

УДК 541.124.16

ПРЕДВЗРЫВНАЯ ЭМИССИЯ ЭЛЕКТРОНОВ В АЗИДЕ СЕРЕБРА*Э. Д. Алукер, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов, А. С. Паишекин, Г. В. Артамонов*

Экспериментально обнаружено новое явление – предвзрывная электронная эмиссия энергетических материалов, т. е. электронная эмиссия, сопровождающая начальные стадии реакции взрывного разложения, протекающие на твердофазной стадии процесса до начала интенсивного энерговыделения и диспергирования образца.

В [1, 2] были экспериментально обнаружены предвзрывные явления (проводимость, люминесценция) в азидатных тяжелых металлов (АТМ), т. е. явления, происходящие в образце на начальных (твердофазных) стадиях реакции взрывного разложения перед началом механического разрушения образца. В дальнейшем предвзрывные явления наблюдались и на других классах энергетических материалов [3, 4]. Исследование этих явлений позволило установить основные закономерности и предложить модели актуальных процессов [5 – 9]. В частности, была предложена модель цепной реакции взрывного разложения АТМ, согласно которой необходимым условием ее развития является генерация в процессе реакции горячих электронов и дырок [5, 6]. Из общих соображений ясно, что генерация горячих электронов в процессе реакции взрывного разложения может сопровождаться вылетом части этих электронов за пределы образца, т. е. предвзрывной электронной эмиссией. Поиск этого эффекта и явился задачей данной работы.

Объектами исследования служили нитевидные кристаллы азидата серебра с характерными размерами $5 \times 0,1 \times 0,05$ мм³. Общая концентрация примесей тяжелых металлов в исследуемых образцах не превышала 10^{17} см⁻³. Методика выращивания кристаллов и контроля содержания примесей описаны в [10].

Источником инициирующих импульсов служил YAG:Nd³⁺ лазер (1064 нм, 30 пс, 30 мДж/см²). Образец крепился в измерительной ячейке, обеспечивающей возможность подачи напряжения на образец и систему тестовых электродов, регистрирующих разлетающиеся продукты взрыва. Расстояние между тестовыми электродами и образцом варьировалось при помощи микрометрического винта. Подробное описание измерительной ячейки, схем регистрации токовых сигналов и синхронизации приведено в [6]. Использовались два варианта тестовых электродов: разрядный промежуток (РП), замыкаемый разлетающимися продуктами взрыва (или эмитируемыми образцом частицами) и коллекторный электрод (КЭ). Токовые сигналы регистрировались при помощи двухканального осциллографа Tektronix TDS3032B. Временное разрешение регистрирующих каналов не хуже 1 нс, точность синхронизации каналов не хуже 2 нс. Измерительная ячейка располагалась в экспериментальной камере, обеспечивающей возможность откачки до ~1 Па.

Кинетика токовых сигналов в воздухе и в вакууме

Для исследования кинетики токовых сигналов проводились две серии экспериментов: в воздухе при атмосферном давлении и в вакууме ~1 Па. Образец крепился в измерительной ячейке, обеспечивающей возможность подачи напряжения на образец и систему тестовых электродов, регистрирующих разлетающиеся продукты взрыва. В качестве тестовых электродов использовался тестовый разрядный промежуток (ТРП), замыкаемый разлетающимися продуктами взрыва (или эмитируемыми образцом частицами). Схема экспериментов с одновременной регистрацией проводимости в кристалле и ТРП показана на рис. 1.

На рис. 2 представлены результаты синхронного измерения импульсов тока через образец (рис. 2 а) и тестовый разрядный промежуток, регистрируемых параллельно по разным каналам при измерениях в воздухе (рис. 2 б) и в вакууме (рис. 2 в). При атмосферном давлении наблюдается известная по работам [5, 6] картина. В канале образца (опорном, рис. 2 а) наблюдается импульс взрывной проводимости, начальный участок которого (до ~ 150 нс) представляет собой предвзрывную проводимость.

В тестовом канале в воздухе наблюдается только импульс, обусловленный замыканием разрядного промежутка долетающими до него продуктами взрыва, сдвинутый по времени относительно опорного сигнала на величину времени пролета (рис. 2 б). При экспериментах в вакууме (рис. 2 в) наблюдается аналогичная картина – видим сигнал проводимости продуктов взрыва большей амплитуды, чем в воздухе, но появляется дополнительный пик, время возникновения которого близко ко времени появления сигнала предвзрывной проводимости. Как упоминалось в предыдущей главе, этот пик связан с реакцией взрывного разложения и вызван замыканием разрядного промежутка потоком заряженных частиц.

Расположение электродов на рис. 1 не позволяло экспериментально сделать выводов о заряде образовавшихся в результате лазерного инициирования частиц. Необходимо было поменять схему эксперимента для определения заряда эмитируемых частиц и выяснения их природы.

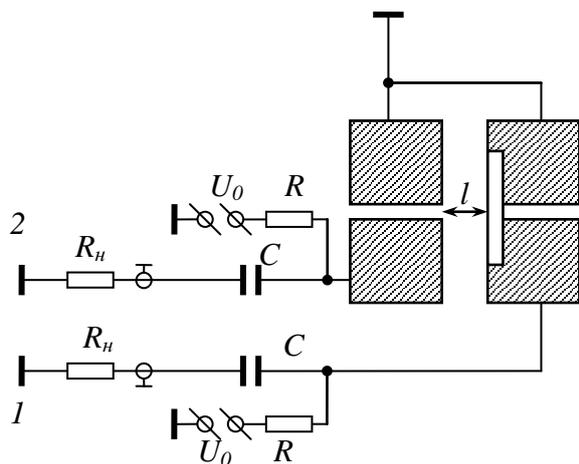


Рис. 1. Схема эксперимента для кинетических исследований методом тестового разрядного промежутка:

1 – канал предвзрывной проводимости;

2 – канал проводимости продуктов взрыва;

R_n – входное сопротивление осциллографа, U_0 – напряжение источника тока, R – зарядное сопротивление, C – конденсатор, l – база разлета.

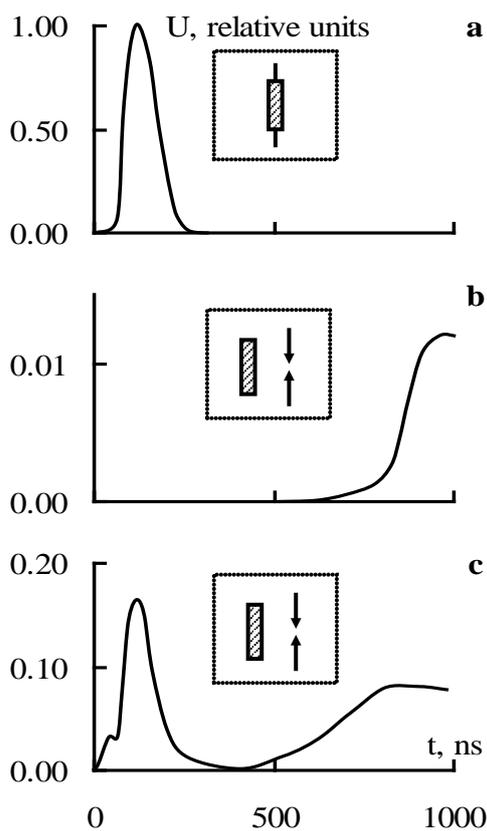


Рис. 2. Осциллограммы токовых импульсов при взрывном разложении азидов серебра:

a) через образец;

b) в разрядном промежутке на расстоянии ~ 3,5 мм в воздухе;

c) в разрядном промежутке на расстоянии ~ 3,5 мм в вакууме.

Расположение кристалла относительно электродов представлено на врезках.

Определение знака заряда эмитируемых частиц

Для определения знака заряда эмитируемых частиц была разработана схема, показанная на рис. 3, помещенная в вакуумную камеру. На коллекторный электрод подавалось напряжение, величину и полярность которого можно было изменять. При положительном напряжении на коллекторном электроде ($U = 5В$), на осциллографе фиксировался сигнал, показанный на рис. 4. Здесь мы видим сигнал предвзрывной проводимости (рис. 4 а) и эмиссионный сигнал, переходящий в сигнал проводимости продуктов взрыва (рис. 4 б).

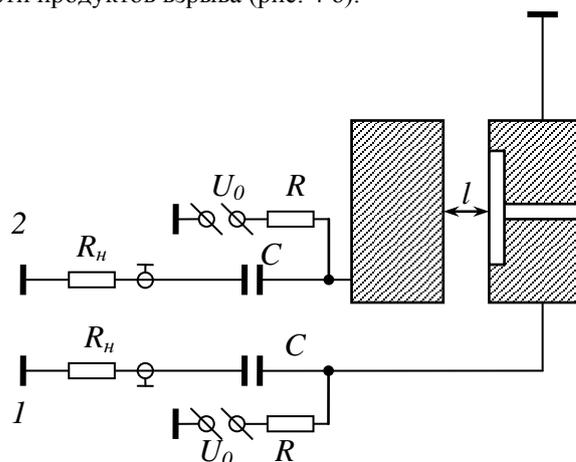


Рис. 3. Схема эксперимента для исследования взрывного разложения азидов серебра методом коллекторного электрода (два канала):

1 – канал проводимости продуктов взрыва;

2 – канал предвзрывной проводимости кристалла;

R_{oc} – входное сопротивление осциллографа, U_0 – напряжение источника тока, R – зарядное сопротивление, C – конденсатор, K – кристалл азидов серебра, l – база разлета, $h\nu$ – импульс лазера, \mathcal{E} – электроды

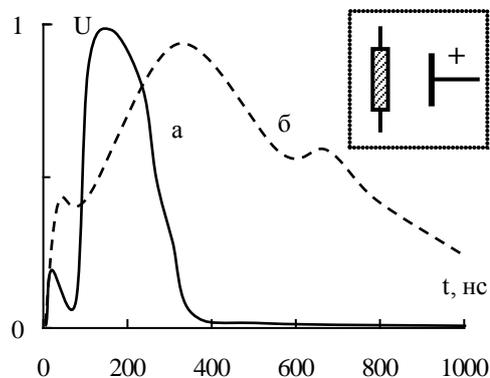


Рис. 4. Токвые сигналы, полученные при положительном напряжении ~5В на коллекторном электроде: а – проводимость в опорном канале, б – на коллекторном электроде. База разлета $l = 3,1мм$. На врезке: принципиальная схема эксперимента

Пик, наблюдающийся в начале временной развертки (первый пик на рис. 4 б), связан с взаимодействием мощного лазерного излучения с подложкой, на которой располагается кристалл. Этот пик присутствует и без кристалла азида серебра и, по-видимому, связан с фотоэмиссией электродов. Т. к. его длительность мала по сравнению с полезными сигналами, то заметного влияния на результаты экспериментов он не оказывал.

При подаче отрицательного напряжения на КЭ ($U = 5В$) эмиссионный сигнал на осциллографе исчезал и оставался только сигнал проводимости продуктов взрыва (рис. 5 б). Этот результат позволяет утверждать: эмитируемые частицы заряжены отрицательно.

При меньших базах разлета всегда наблюдалась зависимость эмиссионного сигнала от полярности напряжения, приложенного к коллекторному электроду. Однако при уменьшении базы разлета сокращается и время полета продуктов взрыва до электродов, и оба пика (эмиссионный пик и пик, обусловленный распространяющимися продуктами взрыва) сильнее накладываются друг на друга.

При увеличении базы разлета до ~ 4 мм эмиссионный пик сильно уменьшался в амплитуде и наблюдался не на всех осциллограммах.

Таким образом, можно сделать вывод о том, что из кристалла азида серебра эмитируются частицы с отрицательным зарядом до механического разрушения самого образца. Это могут быть электроны или отрицательно заряженные ионы. Для определенного выбора между этими вариантами необходимо оценить их энергию и скорость.

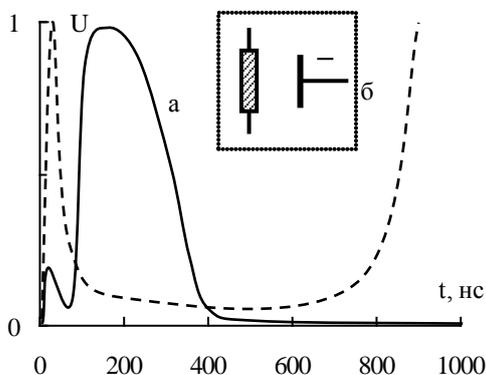


Рис. 5. Токвые сигналы, полученные при отрицательном напряжении $\sim 5В$ на КЭ: а – проводимость в опорном канале, б – на коллекторном электроде.

На врезке: принципиальная схема.

База разлета $l = 3,1$ мм

Оценка скорости разлета эмитируемых частиц

Грубая оценка скорости эмитируемых частиц может быть сделана на основании данных рис. 5. Эмиссионный пик появляется значительно раньше, чем пик, обусловленный продуктами взрыва, следовательно, скорость эмитируемых частиц значительно выше скорости разлета продуктов взрыва, составляющей $\sim 10^3$ м/с [11].

Схема для измерения скорости приведена на рис. 6.

Для более точной оценки скорости применялась схема, показанная на рис. 6, с помощью которой были проведены синхронные измерения эмиссионных пиков в двух тестовых разрядных промежутках, расположенных на разных расстояниях от образца (рис. 7).

Оказалось, что при максимально возможной в наших условиях разнице расстояний ~ 4 мм, разница во временах появления сигналов по обоим каналам не превышала 10 нс. Следовательно, оценка нижней границы скорости разлета: $v \geq 3,6 \cdot 10^5$ м/с.

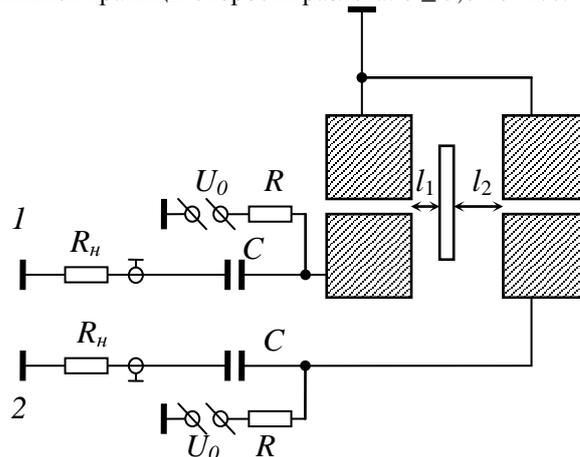


Рис. 6. Схема эксперимента для определения скорости эмитируемых частиц:

1 – первый канал, 2 – второй канал,

l_1 – расстояние от кристалла до первого разрядного промежутка, l_2 – расстояние от кристалла до второго разрядного промежутка.

R_{0c} – входное сопротивление осциллографа, U_0 – напряжение источника тока, R – зарядное сопротивление, C – конденсатор, K – кристалл азиды серебра, $h\nu$ – импульс лазера, Э – электроды В – вакуумная камера

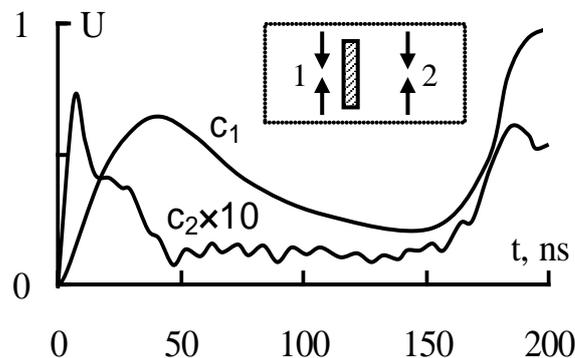


Рис. 7. Эмиссионные пики в двух тестовых разрядных промежутках, расположенных на разных расстояниях от образца: $l_1 = 0,5$ мм, $l_2 = 4,5$ мм.

Амплитуда второго сигнала увеличена в 10 раз.

На врезке: принципиальная схема.**Оценка энергии эмитируемых частиц**

Как уже говорилось, при подаче отрицательного напряжения на коллекторные электроды эмиссионный пик исчезает (рис. 5). Для количественного измерения амплитуды эмиссионного пика использовалась схема с коллекторными электродами, показанная на рис. 8.

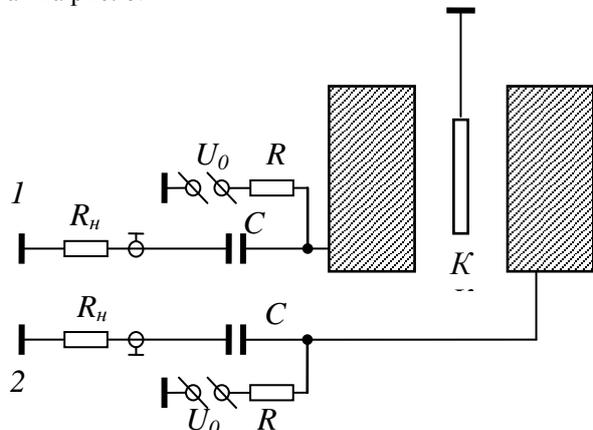


Рис. 8. Схема эксперимента для определения знака заряда частиц, образующихся в ходе взрывного разложения азидов серебра (два канала):

1 – первый канал, 2 – второй канал,

R_n – входное сопротивление осциллографа, U_0 – напряжение источника тока, R – зарядное сопротивление, C – конденсатор, K – кристалл азидов серебра

При таком расположении электродов было возможно подавать одновременно положительное и отрицательное напряжения. При отсутствии напряжения на электродах, получаем рис. 9. На этом рисунке видно, что сигналы с обоих каналов похожи: сначала появляется сигнал предвзрывной эмиссии с отрицательным знаком заряда частиц, затем пики проводимости продуктов взрыва в положительной области.

Меняя напряжение на электродах, было обнаружено, что на отрицательном электроде сигнал эмиссии уменьшается, а продуктовый сигнал остается практически без изменений (рис. 10, кривая 1). На положительном электроде исчезает сигнал продуктов взрыва, а эмиссионный пик меняется мало (рис. 10, кривая 2).

При дальнейшем увеличении напряжения на электродах удалось установить, что при достижении $U = 0,7$ В (запирающее напряжение) на отрицательном КЭ сигнал, соответствующий эмиссии, исчезает (рис. 11, кривая 1), а на положительном КЭ – затягивается (рис. 11, кривая 2). При этом на кривой 2 продуктовый сигнал (точнее, сигнал, вызванный теми частицами продуктов взрыва, которые имеют отрицательный заряд) накладывается на сигнал эмиссии.

Из того факта, что при напряжении 0,7 В сигнал предвзрывной эмиссии исчезает на отрицательном электроде, можно сделать вывод, что максимальная энергия эмитируемых частиц $E \leq 0,7$ эВ.

Таким образом, речь может идти об эмиссии электронов, или отрицательных ионов. Полученные оценки ($E \leq 0,7$ эВ, $v \geq 10^5$ м/с) позволяют сделать выбор между этими возможностями.

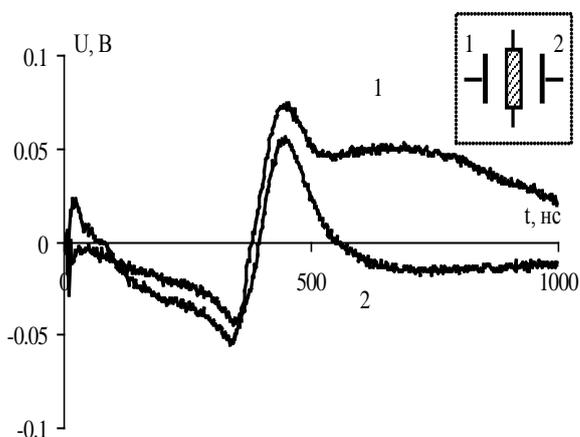


Рис. 9. Токвые сигналы, полученные при нулевом напряжении на КЭ. На врезке: принципиальная схема: 1 – первый канал, 2 – второй канал, K – кристалл азидов серебра

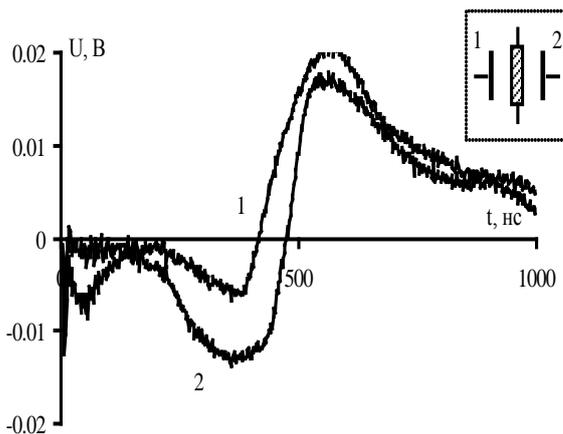


Рис. 10. Токвые сигналы, полученные при напряжении 0,17 В на КЭ. На врезке: принципиальная схема

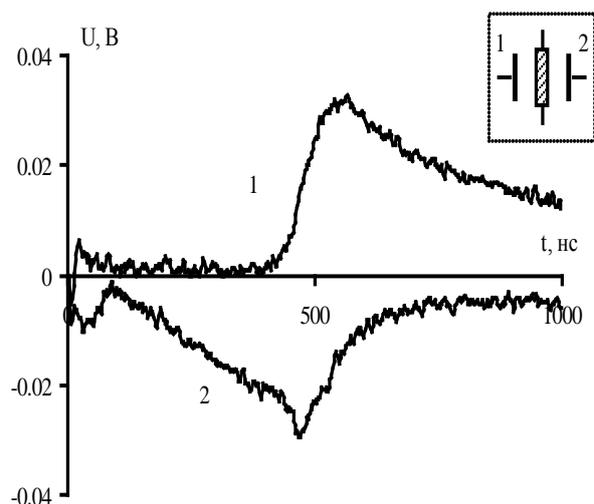


Рис. 11. Токовые сигналы, полученные при напряжении 0,7 В на КЭ. На врезке: принципиальная схема

Кинетическая энергия электрона, летящего со скоростью v , определяется по формуле:

$$E = \frac{m_e v^2}{2}, \quad (1)$$

где m_e – масса электрона.

Т. к. $U = 0,7$ В не позволяет электрону достичь электрода, то вся кинетическая энергия равна работе электростатического поля, идущей на торможение электрона:

$$\frac{m_e v^2}{2} = e \cdot U_3, \quad (2)$$

где e – заряд электрона, U_3 – запирающее напряжение.

Таким образом, для электронов кинетическая энергия $E = 0,7$ эВ соответствует скорости $v = 3,6 \cdot 10^5$ м/с, для отрицательных же ионов с массой ~ 20 а.е.м. соответственно – $v \approx 2,5 \cdot 10^3$ м/с.

Эта оценка скорости для электронов хорошо согласуется с полученным экспериментальным значением скорости эмитируемых частиц $\geq 10^5$ м/с. Для отрицательных же ионов имеет место явное несоответствие оценки и экспериментального значения скорости ($2 \cdot 10^3$ м/с и 10^5 м/с).

Т. о., полученные результаты позволяют сделать вывод о связи эмиссионного пика на рис. 2 с внешней электронной эмиссией, т. е. свидетельствует о наличии нового, ранее не наблюдаемого явления – предвзрывной электронной эмиссии, возникающей на начальных (твердотельных) стадиях реакции

взрывного разложения, перед началом механического разрушения образца.

Литература

1. Адуев, Б. П. Предвзрывная проводимость азидов серебра [Текст] / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров, А. Г. Кречетов // Письма в ЖЭТФ. – 1995. – Т. 62. – № 3. – С. 203.
2. Адуев, Б. П. Предвзрывная люминесценция азидов серебра [Текст] / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Ю. А. Захаров и др. // Письма в ЖЭТФ. – 1997. – Т. 66. – № 2. – С. 101.
3. Горшков, М. М. Предвзрывная проводимость взрывчатого состава на основе триаминотринитробензола [Текст] / М. М. Горшков, К. Ф. Гребенкин, В. Т. Заикин и др. // Письма в ЖЭТФ. – 2004. – Т. 30. – № 15. – С. 5.
4. Адуев, Б. П. Спектрально-кинетические характеристики продуктов взрывного разложения азидов серебра [Текст] / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, С. С. Гречин, Е. В. Тупицин // Письма в ЖЭТФ. – 2005. – Т. 31. – № 15. – С. 7.
5. Адуев, Б. П. Взрывное разложение азидов тяжелых металлов [Текст] / Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер, Г. М. Белокуров и др. // ЖЭТФ. – 1999. – Т. 116. – № 5(11). – С. 1676.
6. Захаров, Ю. А. Предвзрывные явления в азидовых тяжелых металлов [Текст] / Ю. А. Захаров, Б. П. Адуев, Э. Д. Алукер и др. – М.: Химмаш, 2002. – 115 с.
7. Kuklja, M. M. The Role of Electronic Excitations in Explosive Decomposition of Solids [Текст] / М. М. Kuklja, В. Р. Aduев, E. D. Aluker et al. // Journal Of Applied Physics. – 2001. – Vol. 89. – №. 7. – P. 4156.
8. Алукер, Э. Д. Двустадийный характер взрывного разложения твердых энергетических материалов [Текст] / Э. Д. Алукер, Б. П. Адуев, А. Г. Кречетов и др. // Химическая физика. – 2006. – Т. 25. – № 7. – С. 38.
9. Aluker, E. D. Early Stages of Explosive Decomposition of Energetic Materials [Текст] / E. D. Aluker, В. Р. Aduев, A. G. Krechetov et al. // Focus on Combustion Research. – New York.: Nova Science Publishers Inc, 2006. – 373 p.
10. Иванов, Ф. И., Л. Б. Зуев, М. А. Лукин, В. Д. Мальцев // Кристаллография. – 1988. – Т. 28. – № 1. – С. 194.
11. Алукер, Э. Д. Разлет продуктов взрыва азидов серебра. Предвзрывная проводимость азидов серебра [Текст] / Э. Д. Алукер, А. Г. Кречетов, А. Ю. Митрофанов, А. С. Пашекин // Химическая физика. – 2007. – Т. 26. – № 11. – С. 44 – 46.