

文章编号: 1006-9941(2016)06-0614-03

热老化及辐照对 TATB 基 PBX 热膨胀性能的影响

涂小珍¹, 沈明¹, 郑春², 李磊²

(1. 中国工程物理研究院化工材料研究所, 四川 绵阳 621999; 2. 中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621999)

摘要: 为了掌握 TATB 基高聚物粘结炸药 (PBX) 件受热及辐照环境影响后的尺寸稳定性情况, 研究了该 PBX 经高温老化、 γ 及中子辐照实验后的热膨胀性能。结果表明, 经高温 55 °C、65 °C 和 75 °C 老化 60 d 后, 该 TATB 基 PBX 热膨胀系数出现了下降, 且热老化温度越高, 热膨胀系数越小, 但经一定条件下的 γ 及中子辐照环境试验后, 其热膨胀性能却无明显变化。

关键词: 高聚物粘结炸药 (PBX); 热膨胀性能; 高温老化; 辐照

中图分类号: TJ55; TB34

文献标志码: A

DOI: 10.11943/j.issn.1006-9941.2016.06.018

1 引言

1,3,5-三氨基-2,4,6-三硝基苯 (TATB) 是一种高能钝感炸药, 因其与高分子粘结剂通过一定工艺压制成型的高聚物粘结炸药 (polymer bonded explosive, PBX) 具有能量高、感度低、易机械加工等优良的综合性能, 目前已被广泛应用于各种尖端和常规武器中。如美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室 (LLNL) 和洛斯阿拉莫斯国家实验室 (LANL) 分别开发了以 TATB 为主炸药配方 LX-17 和 PBX-9502, 并已用于美国核武器装备中^[1]。但由于 TATB 晶体结构不对称, 在温度升高条件下, 将发生各向异性膨胀, 使成型高聚物粘结炸药尺寸长大、密度降低。因此, 国内外对以 TATB 为基的 PBX 的热膨胀性能非常关注并开展了许多研究工作。如 LLNL 的 Kolb 等^[2-3] 对 TATB 成型 PBX 的热膨胀性能进行了详细研究, 指出所有 TATB/Kel-F800 炸药体系都会在 -54 ~ 74 °C 的热循环中发生 1.5% ~ 2.0% 的不可逆长大, 且 TATB 晶体的二级力学松弛使其热膨胀系数 (CTE) 上升。LANL 的 Cary 等^[4] 对非全等静压成型 PBX9502 半球不同方向取样试件热膨胀性能进行了测试, 结果表明, 沿半球径向方向的热膨胀量比其沿半球表面切向方向的热膨胀量增大 16% ~ 19%。李玉斌等^[5] 为了改善以 TATB 为基的 PBX 的热膨胀性能, 对 TATB 粒子尺寸、高聚物的动态力学性

能与 TATB 基复合材料的热膨胀间的关系也进行了研究。结果表明, PBX 中粘结剂对 TATB 粒子约束力越强, 其线膨胀系数越小。另外, 孙杰等^[6] 在对 PBX 变形及残余应力形成机理研究中发现, TATB 基 PBX 药柱热膨胀系数随 TATB 晶体取向增大而增大。

TATB 基 PBX 作为武器中的重要装药, 其尺寸稳定性将影响整个装药结构的稳定性, 与武器安全具有很大的关系。为了掌握该 PBX 件在长期贮存中受热老化及辐照老化后的尺寸稳定性变化情况, 本工作通过不同的高温加速老化实验和辐照实验, 采用热膨胀仪对该 PBX 经热及辐照老化试验后的热膨胀性能变化进行了研究。

2 实验部分

2.1 样品

样品先由 PBX 造型粉经等静压成型为 $\Phi 270$ mm \times 95 mm 的药饼毛坯, 该毛坯再经一定高温时效处理一定时间后加工成尺寸规格为 $\Phi 6$ mm \times 50 mm 的小药柱, 取初始密度相同的小药柱作为本研究用样品。

2.2 仪器及试验方法

热膨胀系数测试采用德国耐驰公司生产的 NETZSCH/DIL402C 型热膨胀系数测定仪测试。仪器适用温度范围: -160 ~ 2400 °C, 仪器分辨率为 10 nm, 0.05 °C, 测试准确度为 $0.03 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 。温度设置范围为 -45 ~ 90 °C, 升降温速率为 $1 \text{ } ^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 。

高温加速老化实验以模拟 PBX 在长时贮存过程中受热环境影响, 采用型号为 AHX-863 的油浴烘箱,

收稿日期: 2015-03-25; 修回日期: 2015-06-10

基金项目: 国家自然科学基金 (11372292)

作者简介: 涂小珍 (1976-), 女, 副研, 主要从事炸药及火工品环境适应性研究。e-mail: z_x_tu@163.com

在温度分别为 55、65℃ 和 75℃ 条件下进行加速老化实验。

γ 辐照实验将试件放置在防爆罐中,采用单板钴源辐照装置,总剂量分别为 42.0Gy(Si)、85.2Gy(Si) 和 126Gy(Si),辐照时间由总剂量及试样放置位置处测得剂量率确定。中子辐照实验采用小中子源,中子

注量率为 $3.31 \times 10^3 \text{ n}/(\text{s} \cdot \text{cm}^2)$ 、辐照时间 52 d。

3 结果与讨论

3.1 热老化对 PBX 热膨胀性影响

样品在 55、65℃ 和 75℃ 加速老化不同时间后测得热膨胀率随温度变化曲线如图 1 所示。

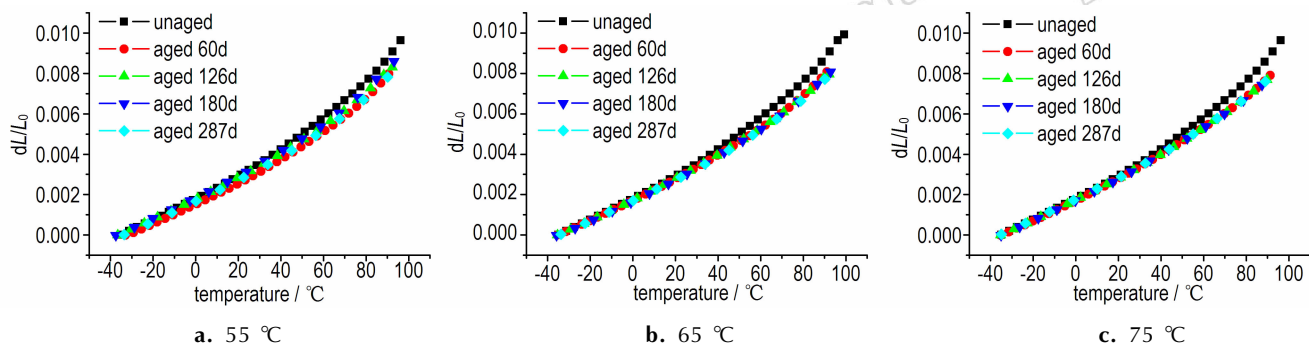


图 1 PBX 试样经不同温度加速老化不同时间后热膨胀率曲线

Fig.1 Thermal expansion rate curves of the PBX samples after accelerated aging for different time at different temperature

从图 1 可以看出,在低温阶段(55℃),加速老化不同时间后,PBX 试样尺寸变化量无明显变化,但随老化温度的升高(65℃,75℃),PBX 试样尺寸变化量出现了一定下降。同时,在热膨胀性能测试前,对经高温加速老化试验后的 PBX 轴向尺寸进行了测试,结果表明,不同高温下加速老化后的 PBX 试件轴向尺寸均出现了不同程度的增长。这说明,在高温加速老化过程中,该 PBX 出现了不可逆长大。因此,分析认为,该 PBX 在高温热膨胀性能测试中出现热膨胀率下降的原因与其在老化过程中尺寸长大产生的孔隙有关。因为在高温阶段,孔隙中空气的膨胀量小于该 PBX 炸药^[7-8]。

为了进一步获得该 PBX 经高温老化后的热膨胀系数,采用“函数求导法”,先对 PBX 在不同高温下老化 60 d 后的热膨胀率曲线进行公式(1)所示的二次函数拟合。表 1 为各热膨胀率曲线二次函数拟合结果,图 2 为各热膨胀率曲线及其拟合曲线。

$$dL/dL_0 = A + BT + CT^2 \quad (1)$$

式中, L_0 为该炸药柱在室温(22 ± 2)℃的初始尺寸,mm; dL 为该炸药柱在温度升高 ΔT 范围内的尺寸变化量,mm; T 为温度,℃; A 、 B 、 C 均为待定参数。

从表 1 可以看出,采用公式(1)拟合出的相关系数 R^2 接近 1,且其拟合标准偏差 SD 均很小。这说明,采用公式(1)能有效表征该 PBX 在各状态下的热膨胀率曲线。

表 1 热膨胀率曲线二次函数拟合结果

Table 1 Quadratic function fitting results of thermal expansion rate curves

parameter	A	B	C	R^2	SD
unaged	0.0017	5.2724E-5	2.8045E-7	0.9990	8.8168E-5
55℃/60 d	0.0014	4.8748E-5	2.2813E-7	0.9991	6.8484E-5
65℃/60 d	0.0017	5.0620E-5	1.8865E-7	0.9993	5.9780E-5
75℃/60 d	0.0017	5.1893E-5	1.6048E-7	0.9997	3.3840E-5

根据线膨胀系数的定义:

$$\bar{\alpha} = \frac{L - L_0}{L_0(T - T_0)} = \frac{dL}{L_0 dT} = \frac{1}{L_0} \frac{dL}{dT} \quad (2)$$

式中, $\bar{\alpha}$ 为该炸药在温度为 dT 范围内的平均线膨胀系数, K^{-1} ; L_0 为该炸药柱在室温(22 ± 2)℃测得的初始尺寸,mm; dL 为该炸药在温度升高 ΔT 范围内的尺寸变化量,mm。

对公式(2)两边进行温度 T 求导,得 PBX 热膨胀系数函数:

$$\alpha = B + 2CT \quad (3)$$

图 3 是由公式(3)和表 1 中拟合参数结果获得的 PBX 经不同高温老化 60 d 后在($-30 \sim 90$ ℃)的热膨胀系数随温度变化曲线。

从图 3 可以看出,该 TATB 基 PBX 经不同高温老化后,其热膨胀系数均出现了下降,且老化温度越高,经相同时间老化后其热膨胀系数越小。这说明,热老化对该 PBX 热膨胀性能具有一定的影响。分析认为,

这主要是由于该 TATB 基 PBX 试件经高温热老化后内部孔隙出现了长大的缘故^[7-8]。

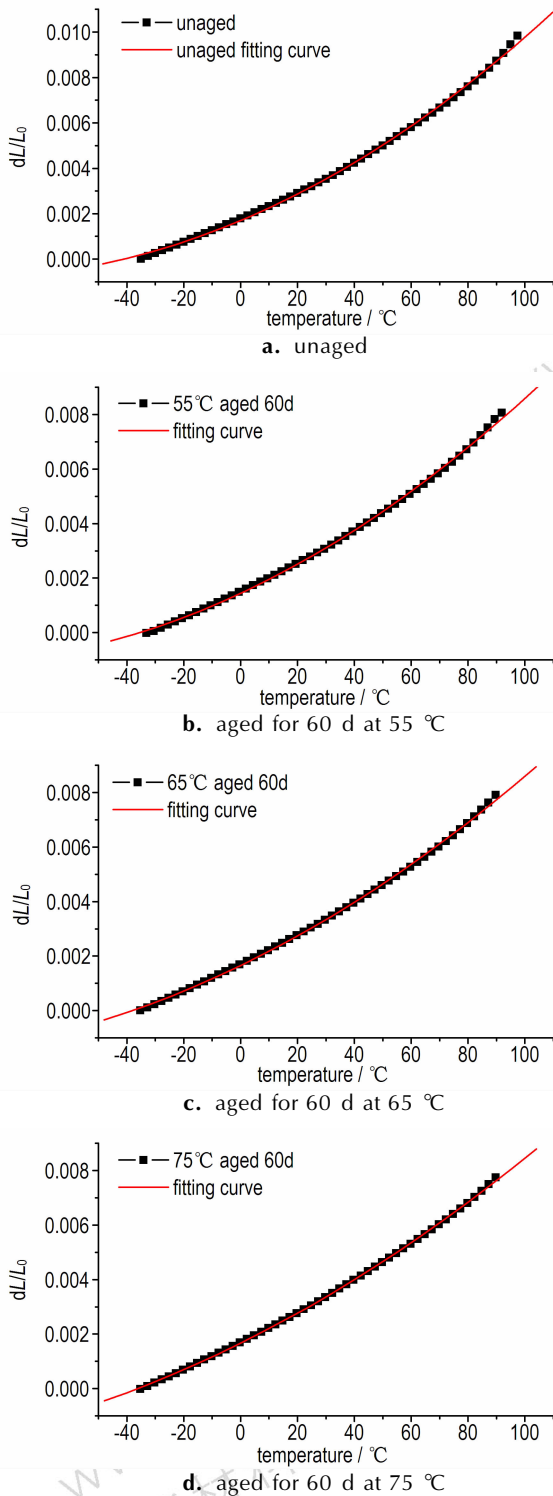


图2 不同温度老化 60 天后 PBX 的热膨胀率曲线及其拟合曲线

Fig.2 Thermal expansion rate curves and its fitting curves of the PBX after aging for 60d at different temperature

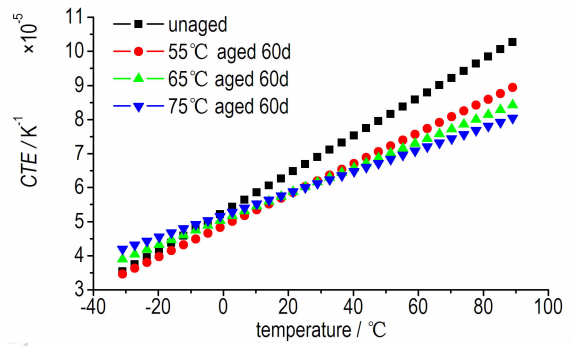


图3 不同状态 PBX 的热膨胀系数随温度的变化曲线

Fig.3 The curves of thermal expansion coefficients of the PBX in different temperature

2.2 辐照对 PBX 热膨胀性能的影响

2.2.1 γ 辐照对 PBX 热膨胀性能的影响

表 2 是 γ 辐照实验的实验条件。图 4 是 PBX 经不同 γ 辐照条件辐照实验后在升温过程热膨胀率随温度变化曲线。

从图 4 可以看出, PBX 经不同时间及不同总剂量 γ 辐照试验后, 其热膨胀率随温度变化曲线与未经辐照试样相比无明显变化。这说明, 该 γ 辐照实验对该 PBX 热膨胀性能无显著影响。

表 2 模拟 γ 辐照实验的条件

Table 2 The conditions of simulating γ irradiation test

sample	dose rate /Gy(Si) /min	irradiation time /min	total dose /Gy(Si)
1#	0.765	54'54"	42.0
2#	0.749	56'50"×2	42.6×2
3#	0.797	54'54"×3	42.0×3

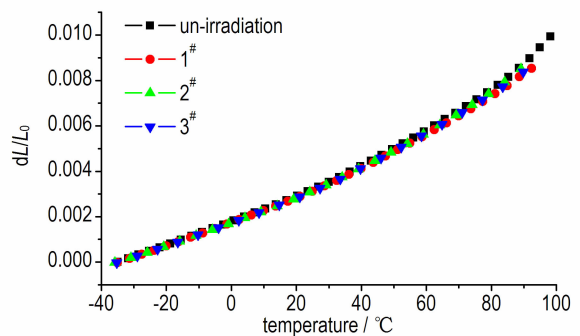


图4 经 γ 辐照试验后 PBX 的热膨胀率曲线

Fig.4 Thermal expansion rate curves of the PBX after γ irradiation test

2.2.2 中子辐照对 PBX 热膨胀性能的影响

图 5 是该 PBX 先经中子辐照再经表 1 中 3[#] 样品的 γ 辐照条件后测得的热膨胀率随温度变化曲线。

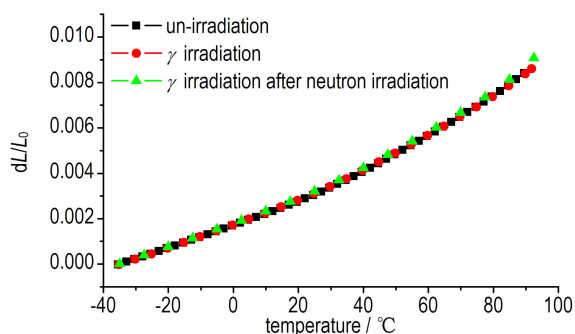


图 5 经中子及 γ 辐照试验后 PBX 的热膨胀率曲线

Fig. 5 Thermal expansion rate curves of the PBX after neutron and γ irradiation test

从图 5 可以看出,该 PBX 先经中子辐照再经 γ 辐照试验后的热膨胀率曲线与未经辐照试样相比无明显变化。这说明,该中子辐照对该 PBX 热膨胀性能也无显著影响。

3 结论

对 TATB 基 PBX 经高温老化及辐照环境试验后的热膨胀性进行了研究,结果表明:经高温 55 $^{\circ}\text{C}$ 、65 $^{\circ}\text{C}$ 和 75 $^{\circ}\text{C}$ 老化 60 d 后,该 TATB 基 PBX 热膨胀系数出现了下降,且热老化温度越高,热膨胀系数越小,

但经一定条件下的 γ 及中子辐照环境试验后,其热膨胀性能无明显变化。

参考文献:

- [1] Brigitta M Dobratz. The insensitive high explosive Triaminotri-trobenzene(TATB): Development and characterization-1888 to 1994[R]. DE95016705, 1995.
- [2] Kolb J R, Rizzo H F. Growth of 1,3,5-triamino-2,4,6-trinitrobenzene (TATB). I. Anisotropic thermal expansion of TATB[J]. *Propellants and Explosives*, 1979(4): 11-16.
- [3] Kolb J R, Rizzo H F. Growth of 1,3,5-triamino-2,4,6-trinitrobenzene(TATB). II. Control of growth by use of high T_g polymeric binder[J]. *Propellants and Explosives*, 1987(6): 27-36.
- [4] Cary B S, Thomas A B, Cynthia W S. The elusive coefficients of thermal expansion in PBX9502. LA-14003[R].
- [5] 李玉斌,沈明,李敬明. TATB 颗粒填充高聚物材料的热膨胀特性[J]. *含能材料*, 2003, 11(1): 24-27.
LI Yu-bin, SHEN Ming, LI Jing-ming. Thermal expansion of TATB-filled polymeric material[J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2003, 11(1): 24-27.
- [6] 孙杰,张浩斌,温茂萍,等. 模压 TATB 基 PBX 炸药晶体取向对膨胀特性的影响[J]. *含能材料*, 2012, 20(5): 545-550.
SUN Jie, ZHANG Hao-bin, WEN Mao-ping, et al. Influence of crystal preferren orientation on thermal expansion of die pressed TATB based PBXs[J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2012, 20(5): 545-550.
- [7] 李敬明,温茂萍,黄毅民. 热循环对 TATB 基高聚物粘结炸药的性能影响研究[J]. *含能材料*, 2005, 13(4): 208-210.
LI Jing-ming, WEN Mao-ping, HUANG Yi-min. Effect of the thermal cycling test on the properties of TATB based PBX[J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2005, 13(4): 208-210.
- [8] 王振廷,李长青. 材料物理性能[M]. 哈尔滨:哈尔滨工业大学出版社, 2011: 123-124.

Effect of Thermal Aging and Irradiation on Thermal Expansion Property of TATB Based PBX

TU Xiao-zhen¹, SHEN Ming¹, ZHENG Chun², LI Lei²

(1. Institute of Chemical Materials, CAEP, Mianyang 621999, China; 2. Institute of Nuclear Science and Technology, CAEP, Mianyang 621999, China)

Abstract: In order to study the dimensional stability of TATB based polymer bonded explosive (PBX) undergoing heating and irradiation environmental impact, the thermal expansion property of the PBX after high temperature accelerated aging test, γ and neutron irradiation test was studied. Results show that the thermal expansion coefficients of the PBX after aging at 55 $^{\circ}\text{C}$, 65 $^{\circ}\text{C}$ and 75 $^{\circ}\text{C}$ for 60 days decreases, and the thermal expansion coefficients decreased more as the age temperature higher. But the thermal expansion properties of the PBX after γ and neutron irradiation under a certain condition are not obviously changed.

Key words: polymer bonded explosive (PBX); thermal expansion property; high temperature aging; irradiation

CLC number: TJ55; TB34

Document code: A

DOI: 10.11943/j.issn.1006-9941.2016.06.018