

文章编号: 1006-9941(2017)02-0173-04

TATB 造型颗粒微细结构 X 射线亚微层析成像

张伟斌, 田 勇, 戴 斌, 杜 宇, 李敬明, 陈 华

(中国工程物理研究院化工材料研究所, 四川 绵阳 621999)

摘要: 利用 X 射线亚微层析成像技术无损研究了 1,3,5-三氨基-2,4,6-三硝基苯 (TATB) 造型颗粒微细结构特征, 获得了 TATB 造型颗粒的三维结构图, 结果显示颗粒内部存在明显的、可量化的孔隙、涡环层、致密表层及高密度杂质等。分析表明, 内部孔隙形态与分布受湍流作用模式影响; 凝结涡旋环尺寸越小愈呈椭圆形, 短长径比趋于 0.7, 涡耗散趋于稳形耗散; 湍流涡扩展是致密表层形成的主要成因; 高密度杂质靠近颗粒表面证明颗粒经历强旋转。

关键词: TATB 粉末晶体; 造型颗粒; X 射线亚微层析成像

中图分类号: TJ55

文献标志码: A

DOI: 10.11943/j.issn.1006-9941.2017.02.014

1 引言

1,3,5-三氨基-2,4,6-三硝基苯 (TATB) 造型颗粒是由 TATB 粉末晶体 (TATB Powder Crystals)、少量粘结剂和其它添加剂经水悬浮法造粒而成。TATB 造型颗粒 (简称造粒) 是一个由众多 TATB 粉末晶体粘结聚集而成的复杂体系, 同时作为温压成形高聚物粘结炸药 (Polymer Bonded Explosive, PBX) 构件爆轰能量释放和力学承载的颗粒物质单元, 具有以下基本特性: 1) 颗粒压制变形与密堆积形态复杂^[1]; 2) 因粘结剂在温压过程中软化呈现软物质特性; 3) 具有对外界作用敏感、非线性响应等特点, 因此不能用一般的固体力学理论解释 PBX 力学行为, 而需要从宏观尺度转变到微细观尺度即开展颗粒物理性质的精细研究。TATB 造粒结构的定量表征不仅对其颗粒性质研究至关重要, 而且对 TATB 基 PBX 基础力学问题和造粒过程流固耦合涡动力学研究具有重要指导意义。

研究表明, 高分辨 X 射线层析成像在材料学应用中发挥了独特优势^[2], 我们先前已采用高分辨 X 射线层析成像对 TATB 造粒进行了结构表征, 初步结果表明 TATB 造粒主要呈“核-壳”结构特征且内部有凝结涡旋环, 凝结涡旋环的三维尺度、形态与造粒湍流密切

关联, 造粒微细结构具有多样性且差异明显^[3-4]。本研究进一步利用 X 射线亚微层析成像 (X-ray Sub-Micron Tomography, XSMT) 技术三维无损观察与定量表征 TATB 造粒结构, 在微米尺度上分析 TATB 造粒的孔隙、高密度杂质及其分布、涡环层与致密表层等特征, 为 TATB 造粒性质特别是基础力学研究奠定基础。

2 实验部分

2.1 材料与造粒

采用 TATB 粉末晶体 (尺寸小于 30 μm)、少量粘结剂和其它添加剂, 经水悬浮法^[5]造粒成 TATB 颗粒, 颗粒直径 $\leq 3 \text{ mm}$ 。

2.2 XSMT 实验

样品 X 射线三维亚微层析扫描成像实验利用 nanoVoxel 设备 (Sanying Precision Engineering Research Center, Tianjin, China)。任意选取 3 颗 TATB 造粒置于样品托上, 并固定在处于探测器与 X 射线管之间的样品旋转台上 (如图 1), X 射线管发射出一锥束 X 射线穿透颗粒 (射线能量 40 keV), 由 CdWO_4 闪烁晶体转换为可见光并经 4 倍 (或 20X、40X) 物镜光学二级放大后, 再由 2048 \times 2048 像素 CCD 相机接收, 可分辨样品的体元精度达到 5 μm (或 1, 0.5 μm), 颗粒在旋转台上每转一微小角度就得到一幅基于 X 射线吸收的图像, 最后颗粒三维结构图像就由这一千多幅的射线图像重建 (如滤波反投影算法, Filtered-Back Projection Algorithm) 得到。

收稿日期: 2016-07-25; 修回日期: 2016-10-11

基金项目: 国家自然科学基金 (11572294), NSAF 联合基金 (U1330202), 国家重大科学仪器设备开发专项 (2013YQ030629)

作者简介: 张伟斌 (1972-), 男, 研究员, 主要从事先进材料与工程无损评价、凝聚态物理、CT 应用技术研究。e-mail: weibinzhang@caep.cn

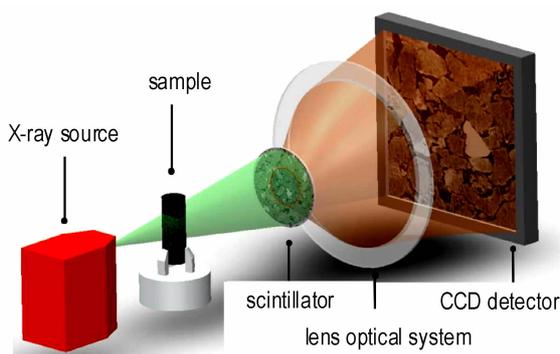


图 1 XSMT 扫描示意图

Fig. 1 Schematic diagram of XSMT

3 结果与讨论

图 2 为 TATB 造粒的 XSMT 三维重建图及 XY 方向中轴切片图 (Z 轴为三个造粒的竖直堆积方向), CT 图像显示颗粒内部存在清晰明显并可量化的孔隙 (Pore)、高密度环形层 (Vortex Ring Layer, VRL)、致密表层 (Dense Surface Layer, DSL) 等特征, 表明 XSMT 可无损伤和无侵入地实现内部三维结构的高精密分析。

图 3 给出 XY 方向 XSMT 切片图可清晰观察致密

表层, 其呈现特征包括结构致密、密度高于内部密度、孔隙少、层厚不均等。不同层面的 XSMT 切片图演绎了致密层成因, 即颗粒表面致密层由湍流涡带动更微小 TATB 晶粒和液态粘结剂扩展放大 (亦称密度波^[6], Density Wave), 透过较大 TATB 晶粒间隙发展至颗粒近表面, 悬浮液体系降温后粘结剂硬化构成致密层。

图 4 给出了颗粒内部高密度不纯物 (High Density Impurity, HDI) 三维透视结果, 可发现 HDI 位于颗粒表面或近表面, 尺寸越大越靠近颗粒表面, 其分布特征说明了颗粒在造粒过程中经历了强旋转, 旋转动力学使密度较大物质向颗粒外层运动, 旋转强度与颗粒所处湍流区域的涡动力学直接相关。

内部孔隙不仅影响炸药颗粒感度, 也是其在温压成型中挤压致密和变形的重要因素。由于孔隙与炸药及粘结剂具有不同的灰度值分布范围, 利用阈值分割进行孔隙提取, 获得孔隙形状、大小、分布和连通性等特征。结合图 2 和图 3 的结果可发现, 孔隙存在形式有中心孔、更小颗粒间隙、随机孔隙等, 其形态与分布直接反映了颗粒所受湍流作用模式的影响, 其中颗粒 1 内部孔隙分布如图 5 所示。

TATB 水悬浮法是持续搅拌的保持湍流驱动过程, 其湍流流体是混合典型的注射流、循环壁流和叶片

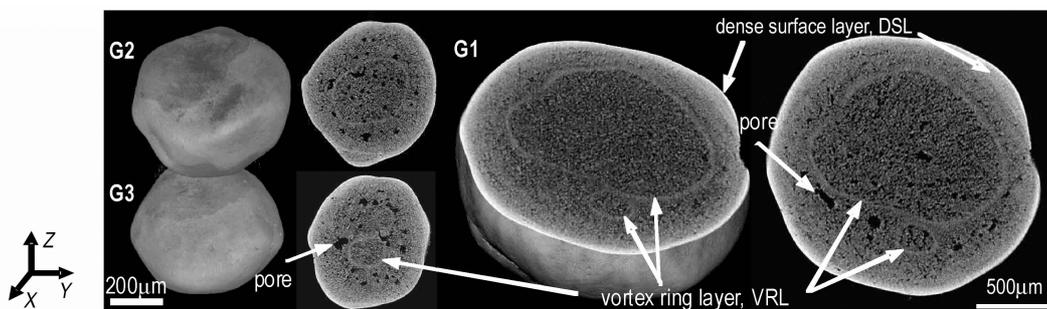


图 2 TATB 造粒的 XSMT 三维重建图及切片图

Fig. 2 Three-dimensional (3D) reconstruction and the central axis slices of TATB molding powder using XSMT

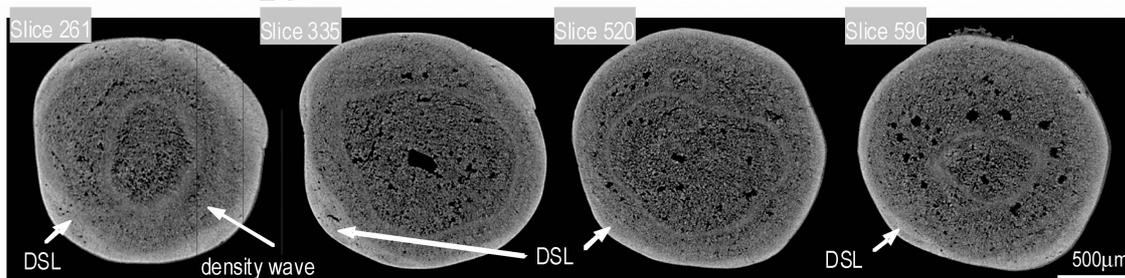


图 3 TATB 造粒 XY 方向不同层面切片图

Fig. 3 Several XY slices of TATB molding powder

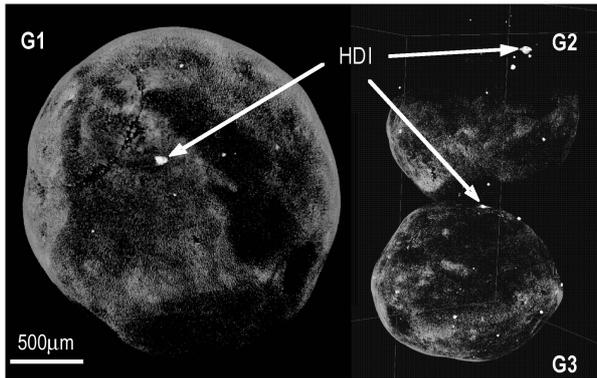


图 4 颗粒内 HDI 三维透视结果

Fig. 4 3D rendering of HDI in TATB molding powder

剪切流带动 TATB 晶粒的流固耦合复杂湍流系统。文献表明射流会产生对称双涡旋^[7-8]、循环壁流会产生随机分布单涡旋^[9]、叶片剪切流则易产生较大尺度的单尾涡^[10]，但所有的涡发展到后期都会破碎产生大量的耗散涡^[11]，说明图 2 发现的高密度环形层应为湍流涡旋带动的粘结剂与更微小 TATB 粉末晶体凝结而成

表 1 TATB 造粒内部结构特征

Table 1 Internal structural features of TATB molding powder

sample	pore		high density impurity		vortex ring layer		dense surface layer		
	size/ μm	location	size/ μm	location	number	S/L	thickness/ μm	morphology	thickness/ μm
G1	-350		28-103		two-ring	0.75-0.73	34		65-134
G2	-180	Random	30-50	Close to surface	multi-ring	0.90-0.70	34	irregular	60-172
G3	-345		50-100		multi-ring	0.75-0.67	33		42-127

4 结 论

XSMT 可无损无侵入 TATB 颗粒内部, 实现内部孔隙、涡环层、致密表层及高密度杂质等特征的三维高精度分析。

颗粒内存在 0.1 mm 尺度的凝结涡旋环, 凝结涡旋环尺寸越小愈呈椭圆形, 且涡环短长径比趋于 0.7, 但尺寸越大则涡旋环形态受周边涡旋环和 TATB 晶粒度影响。另外, 由颗粒表面致密层及颗粒内高密度不纯物的近表面分布推测颗粒在造粒过程中经历强旋转。

参考文献:

[1] Dai B, Zhang W B, Lan L G, et al. Experimental Study and DEM Simulation of Micro-Macro Behavior of TATB Granules During Compaction Using X-ray Tomography [J]. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 2015, 40: 688-698.

(凝结涡旋环)。XSMT 还清晰显示出 0.1 mm 尺度的凝结涡旋环, 凝结涡旋环尺寸越小愈呈椭圆形, 且涡环短长径比 (S/L) 趋于 0.7, 但尺寸越大则涡旋环形态受周边涡旋环和 TATB 晶粒度影响, 该结果可说明造粒湍流体系中的涡旋态扩展为非稳形扩展, 涡旋态耗散趋于稳形耗散。

综上所述, 表 1 给出经 XSMT 定量的颗粒内孔隙、环形层及致密表层的尺寸、形态和分布等特征数据。

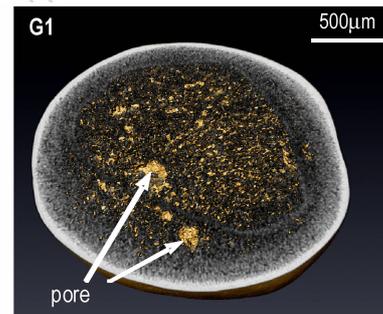


图 5 内部孔隙透视分布图

Fig. 5 3D visualization of the spatial distribution of internal pores

[2] Salvo L, Suéry M, Marmottant A, et al. 3D imaging in material science: Application of X-ray tomography [J]. *C R Physique*, 2010, 11: 641-649.

[3] 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. Internal micro-structure characterization of TATB granules [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2013, 21(2): 279-280.

[4] 张伟斌, 杨雪海, 杨仍才, 等. 单向温模压 TATB 基高聚物粘结炸药 X 射线微层析成像 [J]. *含能材料*, 2014, 22(2): 202-205.

ZHANG Wei-bin, YANG Xue-hai, YANG Reng-cai, et al. X-ray micro-tomography of TATB based polymer bonded explosives under unidirectional warm die compaction [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2014, 22(2): 202-205.

[5] Kasprzyk D J, Bell D A. Characterization of a slurry process used to make a plastic-bonded explosive [J]. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 1999, 24: 333-338.

[6] Hetsroni V G. Handbook of multiphase system [M]. Washington-New York-London: Hemisphere Publishing Corp, 1982.

- [7] Arakeri J H, Das D, Krothapalli A, et al. Vortex ring formation at the open end of a shock tube: A particle image velocimetry study[J]. *Physics of Fluids*, 2004, 16(4): 1008–1019.
- [8] 高学平. 高等流体力学[M]. 天津: 天津大学出版社, 2005.
GAO Xue-ping. *Advanced Fluid Mechanics*[M]. Tianjin: Tianjin University Press, 2005.
- [9] Hopfinger E J, Browand F K. Vortex solitary waves in a rotating, turbulent flow[J]. *Nature*, 1982, 295: 393–395.
- [10] Fiabane L, Zimmermann R, Volk R, et al. Clustering of finite-size particles in turbulence[J]. *Physical Review E*, 2012, 86: 035301.
- [11] 童秉纲, 尹协远, 朱克勤. 涡运动理论[M]. 北京: 中国科学技术大学出版社, 2009.
TONG Bing-gang, YIN Xie-yuan, ZHU Ke-qin. *Vortex motion Theory*[M]. University of Science and Technology of China Press, 2009.

Characterization of TATB Molding Powder by X-ray Sub-micron Tomography

ZHANG Wei-bin, TIAN Yong, DAI Bin, DU Yu, LI Jing-ming, CHEN Hua

(Institute of Chemical Materials, CAEP, Mianyang 621999, China)

Abstract: Fine structure characteristic of 2,4,6-triamino-1,3,5-trinitrobenzene(TATB) molding powder was investigated by using X-ray sub-micron tomography. Three dimensional reconstruction images have been generated, from which obvious and quantifiable pores, vortex ring layers, dense surfaces and high density impurities can be observed inside the granules. It was revealed that the coagulated vortex rings with a smaller size have a tendency to possess elliptical shapes, with the ratio of the minor to major axes of the ellipses close to 0.7 and the vortex dissipation to be stable. The formation of dense surfaces was mainly attributed to the spread of vortex. TATB molding powder may experience strongly rotating turbulence, as deduced from the fact that high density impurities located near the surface of the granules. The configuration and distribution of the interior pores were affected by the mode of turbulent flow during the granulation process.

Key words: 2,4,6-triamino-1,3,5-trinitrobenzene(TATB) powder crystals; molding powder; X-ray sub-micron tomography

CLC number: TJ55

Document code: A

DOI: 10.11943/j.issn.1006-9941.2017.02.014