

文章编号: 1006-9941(2015)06-0553-05

基于 SEM 原位拉伸的 HTPB 推进剂/衬层粘接界面破坏过程分析

杨明¹, 李高春², 邱欣¹, 姜爱民²

(1. 海军航空工程学院 研究生管理大队, 山东 烟台 264001; 2. 海军航空工程学院 飞行器工程系, 山东 烟台 264001)

摘要: 采用扫描电镜(SEM)原位拉伸试验系统对端羟基聚丁二烯(HTPB)推进剂/衬层粘接界面试件拉伸破坏过程进行了观察, 实时采集了界面变形破坏过程的 SEM 图像, 结合粘接界面的宏观应力-应变曲线, 分析其在拉伸过程中细观变形破坏机理。结果表明: 推进剂/衬层粘接界面拉伸的过程可以分为斜率较大的线性段(应变为 0~5%)、斜率较小的线性段(应变为 5%~25%)、非线性段(应变为 25%~29%)和破坏段(应变为 29%~35%)四个阶段, 且验证试验所用试件的推进剂/衬层粘接界面分别在应变为 25% 和 30% 达到极限应力。研究发现试件内部颗粒的脱湿和基体间的脱粘是导致其力学性能变化及失效的主要原因, 同时, 可用推进剂相颗粒脱湿尺寸随应变的变化表现粘粘界面失效的变化规律: 脱湿尺寸随应变线性增大表示粘接界面还未破坏, 当脱湿尺寸增大速率减小或不增大时, 表示粘接界面已经破坏。

关键词: 端羟基聚丁二烯(HTPB)推进剂; 粘接界面; 微观; 脱湿; 破坏

中图分类号: TJ55; V512

文献标志码: A

DOI: 10.11943/j.issn.1006-9941.2015.06.009

1 引言

粘接界面具有不同于两侧固体介质的力学性质, 一般来说位错或微裂纹等微缺陷很容易在界面处形成^[1]。研究显示, 对于固体火箭发动机, 其粘接界面的失效是决定其寿命的关键因素之一^[2]。

当前, 国内外学者对于推进剂/衬层粘接界面的研究主要集中于宏观力学性能测试。随着对粘接界面问题研究的不断深入, 学者们的研究领域已从宏观深入到细观层次, 吴丰军^[3]探索了粘接界面细观力学性能、结构与破坏方式的内在关联, 初步提出了推进剂/衬层粘接界面失效模式。文献[4]引入数字图像处理方法对粘接界面细观破坏进行分析, 获得界面位移场。文献[5]利用扫描电镜, 发现三元乙丙橡胶绝热层与进剂基体间细小缺陷是导致界面力学性能下降的原因。文献[6]运用 X 射线光电子能谱-XPS(X-ray Photoelectron Spectroscopy)对推进剂/衬层粘接界面的化学组成和老化历程进行表征, 证明 N 活性基团的含量降低以及硝基分解是粘接界面失效的主要原因。姜爱民^[7]采用二维粘弹性有限元方法发现中间相模量大、厚度小会引起明显的应力集中。邱欣^[8]利用 CCD(Charge Coupled Device)

光学显微镜观察端羟基聚丁二烯(HTPB)推进剂拉伸断裂过程, 证明靠近衬层附近的高氯酸铵颗粒与衬层脱湿是影响该推进剂粘接性能的主要因素, 受试验手段的限制, 对于推进剂/衬层粘接界面拉伸过程的细观破坏过程没有详尽的描述, 特别是粘接界面拉伸的宏观力学性能与其细观变形破坏过程关系的相关报道较少。

本研究应用扫描电镜(SEM)原位拉伸试验系统, 对 HTPB 推进剂小试件的推进剂/衬层粘接界面试件进行拉伸试验, 通过拉伸应力-应变曲线与不同应变条件下试件拉伸过程的高倍放大图片, 分析其拉伸过程宏观力学变化下粘接界面的细观破坏形式, 以及颗粒脱湿尺寸的变化规律。

2 试验方案的设计

2.1 试件的制备

SEM 原位拉伸试验系统如图 1 所示。

试验试件采用 HTPB 推进剂/衬层粘接界面。由于扫描电镜观察试验不可能采用标准粘接界面试件, 因此需要设计小型非标准试件。考虑到扫描电镜的夹持方式, 小型试件的尺寸如图 2 所示, 厚度为 3.0 mm。本次试验主要目的是研究推进剂/衬层粘接界面的拉伸性能。由于绝热层硬度大于推进剂, 先切绝热层能使界面在切割过程中受到的拉力最小, 为了减少切割过程中对界面造成损伤, 要从绝热层部分开始切割。

收稿日期: 2014-04-22; 修回日期: 2014-07-12

作者简介: 杨明(1989-), 男, 主要从事固体火箭发动机寿命预估研究。
e-mail: 917781744@qq.com



图1 SEM原位拉伸试验系统

Fig.1 SEM in-situ tensile testing system

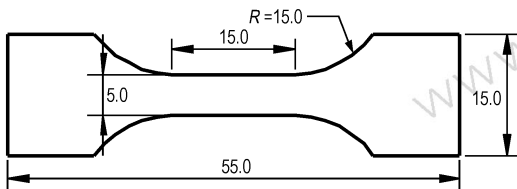


图2 试件尺寸图(单位: mm)

Fig. 2 Dimensional drawing of test-specimen(unit: mm)

制作上述粘接界面试件难度较大,为了能将粘接界面观察区移至试件中心,将小型试件两端采用有机玻璃加工,中间平行段10 mm为微形粘接界面试件。切取好微形推进剂/衬层粘接界面试件后,采用环氧树脂将两端与有机玻璃板粘接,制作好的微型粘接界面试件如图3所示。装好试件的拉伸夹具图片见图4。

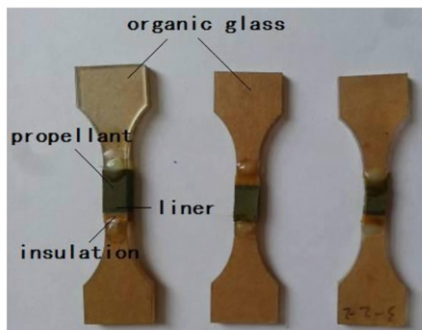


图3 微型粘接界面试件

Fig.3 Micro adhesive interface specimen

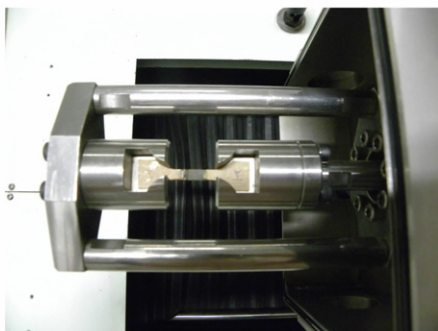


图4 装载好试件的拉伸夹具

Fig. 4 Tensile fixture with the specimen

2.2 试验过程

将加载试件推入电镜真空室并抽真空,加5 kV电压,并通过粗调和细调使电镜能清晰观察试件表面,分别对其进行拉伸试验。

由于试验仪器量程较大(>1000 MPa),而推进剂拉伸所加载的力较小(1 MPa左右),无法使用定应力的加载方式。故本次试验采用匀速加载方式。加载的速度为 $0.12 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$ 。

3 试验结果及分析

3.1 拉伸应力-应变曲线分析

处理试验得到的拉伸数据,得到拉伸应力-应变曲线,如图5所示。

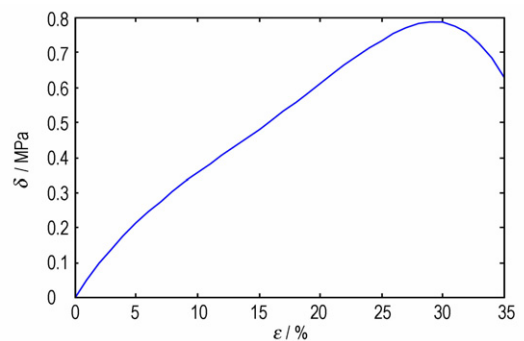


图5 试件拉伸应力-应变曲线

Fig.5 Stretching stress-strain curve of specimen

由图5可以看出,其拉伸应力-应变曲线大致分为四个阶段。在第一阶段(斜率较大的线性段),拉伸应变(以下简称应变)由0%变化到5%,应力值随变形的增大而迅速增大到0.2 MPa,这一阶段应力应变基本呈线性变化,斜率较大;在第二阶段(斜率较小),应变由5%变化到25%,应力由0.2 MPa增大到0.72 MPa,也基本呈线性变化,斜率较第一阶段小,变化较平缓;在第三阶段(非线性段),应变由25%变化到29%,应力由0.72 MPa缓慢上升到最大值0.79 MPa,此时曲线呈非线性,应力变化较为缓慢;在第四阶段(破坏段),应变由29%变化到35%,随着应变的增加,应力减小到0.6 MPa,应力-应变曲线表现出明显的软化特征。由于应力在应变达到29%左右时达到最大抗拉强度,故近似认为试件在此时失效。

3.2 粘接界面细观破坏过程分析

当粘接试件的应变分别达到0%、5%、10%、15%、20%、25%、29%和35%时,由扫描电镜50倍放大后的细观破坏图像如图6所示。

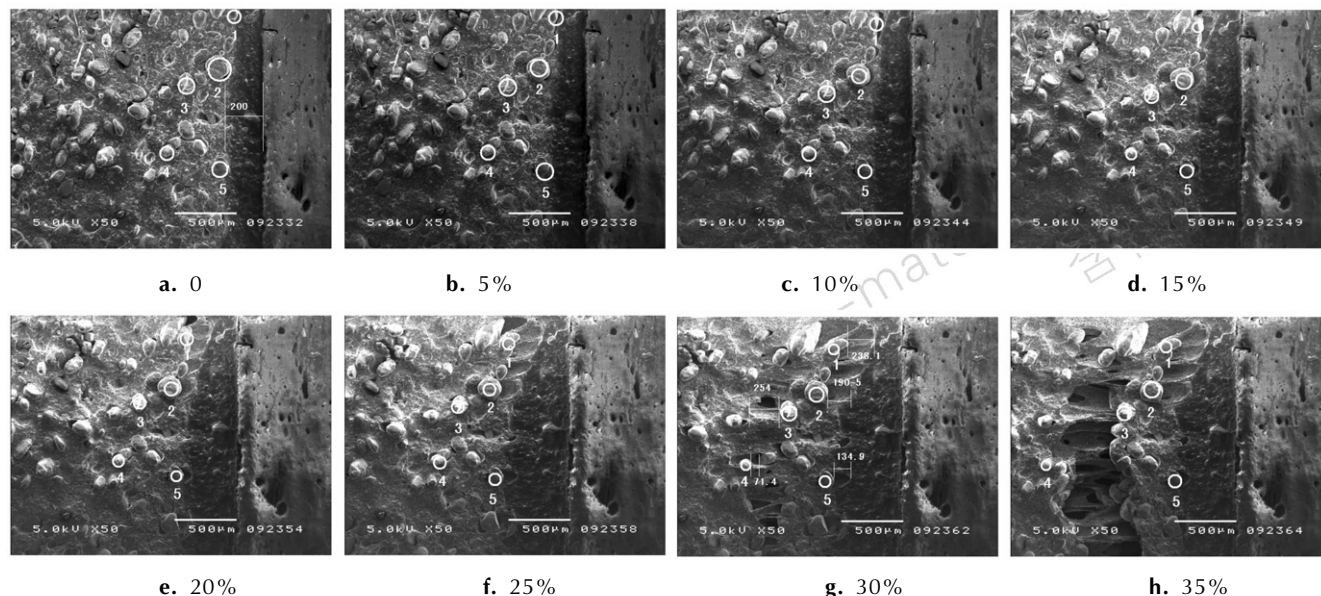


图 6 粘接试件不同应变下微观破坏图

Fig. 6 Micro damage images of adhesive specimen under different strain

3.2.1 定性分析

由图 6a 可知,粘接试件是由推进剂相、衬层和绝热层组成。其中中间位置颜色较深、仅有约 200 μm 厚度部分的为衬层。在左侧的推进剂相中,有许多大小不一、分布不均匀的填充颗粒。在未进行拉伸的时候,其填充颗粒周围就存在一定的脱湿现象(图 6a),这是在制作试件的过程中产生的,无法完全避免。

结合图 5 和图 6 可知:

(1)应变由 0 变化到 5%,试件宏观应力应变曲线处于斜率较大的线性段,此时试件内部完整性较好,试件整体力学性能表现为弹性(图 6b);

(2)应变由 10%变化到 25%,试件宏观应力应变曲线处于斜率较小的线性段,推进剂/衬层粘界面附近颗粒出现脱湿现象,并且变化明显,脱湿尺寸随应变的增加而逐渐增大;而推进剂相的颗粒附近仍未见新增的脱湿现象,衬层与推进剂相继续被拉长(图 6c ~ 图 6f),由此可见是颗粒的脱湿导致了试件的弹性模量变小,此时试件整体力学性能仍表现为弹性;

(3)在应变为 29%时,试件宏观应力应变曲线处于明显的非线性段,由于试件的进一步拉伸,推进剂基体被拉伸,基体内部产生应力集中,导致推进剂相颗粒出现明显脱湿,其附近区域产生微裂纹(图 6g),推进剂/衬层界面附近颗粒脱湿处承受的载荷不再增加,此时试件整体力学性能表现为复杂的物理性质;

(4)在应变为 35%时,试件宏观应力应变曲线处

于破坏段,推进剂相的颗粒与基体出现脱粘,随载荷进一步增加,推进剂内部微裂纹出现汇合,导致宏观裂纹的形成,进而发生破坏(图 6h)。粘接结构的破坏过程从推进剂/衬层粘界面处起始,并向推进剂相拓展,在拉伸过程中推进剂内部脱湿和粘接脱粘相互作用最终发生推进剂的内聚破坏,裂纹的扩展方向与拉伸方向近乎垂直。

粘接试件不同应变下的微观破坏图(图 6)能够较好地反映其宏观拉伸应力-应变曲线(图 5),并解释各个阶段曲线产生变化的原因:颗粒脱湿与基体脱粘是导致试件的力学性能改变及试件破坏的主要原因。

3.2.2 脱湿尺寸分析

测量图 6 中不同应变大小下 5 个颗粒的脱湿尺寸(测量方式如图 6g 所示),得到脱湿尺寸随应变变化的曲线,如图 7 所示。

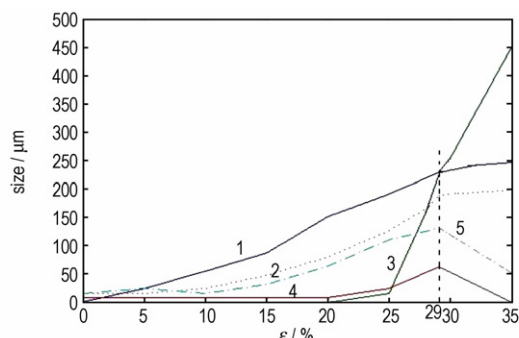


图 7 脱湿尺寸随应变变化的曲线

Fig. 7 Curves of dehumidification size changing with strain

由图 7 可知,在试件失效前,随着试件应变的增加,颗粒的脱湿尺寸也在逐渐变大,1、2、5 为界面附近的颗粒,它们脱湿尺寸的大小接近,近似和应变呈正比线性关系。当应变达到 29% 左右之后,由于试件的损伤破坏,其内聚力缩小,4、5 号颗粒的脱湿尺寸也相应迅速减小,1、2 号颗粒的脱湿尺寸增大的速率变小,而 3 号颗粒处于断裂位置,故其脱湿尺寸迅速上升。对比图 5 和图 7,不难发现曲线均在应变达到 29% 左右发生转折,两图的曲线走势近似相同:在应变达到 29% 之前,除去断裂位置的颗粒(3 号),其应力-应变曲线和脱湿尺寸近似呈正比关系;在应变达到 29% 之后,应力随应变减小,颗粒脱湿尺寸不再明显增大,

甚至减小,且变化均呈非线性。这说明脱湿尺寸的变化规律能够反映出应力-应变曲线的变化,也能够有效的表现出粘接界面变形破坏的细观过程。

3.3 同类型试验对比

为了验证试验对试件拉伸特性的分析,另取编号为 a、b 的两个试件进行匀速($0.12 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$)拉伸试验,得到如图 8 所示的 35 倍放大和 100 倍放大下的细观拉伸破坏图。

由图 8 可知,a、b 两个粘接试件的细观破坏过程几乎一致:颗粒与基体的脱湿以及推进剂相相互作用导致其破坏,其破坏过程均可以归纳为 3.2.1 节的四个阶段。

图 9 为 a、b 两个试件的拉伸应力-应变曲线:

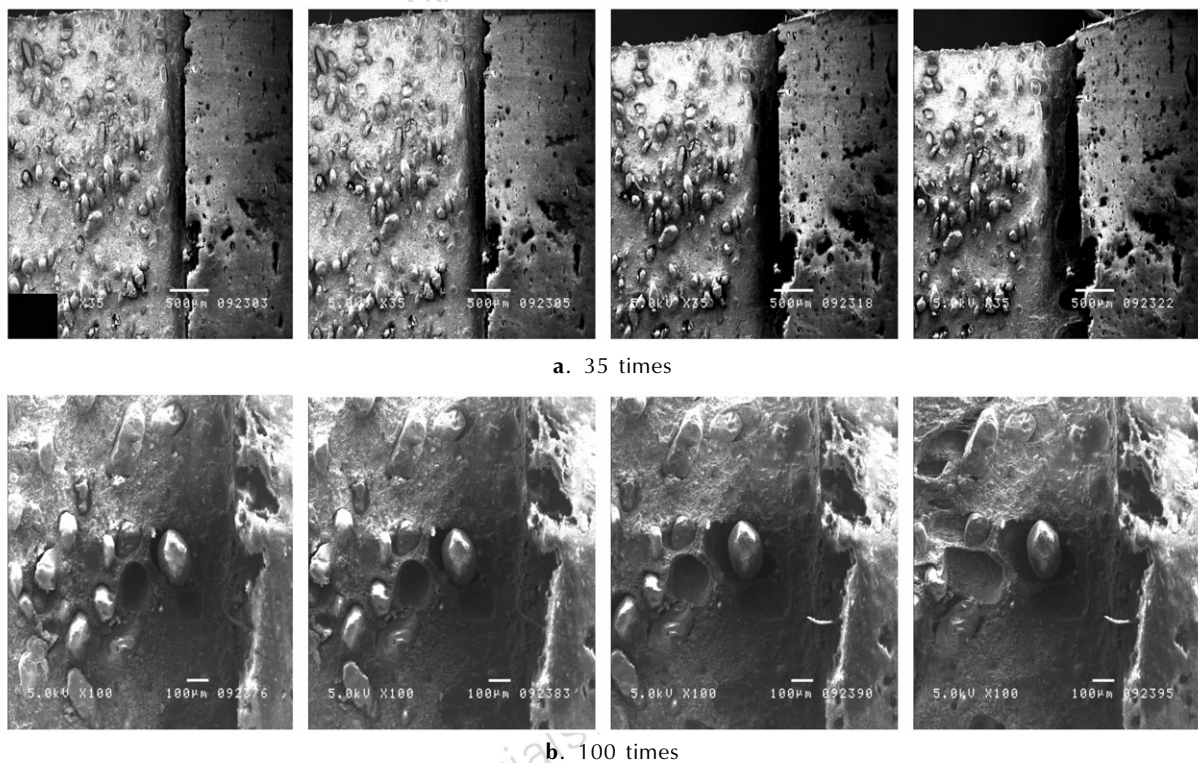


图 8 放大不同倍数的细观破坏图

Fig. 8 Micro damage images with different magnifications

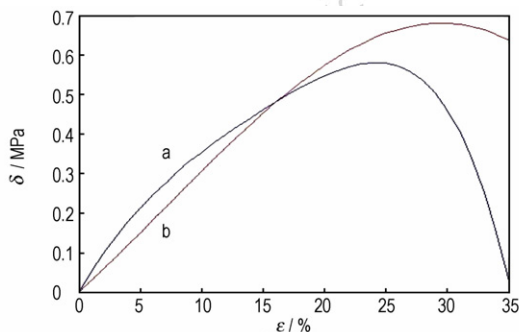


图 9 拉伸应力-应变曲线

Fig. 9 Stretching stress-strain curves

由图 9 可以看出,不同放大倍数下,a、b 两个试件的应力-应变曲线均显示出明显的非线性,且在应变达到 25% 和 30% (试件个体差异导致) 时,应力分别达到最大抗拉强度。

4 结 论

(1) 粘接界面在外界载荷作用下,应力先随应变的增加而增加,在应变达到 25% 之前,基本呈线性关系,达到极限应力时(应变为 29%) 试件失效,应力-应

变曲线整体表现为非线性;

(2) 应力-应变曲线的非线性与细观破坏密切相关, 粘接界面在拉伸过程中会发生推进剂内部脱湿和推进剂与衬层界面脱粘, 其相互作用导致推进剂/衬层粘接界面力学性能的变化并最终发生破坏;

(3) 推进剂相颗粒脱湿尺寸的变化规律能有效地表现粘接界面的细观破坏过程: 推进剂相颗粒脱湿尺寸随应变线性增大表示粘接界面还未破坏, 当脱湿尺寸增大速率减小或不增大时, 表示粘接界面已经破坏。

参考文献:

- [1] 安志武, 王小民, 毛捷, 等. 粘接界面的非线性弹簧模型及实验验证[J]. 声学学报, 2010, 35(5): 481-487.
AN Zhi-wu, WANG Xiao-min, MAO Jie, et al. Theoretical and experimental research on nonlinear spring models of a bonding interface[J]. *Acta Acustica*, 2010, 35(5): 481-487.
- [2] 邢耀国, 金广文, 许学春, 等. 某型固体火箭发动机综合性能试验与寿命评估[J]. 推进技术, 2004, 4(2): 176-179.
XING Yao-guo, JIN Guang-wen, XU Xue-chun, et al. Comprehensive property test and service life evaluation for solid rocket motors[J]. *Journal of Propulsion Technology*, 2004, 4(2): 176-179.
- [3] 吴丰军, 彭松, 池旭辉. NEPE 推进剂/衬层粘接界面细观力学性能/结构研究[J]. 固体火箭技术, 2010, 33(1): 81-85.
WU Feng-jun, PENG Song, CHI Xu-hui. Study on microcosmic mechanics performance/structure of NPPE propellant/liner bonded interface[J]. *Journal of Solid Rocket Technology*, 2010, 33(1): 81-85.
- [4] 李高春, 刘著卿, 唐波, 等. 基于数字图像相关方法的粘接界面细观破坏分析[J]. 宇航材料工艺, 2012(3): 82-85.
LI Gao-chun, LIU Zhu-qing, TANG Bo, et al. Investigation on adhesive bonding failure using digital image correlation method[J]. *Aerospace Materials & Technology*, 2012(3): 82-85.
- [5] Kai Frode Grythe, Finn Knut, Torbjorn Olsen Hansen. Adhesion in solid propellant rocket motors[J]. *The Journal of Adhesion*, 2007(83): 223-254.
- [6] 吴丰军, 彭松, 池旭辉, 等. NEPE 推进剂/衬层粘接界面 XPS 表征[J]. 固体火箭技术, 2009, 32(2): 192-196.
WU Feng-jun, PENG Song, CHI Xu-hui, et al. XPS characterization of NEPE propellant/liner bonding[J]. *Journal of Solid Rocket Technology*, 2009, 32(2): 192-196.
- [7] 姜爱民, 李高春, 田爱平. 中间相对推进剂/衬层粘接系统力学性能的影响[J]. 弹箭与制导学报, 2012, 32(4): 149-151.
JIANG Ai-min, LI Gao-chun, TIAN Ai-ping. The influence of interphase on mechanical properties of propellant-liner[J]. *Journal of Projectiles, Rocket, Missiles and Guidance*, 2012, 32(4): 149-151.
- [8] 邱欣, 李高春, 邢耀国. HTPB 推进剂与衬层界面破坏过程试验研究[J]. 兵工学报, 2013, 1(1): 66-71.
QIU Xin, LI Gao-chun, XING Yao-guo. Experimental study on failure behavior of HTPB propellant and liner interface[J]. *Acta Armamentarii*, 2013, 1(1): 66-71.

HTPB Propellant/Liner Adhesive Interface Failure Behavior Based on SEM In Situ Tension

YANG Ming¹, LI Gao-chun², QIU Xin¹, JIANG Ai-min²

(1. Graduate Management Department, Naval Aeronautical and Astronautic University, Yantai 264001, China; 2. Aircraft Engineering Department, Naval Aeronautical and Astronautic University, Yantai 264001, China)

Abstract: The damage process of hydroxyl-terminated polybutadiene (HTPB) propellant/liner adhesive interface was observed by scanning electron microscope (SEM) in situ tension system. The real-time SEM images of deformation and failure for interface were collected. The micro mechanism of deformation and failure of adhesive interface was analyzed combining with the macroscopic stress (σ)-strain (ε) curve. Results show that the tensile failure process of adhesive interface can be separated into four stages: linear interval with larger slope ($0 < \varepsilon < 5\%$), linear interval with smaller slope ($5\% < \varepsilon < 25\%$), nonlinearity interval ($25\% < \varepsilon < 29\%$) and failure interval ($29\% < \varepsilon < 35\%$). The two specimens used in verification test reach their ultimate stress when strain arrives at 25% and 30%, respectively. It is also found that dehumidification of internal grain and interfacial debonding have much to do with the change of mechanical property and interface failure. And the interface failure can be reflected by the laws between dehumidification size and strain: when dehumidification size increases linearly with strain, the specimen does not failure. If the increasing rate decreases or the size does not increase, the specimen are damaged.

Key words: hydroxyl-terminated polybutadiene (HTPB) propellant; adhesive interface; microscopic; dehumidification; failure damage

CLC number: TJ55; V512

Document code: A

DOI: 10.11943/j.issn.1006-9941.2015.06.009