

К ВОПРОСУ О КИНЕТИКЕ И МЕХАНИЗМЕ ВЗРЫВНОГО РАЗЛОЖЕНИЯ АЗИДОВ ТЯЖЕЛЫХ МЕТАЛЛОВ

В. И. Корепанов, В. М. Лисицын, В. И. Олешко, В. П. Ципилев

Томский политехнический университет, 634050 Томск, lisitsyn@tpu.ru

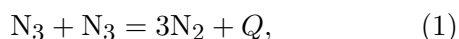
Экспериментально исследованы процессы взрывного разложения азидов тяжелых металлов при лазерном импульсном возбуждении в широком диапазоне уровней воздействия (от пороговых до 100-кратного превышения энергетического порога зажигания) и временном интервале, охватывающем индукционный период, быстрое взрывное разложение и разлет продуктов детонации. Изучены взрывное свечение и динамика разлета продуктов разложения в воздухе и вакууме, измерены скорости фронта волны взрывного разложения, импульса сжатия и разлета продуктов взрыва. На основе полученных результатов обсуждается возможность существования предвзрывных явлений, сделан анализ механизмов лазерного инициирования азидов тяжелых металлов.

Ключевые слова: азиды тяжелых металлов, лазерное зажигание, кинетика, механизмы инициирования.

1. СОСТОЯНИЕ ВОПРОСА И ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Известно [1–4], что одним из основных параметров, указывающих на тот или иной механизм инициирования взрывчатых веществ (ВВ), является энергетический порог зажигания (ЭПЗ). По измерениям ЭПЗ в различных условиях лазерного импульсного воздействия на ВВ была разработана тепловая очаговая модель инициирования азидов тяжелых металлов (АТМ) [1, 2, 5–7], которая в 1980–1990-е годы считалась общепринятой [7–9].

Согласно этой модели энергия лазерного импульса локализуется на оптических неоднородностях, неизбежно присутствующих в объеме прозрачного для лазерного излучения ВВ. В объеме неоднородности и ее окрестности возникает температурный очаг, приводящий к быстрому разложению, воспламенению и детонации ВВ. Основная реакция, обеспечивающая тепловое ускорение процесса, дается выражением [10]



где N_3 — радикалы, $Q = 1 \div 2$ кДж/г (≈ 10 эВ на акт).

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке программы сотрудничества Министерства образования РФ и Министерства обороны РФ «Научно-инновационное сотрудничество», а также Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 04-02-16339).

Прямые экспериментальные доказательства очаговой природы зажигания представлены в опытах с нитевидными кристаллами [4] и прессованными порошками [11] азидов свинца. Установлено, что взрывное разложение вещества начинается из микрообъемов кристалла размерами порядка 10^{-5} см.

В тепловой модели нет достаточного обоснования механизма протекания реакции (1). Для преодоления этой трудности в [12–16] предлагается заменить представления о взаимодействии радикалов электронно-дырочным взаимодействием с переходом от тепловой очаговой модели развития процесса к цепной, т. е. к объемному цепному размножению зонных носителей заряда.

Аргументы в пользу того или иного механизма лазерного инициирования АТМ можно извлечь из сведений о кинетике взрывного разложения, особенно на этапах процесса, предшествующих взрыву. Впервые кинетика процессов взрывного разложения АТМ изучалась в [14–16], где сообщалось о наблюдаемых явлениях проводимости и свечения образцов до момента их механического разрушения. Эти явления, по мнению авторов, относятся к предвзрывным и безоговорочно свидетельствуют в пользу гипотезы о цепном характере процесса, в основе которого лежит размножение зонных носителей заряда (дырок) в объеме ВВ, подвергнутом внешнему воздействию. Результаты этого цикла работ обобщены в монографии [17].

Анализ этих работ указывает на большие возможности многопараметрических измерений с высоким временным разрешением для получения информации о первичных процессах. Вместе с тем обнаруживается и ряд методических трудностей, связанных со спецификой изучения взрывного разложения ВВ (прежде всего, с влиянием ударно-волновых и плазодинамических эффектов), преодолеть которые, по нашему мнению, не удалось. Так, при интерпретации природы взрывного свечения необходимо исходить из того, что по окончании взрывного разложения вещество находится практически в собственном объеме и представляет собой плотную (сильносжатую) низкотемпературную плазму, спектр излучения которой является сплошным по определению. Однако авторы [14, 15] при интерпретации полученных ими спектров взрывного свечения полностью игнорируют эту специфику взрыва. Очевидно, что решение вопроса о природе взрывного разложения возможно только путем прямых экспериментальных измерений фазового состояния вещества (твердое тело, газ или плазма) в момент появления взрывного свечения и проводимости. Такие измерения до сих пор не проводились.

С другой стороны, при исследовании процессов инициирования ВВ необходимо выполнение следующих условий [18], без соблюдения которых достоверность экспериментальных результатов и их интерпретация вызывают сомнения:

- возбуждать локальный объем ВВ, т. е. предельно уменьшать объем каустики лазерного пучка;
- добиваться высокой однородности освещаемого участка ВВ, т. е. работать с дифракционными лазерными пучками с применением специальных схем фокусировки;
- регистрировать кинетику свечения при взрывном разложении (независимо от типа фотодетектора) непосредственно из зоны лазерного воздействия, что требует разработки нетрадиционных способов и схем наблюдения за объектом исследования.

С учетом вышесказанного нами было проведено комплексное исследование кинетики взрывного разложения АТМ. Основная идея заключалась в том, что для получения наиболее достоверной информации о первичных процессах инициирования ВВ необходимо разделить в пространстве и во времени регистрацию про-

цессов, протекающих в зоне облучения лазерным пучком, и процессов за пределами этой зоны.

Цель работы — определение фазового состояния вещества в момент появления вспышки свечения и импульса тока проводимости. Нами исследовалось движение передней (облучаемой) поверхности образца, свечение взрывного разложения, электропроводность и акустический отклик образца, а также свечение разлетающихся продуктов взрыва. Эксперименты проводились на воздухе и в вакууме на специально разработанном для этих целей лазерном стенде. Важной задачей представлялось исследование параметров процесса взрывного разложения как при пороговых уровнях лазерного воздействия, так и при воздействиях, многократно превышающих пороговые величины.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1. Она является усовершенствованным вариантом схемы, описанной в [2]. В качестве источника оптического излучения использовался одномодовый одночастотный неодимовый лазер 1, состоящий из задающего генератора и пятикаскадного усилителя бегущей волны. Максимальная энергия излучения лазера 20 Дж, длительность импульса была постоянной и равной (на полувысоте) $\tau = 20$ нс. Лазер излучает пучок 1', близкий к дифракционному, и имеет минимальный статистический разброс параметров излучения. Формирование пучка с однородным распределением освещенности и резким контрастом на границах достигалось проекционным способом. Использование проекционного способа позволило наблюдать за свечением взрывающихся образцов только с участка ВВ, облучаемого лазерным пучком.

Диафрагма 2, вырезающая центральную часть гауссова пучка 1' лазера 1, и поверхность образца 4 находятся в сопряженных плоскостях по отношению к объективу 3, в качестве которого выбран ахромат с исправленными сферическими аберрациями. Увеличение оптической системы составляло 0.1. ФЭУ 8 и 9 синхронно регистрировали взрывное свечение 1'' (области спектра $500 \div 600$ и $700 \div 900$ нм соответственно) из зоны лазерного воздействия, наблюдаемое через объектив 3, диафрагму 2, интерференционное зеркало 5 и светоделительный кубик 6 (зонные ФЭУ). ФЭУ 10 установлен

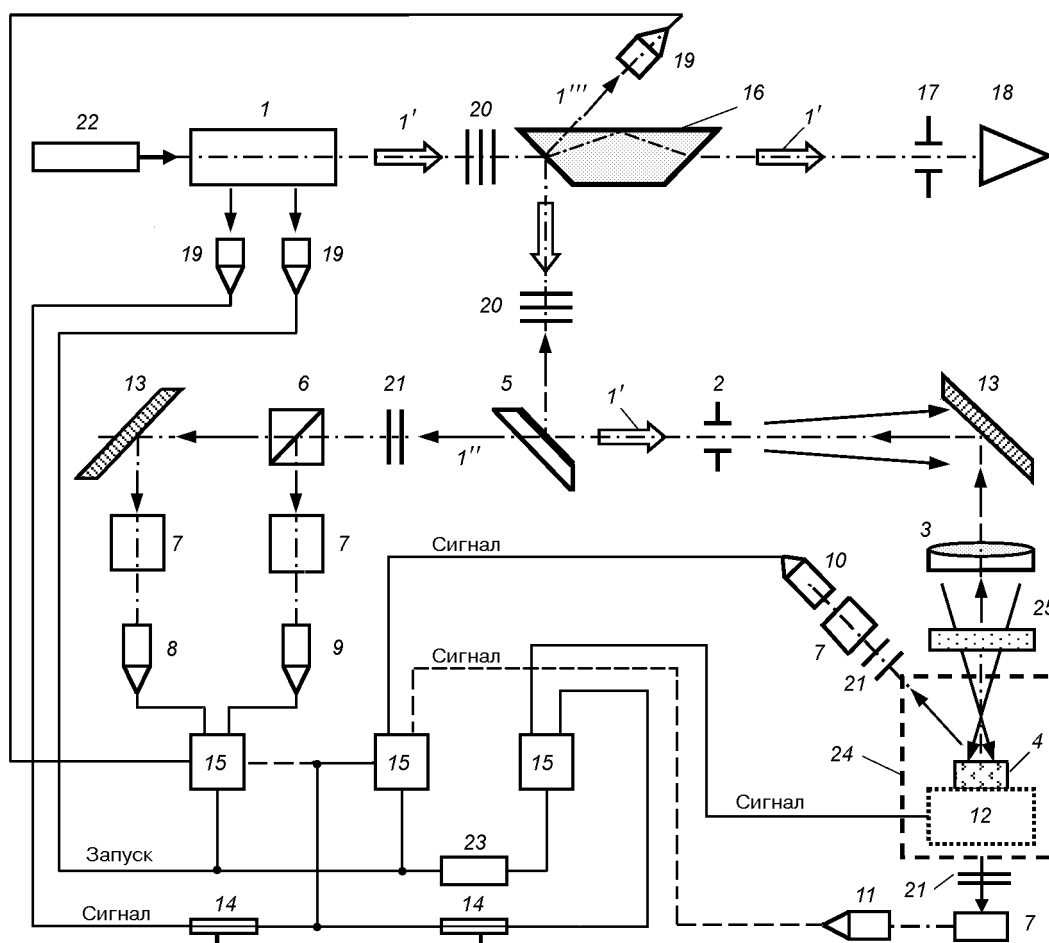


Рис. 1. Схема экспериментальной установки:

1 — неодимовый лазер (1060 нм), 2 — формирующая диафрагма, 3 — объектив, 4 — испытуемый образец, 5 — интерференционное зеркало (1060 нм), 6 — светоделительный кубик, 7 — полосовые фильтры (светофильтры, монохроматоры МУМ), 8–11 — фотоумножители ФЭУ-106, 12 — акустический датчик, 13 — поворотные зеркала, 14 — кабельные линии задержки (200 ÷ 1000 нс), 15 — осциллографы С8-14, 16 — призма Дове, 17 — измерительная диафрагма, 18 — калориметр ИКТ-1Н, 19 — коаксиальные элементы ФЭК-19КМ, 20, 21 — нейтральные светофильтры, 22 — юстировочный лазер ЛГ-38, 23 — генератор задержки Г5-56, 24 — вакуумная камера, 25 — защитная плоскопараллельная пластинка

традиционным способом, и с его помощью наблюдалось за развитием процесса во всем объеме образца и его окрестности, включая весь объем экспериментальной ячейки (ФЭУ панорамного обзора). ФЭУ 11 фиксировал вспышку свечения на тыльной стороне образца, сигнализирующую о выходе детонационной волны на тыльную сторону (случай прессованных таблеток). Изменение оптических характеристик образца в момент лазерного воздействия определялось путем регистрации отраженного от образца лазерного пучка $1'''$ коаксиальным фотоэлементом 19.

Импульс давления, возникающий в объ-

еме ВВ при взрывном разложении, фиксировался акустическим датчиком 12. Датчик тарирован в области исследуемых длительностей нагружения, его чувствительность порядка 0.15 В/бар, временное разрешение 5 нс. Конструкция и принцип работы датчика подробно изложены в [19]. Общее временное разрешение каналов регистрации (ФЭУ и осциллографов) было не хуже 10 нс. Информация о кинетических параметрах взрывного процесса синхронно поступала на три двухлучевых запоминающих осциллографа.

Образцы азидов свинца ($Pb(N_3)_2$), серебра (AgN_3) и таллия (TlN_3), синтезированные

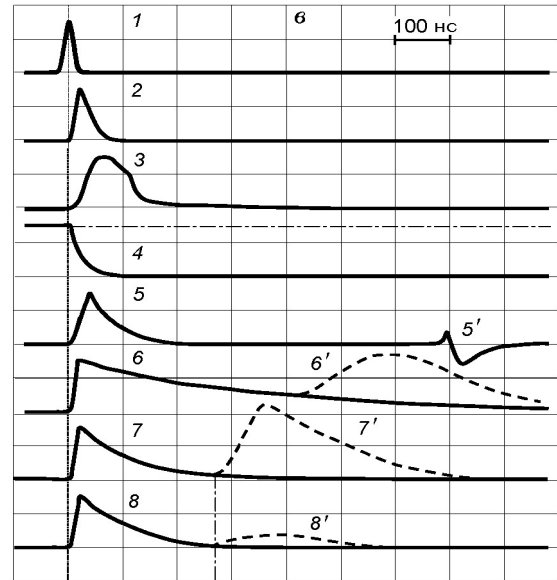
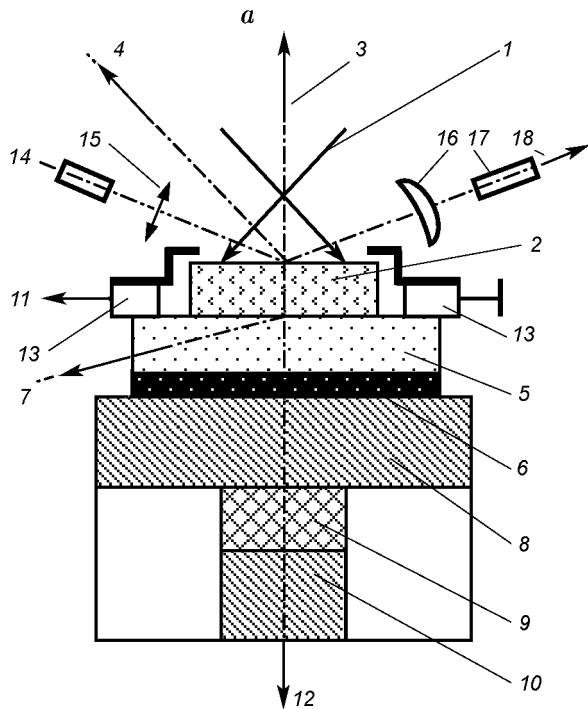
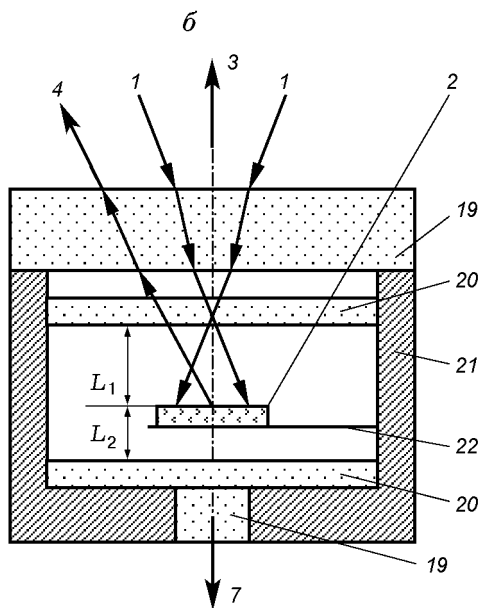


Рис. 2. Экспериментальные сборки (а, б) и совмещенные осциллограммы процессов, сопровождающих взрывное лазерное разрушение тонкой металлической пленки (в):

а, б: 1 — лазерный пучок, 2 — образец АТМ, 3 — сигнал вспышки зонный, 4 — сигнал вспышки панорамный, 5 — подложка толщиной 5 мм, 6 — напыленная пленка, 7 — сигнал вспышки с тыльной поверхности образца, 8 — металлическая плоскопараллельная пластина толщиной 2 мм (первый электрод), 9 — пьезоэлемент, 10 — второй электрод датчика, 12 — сигнал акустического датчика, 14 — лазер (657 нм), 15 — линза фокусирующая, 16 — объектив проекционный, 19 — окна камеры, 20 — прозрачный экран, 21 — корпус, 22 — тонкая металлическая проволочка; в: $L = 4.7$ мм; 1 — форма лазерного импульса, 2 — сигнал зонного ФЭУ, 3 — форма токового импульса, 4 — кинетика изменения угла отражения лазерного луча, характеризующая начало движения пленки, 5, 5' — совмещенный с лазерным импульсом сигнал акустического датчика соответственно с первого и второго электродов; 6, 7, 6', 7' — форма сигнала вспышки, регистрируемых панорамным ФЭУ в воздухе и вакууме соответственно, 8, 8' — форма сигнала вспышки с тыльной стороны пленки



по методике [1, 15], в виде насыпных порошков и прессованных (давление 10^9 Па, плотность 4.1 г/см^3) таблеток диаметром $2 \div 3$ мм и толщиной $100 \div 500$ мкм, а также макрокристаллов AgN_3 размерами $1 \times 1 \times 0.4$ мм и нитевидных кристаллов AgN_3 размерами $0.1 \times 0.05 \times 5$ мм устанавливались в специальных сборках, изображенных на рис. 2. Сборки позволяли одновременно регистрировать до шести параметров процесса взрывного разложения АТМ. Для синхронной регистрации взрывного свечения, импульса давления в образце и движения передней поверхности использовалась схема рис. 2, а. Здесь испытуемый образец 2 расположен на стеклянной подложке 5, имеющей акустический контакт с электродом 8 пьезодатчика 9. Для регистрации момента начала движения передней поверхности образца использовался зеркальный компонент френелевского отражения 18 от поверхности кристаллов и порошков АТМ, прессованных в специальных для этой цели условиях. Увеличенное изображение пучка 18 вспомогательного лазера 14 строилось на входной щели монохроматора 17. Схема использует принцип «оптического рычага» и обеспечивает чувствительность измерительного тракта к перемещению на уровне 5 мВ/мкм .

Для исследования природы взрывной проводимости использовалась схема, позволяющая отделить собственную проводимость твердого тела от проводимости продуктов разложения. Для этого образец располагался между электродами 13 бесконтактно (ширина зазоров 100 мкм ; напряжение 10 В). Возникновение электропроводности при взрывном разложении образцов фиксировалось появлением разрядного токового импульса 11. Схема имела коаксиальное исполнение, работала в режиме «ключа» и обеспечивала временное разрешение $\approx 5 \text{ нс}$.

В ряде опытов с целью устранения влияния подложки на процессы разлета продуктов образцы укреплялись на тонкой металлической проволочке 22 (диаметр 50 мкм) и устанавливались в вакуумной камере между прозрачными экранами 20 (стеклянные плоскопараллельные пластинки) на различных расстояниях L_1 и L_2 от них. Схема крепления образцов и конструкция камеры для данной серии испытаний приведены на рис. 2, б.

Контроль синхронизации и временной привязки каналов регистрации к моменту ла-

зерного воздействия осуществлялся моделированием «взрыва» тонкой металлической пленки 6, напыленной на стеклянную подложку 5. При лазерном испарении пленки образовывалось отверстие, по которому определялся фактический диаметр лазерного пучка на поверхности образца. Осциллограммы кинетики разрушения пленки приведены на рис. 2, в. Методика обеспечивает с точностью до 10 нс привязку сигналов ФЭУ и акустического датчика к максимуму лазерного импульса, поскольку длительность процесса разрушения пленки сопоставима с длительностью лазерного воздействия, о чем свидетельствует осциллограмма сигнала зонного ФЭУ (кривая 2 на рис. 2, в).

Для оценки скорости разлета плазменного факела перед пленкой на расстоянии L устанавливался прозрачный экран. Момент соударения фиксировался по интенсивной вспышке, регистрируемой панорамным ФЭУ 10 (кривые 6' и 7' на рис. 2, в) и панорамным ФЭУ 11 (кривая 8'). При плотностях энергии лазерного импульса $H = 3000 \text{ мДж/см}^2$ (порог разрушения пленки) скорость разлета в условиях вакуума достигала 18000 м/с . Достаточно высокая скорость расширения плазмы обеспечивала быстрое замыкание контактов и задержку токового импульса не более чем на 10 нс (кривая 3 на рис. 2, в).

3. ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В первой серии опытов с образцами АТМ измерялись ЭПЗ при облучении пучками диаметром d от 1 мм до 50 мкм . Пороги определялись по уровню 0.5 на вероятностной кривой иницирования [1, 2]. Первый размер соответствовал «широкому» пучку [20], для которого пороговые плотности энергии близки к минимальным [2]. Для исследованных образцов найдены следующие пороги: $H_{0.5} = (14.6 \pm 2.4) \text{ мДж/см}^2$ для прессованных таблеток $\text{Pb}(\text{N}_3)_2$; $(11.8 \pm 4.6) \text{ мДж/см}^2$ для прессованного AgN_3 ; $(18 \pm 3.1) \text{ мДж/см}^2$ для прессованного TlN_3 ; $(103 \pm 14) \text{ мДж/см}^2$ для макрокристаллов AgN_3 и $(30 \pm 16) \text{ мДж/см}^2$ для нитевидных кристаллов AgN_3 . Для насыпных порошков азидов свинца и серебра $H_{0.5} = (510 \pm 60)$ и $(480 \pm 80) \text{ мДж/см}^2$ соответственно. Установлено, что ЭПЗ слабо зависит от условий окружающей среды (воздушная среда, вакуум) и резко возрастает с уменьшением размера пучка, достигая при $d = 50 \text{ мкм}$ зна-

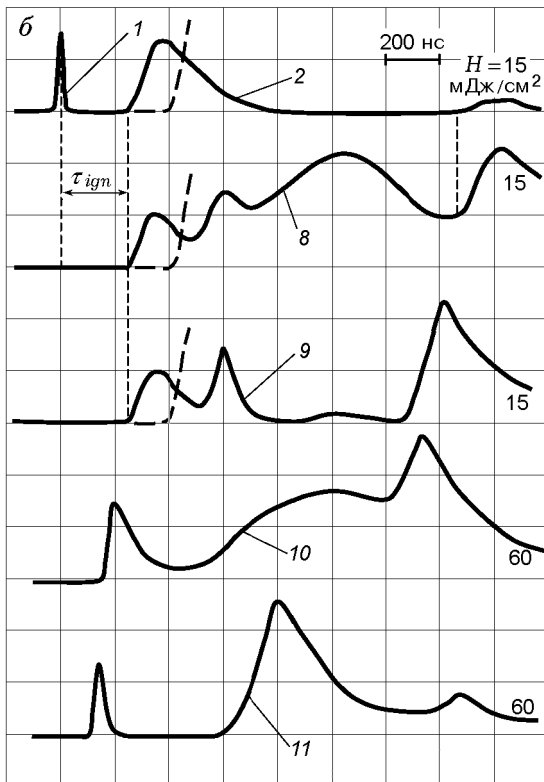
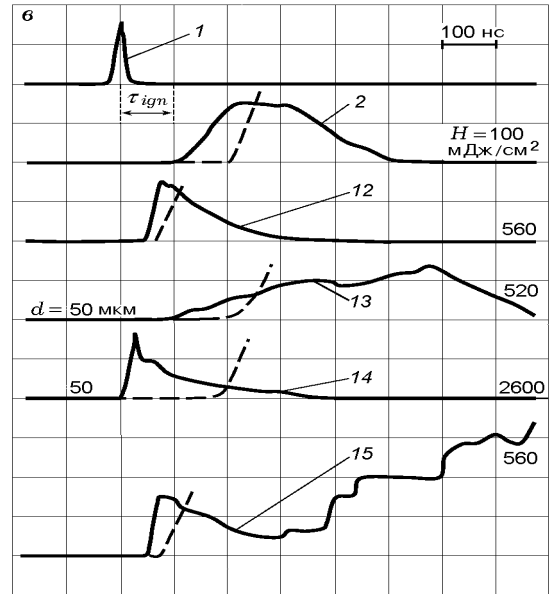
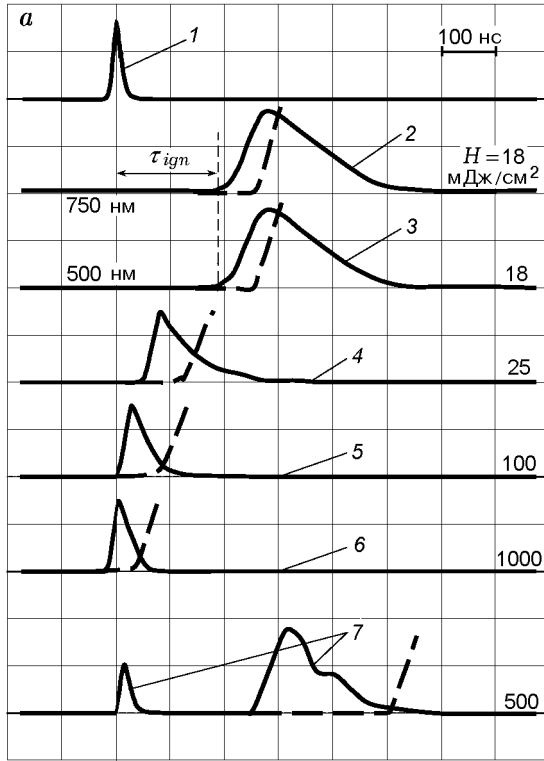


Рис. 3. Типичные совмещенные осциллограммы кинетики взрывного разложения порошков АТМ:

на оси ординат отложены относительные величины сигналов измерительных систем; $d = 600$ мкм (кроме обозначенных); штриховые линии отражают момент появления ударного фронта на тыльной поверхности образца; *a* — взрывное свечение прессованных (2–6) и насыпных (7) порошков $Pb(N_3)_2$, наблюдаемое из зоны облучения при различных значениях H : 1 — форма лазерного импульса, 2, 3 — кинетика сигналов ФЭУ при уровнях ЭПЗ на длинах волн 750 и 500 нм соответственно, $h = 100$ (2–6) и 1250 мкм (7); амплитуда сигналов нормирована с весовым коэффициентом $K = 1$ (2, 3), 0.5 (4), 0.1 (5), 0.015 (6), 1 и 0.12 (кривая 7 для первого и второго пиков); *б* — кинетика свечения прессованных порошков $Pb(N_3)_2$ толщиной 200 мкм, наблюдаемая с помощью панорамных ФЭУ: 8, 9 — образец на подложке ($L = 2.5$ мм), 10, 11 — на тонкой проволочке, $L_1 = 2.3$ мм, $L_2 = 3$ мм; *в* — кинетика свечения при взрывном разложении макрокристаллов AgN_3 толщиной 400 мкм: 2, 12–14 — сигналы вспышки, наблюдаемые из зоны лазерного воздействия, 15 — при панорамном обзоре

чений (80 ± 12) мДж/см² для прессованного AgN₃, (310 ± 45) мДж/см² для прессованного Pb(N₃)₂, (500 ± 220) мДж/см² для макрокристаллов AgN₃.

Выявлено, что при уровнях возбуждения, превышающих ЭПЗ, не происходит изменения коэффициента отражения образцов во время лазерного воздействия, вплоть до возникновения оптического макропробоя, сопровождаемого вспышкой свечения и изменением формы сигнала I''' на уровне, превышающем чувствительность фотодетекторов. Точный порог оптического пробоя удается установить для насыпных образцов, поскольку для этого случая он находится ниже ЭПЗ. В условиях широкого пучка и отсутствия электродов порог пробоя составил 250 и 350 мДж/см² для Pb(N₃)₂ и AgN₃ соответственно.

Во второй серии опытов исследовалась кинетика взрывного разложения. Типичные осциллограммы кинетики при пороговых и надпороговых уровнях возбуждения приведены на рис. 3. При анализе рис. 3,а прежде всего отметим то, что практически вне зависимости от условий расположения образца, свойств окружающей среды и чувствительности измерительного тракта зонные ФЭУ регистрируют один короткий пик свечения. Вспышки свечения на различных длинах волн (в том числе в областях спектра $750 \div 850$ и $500 \div 600$ нм, где по данным [15] соответственно расположены спектральные максимумы разнесенных во времени сигналов предвзрывной люминесценции и взрывного свечения) имеют полностью идентичную кинетику (см. кривые 2 и 3 на рис. 3,а). Отсюда следует, что наблюдаемое свечение не является суммой свечения «холодного» неразрушенного вещества (предвзрывной люминесценции) и свечения «горячих» продуктов разложения и может быть идентифицировано как взрывное. Если принять обратное и следовать [15], то следовало бы ожидать запаздывания максимума кривой 3 относительно максимума кривой 2 на время не меньше 800 нс.

Отметим, что при 6-кратном превышении ЭПЗ (кривая 5 на рис. 3,а) задержка зажигания практически исчезает и длительность вспышки принимает минимальное значение (≈ 50 нс), а при 60-кратном — возможно наложение вспышки оптического пробоя на взрывное свечение (кривая 6 на рис. 3,а). Наблюдать пробойные явления при взрывном разложении удобнее на насыпных образцах, где

ЭПЗ (≈ 500 мДж/см²) превышает порог оптического пробоя. Кроме того, в такой постановке эксперимента должна возрасти вероятность наблюдения предвзрывных явлений (например, предвзрывной люминесценции) не только в режиме инициирования, но и в отсутствие взрыва, поскольку в данном случае реализуются высокие уровни возбуждения начальных стадий процесса, но одновременно реализуются крайне неблагоприятные условия [5] на поздних стадиях — стадиях интенсивного теплового разложения (в силу высокой пористости происходит интенсивная разгрузка тепловых очагов из объема или с поверхности микрокристаллов ВВ за счет прорыва продуктов разложения в окружающие поры). Типичная осциллограмма процесса инициирования насыпных порошков при пороговых уровнях лазерного воздействия представлена кривой 7 на рис. 3,а, где первый максимум вспышки соответствует оптическому пробую, второй — собственно взрывному разложению. При отказе зажигания образца (< 450 мДж/см²) второй пик исчезает и наблюдается только вспышка оптического пробоя.

Обращает на себя внимание следующий важный факт. Структура сигналов ФЭУ панорамного обзора (рис. 3,б) значительно сложнее структуры сигналов зонных ФЭУ и зависит от условий опыта. В результате серии испытаний в различных условиях размещения образцов выявлены следующие закономерности. При испытании образца на подложке в воздухе (кривая 8 на рис. 3,б) возникают четыре характерных пика свечения:

- 1) собственно свечение взрывного разложения в зоне воздействия;
- 2) обусловленный влиянием подложки;
- 3) обусловленный столкновением продуктов разложения с окружающим газом;
- 4) связанный с ударом продуктов о преграду, установленную на некотором расстоянии L от поверхности образца.

При установке образца на тонкой проволоке (кривая 10 на рис. 3,б) и удалении воздушной среды (кривая 11) второй и третий максимумы исчезают. С увеличением плотности потока излучения индукционный период уменьшается и вся картина сжимается во времени.

Обнаружено, что практически во всех опытах момент вспышки на тыльной стороне прессованных образцов АТМ, сигнализирующий о выходе волны взрывного разложения на

тыльную поверхность, независимо от их толщины h отстает от момента появления акустического импульса. Движение передней поверхности образца начинается практически одновременно (в пределах ошибки измерений) с возникновением вспышки в зоне воздействия. Для полноты картины были определены основные параметры взрывного процесса. Скорости процессов вычислялись по найденным экспериментально временам задержек и известным расстояниям. Эти параметры сильно изменялись от опыта к опыту, при смене структуры и класса ВВ, т. е. имели большой статистический разброс. На уровне ЭПЗ при $d = 600$ мкм их среднестатистические значения (по результатам 170 опытов) для прессованных таблеток азидов серебра и свинца соответственно составили:

- длительность индукционного периода — (190 ± 50) и (220 ± 150) нс;
- длительность вспышки свечения быстрого разложения — (300 ± 70) и (200 ± 75) нс;
- осредненная по времени пробег скорости фронта волны взрывного разложения — (550 ± 150) и (900 ± 300) м/с;
- скорость разлета продуктов с передней поверхности — $(2\,600 \pm 650)$ и $(2\,300 \pm 630)$ м/с;
- скорость разлета продуктов с тыльной поверхности — около 1500 м/с;
- давление на фронте сжатия на тыльной поверхности — $(1 \div 10) \cdot 10^7$ Н/м²;
- взрывная проводимость в межэлектродном промежутке — около $8 \cdot 10^3$ См·м⁻¹.

С увеличением энергетики лазерного воздействия значения этих параметров изменяются неодинаково. Так, при 25-кратном превышении порога скорость разлета продуктов для AgN_3 увеличивается почти в четыре раза и составляет $\approx 9\,000$ м/с, а скорость фронта взрывного разложения увеличивается всего в 1.6 раза и достигает 870 м/с (1570 м/с для $\text{Pb}(\text{N}_3)_2$). Измеренные скорости фронта волны взрывного разложения слабо зависели (в пределах ошибки измерений) от толщины образцов в диапазоне $h = 0.1 \div 0.5$ мм и оказались значительно меньше скоростей детонационного фронта в сильнопрессованных порошках АТМ (например, для азидов свинца скорость детонации равна 5100 м/с [21]). Для сравнения в серии отдельных опытов по методике [19] была измерена скорость фронта звуковой волны в прессованных образцах азидов свинца и серебра. Значения скорости звука составили для обоих

АТМ приблизительно 1800 м/с.

Инициирование взрывного разложения макрокристаллов АТМ (на примере азидов серебра) имеет те же закономерности, что и прессованных порошков (см. рис. 3, в). Однако в сигналах панорамных ФЭУ дополнительно к максимумам свечения, характеризующим процессы разлета и столкновения продуктов взрыва, возникают флуктуационные мелкомасштабные всплески интенсивности (кривая 15).

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

4.1. Взрывное свечение АТМ

Совокупность кинетических кривых, описывающих процесс взрывного разложения прессованных порошков АТМ при околопороговых уровнях лазерного воздействия и диаметре воздействующего пучка $d = 600$ мкм («кинетический портрет» взрыва), представлена в обобщенном виде на рис. 4. Анализируя кривые рис. 4, обсудим возможность существования описанных в [14, 15, 17] предвзрывных явлений, и прежде всего предвзрывной люминесценции. К явлению предвзрывной люминесценции авторы [15–17] относят существование первого максимума на двугорбой кривой свечения, регистрируемой традиционным способом, т. е. с помощью ФЭУ панорамного обзора. Руководствуясь временным положением акустического отклика, второй максимум сигнала они отнесли к собственно взрывному «горячему» свечению. Установлено, что спектр первого максимума свечения является сплошным (расположен в ИК-области), спектр второго — линейчатый (зеленая область).

В предыдущем параграфе нами описаны основные закономерности сопровождающего взрыв свечения. Они однозначно указывают на его тепловую природу и противоречат люминесцентной. Для получения более полных представлений о природе взрывного свечения обратимся к кривым 2, 4, 5', 8 рис. 4. По окончании индукционного периода τ_{ign} в момент времени t_1 (около 200 нс после воздействия) регистрируется вспышка свечения в месте воздействия лазерного импульса. Одновременно (кривая 4) начинается разлет вещества навстречу лазерному пучку со скоростью, большей 2500 м/с (до 9000 м/с при 25-кратном превышении порога). Скорость разлета опре-

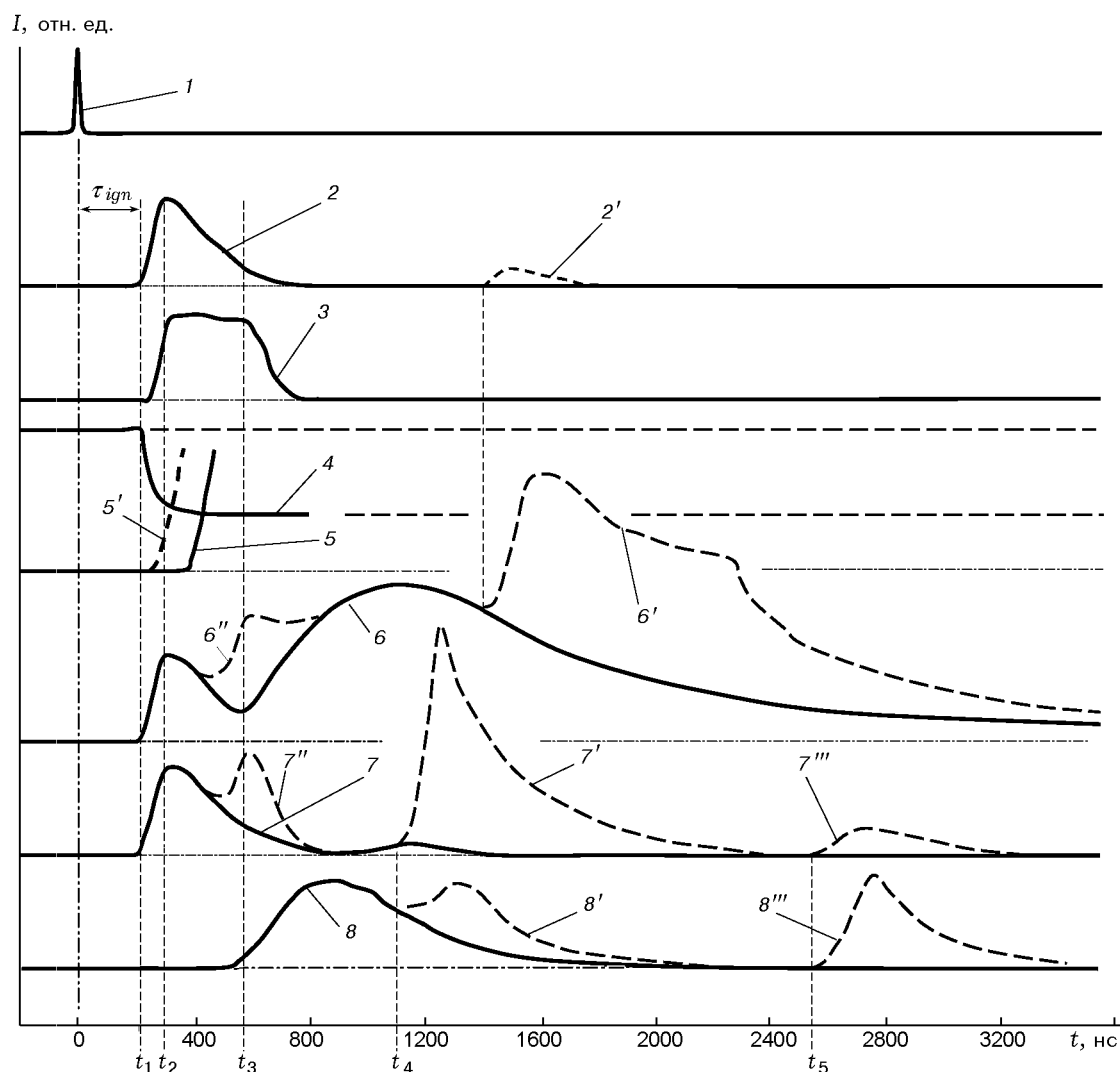


Рис. 4. Обобщенная картина развития процесса взрывного разложения АТМ при пороговых уровнях лазерного воздействия:

1 — форма лазерного импульса, 2 — кинетика вспышки свечения из зоны лазерного воздействия, 3 — кинетика изменения проводимости, 4 — кинетика изменения угла отражения лазерного луча при движении передней поверхности, 5, 5' — кинетика импульса давления, 6 — кинетика вспышки свечения при панорамном обзоре в воздухе, 7 — то же в вакууме, 8 — кинетика вспышки свечения с тыльной стороны мишени, 2', 6', 7', 8' — кинетика вспышки свечения при установке переднего экрана, 6'', 7'' — то же в присутствии подложки, 7''', 8''' — то же при установке экрана с тыльной стороны образца; $h = 250$ мкм, $L_1 = 2.3$ мм, $L_2 = 4.7$ мм

делялась по разнице времен вспышек в области образца и на экране. С небольшой задержкой относительно первой вспышки (кривая 5') в зоне воздействия лазерного пучка возникает ударный импульс. Такое поведение (быстрый разлет, высокая проводимость) характерно для плазменного состояния вещества.

Рост интенсивности свечения прекращается к моменту t_2 (≈ 300 нс), где токовый импульс (кривая 3 на рис. 4) приобретает макси-

мальную величину. Свечение практически прекращается к моменту t_3 (≈ 500 нс), когда волна разложения достигает тыльной поверхности образца (кривая 8). К этому моменту большая часть продуктов уже удалена на значительное расстояние (более 1 мм) от передней поверхности. Начинается разлет плазмы с тыльной стороны. Это противоречит утверждениям [15] о том, что на отрезке времени до 500 нс от начала лазерного воздействия ВВ люминесцирует, на-

ходясь в твердом состоянии. К моментам времени t_4 и t_5 продукты взрыва достигают преград, удаленных на расстояния, в десятки раз превышающие начальные размеры образца!

Таким образом, вспышка 2 (равно как и первые пики свечения на кривых 6 и 7 рис. 4) характеризует кинетику реакции взрывного разложения и является свечением плотной низкотемпературной плазмы со спектром, близким к спектру абсолютно черного тела. Расчетная температура за фронтом волны горения в окрестности очага при лазерном зажигании азида свинца [7] к концу индукционного периода близка к адиабатической T_{ad} ($T_{ad} = Q/c$, где Q — тепловой эффект, c — теплоемкость) и составляет ≈ 4500 К. В условиях разлета продуктов из реакционного слоя она предположительно может составить величину порядка $3000 \div 4000$ К, что соответствует спектральному максимуму свечения в области $700 \div 900$ нм. Эта оценка подтверждается результатами спектрально-кинетических измерений первого пика взрывного свечения [15].

Все другие длинновременные максимумы (кривые 6, 6', 7' на рис. 4), возникающие после окончания взрывного разложения, связаны с процессами, происходящими за пределами зоны лазерного воздействия, и не имеют отношения к собственно взрывному разложению. Они обусловлены соударением продуктов разложения с газовой средой и элементами конструкции измерительной камеры. Это свечение может иметь линейчатый спектр (линии азота и соответствующего металла), поскольку известно [22], что при торможении сверхзвуковой плазменной струи преградой возникает интенсивная вспышка свечения со сложным (сплошным и линейчатым) спектром. В случае инициирования кристаллов АТМ свечение может сопровождаться дополнительными яркими вспышками в результате раскалывания кристаллов и догорания разлетающихся осколков.

Сказанное означает, что наличие ярких вспышек свечения, возникающих вслед за свечением взрывного разложения, может привести к ошибочной интерпретации экспериментальных наблюдений, проведенных в условиях панорамного обзора. В частности, такие ошибки, по нашему мнению, сделаны в работах [15] (наблюдения велись с помощью ФЭУ панорамного обзора) и [23] (панорамная съемка скоростной камерой), в которых вспышка взрывного разложения АТМ ошибочно приня-

та за предвзрывную люминесценцию, а следующая за ней интенсивная вспышка, вызванная ударно-волновыми и плазменными столкновениями, — за вспышку взрывного разложения.

4.2. Проводимость АТМ при взрывном разложении

Сопоставление кривых 2 и 3 на рис. 4 показывает, что синхронно измеренные сигналы вспышки свечения образца и токового импульса совпадают с точностью до 20 нс. Принимая, что сигнал вспышки 2 обусловлен свечением горячей плазмы, и учитывая, что при использованной схеме измерения тока образца не имели электрического контакта с электродами измерительной ячейки, можно утверждать, что токовый импульс возникает при замыкании электродов набегающим плазменным облаком взрыва. То есть причиной возникновения токового импульса является не электронно-дырочная проводимость твердого тела [15, 24], а электропроводность плазмы, плотность которой по мере развития процесса разложения сначала растет (кривая 3 на рис. 4), а затем падает с разлетом плазмы в окружающее пространство.

4.3. Давление, возникающее в объеме образца, горение и детонация

Очевидно, что подъем давления в объеме образца, движение массы и формирование фронта ударной волны возникают вслед за разогревом вещества, т. е. повышением его температуры. Из кривой 5' на рис. 4 видно, что импульс давления в облученном объеме (временное положение получено пересчетом кривой 5 с учетом скорости звука и толщины образца) возникает несколько позднее появления сигнала вспышки. Эта задержка, по нашим оценкам, составляет от 20 до 50 нс, превышает аппаратные ошибки и, возможно, связана с временем формирования ударно-волнового сжатия. В то же время начало движения передней поверхности образца, также сигнализирующее о возникновении давления в реакционной зоне, такой задержки не имеет (см. кривую 4 на рис. 4).

Значительное отставание момента появления вспышки на тыльной стороне образца от акустического сигнала связано с необходимым временем для развития волны разложения и перехода ее в детонационную. По-видимому, при лазерном зажигании с открытой поверхности прессованных образцов АТМ толщиной до

500 мкм и с участка ограниченных размеров реализуется режим послыйного горения со скоростями, не достигающими скорости фронта развитой детонации, но значительно превосходящими расчетную стационарную скорость горения (≈ 70 м/с [7]). Этот результат не согласуется с закономерностями распространения детонационной волны в прессованных пластинках АТМ плотностью 3.1 г/см³ [10] (скорость фронта возрастала почти вдвое при увеличении толщины пластинки от 100 до 500 мкм), однако это несогласование возможно из-за различий в условиях опытов (различная геометрия возбуждения, различная плотность испытуемых образцов) и требует более подробного изучения.

Отметим, что с увеличением энергии иницирующего импульса и уменьшением толщины образца кинетические кривые взрывного разложения АТМ сжимаются во времени и приближаются к кинетике разрушения металлов (см. рис. 2, в) коротким лазерным импульсом.

4.4. Сопоставительный анализ моделей иницирования АТМ

Цепная бимолекулярная фотохимическая модель [12, 13]. В соответствии с моделью иницирование взрыва происходит в результате цепной реакции размножения радикалов N_3 , возникающих в процессе фотоионизации под действием внешнего импульса [12] и на последующих стадиях взрывного разложения [13].

Модель достаточно хорошо согласуется с некоторыми основными экспериментальными результатами по влиянию на ЭПЗ различных условий лазерного воздействия. Модель не противоречит полученным выше результатам, но только в том случае, если допустить, что параллельно с развитием цепного процесса размножения носителей заряда происходит нагрев матрицы за счет энергии, выделяющейся в результате развития цепи. При этом темпы развития теплового процесса к концу индукционного периода должны заметно опережать темпы цепного.

Недостатком модели является отсутствие детального описания взаимодействия радикалов в объеме кристалла ВВ, т. е. обоснования реакции (1). Даже в случае отождествления радикалов с зонными дырками [12] проблема полностью не решается, поскольку объединение дырок маловероятно [17] из-за кулонов-

ского отталкивания одноименных зарядов. Не совсем ясен также вопрос создания необходимой начальной концентрации дырок, поскольку энергии возбуждающего кванта (1.17 эВ для неодимового лазера) недостаточно для прямого создания электронно-дырочных пар (оптическая ширина запрещенной зоны в АТМ около 3.5 эВ).

Цепная мономолекулярная модель [14, 15, 17]. Модифицированный вариант цепной модели, частично свободной от указанных недостатков, представлен в работах [14, 15, 17]. Авторы модели отказываются от традиционных представлений об основном элементарном акте разложения (1) и тем самым избегают от основной трудности описания процесса — малой вероятности взаимодействия радикалов в объеме кристаллической решетки.

Тем не менее модель достаточно сложна и требует выполнения большого количества условий и допущений. В ней нет достаточного обоснования ЭПЗ и влияния на ЭПЗ условий лазерного воздействия, не объяснен механизм лазерной генерации активных зонных дырок.

Приведенные в настоящей работе результаты исследований противоречат основным положениям цепной модели, основанной на возможности глубокого разложения вещества в твердом состоянии с сохранением зонной структуры. С позиций модели невозможно (как нам представляется) объяснить увеличение интенсивности и светосуммы [25] вспышки взрывного разложения при увеличении плотности энергии лазерного импульса.

Основным же слабым звеном модели является следующее. Модель [15, 17] разработана на основе предположения о существовании предвзрывной люминесценции и предвзрывной проводимости. Однако проведенный выше анализ экспериментальных результатов убедительно показывает, что таких явлений (по крайней мере, в трактовке [15, 17]) при лазерном импульсном иницировании не существует!

Тепловая очаговая модель [1–7]. Модель развита в [1, 2, 5–7]. Она отличается простотой и возможностью делать количественные оценки. В рамках модели существование ЭПЗ связывается с необходимостью создания определенного запаса тепла в очаге, обеспечивающего его развитие с учетом сброса тепла из очага за счет теплопроводной [2, 6] или газодинамической [5] разгрузки. Индукционный период трактуется как время, необходимое для созда-

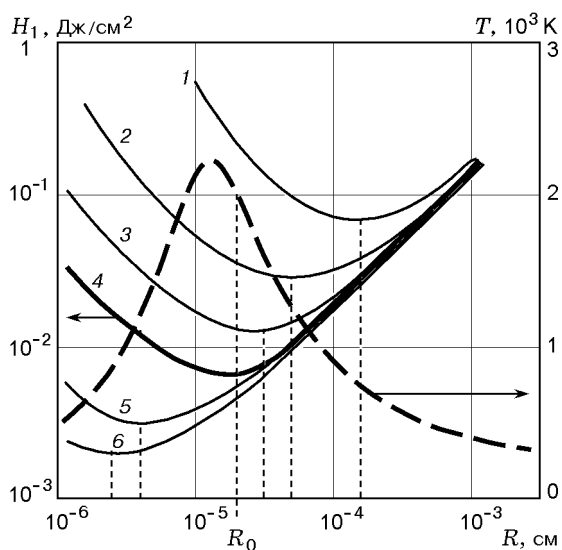


Рис. 5. Расчетные значения ЭПЗ (1–6) и температуры нагрева очага T (штриховая линия) в зависимости от радиуса поглощающего включения R к моменту окончания лазерного импульса:

$\tau = 5 \cdot 10^{-6}$ (1); 10^{-6} (2); 10^{-7} (3); $2 \cdot 10^{-8}$ (4); $5 \cdot 10^{-9}$ (5); 10^{-9} с (6); кривая температуры и значение R_0 соответствуют $\tau = 2 \cdot 10^{-8}$ с

ния стационарного автомодельного [7] фронта горения (быстрого разложения) в окрестности очага и перехода его в детонационный. Кинетика процесса теплового разложения в очаге для реакции первого порядка дается соотношением [26]

$$\frac{dT}{dt} = \frac{Q}{C} \frac{dn}{dt} = \frac{Q}{C} k_0 (1 - n) \exp\left(-\frac{E}{RT}\right), \quad (2)$$

где n — относительная концентрация прореагировавшего вещества (глубина превращения), k_0 — предэкспоненциальный множитель, E — энергия активации, T — абсолютная температура очага, R — универсальная газовая постоянная, t — время.

Для тепловой модели существенным является вопрос правомочности применения уравнения (1) для описания твердофазной реакции разложения ВВ с зонной структурой строения. Однако в предположении очаговой модели с достаточно высокой температурой нагрева очага и его окрестности эта трудность может быть преодолена в силу возможного разрушения зонной структуры и образования свободных радикалов. Вполне естественно, что в данном случае возникает вопрос об оценке температуры очагов в условиях порогового воздействия.

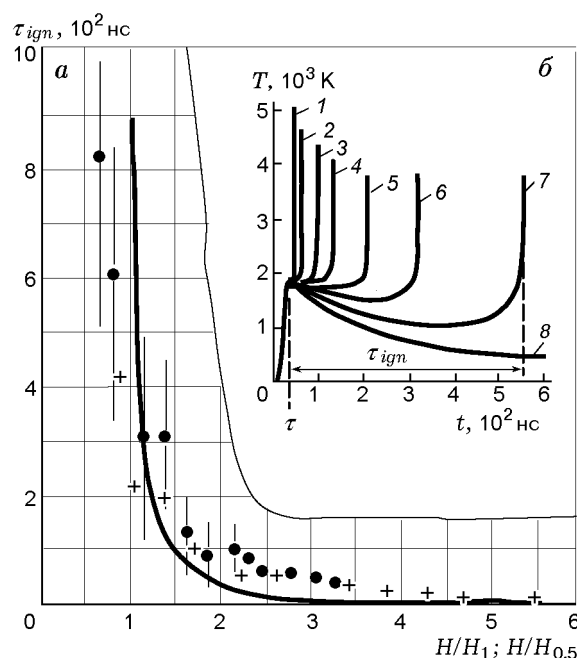


Рис. 6. Зависимость индукционного периода от плотности энергии возбуждающего импульса (а) и расчетная кинетика процесса зажигания при $R_0 = 2 \cdot 10^{-5}$ см и $\tau = 20$ нс ($n = 0$) (б):

а: ● — эксперимент [1], + — эксперимент настоящей статьи, линия — расчет по очаговой тепловой модели для отдельного изолированного очага; б — $H/H_1 = 1.5$ (1); 1.3 (2); 1.1 (3); 1.08 (4); 1.05 (5); 1.03 (6); 1.01 (7); 1.0 (8)

Решение задачи нахождения пространственно-временного температурного профиля в очаге и его окрестности с использованием (2) проводилось численно в рамках математического моделирования процесса лазерного зажигания АТМ по методу, подробно изложенному в [6, 7]. Некоторые результаты расчета приведены на рис. 5 и 6. Штриховая кривая рис. 5 иллюстрирует разогрев матрицы $Pb(N_3)_2$ в окрестности неоднородности на примере поглощающего металлического коллоидного [27] включения. Для длительности лазерного импульса $\tau = 20$ нс при радиусе поглощающей неоднородности $R_0 = 2 \cdot 10^{-5}$ см температура включения в момент окончания лазерного воздействия составляет 2 000 К. При такой температуре использование зонной модели для объяснения возможности ограничения протекания реакции (1) теряет смысл.

Расчетные пороги зажигания H_1 ($\tau = 20$ нс, $d \rightarrow \infty$) для $Pb(N_3)_2$ минимальны при $R_0 = 2 \cdot 10^{-5}$ см (кривая 4 на рис. 5) и близки (с точностью до размерного множителя, равно-

го 2 [2]) к экспериментально измеренным значениям $H_{0.5}$ (при $d = 1$ мм).

Сопоставление расчетных значений задержек зажигания с экспериментом приведено на рис. 6. При околопороговых воздействиях расчетные времена задержек зажигания (рис. 6, а) всегда больше экспериментально измеренных. Дело в том, что на уровне ЭПЗ расчетная величина индукционного периода стремится к бесконечности, в то время как в эксперименте на уровне $H_{0.5}$ она всегда конечна. В целом, совокупность результатов исследований достаточно хорошо укладывается в рамки тепловой очаговой модели лазерного инициирования АТМ.

ВЫВОДЫ

- При лазерном импульсном возбуждении взрыва АТМ на стадии лазерного воздействия и во время индукционного периода не обнаружено свечения и проводимости «холодного» неразрушенного вещества, т. е. предвзрывной люминесценции и предвзрывной проводимости;

- к концу индукционного периода (около 200 нс при воздействии на уровне ЭПЗ) в зоне лазерного воздействия возникает взрывное разложение вещества, сопровождающееся короткой вспышкой свечения, характерного для свечения плотной низкотемпературной (3 000 ÷ 4 000 К) плазмы;

- одновременно с возникновением вспышки свечения из области воздействия начинается движение сверхзвуковой (более 2 500 м/с на уровне ЭПЗ) поток расширяющейся плазменной струи, а в глубь ВВ движется импульс сжатия, за которым следует дозвуковая волна горения;

- наиболее вероятным механизмом для описания наблюдаемых явлений может служить тепловой очаговый механизм процесса инициирования АТМ внешним импульсом.

В заключение отметим важное, на наш взгляд, обстоятельство. Обнаруженный нами достаточно протяженный (в пространстве и времени) участок горения с дозвуковыми скоростями (осредненными по времени), которые практически не возрастают с увеличением толщины образца в исследуемом диапазоне толщин (100 ÷ 500 мкм), связан, по-видимому, с очень высокими скоростями разлета продуктов из реакционной зоны. Эти явления представляют интерес с научной и прикладной точек зрения, поскольку связаны с влиянием плаздинамической разгрузки реакционной обла-

сти на скорость протекания и распространения процесса быстрого разложения. В прикладном аспекте этот вопрос имеет значение в связи с проблемами быстродействия исполнительных устройств на основе АТМ, и особенно в условиях всестороннего сжатия образца. Подробное изучение этих проблем не входило в задачу данной статьи и требует отдельного исследования.

ЛИТЕРАТУРА

1. Александров Е. И., Вознюк А. Г. Иницирование азидов свинца лазерным излучением // Физика горения и взрыва. 1978. Т. 14, № 4. С. 86–91.
2. Александров Е. И., Ципилев В. П. Размерный эффект при инициировании прессованного азидов свинца лазерным моноимпульсным излучением // Физика горения и взрыва. 1981. Т. 17, № 5. С. 77–81.
3. Карабанов В. Ю., Боболев В. К. Зажигание инициирующих взрывчатых веществ импульсом лазерного излучения // Докл. АН СССР. 1981. Т. 256, № 5. С. 1152–1155.
4. Hagan J. T., Chaudhri M. M. Low energy laser initiation of single crystals of β -lead azide // J. Mater. Sci. 1981. N 16. P. 2457–2466.
5. Александров Е. И., Ципилев В. П. Влияние давления прессования на чувствительность азидов свинца к действию лазерного излучения // Физика горения и взрыва. 1982. Т. 18, № 2. С. 100–103.
6. Александров Е. И., Ципилев В. П. Исследование влияния длительности возбуждающего импульса на чувствительность азидов свинца к действию лазерного излучения // Физика горения и взрыва. 1984. Т. 20, № 6. С. 104–109.
7. Александров Е. И., Сидонский О. Б., Ципилев В. П. Влияние выгорания в окрестности поглощающих включений на процесс лазерного зажигания конденсированной среды // Физика горения и взрыва. 1991. Т. 27, № 3. С. 7–12.
8. Барановский А. М. К вопросу о механизме зажигания азидов свинца лазерным моноимпульсом // Хим. физика. 1991. Т. 10, № 12. С. 1715–1720.
9. Черная А. В., Соболев В. В., Илюшин М. А. и др. К вопросу о механизме зажигания взрывчатых составов лазерным моноимпульсом // Хим. физика. 1996. Т. 15, № 3. С. 134–139.
10. Боуден Ф., Иоффе А. Быстрые реакции в твердых веществах. М.: Мир, 1962.
11. Александров Е. И., Ципилев В. П. Влияние модовой структуры лазерного излучения на устойчивость азидов свинца // Физика горения и взрыва. 1983. Т. 19, № 4. С. 143–146.

12. Кригер В. Г., Каленский А. В. Размерный эффект при инициировании разложения азидов тяжелых металлов импульсным излучением // Хим. физика. 1996. Т. 15, № 3. С. 40–47.
13. Ханефт А. В. Энергетически разветвленный цепной механизм низкопорогового инициирования азидов свинца лазерным излучением // Хим. физика. 1998. Т. 17, № 4. С. 100–108.
14. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Белокуров Г. М. и др. Взрывное разложение азидов тяжелых металлов // Журн. эксперим. и теор. физики. 1999. Т. 116, № 5(11). С. 1676–1693.
15. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Белокуров Г. М. и др. Предвзрывные явления в азидовых тяжелых металлов // Физика горения и взрыва. 2000. Т. 36, № 5. С. 78–89.
16. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Белокуров Г. М., Кречетов А. Г. Кинетика развития взрывного разложения азидов серебра при инициировании лазерным импульсом // Хим. физика. 1997. Т. 16, № 8. С. 119–125.
17. Захаров Ю. А., Алукер Э. Д., Адуев Б. П. и др. Предвзрывные явления в азидовых тяжелых металлов. М.: ЦЭИ «Химмаш», 2002.
18. Ципилев В. П., Лисицын В. М., Корепанов В. И., Олешко В. И. Кинетика взрывного разложения азидов тяжелых металлов при лазерном импульсном инициировании // Труды 3-й Междунар. конф. «Радиационно-термические эффекты и процессы в неорганических материалах». Томск, 2002. С. 245–247.
19. Александров Е. И., Каракуцев А. В., Ципилев В. П. Метод создания наносекундных импульсов сжатия в твердом теле для возбуждения химических реакций // Деп. в ВИНТИ. 1979. № 247–79.
20. Александров Е. И., Ципилев В. П. Особенности светового режима в объеме полубесконечного слоя ДРС при освещении направленным пучком конечной апертуры // Изв. вузов. Физика. 1988. № 10. С. 23.
21. Андреев К. К., Беляев А. Ф. Теория взрывчатых веществ. М.: Оборонгиз, 1960.
22. Бойко В. А., Держиев В. И. Временные характеристики излучения рекомбинирующей лазерной плазмы при взаимодействии с твердыми препятствиями различной конфигурации // Физика плазмы. 1984. Т. 10, вып. 6. С. 1187.
23. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Кречетов А. Г., Митрофанов А. Ю. Динамическая топография предвзрывной люминесценции азидов серебра // Физика горения и взрыва. 2003. Т. 39, № 5. С. 105–108.
24. Адуев Б. П., Алукер Э. Д., Белокуров Г. М. и др. Кинетика ранних стадий предвзрывной проводимости азидов серебра // Физика горения и взрыва. 2002. Т. 38, № 3. С. 141–144.
25. Корепанов В. И., Лисицын В. М., Олешко В. И., Ципилев В. П. Закономерности взрывного свечения азидов тяжелых металлов при импульсном инициировании лазерным и электронным пучками // Физика горения и взрыва. 2004. Т. 40, № 5. С. 126–128.
26. Франк-Каменецкий Д. А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике. М.: Изд-во АН СССР, 1947.
27. Виноградов Ан. В., Трибельский М. И. Роль коллоидных частиц в оптическом пробое щелочно-галлоидных кристаллов // Письма в ЖТФ. 1979. Т. 5, вып. 10. С. 595–59.

*Поступила в редакцию 5/II 2004 г.,
в окончательном варианте — 19/IX 2005 г.*