

УДК 544.454.3

Исследование параметров детонационной волны и процессов конденсации в БТФ синхротронными методами.

К.А. ТЕН¹, В.М. ТИТОВ¹, Э.Р. ПРУУЭЛ¹, Л.А. ЛУКЬЯНЧИКОВ¹, Б.П. ТОЛОЧКО², В.В. ЖУЛАНОВ³, Л.И. ШЕХТМАН³, Ю.А. АМИНОВ⁴, А.К. МУЗЫРЯ⁴, О.В. КОСТИЦЫН⁴, Е.Б. СМИРНОВ⁴

¹ИГиЛ СО РАН

²ИХТТМ СО РАН

³ИЯФ СО РАН

⁴РФ-ЯЦ ВНИИТФ

Аннотация.

Приводятся результаты измерений проходящего и рассеянного синхротронного излучения при детонации бензотрифуроксана (БТФ, $C_6N_6O_6$). Обработка результатов позволила определить параметры продуктов детонации (плотность, давление, скорость течения), а также динамику распределения частиц по размерам при конденсации углерода за фронтом детонации.

Ключевые слова: синхротронное излучение, малоугловое рентгеновское рассеяние, рентгеновский детектор, детонационная волна, адиабата, БТФ

1. ВВЕДЕНИЕ

За последние 10 – 15 лет развитие техники ускорителей элементарных частиц позволило создать ряд новых бесконтактных методик для исследования взрывных процессов [1-5]. В их основе лежит динамическое просвечивание исследуемого объекта высокоэнергетическими пучками различной природы. Большая проникающая способность используемого синхротронного излучения (СИ), высокое временное и пространственное разрешение позволяют получать не только тепловые изображения исследуемого течения высокого качества, но и восстанавливать методами томографии внутреннее распределение параметров объекта. Особенно привлекательна возможность измерять дифракционные сигналы (малоугловое рентгеновское рассеяние - МУРР), по распределению которых возможно измерять размеры наночастиц, которые возникают при конденсации углерода в зоне химического превращения. В настоящее время это единственный экспериментальный способ изучать динамику конденсации углерода при детонации взрывчатых материалов (ВМ) с отрицательным кислородным балансом.

Изучение процессов конденсации углерода при детонации таких ВМ, крайне важно для оценки количества энергии, которая выделяется при экзотермической коагуляции углеродных кластеров. Опубликованные в литературе результаты [6, 7] показали, что предположение о наличии конденсации углерода за зоной химической реакции позволяет лучше описать экспериментальные данные. Эксперименты с безводородным ВМ $C_6N_6O_6$ (бензотрифуроксан, БТФ) интересны тем, что ранее в продуктах взрыва БТФ были обнаружены крупные частицы алмаза [8]. Поэтому исследования детонационных процессов в БТФ важны и для практического использования.

Метод измерения мало-углового рентгеновского рассеяния (МУРР) широ-

ко применяется при статическом анализе структуры дисперсных систем. 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. [9]

2. АЛГОРИТМ ВОССТАНОВЛЕНИЯ ПАРАМЕТРОВ ТЕЧЕНИЯ И ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Для измерения проходящего излучения детонирующий заряд зондировался в двух направлениях: ось цилиндрического находилась в плоскости пучка и перпендикулярно (рис. 1). После калибровки детектора по измеренному прошедшему излучению возможно получить данные о динамике распределения массы на луче вдоль заряда и в фиксированном сечении (рис. 2) [9,10]. В первой постановке с высокой точностью определяются координаты фронта и скорость детонации. Результаты другой постановки, являются исходными данными для задач томографии по восстановлению внутренних параметров течения.

Несмотря на высокую интенсивность прямого пучка СИ, прямое использование данных по поглощению не позволяет сразу получить искомую плотность продуктов взрыва. Причиной является высокое требование задач томографии к точности получаемых в эксперименте данных. Одно из решений этой проблемы – это разработка специализированных методов восстановления плотности, основанных на регуляризации искомого решения распределения плотности с интенсивным использованием априорной информации о структуре исследуемого течения. В нашем случае был разработан оригинальный метод восстановления газодинамических параметров детонационного течения по данным рентгенографического эксперимента. Метод адаптирован к конкретной задаче, но позволяют не только значительно улучшить точность восстановления плотности [10-12], но и определить остальные газодинамические характеристики - распределения массовой скорости и давления [9, 13-14].

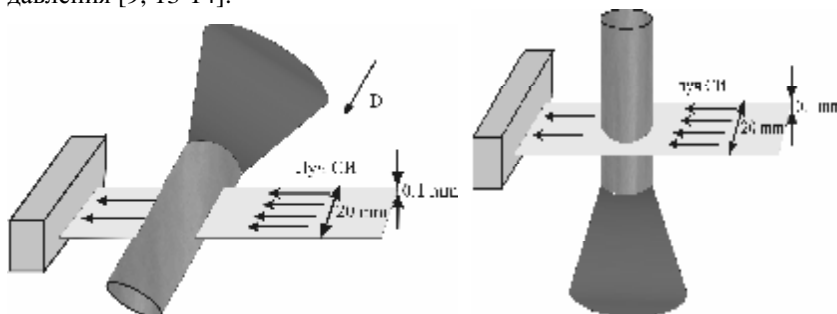
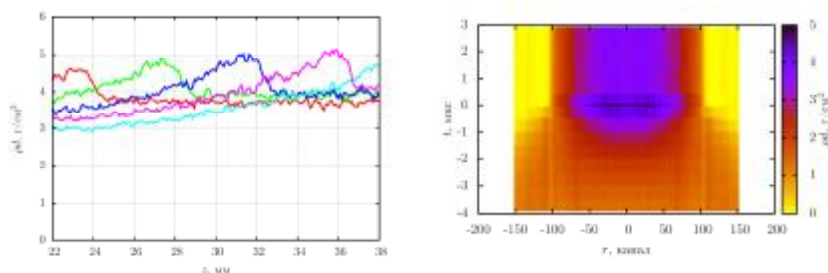


Рис. 1.: Схема постановок экспериментов по определению внутреннего распределения плотности в детонационном течении.



а б

Рис. 2: Динамика рентгеновской тени при детонации заряда БТФ ($\rho_0=1.8 \text{ г/см}^3$, $D = 8.5 \text{ км/с}$): а – при измерениях вдоль заряда, б – в фиксированном сечении.

В основе метода восстановления полей газодинамических характеристик детонационного течения лежит численное решение газодинамической задачи в постановке, соответствующей эксперименту [9]. Рассмотрим задачу о цилиндрически симметричном течении газа, в этом случае в эйлеровых координатах уравнения неразрывности и движения имеют вид:

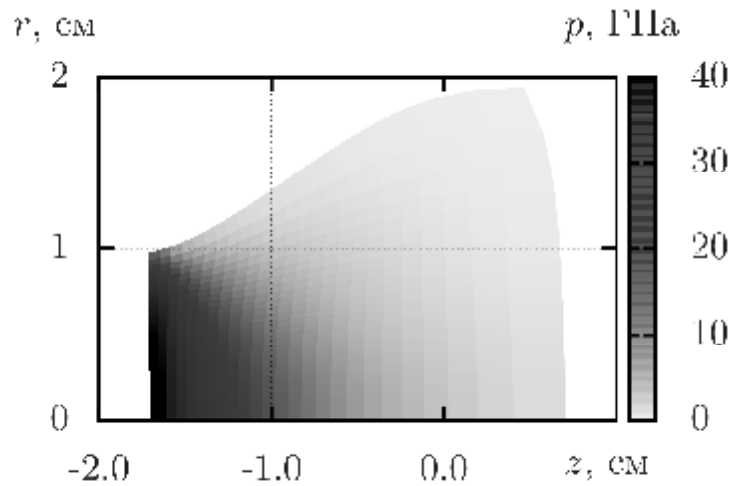
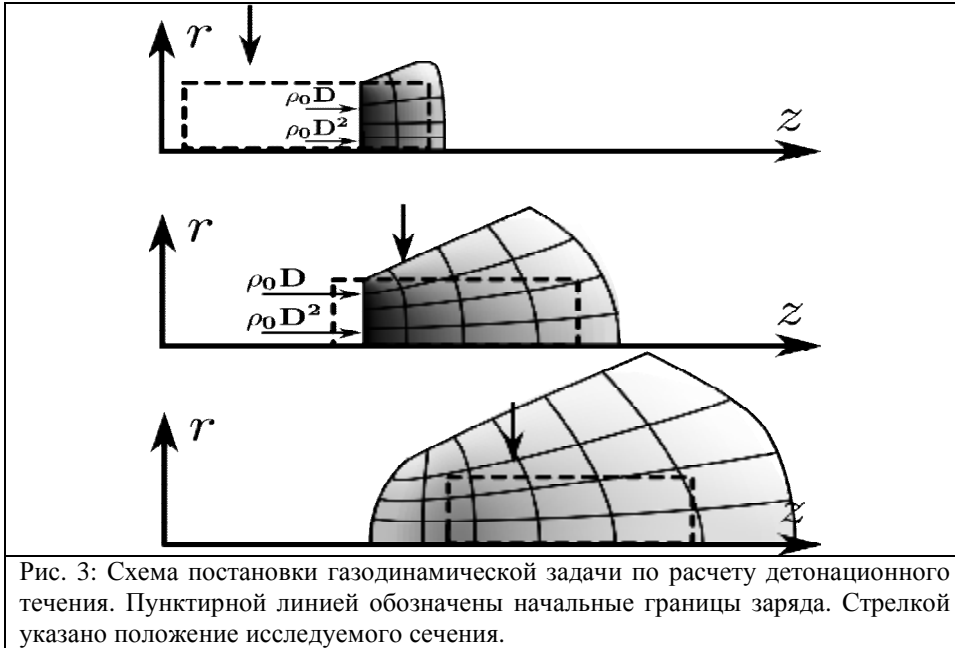
$$\begin{aligned} \frac{\partial rru}{\partial r} + \frac{\partial rrv}{\partial z} &= \frac{\partial r\mathbf{r}}{\partial t}, \\ \frac{\partial rru^2}{\partial r} + \frac{\partial rruv}{\partial z} + r \frac{\partial p}{\partial r} &= \frac{\partial rru}{\partial t}, \\ \frac{\partial rrv^2}{\partial z} + \frac{\partial rruv}{\partial r} + r \frac{\partial p}{\partial z} &= \frac{\partial rrv}{\partial t}, \end{aligned}$$

где ρ – плотность, p – давление, u, v – осевая и радиальная компоненты вектора скорости \mathbf{v} , r, z – радиальная и осевая пространственные координаты, t – время. Перейдя к лагранжевой системе координат, будем решать задачу о течении газа, подчиняющегося уравнению состояния

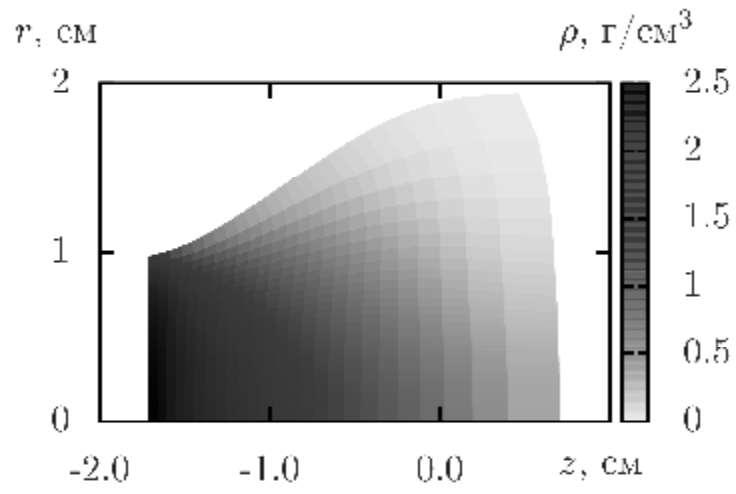
$$p(\mathbf{r}) = p_0 (\mathbf{r} / \mathbf{r}_0)^{G(\mathbf{r})},$$

($p_0, \rho_0, G(\mathbf{r})$ – еще подлежащие определению параметры). При заданных значениях параметров рассчитывается поле течения, распределение плотности в котором можно сравнить с полученным экспериментально. Расчет проводился в области, правая граница которой считалась плоской, что соответствует предположению о плоской детонационной волне, распространяющейся по заряду с постоянной скоростью D . Постановка задачи иллюстрируется на рис. 3. В качестве граничного ставилось условие втекание потока массы и импульса ($\rho_0 D$ и $\rho_0 D^2$ соответственно). На остальной границе ставились граничные условия, определявшиеся из решения задачи о распаде разрыва между продуктами детонации и воздуха. Использование лагранжевых координат позволило естественным образом выделить детонационный разрыв и вести расчет только в области занятой детонационным течением. Для численного решения при варьировавшихся значениях искомых параметров использовался метод Годунова. Выбор подлежащих определению параметров осуществлялся на основе минимизации функционала среднеквадратичных отклонений рассчитанных и экспериментально полученных рентгеновских «теней» исследуемого течения в выделенных узлах расчетной области. При этом зависимость $G(\mathbf{r})$ аппроксимировалась кубическим сплайном. Для решения возникающей задачи многомерной минимизации использовался симплекс метод, описанный и реализованный в [15].

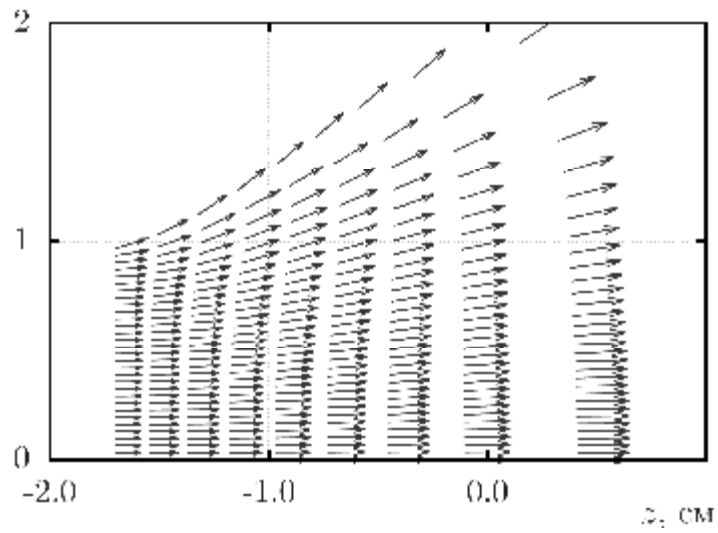
Результатом восстановления является параметрическое уравнение состояния продуктов детонации. Это позволяет восстанавливать ряд механических параметров течения не только в области наблюдения рентгеновской тени, но и во всем пространстве заполняемом продуктами взрыва. Полученные результаты для заряда бетзотрифуроксана (БТФ) диаметром 20 мм показаны на рис. 4.



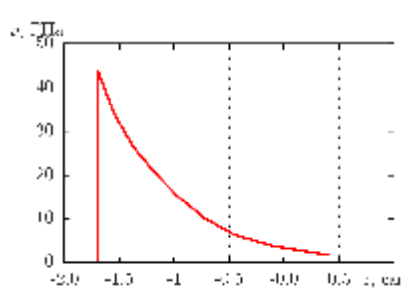
А



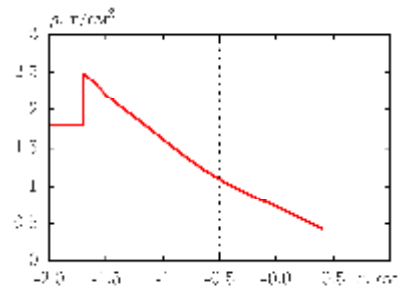
Б



В



Г



Д

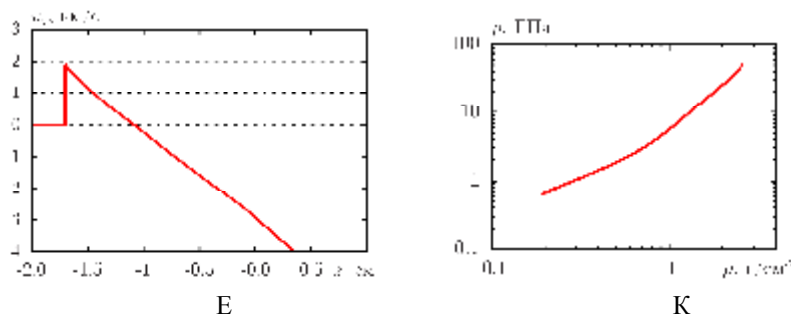


Рис. 4: Пространственные распределения параметров и значения их на оси, при детонации цилиндрического заряда БТФ через 2 мкс от момента инициирования: а и г – давление, б и д – плотность, б – массовая скорость в системе детонационного фронта, е – массовая скорость в покоящейся системе отсчета, к - адиабата разгрузки продуктов детонации построенная вдоль линии тока проходящей через ось

Полученное уравнение состояния (рис. 4, к) не только хорошо согласуется с широко используемым для плотных продуктов взрыва приближением политропного газа с показателем адиабаты близким к 3, но и позволяет фиксировать переход к уравнению состояния идеального газа с показателем адиабаты 1.4 (рис. 5).

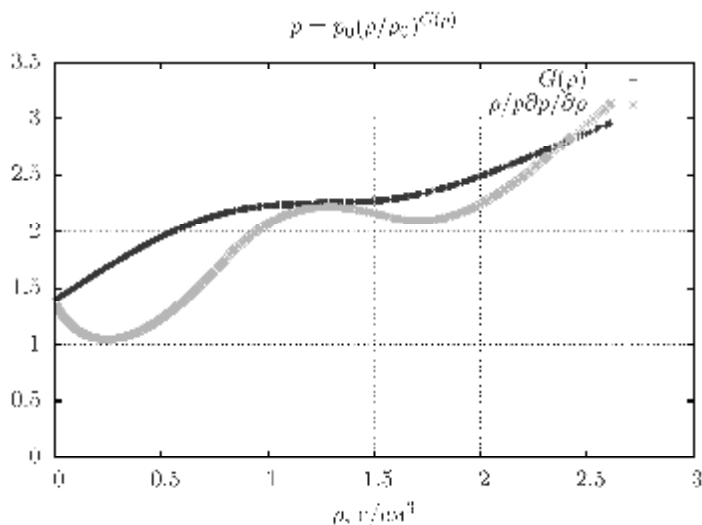


Рис. 5: Адиабата разгрузки продуктов детонации построенная вдоль линии тока проходящей через заряда..

Использованная в методе восстановления характеристик течения система уравнений не включает уравнения баланса энергии. Это позволяет формально распространять метод и на зону химического превращения, хотя в этом случае сделанные предположения не являются вполне корректными. Реально в этой зоне процесс не изоэнтропичен, а состояние не может считаться термодинамически равновесным. Продолжая рассмотрение, и интерпретируя производную $\partial p/\partial \rho$ как квадрат скорости звука c , определим положение звуковой поверхности на основе равенства $|v| = c$, являющегося условием Чепмена-Жуге в системе координат, движущейся со скоростью фронта детонации. Рассчитанная

таким образом звуковая поверхность показана на рис. 7.

Для зарядов БТФ, протяженность зоны химической реакции меньше временного разрешения метода и звуковая граница практически совпадает с плоской поверхностью фронта.

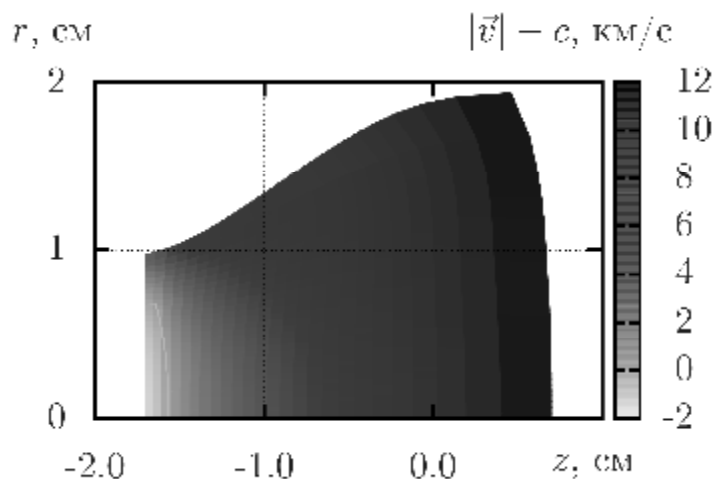


Рис. 7: Звуковая граница (светлая линия) при детонации цилиндрического заряда БТФ через 2 мкс от момента инициирования.

Пространственная точность восстановления характеристик течения достаточно высока, это 1-2 канала детектора, что составляет ~ 0.2 мм. Итоговое временное разрешение, с учетом статистики по нескольким экспериментам с промежутком между кадрами 0.5 мкс, составляет ~ 0.2 мкс. Точность определения значений самих газодинамических корректируется использованными законами сохранения и оценивается не хуже 10% на масштабе времени 0.5 мкс.

3. ИЗМЕРЕНИЕ МАЛО-УГЛОВОГО РАССЕЯНИЯ СИ ПРИ ДЕТОНАЦИИ БТФ.

3.1 ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТОВ.

Для динамических экспериментов с регистрацией МУРР использовалась схема измерения, описанная в [9, 16-17] и показанная на рис. 8. 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 3-16 мм шириной. Перед детектором прямой пучок резался еще одним нижним ножом (K_3). Отклоненные лучи МУРР регистрировались детектором DIMEX [18].

Угловой диапазон измерений МУРР составлял $\sim 4 \cdot 10^{-4} - 10^{-2}$ рад (2 - 100 каналов детектора). Такой диапазон измерений позволяет регистрировать МУРР от частиц размером [19]

$$D_{\min} = \pi / q_{\max} = \lambda / (4\theta_{\max}) \approx 2,0 \text{ nm}$$

$$D_{\max} = \pi / q_{\min} = \lambda / (4\theta_{\min}) \approx 75 \text{ nm}$$

За одну вспышку СИ детектор записывает все каналы (делает один кадр), фиксируя распределение МУРР от угла. Поскольку фронт детонации движется вдоль заряда с постоянной скоростью 7,5 км/с (для ТАТБ), то через период следования импульсов СИ (250-500 нс) детектор записывает еще одно распределение МУРР (еще один кадр), формируя временную последовательность распределений МУРР. Фактически это рентгеновское дифракционное кино с временным сдвигом

0,5 мкс и длительностью каждого кадра в 1 нс.

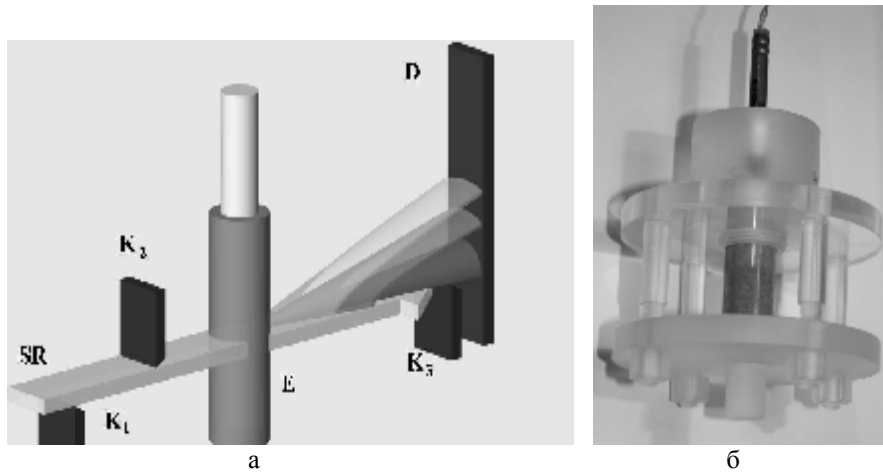


Рис. 8. Схема постановки экспериментов по измерению МУРР (слева). Общий вид экспериментальной сборки (справа).

Исследовались прессованные заряды из БТФ. Диаметр зарядов составлял 20 мм и длина 30 - 32 мм. Заряд помещался в сборку (рис. 8, справа), где зажимался винтами. Инициирование проводилось через промежуточный заряд на основе пластифицированного ТЭНа.

3.2 РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ.

Угловое распределение SAXS (кадры) в зависимости от времени при детонации БТФ показано на Рисунке 10, где разными цветами обозначены кадры, снятые через 0,5 мкс. Угол рассеяния приведен в каналах детектора DIMEX (1 канал = 0,1 мрад).

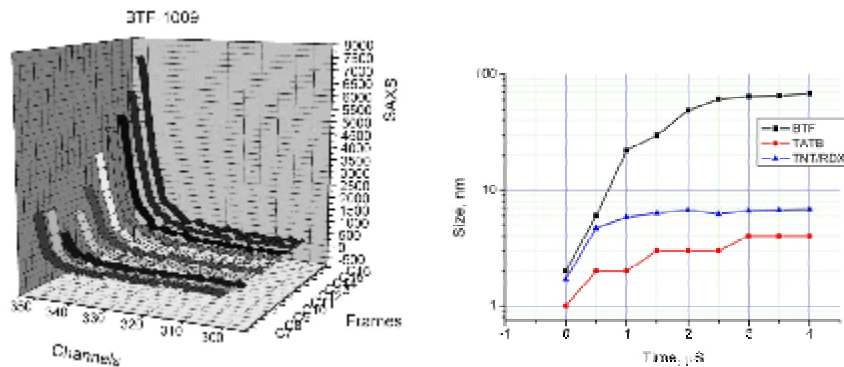


Рис. 9. Динамика распределения МУРР при детонации БТФ. Кадр С11 соответствует прохождению детонационной волны. Время между кадрами 0,5 мкс. (слева). Сравнительная динамика размеров наночастиц конденсированного углерода при детонации БТФ, ТГ50/50 и ТАТБ. (справа).

Если распределения на рис.9. обработать по формуле Гинье (в предположении моноразмерности частиц) [19], то временная зависимость размеров частиц при детонации БТФ (а также ТАТБ и ТГ50/50) приведена на

рис. 9 (справа).

Распределение МУРР, показанное на рис. 9 имеет достаточную интенсивность, чтобы его можно было обрабатывать программным кодом GNOM [20].

Ниже приведены результаты обработки экспериментов (рис. 10-13) в момент прохождения детонационной волны и далее через 1 мкс.. Слева приведены объемные распределения $D(R) = \frac{4pR^3}{3} \cdot N(R)$, где $N(R)$ - число частиц с радиусом

R . Справа приведен график относительного числа частиц $\frac{N(R)}{N}$ с радиусом R .

Величина N определялась для каждого графика индивидуально, то есть на рис. 10 полное число частиц размером от 1 нм до 4 нм равно N .

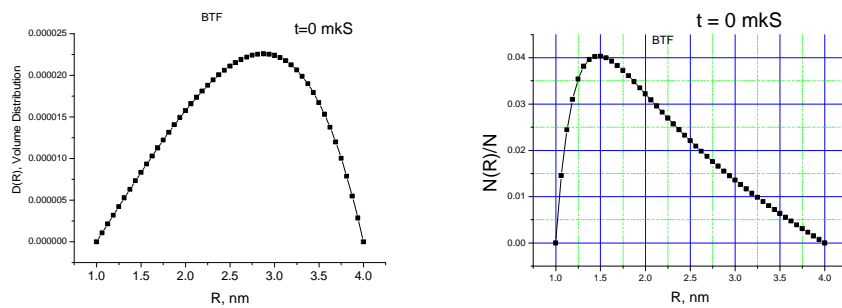


Рис. 10. Объемное распределение (слева) и относительное распределение рассеивающих частиц при прохождении детонационной волны ($t = 0 - 0.5$ мкс). По оси X показан радиус частицы в нм.

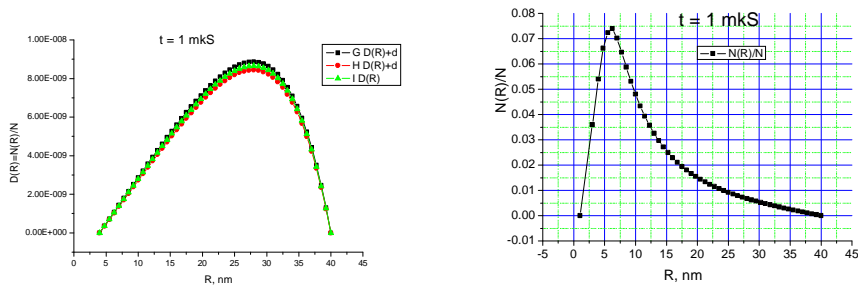


Рис. 11. Объемное распределение (слева, зеленый цвет). Черные и красные точки показывают ошибку обработки экспериментальных данных. Справа. Относительное распределение рассеивающих частиц через $t = 1.0$ мкс после прохождения детонационной волны..

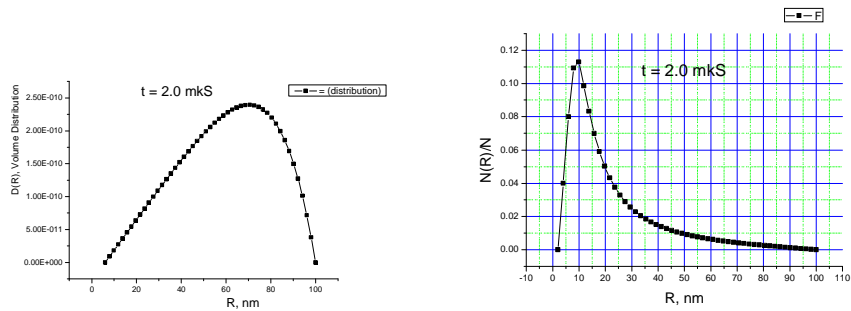


Рис. 12. Объемное распределение (слева) и относительное распределение рассеивающих частиц через $t = 2.0$ мкс после прохождения детонационной волны..

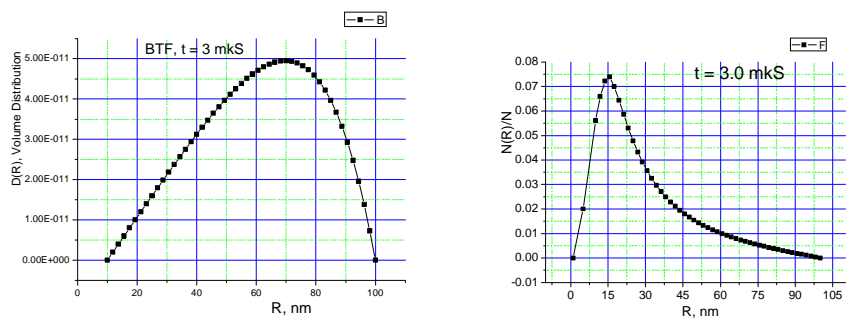


Рис. 13. Объемное распределение (слева) и относительное распределение рассеивающих частиц через $t = 3.0$ мкс после прохождения детонационной волны.

Анализ полученных зависимостей показывает, что объемное распределение частиц $D(R)$ примерно соответствует размерам частиц, полученным по формуле Гинье (при условии одинакового размера частиц, рис. 9). Полученные распределения по размерам имеют максимум (по размерам частиц) меньший, чем на рис. 9. Максимум распределения рассеивающих частиц через 3 мкс приходится на $R = 15$ нм. Начальный размер $R = 1,5$ нм (при $t = 0$) у БТФ также больше, чем у ТГ50/50. Общее число частиц от времени сильно падает (на графиках $D(R)$ величина объема при увеличении времени уменьшается на порядки). Поэтому увеличение размеров рассеивающих частиц может идти путем слияния мелких наночастиц в более крупные. Дальнейший переход из жидкой фазы в кристаллическую приводит к увеличению сигналов МУРР за счет увеличения «контрастности» (увеличивается величина $(\rho - \rho_0)^2$). В случае монодисперсности это можно трактовать как увеличение размеров частиц. Таким образом, динамические эксперименты подтверждают данные в [8], где исследовались сохраненные продукты детонации БТФ во взрывной камере. В данных экспериментах отсутствие водорода в начальном химическом составе БТФ может приводить к двум факторам влияния на процесс конденсации углерода: во-первых, отсутствие в продуктах взрыва паров воды приводит к повышению температуры продуктов, и, следовательно, к повышению скорости конденсации (образования) наночастиц углерода. Во-вторых, отсутствие радикалов С-Н может принципиально изменить ход конденсации. Математическое моделирование образования наноалмазов путем столкновения атомов углерода [21] показывает, что наночастицы углерода размером 5 нм образуются за пикосекунды. В динамических экспериментах рост наночастиц фиксируется в течение микросекунд [9, 16-17, 22]. Одним из механизмов, объясняющих длительный рост размеров наночастиц углерода является наличие промежуточных радикалов С-Н.

Задачу по регистрации радикалов можно решить путем измерения дифракционных рефлексов на больших углах, что во взрывных экспериментах пока еще никто не сделал.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ.

Для зарядов БТФ по рентгенографическим данным восстановлены параметры детонационного течения: $r(r, z, t)$, $p(r, z, t)$, $\dot{v}(r, z, t)$.

Получено параметрическое уравнение состояния продуктов взрыва в диапазоне плотностей 500—2500 кг/м³.

Измерение динамики МУРР СИ и обработка программным кодом GNOM позволило получить распределения рассеивающих частиц по размерам. При детонации БТФ за первые 3 мкс максимум распределения размеров частиц увеличивается от 3 нм до 30 нм.

Работа выполнена при использовании оборудования ЦКП СЦСТИ и финансовой поддержке Минобрнауки России, грантов РФФИ № 10-08-00859, 11-03-00874, а также ВНИИТФ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] **Ferm Eric N., Dennison Steve, Lopez Robert.** et al. Proton radiography experiments on shocked high explosive products. Proceedings of 13th Topical Conference on Shock Compression of Condensed Matter Portland, Oregon, USA. 2003. pp 839-842.
- [2] **Morris C. L., Ables E., Alrick K. R.** et al. Flash radiography with 24 GeV protons. Journal of Applied Physics, 2011, Vol. 109, No. 104905.
- [3] **Голубев А.А., Демидов В.С., Демидова Е.В.** и др. Диагностика быстропротекающих процессов пучком заряженных частиц от ускорителя ТВН-ИТЭФ. Письма в ЖТФ, 2010, т. 36, вып. 4, с. 61-67.
- [4] **Антипов Ю.М., Афонин А.Г., Василевский А.В.** и др. ПРОТОННАЯ РАДИОГРАФИЧЕСКАЯ УСТАНОВКА НА 70 ГэВ УСКОРИТЕЛЕ ГНЦ ИФВЭ. Препринт. Институт физики высоких энергий. 2009 г.
- [5] **Antipova Yu. M., Afonina A. G., Vasilevskii A. V.** et al. A Radiographic Facility for the 70 GeV Proton Accelerator of the Institute for High Energy Physics. ISSN 0020 4412, Instruments and Experimental Techniques, 2010, Vol. 53, No. 3, pp. 319–326.
- [6] **Tarver C.M., Kury J.W., Breithaupt R.D.** Detonation waves in Triaminotrinitrobenzene. Journal of Applied Physics., V. 82, N8, 1997, p.3771-3782.
- [7] **Grebenkin K.F., Taranik M.V., Zherebtsov A.L.** Computer modeling of scale effects at heterogeneous HE detonation. Proceedings of 13th Symposium (International) on Detonation, Norfolk, USA, 2006, pp.496-505
- [8] **Мальков И.Ю., Филатов Л.И., Титов В.М.** и др. Образование алмаза из жидкой фазы углерода. Физика горения и взрыва, 1993, т. 29, № 4, с. 131-134
- [9] **Титов В.М., Прууэл Э.Р., Тен К.А.** и др. Опыт применения синхротронного излучения для исследования детонационных процессов. Физика горения и взрыва, 2011, № 6. С. 3-16.
- [10] **Прууэл Э.Р., Мерзиевский Л.А., Тен К.А.** и др. Распределение плотности разлетающихся продуктов стационарной детонации тротила. Физика горения и взрыва, 2007, № 3, с. 121-131.
- [11] **Evdokov O. V., Kozyrev A. N., Litvinenko V.V.** et al. High-speed X-ray transmission tomography for detonation investigation. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 575 (2007) 116--120.
- [12] **Pruuel E.R., Ten K.A., Titov V.M.** at al X-ray transmission tomography for detonation investigation. Proceedings Fourteenth International Detonation Symposium, 2010, Idaho, USA., P. 345-351.
- [13] **Ten K.A., Pruuel E.R., Merzhievsky L.A.** at al. Tomography of the flow of detonation products using SR. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2009, A 603, p. 160--163.
- [14] **Тен К.А., Титов В.М., Прууэл Э.Р.** и др. Исследование взрывных процессов в детонирующих зарядах диаметром 20 мм с помощью синхротронного излучения. Препринт ИЯФ 2009-021, Новосибирск, 2009.
- [15] Gnu Science Library documentation. www.gnu.org/software/gsl.
- [16] **Ten K.A., Aulchenko V.M., Lukianchikov L.A.** et al. Application of introduced nano-diamonds for the study of carbon condensation during detonation of condensed explosives. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2009, Section A, . Vol. 603, Issue 1-2, pp. 102-104.
- [17] **Ten K.A., Titov V.M., Pruuel E.R.** et al. Measurements of SAXS signal during TATB detonation using synchrotron radiation. // Proceedings Fourteenth International Detonation Symposium, 2010, Idaho, USA. PP. 387 - 391.
- [18] **Aulchenko V.M., Evdokov O.V., Shekhtman L.I.** et al. Current status and further improvements of the detector for imaging of explosions.// Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A, Vol. 603, Issue 1-2, 2009, pp. 73-75.

- [19] **Feigin L.A., Svergun D.I.** Structure Analysis by Small-Angle X-Ray and Neutron Scattering. NY, Plenum Press. 1987. P.335.
- [20] **Svergun D.I., Semenyuk A.** Small-Angle Scattering Data Processing by Means of the Regularization Technique. 2011. DESY, Hamburg, GERMANY.
- [21] **Ершов А.П., Куперштох А.Л., Колонийчук В.Н.** Образование фрактальных структур при взрыве. Письма в журнал технической физики. 1990. т. 16, вып. 3, с. 42-46
- [22] **Titov V.M., Tolochko B.P., Ten K.A.** et al. Where and when are nanodiamonds formed under explosion ? Diamond & Related Materials. 2007. V.16, Issue 12, P. 2009-2013.
- [23] <http://ancient.hydro.nsc.ru/srexpl>. Библиографический сборник работ по применению СИ для исследования динамических процессов.