

МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ДИАМЕТРА ЗОНЫ ОБЛУЧЕНИЯ НА СКОРОСТЬ
ВЗРЫВНОГО РАЗЛОЖЕНИЯ АЗИДА СЕРЕБРА

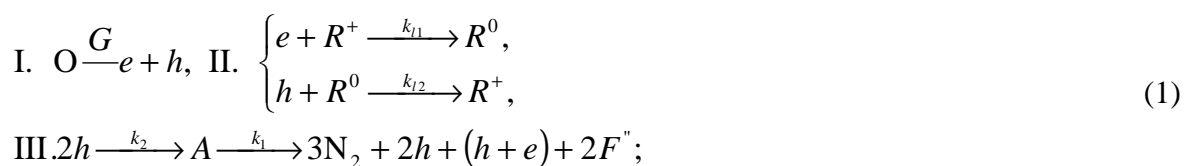
Кригер В.Г., Каленский А.В., Звеков А.А., Савилов А.С.

Кемеровский Государственный Университет

Кемерово, Россия

**kriger@kemsu.ru*

В работе [1] сформулирована бимолекулярная модель разветвленной цепной реакций импульсного инициирования АТМ и проведен ее кинетический анализ. Схема стадий модели имеет вид:



где R^0, R^+ – центры рекомбинации в различных зарядовых состояний, $2F''$ – комплекс, состоящий из двух анионных вакансий с размещенными там тремя молекулами азота. I – генерация e.h. пар внешним излучением. II – рекомбинация e.h. пар на объемных и поверхностных локальных центрах, при этом скорость рекомбинации носителей лимитируется захватом дырки на нейтральном центре: $V_r \approx k_r p$. III – взаимодействие двух дырок, локализованных в соседних узлах кристаллической решетки, с образованием промежуточного комплекса A (молекула N_6 находящаяся внутри анионной бивакансии), последующим его распадом на молекулярный азот (N_2) и образование $2F''$ – центра с выделением энергии, идущей на генерацию носителей, является стадией развития цепи. С учетом уравнений баланса, динамика процесса инициирования будет полностью описываться системой:

$$\begin{aligned} \frac{dp}{dt} &= G - 2k_2 p^2 + 2k_1 A + ck_1 A - k_R p \\ \frac{dA}{dt} &= k_2 p^2 - k_1 A \end{aligned} \quad (2)$$

где $G = \alpha \cdot N_0 / E \cdot \tau_u$ – скорость генерации e.h. пар импульсным излучением, E – энергия образования e.h. пары, α – показатель поглощения образцом излучения.

В экспериментальных работах скорость взрывного разложения азидов серебра характеризуют экспоненциальной константой нарастания сигнала, получаемой при аппроксимации его экспоненциальной функцией. В рамках модели цепной реакции также наблюдается экспоненциальный рост концентраций носителей цепи. Предположим, что рост сигнала свечения вызван ростом концентрации носителей цепи в образце.

Для получения наблюдаемой константы скорости экспоненциального роста концентрации носителей цепи получим значение мгновенной константы скорости экспоненциального роста. Линеаризуем систему кинетических уравнений вблизи концентрации дырок равной p_0 . Собственное число системы уравнений, отвечающее за рост концентраций носителей цепи будет следующим:

$$\kappa_M = \frac{1}{2} \left[- (2k_2 p_0 + k_R + k_1) + \sqrt{(2k_2 p_0 + k_R + k_1)^2 + 4k_1 (ck_2 p_0 - k_R)} \right] \quad (5)$$

Полученную константу роста концентрации носителей цепи можно назвать «мгновенной». Выражение для κ_M можно без большой потери точности заменить приближенной формулой:

$$\kappa_M = k_1 \frac{ck_2 p_0 - k_R}{2k_2 p_0 + k_1 + k_R} \quad (5)$$

Наблюдаемую константу экспоненциального роста концентрации носителей цепи получим, усреднив ее мгновенное значение по концентрации дырок. Нижняя граница определяется концентрацией после индукционного периода $\sim k_R/k_2 \sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$ [1]. Экспериментальная константа роста сигнала определяется до его полувысоты, по этому за верхнюю границу усреднения следует принять половину максимальной концентрации дырок, значение которой $\sim (1 \div 10) \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Тогда получаем:

$$\kappa_H = \frac{k_1}{\tilde{p} - p_H} \int_{p_H}^{\tilde{p}} \frac{ck_2 p_0 - k_R}{2k_2 p_0 + k_1 + k_R} dp_0 \quad (6)$$

Интегрируя, и подставляя границы усреднения, получаем:

$$\kappa_H = c \frac{k_1}{2} \left\{ 1 - \frac{1}{2ck_2} \cdot \frac{(c+2)k_R + ck_1}{\tilde{p} - p_H} \ln \frac{k_2 \tilde{p} + k_1 + k_R}{2 \left[k_2 p_H + \frac{k_1 + k_R}{2} \right]} \right\} \quad (7)$$

Уменьшение скорости цепной реакции при уменьшении диаметра зоны облучения можно объяснить генерацией e.h. за счет энергии химической реакции не только в облученной зоне, но и в некотором слое толщиной r_0 вне ее. Тогда чем меньше диаметр зоны облучения, тем большее количество носителей цепи образовано вне нее. Соответственно, образовавшиеся при ветвлении носители цепи будут поглощены в большем объеме, чем объем зоны облучения, что приводит к увеличению пороговой плотности энергии инициирования [2].

В условиях инициирования неодимовым лазером, энергия излучения поглощается однородно по глубине образца. Объемы, в которых были сгенерированы и поглощены

носители цепи, будут относиться как $[(d+2r_0)/d]^2$, где d – диаметр зоны облучения. В работе [2] было экспериментально показано, что в акте ветвления 2 дырки образуются в точке ветвления и еще одна электрон-дырочная пара в r_0 окрестности этой точки.

Из (7) следует, что $\kappa_n \sim c$. Согласно [2]:

$$c = c_\infty \left(\frac{d}{d + 2r_0} \right)^2 \quad (8)$$

Тогда получаем зависимость средней константы роста концентрации носителей цепи от диаметра зоны облучения:

$$\kappa_n(d) = \kappa_\infty \left(1 + \frac{2r_0}{d} \right)^{-2} \quad (9)$$

где константа κ_∞ - значение константы роста сигнала при бесконечно широком пучке.

На рис. 1 приведено сравнение теоретической и экспериментальной зависимостей. Видно, что в координатах модели (9) экспериментальные данные подчиняются линейной зависимости. Значение параметра модели r_0 составило 60 ± 5 мкм, что неплохо согласуется со значением, определенному из зависимости плотности пороговой энергии инициирования от диаметра лазерного пучка [2].

Работа поддержана грантом РФФИ (№ 07-03-01099).

[1] Кригер В.Г., Каленский А.В. Иницирование азидов тяжелых металлов импульсным излучением. // Хим. Физика. - 1995. - № 4. - С. 152-160.

[2] Каленский А.В., Кригер В.Г., Звекон А.А., Боровикова А.П. Новый механизм передачи энергии твердофазной цепной в азиде серебра. // Фундаментальные проблемы современного материаловедения. Т. 4. № 3. 2007. С. 66-72.

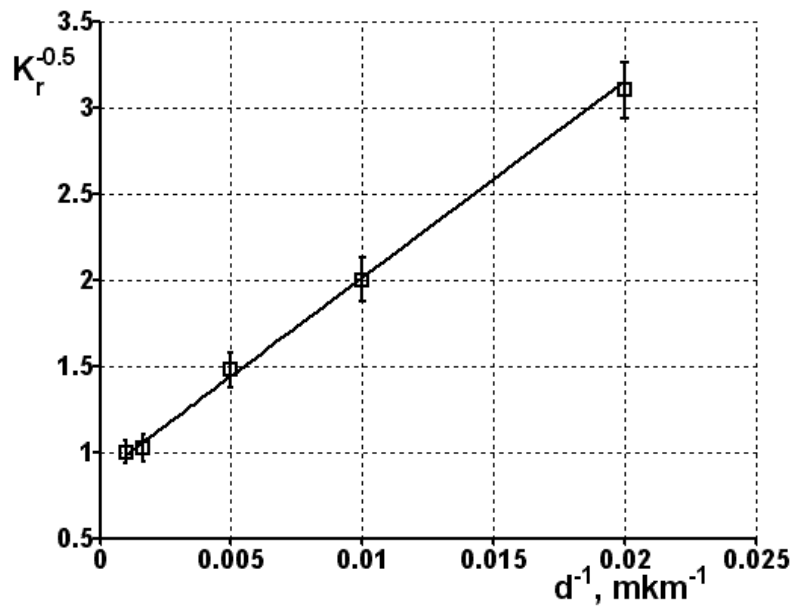


Рис. 1. Зависимость эффективной константы скорости экспоненциального роста сигнала взрывного свечения $K_r = K/K_\infty$ от диаметра зоны облучения.

Точки - эксперимент, линия – аппроксимация по формуле (9).