

сужению потока частиц на выходе из факела независимо от способа его стабилизации. Так, при стабилизации факела в центре сопла увеличение  $u_\infty$  от 0 до 1,5 приводит к сужению потока частиц в 1,34 раза, а при поджигании горячим кольцом — в 1,24 раза. Полученные результаты имеют ясный кинематический смысл. Например, в центральной области факела, стабилизированного горячей точкой в центре сопла,  $\rho \approx \text{const}$ ,  $\kappa \ll 1$ , и в соответствии с уравнением неразрывности  $2 \frac{\partial v}{\partial y} = - \frac{\partial u}{\partial x}$  (в этой области  $v \sim y$ ;  $\frac{\partial v}{\partial y} = \frac{v}{y}$ ). При  $u_\infty < 1$  рост скорости спутного потока ведет к уменьшению  $\left| \frac{\partial u}{\partial x} \right|$  ( $\frac{\partial u}{\partial x} < 0$ ) и, следовательно, к падению поперечной скорости  $v$  и замедлению расширения центральной области факела, в которой сосредоточены частицы  $\text{SiO}_2$  (при  $u_\infty > 1$  расширение этой области еще более замедляется).

Поступила в редакцию 11/VII 1983,  
после доработки — 27/XII 1983

#### ЛИТЕРАТУРА

1. П. К. Шульц, ТИИЭР, 1980, 68, 10.
2. П. А. Теснер. Образование углерода из углеводородов газовой фазы. М.: Химия, 1972.
3. К. Е. Джаугаштин, А. Л. Ярин. ФГВ, 1978, 14, 3.
4. D. R. Powers. J. Amer. Ceram. Soc., 1978, 61, 7—8.

### ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ДЛИТЕЛЬНОСТИ ВОЗБУЖДАЮЩЕГО ИМПУЛЬСА НА ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ АЗИДА СВИНЦА К ДЕЙСТВИЮ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Е. И. Александров, В. П. Ципилев  
(Томск)

Наличие характерных внутренних масштабов длительности протекания любого физического явления придает особое значение исследованиям влияния временных факторов на изучаемый процесс. Неизбежно отражаясь на ходе получаемых зависимостей, это обстоятельство способствует как идентификации, так и более глубокому пониманию механизма явления.

Предлагаемая работа предпринята с целью конкретизации модельных представлений об иницировании ВВ лазерным излучением как результате возникновения тепловой неустойчивости в окрестности поглощающей микронеоднородности субмикронных размеров  $R_0$  [1]. На основании экспериментального изучения зависимости пороговой энергии иницирования азидов свинца от длительности возбуждающего импульса оценены основные характеристики очагов разогрева.

Исследовалось влияние длительности лазерного воздействия  $\tau_n$  в диапазоне  $(7,5 \div 700) \cdot 10^{-9}$  с, перекрывающем ожидаемые характерные времена тепловой релаксации  $t_x = R_0^2 / \alpha_2 \approx 10^{-7}$  с, на порог иницирования пресованного азидов свинца. За исключением изменений, внесенных в конструкцию задающего генератора и обеспечивающих возможность варьирования длительности излучения в указанных пределах, схема эксперимента повторяла приведенную в [2]. Управление длительностью генерации достигалось за счет наложения дополнительного короткого ( $5 \cdot 10^{-8}$  с) токового импульса через лампы накачки по достижении в активном элементе близкой к пороговой инверсной населенности

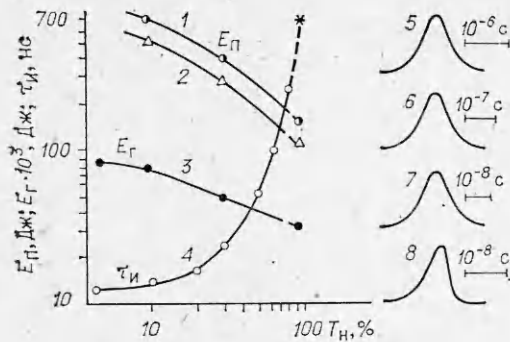


Рис. 1. Оптимальные генерационные характеристики задающего лазера в зависимости от начального пропускания фототропного затвора  $T_n$ .

1, 2 — пороговые уровни  $E_{п}$  обыкновенного и комбинированного разрядов соответственно; 3 — энергия импульса генерации  $E_{г}$ ; 4 — длительность импульса генерации  $\tau_{и}$ ; 5—7 — осциллограммы импульса генерации при различных длительностях  $\tau_{и}$ ; 8 — то же, после обрезания заднего фронта; \* — без фототропного затвора.

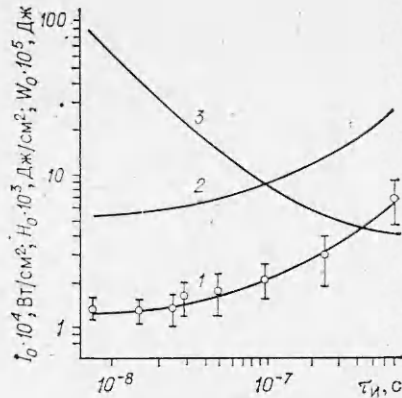


Рис. 2. Зависимость критических значений энергии иницирования  $W_0$ , плотности энергии  $H_0$  и плотности потока  $I_0$  от длительности лазерного импульса.

1 — измеренные значения  $W_0$  для пучка размерами  $2r_0 = 2 \cdot 10^{-2}$  см; 2 — пересчет экспериментальных данных на плотность энергии  $H_0$  для условий освещения широким пучком согласно [2—4]; 3 — то же, для  $I_0$ .

и соответствующего подбора начальной оптической плотности фототропного затвора.

На рис. 1 представлены результаты оптимизации режима работы данного генератора. Для получения импульсов излучения короче  $12,5 \cdot 10^{-8}$  с использовалось обрезание заднего фронта плазмы управляемого электрического разряда. Временные формы световых импульсов различной длительности показаны на рис. 1, 5—8. Исследовали прессованные образцы азида свинца, подготовленные аналогично [1, 2]. Воздействие лазерного излучения на поверхность образца осуществлялось в световом пятне диаметром  $2 \cdot 10^{-2}$  см, сформированном проекционным способом [2] из центральной части гауссова пучка по уровню  $\geq 0,9$ . Результаты исследований показаны на рис. 2, 1. Экспериментальные точки соответствуют 50-процентной вероятности подрыва  $P(W)$ , а величины приведенных интервалов — значениям  $\frac{\partial W}{\partial P(W)}$  в этих точках [2].

Учитывая наличие размерного эффекта при иницировании ВВ лазерным излучением и принимая во внимание результаты [2—4], на рис. 2, 2 представлен пересчет полученной в условиях пространственно ограниченного светового луча экспериментальной кривой 1 на случай бесконечно широкого пучка. Коэффициент связи в соответствии с экстраполяцией результатов [2—4] принят независимым от длительности генерации и равным 7,15.

Приведенные на рис. 2 данные качественно подтверждают ожидаемые из модельных представлений [1—4] характерные изменения в ходе временных зависимостей при  $\tau_n \sim 10^{-7}$  с. В частности, если при  $\tau_n \leq 3 \cdot 10^{-8}$  с пороговая плотность энергии практически постоянна, то при  $\tau_n \geq 3 \cdot 10^{-7}$  с с ростом длительности воздействия к насыщению стремится пороговая плотность мощности светового потока, что в рамках тепловой модели следует трактовать как влияние релаксационных процессов.

Исходя из принятых предпосылок, рассмотрим задачу о зажигании ВВ разогревающимся в течение конечного времени  $t_0$  сферическим инертным включением радиуса  $R_0$ , воспользовавшись общепринятым приближением: ВВ безгранично и способно к экзотермическим превращениям в конденсированной фазе, все теплофизические характеристики ВВ и частицы в процессе нагрева постоянны, выгоранием пренебрегается.

При равномерно плотном источнике тепла по объему частицы задача сводится к решению системы дифференциальных уравнений

$$c_1 \rho_1 \frac{\partial T_1}{\partial t} = \lambda_1 \left( \frac{\partial^2 T_1}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial T_1}{\partial r} \right) + \frac{3kq(t)}{4R_0}, \quad 0 < r < R_0, \quad (1)$$

$$c_2 \rho_2 \frac{\partial T_2}{\partial r} = \lambda_2 \left( \frac{\partial^2 T_2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial T_2}{\partial r} \right) + Q k_0 e^{-E/RT_2}, \quad R_0 < r < \infty, \quad (2)$$

$$T = T(r, t)$$

с начальными и граничными условиями:

$$T_1(r, 0) = T_2(r, 0) = T_n, \quad \frac{\partial T(0, t)}{\partial r} = \frac{\partial T(\infty, t)}{\partial r},$$

$$T_1(R_0, t) = T_2(R_0, t), \quad K_\lambda \frac{\partial T_1(R_0, t)}{\partial r} = \frac{\partial T_2(R_0, t)}{\partial r},$$

где индекс 1 относится к частице, 2 — к ВВ;  $T$  — температура;  $t$  и  $r$  — текущее время и радиус;  $\lambda$  — теплопроводность;  $K_\lambda = \lambda_1/\lambda_2$ ;  $\alpha = \lambda/c\rho$ ;  $Q$ ,  $k_0$ ,  $E$  — тепловой эффект, предэкспонент и энергия активации реакции;  $R$  — универсальная газовая постоянная;  $q(t)$  — световой поток на поверхности ВВ;  $k = (\sigma/\pi R_0^2) \cdot F_0$ ;  $F_0$  — фактор, учитывающий световой режим в объеме ВВ;  $\sigma(R_0, \lambda_r, n)$  — сечение поглощения на длине волн лазерной генерации  $\lambda_r$ ;  $n$  — показатель преломления вещества ВВ. Примем также, что

$$q(t) = \begin{cases} q_0 & \text{при } t \leq t_0, \\ 0 & \text{при } t > t_0. \end{cases} \quad (3)$$

Для случая  $t_0 \gg R_0^2/\alpha_1$  уравнение (1) может быть заменено граничным условием

$$c_1 \rho_1 \frac{\partial T_1}{\partial t} = 3\lambda_2 \frac{\partial T_2}{\partial r} + \frac{3}{4} \frac{kq(t)}{R_0}, \quad (1a)$$

$$r = R_0, \quad T_1(t) = T_2(t).$$

Решение системы (1), (2) для случая азид свинца ( $Q = 397$  кал/г =  $= 1627$  кал/см<sup>3</sup>;  $k_0 = 10^{13}$  с<sup>-1</sup>;  $E = 3,63 \cdot 10^4$  кал/моль [5–7]), зажигаемого свинцовым включением ( $c_1 \rho_1 = 0,342$  кал/см<sup>3</sup>), проводилось численно для радиусов включений  $R_0 = 10^{-6} \div 10^{-4}$  см и времен нагрева  $t_0 = 10^{-9} \div 10^{-4}$  с. Характеристики процесса зажигания находились в соответствии с расчетными значениями нестационарных полей температур.

При анализе результатов счета обращают на себя внимание следующие характерные особенности.

1. Если релаксационная длина прогрева ВВ за время действия инициирующего импульса заметно превышает размеры включения [ $l = \sqrt{\alpha_2 t_0} \geq (2-3)R_0$ ], то задержкой вспышки после окончания внешнего нагрева можно пренебречь по сравнению с величиной  $t_0$  даже при ничтожно малых превышениях световых потоков над пороговыми (рис. 3, б, з). Это обстоятельство позволяет свести решение системы (1), (2) с источником тепла, действующим в течение конечного времени, к более простой задаче о зажигании постоянным световым потоком, т. е. вместо (3) выбрать условие  $q(t) = q_0$  при  $t_0 > 0$ .

2. Если релаксационная длина прогрева ВВ за время действия инициирующего импульса заметно меньше размеров включения  $R_0 \geq (2-3)\sqrt{\alpha_2 t_0}$ , то после окончания нагрева вблизи порога инициирования наблюдается значительный индукционный период, который может много превышать значение  $t_0$  (см. рис. 3, а). При этом температура включения перед вспышкой заметно снижается за счет растекания тепла, но по мере увеличения мощности химического источника начинает ускоренно повышаться, причем максимум температуры отрывается от поверхности включения и несколько сдвинут в глубь ВВ (рис. 4).

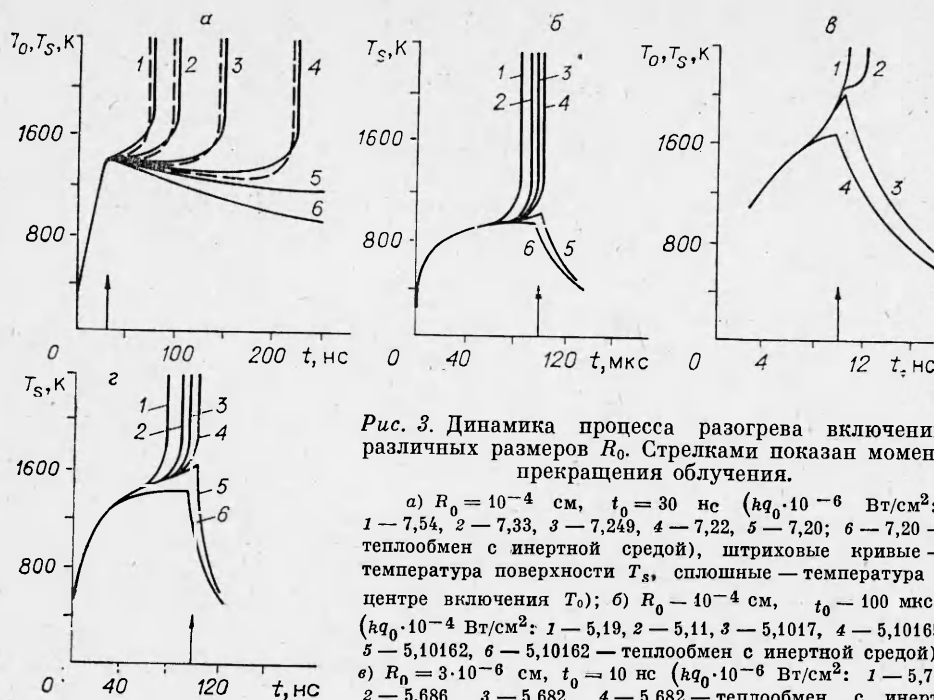


Рис. 3. Динамика процесса разогрева включений различных размеров  $R_0$ . Стрелками показан момент прекращения облучения.

а)  $R_0 = 10^{-4}$  см,  $t_0 = 30$  нс ( $kq_0 \cdot 10^{-6}$  Вт/см<sup>2</sup>: 1 — 7,54, 2 — 7,33, 3 — 7,249, 4 — 7,22, 5 — 7,20; 6 — 7,20 — теплообмен с инертной средой), штриховые кривые — температура поверхности  $T_s$ , сплошные — температура в центре включения  $T_0$ ); б)  $R_0 = 10^{-4}$  см,  $t_0 = 100$  мкс ( $kq_0 \cdot 10^{-4}$  Вт/см<sup>2</sup>: 1 — 5,19, 2 — 5,11, 3 — 5,1017, 4 — 5,10165, 5 — 5,10162, 6 — 5,10162 — теплообмен с инертной средой); в)  $R_0 = 3 \cdot 10^{-6}$  см,  $t_0 = 10$  нс ( $kq_0 \cdot 10^{-6}$  Вт/см<sup>2</sup>: 1 — 5,74, 2 — 5,686, 3 — 5,682, 4 — 5,682 — теплообмен с инертной средой); г)  $R_0 = 3 \cdot 10^{-6}$  см,  $t_0 = 100$  нс ( $kq_0 \cdot 10^{-6}$  Вт/см<sup>2</sup>: 1 — 3,243, 2 — 3,205, 3 — 3,191, 4 — 3,184, 5 — 3,184, 6 — теплообмен с инертной средой).

В этом случае при расчете пороговых характеристик зажигания можно воспользоваться известным упрощающим приемом разделения задачи по времени на две стадии — инертную, в течение которой действует только световой источник, и стадию саморазогрева после окончания действия излучения. Условие (3) запишется в виде

$$\begin{aligned} q(t) &= q_0, & Q &= 0 & \text{при } t \leq t_0, \\ q(t) &= 0, & Q &= Q(T) & \text{при } t > t_0. \end{aligned}$$

На рис. 5 представлены результаты расчета пороговых значений величины  $kq_0 t_0$  для частиц различных размеров в зависимости от  $t_0$ . Приведенные графики показывают, что для любого фиксированного размера включения  $R_0$  укорочение длительности возбуждающего импульса влечет снижение порогового значения  $kq_0 t_0$ , которое стремится к определенному пределу при  $t_0 \rightarrow 0$ , тем меньшему, чем меньше  $R_0$ . Вместе с тем взаимное пересечение любой пары кривых  $kq_0 t_0 = f(t_0)$  приводит к существованию в каждой точке  $t_0$  минимума величины  $kq_0 t_0$  в зависимости от радиуса включения.

Принимая во внимание характер отклика ВВ на воздействие возбуждающего импульса, основанного на выборке при каждом фиксированном значении  $t_0$  наиболее «опасных» размеров частиц из всего имеющегося в наличии в объеме ВВ их спектра, эксперимент должен соответствовать огибающей семейства рассматриваемых кривых.

Интересно, что для бесконечно широкого спектра включений огибающая в логарифмических координатах вырождается в отрезок прямой АВ, описываемый выражением вида  $H$  (Дж/см<sup>2</sup>) =  $5t_0^{2/5}$  ( $t_0$  взято в секундах). Сопоставление расчетных и экспериментальных результатов свидетельствует об обрезании спектра частиц по верхнему размеру, равному, исходя из наклона экспериментальной кривой вблизи ее правой крайней точки,  $t_0 = 7 \cdot 10^{-7}$  с,  $R_0 \approx (1,5 \div 2) \cdot 10^{-5}$  см. Это соответствует существующим взглядам на механизм образования поглощающих центров в прозрачных многокомпонентных кристаллах из-за неидеальности

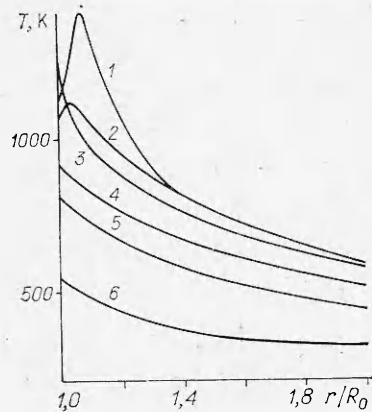


Рис. 4. Распределение температуры в объеме ВВ в различные моменты времени.  $R_0 = 10^{-4}$  см,  $t_0 = 100$  мкс ( $t$ , мкс: 102,2 (1), 102 (2), 400 (3), 60 (4), 40 (5), 20 (6)).

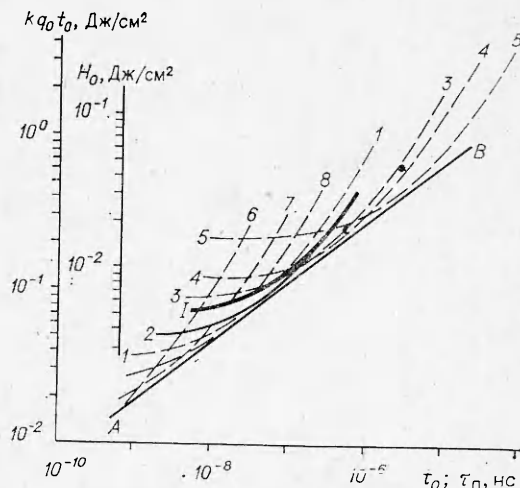


Рис. 5. Расчетные зависимости пороговых значений величины  $kq_0 t_0$  от длительности воздействия  $t_0$ ;  $R_0 = 10^{-5}$  см (1),  $1,5 \cdot 10^{-5}$  (2),  $3 \cdot 10^{-5}$  (3),  $5 \cdot 10^{-5}$  (4),  $10^{-4}$  (5),  $10^{-6}$  (6),  $3 \cdot 10^{-6}$  (7) и  $5 \cdot 10^{-6}$  (8) соответственно.

1 — экспериментальная зависимость пороговой плотности энергии  $H_0$  от длительности импульса лазерной генерации  $\tau_n$  (см. рис. 3, 1).

стехиометрического состава [8, 9], в том числе металлических включений в азидах тяжелых металлов [10, 11]. Характерный размер таких центров обычно заключен в пределах  $10^{-6} \div 10^{-4}$  см и зависит от предыстории кристалла. При этом важно, что функция распределения  $f(R)$  по размерам имеет универсальный вид и обращается в нуль при  $R \approx 1,25 R_m$ , где  $R_m$  — размер частиц, при котором  $f(R)$  максимальна.

На рис. 5 показано наложение экспериментальной кривой на расчетные данные согласно указанной выше привязке. Вызывает интерес значительное превышение расчетного значения величины  $kq_0 t_0$  над критической плотностью энергии при инициировании бесконечно широким пучком (при  $t_0 = 7 \cdot 10^{-7}$  с  $kq_0 t_0 / H_0 \approx 13,7$ ). Величина  $kq_0 t_0 / H_0$  должна определяться в основном изменением условий освещенности поглощающего центра внутри ВВ по сравнению с освещенностью, создаваемой лазерным пучком на поверхности ВВ. В принципе можно указать на два фактора, способных в совокупности сформировать требуемое превышение.

Напомним, что азид свинца представляет с оптической точки зрения типичную диффузно рассеивающую среду с плотной упаковкой рассеивателей. При направленном облучении поверхности с интенсивностью  $I_0$  в объеме среды в результате многократного рассеяния света реализуется режим всестороннего освещения [12, 13] с относительным увеличением пространственной освещенности  $F_0$ . Исходя из общих физических представлений, можно показать, что предельное значение  $F_0$  превышения пространственной освещенности  $E_0$  в объеме диффузно рассеивающей среды над ее поверхностной освещенностью  $E$  ограничено условием вида  $F_0 = E_0 / E = 16n^3 / (n + 1)^2$ . Для азид свинца, имеющего, согласно нашим данным, усредненный по всем направлениям ориентации кристалла показатель преломления  $n = 1,85$ , теоретическая величина  $F_0 = 12,45$ , что близко к наблюдаемому соотношению  $kq_0 t_0 / H_0 = 13,7$ .

В пределах характерных размеров  $l_0 \leq \lambda_r / n \approx 5 \cdot 10^{-5}$  см, сравнимых с размерами поглощающих центров, возможно превышение локальной освещенности над средним уровнем за счет флуктуаций светового поля [14], возникающих в результате интерференции многократно рассеянных лучей, что также должно оказать влияние на пороговые плотности энергии.

В принципе, поскольку  $F_0$  не зависит от  $t_0$ , при анализе хода экспериментальной кривой  $H_0(t_0)$  и ее производной возможно выделение ин-

формации как о спектре поглощающих частиц, так и о виде зависимости  $\sigma/\pi R_0^2$ . Однако неизбежно возникает вопрос о мере адекватности используемой модели. В рассматриваемом случае ход экспериментальной кривой, а именно ее отрыв от АВ при  $t_0 \rightarrow 0$ , нельзя непротиворечиво объяснить, не выходя за рамки принятого приближения, даже сделав физически маловероятное допущение о монодисперсности включений или достаточно резком падении их коэффициента поглощения  $\sigma/\pi R_0^2$  при  $R_0 \rightarrow 0$ , поскольку при  $t_0 \leq 10^{-7}$  с она идет значительно выше расчетных для  $R_0 = (1,5 \div 2) \cdot 10^{-5}$  см. Ясно, что модель требует уточнений и, на наш взгляд, в первую очередь необходим учет выгорания. Это следует из того, что температура очагов разогрева, как показывает проведенный расчет (см. рис. 3, в, г), исключительно высока ( $T \geq 1500$  К) и выгорание может значительно ухудшить условия зажигания [15—16], причем тем сильнее, чем выше разогрев, т. е. чем короче действие возбуждающего импульса.

Поступила в редакцию 13/VI 1983

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Е. И. Александров, А. Г. Вознюк. ФГВ, 1978, 14, 4, 86.
2. Е. И. Александров, В. П. Ципилев. ФГВ, 1981, 17, 5, 77.
3. Е. И. Александров, В. П. Ципилев. ФГВ, 1982, 18, 2, 100.
4. Е. И. Александров, В. П. Ципилев. ФГВ, 1982, 18, 6, 60.
5. Ф. Боуден, А. Иоффе. Быстрые реакции в твердых веществах. М.: ИЛ, 1962.
6. С. Е. Weir, S. Block, G. J. Piermarini. Chem. Phys., 1970, 53, 11, 4265.
7. P. V. Phung. Chem. Phys., 1970, 53, 7, 2906.
8. И. М. Лифшиц, В. В. Слезов. ЖЭТФ, 1968, 35, 4, 479.
9. Ан. В. Виноградов, М. И. Трибельский. Письма в ЖТФ, 1979, 5, 10, 595.
10. М. А. Кук. Наука о промышленных ВВ. М.: Недра, 1980.
11. Д. Янг. Кинетика разложения твердых веществ. М.: Мир, 1969.
12. А. П. Иванов. Оптика рассеивающих сред. Минск: Наука и техника, 1969.
13. Г. В. Розенберг. УФН, 1967, 91, 4, 529.
14. A. Eppos. Topics in Applied Optics (Speckles in Optics), 1975, 9, 203.
15. А. И. Грядун и др. ФГВ, 1982, 18, 4, 35.
16. К. Г. Шкадинский. ФГВ, 1971, 7, 3, 332.

### ИССЛЕДОВАНИЕ РЕАКЦИИ ОКИСЛЕНИЯ СЕРОУГЛЕРОДА В ГАЗОВЫХ ПОТОКАХ МЕТОДАМИ ИНФРАКРАСНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

*В. А. Дудкин, В. А. Огуречников, В. Б. Рухин*

*(Москва)*

Процесс окисления сероуглерода интенсивно изучается в последнее время в связи с тем, что образующиеся в ходе химической реакции молекулы окиси углерода имеют большой запас колебательной энергии и могут быть использованы для создания активной среды лазеров [1]. Ранее проведены исследования спектрально неразложенного инфракрасного излучения сероуглеродного пламени [2] и найдены зависимости интенсивностей излучения молекул СО и СО<sub>2</sub> от стехиометрического соотношения между концентрациями окислителя и горючего. В данной работе приводятся результаты спектроскопического исследования излучения пламени в ближней инфракрасной области спектра.

Отметим, что ряд особенностей стационарного горения сероуглерода уже изучался спектроскопическими методами. Например, на основе изучения спектров излучения СО в обертоном (2,3—2,7 мкм) проведены оценки запаса колебательной энергии СО [3], относительной скорости образования молекул СО на различных колебательных уровнях [4], изучалось влияние третьих компонентов смеси на распределение интенсивности в спектрах [5, 6]. При этом лучшее спектральное разрешение полос от отдельных колебательных переходов СО в обертоном по сравнению