

ИЗМЕРЕНИЕ МУРР И РОСТ НАНОЧАСТИЦ КОНДЕНСИРОВАННОГО УГЛЕРОДА ПРИ ДЕТОНАЦИИ ТАТБ

Тен^{*1} К.А., Титов¹ В.М., Лукьянчиков¹ Л.А., Прууэл¹ Э.Р., Аминов² Ю.А.,
Лобойко² Б.Г., Музыря² А.К., Смирнов² Е.Б., Филин² В.П., Жогин³ И.Л., Толочко³ Б.П.
¹ИГиЛ СО РАН, ³ИХТТМ СО РАН, Новосибирск, Россия.
²РФЯЦ ВНИИТФ, Снежинск, Россия.

При исследовании малоуглового рентгеновского рассеяния (МУРР) регистрируется дифракционный сигнал от образца в области малых углов. Метод широко применяется при анализе структуры дисперсных систем. Использование высоко-периодичного синхротронного излучения от ускорительного комплекса ВЭПП-3 при измерениях МУРР с экспозицией 1 нс позволяет проследить эволюцию сигнала в процессе детонации ВВ. Анализ полученных данных дает возможность оценить размеры образующихся частиц конденсированного углерода и определить изменение этих размеров во времени после прохождения детонационной волны. Исследовались прессованные заряды из ТАТБ диаметром 20 мм. Сразу за фронтом детонации фиксируются наночастицы размером $d \sim 2.2$ нм. Далее размер частиц слабо растет и на время $t=4$ мкс достигает значения $d \sim 2.6$ нм. Следов нанодIAMAZOV в продуктах взрыва ТАТБ размером более 1 нм не обнаружено.

Введение

Вопрос о конденсации углерода при детонации ВВ с отрицательным кислородным балансом остаётся дискуссионным до настоящего времени. Ответ на него важен как для понимания физики явления, так и для оценки количества энергии, которая выделяется при экзотермической коагуляции углеродных кластеров. Результаты сравнения расчётных и экспериментальных данных по ускорению тонких металлических пластин продуктами детонации ВВ с отрицательным кислородным балансом показали, что этот процесс точнее описывается в предположении о наличии конденсации углерода за зоной химической реакции, или, как принято в теории детонации – за плоскостью Чепмена-Жуге, которая отделяет зону реакции от газодинамического течения продуктов взрыва [1, 2].

Экспериментально зарегистрировать размеры наночастиц конденсированного углерода при детонации ВВ в настоящее время можно лишь с помощью дифракционных методик с использованием синхротронного излучения (СИ) [3, 4]. При исследовании малоуглового рентгеновского рассеяния (МУРР) регистрируется дифракционный сигнал от образца в области малых углов. Метод широко применяется при анализе структуры дисперсных систем. При условии, что вещество является однородной средой, в которой равномерно расположены сферические центры рассеяния с размером d , интенсивность рассеянного излучения зависит от форм-фактора $P(q, d)$ и отличия плотности частиц ρ от плотности среды ρ_0 (здесь q – абсолютная величина вектора рассеяния, $|\vec{q}| = 4\pi \cdot \sin\theta/\lambda$, 2θ – угол рассеяния, λ – длина волны излучения). Угловая зависимость форм-фактора $P(q, d)$ дает информацию о размере рассеивающей частицы d .

Использование высоко-периодичного СИ от ускорительного комплекса ВЭПП-3 (ИЯФ СО РАН, г. Новосибирск) при измерениях МУРР позволяет проследить эволюцию сигнала в процессе детонации ВВ. Анализируя эту информацию, можно оценить размеры образующихся частиц конденсированного углерода и изменение этих размеров во времени после прохождения детонационной волны.

Постановка экспериментов и результаты

Существующая на ВЭПП-3 интенсивность пучка СИ недостаточна для использования монохроматического спектра в измерениях МУРР, поскольку интенсивность рассеянного излучения на несколько порядков меньше проходящего, а также вследствие очень малой экспозиции (1 нс). Поэтому использовалось СИ с исходным полихроматическим спектром, интенсивность которого на 3÷4 порядка больше, чем в случае монохроматического спектра. Реальный диапазон энергии излучения составлял $E=(20-30)$ кэВ, что соответствует диапазону длин волн $\lambda=(0.06-0.04)$ нм.

В экспериментах измерялась динамика углового распределения сигнала МУРР в образцах ВВ с шагом по времени 0.5 мкс. Для регистрации сигнала использовался разработанный в ИЯФ СО РАН однокоординатный детектор DIMEX [5], способный при экспозиции $\tau=1$ нс записывать 32 кадра с интервалом $\Delta t=(250-500)$ нс. Длина рабочей части детектора $\Delta X=25$ мм, разрешение (ширина одного канала регистрации) составляет $\delta X=0.1$ мм.

Схема постановки экспериментов по измерению МУРР показана на Рис. 1. Сформированный “ножами” K_1, K_2 прямой пучок СИ от ускорителя ВЭПП-3 отсекается за образцом E “ножом” K_3 , поэтому на линейный детектор D направляется только рассеянное излучение.

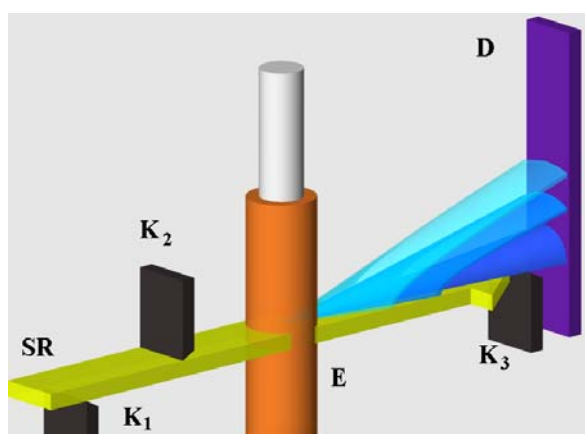


Рис. 1 – Схема регистрации сигнала МУРР

За одну вспышку СИ детектор записывает все каналы (делает один кадр), фиксируя распределение сигнала МУРР от угла. Поскольку фронт детонации движется вдоль образца со скоростью 7.5 км/с (для ТАТБ с плотностью 1.81 г/см³), то через период следования импульсов СИ (0.5 мкс) детектор записывает еще одно распределение МУРР (еще один кадр), формируя последовательность распределений. Фактически, результатом является рентгеновское дифракционное кино с периодом $\Delta t=0.5$ мкс и длительностью каждого кадра $\tau=1$ нс.

Для определения влияния размера частиц на характер углового распределения сигнала МУРР были проведены модельные расчеты для интенсивности МУРР на сферических частицах диаметром $d=2, 4, 10, 20$ и 200 нм, расположенных в образце ТНТ диаметром 20 мм. Расчет велся с учетом спектра ВЭПП-3 и спектральной чувствительности детектора DIMEX. Полученные угловые зависимости интенсивности МУРР от диаметра частиц приведены на Рис. 2. Здесь в качестве угловых координат используются номера каналов

детектора, при этом нулевому каналу соответствует нулевой угол. Видно, что в диапазоне от 2 до 200 нм диаметр частиц можно определять по наклону кривых МУРР, причем при уменьшении размера частиц форма зависимостей становится более плавной.

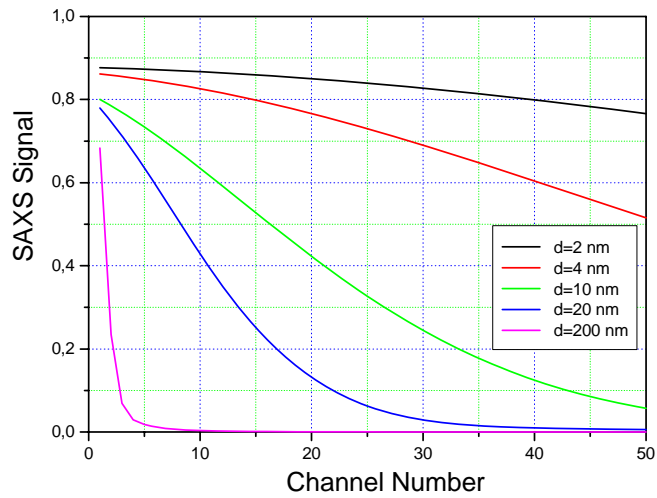


Рис. 2 – Зависимость сигнала МУРР от диаметра рассеивающих частиц в ТНТ.

Угловые зависимости сигнала МУРР, полученные при детонации образца ТАТБ диаметром 20 мм, представлены на Рис. 3. Здесь на двух первых кадрах (*B* и *C*), соответствующих исходному ВВ, был зарегистрирован заметный сигнал МУРР, который практически исчез на фронте детонации (кадр *D*). Вероятно, это вызвано наличием в исходном ВВ заметных межкристаллических пор, которые устраняются при сжатии ВВ под воздействием мощной ударной волны. Кроме этого, даже если частицы конденсированного углерода в зоне с максимальным сжатием ВВ и появляются, то значение “контрастности” – квадрата разности плотностей частиц углерода и ВВ $(\rho - \rho_0)^2$ – может оказаться относительно малым. На остальных кадрах Рис 3 при удалении от фронта наблюдается плавный рост амплитуды сигнала наряду с изменением углового распределения.

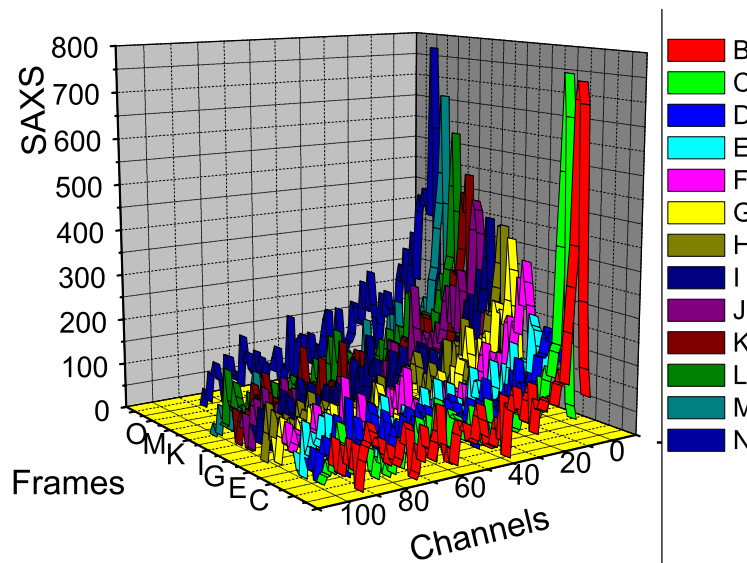


Рис.3. Зависимость сигнала МУРР от времени при детонации ТАТБ.

При детонации исследованных ВВ (смесь ТГ 50/50, ТНТ и ТАТБ) зависимость сигнала МУРР от времени примерно одинакова, но амплитуда интегрального сигнала (суммарного по всем каналам детектора) заметно отличается. Это отражено на Рис. 4, где моменту $t=0$ соответствует прохождение детонационного фронта. Видно, что наибольший сигнал интегрального МУРР наблюдается у смеси ТГ, а у зарядов из ТНТ и ТАТБ он намного меньше, в (1.5-2) раза. Это означает, что рассеивающие частицы имеют меньшую плотность и, скорее всего, являются графитоподобными.

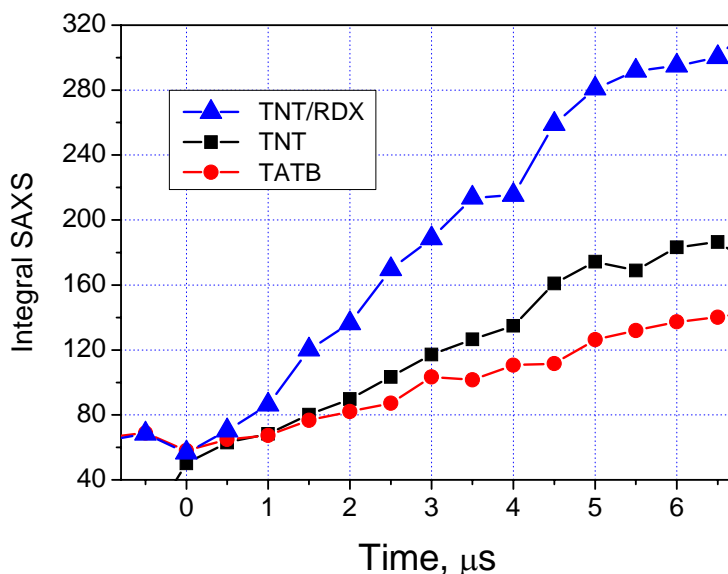


Рис. 4 – Зависимость интегрального МУРР от времени при детонации ТГ(50/50), ТНТ и ТАТБ.

Средний размер частиц, образовавшихся за фронтом детонации, определялся по экспериментальным данным с использованием известных из теории МУРР соотношений [6, 7]. В предположении сферичности этих частиц при оценке интервала регистрируемых значений их диаметра привлекались также параметры экспериментальной установки и пучка СИ. Максимальный регистрируемый угол составляет $2\theta_{max}=0.011$ рад, а соответствующая энергии $E_{max}=30$ кэВ длина волны излучения $\lambda_{min}=0.041$ нм, отсюда минимальный размер регистрируемых частиц $d_{min}=\pi/q_{max}=\lambda_{min}/(4\theta_{max}) \sim 2$ нм. Минимальный регистрируемый угол $2\theta_{min}=4.4 \cdot 10^{-4}$ рад определяется точностью настройки положения ножа K_3 (Рис. 1), составляющей примерно 0.2 мм. При $\lambda_{max}=0.062$ нм ($E=20$ кэВ) максимальный размер частиц $d_{max}=\pi/q_{min}=\lambda_{max}/(4\theta_{min}) \sim 70$ нм.

Эволюция средних размеров частиц в трех экспериментах с образцами ТАТБ полученная с учетом калибровки (Рис. 2), отражена на Рис. 5, где моменту $t=0$ соответствует прохождение детонационного фронта. Практически сразу за фронтом детонации фиксируются наночастицы с размерами $d=(2.2-2.3)$ нм. Далее размер слабо растет и на время $t=4$ мкс достигает $d \sim 2.6$ нм. Для сравнения на Рис. 6 приведены аналогичные данные для образца из ТГ(50/50) диаметром 15 мм. В этом случае наблюдается гораздо больший рост размеров частиц – от начальных $d=(2.5-2.8)$ нм до $d \sim 4.6$ нм.

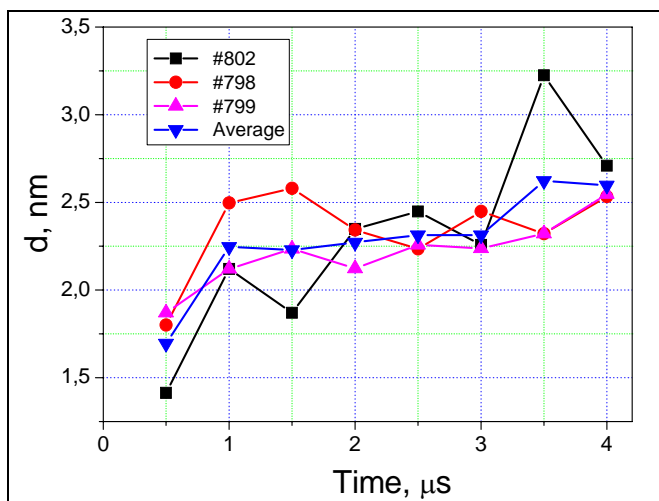


Рис. 5. Зависимость размеров наночастиц от времени при детонации ТАТБ.

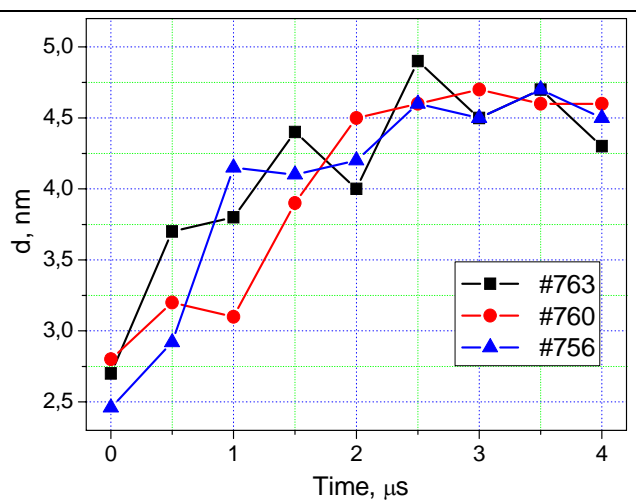


Рис. 6. Зависимость размеров наночастиц от времени при детонации ТГ 50/50.

Таким образом, регистрируемых следов наноалмазов при детонации образцов ТАТБ диаметром 20 мм не обнаружено, а если они есть, то их размер не превышает 1 нм. Образующиеся графитоподобные частицы имеют размер $d \sim 2.6$ нм.

Литература

1. J.A. Vicelli, F.H. Ree. Carbon particle phase transformation kinetics in detonation waves. Journal of Applied Physics, Vol 88, Num 2, 2000, P. 683-690.
2. К.Ф. Гребенкин, А.Л. Жеребцов, М.В. Тараник. Медленное энерговыделение в продуктах взрыва составов на основе октогена: расчетная модель и экспериментальные эффекты. Забабахинские научные чтения. Международная конференция, Снежинск, Россия, 10-14 сентября 2007, С.76.
3. V.M. Titov, B.P. Tolochko, K.A. Ten, L.A. Lukyanchikov, E.R. Pruel. Where and when are nanodiamonds formed under explosion? Diamond & Related Materials. V.16, Issue 12, 2007. P. 2009-2013.
4. K.A. Ten, V.M. Aulchenko, L.A. Lukyanchikov, E.R. Pruel, L.I. Shekhtman, B.P. Tolochko, I.L. Zhogin, V.V. Zhulanov. Application of introduced nano-diamonds for the study of carbon condensation during detonation of condensed explosives. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, ISSN 0168-9002, Section A, Vol. 603, Issue 1-2, 2009, pp. 102-104.
5. A. Aulchenko, V. Zhulanov, L. Shekhtman, B. Tolochko, I. Zhogin, O. Evdokov, K. Ten. One-dimensional detector for study of detonation processes with synchrotron radiation beam. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A, 2005, Vol. 543, Issue 1, 1 May, P. 350-356.
6. A. Guinier, G. Fournet, C.B. Walfer, K.L. Yudovitch. Small-Angle Scattering of X-Ray. Wiley, N.Y. 1955.
7. L.A. Feigin, D.I. Svergun. Structure Analysis by Small-Angle X-Ray and Neutron Scattering. NY, Plenum Press. 1987. P.335.