

文章编号:1006-9941(2024)04-0345-08

# 炸药造型颗粒随机堆积体系物理参量无损表征

岳弘历,张 催,张伟斌

(中国工程物理研究院化工材料研究所,四川 绵阳 621999)

**摘要:** 炸药造型颗粒作为高聚物粘结炸药(Polymer-bonded explosive, PBX)构件成型的中间体,表征其体系物理参量对掌握不同造型颗粒对PBX构件性能的影响具有重要意义。利用X射线层析成像(XCT)和图像处理技术无损表征了9种造型颗粒样品随机堆积体系(包含粒径、体积分数、孔隙率、球形度以及本征密度)的物理参量。9种造型颗粒堆积体系平均粒径最大为1.04 mm,体积分数最高可达68.7%,孔隙率最低为1.04%,平均球形度最高为0.93,密度最大为 $1.44 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 。结果表明,造型颗粒配方中粘结剂种类、炸药晶体成分、炸药晶体配比以及造粒工艺对颗粒堆积体系物理参量有重要影响,且颗粒堆积体系物理参量之间存在相关性。体系粒径分布越分散,颗粒平均表面积越大;体系平均粒径越大、平均球形度越低,颗粒平均孔隙率就越高;平均粒径较大的颗粒堆积体系体积分数较高,当体系平均球形度较大时颗粒堆积的体积分数与球形度无关。研究为掌握造型颗粒堆积体系的物理参量以及颗粒结构与材料性能关系提供了基础。

**关键词:** 炸药造型颗粒;随机堆积体系;体积分数;孔隙率;X射线层析成像

中图分类号: TJ55

文献标志码: A

DOI:10.11943/CJEM2023157

## 0 引言

造型颗粒压装炸药制备工艺发展成熟、性能优异,是目前应用广泛的一种高聚物粘结炸药(PBX)制作方法<sup>[1]</sup>,作为PBX成型的中间体,炸药造型颗粒是炸药晶体与粘结剂组成的复杂体系,是PBX构件力学结构承载的基本单元<sup>[2]</sup>。炸药造型颗粒受材料配方和制备工艺等因素的影响,结构多样,而颗粒结构是炸药物理、力学等性质的重要决定因素,直接影响压制成型PBX的密度分布和应力集中等,对炸药的安全性能和使用性能<sup>[3]</sup>有影响。研究不同造型颗粒堆积体系的物理参量对掌握造型颗粒结构与性能之间的关系具有重要意义,同时也为PBX成型工艺的改进提供参考。

造型颗粒的粒径、体积分数、孔隙率、球形度以及

密度等物理参量对PBX的安全<sup>[4-6]</sup>和力学性能<sup>[7-9]</sup>有影响。微观尺度上通过扫描电镜等手段表征纳米含能材料颗粒的形态、结构等,研究它们对材料性能的影响<sup>[10-12]</sup>,但在宏观及介观尺度,关于造型颗粒堆积体系物理参量的表征及研究鲜有报道。X射线层析成像由于在材料学研究上具有独特优势<sup>[13]</sup>,被广泛应用于颗粒材料的精密表征<sup>[14-16]</sup>。但目前针对介观尺度造型颗粒的研究较少,且表征的物理参量也比较有限。Kaeshammer等<sup>[17]</sup>通过XCT结合浮选法、光散射测量法精确表征了3种环三亚甲基三硝胺(RDX)颗粒的尺寸分布、堆积密度分布以及颗粒形态,发现颗粒形状和尺寸分布对材料弹性响应有重要影响;Jia等<sup>[18]</sup>基于XCT研究了环四亚甲基四硝胺(HMX)、RDX、高氯酸铵(AP)3种颗粒的形态特征,发现颗粒的三维形态与二维投影形状之间存在一定的差异,不能简单地用二维形状来代替真实的颗粒形态。

上述研究主要聚焦于个别颗粒体系部分物理参量的表征,要探究造型颗粒结构与材料性能的关系,还需对不同颗粒体系更多方面的物理参量进行表征。本研究运用微纳XCT及图像处理技术表征9种不同的炸药造型颗粒堆积体系包含粒径、体积分数、孔隙率、球形

收稿日期:2023-07-29;修回日期:2023-09-27

网络出版日期:2023-11-03

基金项目:国家自然科学基金青年基金(12105267)

作者简介:岳弘历(2000-),男,硕士研究生,主要从事颗粒材料物理及力学行为研究。e-mail:18391086194@139.com

通信联系人:张伟斌(1972-),男,研究员,主要从事材料性能与表征高性能制造无损评价、自动化检测技术与装置、凝聚态物理等研究。e-mail:weibinzhang@caep.cn

引用本文:岳弘历,张催,张伟斌.炸药造型颗粒随机堆积体系物理参量无损表征[J].含能材料,2024,32(4):345-352.

YUE Hong-li, ZHANG Cui, ZHANG Wei-bin. Non-destructive Characterization of Physical Parameters in Random Packing Systems of Explosive Molding Granules [J]. Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao), 2024, 32(4):345-352.

度以及本征密度在内的多个物理参量,分析不同造型颗粒堆积体系物理参量之间的共性与差异,探究造型颗粒配方中粘结剂种类、炸药晶体成分、炸药晶体配比以及造粒工艺对颗粒堆积体系物理参量的影响,同时讨论物理参量间的相关性,为炸药造型颗粒结构与材料性能的关系研究提供了基础。

## 1 实验部分

### 1.1 样品与仪器

样品:实验所用9种造型颗粒样品(图1)由化工材

料研究所制备。其中TATB-1和TATB-2为三氨基三硝基苯(TATB)基造型颗粒,配方中粘结剂成分不同;TATB-RDX为TATB和RDX炸药晶体组成的造型颗粒;TATB-HMX-1、TATB-HMX-2、TATB-HMX-3为TATB和HMX炸药晶体组成的造型颗粒,配方中TATB和HMX的比例不同;BQ-1为吡嗪组成的造型颗粒,RDX-1是由RDX组成的造型颗粒;TATB-Al是TATB炸药晶体中加入金属铝组成,金属铝的存在使得其造粒工艺与其它样品不同。

仪器:nanoVoxel 9100型微纳CT,天津三英精密公司。

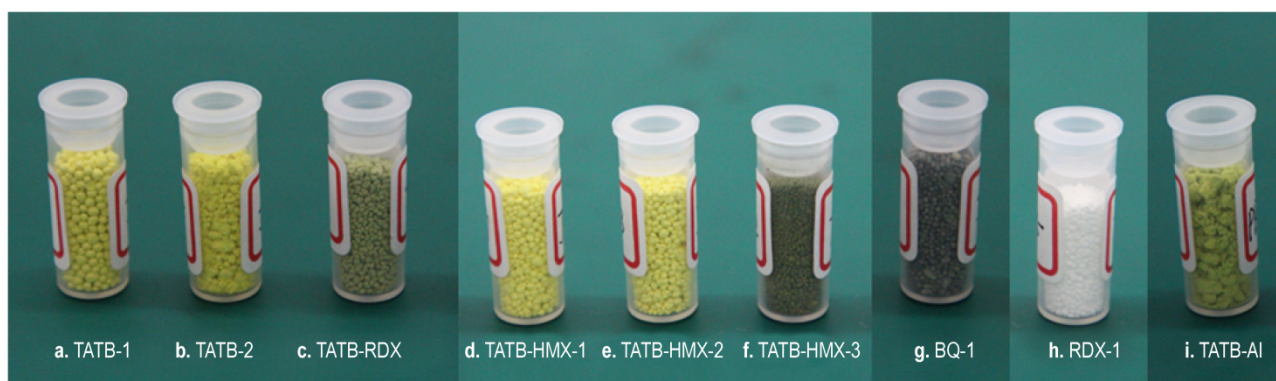


图1 造型颗粒样品实物图

Fig.1 Photos of molding granule samples

### 1.2 实验

9种样品颗粒用内径为10 mm的圆柱容器盛装,每种样品在容器中堆积的高度约10 mm。实验将容器固定在CT扫描平台上,观察屏幕中的视场,调整合适的放大比后进行CT检测。CT检测电压50 kV,电流200 mA,CT图像分辨率为14.3  $\mu\text{m}$ 。样品在旋转平台上旋转360°,每个样品采集900帧,所有样品采用同样的CT参数进行检测比较。

### 1.3 造型颗粒物理参量

颗粒物理参量是描述颗粒形貌和结构的参数,研究主要关注的参量包括:颗粒等体积粒径 $d$ 、体积分数 $\Phi$ 、孔隙率 $\eta$ 、球形度 $\psi$ 以及本征密度 $\rho$ 。本研究中造型颗粒堆积体系物理参量使用自编算法计算,具体量化表征方法详见参考文献[19]。

颗粒粒径 $d$ (mm)是描述颗粒尺寸的参量,以造型颗粒等体积球的直径来表示该颗粒的直径:

$$d_i = \left( \frac{6V_i}{\pi} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1)$$

式中, $d_i$ 为第 $i$ 颗颗粒的等体积粒径,mm; $V_i$ 为颗粒的体积, $\text{mm}^3$ 。

计算每颗颗粒的等体积粒径 $d_i$ ,可以得到平均粒径 $\bar{d}$ :

$$\bar{d} = \frac{\sum_{i=1}^n d_i}{n} \quad (2)$$

体积分数 $\Phi$ 是描述颗粒堆积体系堆积状态的参量,值介于0到1之间,值越大表明颗粒堆积越紧密,其定义为:

$$\Phi = \frac{\sum_{i=1}^n V_i^{\text{fill}}}{V_0} \quad (3)$$

式中, $V_0$ 为造型颗粒堆积体系的松装体积, $\text{mm}^3$ ; $V_i^{\text{fill}}$ 为第 $i$ 个颗粒孔隙填充后的体积, $\text{mm}^3$ 。

孔隙率 $\eta$ 是表征颗粒内部CT图像可见孔隙的参量,其定义为:

$$\eta = \frac{\sum_{i=1}^n (V_i^{\text{fill}} - V_i)}{\sum_i V_i} \quad (4)$$

颗粒球形度 $\psi$ 是描述颗粒形貌特性的参量,其值在0到1之间,球形度越接近于1则颗粒的形状越接近球形,球形度的定义为:

$$\psi_i = \frac{\pi d_i^2}{S_i} \quad (5)$$

式中,  $\psi_i$  为第  $i$  个颗粒的球形度,  $S_i$  为第  $i$  个颗粒的表面积,  $\text{mm}^2$ 。

计算每颗颗粒的球形度  $\psi_i$ , 可以得到平均球形度  $\bar{\psi}$ :

$$\bar{\psi} = \frac{\sum_{i=1}^n \psi_i}{n} \quad (6)$$

本征密度  $\rho (\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$  是描述造型颗粒自身密度的参量, 由颗粒的质量与体积之比决定, 其定义为:

$$\rho = \frac{m}{\sum_{i=1}^n V_i^{\text{fill}}} \quad (7)$$

式中,  $m$  为造型颗粒的质量,  $\text{g}$ 。

## 2 结果与讨论

### 2.1 CT 成像结果

9 种样品的三维 CT 结构如图 2 所示。由图 2a, 2b 可以看出, TATB-1 颗粒更接近球形, 颗粒个体间形状和尺寸差异不大; TATB-2 颗粒形状不规则, 颗粒个体间尺寸差异较大。TATB-RDX(图 2c) 和 TATB-1 颗粒尺寸接近, 尺寸均匀性较差, 但颗粒形貌差异不大。由图 2d~2f 可以看出, TATB-HMX-3 颗粒的尺寸均匀性最好, TATB-HMX-2 颗粒个体间尺寸差异较大, 颗粒形貌也比较不规则。吡嗪构成的造型颗粒 BQ-1 粒径相对较小(图 2g), RDX-1(图 2h) 颗粒尺寸与 BQ-1 接近, 但尺寸均匀性稍差; TATB-AI 颗粒的形态接近块状(图 2i), 这是不同的造粒工艺导致的。

造型颗粒样品的径向的 CT 切片如图 3 所示。从图 3a、3b 可以发现, TATB-1 颗粒形状更接近球形且不同个体间形状差异小, 内部孔隙较少; TATB-2 堆积体系粒径分布相对分散, 颗粒形状不规则, 内部存在较多孔隙。TATB-RDX 颗粒(图 3c) 尺寸与 TATB-1 相差不多, 但颗粒形状均匀性稍差且内部孔隙略多。由 TATB 和 HMX 构成的 3 种颗粒中 TATB-HMX-1 颗粒(图 3d) 尺寸最大, TATB-HMX-2 颗粒(图 3e) 内部孔隙最多, TATB-HMX-3 颗粒(图 3f) 形状最均匀。吡嗪构成的造型颗粒 BQ-1(图 3g) 与 TATB 基相比, 其颗粒尺寸明显更小, 颗粒形状相对均匀、内部孔隙少。RDX-1(图 3h) 颗粒尺寸相比 TATB 基颗粒同样较小, 而其尺寸均匀性稍差、内部孔隙较少。图 3i 为 TATB-AI 样品, 其图像灰度变化较大, 表明其颗粒密度不均匀。

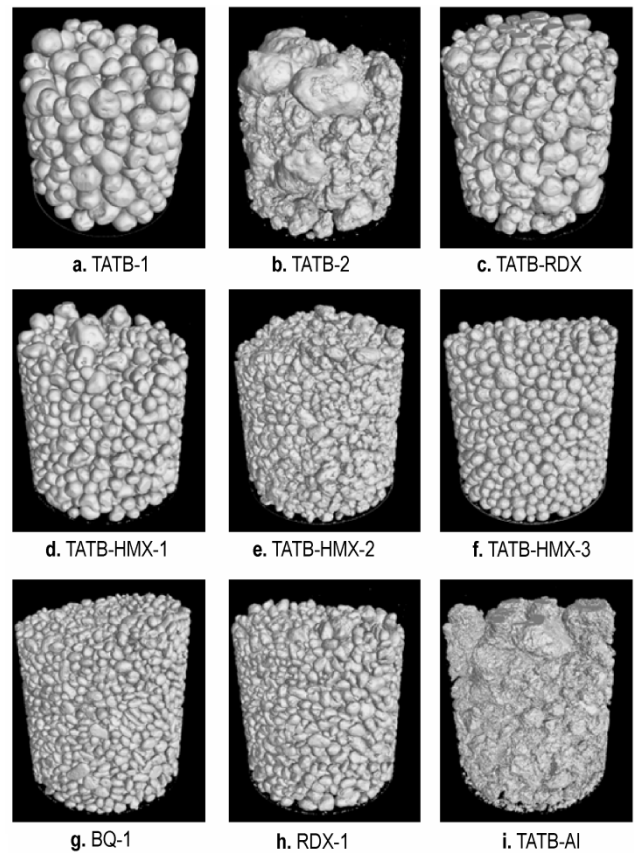


图 2 不同造型颗粒样品的三维 CT 结构图

Fig. 2 3D structures of molding granule samples

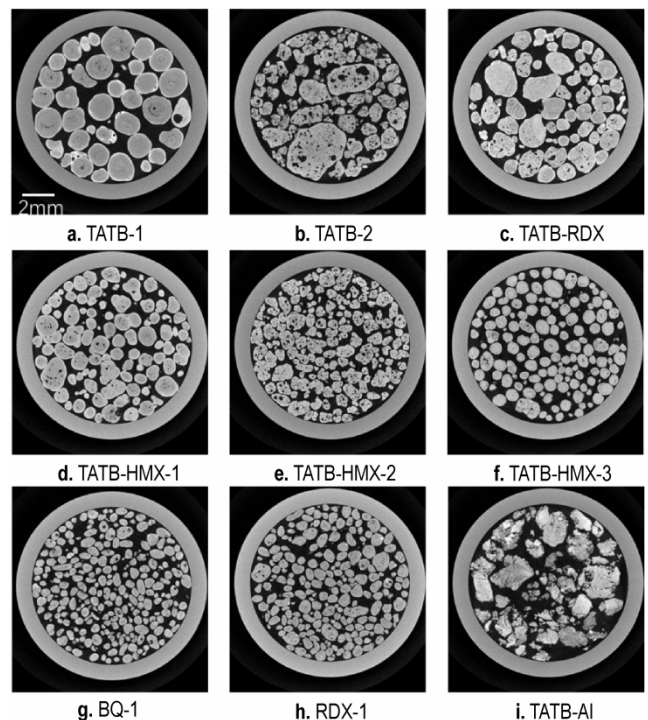


图 3 造型颗粒径向 CT 切片图

Fig. 3 Radial CT slices of molding granule samples

## 2.2 颗粒堆积体系物理参量

表1列出了9种样品包含平均粒径 $\bar{d}$ 、体积分数 $\Phi$ 、孔隙率 $\eta$ 、平均球形度 $\bar{\psi}$ 以及本征密度 $\rho$ 在内的颗粒物理参量以及颗粒数量 $N$ 。

表1 造型颗粒物理参量

Table 1 Physical parameters of molding granule samples

samples	$\bar{d}$ / mm	$\Phi$ / %	$\eta$ / %	$\bar{\psi}$	$\rho$ / g·cm <sup>-3</sup>	$N$
TATB-1	1.02	68.7	2.16	0.89	1.35	867
TATB-2	0.80	61.0	7.91	0.77	1.08	908
TATB-RDX	1.04	66.4	2.98	0.88	1.33	696
TATB-HMX-1	0.89	65.6	2.11	0.92	1.30	1079
TATB-HMX-2	0.72	64.1	5.64	0.82	1.44	1972
TATB-HMX-3	0.71	59.2	1.59	0.93	1.32	2023
BQ-1	0.58	56.7	1.04	0.89	1.25	4070
RDX-1	0.62	61.0	1.08	0.88	1.17	2942
TATB-AI	0.76	51.3	3.16	0.62	1.08	779

Note:  $\bar{d}$  is average diameter,  $\Phi$  is volume fraction,  $\eta$  is porosity,  $\bar{\psi}$  is average sphericity,  $\rho$  is density,  $N$  is the number of granules.

由表1可以看出,多数样品的体积分数 $\Phi$ 较高,可达60%以上,其原因在于造型颗粒堆积体系的粒径是多分散的,小尺寸颗粒可以填充到大颗粒堆积的空隙中,增加了体系的体积分数。BQ-1和TATB-AI的体积分数 $\Phi$ (分别为56.7%、51.3%)相对较低,BQ-1颗粒堆积体系平均粒径是所有样品中最小的,其体积分数 $\Phi$ 较低的原因可能是体系中难以形成容纳小尺寸颗粒的空隙,导致空间利用率变低;而TATB-AI颗粒堆积体系平均球形度最低(0.62)且颗粒个体之间形状差异较大,这使得其颗粒接触形式与其余颗粒堆积体系不同,从而导致较低的体积分数。

为探究配方中晶体成分对颗粒物理参量的影响,对比TATB-1、RDX-1、和BQ-1 3种颗粒堆积体系,TATB-1和RDX-1体系平均球形度相近,而RDX-1的平均粒径更小、孔隙率和密度更低,BQ-1体系的平均粒径明显小于TATB-1和RDX-1颗粒,同时孔隙率也较低,这说明不同炸药晶体对颗粒堆积体系物理参量有较大影响。不同种类的炸药晶体在生长过程中所需能量不同,在相应环境条件下保持稳态的尺寸存在差异,并且不同炸药晶体与粘结剂结合的能力有区别,因此不同炸药晶体构成的造型颗粒的粒径、球形度、孔隙率等物理参量可以表现出明显差异。

为探究配方中粘结剂成分对颗粒物理参量的影响,比较TATB-1和TATB-2这2种TATB基炸药造型颗粒,二者配方中粘结剂不同,而TATB-2体系的平均粒

径、体积分数、平均球形度和密度都小于TATB-1,孔隙率大于TATB-1,这说明造型颗粒配方中的粘结剂成分可以影响颗粒堆积体系的各项物理参量,即使同种炸药晶体组成的颗粒堆积体系也能表现出较大的差异。

为探究配方中炸药晶体组合对颗粒物理参量的影响,对比TATB-1、RDX-1和TATB-RDX这3种颗粒堆积体系,TATB-RDX颗粒堆积体系的平均球形度与二者接近,平均粒径和密度更接近TATB-1,而孔隙率比二者都大。这说明不同炸药晶体组合造粒得到的颗粒可以保留单一组分造型颗粒的特征(如平均粒径、平均球形度、密度),但也存在与2种组分都不同的参量(如孔隙率)。

为探究配方中炸药晶体对比对颗粒物理参量的影响,对比3种由TATB和HMX组成的颗粒堆积体系,其中TATB-HMX-1和TATB-HMX-2的物理参量差异较大,与TATB-HMX-3的孔隙率相差不大,平均球形度和密度比较接近,TATB-HMX-2和TATB-HMX-3的平均粒径比较接近,这说明改变炸药晶体配比可以影响颗粒堆积体系的物理参量。

以上分析表明,通过调节颗粒配方成分和炸药晶体配比可以改变颗粒形态和结构特征,以获得理想的颗粒堆积体系物理参量。

9种造型颗粒堆积体系粒径和球形度分布拟合情况如表2所示,其中标准差的值在一定程度上反映了粒径和球形度的离散程度,标准差越大代表参数越离散;决定系数 $R^2$ 的值在0到1之间,越接近1代表分布函数的拟合程度越高,表2给出的分布是经计算后 $R^2$ 值最大的分布。

9种造型颗粒堆积体系的粒径分布如图4所示。由图4可以看出,不同体系颗粒粒径分布差异较大,BQ-1体系粒径分布曲线峰值最高且曲线较窄,表明其粒径分布较为集中,体系内颗粒尺寸差异小;而TATB-2、TATB-HMX-2以及TATB-AI颗粒堆积体系粒径分布曲线峰值较低且曲线明显更宽,表明三者的粒径分布比较分散,体系内颗粒尺寸差异较大。

TATB-1和TATB-2均为TATB基造型颗粒,但TATB-1曲线峰值更高、峰宽更窄、粒径分布更加集中,而TATB-2的粒径分布相对更加分散,这说明不同成分的粘结剂可以影响颗粒堆积体系的粒径分布。TATB-HMX-1、TATB-HMX-2、TATB-HMX-3三者均为TATB和HMX组成的造型颗粒,TATB-HMX-2粒径分布最分散,TATB-HMX-3粒径分布最集中,这说明造

表 2 9 种样品的颗粒粒径和球形度分布

Table 2 Distribution of granule diameter and sphericity for nine samples

samples	$\sigma_d$ / mm	distribution of $d$	$R^2$	$\sigma_\psi$	distribution of $\psi$	$R^2$
TATB-1	0.20	LogNormal	0.997	0.07	Lorentz	0.863
TATB-2	0.33	LogNormal	0.992	0.08	Gauss	0.941
TATB-RDX	0.28	Lorentz	0.979	0.07	Lorentz	0.875
TATB-HMX-1	0.21	LogNormal	0.999	0.05	Lorentz	0.752
TATB-HMX-2	0.37	LogNormal	0.974	0.06	Gauss	0.978
TATB-HMX-3	0.14	LogNormal	0.999	0.07	Gauss	0.991
BQ-1	0.11	Gauss	0.998	0.06	Lorentz	0.975
RDX-1	0.18	LogNormal	0.999	0.06	Lorentz	0.950
TATB-AI	0.39	LogNormal	0.974	0.12	Gauss	0.959

Note: 2)  $\sigma_d$  is standard deviation of granule diameter,  $\sigma_\psi$  is standard deviation of sphericity,  $R^2$  is coefficient of determination.

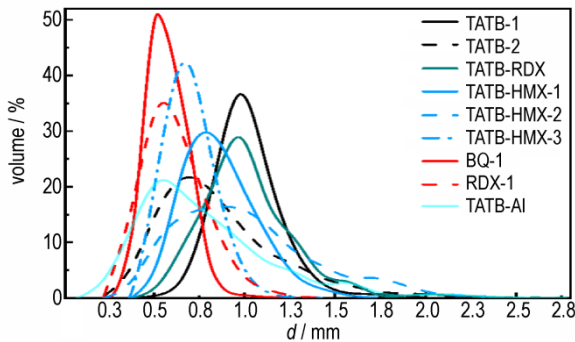


图 4 颗粒粒径分布图

Fig.4 Diameter distribution of granule samples

型颗粒炸药配比对颗粒堆积体系粒径分布情况有显著影响。

图 5 为 9 种造型颗粒的球形度分布曲线图,由图 5 可以看出,多数颗粒堆积体系具有较高的球形度。结合表 2 可知,大部分颗粒堆积体系的球形度标准差较小,这表明多数样品体系内颗粒形状均匀性较好。TATB-2、TATB-AI 颗粒堆积体系的球形度分布曲线相较于其余颗粒明显更加“低矮”,并且球形度标准差较大,这表明它们的颗粒形状分布更加离散,体系内颗粒形状差异大。

相较于 TATB-1, TATB-2 颗粒堆积体系的球形度均值更低且分布更加分散,这说明不同粘结剂对颗粒球形度的大小和分布有影响。对比 TATB-HMX-1、TATB-HMX-2、TATB-HMX-3 这 3 种颗粒堆积体系的球形度分布曲线,三者的球形度分布存在明显差异,这说明不同的造型颗粒炸药配比可以改变颗粒堆积体系的球形度分布。图 5 中 TATB-AI 颗粒堆积体系的平均球形度最低且球形度分布也最分散,结合 CT 图像

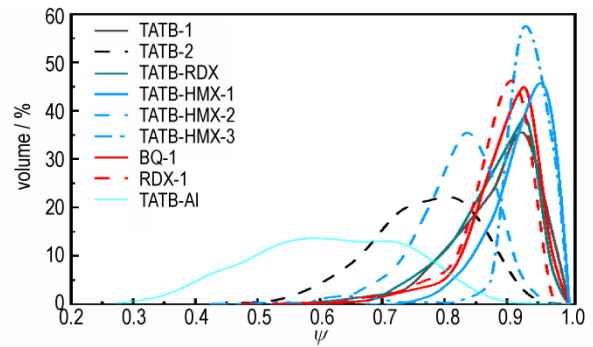


图 5 颗粒球形度分布图

Fig.5 Sphericity distribution of granule samples

(图 2i) 可以看到 TATB-AI 的颗粒形状更接近于块状,表明造粒工艺对颗粒形状存在影响。

### 2.3 物理参量相关性

由式(5)可知,颗粒球形度是由颗粒等体积球的表面积与颗粒表面积之比决定,二者满足  $\psi = \pi d^2 / S$  的关系,其中  $S$  是造型颗粒的表面积,即球形度由颗粒粒径和颗粒表面积决定,粒径越大,颗粒表面积越小,球形度就越大。为研究粒径分布对颗粒球形度的影响,将 9 种颗粒堆积体系的平均球形度和平均粒径进行了对比,结果如图 6 所示。

图 6 蓝色虚线框中 BQ-1 和 RDX-1、TATB-HMX-2 和 TATB-HMX-3、TATB-1 和 TATB-RDX 是 3 组平均粒径接近的颗粒堆积体系(其平均粒径分别为 0.58 和 0.62, 0.72 和 0.71, 1.02 和 1.04 mm, 差值不高于 6.5%),由粒径分布标准差(表 2)和粒径分布曲线(图 4)可知,3 组中球形度更高的颗粒堆积体系都具有更加集中的粒径分布。这说明颗粒堆积体系的粒径分布在一定程度上反映了颗粒表面形态特征,上述 3 组内粒径分布更分散的体系平均球形度更低,由  $\psi = \pi d^2 / S$  可知粒径分布更分散的体系的颗粒表面积更大,即这 3 种颗粒的表面更加粗糙以获得更大的表面积。

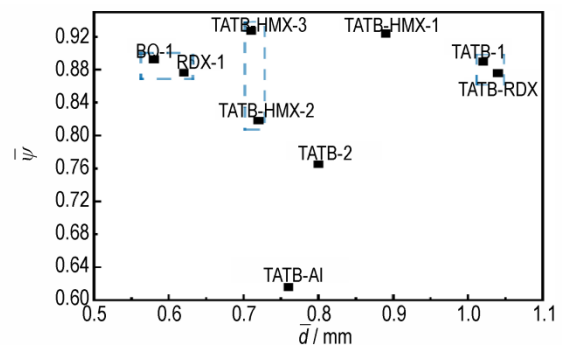


图 6 造型颗粒平均球形度与平均粒径

Fig.6 Average sphericity vs. average diameter of molding granule samples

为研究颗粒孔隙率与粒径和球形度的关系,将9种颗粒堆积体系的孔隙率与粒径和球形度进行了对比,如图7所示。造型颗粒堆积体系的平均粒径与孔隙率如图7a所示,除红色圆圈内孔隙率最高的3种颗粒之外,其余颗粒服从平均粒径越大,颗粒孔隙率越高的规律(如图7a中箭头所示)。实际造粒过程中炸药晶体与粘结剂是通过混合搅拌逐渐生长成型的,粒径越大的颗粒在成型过程中产生孔隙的概率相对更大;并且CT设备的分辨率一定,相同情况下大颗粒中的孔隙更容易被识别,导致平均粒径更大的颗粒堆积体系孔隙识别率更高。

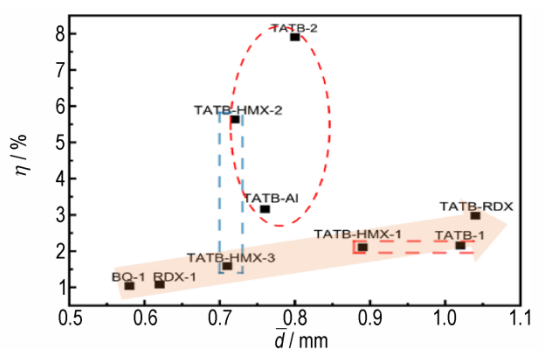
由粒径分布标准差(表2)和粒径分布曲线(图4)可知,3种孔隙率最高的颗粒堆积体系粒径分布较为分散,这表明粒径分布情况对颗粒堆积体系孔隙率有影响,粒径分布较为分散的体系颗粒孔隙率较高。蓝色虚线框中TATB-HMX-2和TATB-HMX-3颗粒堆积体系的平均粒径接近(分别为0.72 mm、0.71 mm),而TATB-HMX-2体系的粒径分布比较分散,其孔隙率明显高于TATB-HMX-3颗粒;红色虚线框中TATB-HMX-1体系的平均粒径小于TATB-1,但粒径分

布更加分散,最终二者孔隙率差异不大(分别为2.11%、2.16%),这符合上述粒径分布更分散、孔隙率较高的规律。

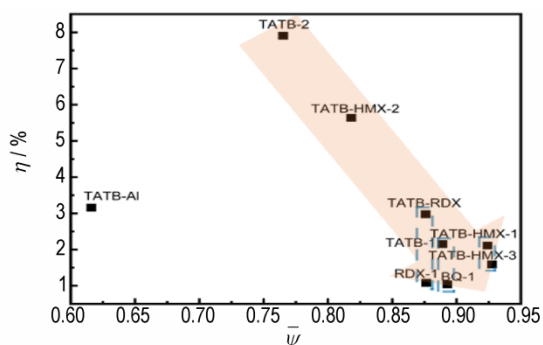
造型颗粒堆积体系的平均球形度与孔隙率如图7b所示,平均球形度较高的颗粒堆积体系孔隙率较低(如图7b中箭头所示),蓝色虚线框中TATB-RDX和RDX-1、TATB-1和BQ-1以及TATB-HMX-1和TATB-HMX-3这三组颗粒堆积体系的平均球形度差异不大(分别为0.88和0.88,0.89和0.89,0.92和0.93),其中球形度分布更集中的体系孔隙率更低,说明体系球形度分布可以影响颗粒的孔隙率,且平均球形度越大、球形度分布越集中的体系孔隙率较低。颗粒堆积体系球形度分布与颗粒成型均匀性有关,颗粒球形度高代表造粒过程中颗粒是均匀生长的,因此产生的孔隙等缺陷相对较少,而球形度较低的颗粒在成型时生长不均,更容易产生孔隙。TATB-AI受造粒工艺的影响其生长成型过程与其余颗粒存在差异,其颗粒内部孔隙与颗粒球形度之间缺少联系,所以其体系平均球形度较低但孔隙率并不高(3.16%)。

为研究颗粒堆积体系体积分数与粒径和球形度的关系,将9种颗粒堆积体系的孔隙率与粒径和球形度进行了对比,如图8所示。造型颗粒堆积体系的平均粒径与体积分数如图8a所示,整体上随着平均粒径的增长,颗粒堆积体系体积分数逐渐增大(如图8a中箭头所示)。TATB-HMX-2与TATB-HMX-3体系的平均粒径相近(分别为0.72 mm、0.71 mm),而TATB-HMX-2的体积分数较高,其原因是TATB-HMX-2的粒径分布较分散,颗粒粒径分布范围更广,有利于颗粒空隙填充,增大了体系的体积分数。TATB-1与TATB-RDX体系平均粒径也相差不大(分别为1.02 mm、1.04 mm),但粒径分布较为集中的TATB-1体系体积分数更高一些,这是因为二者的粒径分布范围相差不大,粒径分布更集中的体系不易产生堵塞、成拱等缺陷。TATB-AI体积分数最低,由CT图像可知该体系的颗粒堆积与颗粒形态比较特殊,因此其粒径与体积分数的关系也与其他体系不同。

图8b是颗粒堆积体系的平均球形度与体积分数,在颗粒堆积体系平均球形度较低时(0.82以下),体系体积分数与平均球形度正相关(如图8b中箭头所示),而球形度较高时(0.88及以上)体系体积分数与平均球形度之间无明显关系。通常来说颗粒形状与颗粒接触方式有关,而不同的接触可能改变体系堆积方式并影响体积分数。球形度较低的3个体系(TATB-AI、

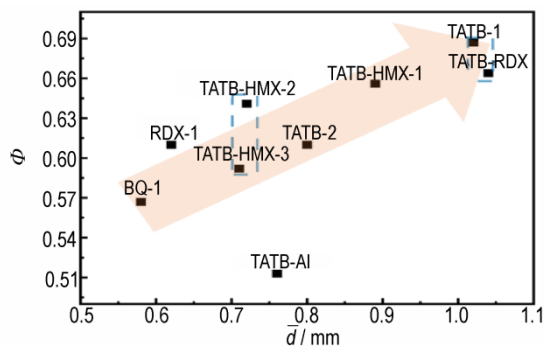


a. void fraction vs. average granule diameter

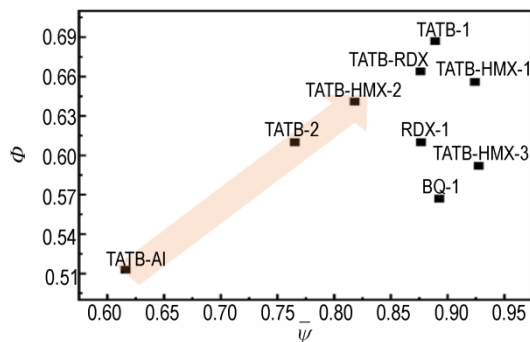


b. void fraction vs. average granule sphericity

图7 造型颗粒孔隙率随平均粒径和平均球形度的分布  
Fig. 7 Distribution of void fraction with average diameter and average sphericity of molding granule samples



a. packing fraction vs. average granule diameter



b. packing fraction vs. average granule sphericity

图8 造型颗粒体积分数随平均粒径和平均球形度的分布

Fig.8 Distribution of packing fraction with average diameter and average sphericity of molding granule samples

TATB-2、TATB-HMX-2)颗粒形状复杂,容易产生堵塞、成拱等结构,降低了体系的体积分数,随着体系平均球形度的增加颗粒形状趋于球形,内部堵塞和成拱等结构减少,体系体积分数增加;而对于本身球形度较高的体系,颗粒形状相差不大,球形度不再是影响体积分数的主导因素,体系平均球形度与体积分数的相关性减弱。

### 3 结论

利用X射线层析成像和CT图像处理技术得到了造型颗粒随机堆积体系三维结构重构图,量化获取了9种造型颗粒堆积体系包含平均粒径、体积分数、孔隙率、平均球形度以及本征密度在内的物理参量集,给出了颗粒粒径和球形度的分布,分析了物理参量之间的相关性,得到以下结论:

(1)9种颗粒随机堆积体系物理参量差异较大,不同颗粒配方中粘结剂成分、炸药晶体组成及配比对颗粒形态和结构有重要影响,调节颗粒配方可以改变颗粒结构,以获得理想的体系物理参量。

(2)颗粒堆积体系物理参量之间存在相关性,颗

粒粒径分布和球形度分布可以在一定程度上反映出颗粒的表面形貌和孔隙率。随机堆积体系的体积分数与颗粒粒径和球形度有关,平均粒径较大且粒径分布较广泛的体系体积分数较高,且当球形度较低时(0.82以下),体系体积分数随着球形度增加而增大。

#### 参考文献:

- [1] 马寅翔,刘晨,王慧,等.TATB造型粉颗粒单轴压缩力学性能[J].含能材料,2020,28(10):960-968.  
MA Yin-xiang, LIU Chen, WANG Hui, et al. Mechanical property of the single TATB granule by uniaxial compression [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2020, 28(10): 960-968.
- [2] 张伟斌,田勇,戴斌,等.TATB造型颗粒微细结构X射线亚微米层析成像[J].含能材料,2017,25(2):173-176.  
ZHANG Wei-bin, TIAN Yong, DAI Bin, et al. Characterization of TATB molding powder by x-ray sub-micron tomography [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2017, 25(2): 173-176.
- [3] 戴斌,田勇,张伟斌,等.TATB造型颗粒模压结构演变的X射线层析成像[J].含能材料,2015,23(10):982-988.  
DAI Bin, TIAN Yong, ZHANG Wei-bin, et al. X-ray tomography of structural evolution of TATB granules during compaction [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2015, 23(10): 982-988.
- [4] Pang W, Fan X, Wang K, et al. Al-based nano-sized composite energetic materials (Nano-CEMs): Preparation, characterization, and performance [J]. *Nanomaterials*, 2020, 10(6): 1039.
- [5] 刘玉存,王建华,安崇伟,等.RDX粒度对机械感度的影响[J]. 火炸药学报,2004(02):7-9.  
LIU Yu-cun, WANG Jian-hua, AN Chong-wei, et al. Effect of granule size of RDX on mechanical sensitivity [J]. *Chinese Journal of Explosives & Propellants*, 2004(02): 7-9.
- [6] SUNADA Chakravarthy, KEITH A Gonthier. Analysis of microstructure-dependent shock dissipation and hot-spot formation in granular metalized explosive [J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 120(2): 024901.
- [7] SIVIOUR C R, GIFFORD M J, WALLEY S M, et al. Granule size effects on the mechanical properties of a polymer bonded explosive [J]. *Journal of Materials Science*, 2004, 39(4): 1255-1258.
- [8] GUO Hu, LUO Jing-run, SHI Ping-an, et al. Research on the fracture behavior of PBX under static tension [J]. *Defence Technology*, 2014, 10(2): 154-160.
- [9] 王延珺,邹翔,潘兵,等.基于数字体图像相关法的TATB基PBX材料内部变形测量[J].含能材料,2022,30(12):1272-1281.  
WANG Yan-jun, ZOU Xiang, PAN bing, et al. 3D deformation measurement in TATB based pbx based on digital volume correlation with  $\mu$ -computed tomography [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2022, 30(12): 1272-1281.
- [10] SPITZER D, COMET M, BARAS C, et al. Energetic nano-materials: Opportunities for enhanced performances [J]. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 2009, 71(2):

- 100–108.
- [11] XU X, MARES J, GROVEN J L, et al. Nanoscale characterization of mock explosive materials using advanced atomic force microscopy methods[J]. *Journal of Energetic Materials*, 2015, 33(1): 51–65.
- [12] H CONGHUA, J XINLEI, W JINGYU, et al. Efficient preparation and performance characterization of the HMX/F2602 microspheres by one-step granulation process [J]. *Journal of Nanomaterials*, 2017, (2017): 1–7.
- [13] SALVO L, SUÉRY M, MARMOTTANT A, et al. 3D imaging in material science: Application of X-ray tomography[J]. *Comptes rendus - Physique*, 2010, 11(9): 641–649.
- [14] KARATZA Z, ANDÒ E, PAPANICOLOPULOS S, et al. Effect of particle morphology and contacts on particle breakage in a granular assembly studied using X-ray tomography [J]. *Granular Matter*, 2019, 21(3): 1–13.
- [15] FARBER L, TARDOS G, MICHAELS N J. Use of X-ray tomography to study the porosity and morphology of granules[J]. *Powder Technology*, 2003, 132(1): 57–63.
- [16] VLAHINIĆ I, ANDÒ E, VIGGIANI G, et al. Towards a more accurate characterization of granular media: extracting quantitative descriptors from tomographic images [J]. *Granular Matter*, 2014, 16(1): 9–21.
- [17] KAESHAMMER É, BORNE L, WILLOT F, et al. Morphological characterization and elastic response of a granular material[J]. *Computational Materials Science*, 2021, 190: 110247.
- [18] J Xianzhen, L Ruipeng, R Haichao, et al. Granule shape characterizations for energetic materials by computational geometry and stereology method [J]. *SN Applied Sciences*, 2022, 4(5): 147.
- [19] 张催, 张才鑫, 杨亚飞, 等. 造型颗粒统计特征参量CT量化表征方法[J]. *含能材料*, 2023, 31(12): 1262–1268.
- ZHANG Cui, ZHANG Cai-xin, YANG Ya-fei, et al. Quantitative CT characterization method for characteristic parameters of molding granules [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, 2023, 31(12): 1262–1268.

## Non-destructive Characterization of Physical Parameters in Random Packing Systems of Explosive Molding Granules

YUE Hong-li, ZHANG Cui, ZHANG Wei-bin

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

**Abstract:** The molding granule is an intermediate for polymer-bonded explosive (PBX) components. Characterization of the physical parameters of granular system is of great significance to understanding the influence of different granule structure on the performance of PBX components. X-ray computed micro-tomography (XCT) and CT image processing were used to non-destructively characterize physical parameters (including granule diameter, volume fraction, porosity, sphericity and intrinsic density) of the granular random packing systems. The average granule diameter of granular systems is up to 1.04 mm, the volume fraction is up to 68.7%, the lowest porosity is 1.04%, the highest average sphericity is 0.93, and the highest density is  $1.44 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ . Results show that the type of binder, composition and ratio of explosive crystals, and granulation process have a pronounced influence on the physical parameters of granular packing systems. Moreover, there is a correlation between physical parameters of granular systems. The more dispersed diameter distribution of granular system leads to the larger the average surface area of granules. The larger average granule diameter and lower average sphericity of granular system result in the higher porosity of the granules. The volume fraction of granular systems with larger average granule diameter is higher, and the volume fraction of the granule accumulation is independent of the sphericity when the average sphericity is large. This research provides fundamental insights into understanding the physical parameters and their associations with material properties in molding granular packing systems.

**Key words:** explosive molding granule; random packing system; volume fraction; porosity; X-ray tomography

**CLC number:** TJ55

**Document code:** A

**DOI:** 10.11943/CJEM2023157

**Grant support:** National Natural Science Foundation of China (No. 12105267)

(责编: 姜梅)