово, 1984.— С. 4.
6. Воробьев А. А., Кононов А. А. Прохождение электронов через вещество.— Томск: Изд-во ТГУ, 1966.— С. 146.
7. Боуден Ф., Иоффе А. Быстрые реакции в твердых телах.— М.: ИЛ, 1962.
8. Багал Л. И. Химия и технология инициирующих взрывчатых веществ.— М.: Машиностроение, 1975.
9. Захаров Ю. А., Колесников Л. В., Черкашин А. Е. Энергетика и природа электрошных зон азида серебра // Неорганические материалы.— 1978.— 14, № 7.— С. 1283.
10. Райс Т., Хенсел Дж., Филлипе Т. и др. Электронно-дырочная жидкость в полупроводниках.— М.: Мир, 1980.
11. Сидорин Ю. Ю., Диамант Г. М., Олейников Ю. Э. Некоторые электрофизические свойства азиды серебра // Тез. докл. Всесоюз. конф. «Физ. процессы в светочувствительных системах на основе солей серебра».— Кемерово, 1986.

г. Кемерово

Поступила в редакцию 8/1 1991,
после доработки — 14/VIII 1991