

文章编号: 1006-9941(2014)02-0202-04

# 单向温模压 TATB 基高聚物粘结炸药 X 射线微层析成像

张伟斌, 杨雪海, 杨仍才, 冯立羊, 杨存丰

(中国工程物理研究院化工材料研究所, 四川 绵阳 621900)

**摘要:** 利用 X 射线微层析成像技术获得了单向温模压 TATB 基高聚物粘结炸药微细结构的全三维信息。松装颗粒经升温软化、压制、摩擦仍完整并以不同形态保存下来。压制后的颗粒典型形态径向呈多边形、轴向呈扁长形并与径向有明显夹角。轴向与径向颗粒形态分布揭示了力学响应与内摩擦机制。X 射线微层析成像提供了无损侵入非均质材料内部的分析方法, 能探测颗粒材料压制排列方式及其高密度界面层。

**关键词:** 材料检测与分析; TATB 造型颗粒; 温模压成型; 高聚物粘结炸药; 微细结构; X 射线微层析成像

中图分类号: TJ55

文献标志码: A

DOI: 10.3969/j.issn.1006-9941.2014.02.015

## 1 引言

高聚物粘结炸药(PBX)应用广泛, 炸药造型颗粒通常是压制 PBX 的基本颗粒单元, 但其在温模压成型过程中具有软凝聚态物质性质, 其压制热力学响应行为与内摩擦是 PBX 压制成型机制研究的关键问题, 其中颗粒压制形态则是最突出问题, 对压制微细结构与成型性能的关联研究非常重要, 解决该问题将为后续深入 PBX 精密物理性能研究提供微观物理结构基础。

PBX 微细结构研究的传统方法主要是电子扫描显微镜(SEM)和光学显微镜法<sup>[1-2]</sup>, 可得到剖面结构及剖面微区域的微/纳结构, 观察剖面精度高, 需要破坏性逐层剖片, 但对研究 PBX 内部结构完整性非常困难且相当耗时甚至几乎不可能实现。X 射线微层析成像(X-ray micro-tomography, X- $\mu$ CT)是一种能获得材料内部三维微细结构信息的无损方法<sup>[3-7]</sup>, 有望能无损、高精度获得 PBX 成型微细观结构完整的三维特征信息。

TATB 是目前安全性能最好的钝感炸药之一, TATB 基的 PBX 更是应用广泛, 因此本研究主要利用 X- $\mu$ CT 技术无损研究 TATB 造型颗粒单向钢模温压(Unidirectional warm die compaction, UWC)成型

微细结构特征, 分析温压成型后的压实颗粒形态、尺寸分布及对内摩擦、密度分布及颗粒间作用力的影响, 为温压 PBX 力学响应与内摩擦机制研究提供基础。

## 2 样品与试验

### 2.1 样品材料与成型

采用中国工程物理研究院化工材料研究所的 TATB 粉末晶体, 经水悬浮法造粒呈颗粒状, 松装颗粒直径约 1~3 mm, 具有核-壳结构特征且呈多样性<sup>[8]</sup>, 颗粒经 UWC 成型(如图 1 所示), 成型尺寸为  $\Phi 40$  mm $\times$ 50 mm (D $\times$ H), 成型温度为 85  $^{\circ}$ C, 成型压力(F)90 MPa, 成型样品在室温中放置较长时间后进行 X- $\mu$ CT 扫描成像。

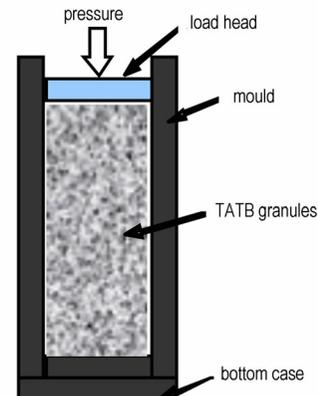


图 1 单向温模压 PBX 成型示意图

Fig. 1 Schematic diagram of UWC TATB-PBX

### 2.2 X- $\mu$ CT 试验

X- $\mu$ CT 是基于平板探测器的微焦点 X 射线锥束

收稿日期: 2013-07-06; 修回日期: 2013-10-08

基金项目: 中国国防科技预研项目(426020502, 426020603)、中国工程物理研究院“双百”人才基金(ZX03015)、中国工程物理研究院学科发展基金(2013B0203024)、国家自然科学基金 NSAF 重点基金(U1330202)。

作者简介: 张伟斌(1972-), 男, 研究员, 主要从事先进 CT 应用技术研究。e-mail: weibinzhang1@163.com

CT 扫描系统,可使 5 mm 直径样品的结构分辨力达到 5 μm。样品置于 CT 旋转与平移平台上并处于平板探测器与 X 射线管之间,样品距射线源距离 215 mm,探测器距射线源距离 1480 mm,主要试验参数为管电压 80 kV,管电流 480 μA,0.15 mm Cu 片滤射线,探测器采集时间 2000 ms,样品分辨体元为 58 μm,样品在旋转平台上旋转 360°,且每转 0.1°得到一幅基于 X 射线吸收的射线图像,如图 2 所示。

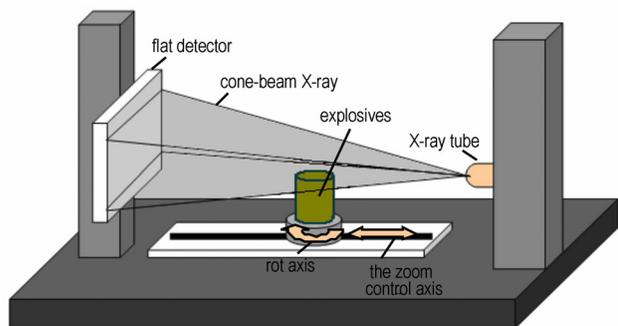


图 2 X-μCT 扫描示意图

Fig.2 Schematic diagram of X-μCT scanning

### 3 结果与讨论

#### 3.1 内部微细结构与高密度界面

图 3 给出了 TATB 造型颗粒经单向温模压成型 PBX 的轴向(中轴)、径向 CT 切片(底端切片数为 64,压制端切片数为 926)与三维结构 CT 重建图(正片),分辨体元为 58 μm。其中,样品的高度 H 等于压制端切片数与底端切片数之差乘以分辨体元。从图 3 可明显看出:内部结构呈颗粒致密堆积型结构,成型后颗粒仍很完整并以不同形态保存下来;颗粒间未发现明显孔隙(又称二次孔隙)(局部区域放大见图 4 的 Z2),颗粒内部也未发现明显孔隙(又称一次孔隙)(局部区域放大见图 4 的 Z1),颗粒间有高密度界面薄层结构;内部颗粒形态径向 CT 切片呈多边形,轴向 CT 切片呈近似扁长形,靠近模具壁的颗粒长径取向与模具的摩擦力方向有明显夹角,愈靠近底座和轴线中心处的颗粒夹角愈小,轴线中心处的颗粒长径取向与压力方向基本垂直。

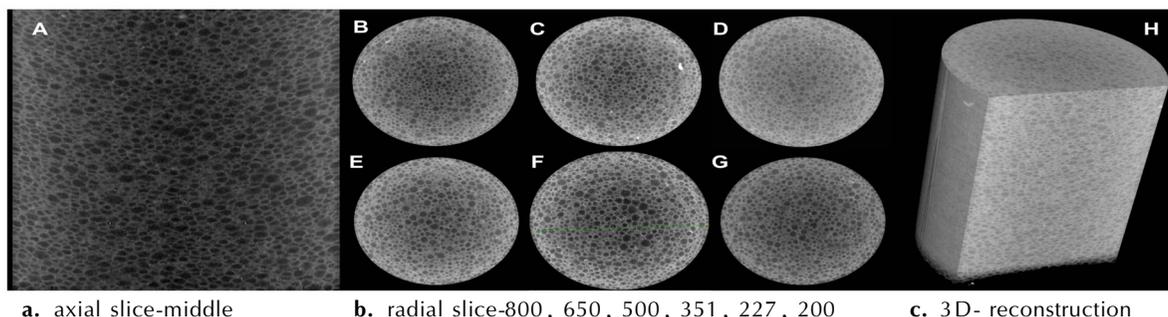


图 3 成型 PBX 内部微细结构 CT 图像

Fig.3 The X-μCT results of PBX's inner micro-/meso-structure

图 4 给出成型 PBX 随机截面(选切片 227)中两条直线(L1、L2)的 CT 值分布曲线,图中 CT 值曲线有明显的正峰和负峰特征,统计测量发现负峰半高宽与颗粒尺寸相当,正峰半高宽则与高密度界面薄层厚度相当,如图 4 的(Z1、G1)和(Z2、G2)。

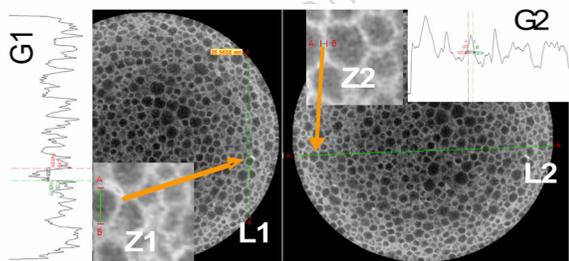


图 4 颗粒、高密度界面与 CT 值曲线特征的关系

Fig.4 The relationship between TATB granules or high density interface and CT value curve characteristics

#### 3.2 压制颗粒形态与内摩擦、密度分布

图 3A、图 3H 的颗粒轴向夹角结果说明,颗粒除受压制力作用外,还受到模具接触面摩擦力、颗粒间相互作用力及颗粒间摩擦力作用,并与压制力形成力矩,发生角度偏转,逐层带动内部颗粒发生角度偏转,而轴线上的颗粒则受压制力与对称侧向约束力仅发生垂直变形(颗粒形貌如图 5 中 A,负片)。因此,模具与颗粒间外摩擦力和颗粒间内摩擦力(图 5b 中 B-C)是颗粒发生角度偏转的主要原因。

颗粒的尺寸和密度实际上虽有一定范围,但统计平均意义上仍可设压制初始时上下部位的颗粒尺寸分布与密度分布(如图 6 中 P<sub>0</sub> 曲线所示)一致,则根据炸药压制后的颗粒形态特征可推断:颗粒尺寸越大,密度增量相对越小,所受应力相对越小;颗粒尺寸越小,密度

增量相对越大,所受应力相对越大。图7(负片)给出了靠近压制端和底端截面的颗粒形貌径向CT结果,图像显示靠近底端2~3 mm薄层的颗粒尺寸明显较大(图7的F切片),靠近压制端2~3 mm薄层的颗粒尺寸明显较小(图7的A切片),而中间大部分厚度层(图3中C-G切片)的颗粒尺寸微小量变化并处于两者之间(图8)。结果说明单向热压制PBX的底端会有密度明显较小的薄层(图6的D端),压制端会有密度较高的薄层(图6的C端),中间部位的密度微量递增变化,截面密度随压制高度的变化关系如图6中P曲线所示。

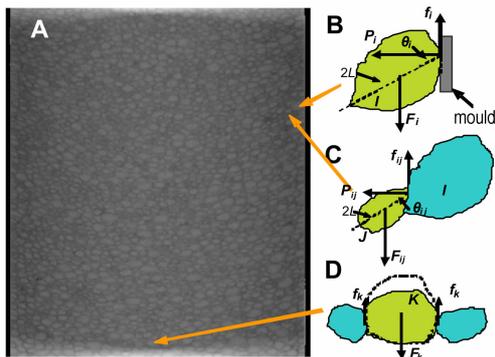


图5 轴向颗粒形态与受力示意  
Fig.5 Schematic diagram of axial form and stress of the TATB granules

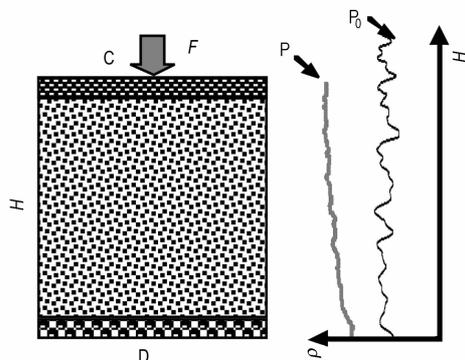
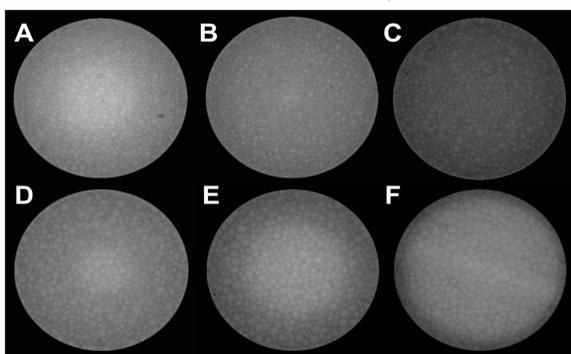


图6 截面密度随压制高度的变化  
Fig.6 Sectional density variation with height of PBX



A-F. radial slice-910, 900, 800, 90, 80, 69  
图7 压制端与底端附近截面的颗粒形态径向CT切片  
Fig.7 The radial slices of PBX sections near to top and bottom

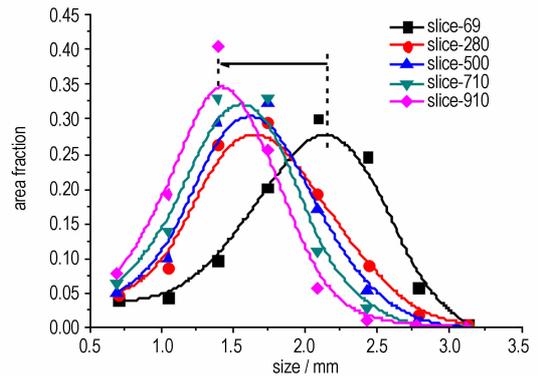
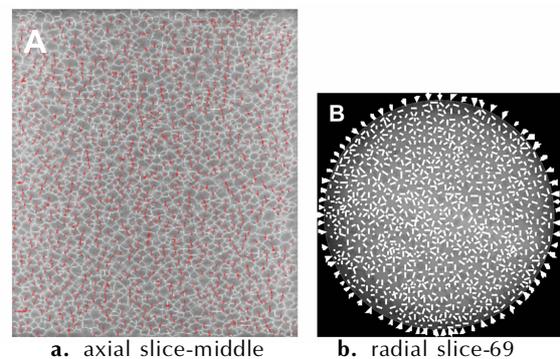


图8 颗粒尺寸分布随压制高度的变化关系  
Fig.8 Radial size distribution of granules variation with height of PBX

### 3.3 压制颗粒形态与颗粒间作用力

图7的A-F切片显示径向颗粒呈多边形(多呈五边和六边),颗粒形态可由SEM断口观察验证<sup>[9]</sup>。颗粒径向形态说明:颗粒径向主要受模具对颗粒的作用力和颗粒间相互作用力,颗粒间作用力与颗粒间界面相互垂直。根据牛顿第三定律,温模压过程颗粒间作用力取向可由径向和轴向密堆积界面分布描绘(如图9a与图9b所示)。颗粒压制平衡时,底面受周边颗粒作用力与约束力径向取向构成典型形态如图9c所示。



a. axial slice-middle b. radial slice-69  
c. Typical shape of forces orientation and binding  
forces orientation of the granules

图9 轴向压力与径向颗粒间作用力取向分布图  
Fig.9 Orientation distribution of axial pressure and radial forces between the granules

### 3.4 压制颗粒形态异常

图7中F切片还发现一较大颗粒被附近两颗粒挤压呈"哑铃"形状(局部放大见图10中B,负片)和粘结剂局部聚集的异常现象(局部放大见图10中C,负片)。结合

图 9b 显示的颗粒形态与作用力分布,说明经高温软化的大部分颗粒力学性能相当,但有极少数颗粒力学性能较低或较高,前一种被过度挤压变形较大,外力作用下易导致应力集中并可能是薄弱结构区域;后一种则挤压变形较少使粘结剂局部聚集,高温作用下易先被软化并可能形成"热点"区域,该异常问题可能是 TATB 造粒所形成颗粒的核-壳结构差异及其内部微细结构多样性<sup>[8]</sup>造成。

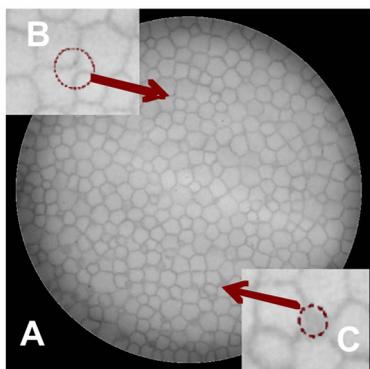


图 10 哑铃形颗粒与粘结剂局部聚集

Fig.10 Dumbbell-shaped granule and binder partial aggregation

## 4 结 论

TATB 造型颗粒单向温模压过程经升温变软、压制、摩擦仍很完整并以不同形态保存下来,压制后的颗粒密堆积排列及高密度颗粒界面的三维可视化解决了 PBX 成型机制的最突出问题,而 X- $\mu$ CT 提供了高精度、无损侵入非均质材料内部的分析方法,可实现探测颗粒材料压制排列方式及高密度界面层。

TATB 造型颗粒压制后典型形态径向呈多边形、轴向呈扁长形(三维呈多方体型),轴向与径向颗粒形态分布揭示了力学响应与内摩擦机制。其中,模具与

颗粒间外摩擦力和颗粒间内摩擦力是颗粒发生角度偏转的主要原因,轴向与径向颗粒界面分布直接描绘了热压平衡过程的压应力和颗粒间作用力取向。

## 参考文献:

- [1] Antoine E D M, van der Heijden and Richard H. B. Bouma. Crystallization and characterization of RDX, HMX, and CL-20 [J]. *Crystal Growth & Design*, 2004, 4 (5): 999-1007.
- [2] PROUD William G, WALLEY Stephen M, WILLIAMSON David M, et al. Recent trends in research on energetic materials at Cambridge [J]. *Central European Journal of Energetic Materials*, 2009, 6(1): 67-102.
- [3] Carlson William D, Denison Cambria. Mechanisms of porphyroblast crystallization: results from high resolution computed X-ray tomography [J]. *Science*, 1992, 257 (5074): 1236-1239.
- [4] Donoghue Philip C J, Bengtson Stefan, Dong Xi-ping. Synchrotron X-ray tomographic microscopy of fossil embryos [J]. *Nature*, 2006, 442(10): 680-683.
- [5] Ketcham Richard A. Three-dimensional grain fabric measurements using high-resolution X-ray computed tomography [J]. *Journal of Structural Geology*, 2005, 27: 1217-1228.
- [6] ZHANG Wei-bin, HUANG Hui, TIAN Yong, et al. Characterization of RDX-based thermosetting plastic bonded explosive by cone-beam micro-focus computed tomography [J]. *Journal of Energetic Materials*, 2012, 30(3): 196-208.
- [7] 张伟斌, 田勇, 杨仍才, 等. RDX 晶体压制密度分布  $\mu$ CT 试验研究 [J]. *含能材料*, 2012, 20(5): 565-570. ZHANG Wei-bin, TIAN Yong, YANG Reng-cai, et al. Study on pressing density distribution of RDX crystals with a cone-beam micro-focus computed tomography [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2012, 20(5): 565-570.
- [8] 张伟斌, 戴斌, 杨雪海, 等. TATB 造型颗粒内部微结构特征 [J]. *含能材料*, 2013, 21(2): 279-280. ZHANG Wei-bin, DAI Bin, YANG Xue-hai, et al. Microstructures characterization of TATB-based granules by high resolution X-ray computed tomography [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2013, 21(2): 279-280.
- [9] 涂小珍, 张波, 韦兴文, 等. TATB 基高聚物粘结炸药高温力学性能 [J]. *含能材料*, 2013, 21(3): 306-309. TU Xiao-zhen, ZHANG Bo, WEI Xing-wen, et al. Mechanical properties of TATB based PBX at high temperature [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2013, 21(3): 306-309.

## X-ray Micro-tomography of TATB Based Polymer Bonded Explosives under Unidirectional Warm die Compaction

ZHANG Wei-bin, YANG Xue-hai, YANG Reng-cai, FENG Li-yang, YANG Cun-feng

(Institute of Chemical Materials, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** X-ray micro-tomography (X- $\mu$ CT) was applied to obtain the complete three-dimensional (3D) recordings of the PBX under unidirectional warm die compaction based on TATB granules. The loose-packed granules obtained through heating up to softening, compaction and friction were still complete and were preserved in different morphological features. The typical form of compacted granules reveals a polygon at radial direction and oblong shape at axial direction in the PBX. There is an obvious angle between axial direction and radial direction. The axial and radial morphology distributions reveal the mechanics response and internal friction mechanism. X- $\mu$ CT provides a analysis method of non-invasion into heterogeneous material internal and can probe the arrangement of compacted granule material and high density interface layers in PBXs.

**Key words:** materials testing and analysis techniques; TATB granules; unidirectional warm die compaction; polymer bonded explosives; microstructures; X-ray micro-tomography

CLC number: TJ55

Document code: A

DOI: 10.3969/j.issn.1006-9941.2014.02.015