

文章编号: 1006-9941(2014)04-0493-05

孔隙对 TATB 基高聚物粘结炸药有效弹性模量的影响

韦兴文, 李明, 李敬明, 涂小珍, 周美林

(中国工程物理研究院化工材料研究所, 四川 绵阳 621900)

摘要: 采用代表体积单元(RVE)建模方法,建立了与实际 TATB 基高聚物粘结炸药(PBX)微观结构近似的有限元计算模型,该模型可以生成炸药颗粒和孔隙随机分布、填充率和孔隙率任意调整的二维 RVE。并采用该模型研究了孔隙大小、空间分布和孔隙率对 TATB 基 PBX 有效弹性模量的影响。结果表明: 粘结剂内孔隙使得 TATB 基 PBX 在外载荷作用下易于变形, TATB 基 PBX 的有效弹性模量显著减小, 随着孔隙率增加,有效弹性模量呈指数减小; 孔隙的空间分布对 TATB 基 PBX 有效弹性模量影响较大,当孔隙分布在粘结剂与炸药晶体之间界面时,容易造成粘结界面破裂而导致有效弹性模量显著下降,下降幅度超过 50%; 但孔隙的大小对 TATB 基 PBX 有效弹性模量影响不大。

关键词: 材料物理; 高聚物粘结炸药(PBX); 有效弹性模量; 孔隙; 代表体积元(RVE)

中图分类号: TJ55; O34

文献标志码: A

DOI: 10.3969/j.issn.1006-9941.2014.04.013

1 引言

TATB 基高聚物粘结炸药(Polymer Bonded Explosive, PBX)是以 TATB 为主体,加入粘结剂粉末压制成形的复合材料,由于具有优异的力学性能和安全性能而得到广泛应用^[1]。由于压制成型不可能达到 100%的理论密度,且 TATB 基 PBX 容易出现不可逆长大(Ratchet growth)^[2-4],因此,TATB 基 PBX 内部包含着大量不规则、跨尺度的孔隙,Willey 等^[5-6]研究表明 TATB 基 PBX 孔隙孔径分布为 20 nm ~ 2 μm,热循环前后孔隙率分别为 1.3% 和 2.7%。研究孔隙对 TATB 基 PBX 力学性能的影响规律,对认识炸药的承载能力和结构失效机制均具有重要意义^[7]。

由于孔隙结构形态复杂且无序分布,再加上目前实验手段的限制,难以从实验上建立孔隙与 PBX 宏观力学性能的定量关系。随着计算技术的发展,针对高充填率的颗粒填充复合材料,国内外学者建立了以材料微观结构为基础的热力学数值预测模型^[8-9],并证明了二维代表体积元法(Representative Volume Element, RVE)^[10-11]的有效性,二维 RVE 法在 B 炸药、PBX 炸药的有效弹性模量和泊松比模拟仿真方面得到了广泛

的应用,在一定程度上较好地预测了炸药颗粒的性质、体积分数、形状和级配以及粘结剂的性质等对有效弹性模量的影响^[12-13],但未考虑孔隙的影响。本研究采用二维 RVE 建模方法,建立了填充相、基体相和气孔相三相有限元计算模型,研究了孔隙率、孔径尺寸和空间分布对 TATB 基 PBX 有效弹性模量的影响。

2 计算模型

2.1 RVE 建模

研究选取 TATB 基 PBX 为研究对象,通过实验获得 TATB 炸药晶体粒度分布信息:平均粒径 18 μm,粒径分布范围 2 ~ 48 μm。根据 PBX 的体积充填分数和孔隙率,采用蒙特卡罗随机充填的方式生成了与 PBX 微观结构高度相仿的二维 RVE 有限元模型。TATB 基 PBX 典型的微观结构如图 1 所示,其中粘结剂为基体连续相,TATB 为填充相,孔隙为分散相。在

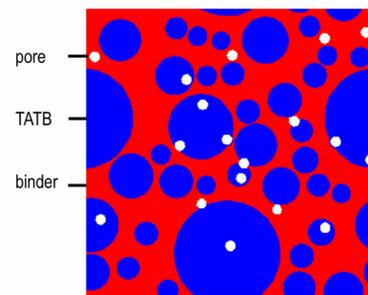


图 1 TATB 基 PBX 微观结构示意图

Fig. 1 Micro-structure of TATB based PBX

收稿日期: 2013-08-16; 修回日期: 2013-11-03

基金项目: 装备预先研究项目(51311020107)

作者简介: 韦兴文(1977-),男,硕士,助理研究员,主要从事炸药及高分子材料表征与研究。e-mail: weixw@caep.cn

建模过程中,先按照指定的位置和大小生成一定数量的小圆,再通过布尔减运算形成小圆孔,小圆孔隙所占面积分数即为孔隙率。由于只研究 PBX 的有效弹性模量,可将 TATB 和粘结剂均看作弹性材料,其弹性模量(E)和泊松比(ν)引自文献值[14],其中: $E_{\text{TATB}}=25.7\text{ GPa}$, $\nu_{\text{TATB}}=0.1$, $E_{\text{binder}}=0.2\text{ GPa}$, $\nu_{\text{binder}}=0.4$ 。

2.2 有限元计算

利用有限元分析方法求解平面应变问题,采用平均方法计算二维 RVE 模型的弹性模量和泊松比[9]。在静态外载荷作用下,RVE 模型的平均应力和平均应变计算公式如下:

$$\bar{\varepsilon}_{ij} = \frac{1}{V} \int_V \varepsilon_{ij} dV \quad (1)$$

$$\bar{\sigma}_{ij} = \frac{1}{V} \int_V \sigma_{ij} dV \quad (2)$$

式中, ε_{ij} 和 σ_{ij} 分别为 RVE 内的细观应变和应力, V 为 RVE 体积。

平均化方法求解弹性模量,需要施加合理的边界条件,对于二维平面应变问题,计算 X 方向模量,可在 X 方向上施加位移约束 (Displacement constrains),在 Y 方向施加周期性边界条件 (Periodic boundary conditions):

$$u(0, y) - u(L, y) = u_x \quad (3)$$

$$u(x, 0) - u_y = u(x, L) \quad (4)$$

式中, u_x , u_y 分别为 X 方向和 Y 方向的位移, m ; L 为 RVE 的长度, m 。

图 2 给出了 TATB 基 PBX 的填充相、基体相和气孔相三相有限元计算模型 (Finite Element Modeling, FEM) 边界条件和载荷施加方法。

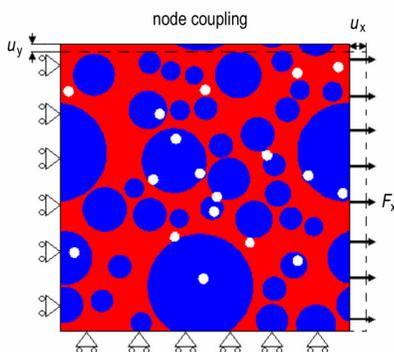


图 2 TATB 基 PBX 有限元模型

Fig. 2 Finite element modeling (FEM) of TATB based PBX

二维弹性模量和泊松比由下式计算得到:

$$E_{2D} = \frac{F_x}{u_x} \quad (5)$$

$$\nu_{2D} = \frac{u_y}{u_x} \quad (6)$$

式中, E_{2D} 为二维弹性模量,Pa; F_x 为 X 方向作用力, N ; ν_{2D} 为二维泊松比,用于描述作用于 X 方向应变而引起 Y 方向应变的改变。

有效弹性模量 E_{eff} 和泊松比 ν_{eff} 由下式计算获得[8-9]:

$$\nu_{\text{eff}} = \frac{\nu_{2D}}{1 + \nu_{2D}} \quad (7)$$

$$E_{\text{eff}} = E_{2D} [1 - (\nu_{\text{eff}})^2] \quad (8)$$

3 结果与讨论

3.1 孔隙率对 TATB 基 PBX 有效弹性模量及泊松比的影响

不失一般性,本研究计算 PBX 配方均采取相同的 TATB 充填体积分数 (TATB : $F_{2314} = 0.5$)。为了考察孔隙率对 TATB 基 PBX 有效弹性模量的影响,保持分布在粘结剂中孔隙的孔径 ($D = 3\ \mu\text{m}$) 不变,对不同孔隙率 TATB 基 PBX 的有效弹性模量进行计算,结果见表 1。

表 1 不同孔隙率的 TATB 基 PBX 有效弹性模量及泊松比

Table 1 Effective elastic modulus and poisson ratio of TATB based PBX under different porosity

porosity /%	effective poisson ratio	effective elastic modulus /GPa
0	0.286	0.591
1	0.293	0.545
2	0.281	0.510
3	0.282	0.499
4	0.284	0.485

由表 1 可见,孔隙使得 TATB 基 PBX 有效弹性模量显著降低,但孔隙对 PBX 泊松比影响不显著。随着孔隙率的增大,TATB 基 PBX 的有效弹性模量随之减小,可用(9)式进行描述[15]:

$$E_{\text{eff}} = a + be^{-c\varphi} \quad (9)$$

式中, φ 为孔隙率; a , b , c 为待定参数,取决于孔隙大小、形状和空间分布等。

利用式(9)对表 1 数据进行拟合,可得, $a = 0.4699$, $b = 0.1215$, $c = 50.9964$,如图 3 所示。

由图 3 可见,随着孔隙率增加,TATB 基 PBX 有效弹性模量呈指数减小,这与基于改进 Hashin-Shtrikman 方法预测结果相一致[16]。图 4 给出了不同孔隙率 TATB 基 PBX 在 0.10% 拉伸应变载荷作用下的等效应力云图。

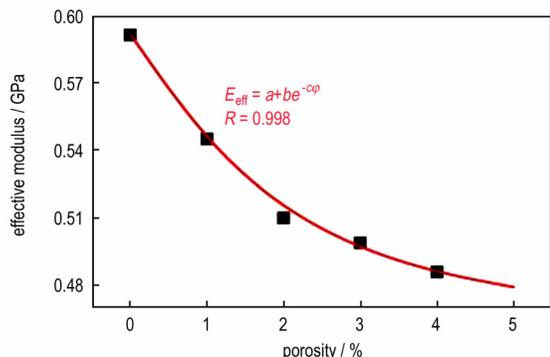


图3 TATB 基 PBX 有效弹性模量随孔隙率变化曲线

Fig.3 Effective modulus of TATB based PBX varied with porosity(φ)

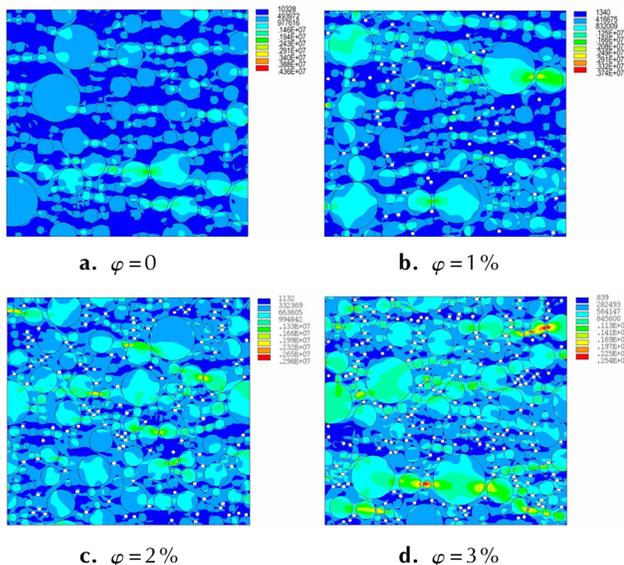


图4 不同孔隙率 TATB 基 PBX 等效应力云图

Fig.4 Contour of von mises stress of TATB based PBX under different porosity

由图4a可见,孔隙率 $\varphi=0$ 时,由于炸药晶体颗粒模量高、刚性大,在外载荷作用下,炸药晶体难以变形、局部应力较高(高应力区),在TATB基PBX中形成力链,起到强化相的作用;而粘结剂模量低、塑性大,容易变形(高应变区),在TATB基PBX中形成主应变网。当炸药晶体颗粒充填体积分数为0.5时,在0.10%拉伸应变载荷作用下,等效应力为1132 Pa~4.36 MPa,炸药颗粒局部应力达到4.36 MPa,由于颗粒之间局部产生较大应力,这些部位容易出现界面脱粘。由图4b可见,当存在1%孔隙时,等效应力为839 Pa~3.74 MPa,说明粘结剂中孔隙使得TATB基PBX等效应力减小,即在相同拉伸应变的作用下,TATB基PBX内部整体应力水平下降。由图4c和图4d可见,随着孔隙率的增加,等效应力随之减小,当孔隙率为3%时,最大等效应力

减小为2.54 MPa。这说明孔隙使得TATB基PBX易于变形,有效弹性模量减小,刚性下降,塑性增加。

3.2 孔径大小对PBX有效弹性模量及泊松比的影响

参考文献[6]实验数据,取孔隙率 $\varphi=2\%$,保持孔隙率和孔隙空间位置分布不变,分析孔径大小对TATB基PBX有效弹性模量的影响。表2给出了三种孔径参数条件下TATB基PBX的有效弹性模量。

表2 不同孔径参数的TATB基PBX有效弹性模量及泊松比
Table 2 Effective elastic modulus and poisson ratio of TATB based PBX under different pore size

pores diameter / μm	effective poisson ratio	effective elastic modulus /GPa
2	0.280	0.503
3	0.281	0.510
4	0.277	0.510

由表2可见,在相同孔隙率下,孔径的变化对TATB基PBX的有效弹性模量和泊松比影响不显著。图5为三种孔径参数TATB基PBX在0.10%拉伸应变载荷作用下的等效应力云图。

由图5可见,在相同孔隙率下,当孔径在2~4 μm 变化时,TATB基PBX中等效力分布相似,由TATB晶体形成的力链未发生改变,说明孔径的变化对TATB基PBX的有效弹性模量影响较小。

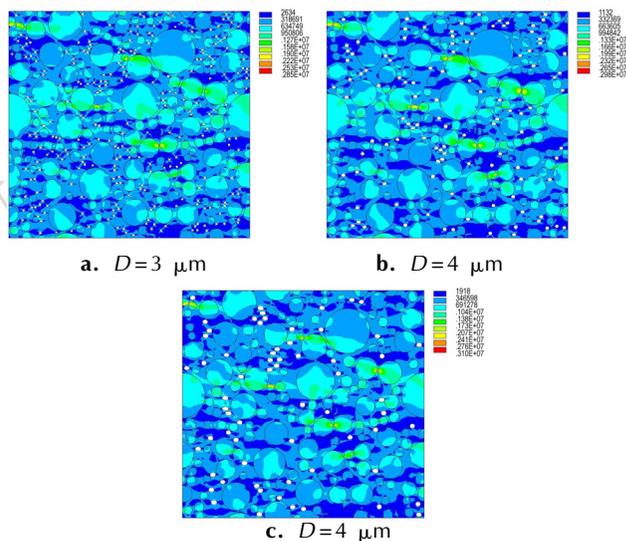


图5 不同孔径 TATB 基 PBX 等效应力云图

Fig.5 Contour of von mises stress of TATB based PBX under different pore size

3.3 孔隙空间分布对PBX有效弹性模量及泊松比的影响

保持孔隙率($\varphi=2\%$)和孔隙大小($D=3\mu\text{m}$)不

变,分析孔隙空间位置分布对 TATB 基 PBX 有效弹性模量的影响。表 3 给出了不同孔隙空间分布 TATB 基 PBX 的有效弹性模量。

表 3 不同孔隙空间分布 TATB 基 PBX 有效弹性模量及泊松比
Table 3 Effective elastic modulus and poisson ratio of TATB based PBX under different pore space distribution

pore space distribution	effective poisson ratio	effective elastic modulus /GPa
-	0.286	0.591
in TATB	0.292	0.596
in binder	0.281	0.510
in interface	0.296	0.251

由表 3 可见,孔隙的空间分布对 TATB 基 PBX 的有效弹性模量影响较大:当孔隙分布在 TATB 与粘结剂界面时,有效弹性模量显著降低,降幅超过 50%,且泊松比略有增大;当微孔隙分布在粘结剂时,有效弹性模量减小约 10%,但泊松比变化不大;当孔隙分布在 TATB 晶体时,有效弹性模量和泊松比基本不变。图 6 分别给出了不同孔隙空间分布 TATB 基 PBX 在

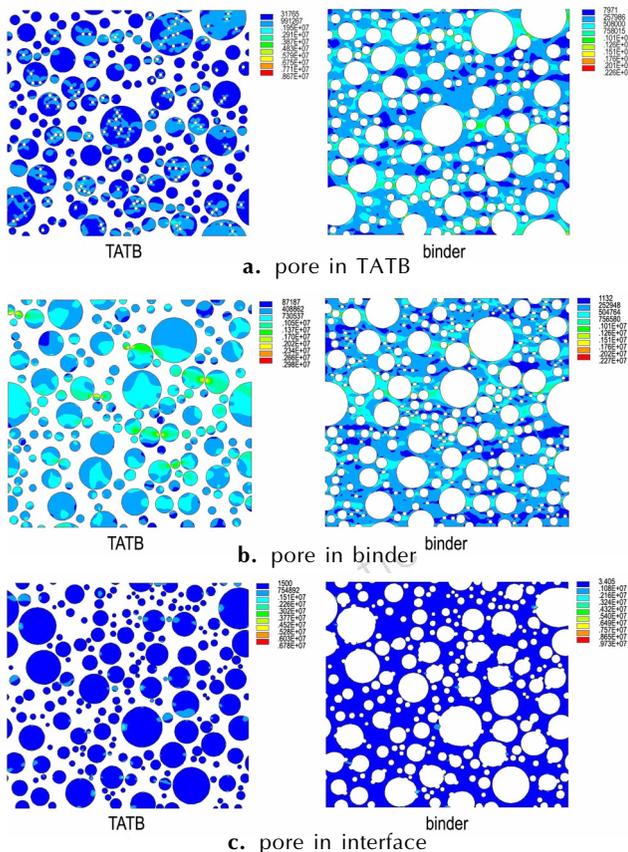


图 6 不同孔隙空间分布 TATB 基 PBX 等效应力云图
Fig. 6 Contour of von mises stress of TATB based PBX under different pore space distribution

0.10% 拉伸应变载荷作用下充填相 (TATB) 及基体相 (Binder) 的等效应力云图。

由图 6 可见,孔隙的空间分布对 TATB 基 PBX 的等效应力分布影响非常显著,不同空间分布导致 TATB 组成的力链也明显不同。由图 6a 可见,当孔隙分布在 TATB 晶体时,由于 TATB 晶体模量较高,难于变形,所以孔隙导致了炸药晶体内部局部应力的增大,而对粘结剂的应力状态不会产生显著影响,所以 TATB 基 PBX 有效弹性模量基本没有改变。由图 6b 和图 6c 可见,当微孔隙分布在粘结剂和界面时,会造成高应变区(粘结剂)变形更为容易,所以 PBX 有效弹性模量显著减小。由于粘接界面既是高应变区(粘结剂晶),也是高应力区(炸药晶体相),所以在拉伸载荷作用下,容易造成界面破裂产生大变形导致 TATB 基 PBX 有效弹性模量大幅度下降。可见,界面位置的孔隙率对炸药力学性能有重要影响。

4 结论

(1) 粘结剂中的孔隙使得 TATB 基 PBX 在外载荷作用下变形更为容易,随着孔隙率增大,TATB 基 PBX 的有效弹性模量呈指数减小。

(2) 孔隙的空间分布对 TATB 基 PBX 有效弹性模量影响较大,当孔隙分布在粘结剂与炸药晶体之间界面时,容易造成粘结界面的脱粘破裂而导致有效弹性模量显著下降。

(3) 在相同的孔隙率和空间分布条件下,孔径大小对 TATB 基 PBX 的有效弹性模量影响较小。

(4) 由于模型对炸药颗粒和孔隙形状均采用了球形近似,且没有考虑颗粒之间的接触,与 TATB 基 PBX 的实际微观结构有所差异,仍有待进一步完善。

参考文献:

- [1] Boddu V M, Viswanath D M, Ghosh T K. 2, 4, 6-Triamino-1, 3, 5-trinitrobenzene (TATB) and TATB-based formulations—A review[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, 181(1): 1-8.
- [2] Thompson D G, Brown G W, Olinger B, et al. The effects of TATB ratchet growth on PBX 9502[J]. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 2010, 35(6): 507-513.
- [3] Maienschein J L, Garcia F. Thermal expansion of TATB-based explosives from 300 to 566K[J]. *Thermochimica Acta*, 2002, 384(1-2): 71-83.
- [4] Rizzo H F, Humphrey J R, Kolb J R. Growth of 1, 3, 5-triamino-2, 4, 6-trinitrobenzene (TATB) II. Control of growth by use of high Tg polymeric binders[J]. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 1981, 5(6): 27-36.
- [5] Willey T M, Overturf G. Towards next generation TATB-based explosives by understanding voids and microstructure from 10nm

- to 1 cm [C] // 40th International Annual Conference of ICT. Karlsruhe: ICT, 2009.
- [6] Willey T M, Buuren T, Lee R I, et al. Changes in pore size distribution upon thermal cycling of TATB-based explosives measured by ultra-small angle X-ray scattering[J]. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 2006, 31(6): 466-471.
- [7] 李敬明, 温茂萍, 黄毅民. 热循环对 TATB 基高聚物粘结炸药性能的影响研究[J]. 含能材料, 2005, 13(4): 208-210.
LI Jing-ming, WEN Mao-ping, HUANG Yi-min. Effect of thermal cycling test on the properties of TATB Based PBX[J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2005, 13(4): 208-210.
- [8] Annapragada S R, Sun D, Garimella SV. Prediction of effective thermo-mechanical properties of particulate composites[J]. *Computational Materials Science*, 2007, 40: 255-266.
- [9] Banerjee B, Cady C M, Adams D O. Micromechanics simulations of glass-estane mock polymer bonded explosives[J]. *Modeling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 2003, 11(4): 457-475.
- [10] Pelissou C, Baccou J, Monerie Y, Perales F. Determination of the size of the representative volume element for random quasi-brittle composites[J]. *International Journal of Solids and Structures*, 2009, 46: 2842-2855.
- [11] Kanit T, Forest S, Galliet I, et al. Determination of the size of the representative volume element for random composites: Statistical and numerical approach[J]. *International Journal of Solids and Structures*, 2003, 40: 3647-3679.
- [12] 戴开达, 刘夔龙, 陈鹏万, 等. PBX 炸药有效弹性模量的有限元模拟[J]. 北京理工大学学报, 2012, 32(11): 1154-1158.
DAI Kai-da, LIU Yan-long, CHEN Peng-wan, et al. Finite element simulation on effective elastic modulus of PBX[J]. *Transactions of Beijing Institute of Technology*, 2012, 32(11): 1154-1158.
- [13] 贾宪振, 王浩, 王建灵. 炸药有效弹性性能的细观尺度仿真预估[J]. 含能材料, 2013, 21(4): 469-472.
JIA Xian-zhen, WANG Hao, WANG, JIAN-ling. Mesoscale simulation of effective elastic properties of explosive[J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2013, 21(4): 469-472.
- [14] 黄玉成, 胡应杰, 肖继军. TATB 基 PBX 结合能的分子动力学模拟[J]. 物理化学学报, 2005, 21(4): 425-429.
HUANG Yu-cheng, HU Ying-jie, XIAO, Ji-jun. Molecular dynamics simulation of binding energy of TATB-based PBX[J]. *Acta Physico-chimica Sinica*, 2005, 21(4): 425-429.
- [15] 杨永明, 菊杨, 刘红彬, 等. 孔隙结构特征及其对岩石力学性能的影响[J]. 岩石力学与工程学报, 2009, 28(10): 2031-2038.
YANG Yong-ming, JU Yang, LIU Hong-bin, et al. Influence of porous structure properties on mechanical performances of rock[J]. *Chinese Journal of Rock Mechanics and Engineering*, 2009, 28(10): 2031-2038.
- [16] 敬仕明, 李明, 龙新平. 基于改进 Hashin-Shtrikman 方法预测 PBX 有效弹性模量[J]. 含能材料, 2009, 17(6): 664-667.
JING Shi-ming, LI Ming, LONG, Xin-ping. On predicting elastic modulus of PBX by modified Hashin-Strikman model [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2009, 17(6): 664-667.

Influence of Pore Properties on Effective Elastic Modulus of TATB Based Polymer Bonded Explosive

WEI Xing-wen, LI Ming, LI Jing-ming, TU Xiao-zhen, ZHOU Mei-lin

(Institute of Chemical Materials, CAEP, Mianyang 621900, China)

Abstract: Finite Element Modeling(FEM) model of TATB based polymer bonded explosive(PBX) with microstructure similar to the true one were obtained by a representative volume element (RVE) method. Two-dimension RVE, considering the fraction and distribution of the fillers and pores was established. Effects of pore structure parameters (pore size, pore space distribution and porosity) on the effective elastic modulus of TATB based PBX were analyzed. Result shows that pores in binders lead the TATB based PBX to deform easily. With the increase of porosity, the effective elastic modulus decreases with exponential distribution. And at the same porosity, pore space distribution has great effect on the effective elastic modulus of TATB based PBX, which can drop by more than 50 percent when the pores distribute in the interface between binder and explosive crystals. The impact of pore size is small to the effective elastic modulus of TATB based PBX.

Key words: material physics; polymer bonded explosive (PBX); effective elastic modulus; pore; representative volume element(RVE)

CLC number: TJ55; O34

Document code: A

DOI: 10.3969/j.issn.1006-9941.2014.04.013