

Научная статья
УДК 662.2; 534.222.2
DOI 10.25205/2541-9447-2022-17-2-48-55

Двухстадийная модель конденсации углерода при детонации конденсированных взрывчатых веществ

Иван Андреевич Рубцов

Институт гидродинамики им. М. А. Лаврентьева СО РАН
Новосибирск, Россия
rubtsov@hydro.nsc.ru

Аннотация

При детонации взрывчатых веществ с отрицательным кислородным балансом, одним из продуктов химической реакции является конденсированный углерод. Однако недостаток экспериментальных данных не позволяет на сегодняшний день дать количественную оценку процесса конденсации углерода. В данной работе предложена двухстадийная модель конденсации углерода при детонации взрывчатых веществ. В работе использовалась методика малоуглового рентгеновского рассеяния для изучения динамики формирования углеродных наночастиц при детонации зарядов смеси тротила с гексогеном.

Ключевые слова

взрывчатые вещества, детонация, конденсация углерода, малоугловое рентгеновское рассеяние, синхротронное излучение

Для цитирования

Рубцов И. А. Двухстадийная модель конденсации углерода при детонации конденсированных взрывчатых веществ // Сибирский физический журнал. 2022. Т. 17, № 2. С. 48–55. DOI 10.25205/2541-9447-2022-17-2-48-55

Two-stage carbon condensation model during detonation of high explosives

Ivan A. Rubtsov

Lavrentyev Institute of Hydrodynamics SB RAS
Novosibirsk, Russian Federation
rubtsov@hydro.nsc.ru

Abstract

During detonating of high explosives with a negative oxygen balance, one of the products of the chemical reaction is condensed carbon. However, the lack of experimental data does not allow us to give a quantitative assessment of the carbon condensation process today. In this paper, a two-stage model of carbon condensation during the detonation of high explosives is proposed. We used small-angle X-ray scattering method to study the dynamics of the formation of carbon nanoparticles during the detonation of charges of a mixture of TNT and RDX.

Keywords

high explosives, detonation, carbon condensation, small-angle X-ray scattering, synchrotron radiation

For citation

Rubtsov I. A. Two-stage carbon condensation model during detonation of high explosives. Siberian Journal of Physics. 2022. Vol. 17, no. 2, pp. 48–55. (in Russ.) DOI 10.25205/2541-9447-2022-17-2-48-55

© Рубцов И. А., 2022

Введение

Большой интерес к работам по изучению процесса конденсации углерода возник в начале 2000-х годов при изучении взрывчатых составов на основе ТАТБ. Тогда авторы [1; 2] показали, что предположение о выделении части энергии за зоной химической реакции позволяет лучше описать экспериментальные данные. Определение количества длительно выделяющейся энергии необходимо для совершенствования теоретических моделей детонации и требует экспериментальных данных по кинетике конденсации углерода за детонационным фронтом.

На сегодняшний день существует множество работ, посвященные исследованиям детонационного углерода, но большая их часть затрагивает изучение сохраненного углеродного остатка различными методиками [3–8], а для исследования процесса конденсации углерода на ранних стадиях требуются методики *in situ*. Такой методикой является малоугловое рентгеновское рассеяние синхротронного излучения (СИ), и она позволяет проследить динамику процесса конденсации углерода в детонационном процессе [9–16].

Сегодня методика малоуглового рентгеновского рассеяния с высоким временным разрешением (МУРР) для исследования взрывных процессов активно развивается. Аналогичная станция построена и введена в эксплуатацию в США на ускорительном комплексе Advanced Photon Source (APS) [9–13].

В работах [9; 10] удалось проследить эволюцию сигнала МУРР при детонации заряда гексанитростильбена (ГНС) диаметром около 6 мм со скважностью около 50 нс вблизи детонационного фронта. Все процессы, приводящие к изменению формы сигнала МУРР, завершаются за 300 нс [10]. В работе [11] получена динамика роста углеродных наночастиц при детонации смеси тротила с гексогеном диаметром 10 мм. В работе [10], кроме этого, представлена попытка определения фазового состава конденсированного углерода, используя степенной закон. Отмечено, что он разный у ГНС и смеси тротила с гексогеном [10; 13].

Современные работы американских исследований включают термохимическое моделирование, а также комплексное исследование сохраненных продуктов для более качественной интерпретации сигнала МУРР и определения фазового состояния конденсированного углерода [12; 13].

Остается дискуссионным вопрос о влиянии размера заряда на процесс конденсации углерода [16; 17]. В данной работе исследовались заряды взрывчатого вещества диаметром от 20 до 40 мм, что позволило дать качественную оценку влияния размера заряда на процесс конденсации углерода. Кроме этого, стоит отметить, что все заряды, исследуемые на APS, имеют массу до 2 г и диаметр до 10 мм, что довольно близко к критическому диаметру, где процессы нестабильны и могут происходить по-другому, чем в случае стационарной детонации на крупных зарядах.

Одной из проблем количественного описания конденсированного углерода в продуктах детонации взрывчатых веществ является его сложная структура. Формируются частицы разного размера, объединяющиеся в конгломераты. Одним из возможных способов описания является двухуровневая структура конденсированного углерода в сохраненных продуктах взрыва, которая состоит из частиц и кластеров, формируемых этими частицами [12–13; 18–21].

1. Постановка экспериментов

Эксперименты по измерению МУРР были выполнены на станции «Экстремальное состояние вещества» 8 канала ускорительного комплекса ВЭПП-4М (ИЯФ СО РАН). Общая схема экспериментальной установки представлена на рис. 1.

Пучок СИ формируется коллиматором Кратки (ножи K_1 и K_2), который установлен перед взрывной камерой. Прямой пучок перед детектором отсекается ножом K_3 , а рассеянные лучи регистрируются детектором DIMEX [22] с угловым разрешением 3×10^{-5} радиан. Рас-

стояние от центра заряда до детектора составляет 3432 мм, при этом стрипы детектора имеют размер 0.1 мм, таким образом, один канал детектора в этих экспериментах соответствует углу рассеяния $2\Theta = 0.02914$ мрад (см. рис. 1).

В экспериментах использовался двухбанчевый режим работы ускорительного комплекса с током около 10 мА, энергией 4.5 ГэВ, периодичностью 611 нс (продолжительность импульса СИ составляла 73 пс) [23]. Для получения СИ от ускорительного кольца использовался 9-полюсный вигглер с полем в магнитах 1.9 Тл, реальный спектр [15; 16; 24]. В работах [15; 16; 24] также описана возможность использования такого «розового» излучения для восстановления информации, полученной методом малоуглового рентгеновского рассеяния.

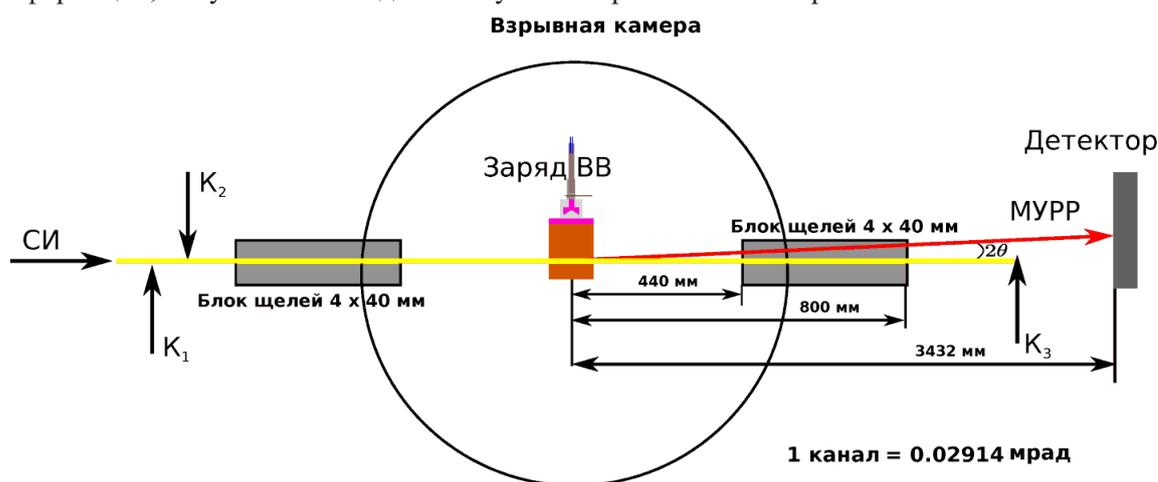


Рис. 1. Общая схема экспериментов по измерению МУРР на станции ускорительного комплекса ВЭПП-4

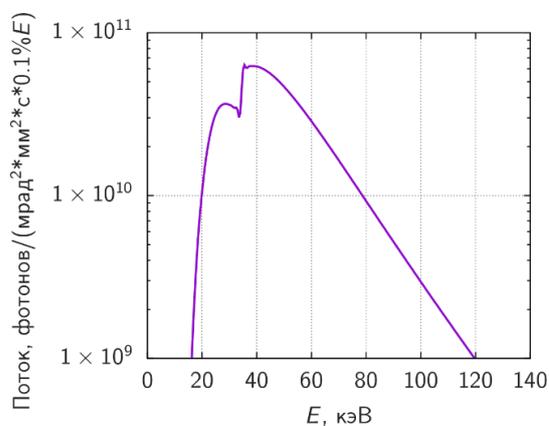


Рис. 2. Реальный спектр излучения на станции, учитывающий характеристики детектора и заряд до взрыва

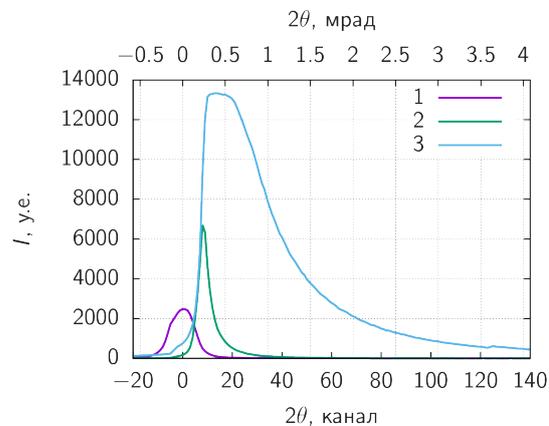


Рис. 3. 1 – ослабленный прямой пучок, 2 – сигнал после закрытия прямого пучка ножом, 3 – рассеяние на УДА

Перед началом экспериментов производилась настройка канала, регистрировались: ослабленный прямой пучок, рассеяние на воздухе, рассеяние на ультрадисперсных алмазах детонационного синтеза (УДА) (рис. 3). Сначала пучок СИ с вертикальным размером 1 мм формировался коллиматором Кратки (линия 1). Затем пучок зарезался ножом K_3 (линия 2). Амплитуда этого сигнала соответствует рассеянию на воздухе и берется за нулевой сигнал. Далее проводились статические измерения МУРР от УДА. Данные эксперименты важны для проверки готовности оборудования для экспериментов. Ожидается, что эволюция сигнала при детона-

ции будет происходить до рассеяния такого же вида, как и для калибровочной кривой МУРР на сохраненных продуктах взрыва (линия 3).

В данных экспериментах станция была настроена так, что ее оборудование позволяет уверенно регистрировать наночастицы в диапазоне углов от 0.2 до 4 мрад, что соответствует размерам частиц 2-100 нм (рис. 3) [15–16; 24–26]. Регистрирующий детектор DIMEX записывает 100 кадров с экспозицией в 73 пс и периодичностью (временем между кадрами) 611 нс [22] (дифракционное кино). Несколько кадров экспериментального сигнала, полученного с детектора, показывающие динамику сигнала МУРР представлены на рис. 4.

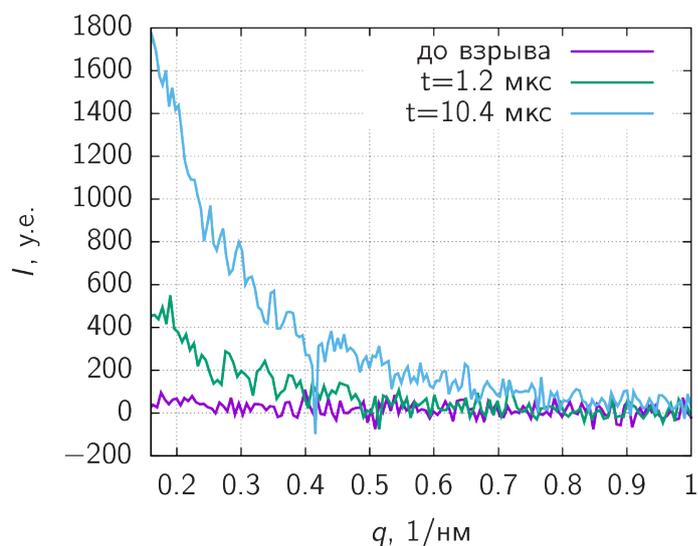


Рис. 4. Угловое распределение МУРР при детонации заряда тротил-гексоген диаметром 40 мм в разные моменты времени

2. Методика обработки экспериментальных данных

Для расшифровки структуры детонационного углерода по данным рентгеновского рассеяния необходим учет двух масштабных уровней — частицы и кластеры. Для этого численно генерировались 3D-кластеры из однородных сферических частиц разного размера по модели диффузионно ограниченная коагуляция [27] (рис. 5).

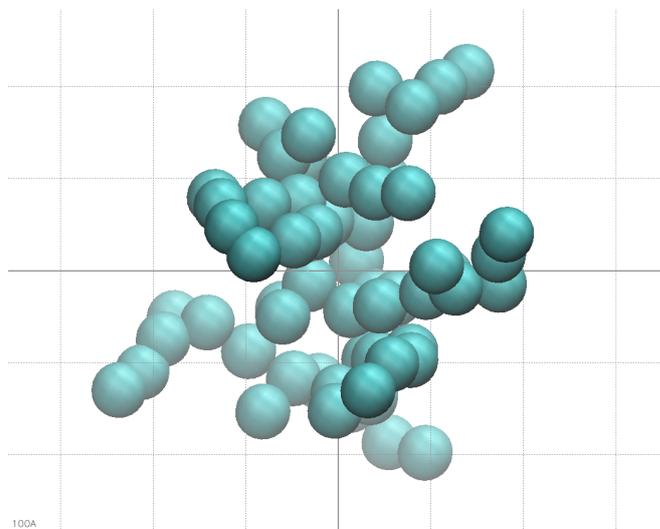


Рис. 5. Структура кластера, состоящего из 64 сферических частиц размером 5 нм

От полученного ансамбля рассеивающих центров численно вычислялось угловое распределение дифракционного сигнала [25; 26]. На рис. 6 приведено сравнение экспериментального и модельного угловых распределений рассеянного рентгеновского излучения. Удалось относительно простой моделью с двумя параметрами – размер частиц и кластеров описать рассеянное излучение в широком диапазоне углов и интенсивностей. В качестве характеристики размера кластера будем использовать удвоенный радиус гирации.

Разработанная модель нечувствительна к количеству рассеивающего углерода и определяют только размеры частиц и структуру коагуляционных кластеров. Эта важная особенность упрощает обработку экспериментальных данных.

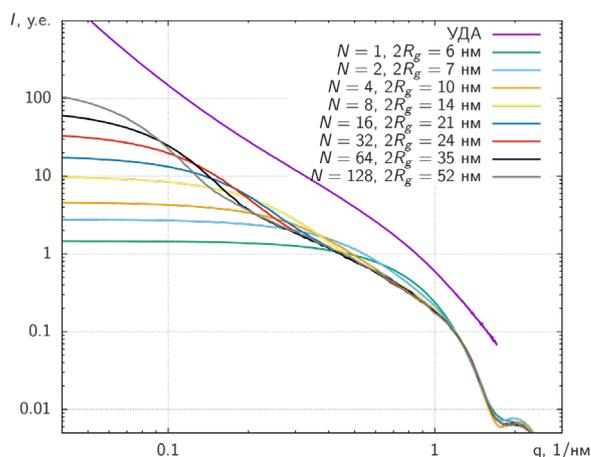


Рис. 6. Угловое распределение интенсивности рассеянного излучения от кластера, сформированного из различного количества сферических частиц со средним диаметром 5 нм

Показано сравнение со статическим сигналом МУРР от УДА, приведенное в работе [24].

3. Результаты

Описанная модель структуры конденсированного углерода в виде частиц и кластеров содержит два параметра: диаметр частиц и размер кластера. При обработке результатов динамических экспериментов, значения этих параметров подбирались из условий наилучшего соответствия модельного и экспериментального угловых распределений рентгеновского рассеяния.

В качестве результата удалось получить зависимости размеров частиц и кластеров от времени непосредственно в детонационном течении (рис. 7 и 8).

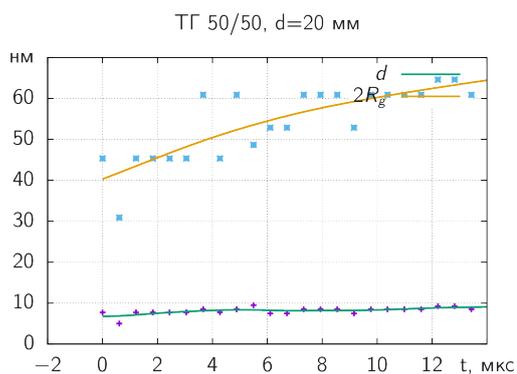


Рис. 7. Зависимости размера частиц и кластеров от времени при детонации заряда смеси тротила с гексогеном диаметром 20 мм

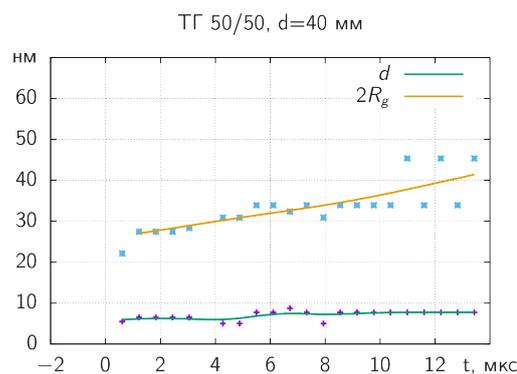


Рис. 8. Зависимости размера частиц и кластеров от времени при детонации заряда смеси тротила с гексогеном диаметром 40 мм

Анализ динамики размеров частиц и кластеров позволяет выделить два характерных времени формирования конденсированной фазы и изменения ее формы. В первой быстрой фазе, с учетом временного разрешения методики, за время не более 1 мкс, в основном, формируются частицы и начальные кластеры. Во второй фазе, на протяжении нескольких микросекунд происходит дальнейший рост кластеров, при этом, размеры частиц практически не меняются.

В проведенных экспериментах не наблюдается яркой зависимости процесса конденсации углерода от диаметра заряда ВВ.

Похожие выводы делают американские исследователи, сравнивая результаты МУРР и термохимического моделирования [12].

Заключение

Из анализа полученных экспериментальных данных предложена модель конденсации углерода, в которой можно выделить две стадии конденсации углерода. В первой, быстрой, за время менее 1 мкс формируются частицы размером 4–6 нм. Различить ее длительность на сегодняшний момент не удастся. Во второй, более медленной стадии, за несколько микросекунд из частиц углерода формируются разреженные кластеры, с характерным средним размером – десятки нанометров.

При этом, следует отметить, что для исследованных образцов смеси тротила с гексогеном не обнаружено значительной зависимости конечных размеров углеродных структур от диаметра заряда.

На примере смеси тротила с гексогеном показано, что при детонации конденсированных взрывчатых веществ с отрицательным кислородным балансом, непосредственно во взрыве формируются не только частицы конденсированного углерода, но и крупные кластеры из этих частиц. Получены оценки времени роста кластеров.

Благодарности

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-33-90028. В работе использовалось оборудование ЦКП «СЦСТИ» на базе УНУ «Комплекс ВЭПП-4 – ВЭПП-2000» в ИЯФ СО РАН.

Список литературы / References

1. **Craig M. Tarver, John W. Kury, Don R. Breithaupt** Detonation waves in triaminotrinitrobenzene. // *J. Appl. Phys.*, 1997, vol. 82, no. 8, p. 3771–3782.
2. **Grebenkin K. F., Taranik M. V., Zherebtsov A. L.** Computer modeling of scale effects at heterogeneous HE detonation // *Proc. 13th Symposium (International) on Detonation*, Norfolk, USA, 2006, p. 496–505.
3. **Лямкин А. И., Петров Е. А., Ершов А. П., Сакович Г. В., Ставер А. М., Титов В. М.** Получение алмазов из взрывчатых веществ // *Доклады Академии наук*. 1988. Т. 302, № 3. С. 611–613.
4. **Greiner N. R., Philips D. S., Johnson J. D., Volk F.** Diamonds in detonation soot // *Nature*, 1988, vol. 333, p. 440–442.
5. **Волков К. В., Даниленко В. В., Елин В. И.** Синтез алмаза из углерода продуктов детонации ВВ // *Физика горения и взрыва*. 1990. Т. 26, № 3. С. 123–125.
6. **Долматов В. Ю.** Ультрадисперсные алмазы детонационного синтеза: свойства и применение // *Успехи химии*. 2001. Т. 70, № 7. С. 687–708.
7. **Даниленко В. В.** Синтез и спекание алмаза взрывом. М.: Энергоатомиздат, 2003. 272 с.

8. **Казутин М. В., Козырев Н. В., Петров Е. А., Комарова М. В.** Синтез наноалмаза при детонации зарядов ТНТ/CL-20. 2016. № 4, Т. 1. С. 40–44
9. **Bagge-Hansen M., Lauderbach L., Hodgin R., Bastea S., Fried L., Jones A., van Buuren T., Hansen D., Benterou J., May C., Graber T., Jensen B. J., Ilavsky J., Willey T. M.** Measurement of carbon condensates using small-angle x-ray scattering during detonation of the high explosive hexanitrostilbene // *Journal of Applied Physics*, 2015, vol. 117, iss.24, p. 245902.
10. **Willey T. M., Bagge-Hansen M., Lauderbach L., Hodgin R., Hansen D., May C., van Buuren T., Dattelbaum D. M., Gustavsen R. L., Watkins E. B., Firestone M. A., Jensen B. J., Graber T., Bastea S., Fried L.** Measurement of carbon condensates using small-angle x-ray scattering during detonation of high explosives // *AIP Conference Proceedings*, 2017, vol. 1793, iss.1, p. 030012.
11. **Firestone M. A., Dattelbaum D. M., Podlesak D. W., Gustavsen R. L., Huber R. C., Ringstrand B. S., Watkins E. B., Jensen B., Willey T., Lauderbach L., Hodgin R., Bagge-Hansen M., van Buuren T., Seifert S., Graber T.** Structural evolution of detonation carbon in composition B by X-ray scattering // *AIP Conference Proceedings*, 2017, vol. 1793, iss.1, p. 030010.
12. **Hammons J., Nielsen M., Bagge-Hansen M., Bastea S., Shaw W. L., Lee J. R. I., Ilavsky J., Sinclair N., Fezzaa K., Lauderbach L., Hodgin R., Orlikowski D., Fried L., Willey T.** Resolving Detonation Nanodiamond Size Evolution and Morphology at Sub-Microsecond Timescales during High-Explosive Detonations // *Journal of Physical Chemistry C*, 2019, vol. 123, p. 19153–19164.
13. **Bagge-Hansen M., Bastea S., Hammons J. A., Nielsen M. H., Lauderbach L. M., Hodgin R. L., Pagoria P., May C., Aloni S., Jones A., Shaw W. L., Bukovsky E. V., Sinclair N., Gustavsen R. L., Watkins E. B., Jensen B. J., Dattelbaum D. M., Firestone M. A., Huber R. C., Ringstrand B. S., Lee J. R. I., van Buuren T., Fried L. E., Willey T. M.** Detonation synthesis of carbon nano-onions via liquid carbon condensation // *Nature Communications*, 2019, vol. 10, p. 3819.
14. **Ten K. A., Titov V. M., Prueel E. R., Kashkarov A. O., Tolochko B. P., Aminov Yu. A., Lobyko B. G., Muzyrya A. K., Smirnov E. B.** Carbon condensation in detonation of high explosives // *Proceedings Fifteenth International Detonation Symposium*. San Francisco, California, USA, 2015, ONR-43-280-15, p. 369–374.
15. **Rubtsov I. A., Ten K. A., Prueel E. R., Kashkarov A. O., Tolochko B. P., Shechtman L. I., Zhulanov V. V.** Synchrotron radiation method for study the dynamics of nanoparticle sizes in trinitrotoluene detonation // *Physics Procedia*, 2016, vol. 84, p. 374–381.
16. **Rubtsov I. A., Ten K. A., Prueel E. R., Kashkarov A. O., Tolochko B. P., Zhulanov V. V., Shechtman L. I., Piminov P. A.** The growth of carbon nanoparticles during the detonation of trinitrotoluene // *Journal of Physics: Conference Series*, 2016, vol. 754, iss.5, p. 052004.
17. **Выскубенко Б. А., Даниленко В. В., Лин Э. Э., Мазанов В. А., Серова Т. В., Сухаренко В. И., Толочко А. П.** Влияние масштабных факторов на размеры и выход алмазов при детонационном синтезе // *Физика горения и взрыва*. 1991. Т. 27, № 2. С. 111–117.
18. **Ершов А. П., Куперштох А. Л.** Образование фрактальных структур при взрыве // *Физика горения и взрыва*. 1992. Т. 28, № 2. С. 108–109.
19. **Куперштох А. Л., Ершов А. П., Медведев Д. А.** Модель коагуляции углеродных кластеров при высоких плотностях и температуре // *Физика горения и взрыва*. 1998. Т. 34, № 4. С. 102–109.
20. **Даниленко В. В.** О коагуляции углеродных кластеров в детонационной волне // *Физика горения и взрыва*. 2017. Т. 53, № 1. С. 105–114.
21. **Satonkina N. P., Ershov A. P., Kashkarov A. O., Rubtsov I. A.** Elongated conductive structures in detonation soot of high explosives // *RSC Advances*, 2020, vol. 10, iss.30, p. 17620–17626.

22. **Shekhtman L. I., Aulchenko V. M., Bondar A. E., Dolgov A. D., Kudryavtsev V. N., Nikolenko D. M., Papishev P. A., Pruel E. R., Rachek I. A., Ten K. A., Titov V. M., Tolochko B. P., Zhilich V. N., Zhulanov V. V.** Gem-based detectors for SR imaging and particle tracking // Journal of Instrumentation, 2012., iss.7, p. C03021.
23. **Blinov V. E., Bobrovnikov V. S., Zolotarev K. V., Kiselev V. A., Kononov S. A., Kurkin G. Y., Levichev E. B., Meshkov O. I., Muchnoi N. Y., Nikiti S. A., Nikoilenko D. M., Sukhanov D. P., Tikhonov Y. A., Tolochko B. P., Tumaikin G. M., Shamov A. G., Shatilov D. N.** The status of vepp // Physics of Particles and Nuclei Letters, 2014, iss.4 (11), p. 620–631.
24. **Rubtsov I., Ten K., Pruel E., Kashkarov A., Zubavichus Ya., Peters G., Veligzhanin A.** Restoring size of detonation nanodiamonds from small-angle x-ray scattering of polychromatic synchrotron radiation beam // Journal of Physics: Conference Series, 2021, vol. 1787, p. 012029.
25. **Schnablegger H., Singh Y.** The SAXS Guide. Anton Paar GmbH, 2013.
26. **Feigin, L. A., Svergun, D. I.** Structure Analysis by Small-Angle X-Ray and Neutron Scattering. NY, Plenum Press, 1987.
27. **Witten T. A., Sander L. M.** Diffusion-Limited Aggregation, a Kinetic Critical Phenomenon // Physical Review Letters, 1981, vol. 47, iss.19, p. 1400–1403.

Сведения об авторе

Рубцов Иван Андреевич, младший научный сотрудник, Институт гидродинамики им. М. А. Лаврентьева СО РАН (Новосибирск, Россия)

Information about the Author

Ivan A. Rubtsov, Junior Researcher, Lavrentyev Institute of Hydrodynamics SB RAS (Novosibirsk, Russian Federation)

*Статья поступила в редакцию 30.08.2021;
одобрена после рецензирования 19.09.2022; принята к публикации 22.06.2022
The article was submitted 30.08.2021;
approved after reviewing 19.09.2022; accepted for publication 22.06.2022*