

На правах рукописи

Кречетов Александр Георгиевич

**РАННИЕ СТАДИИ ВЗРЫВНОГО РАЗЛОЖЕНИЯ
АЗИДОВ ТЯЖЕЛЫХ МЕТАЛЛОВ
ПРИ ИМПУЛЬСНОМ ИНИЦИИРОВАНИИ**

Специальность 02.00.04 «Физическая химия»

АВТОРЕФЕРАТ

**диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук**

Кемерово 2004

Работа выполнена на кафедре физической химии Кемеровского государственного университета.

Научный консультант: доктор физико-математических наук, профессор,
Алукер Эдуард Давидович

Официальные оппоненты: доктор химических наук, профессор,
Иванов Федор Иванович;
доктор физико-математических наук, профессор,
Непомнящих Александр Иосифович;
доктор физико-математических наук, профессор,
Яковлев Виктор Юрьевич

Ведущая организация: Уральский государственный технический университет (УГТУ-УПИ), г. Екатеринбург.

Защита диссертации состоится 26 марта 2004 г. в 10 часов на заседании совета по защите диссертаций Д212.088.03 в Кемеровском государственном университете (650043, г. Кемерово, 43, ул. Красная, 6).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Кемеровского государственного университета.

Автореферат разослан 24 февраля 2004 г.

Ученый секретарь Совета Д212.088.03

доктор химических наук, профессор



Б.А. Сечкарев

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Изучение процессов размножения и диссипации электронных возбуждений на ранних стадиях взрывного разложения является одним из самых перспективных направлений в исследованиях энергетических материалов.

Понимание механизмов протекания этих процессов имеет важное значение для поиска путей решения проблемы повышения безопасности взрывчатых веществ, включающей предотвращение отказов и несанкционированных взрывов. Для достижения этой цели открывается принципиальная возможность использования хорошо разработанных в физике твердого тела методов воздействия на электронные возбуждения путем контролируемого образования структурных дефектов либо при росте кристаллов, либо за счет внешних воздействий. Однако, применительно к энергетическим материалам, в частности, и к азидам тяжелых металлов (АТМ), эти методы будут сколько-нибудь эффективны только при наличии надежных экспериментальных данных о поведении исследуемых материалов на ранних стадиях реакции взрывного разложения (до начала разрушения образца).

Такие данные могут быть получены путем исследования взрывного разложения в реальном масштабе времени при импульсном инициировании. Методология этих работ основана на хорошо зарекомендовавших себя в радиационной физике и химии твердого тела методах импульсного радиолиза и фотолиза. Перспективность этого подхода для изучения предвзрывных процессов к моменту постановки настоящей работы сомнений не вызывала. Однако ряд принципиально важных положений, касающихся методологии таких исследований, до настоящего времени не был даже сформулирован. Это прежде всего, касается прямых измерений характеристик начальных стадий взрывного процесса, включая процессы, происходящие непосредственно в момент импульсного инициирования.

Вышеизложенное и определяет актуальность диссертационной работы, посвященной разработке методического подхода и экспериментальному исследованию оптических и электрофизических явлений на начальных стадиях взрывного разложения в реальном масштабе времени.

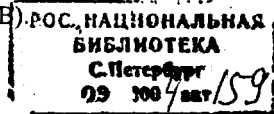
В фундаментальном плане важность этих исследований связана с необходимостью построения экспериментально обоснованной модели импульсного инициирования АТМ.

Прикладной аспект проблемы связан с использованием АТМ как компонента штатных инициирующих взрывчатых веществ (ИВВ).

Цели и задачи работы

Цели исследования определены следующим образом:

1. Установление закономерностей начальных стадий взрывного разложения АТМ в реальном временном масштабе.



2. Построение экспериментально обоснованной модели импульсного инициирования взрывного разложения АТМ.

Для достижения поставленных целей необходимо было решить следующие основные задачи:

1. Разработка методики исследования кинетических характеристик начальных стадий предвзрывных процессов АТМ с временным разрешением 10^{-n} - 10^{-10} с и динамическим диапазоном измерений не менее 2-х порядков.
2. Разработка метода исследования пространственно-временных характеристик предвзрывной люминесценции.
3. Исследование начальных стадий предвзрывных процессов с субнано- и пикосекундным временным разрешением.
4. Поиск и исследование специфических явлений на самой начальной стадии процесса - стадии *зарождения* реакции взрывного разложения.

Научная новизна

- Впервые разработаны методики, позволяющие осуществлять количественные измерения кинетики начальных стадий предвзрывных процессов, а также пространственной локализации предвзрывной люминесценции АТМ.
- Впервые получены прямые экспериментальные данные по кинетике предвзрывной проводимости и люминесценции АТМ на начальных стадиях взрывного разложения, начиная непосредственно с момента инициирования.
- Впервые получены прямые экспериментальные доказательства очагового характера реакции взрывного разложения АТМ на стадии ее зарождения.
- Разработана новая модель инициирования АТМ перезарядкой актуальных реакционных центров, согласующаяся с полученными экспериментальными данными.

Защищаемые положения

На защиту выносятся:

1. Созданные аппаратные комплексы, позволяющие осуществлять измерение следующих параметров предвзрывных процессов:

- * вкрательно-кинетических характеристик начальных стадий, начиная непосредственно с момента инициирования, с временным разрешением 10^{-n} - 10^{-10} с;

- пространственно-временных характеристик предвзрывной люминесценции АТМ с пространственным разрешением 50 мкм при временном разрешении ~ 1 нс.
2. Экспериментальные данные по кинетике предвзрывной проводимости и спектрально-кинетическим характеристикам предвзрывной люминесценции на стадии инициирования и зарождения цепной реакции взрывного разложения и сделанный на основе анализа этих данных вывод о структурно-чувствительном характере этих стадий.
 3. Экспериментальные данные по топографии зарождения и скорости распространения цепной реакции взрывного разложения и вывод об очаговом характере зарождения этой реакции.
 4. Модель импульсного инициирования азидов тяжелых металлов, основывающаяся на представлении реакционных центров как ассоциата катионной и анионной вакансий (дивакансий) и изменении их зарядового состояния в процессе инициирования.

Научная и практическая значимость

Научная значимость работы определяется полученными новыми данными • о предвзрывных стадиях взрывного разложения АТМ, являющихся модельными объектами для широкого класса ИВВ.

Работа в целом формулирует основные положения нового перспективного научного направления: исследование начальных стадий процессов взрывного разложения энергетических материалов в реальном масштабе времени, начиная непосредственно с момента инициирования.

Непосредственная практическая значимость работы определяется двумя аспектами:

1. Разработанными аппаратными комплексами для исследования начальных стадий взрывного разложения энергетических материалов.
2. Возможностью использования полученных данных для целенаправленного управления чувствительностью АТМ.

Личный вклад автора

В диссертации обобщены результаты работ, выполненных лично автором, или совместно с коллегами и учениками - сотрудниками и аспирантами лаборатории физико-химии быстропротекающих процессов Кемеровского государственного университета. В работах, опубликованных в соавторстве, автору принадлежат результаты, сформулированные в выводах и защищаемых положениях диссертации.

Апробация работы

Результаты работы были доложены на следующих конференциях и семинарах: VIII Всесоюзной конференции по взаимодействию оптического излучения

с веществом (Ленинград, 1990); V Всесоюзной и VI Международной конференциях «Радиационные гетерогенные процессы» (Кемерово, 1990 и 1995); IV Международной конференции «Прочность и пластичность материалов в условиях внешних энергетических воздействий» (Новокузнецк, 1995); Уральских семинарах «Сцинтилляционные материалы и их применение» - Scintmat'96 и Scintmat'2000 (Екатеринбург, 1996 и 2000); IX и XII симпозиумах «Химическая физика процессов горения и взрыва» (Черноголовка, 1996 и 2000); 9, 10 и 12 Международных конференциях по радиационной физике и химии неорганических материалов (Томск, 1996, 1999, 2003); Первом Всероссийском симпозиуме по твердотельным детекторам ионизирующих излучений (Екатеринбург, 1997); IV, VI-VII Всероссийских школах-семинарах «Люминесценция и сопутствующие явления» (Иркутск, 1998, 2000, 2001); VIII Международной школе-семинаре по люминесценции и лазерной физике (Иркутск, 2002); Vn и VIII Международных конференциях «Физико-химические процессы в неорганических материалах» (Кемерово, 1998 и 2001); IX Межнациональном совещании «Радиационная физика твердого тела» (Москва, 1999); ИГ Баховской конференция по радиационной химии (Москва, 2000); 12th International Conference «Shock Compression of Condensed Matter» (Atlanta, USA, 2001); V and VI Seminars «New Trends in Research of Energetic Materials» (Pardubice, Czech Republic, 2002 and 2003); Международной научной конференции «Радиационная физика» (Бишкек-Каракол, Кыргызстан, 2003); Международной конференции «VI Забабахинские научные чтения» (Снежинск, 2003), XVII Менделеевском съезде по общей и прикладной химии (Казань, 2003).

Объем и структура диссертации

Диссертация состоит из введения, 6 глав и заключения. Изложена на 294 страницах машинописного текста, содержит 97 рисунков и 6 таблиц. Список использованных источников включает 277 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ!

Во **введении** обсуждены состояние вопроса, сформулированы цели и задачи, научная новизна и практическая значимость работы, а также приведены защищаемые положения.

В **первой главе** работы приведены литературные данные по оптическим свойствам и зонной структуре, экспериментальным исследованиям импульсно-го инициирования и основным модельным представлениям о природе взрывного разложения АТМ. На основе анализа материала главы сформулирована постановка задачи исследований.-

Во **второй главе** описана разработанная в работе методика эксперимента и результаты ее реализации во вновь созданных аппаратных комплексах.

В качестве объектов исследований: использовались следующие азиды тяжелых металлов в различных формах: AgN^{\wedge} - нитевидные (характерные размеры $0,1 \times 0,05 \times 10 \text{ мм}^{\sim 3}$) и макрокристаллы (характерные размеры $0,5 \times 3 \times$

3 мм³); *Pb(Ni)2*- нитевидные кристаллы (характерные размеры 0,05 x 0,02 x 5 мм³) и прессованные образцы (304–40 мкм толщиной и 2,5 мм диаметром); 77/Уз- прессованные образцы (3004–400 мкм толщиной и 10 мм диаметром).

Специфика процессов, протекающих на ранних стадиях взрывного разложения АТМ, потребовала выработки общих методических принципов исследования этих процессов:

- наличие в регистрируемых сигналах репера, позволяющего отнести изучаемые процессы к еще неразрушенному образцу;
- получение максимума информации в каждом отдельном эксперименте;
- цифровая регистрация измеряемых сигналов.

Сформулированные принципы учитывались при разработке схемных решений конкретных аппаратурных комплексов.

Источниками инициирующего излучения служили пикосекундный *YAG*: M^{3+} -лазер ($\lambda = 1064$ нм и $X = 532$ нм; $\tau_m \approx 30$ пс; $E_p = 0,34 - 30$ мДж/см²) и импульсный ускоритель электронов наносекундной длительности ГИН-600 ($E_s = 0,3$ МэВ; $j = (0,001 - 1)$ кА/см²; $\tau_m = 24 - 50$ нс). При исследованиях температурной зависимости выхода люминесценции при допороговом возбуждении использовался ускоритель электронов ГИН-540 с разрядником-обострителем, обеспечивающим минимальную длительность импульса ~ 50 пс при энергии электронов ~ 200 кэВ.

Для исследования кинетических характеристик начальных стадий взрывного разложения создан ряд экспериментальных установок на основе двухканальной системы регистрации (рисунок 1). В состав устройства входят два скоростных осциллографа С7-19 (O_1 и O_2), предназначенных для исследования однократных импульсных сигналов в диапазоне амплитуд 0,174–100 В и длительностей 210 пс4–0,6 мкс с полосой пропускания до 5 ГГц.

Изображение с экранов осциллографов O_1 и O_2 передается перископической системой (П) на телевизионную камеру (КТ) телевизионного считывающего устройства.

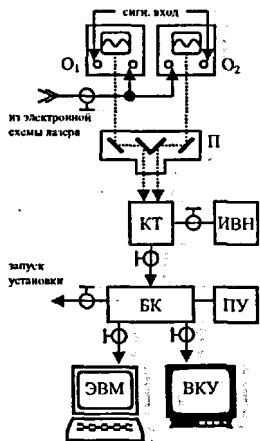


Рисунок 1 – Система регистрации на базе скоростных осциллографов: O_1, O_2 – осциллографы С7-19; П – перископ; КТ – камера телевизионная; ИВН – источник высокого напряжения; БК – блок канала; ПУ – пульт управления; ВКУ – видеоконтрольное устройство

Видеоизображение передается на компьютер (ЭВМ) через плату обработки, позволяющую обрабатывать и сохранять видеосигнал в виде графического растрового файла в формате PGM (Portable Gray Map) с параметрами 768 x 512 x 256, что вполне достаточно для получения качественного изображения.

Электрические сигналы, поступающие на входы осциллографов, формируются трактами регистрации, которые варьировались в зависимости от задачи, решаемой в конкретном эксперименте:

1. Люминесцентный тракт, состоящий из приемников оптического излучения типа ЭЛУФ и селектора длин волн, при необходимости дополняемый азотным криостатом либо микрокриогенной системой, позволяющей варьировать температуру образца в интервале 20 — 300 К.
2. Тракт оптического поглощения, включающий те же элементы, что и люминесцентный тракт, а также широкополосный источник зондирующего излучения.
3. Тракт акустического сигнала, регистрирующий импульс механической деформации, возникающей в образце, с помощью быстродействующего пьезодетектора.

Временное разрешение всех вышеперечисленных измерительных трактов ~ 1 нс.

4. Тракт проводимости, регистрирующий ток через образец по падению напряжения на входном сопротивлении осциллографа, включенном последовательно с образцом.

Временное разрешение определяется конструкцией элементов измерительной схемы и, в оптимизированном варианте, составляет $\sim 0,2$ нс. Эта величина является рекордной для исследований нестационарной проводимости в энергетических материалах.

Наличие многоканальной регистрации открывает возможность синхронно-го измерения параметров различных процессов. Эта возможность была использована для решения широкого круга экспериментальных задач.

Измерение характеристик одного исследуемого процесса на двух параллельных каналах позволило увеличить динамический диапазон регистрации до *2-х порядков*, что обеспечило прямое измерение количественных характеристик кинетики начальных стадий взрывного разложения, *начиная непосредственно с момента иницирования*.

Временная привязка всех измеряемых сигналов осуществляется по реперным импульсам, возникающим при воздействии иницирующего импульса на приемники. Как показали многократные измерения, точность временной привязки сигналов различных трактов не хуже ± 2 нс.

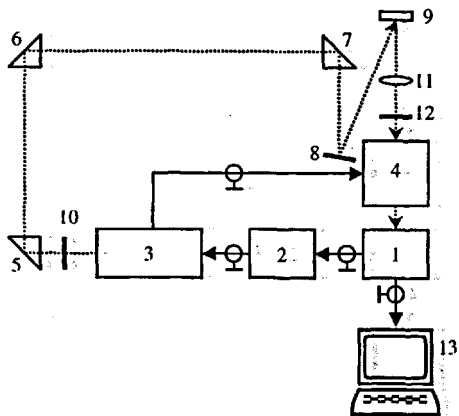


Рисунок 2 – Схема установки для измерения кинетики люминесценции с пикосекундным временным разрешением:

1 - телевизионное считывающее устройство, 2 - синхронизирующий генератор Г5-15, 3 - лазер, 4 - стрик-камера «Агат-СФ», 5-7 - призмы, 8 - зеркало, 9 - образец, 10 - фильтр СЗС-28, 11 - линза, 12 - фильтр КС-14, 13 - компьютер

Для измерения кинетики люминесценции, возникающей в момент иницирования АТМ, с повышенным временным разрешением создана установка на базе стрик-камеры «Агат-СФ» (рисунок 2). На этой установке были получены первые экспериментальные результаты по характеристикам взрывных процессов с временным разрешением ~ 30 пс.

Для исследования спектрального состава и пространственного распределения взрывного свечения АТМ созданы экспериментальные установки также на базе стрик-камер.

Первая установка позволила измерять разрешенные во времени спектры АТМ. Иницирование осуществляется наносекундным электронным импульсом. В состав установки входят спектрограф, стрик-камера, телевизионное считывающее устройство и компьютер. Установка обеспечила регистрацию спектров взрывного свечения в широком спектральном интервале (~ 500 нм) с одного образца (методика «спектр за импульс») при временном разрешении до ~ 2 нс.

Вторая установка обеспечила измерение принципиально нового типа характеристик взрывного разложения - пространственно временных характеристик взрывной люминесценции (рисунок 3).

Для компенсации задержки запуска развертки стрик-камеры в состав установки включена световая задержка с базой ~ 60 м (призмы G^{\wedge} -Щ, зеркала $3i_1$, $3i_2$).

С целью получения максимально однородной структуры пучка последний собирается линзой Л₁ на рассеивающую пластину Р до диаметра ~ 2 мм. Изображение светового пятна с рассеивающей пластины строится линзой Л₂ на образец АТМ. Как показали прямые измерения, при таких условиях пространственное распределение лазерного излучения имеет гауссову форму без локальных неоднородностей.

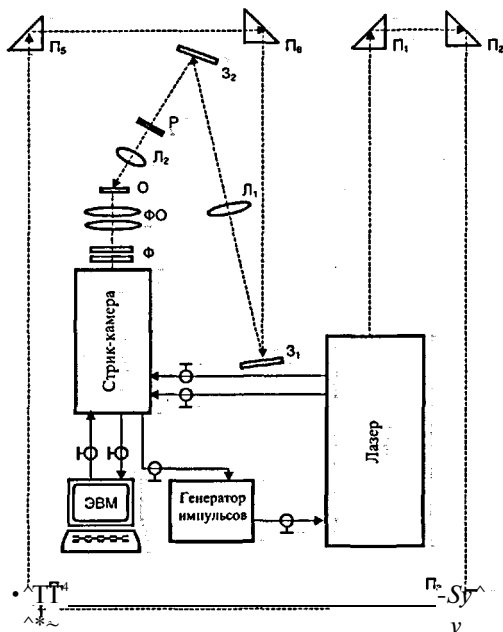


Рисунок 3 – Функциональная схема установки для исследования пространственно-временных характеристик взрывной люминесценции:

П₁ - П₆ – призмы; З₁ - З₂ – зеркала; Р – диффузный рассеиватель; О – образец; ФО – фотографический объектив; Ф – фильтры

свечения по длине кристалла.

Изображение регистрируемых картин учитывается с экрана видеокамерой на основе ПЗС-матрицы и через интерфейс передается в компьютер в виде графического растрового файла для дальнейшей цифровой обработки.

Рассеянное излучение лазера отсекается полосовым фильтром СЗС-28, также предусмотрена возможность ослабления свечения от образца набором из нейтральных светофильтров (Ф).

Увеличенное изображение образца формируется на фотокатод стрик-камеры фотографическим объективом ФО. Ось изображения образца на выходном экране стрик-камеры ориентирована перпендикулярно направлению развертки.

Особенностью стрик-камеры является наличие светового затвора, блокирующего световой поток в различные моменты времени. В частности, использовалась возможность пропускания света затвором только на время $\tau \sim 200$ нс от момента инициирования образца. В статическом режиме это позволяет получать своего рода «моментальную фотографию» развития взрыва с соответствующим временем экспозиции.

В режиме динамической топографии регистрируемое изображение представляет собой временную развертку простран-

Временное разрешение получаемых картин определяется величиной

$$\Delta t = d/V, \quad (1)$$

где d - ширина изображения образца на выходном экране, V - скорость развертки. Для типичных размеров нитевидных кристаллов АТМ временное разрешение при развертке 100 не/экран составляет ~ 1 не.

Во второй главе работы приведено также подробное описание процедур тестирования и калибровки созданных аппаратурных комплексов и обработки результатов с помощью оригинального программного обеспечения.

Третья глава посвящена описанию результатов по общим закономерностям предвзрывных процессов в АТМ. Приведены следующие экспериментальные данные и модельные представления:

1. В результате синхронных измерений проводимости, взрывного свечения и акустического сигнала было показано, что в сигналах и проводимости и свечения, имеются участки до появления переднего фронта акустического сигнала. Это позволило отнести эти участки процессов к еще не разрушенному кристаллу и идентифицировать соответствующие стадии как предвзрывные. Установленное из эксперимента максимальное значение проводимости в предвзрывном состоянии ($\sigma \sim 10^9 \text{ Ом}^{-1}\text{см}^{-1}$) явилось прямым экспериментальным доказательством цепной природы взрывного процесса на ранних стадиях.
2. Зарегистрированные по методу «спектр за импульс» картины развернутого во времени спектра взрывного свечения наглядно показали разделение свечения на область линейчатого спектра, соответствующего продуктам взрывного разложения, и область сплошного широкополосного свечения, характерного для твердого тела. Обработка зарегистрированных картин показала, что спектры широкополосного свечения, отнесенные к свечению неразрушенного образца, не описываются формулой Планка для теплового свечения, что позволило идентифицировать это свечение как предвзрывную люминесценцию.
3. Анализ экспериментальных данных в сопоставлении с теоретически-ми расчетами зонной структуры АТМ позволил предложить наиболее вероятную модель предвзрывной люминесценции. Согласно этой модели предвзрывная люминесценция возникает в результате оптических переходов электронов в квазилокальные состояния, возникающие в глубине валентной зоны в результате цепной реакции взрывного разложения АТМ.
4. Измерения кинетики предвзрывной проводимости показали, что, начиная с некоторого момента времени, эта кинетика хорошо описывается

решением уравнения:

$$\frac{dn}{dt} = \alpha \cdot n - \beta \cdot n^2, \quad (2)$$

имеющим вид:

$$n(t) = \frac{e^{\alpha \cdot (t-t_0)}}{\frac{1}{n_{\infty}} \cdot [e^{\alpha \cdot (t-t_0)} - 1] + \frac{1}{n_0}}. \quad (3)$$

Из (2) следует, что ветвление цепи определяется мономолекулярным процессом ($\alpha \cdot n$), обрыв цепи — бимолекулярным ($\beta \cdot n^2$).

5. На основе совокупности указанных результатов предложена модель звена цепи реакции взрывного разложения АТМ, включающая:

- локализацию дырок на реакционных центрах;
- реконструкцию образованного центра в результате химической реакции с образованием дырочного квазилокального состояния в валентной зоне;
- делокализацию дырок с реконструированного центра;
- размножение носителей заряда в результате ударной ионизации горячими дырками и восстановление локального состояния в запрещенной зоне, что создает условия для повторения рассматриваемой цепочки процессов.

Использование вновь созданных аппаратурных комплексов позволило получить ряд экспериментальных результатов, существенно дополняющих вышеперечисленные данные по общим закономерностям предвзрывных процессов в АТМ.

Для проведения серийных синхронных измерений проводимости и люминесценции при инициировании лазерным импульсом на установке в соответствии с рисунком 1 была разработана специальная схема эксперимента с использованием люминесцентного сигнала продуктов взрыва в качестве репера для выделения предвзрывных стадий (момент времени t на рисунке 4). При такой методике оказалось, что в люминесцентном сигнале всегда имеются предвзрывные участки. После стадии роста регистрируемый сигнал выходит на плато (рисунок 4).

Проявление проводимости как предвзрывного явления зависит от плотности энергии инициирования. При $Y \sim 100$ мДж/см² возникают случаи, когда к предвзрывному состоянию относится не только передний фронт сигнала тока проводимости, но и часть плато; при $Y < 5$ мДж/см² регистрируемый сигнал тока проводимости всегда связан с проводимостью продуктов взрыва. Между этими границами плотности энергии инициирования наблюдаются промежуточные случаи, однако установлено, что при $Y \sim 50$ мДж/см² передний фронт сигнала тока проводимости как правило относится к предвзрывному состоянию.

Следует отметить также, что люминесцентный сигнал всегда возникает несколько раньше сигнала тока проводимости.

Перечисленные результаты не могут быть сколь угодно удовлетворительно интерпретированы с позиций гомогенной природы реакции взрывного разложения, которая фактически подразумевается при построении упомянутой выше модели звена цепи. Поэтому данные синхронных измерений проводимости и люминесценции явились стимулом для постановки последующих исследований по прямой экспериментальной проверке гипотезы об очаговом характере зарождения актуальной цепной реакции.

Были проведены измерения спектра предвзрывной люминесценции по методу «спектр за импульс» в различные моменты времени. Сводка нормированных данных приведена на рисунке 5. Видно, что результаты измерений в пределах погрешности измерений согласуются между собой, при этом положение основного максимума для спектров в различные моменты времени совпадает.

Этот результат является еще одним весомым доводом в пользу нетепловой природы предвзрывного свечения и, соответственно, нетепловой природы ранних стадий взрывного процесса.

Прямые исследования кинетических закономерностей предвзрывной люминесценции АТМ осложняются сильным нестационарным поглощением, возникающим в процессе взрывного разложения. Для учета эффекта реабсорбции проведены синхронные измерения поглощения и люминесценции в различных участках спектра последней.

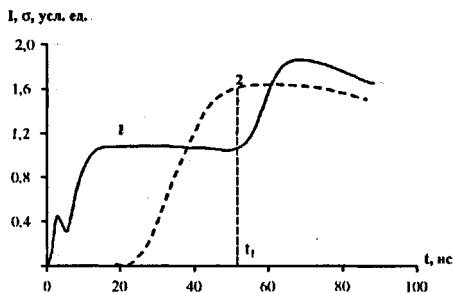


Рисунок 4 – Совместное измерение проводимости и люминесценции при $H \approx 100$ мДж/см²:

- 1 – люминесцентный сигнал
2 – сигнал тока проводимости

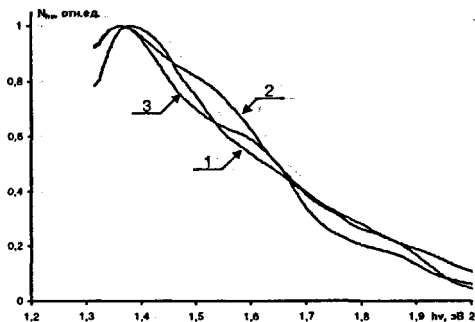


Рисунок 5 – Спектры предвзрывной люминесценции AgN_3 при электронном иницировании в различные моменты времени: 1 – 50 нс; 2 – 150 нс; 3 – 250 нс (отсчет времени от момента иницирования)

Типичная картина зарегистрированного светового сигнала и люминесценции, исправленной на реабсорбцию для $\lambda = 458$ нм, представлена на рисунке 6. Кинетика люминесценции, исправленной на реабсорбцию, для измерений в других участках спектра предвзрывной люминесценции ($\lambda = 545$ нм и $\lambda = 651$ нм) практически совпадает с представленной на последнем рисунке.

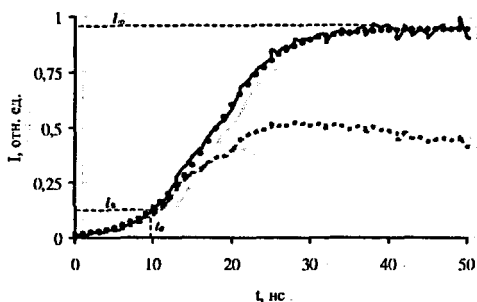


Рисунок 6 — Кинетика люминесценции на $\lambda = 458$ нм ($H \approx 50$ мДж/см²):

пунктир — сигнал люминесценции; сплошная линия — люминесценция, исправленная на реабсорбцию; точки — расчет по (5)

длительностью несколько десятков наносекунд.

В результате исправленная на реабсорбцию кинетика люминесценции представляет собой кривую (рисунок 6), очень напоминающую кинетику предвзрывной проводимости, выходящей на плато (рисунок 4). Это сходство оказалось не только внешним. Исправленная на реабсорбцию кинетика люминесценции, как и в случае предвзрывной проводимости, хорошо аппроксимируется решением уравнения

$$\frac{dI}{dt} = \alpha \cdot I - \beta \cdot I^2, \quad (4)$$

имеющим вид:

$$I(t) = \frac{e^{\alpha(t-t_0)}}{\frac{1}{I_0} \cdot [e^{\alpha(t-t_0)} - 1] + \frac{1}{I_0}}, \quad (5)$$

где t_0 — момент времени, при котором величина $I(t)$ достигает надежно измеряемого значения I_0 , I_0 — значение $I(t)$ на плато. Необходимо подчеркнуть, что t_0 , I_0 определяются непосредственно из экспериментальной кривой, а единственным подгоночным параметром в решении (5) является α .

Видно, что уравнения (2) и (4) становятся идентичными, если сделать разумное предположение $\alpha \sim n$. Поэтому в дальнейших оценках используются только данные концентрационных зависимостей, полученные из кинетики

Как видно из рисунка 6, реабсорбция действительно заметно искажает вид кинетической кривой предвзрывной люминесценции через характерное время $\tau \gg 10$ не после момента инициирования, когда оптическая плотность достигает величины $D \approx 0,1$. В частности, реальная интенсивность люминесценции* увеличивается в 1,5 — 2 раза, а максимум неисправленной кривой в большинстве случаев трансформируется, в плато

проводимости, имея ввиду общность кинетических характеристик и проводимости, и люминесценции. Подчеркнем следующее: эта общность подтверждается экспериментальными результатами только с момента /о и только для предвзрывных процессов.

Значения α , как для проводимости, так и люминесценции, при плотностях энергии инициирования H и 30 — 100 мДж/см² для всех исследованных образцов лежат в интервале 10^8 Ч- 10^9 с⁻¹. Эти значения а можно использовать для оценки параметра β в (2). Из (3) следует, что $\alpha = a./ /3$. При значении $\mu \approx 10$ см²-В⁻¹-с⁻¹ [1] из экспериментальных значений σ_{∞} для различных образцов следует, что $n_{\infty} \sim 10^{20}$ см⁻³. Отсюда, используя $n_{\infty} = a /3$ и экспериментальные значения a , получаем оценку $\beta \ll 10^{-11}$ -г 10^{-12} см³с⁻¹.

Для выдвижения разумной гипотезы о природе соответствующих моно- и бимолекулярных процессов целесообразно проанализировать установленные из эксперимента значения a и /3 .

Величина /3 определяется выражением:

$$\beta = V \cdot \sigma \cdot p, \quad (6)$$

где V - тепловая скорость электрона (дырки) ($V \sim 10^7$ см-с⁻¹); σ_p - сечение процесса, обуславливающего обрыв цепи.

Отсюда следует, что значение σ_p лежит в пределах 10^{18} 4 10^{-19} см². Это характерное значение для сечения не прямой межзонной рекомбинации, что позволяет предположить - бимолекулярный процесс обрыва цепи есть не что иное, как процесс межзонной рекомбинации.

Простейшая интерпретация линейного характера развития цепи ($a \cdot n$) - захват дырки на точечном дефекте. В этом случае

$$\alpha = V \cdot \sigma_3 \cdot N, \quad (7)$$

где V - тепловая скорость дырки ($V \sim 10^7$ см • с⁻¹); a_3 - сечение захвата; N - концентрация дефектов.

Исходная концентрация структурных дефектов в нитевидных кристаллах АТМ лежит в пределах 10^{14} ± 10^{16} см⁻³ [2]. Приняв для N эту оценку, получаем $\sigma_3 \sim 10^{13}$ -г 10^{15} см². Верхняя граница сделанной оценки хорошо согласуется со значением сечения захвата для заряженных (притягивающих) центров в полупроводниках, каковыми являются катионные вакансии. Нижняя же граница может соответствовать значениям сечения захвата для центров другого типа, нейтрально заряженным относительно решетки. Это обстоятельство учитывалось при построении модели инициирования АТМ, изложенной в главе 6 работы.

В четвертой главе работы приведены результаты количественных измерений начальных стадий процессов, протекающих в АТМ при импульсном инициировании, начиная непосредственно с момента воздействия на образец.

На рисунке 7 представлена кинетика предвзрывной проводимости, полученная при измерении одного сигнала с использованием системы регистрации в соответствии с рисунком 1: рисунок 7а показывает полную картину, зафиксированную при 10^x ослаблении, а рисунок 7б - начальные стадии процесса.

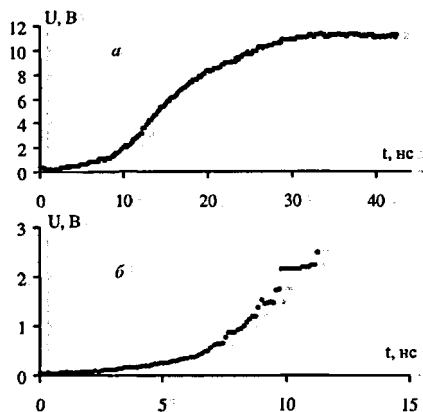


Рисунок 7 - Осциллограммы тока проводимости нитевидных кристаллов AgN_3 при $H \approx 100$ мДж/см²:

а - полная осциллограмма (здесь и далее при регистрации полной картины сигнал ослаблен в 10 раз);
б - осциллограмма начальных стадий

Из рисунка.7б видно, что при значительном; увеличении i чувствительности измерений момент времени, с которого начинается надежная регистрация сигнала уменьшается до нескольких наносекунд, но сигнал тока проводимости непосредственно в момент возбуждения при данных; условиях, регистрации и инициирования отсутствует.

Обработка кинетики, полученной объединением данных рисунков 7а и 7б, приведена на рисунке 8. Начальный участок до момента времени t_0 аппроксимировался простой экспонентой, которая получается из решения закона (2) при малых $n \phi - \alpha^2 - * 0$, кинетика более поздних стадий процесса ($t > t_0$) - полным уравнением (3).

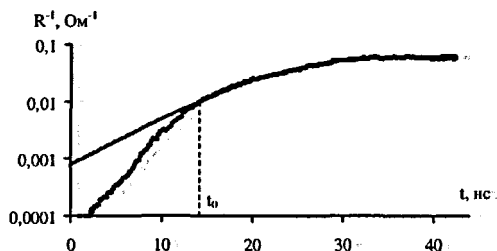


Рисунок 8 - Результат аппроксимации кинетики проводимости (рисунок 7) выражением (3) в полулогарифмических координатах

Значение константы a для: начального участка ($a_{,,}$) оказалось выше, чем для последующих стадий цепной реакции (обс): $a_{,,} = 4,0 \cdot 10^8$ с⁻¹ и $cto = 1,9 \cdot 10^8$ с⁻¹ для рисунка 8, причем; соотношение $a_{,,} > a^*$, наблюдается для всех измеренных образцов. и для: всего исследованного. интервала $Y = 504-750$ мДж/см².

Особенности начальных стадий предвзрывной проводимости особенно ярко проявились при высоких уровнях инициирования (рисунок 9).

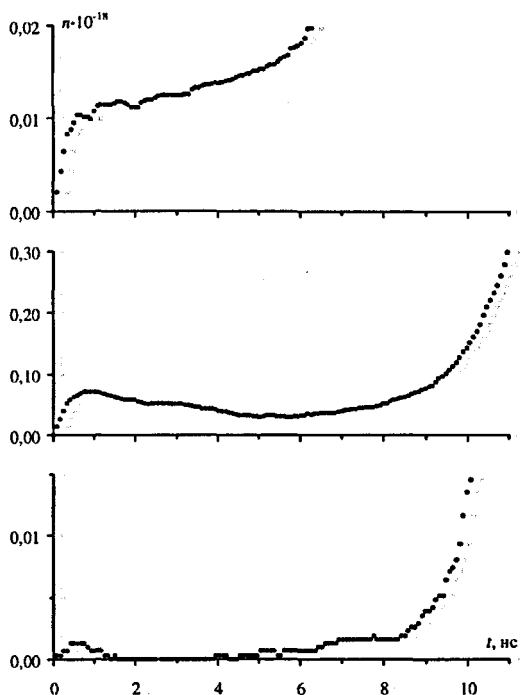


Рисунок 9 – Начальные участки кинетики предвзрывной проводимости для трех различных образцов AgN_3 при одинаковой плотности энергии инициирования ($H \approx 750$ мДж/см²)

Необходимо выделить следующие особенности:

1. Различие кинетических кривых для разных образцов на начальных стадиях в соответствии с рисунком 9 значительно заметнее, чем для более поздних стадий процесса, описываемого выражением (2). Фактически, при одних и тех же условиях регистрации и возбуждения для всей серии экспериментов на начальном участке не удалось получить повторяющегося вида кинетических зависимостей. Это свидетельствует о существенном влиянии индивидуальных свойств единичных образцов на характеристики начальных стадий взрывного разложения.
2. Начальный пик (см. рисунок 9) проявляется на всех кривых, причем в момент времени, совпадающий с точностью временной привязки с моментом инициирования.

3. Длительность переднего фронта ($\sim 0,3$ нс) практически совпадает с временным разрешением установки. Это свидетельствует в пользу трактовки начального пика как импульса фотопроводимости, возбуждаемой непосредственно инициирующим импульсом.

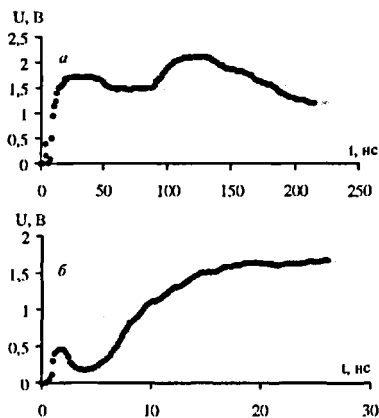


Рисунок 10 – Осциллограммы предвзрывной люминесценции нитевидных кристаллов AgN_3 при $H \approx 50$ мДж/см²:

а – полная осциллограмма; б – осциллограмма начальных стадий

Установленные закономерности кинетики начальных стадий предвзрывной люминесценции оказались подобны результатам, приведенным для кинетики предвзрывной проводимости (рисунок 7).

Типичная осциллограмма светового сигнала, полученная при плотности энергии возбуждения $H \sim 50$ мДж/см², показана на рисунке 10.

На осциллограмме в момент времени, соответствующий моменту облучения кристалла лазером, проявляется начальный пик небольшой амплитуды. Его наличие зафиксировано для всех исследованных образцов при указанной и более высоких плотностях возбуждения. Подчеркнем, что в сигнале начальных стадий сразу после начального пика начинается надежно регистрируемый

рост предвзрывной люминесценции.

Обработка полученных данных (см. рисунок 11) показала наличие начальных стадий кинетики люминесценции с a более высоким, чем для более поздних стадий процесса ($\alpha_H = 1,6 \cdot 10^8$ с⁻¹ до времени t_0 , далее аппроксимация по уравнению (5) дает $\alpha_\infty = 7,1 \cdot 10^7$ с⁻¹). Подобные особенности кинетики начальных участков зафиксированы для всех исследованных образцов и во всем диапазоне плотностей энергии возбуждения $H = 3 \sim 250$ мДж/см².

Обнаружение начального пика предвзрывной люминесценции азида серебра, регистрируемого уже при плотности энергии лазерного инициирования $H \sim 50$ мДж/см², является, на наш взгляд, очень значимым результатом. Поскольку этот пик возникает с точностью до временной привязки непосредственно в момент инициирования, то можно говорить об обнаружении люминесценции АТМ, возникающей в момент возбуждения образца. Можно было ожидать, что эта люминесценция имеет специфические характеристики, отличающие ее от люминесценции на последующих (предвзрывных!) стадиях взрывного разложения и содержащие прямую информацию о первичных процессах, происходящих в АТМ при импульсном инициировании.

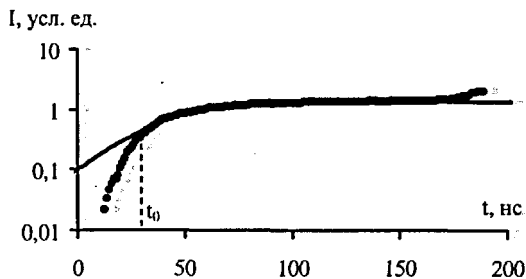


Рисунок 11 – Результат аппроксимации кинетики люминесценции для рисунка 10 выражением (5) в полулогарифмических координатах

Эти соображения послужили причиной постановки экспериментов по изучению характеристик люминесценции, возникающей в момент инициирования, в различных аспектах.

Путем систематических исследований было установлено, что амплитуда люминесценции, возникающей в момент лазерного инициирования, зависит от плотности энергии. Для каждой плотности возбуждения проводилась серия экспериментов ($N \sim 20$) на образцах оптического качества, отобранных из одного синтеза. Оказалось, что в интервале $H = 30$ ч-500 мДж/см² амплитуда сигнала люминесценции, возникающей в момент инициирования, менялась более, чем на порядок, тогда как соответствующий параметр для люминесценции на стадиях предвзрывного процесса, приближенных к разрушению образца, менялся не более, чем на 30%, даже без сортировки образцов по размерам.

Было также установлено, что при постоянном уровне инициирования даже для образцов, сопоставимых по размерам и одного качества, различия в амплитуде сигнала люминесценции, возникающей в момент инициирования, далеко выходили за пределы статистического разброса (измеренные значения отличались более, чем в 5 раз).

В результате прямых измерений длительности люминесценции, возникающей в момент инициирования, на установках в соответствии с рисунками 1 и 2 удалось установить, что вплоть до пикосекундного диапазона измерений; длительность начального пика совпадает с длительностью возбуждающего импульса (см. рисунок 12).

Спектр люминесценции, возникающей в момент инициирования, был измерен по методу «спектр за импульс» при воздействии на образец импульса электронов. На рисунке 13 он показан в сопоставлении со спектром предвзрывной люминесценции на последующих стадиях процесса.

Как видно из рисунка 13, спектр люминесценции, возникающей в момент инициирования, близок к спектру люминесценции на последующих стадиях процесса, однако наблюдается отчетливо выраженное повышение корот-

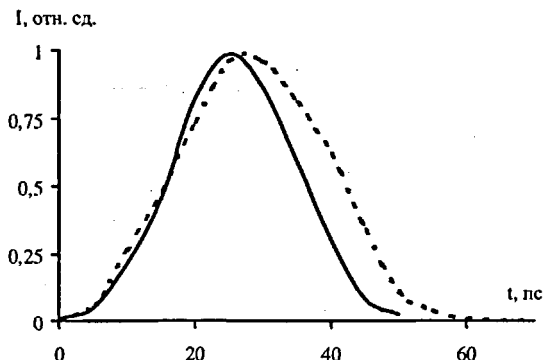


Рисунок 12 – Сопоставление реакции стрик-камеры «Агат-СФ» на рассеянное лазерное излучение (сплошная линия) и люминесценцию, возникающую в момент инициирования, при взрывном разложении макрокристалла AgN_3 (пунктир) при $H \approx 85$ мДж/см²

коволнового плеча спектра. Указанная особенность спектра люминесценции, возникающей в момент электронного инициирования, была интерпретирована как проявление процессов, отличных от процессов на последующих стадиях взрывного разложения.

Мы предположили, что специфические процессы, протекающие в момент инициирования, могут проявляться и при допороговом возбуждении образца. Это предположение подтвердили дальнейшие исследования, в ходе которых была обнаружена при допороговом электронном возбуждении радиolumинесценция азида серебра, и изучены ее свойства.

Результаты исследования радиolumинесценции AgN^{\wedge} в систематизированном виде можно представить следующим образом:

1. При воздействии импульсами электронов в допороговом режиме предварительно необлученного образца при 300 К в спектре радиolumинесценции наблюдается длинноволновая полоса с максимумом ниже 1,5 эВ (полоса < 1,5 эВ, точное положение максимума не определено в связи с ограниченным спектральным диапазоном регистрации установки - см. рисунок 14а).

При $T < 300$ К не удастся надежно выделить полосу < 1,5 эВ на фоне быстро растущего с понижением температуры более коротковолнового свечения (см. рисунок 14б). Поэтому температурная зависимость люминесценции < 1,5 эВ не определена.

2. При возбуждении предварительно необлученного образца в допороговом режиме при 80 К в спектре радиolumинесценции наблюдается полоса с максимумом 1,65 эВ (см. рисунок 14б).

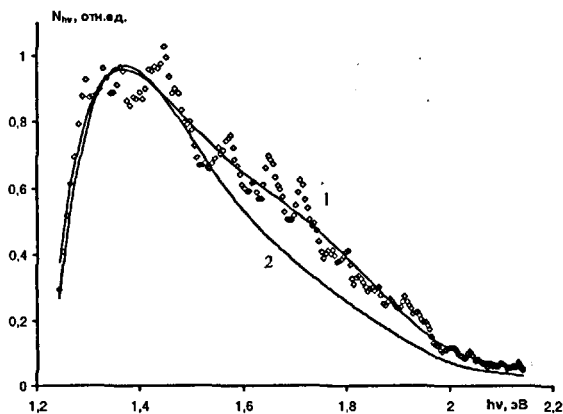


Рисунок 13 – Спектр люминесценции, возникающей в момент инициирования, в сравнении с люминесценцией на последующих стадиях процесса (электронное инициирование макрокристаллов AgN_3 при 300 К):
 1 – спектр люминесценции, возникающей в момент инициирования (точки – экспериментальные данные; линия – усредненное значение экспериментальных данных);
 2 – спектр люминесценции на последующих стадиях взрывного процесса

- 2.1. Длительность затухания этой полосы люминесценции при 80 К составляет $\tau = (5,2 \pm 0,2)$ нс.

Температурные зависимости выхода и времени затухания полосы люминесценции 1,65 эВ описываются формулой Мотта $I = I_0 \exp(-E/kT)$ с одной и той же энергией активации $E = 0,13$ эВ.

Следовательно, температурное тушение полосы 1,65 эВ носит внутрицентральной характер. Отсутствие полосы 1,65 эВ в спектрах радиолюминесценции при 300 К (см. рисунок 14а) связано с тем, что при этих температурах полоса полностью потушена.

- 2.2. Отжиг облученного при 80 К образца до 300 К с последующим охлаждением до 80 К приводит к исчезновению полосы 1,65 эВ и появлению полосы 1,87 эВ (см. рисунок 14в). Последующее облучение при 80 К вновь восстанавливает полосу 1,65 эВ, не уничтожая полосу 1,87 эВ.

Следовательно, имеет место термически активированная перестройка центров, ответственных за люминесценцию 1,65 эВ в центры, ответственные за люминесценцию 1,87 эВ.

3. Полоса 1,87 эВ может быть получена также следующим образом: предварительное облучение образца при 300 К, охлаждение до 80 К и допороговое возбуждение при этой температуре.

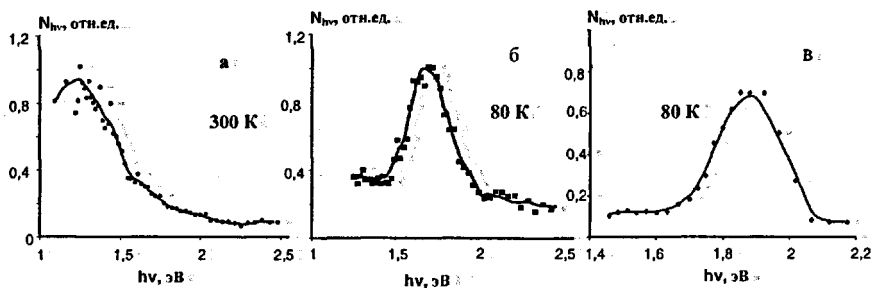


Рисунок 14 – Спектры радиолюминесценции азиды серебра при 300 и 80 К: а – спектр радиолюминесценции, измеренный при 300 К; б – спектр радиолюминесценции исходного образца, измеренный при 80 К; в – спектр радиолюминесценции, измеренный при 80 К, для образца, предварительно отожженного при 300 К

По-видимому, в этом случае термически активированная перестройка центров 1,65 эВ в центры 1,87 эВ происходит уже во время предварительного облучения.

- 3.1. Длительность затухания полосы люминесценции 1,87 эВ составляет $\approx 3,3 \pm 0,3$ нс.
- 3.2. Температурная зависимость выхода люминесценции 1,87 эВ описывается формулой Мотта с энергией активации $E = 0,03$ эВ. Время затухания в исследованном температурном интервале не зависит от температуры..

Отсутствие полосы 1,87 эВ в спектрах радиолюминесценции при 300 К (см. рисунок 14а), как и в случае п. 2.1, объясняется тем, что при этой температуре полоса 1,87 эВ полностью потушена.

Измерения спектра люминесценции, возникающей в момент электронного инициирования взрывного разложения, для образцов, прошедших предварительную радиационную обработку, показали, что интенсивность указанной люминесценции в этом случае значительно увеличилась. При этом установлено, что, в зависимости от типа предварительной обработки, в спектре люминесценции, возникающей в момент электронного инициирования, проявляются соответствующие полосы радиолюминесценции (см. рисунок 15 - на левой части рисунка превалирует полоса 1,65 эВ; на правой части - полоса 1,87 эВ).

Этот результат позволяет предположить, что процессы, вызывающие радиолюминесценцию при допороговом электронном возбуждении, протекают и при взрывном разложении азиды серебра.

Пятая глава работы посвящена описанию экспериментальных результатов исследования пространственно-временных характеристик предвзрывной люминесценции АТМ.

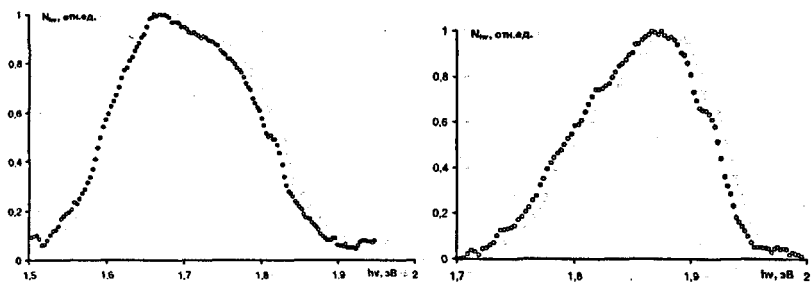


Рисунок 15 – Спектральный состав свечения люминесценции, возникающей в момент инициирования, при 80 К для образца AgM_3 : слева – предварительная радиационная обработка при 80 К; справа – предварительная радиационная обработка при 300 К

Основная задача этих исследований заключалась в прямой экспериментальной проверке гипотезы очагового зарождения реакции взрывного разложения АТМ.

Измерения проводились на установке в соответствии с рисунком 3 в режимах моментальной фотографии и динамической топографии.

Неоднородное распределение люминесценции по длине кристалла было обнаружено уже в режиме моментальной фотографии со временем экспонирования ~ 200 нс (см. рисунок 16). При $H \ll 5$ мДж/см² свечение локализовано в отдельных точках в пределах кристалла (см. рисунок 16а), с увеличением H до 15 мДж/см² помимо локальных областей наблюдается распространение свечения за пределы образца (см. рисунок 16б). На картине моментальной фотографии при высоких уровнях возбуждения, изображение кристалла практически полностью перекрывается свечением, выходящим за его пределы (см. рисунок 16в).

Более информативные картины процесса были получены в режиме временной развертки, т.е. по методу динамической топографии (см. рисунок 17).

При иницировании вблизи порога люминесценция образца в первые 100 нс процесса всегда локализована в отдельных областях (рисунок 17а соответствует $Y \sim 5$ мДж/см²). Число этих областей для разных образцов может меняться, но обычно не превышает 4 особенностей свечения на видимый участок кристалла.

При увеличении энергии иницирования до $Y \sim 15$ мДж/см² наблюдается большее количество локальных областей (см. рисунок 17б), кроме того, после ~ 100 нс от начала процесса появляется свечение с перекрыванием отдельных областей и с интенсивностью, значительно превышающей интенсивность локальных областей. По-видимому, указанное свечение является свечением продуктов взрыва.

При значительном превышении порога иницирования до $Y \ll 150$ мДж/см² картина динамической топографии качественно отличается от вышеописанных

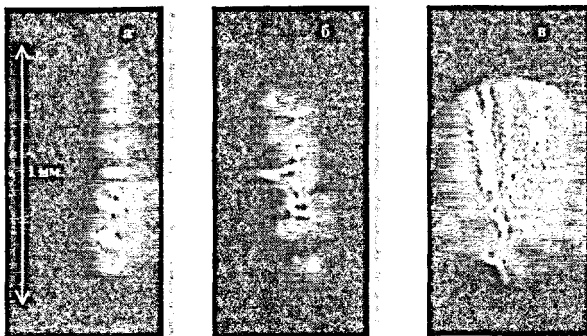


Рисунок 16 – Моментальная фотография взрывного свечения нитевидных кристаллов AgN_3 с выдержкой ~ 200 нс при лазерном инициировании:

а – $H \approx 5$ мДж/см²; б – $H \approx 15$ мДж/см²; в – $H \approx 150$ мДж/см²

результатов (см. рисунок 17в). В момент инициирования хорошо видно равномерное свечение, повторяющее по локализации в пространстве изображение кристалла. Это свечение фактически является моментальной фотографией кристалла со временем экспозиции, равным длительности лазерного импульса, т. е. $\ll 30$ пс. Гомогенность пространственной структуры указанного свечения свидетельствует в пользу того, что очаговая природа развития взрывного процесса определяется не характеристиками лазерного пучка, а закономерностями развития цепной реакции в АТМ. Кроме того, равномерное пространственное распределение свечения кристалла в момент инициирования может рассматриваться как свидетельство в пользу равномерности поглощения лазерного излучения по объему образца.

После области люминесценции, возникающей в момент инициирования, на рисунке 17в начинается область квазигомогенного свечения, переходящая через ~ 30 нс в область существенно большей яркости, соответствующую свечению продуктов взрыва.

Зарождение взрывной люминесценции в пространственно разделенных областях при инициировании вблизи порога, аналогичное результатам рисунка 17а, установлено экспериментально и для азидов свинца. По-видимому, очаговое зарождение взрывного свечения характерно для всех АТМ.

Главный вывод, следующий из исследований топографии взрывного свечения: на примере типичных представителей инициирующих взрывчатых веществ - азидов тяжелых металлов - нами получены прямые экспериментальные доказательства справедливости гипотезы об очаговом зарождении реакции взрывного разложения энергетических материалов.

С учетом результатов рисунков 16 и 17 отставание максимума проводимости от максимума люминесценции, по-видимому, определяется просто временем, за которое отдельные очаги реакции перекрываются, образуя в кристалле

сплошной канал с высокой проводимостью. Причина отсутствия при низких уровнях инициирования участков сигнала тока проводимости, относящихся к предвзрывному состоянию, становится также понятной из результатов главы 5, полученных при аналогичных условиях возбуждения. На топографических картинах число очагов зарождения реакции мало, и они пространственно значительно разделены друг от друга. В этом случае реакция взрывного разложения протекает в отдельных очагах вплоть до начала собственно взрыва.

Природа локальных очагов предвзрывной люминесценции и, соответственно, природа очагов зарождения реакции взрывного разложения, является еще нерешенным вопросом. Поскольку цепная реакция в АТМ определяется процессами размножения электронных возбуждений, то существование локальных очагов наиболее просто объяснить наличием в реальном кристалле AgN_3 областей с повышенной концентрацией реакционных центров. Такими областями могут быть участки кристалла вблизи дислокаций.

Представления об определяющей роли дислокаций в инициировании энергетических материалов в последнее время активно развиваются в теоретических исследованиях [3].

В пользу такой трактовки природы реакционных очагов говорят и результаты экспериментальных работ по исследованию медленного разложения азидов серебра [2], в которых показано, что продукты реакции локализируются по точкам выхода дислокаций на поверхность кристалла.

Некоторые из вышеприведенных результатов также можно рассматривать как довод в пользу указанной природы реакционных очагов. При обработке всего массива полученных картин пространственного распределения предвзрывной люминесценции установлен факт, что в большинстве случаев рас-

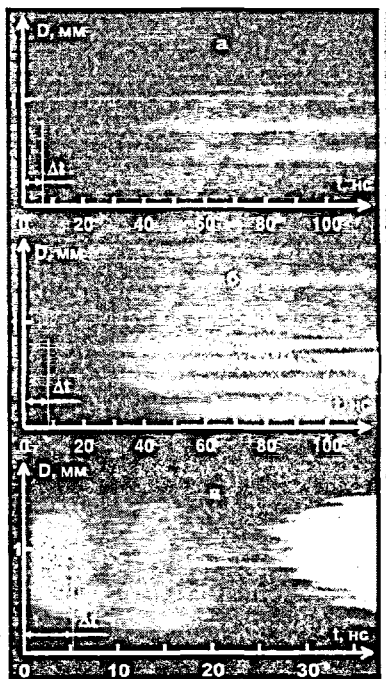


Рисунок 17 – Динамическая топография взрывной люминесценции нитевидных кристаллов AgN_3 при лазерном инициировании:
 а – $H \approx 5$ мДж/см²; б – $H \approx 15$ мДж/см²; в – $H \approx 150$ мДж/см²; Δt – временное разрешение для конкретного эксперимента

стояние между локальными областями свечения в кристалле (как на рисунках 16а и 17а,б) составляет ~ 200 мкм, что хорошо соотносится с данными о нормальной плотности дислокаций в $AgNj$, [4].

Однако, однозначных прямых экспериментальных доказательств гипотезы о дислокационной природе локальных областей на настоящий момент не найдено. Для перевода указанной интерпретации природы очагов зарождения реакции из статуса гипотезы в статус установленного факта необходимы дополнительные экспериментальные исследования.

Естественным продолжением изучения динамики пространственного распределения предвзрывной люминесценции явились эксперименты по прямому измерению скорости распространения предвзрывной люминесценции, соответствующей скорости распространения фронта цепной реакции взрывного разложения АТМ.

Методика измерений аналогична методике, использованной при исследованиях топографии; взрывной люминесценции, за исключением условий облучения образца, показанных в области Рисунка 18. Часть образца О перекрывалась непрозрачным для лазерного излучения Лю экраном Э, причем в варианте в соответствии с рисунком 18а экран перекрывал примерно половину лазерного пучка, а в варианте в соответствии с рисунком 18б облучение кристалла осуществлялось через щель ~ 200 мкм. В результате по распространению свечения за пределы необлученной области можно было производить прямые измерения скорости распространения свечения по кристаллу.

На области II рисунка 18 представлены типичные картины временной развертки изображения светящейся области нитевидного кристалла $AgN?$. На рисунке 18 видно, что светящиеся области для обоих вариантов схем облучения распространяются со временем в область геометрической тени.

Установлено, что скорость распространения свечения не зависит от геометрии облучения и величина ее постоянна. Значение этой скорости, усредненное по ~ 40 образцам для каждой геометрии облучения, составляет для $AgNj$, 1300 ± 200 м/с, для $Pb(N_2)_2$ - 1500 ± 200 м/с.

Путем систематических исследований по варианту в соответствии с рисунком 18б для азида серебра было также установлено, что скорость распространения свечения не зависит от толщины образцов (в исследованном интервале d — 30-150 мкм) и плотности энергии инициирования (в исследованном интервале $H = 30 - 350$ мДж/см²).

Согласно вышеперечисленным данным, регистрируемое на рисунке 18 свечение представляет собой предвзрывную люминесценцию, сопровождающую цепную реакцию взрывного разложения АТМ. Таким образом, измеренная скорость представляет собой скорость распространения фронта цепной реакции по длине образца.

В соответствии с вышеуказанной моделью звена цепи реакции взрывного разложения АТМ необходимым условием пространственного распространения реакции является миграция электронных возбуждений в невозбужденную зону

образца. Наиболее естественным механизмом такой миграции представляется диффузия.

Проанализируем эту возможность. Прежде всего следует подчеркнуть качественное отличие рассматриваемой задачи от стандартных диффузионных задач. В стандартных задачах рассматривается диффузия из стационарного источника, что приводит к более или менее плавному падению концентрации диффундирующих частиц с увеличением расстояния от источника (так называемые диффузионные профили).

В нашем же случае концентрация диффундирующих частиц нарастает в результате цепной реакции. Из общих соображений ясно, что это обстоятельство должно приводить к обострению диффузионных профилей и появлению более или менее выраженного «диффузионного фронта», разделяющего область протекания цепной реакции и область невозмущенного кристалла. Такая задача была рассмотрена Семеновым и Зельдовичем еще в 40-е годы в связи с проблемой оценки роли диффузии в распространении пламени [5]. Для оценки скорости диффузионного фронта V было предложено следующее выражение:

$$V = \sqrt{D/\tau}, \quad (8)$$

где D - коэффициент диффузии, τ - характерное время реакции.

Используя выражение (8), оценим разумность предположения о диффузионном характере распространения цепной реакции по образцу.

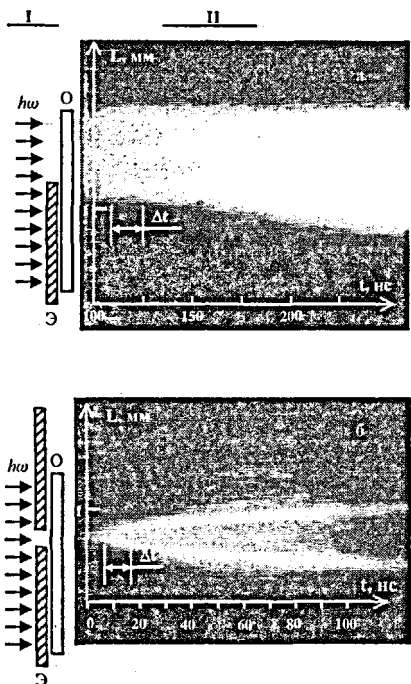


Рисунок 18 - Схемы облучения и примеры регистрации скорости распространения предвзрывной люминесценции для нитридных кристаллов AgN_3 при лазерном инициировании с $H \approx 50$ мДж/см²:

область I - схемы облучения образцов (hw - лазерное излучение; Э - экран; О - образец);

область II - картины распространения реакции по длине кристалла: а - регистрация при экранировании половины лазерного пучка; б - регистрация при облучении кристалла через щель ~ 200 мкм

Согласно вышеприведенным данным по измерению кинетики предвзрывных процессов для величины τ можно принять значение $5 \cdot 10^{-9}$ с. Тогда при $V = 1,3$ км/с получаем $D \approx 100$ см²с⁻¹. Такие значения D характерны для диффузии электронных возбуждений в кристаллах [6].

Таким образом, экспериментально наблюдаемое значение скорости распространения фронта цепной реакции взрывного разложения АТМ подтверждает разумность предположения о связи этой скорости со скоростью движения диффузионного фронта электронных возбуждений, генерируемых в процессе взрывного разложения.

В шестой главе работы описывается предложенная модель импульсного инициирования АТМ.

Побудительными причинами выдвигания этой модели явились следующие обстоятельства.

Простая кинетика (2), (3) описывает процессы на стадиях, приближенных к моменту разрушения образца. Однако на начальных стадиях (при концентрации свободных электронов и дырок $\sim 10^{17}$ см⁻³), как показано при описании результатов 4-ой главы работы, кинетика оказывается гораздо сложнее. Особо отметим в этой связи факт большего значения a на начальных стадиях, чем; на последующих этапах развития процесса.

Кроме того, выражение (2) не содержит в явном виде порога инициирования реакции, что находится в явном противоречии с многочисленными экспериментальными результатами.

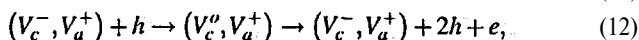
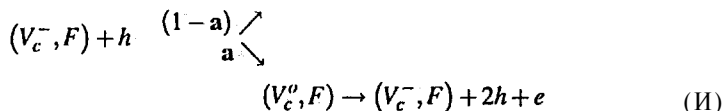
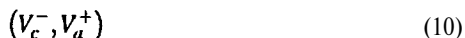
В связи с этим, в работе предложена модель инициирования АТМ, дополняющая разработанную ранее модель развития цепной реакции взрывного разложения и снимающая на качественном уровне указанные выше противоречия.

Базовой предпосылкой для построения модели является идея изменения сечения захвата дырок a на актуальный реакционный центр - см. уравнение (7) - за счет изменения его зарядового состояния при действии инициирующего импульса: от сечения захвата на нейтральный или дипольный центр (σ^0) до сечения захвата на заряженный центр (σ^+). Значения a могут превосходить значения σ^0 на 24-3 порядка.

Это может привести к резкому перераспределению дырок в пользу рабочего канала и, соответственно, к зарождению цепной реакции.

В основе рассмотренного в работе варианта реализации указанной идеи лежит предположение о структуре стартового реакционного центра в виде диполя - ассоциата катионной и анионной вакансий (дивакансии).

В этом случае физико-химическая формулировка модели на языке квази-химических реакций может быть записана в следующем виде :



где V_c и V_a - катионная и анионная вакансии, F - F-центр (анионная вакансия, захватившая электрон), eh - электрон и дырка.

Реакция (9) - захват электрона на дивакансию, приводящий к переходу нейтральной дивакансии с сечением $\langle \sigma^0 \rangle$ в заряженную катионную вакансию с сечением σ^- , т. е. увеличению сечения захвата на 24-3 порядка.

Реакция (10) - рекомбинация дырки с F-центром с сечением a^- , приводящая к восстановлению нейтральной дивакансии с сечением захвата дырки a^0 . Вероятность процесса - $(1 - a)$.

Реакция (11) - захват (с сечением σ^- !) дырки на катионную вакансию, приводящий к размножению дырок. Вероятность процесса - a .

Реакция (12) - захват дырки на дивакансию (сечение (T^0)), также приводящий к размножению дырок.

Применительно к взрывному разложению АТМ приведенные выше реакции представляют собой следующее:

1. Реакция (9) описывает процесс собственно инициирования.
2. Реакции (11) и (12) относятся к процессам размножения дырок, обеспечивающих ветвление цепи и дальнейшее развитие процесса по вышеупомянутой модели звена цепи взрывного разложения АТМ (см. стр. 12).
3. Реакция (10) описывает процесс исчезновения дырок, т. е. конкурирующий канал. Другие возможные конкурирующие каналы (захват дырки на примесные и структурные дефекты, поверхностная рекомбинация и т. д.) в приведенной схеме не указаны.

Рассмотренные процессы - (9) - (12) - могут быть учтены при развернутой записи величины α в (2):

$$\alpha = V \left[a \cdot \sigma^- \cdot N^- + \sigma^0 \cdot (N - N^-) - (1 - a) \cdot \sigma^- \cdot N^- - g \right], \quad (13)$$

где V - тепловая скорость дырки; a^- и σ^0 - сечения захвата дырки на катионную вакансию и дивакансию соответственно; N и N^- - исходные концентрации соответственно дивакансии и катионных вакансий, расположенных •

рядом с F-центром; a - вероятность захвата дырки на катионную вакансию; g - характеристика конкурирующих каналов, не связанных с восстановлением нейтральной дивакансии. Поскольку в настоящее время отсутствуют сколько-нибудь надежные данные по этим каналам, мы ограничимся простейшим случаем $g = const$.

В (13) $V \cdot a \cdot \sigma^+ \cdot N^-$ - скорость генерации дырок в результате захвата дырок на катионные вакансии (размножение дырок на заряженных центрах!); $V \cdot \sigma^0 \cdot (N - N^-)$ - скорость генерации дырок на дивакансиях (размножение дырок на нейтральных центрах!); $V \cdot (1 - a) \cdot \sigma^- \cdot N^-$ - скорость исчезновения дырок в результате рекомбинации с F-центрами; $V \cdot g$ - скорость исчезновения дырок для остальных конкурирующих каналов.

Для скорости изменения N^- можно записать:

$$\dot{N}^- = V \left[\sigma^0 \cdot (N - N^-) \cdot n_e - (1 - a) \cdot \sigma^- \cdot N^- \cdot n_h \right], \quad (14)$$

где n_e и n_h - концентрации зонных электронов и дырок; $V \cdot \sigma^0 \cdot (N - N^-) \cdot n_e$ - скорость генерации N^- в результате захвата электронов на дивакансии - реакция (9); $V \cdot (1 - a) \cdot \sigma^- \cdot N^- \cdot n_h$ - скорость исчезновения N^- в результате рекомбинации дырок с F-центрами - восстановление дивакансии, реакция (10).

Получить точное аналитическое решение уравнений (2) - при записи a согласно (13) - и (14) невозможно, однако даже предварительный качественный анализ сформулированных модельных представлений о природе импульсного инициирования АТМ позволил сделать ряд очень важных выводов.

В частности, получено *условие стабильности* образца. При отсутствии внешнего воздействия ЛГ = 0. При этом условии из проведенного анализа модели следует, что $\alpha = V(\sigma^0 \cdot N - g)$. Если $\alpha > 0$, то появление даже единственной дырки, согласно (2), приведет к запуску цепной реакции и, следовательно, ко взрыву образца. Таким образом, условием стабильности образца является значение $a < 0$ (при отсутствии внешнего воздействия!), которое, с учетом сказанного, выполняется в следующем случае:

$$\sigma^0 \cdot N - g < 0. \quad (15)$$

Если условие (15) не выполняется, то происходит самопроизвольный взрыв, иногда случающийся при синтезе и хранении АТМ.

Определено также *условие для порога инициирования* АТМ.

Условие запуска цепной реакции в результате инициирования: ($XQ > 0$, где «0» - значение a после окончания инициирующего импульса (в нулевой момент времени)). Из анализа модели следует, что при условии $\alpha_0 > 0$:

$$(2a - 1) \cdot \sigma^- \cdot N_0^- > (g - \sigma^0 \cdot N), \quad (16)$$

где NQ - начальная концентрация заряженных центров, созданных инициирующим импульсом в результате захвата электронов дивакансиями - реакция

(9). Поскольку N_0 создается инициирующим импульсом, то наличие порогового значения NQ соответствует наличию пороговой плотности энергии инициирующего импульса. Как известно, наличие порога инициирования АТМ установлено в многочисленных экспериментальных исследованиях

При иницировании излучением с плотностью энергии выше пороговой развивается цепная реакция. Условия развития цепной реакции очевидны: $CXQ > 0$, $cX_{00} > 0$, где ∞ - константа скорости реакции на плато (см. рисунок 6).

Величина OQ , как указано выше, задается величиной WJ'' , т. е. определяется энергией инициирующего импульса. Условие же $\alpha > 0$ выполняется при

i-a $\bullet > \delta$ -

В этом случае кинетика изменения величин $a(t)$ и $N^-(t)$ (при $a < 0$) имеет вид, изображенный на рисунке 19.

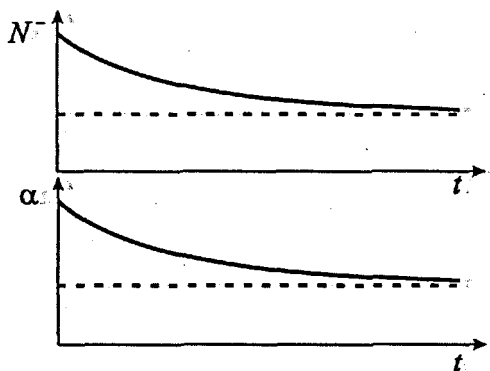
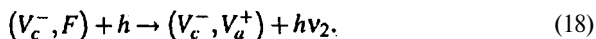
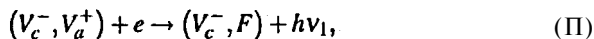


Рисунок 19 – Кинетика изменения концентрации заряженных центров (N^-) и константы скорости ветвления цепи (α) при возбуждении выше порога инициирования

Из рисунка 19 видно, что скорость реакции на начальном участке, определяемая величиной O_0 , больше скорости установившегося процесса, определяемой величиной $(X_{00}$, что соответствует, установленным в работе особенностям кинетики начальных стадий взрывного процесса.

Свойства обнаруженной в работе радиoluminesценции $AgNi$ при допороговом возбуждении могут быть также интерпретированы исходя из сформулированных выше модельных представлений.

В предложенной модели - реакции (9) - (12) — имеются 2 реакции, которые могут сопровождаться люминесценцией. Это реакции (9) и (10), которые с учетом люминесценции могут быть записаны так:



Реакция (17) - это излучательный захват электрона на дивакансию, один из вариантов так называемой «захватной» люминесценции, которая наблюдалась на щелочногалоидных кристаллах [7].

Реакция (18) - излучательная рекомбинация дырки с электроном, локализованным на дивакансии - один из вариантов хорошо известной дырочной рекомбинационной люминесценции [8].

При сопоставлении экспериментальных результатов по радиолюминесценции с оптическими переходами согласно (17) и (18) необходимо учесть, что в кристаллической решетке AgN^{\wedge} возможны две ориентации дивакансии, расстояние между партнерами в которых составляют 2,56 Å и 2,79 Å соответственно [9]. Это может приводить к тому, что спектры и захватной ($h\nu$) и рекомбинационной ($h\nu_2$) люминесценции могут состоять из двух более или менее разделяющихся полос, соответствующих различной ориентации дивакансии. Более того, при изменении температуры образца можно ожидать перераспределения интенсивности между полосами, обусловленного термически-активированной реориентацией дивакансии.

Поскольку, как показывает рассмотрение спектров радиолюминесценции (см. рисунок 14), радиационная обработка или температурный отжиг приводит к трансформации полосы 1,65 эВ в полосу 1,87 эВ, то, в свете перечисленных ожидаемых в рамках модели особенностей, логично связать полосу с максимумом < 1,5 эВ с захватной люминесценцией ($h\nu$), а полосы с максимумами 1,65 эВ и 1,87 эВ с дырочной рекомбинационной люминесценцией ($h\nu_2$) на дивакансиях различной ориентации.

Все вышеперечисленные соответствия выводов из анализа нашей модели инициирования АТМ и различных экспериментальных данных могут несомненно рассматриваться как свидетельство в пользу адекватности модели, но ни в коей мере как доказательство этой адекватности.

Обычно, значительно более серьезным доводом в пользу новой модели, является предсказание на ее основе неких новых явлений или закономерностей и их последующее экспериментальное обнаружение. Рассмотрим этот подход применительно к нашей модели.

Предложенная нами модель предсказывает некие нетривиальные особенности кинетики цепной реакции. Из анализа модели следует, что скорость нарастания реакции на начальном участке сильно зависит от величины NQ , т. е. от плотности энергии иницилирующего импульса.

Однако, если условия эксперимента подобраны так, что к моменту выхода на плато успевает установиться своего рода «стационарный» режим, т. е. величины N и a приближаются к значениям NZ и a , то концентрация на плато, равная, согласно (2), $p = a/3$, оказывается не зависящей от плотности энергии инициирования. Т. е. должна наблюдаться следующая характерная картина: в определенном интервале плотности энергии инициирования скорость нарастания реакции увеличивается с плотностью энергии иницирующей

шего импульса, однако значения этих скоростей на плато для этих плотностей энергии инициирования совпадают.

Для проверки указанного прогноза были проведены целенаправленные серийные эксперименты измерения кинетики предвзрывных процессов на нитевидных кристаллах AgN при инициировании лазерным излучением различной плотности. Результаты экспериментального наблюдения ожидаемой кинетики на примере и предвзрывной проводимости, и предвзрывной люминесценции, представлены на рисунке 20.

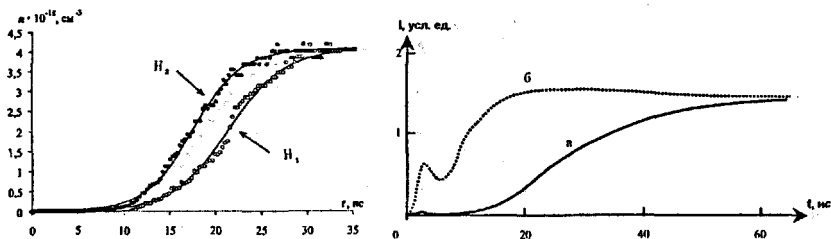


Рисунок 20 – Кинетика предвзрывных процессов при различных плотностях энергии лазерного импульса:

слева – кинетика предвзрывной проводимости ($H_1 \approx 100$ мДж/см²; $H_2 \approx 250$ мДж/см²); справа – кинетика предвзрывной люминесценции (а – $H \approx 15$ мДж/см²; б – $H \approx 100$ мДж/см²)

При рассмотрении радиолуминесценции AgN в рамках предложенной модели инициирования необходимо учесть, что интенсивность захватной люминесценции (Av_i) должна быть пропорциональна концентрации нейтральных дивакансий ($N - N\sim$), а интенсивность рекомбинационной люминесценции – концентрации дивакансий, захвативших электрон ($N\sim$).

Простейшим эффектом предварительного облучения образца является генерация свободных электронов и локализация их на дивакансиях – реакция (9), что должно приводить к уменьшению концентрации нейтральных ($N - N\sim$) и росту концентрации заряженных ($N\sim$) дивакансий; Следовательно, в области не слишком больших доз, в которой еще нет места более сложным эффектам (образование агрегатных центров, коагулянтов и т.д.), дозовые зависимости захватной (Av_i) и рекомбинационной ($h\nu_2$) люминесценции должны быть противоположны – спад $h\nu_1$ и рост $h\nu_2$ при увеличении дозы предварительного облучения.

Для проверки высказанного прогноза были проведены соответствующие целенаправленные исследования. Их результат приведен на рисунке 21.

Аналогичные правой части изменения интенсивности свечения радиолуминесценции от дозы предварительного облучения были зафиксированы и для полосы 1,87 эВ;

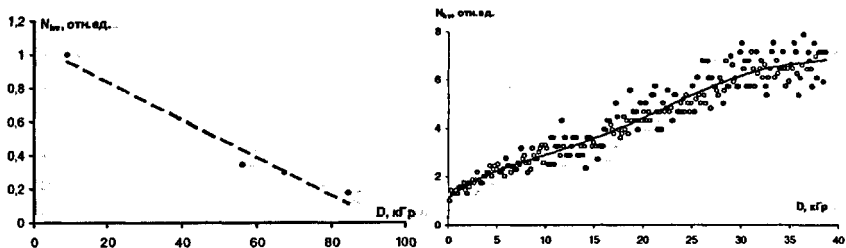


Рисунок 21 – Дозовая зависимость интенсивности для разных полос радиолуминесценции кристалла азида серебра:
слева – дозовая зависимость полосы $< 1,5$ эВ при комнатной температуре;
справа – дозовая зависимость полосы $1,65$ эВ при 80 К

Таким образом, можно утверждать, что проведенные исследования полностью согласуются с предсказанием, сделанным на основе предложенной модели инициирования АТМ, о противоположных дозовых зависимостях интенсивности захватной ($h\nu_i$) и рекомбинационной ($h\nu-r$) люминесценции.

Дивакансионная модель инициирования АТМ, на наш взгляд, органично дополняет вышеуказанную модель звена цепи реакции взрывного разложения АТМ. Она хорошо согласуется с известными из литературы данными, а также с экспериментальным материалом данной работы. Несколько предсказываемых моделью эффектов удалось обнаружить путем целенаправленных прямых измерений соответствующих характеристик предвзрывных процессов.

Поэтому, на данном этапе, предложенная модель, на наш взгляд, может рассматриваться в качестве весьма правдоподобной и непротиворечивой рабочей гипотезы, нуждающейся, однако, в проверке на количественном уровне. Первоочередной задачей в этом плане представляется экспериментальный поиск путей управления чувствительностью АТМ с помощью изменения исходной концентрации актуальных реакционных дефектов.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. Разработаны новые методики исследования ранних стадий взрывного разложения энергетических материалов:

- методика измерения кинетики предвзрывных явлений при лазерном инициировании с субнаносекундным временным разрешением, позволяющая изучать исследуемые процессы, начиная непосредственно с момента инициирования;
- методика измерения топографии предвзрывной люминесценции АТМ с пространственным разрешением ~ 50 мкм в режимах временной развертки (с временным разрешением ~ 1 нс) и фиксации интегральной картины пространственного распределения свечения за первые 200 нс процесса.

2. Установлены, следующие общие закономерности ранних стадий взрывного разложения АТМ:

- в кинетике возникающего взрывного свечения всегда имеются участки, которые можно идентифицировать как предвзрывные;

- наличие предвзрывных стадий взрывной проводимости зависит от уровня возбуждения образца (при плотности энергии лазерного инициирования $H \sim 5$ мДж/см² проводимость обусловлена продуктами взрыва, при $H \sim 30$ мДж/см² начальный участок сигнала проводимости относится к предвзрывному состоянию образца);

- спектр предвзрывной люминесценции не изменяется со временем; кинетика предвзрывной люминесценции совпадает для различных участков ее спектра.

3. Установлены следующие закономерности начальных стадий предвзрывных процессов АТМ:

- начальные стадии предвзрывных процессов чувствительны к структуре образца;

- константа скорости реакции взрывного разложения АТМ на начальных стадиях выше по сравнению с соответствующим параметром взрывного процесса на более поздних стадиях;

- обнаружены проводимость и люминесценция, возникающие в момент инициирования; длительность их переднего фронта в пределах временного разрешения (вплоть до пикосекундного диапазона измерений) совпадает с длительностью возбуждающего импульса; а амплитудные характеристики сильно зависят от уровня инициирования и индивидуальных свойств образцов.

4. При электронном возбуждении обнаружена радиолюминесценция азид серебра и установлены следующие ее свойства:

- при допороговом возбуждении в спектре радиолюминесценции выявлены три полосы - < 1,5; 1,65 и 1,87 эВ;

- при 300 К регистрируется только полоса < 1,5 эВ; при измерениях спектра на 80 К наблюдаются более коротковолновые полосы, на фоне которых полоса < 1,5 эВ не проявляется;

- на предварительно необлученных образцах при 80 К наблюдается интенсивная полоса 1,65 эВ; отжиг облученного при 80 К образца до 300 К с последующим охлаждением до 80 К либо предварительное облучение образца при 300 К и охлаждение до 80 К приводит к трансформации полосы 1,65 эВ в полосу 1,87 эВ.

- полосы радиолюминесценции, обнаруженные при допороговом возбуждении, проявляются и при взрывном разложении азид серебра.

5. Установлены следующие закономерности пространственно-временных характеристик предвзрывной люминесценции АТМ при лазерном инициировании:

- обнаружена очаговая природа зарождения предвзрывной люминесценции;

- гетерогенный характер взрывного разложения АТМ в явном виде проявляется при низких ($H < 30$ мДж/см²) плотностях энергии инициирования, при увеличении уровня возбуждения до $H \sim 100$ мДж/см² процесс развития цепной реакции приобретает квазигомогенный характер;

- путем *прямых измерений* скорости распространения предвзрывной люминесценции определена скорость распространения фронта цепной реакции взрывного разложения АТМ, величина этой скорости меньше скорости звука для исследованных материалов (для нитевидных кристаллов AgN_2 , измеренная скорость распространения реакции 1300 ± 200 м/с, для нитевидных кристаллов $Pb_2(S_2)_2$ - 1500 ± 200 м/с).

6. Предложена возможная модель иницирования АТМ, основанная на предположении о существовании в АТМ реакционных центров в виде ассоциатов катионной и анионной вакансий (дивакансий):

- модель включает захват свободных электронов, создаваемых иницирующим импульсом, нейтральной дивакансией с образованием заряженной катионной вакансии; процессы рекомбинации дырки с F-центром, приводящей к восстановлению нейтральной дивакансий; захвата, дырки на катионную вакансию, приводящего к размножению дырок, и процесс захвата дырки на нейтральную дивакансию, также приводящий к размножению дырок;

- сделанные на основе анализа предложенной модели предсказания зависимости скорости реакции взрывного разложения от плотности энергии иницирования, а также зависимости интенсивности разных полос радиолюминесценции от дозы предварительного облучения хорошо согласуются с целенаправленными прямыми измерениями соответствующих характеристик.

ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Адуев, Т. 77. Предвзрывная проводимость азида серебра / Б. 77. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов // Письма в ЖЭТФ. - 1995. - Т. 62. - № 3. - С. 203-204.
2. Адуев, Б. 77. Предвзрывная люминесценция азида серебра / Б. 77. Адуев, Э. Д. Алукер, А. Г. Кречетов // Письма в ЖТФ. - 1996. - Т. 22. - № 16. - С. 24-27. -
3. Адуев, Б. П. Взрывная люминесценция азида серебра / Б. 77. Адуев, Э. Д. Алукер, А. Г. Кречетов, К. В. Чубукин // Письма в ЖЭТФ. - 1997. - Т. 66. - № 2. - С. 101-103.
4. Адуев, Б. 77. Исследование механизма взрывного разложения азида серебра методами спектроскопии с высоким временным разрешением / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, Ю. А. Захаров, А. 77 Кречетов // Изв. вузов. Физика. - 1997. - № 11. - С. 162-175.
5. Адуев, Б. П. Кинетика развития взрывного разложения азида серебра при иницировании лазерным импульсом / Т. Я. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов // Химическая физика. - 1997. - Т. 16. - № 8. - С. 130-136.
6. Адуев, Б. П. Предвзрывная люминесценция азида серебра / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, А. 77 Кречетов // Химическая физика. - 1998. - Т. 17. - № 3. - С. 59-64.

7. Адуев, Б. П. Спектры предвзрывного оптического поглощения азида серебра / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, А. Г. Кречетов, Ю. П. Сахарчук // Письма в ЖТФ.-1998.-Т. 24.-№ 16.-С. 31-34.
8. Адуев, Б. П. Люминесценция азидов тяжелых металлов в процессе взрывного разложения / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов, Ю. П. Сахарчук // Твердотельные детекторы ионизирующих излучений. Труды Первого Всероссийского симпозиума ТТД-97.-Екатеринбург: Уральский гос. техн. университет, 1998.-С. 110-117.
9. Aduev, B. P. Explosive luminescence of heavy metal azides / B. P. Aduev, E. D. Aluker, A. G. Krechetov, A. Yu. Mitrofanov // Physica Status Solidi (b).-1998.-Vol. 207.-Pp. 535-540.
10. Адуев, Б. П. Кинетика предвзрывной проводимости и люминесценции азидов серебра / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, А. Г. Дробчик, А. Г. Кречетов // Сборник трудов IV Всероссийской школы семинара «Люминесценция и сопутствующие явления».-Иркутск: Иркутский гос. университет, 1998.-С. 154-158.
11. Адуев, Б. П. Взрывная люминесценция азидов тяжелых металлов / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Г. Дробчик, А. Г. Кречетов // Известия вузов. Физика.-1999.-№ 10.-с. 76.
12. Адуев, Б. П. Спектрометр для исследования спектрально-кинетических характеристик люминесценции и оптического поглощения, вызванных действием импульса электронов на широкозонные материалы / Б. П. Адуев, Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов, В. П. Швайко // Труды IX Межнационального совещания «Радиационная физика твердого тела».-Том 2.-М.: МГИЭМ, 1999.-С. 1124-1133.
13. Адуев, Б. П. Кинетика предвзрывной проводимости азидов серебра / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов // Письма в ЖТФ.-1999.-Т. 25.-№ 22.-С. 44-48.
14. Адуев, Б. П. Спектр предвзрывной люминесценции азидов таллия / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, А. Б. Гордиенко, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов, А. С. Поглавной // Письма в ЖТФ.-1999.-Т. 25.-№ 9.-С. 28-30.
15. Адуев, Б. П. Взрывное разложение азидов тяжелых металлов / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, Ю. А. Захаров, А. Г. Кречетов // Журнал экспериментальной и теоретической физики.-1999.-Т. 116.-№ 5(11).-С. 1676-1693.
16. Адуев, Б. П. Предвзрывная проводимость азидов серебра / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов // Известия вузов. Физика.-1999.-№ 10.-с. 76.
17. Адуев, Б. П. Предвзрывные явления в азидовых тяжелых металлах / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Н. Дробчик, Ю. А. Захаров, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов // Физика горения и взрыва.-2000.-Т. 36.-№ 5.-С. 78-89.
18. Адуев, Б. П. Предвзрывная люминесценция азидов свинца / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Н. Дробчик, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митро-

фанов, М.М. Кукля, А. Б. Кунц, Э.Х. Юнк //Изв. вузов. Физика.-2000.-Т. 43. -№ 3.-С. 17-22.

19. Адуев, Б. П. Закономерности развития взрыва азидов тяжелых металлов / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Н. Дробчик, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов //Известия Томского политехнического университета.-2000.-Т. 303.-№ 2.-С. 92-103.

20. Адуев, Б. П. Импульсная проводимость галогенидов серебра и таллия при возбуждении пикосекундными пучками рентгеновского и лазерного излучения / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Н. Л. Алукер, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов, В. М. Фомченко, В. Н Швайко // «Люминесценция и сопутствующие явления»: Труды VI Всероссийской школы-семинара. - Иркутск: Иркутский гос. университет, 2001.-С. 4-13.

21. Kuklja, M.M. Role of electronic excitations in explosive decomposition of solids / М. М. Kuklja, В.Р. Aduev, E.D. Aluker, V.I. Krasheninin, A. G. Kretchetov, A. Yu. Mitrofanov // Journal of Applied Physics-2001.-Vol. 89-No. 7 -Pp. 4156-4166.

22. Aduev, B.P. Experimental investigation of pre-explosion phenomena in heavy metal azides / B.P. Aduev, E.D. Aluker, A. G. Kretchetov 1112th Biennial International Conference of the APS Topical Group on Shock Compression of Condensed Matter.- New York: APS, 2001. - Н 1.064.

23. Адуев, Б. П. Кинетика ранних стадий предвзрывной проводимости азидов серебра / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов //Физика горения и взрыва.-2002.-Т. 38.-№ 3.-С. 141-144.

24. Адуев, Б. П. Аномальная импульсная проводимость галогенидов серебра / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, А. Г. Кречетов, В. М. Фомченко //Журнал научной и прикладной фотографии.-2002.-Т. 47,-№ 4.-С. 59-69.

25. Aduev, B.P. Pre-explosive processes in heavy metal azides / B.P. Aduev, E.D. Aluker, A. G. Kretchetov //New Trends in Research of Energetic Materials. Proceedings V Seminar.-Pardubice: University of Pardubice, 2002.-Pp. 18-28.

26. Адуев, Б. П. Предвзрывные явления в азидов тяжелых металлов при иницировании импульсными лазерным и электронным пучками / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Н. Дробчик, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов //Труды VII Всероссийской школы-семинара «Люминесценция и сопутствующие явления».-Иркутск: Иркутский гос. университет, 2002,-С. 4-10.

27. Захаров, Ю. А. Предвзрывные явления в азидов тяжелых металлов / Ю. А. Захаров, Э. Д. Алукер, Б. П. Адуев, Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов.-М.: ЦЭИ «Химмаш», 2002.-116 с.

28. Адуев, Б. Я. Динамическая топография предвзрывной люминесценции азидов серебра / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов //Физика горения и взрыва.-2003.-Т. 39.-№ 5.-С. 105-108.

29. *Aduев, В. П.* Space-time characteristics of pre-detonation luminescence origin in heavy metal azides / *Л. П. Адуев, Е. Д. Алукер, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов, Е. В. Тупицин II Proceedings VI Seminar New Trend in Research of Energetic Materials.*-Pardubice: University of Pardubice, 2003.-Pp. 12-17.
30. *Aduев, В. П.* Pre-detonation phenomena in heavy metal azides I *В.П. Адуев, Е. Д. Алукер, А. Г. Кречетов II Proceedings VI Seminar New Trend in Research of Energetic Materials.*- Pardubice: University of Pardubice, 2003.-Pp. 30-35.
31. *Белокуров, Г.М.* Методика исследования пространственно-временных характеристик предвзрывной люминесценции / *Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов, В. Н. Швайко II 12th International conference on radiation physics and chemistry of inorganic materials. Proceedings.*-Tomsk: TPU, 2003. -С. 156-158.
32. *Алукер, Э.Д.* Дивакансионная модель взрывного разложения азида серебра / *Э.Д. Алукер, Б. П. Адуев, А. Г. Кречетов, Е. В. Тупицин II 11th International conference on radiation physics and chemistry of inorganic materials. Proceedings.*-Tomsk: TPU, 2003.-С. 121-125.
- ЪБ.Дробчик, А. Н.* Спектрально-кинетические характеристики допороговой радиолюминесценции азида серебра / *А. Н. Дробчик, Б. П. Адуев, А. Г. Кречетов, Е. В. Тупицин III 12th International conference on radiation physics and chemistry of inorganic materials. Proceedings.*-Tomsk: TPU, 2003.-С 206-208.
34. *Кречетов, А. Г.* Динамическая топография предвзрывной люминесценции азида серебра / *А. Г. Кречетов, А.Ю. Митрофанов, Е.В. Тупицин II XIth International conference on radiation physics and chemistry of inorganic materials. Proceedings.*-Tomsk: TPU, 2003.-С. 274-277.
35. *Митрофанов, А. Ю.* Распространение цепной реакции взрывного разложения азида серебра / *А. Ю. Митрофанов, Э.Д. Алукер, А. Г. Кречетов, Е. В. Тупицин III 12th International conference on radiation physics and chemistry of inorganic materials. Proceedings.*-Tomsk: TPU, 2003.-С 362-364.
36. *Адуев, Б. П.* Распространение цепной реакции взрывного разложения в кристаллах азида серебра / *Б. П. Адуев, Э.Д. Алукер, А.Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов // Физика горения и взрыва.*-2003.-Т. 39.-№ 6.-С. 104-106.

Кроме перечисленных монографии и статей по теме диссертации опубликована 31 печатная работа (тезисы докладов на Международных и Всероссийских конференциях и симпозиумах, перечисленных в пункте «Апробация работы»).

СПИСОК ЦИТИРУЕМОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Крашенинин, В. И.* Электрополеное разложение азида серебра: влияние поперечных электрического и магнитного полей / *В. И. Крашенинин, Л. В. Кузьмина, В. Ю. Захаров, А. Ю. Сталинин I X* Химическая физика. -1995.-Т. 14.-№4.-С. 126—135.

2. *Иванов, Ф.И.* Структурно-деформационные дефекты в нитевидных кристаллах азидов тяжелых металлов. Дисс. ... докт. хим. наук/Кемеровский гос. университет.-Кемерово, 1998.-387 с.
3. *Coffey, S.F.* Plastic deformation, energy dissipation, and initiation of crystalline explosives *I.S.F. Coffey, J. Sharma* //Physical Review B.-1999. -Vol. 60.-Рр. 9365-9371.
4. *Крашенинж, В. И.* О влиянии электрического поля на скорость разложения нитевидных кристаллов азида серебра / *В. И. Крашенинж, Л. В. Кузьмина, В. Ю. Захаров* //Химическая Физика.-1997.-Т. 16.-№ 4.-С. 74—77.
5. *Зельдович, Я. Б.* Кинетика химических реакций в пламенах *ИЯ. Б. Зельдович, Н. Н. Семенов* //Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики.- 1940.-Т. 10.- С. 1116-1136.
6. *Блатт, Ф.* Физика электронной проводимости в твердых телах.-М: Мир, 1971.-276 с.
7. *Алукер, Э. Д.* Электронные возбуждения и радиоломинесценция щелочногаллоидных кристаллов / *Алукер Э. Д., Лусис Д. Ю., Чернов С. А* - Рига: Зинатне, 1979.-251 с.
8. *Антонов-Романовский, В. В.* Введение в кинетику фотоломинесценции кристаллофосфоров.-М.: Наука, 1966.-324 с.
9. *Куракин, С. ф.* Морфология кристаллов азида серебра, выращенных из гидроксида аммония / *Куракин СИ., Диамант Г.М., Пугачев В.М* //Известия АН СССР. Неорганические материалы.-1990.-Т. 26.-№ 11.-С. 2301-230.

Подписано к печати 16.02.2004 г. Формат 60x84¹/i6- Бумага типографская.
Печать офсетная. Печ. л. 2,5. Тираж 100 экз. Заказ № 25/J36"

Кемеровский государственный университет, 650043, Кемерово, ул. Красная, 6.
Отпечатано в издательстве «Кузбассвуиздат»,
650043, Кемерово, ул. Ермака, 7.

3969