

# ИЗМЕРЕНИЕ МАЛО-УГЛОВОГО РАССЕЙЯНИЯ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ ДЕТОНАЦИИ ВВ НА ОСНОВЕ ТАТЬ.

К.А. Тен<sup>1</sup>, В.М. Титов<sup>1</sup>, Э.Р. Прууэл<sup>1</sup>, Л.А. Лукьянчиков<sup>1</sup>, Б.П. Толочко<sup>2</sup>, И.Л. Жогин<sup>2</sup>,  
Л.А. Андреевских<sup>3</sup>, И.И. Карпенко<sup>3</sup>, А.Л. Михайлов<sup>3</sup>, Ю.В. Шейков<sup>3</sup>.

<sup>1</sup>ИГиЛ СО РАН, Новосибирск, Россия

<sup>2</sup>ИХТТМ СО РАН, Новосибирск, Россия

<sup>3</sup>ВНИИЭФ, Саров, Россия

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

Опубликованные в литературе результаты по сравнению расчётных и экспериментальных данных по ускорению очень тонких металлических пластинок продуктами детонации ВВ с отрицательным кислородным балансом показали, что такой процесс точнее описывается в предположении о наличии конденсации углерода за зоной химической реакции [1,2].

Экспериментально зарегистрировать размеры наночастиц конденсированного углерода при детонации ВВ в настоящее время возможно лишь с помощью дифракционных методик с использованием синхротронного излучения (СИ) [3].

Метод измерения мало-углового рентгеновского рассеяния (МУРР) широко применяется при статическом анализе структуры дисперсных систем. Например, методом МУРР впервые удалось выявить спиральную структуру ДНК. Сочетание метода МУРР с использованием СИ от мощных ускорителей заряженных частиц (ВЭПП-3, энергия 2 ГэВ, Институт ядерной физики СО РАН) позволяет проводить динамические измерения распределения МУРР с экспозицией 1 нс с периодичностью 250 нс. Анализ эволюции распределений МУРР позволяет оценить динамику размеров конденсированных наночастиц при детонации ВВ.

## Теория МУРР.

МУРР является аналитическим методом для определения формы и структуры наночастиц. Сами частицы могут быть твердыми, жидкими или газообразными, главное, чтобы их электронная плотность отличалась от плотности среды, то есть метод чувствителен к «флуктуации электронной плотности».

При вычислении мало-углового рассеивания от одной частицы, состоящей из многих атомов, берется интерференция от всех электронов внутри частицы до детектора. При моделировании сигнала МУРР будем считать, что частица имеет сферическую форму радиуса  $R$ , и атомы (и электроны) внутри частицы расположены равномерно. Расстояние до детектора  $L \gg R$ . Тогда, амплитуда рассеиваемой волны  $E_s(q, R)$  (в районе детектора) и интенсивность  $I_0(q, R)$  считаются аналитически и равны [4]:

$$E_s(q, R) = i_1 \cdot n_e \cdot \frac{1}{q^3} [\text{Sin}(qR) - (qR) \cdot \text{Cos}(qR)]$$

Здесь  $\vec{q} = \vec{k} - \vec{k}_0 = 2k \text{Sin} \theta = \frac{4\pi \text{Sin} \theta}{\lambda}$  - вектор рассеяния,  $2\theta$  - угол рассеяния.

$$I_0(q, R) = [E_s(q, R)]^2 = I_1 \cdot (R^3 n)^2 \cdot P(q, R) \quad (1)$$

$$P(q, R) = \frac{1}{q^6} [\text{Sin}(qR) - (qR) \cdot \text{Cos}(qR)]^2 \quad (2)$$

Здесь  $I$  – интенсивность рассеиваемой волны от электронов в грамме вещества,  $n$  – плотность частицы. Величина  $P(q,R)$  определяется размерами частицы и носит название «форм-фактора», его вид приведен на рис. 1.

Если рассеивающая частица находится не в вакууме, а в среде с электронной плотностью  $n_0$ , то амплитуда волны будет пропорциональна  $(n - n_0)$ , а интенсивность - пропорциональна  $(n - n_0)^2$ , или, как говорят, пропорциональна «флуктуации» электронной плотности. В случае нейтрального (незаряженного) шара электронная плотность  $n \sim \rho$  - плотности рассеивающего шара и интенсивность рассеяния от шара пропорциональна:

$$I_0(q, R) \approx (R^3 n)^2 \cdot (\rho - \rho_0)^2 \cdot P(q, R)$$

Квадрат разности плотностей  $(\rho - \rho_0)^2$  часто называют «контрастностью».

Кроме углового распределения МУРР представляет интерес интегральный поток  $I_{INT}(R)$  рассеянного излучения по всем углам. Для этого интенсивность по формуле (1) суммируется по всем углам рассеяния (каналам детектора от 1 до 100) и интегрируется по углу вращения.

$$I_{INT}(R) \approx (R^3 n)^2 \cdot (\rho - \rho_0)^2$$

Полный интегральный сигнал МУРР получается еще суммированием по всем длинам волн излучения ( $q=2\pi/\lambda$ ) согласно спектру излучения ускорителя ВЭПП-3

Величина интегрального МУРР сильно зависит от контрастности, то есть от разности плотности конденсированной частицы и плотности продуктов взрыва. Например, сигнал МУРР от нанодIAMAZOV (плотность 3,5 г/см<sup>3</sup>) будет больше сигнала от графита (плотность 2.2 г/см<sup>3</sup>) в четыре раза при плотности продуктов детонации равной 1.0 г/см<sup>3</sup>. Таким образом, по величине интегрального МУРР можно оценить фазовый состав рассеиваемых наночастиц.

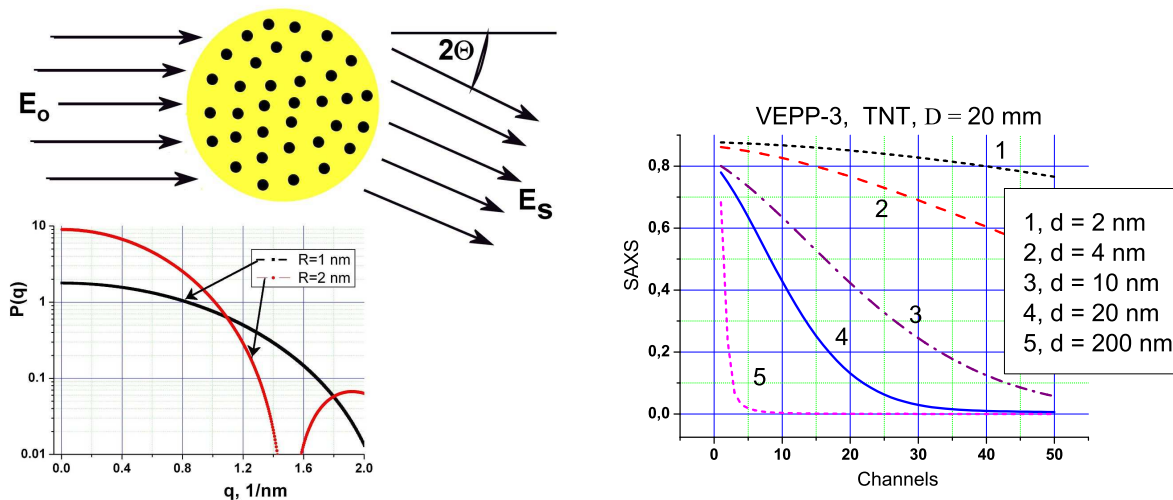


Рис. 1. Рассеяние на частице и поведение форм-фактора (слева). Зависимость сигнала МУРР от диаметра рассеивающих частиц в TNT (справа)

Существующая на коллайдере ВЭПП-3 интенсивность пучка СИ оказывается недостаточной для использования монохроматического спектра в измерениях МУРР, поскольку интенсивность рассеянного излучения на несколько порядков меньше проходящего, а также вследствие очень малой экспозиции (1 нс). В связи с этим использовался пучок СИ с исходным полихроматическим спектром, интенсивность которого на 2÷3 порядка больше, чем в случае монохроматического спектра, а длина волны меняется от 0,15 до 0,04 нм (энергия от 6 до 30 кэВ).

Для оценки регистрируемого детектором DIMEX сигнала были проведены модельные расчеты для интенсивности МУРР на сферических частицах диаметром 2, 4, 10 и 20 нм расположенных в

заряде ТНТ диаметром 20 мм. Расчет велся с учетом спектра ВЭПП-3 (энергия электронов  $E = 2$  ГэВ, вигглер с индукцией 2Т) и спектральной чувствительности детектора DIMEX [6]. На рис. 1 (справа) приведены угловые зависимости МУРР от диаметра частиц. Угол приведен в каналах детектора (1 канал равен 0,1 мрад). На этом графике видно, что по наклону кривых МУРР можно определять диаметр частиц в диапазоне от 2 до 100 нм.

Для оценки размеров рассеиваемой частицы в формуле для форм-фактора (2) разложим  $\sin X$  и  $\cos X$  в ряд Тейлора (величина  $x = q \cdot R$  в наших условиях меняется от 0,012 до 0,63):

$\sin(x) \approx x - x^3 / 6 + x^5 / 120$ ,  $\cos(x) \approx 1 - x^2 / 2 + x^4 / 24$  и подставим их в (2):

$$\left[ \frac{\sin(qR) - qR \cos(qR)}{(qR)^3} \right] \approx \frac{1}{3} \left( 1 - \frac{(qR)^2}{10} \right)$$

Для форм-фактора  $P(q, R)$  получаем (учитывая, что  $(1 - x)^2 \approx 1 - 2 \cdot x$ ):

$P(q, R) \approx \frac{1}{9} \left( 1 - \frac{(qR)^2}{5} \right)$ . Тогда для интенсивности (вблизи нуля) получаем:

$I_0(q, R) = I_{00} \cdot \left( 1 - \frac{(qR)^2}{5} \right)$ , где  $I_{00}$  - интенсивность в нулевом угле..

Далее, эту функцию представить в виде первых двух членов разложения экспоненциальной функции:  $I_0(q, R) = I_{00} \cdot \exp\left(-\frac{(qR)^2}{5}\right)$  (3)

Если взять логарифм этой функции  $\ln(I_0(q, R)) = \ln(I_{00}) - \frac{q^2 R^2}{5}$ , то получается функция, линейно спадающая от  $q^2$ . По наклону прямой можно определить радиус рассеивающего шара  $R$ .

### Постановка и результаты экспериментов.

Для динамических экспериментов с регистрацией МУРР использовалась схема измерения, описанная в [5] и показанная на рис. 2. Из пучка СИ с помощью нижнего ( $K_1$ ) и верхнего ( $K_2$ ) ножей (коллиматор Кратки) на центральной части заряда ВВ формировалась полоса размером 0,4-1 мм высотой и 3-14 мм шириной. Перед детектором прямой пучок зарезался еще одним нижним ножом ( $K_3$ ). Отклоненные лучи МУРР регистрировались газовым быстродействующим детектором DIMEX [6].

Расстояние между ножами ( $K_1$ ) и ( $K_2$ ) составляло  $\sim 200$  мм, расстояние между ножом  $K_2$  и зарядом ВВ  $\sim 700$  мм, между зарядом и ножом  $K_3 \sim 640$  мм, между ножом  $K_3$  и детектором  $\sim 260$  мм. Угловой диапазон измерений МУРР составлял  $\sim 4 \cdot 10^{-4} - 10^{-2}$  рад. Такой диапазон измерений позволяет регистрировать МУРР от частиц размером  $\sim 2 - 70$  нм.

За одну вспышку СИ детектор записывает все каналы (делает один кадр), фиксируя распределение МУРР от угла. Поскольку фронт детонации движется по оси  $Z$  с постоянной скоростью 7,5 км/с (для ПСТ), то через период следования импульсов СИ  $T = 0,5$  мкс детектор записывает еще одно распределение МУРР (еще один кадр), формируя последовательность распределений сигналов МУРР. Фактически это рентгеновское дифракционное кино с временным сдвигом 0,5 мкс и длительностью каждого кадра в 1 нс.

Исследовались прессованные заряды ПТО (АОТУ480) и ПСТ (РОТУ303) изготовленные на основе ТАТБ диаметром 20 мм и длиной 32 мм. Инициирование проводилось пластифицированным зарядом на основе ТЭНа. Заряды ПТО и ПСТ поставлялись ВНИИЭФ (г. Саров).

Полученные графики распределений МУРР показаны на рис. 4. Прохождению фронта детонации на графиках соответствуют кадр С18 (ПТО), нумерация кадров идет в обратном направлении. На всех кадрах видна динамика МУРР, т.е. рост сигнала и его углового распределения.

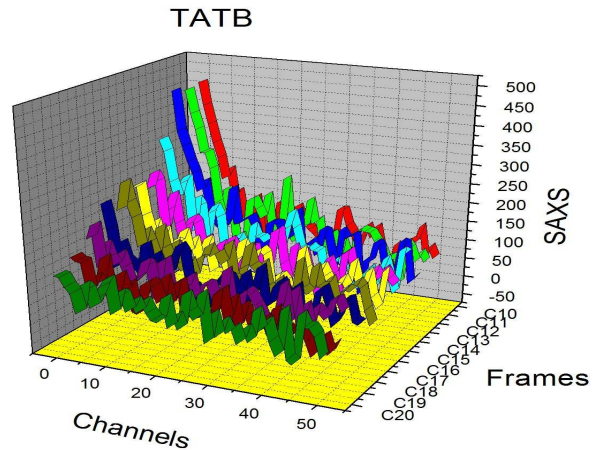
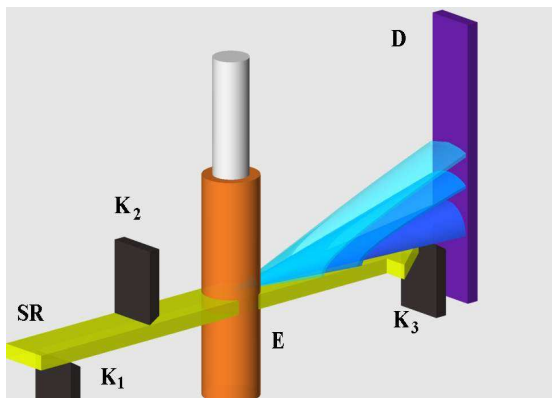


Рис. 2. Схема постановки экспериментов (слева). Зависимость углового распределения амплитуды МУРР от времени при детонации ПТО (справа). Угол отложен в номерах каналов детектора (1 канал = 0,1 мрад). Кадр C18 соответствует прохождению фронта детонации.

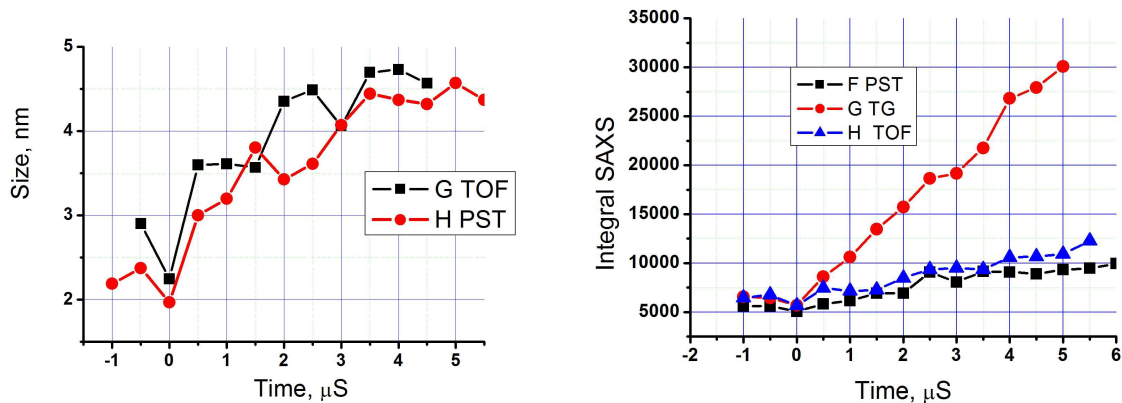


Рис. 3. Зависимость размеров наночастиц от времени при детонации ПТО и ПСТ. (Слева). Зависимость интегрального МУРР от времени при детонации ПТО, ПСТ и TNT/RDX. (Справа)

В момент прохождения фронта детонации сигнал минимален, затем наблюдается заметный рост. Значительное увеличение амплитуды сигналов МУРР связано с разлетом продуктов детонации и увеличением «контрастности». А изменение углового наклона кривой означает рост рассеивающих частиц (изменяется форм-фактор, рис.1). Значительный «шум» на кривых связан с малым количеством регистрируемых фотонов (в канал детектора попадает 10-30 рентгеновских фотонов). Тем не менее, обработка кривых по формуле (3) позволила оценить динамику размеров конденсируемых наночастиц (рис. 3). Из приведенных графиков следует, что на фронте детонации фиксируются наночастицы размером  $d \sim 2.0$  нм. Далее размер частиц растет и через время  $t=2-3$  мкс достигает размеров  $d \approx 3.5-4.0$  нм у ПСТ и  $\sim 4-4,5$  нм у ПТО. Присутствие октогена в ТАТБ (около 50%) не дает большого увеличения размеров конденсируемых частиц, как у ТНТ. Возможно, малый размер наночастиц и слабая зависимость от присутствия октогена, связаны с малым размером зарядов ВВ (особенно диаметра). На рис. 3 (справа) приведены графики роста интегрального МУРР. Для сравнения, там же приведен интегральный МУРР для ТГ50/50. Значения интегрального МУРР для ПТО и ПСТ заметно меньше, чем у ТГ50/50. Это означает, что рассеивающие частицы имеют заметно меньший размер и меньшую плотность и, скорее всего, являются графитоподобными. Возможно присутствие наноалмазов размером менее 2 нм, которые в нашей постановке экспериментов плохо регистрируются.

Литература.

1. J. A. Viecelli, F. H. Ree. Carbon particle phase transformation kinetics in detonation waves.//Journal of Applied Physics, Vol 88, Num 2, 2000, p 683—690.
2. K.F.Grebenkin, M.V.Taranik, A.L.Zherebtsov. Slow energy release in detonation products of HMX-based explosives: computer modeling and experimental effects.// Zababakhin scientific talks, International Conference, Snezhinsk, Russia, 10-14 September, 2007, p. 76
3. V.M.Titov, B.P.Tolochko, K.A.Ten, L.A.Lukyanchikov, E.R.Pruuel. Where and when are nanodiamonds formed under explosion ? //Diamond & Related Materials. V.16, Issue 12, 2007. P. 2009-2013.
4. Feigin L.A. & Svergun D.I.. Structure Analysis by Small-Angle X-Ray and Neutron Scattering. // NY, Plenum Press. 1987. P.335.
5. K.A. Ten, V.M. Aulchenko, L.A.Lukianchikov, E.R.Pruuel, 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.
6. V.M. Aulchenko, O.V. Evdokov, L.I. Shekhtman, K.A. Ten, B.P.Tolochko, I.L. Zhogin, V.V. Zhulanov. Current status and further improvements of the detector for imaging of explosions.// Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, ISSN 0168-9002, Section A, . Vol. 603, Issue 1-2, 2009, pp. 73-75.