

文章编号: 1006-9941(XXXX)XX-0001-12

# 不同温度条件下三组元 HTPB 推进剂细观脱湿行为实验及数值模拟

邹子杰<sup>1</sup>, 强洪夫<sup>1</sup>, 王哲君<sup>2</sup>, 王学仁<sup>1</sup>, 李世奇<sup>1</sup>, 李易依<sup>3</sup>

(1. 火箭军工程大学智剑实验室, 陕西 西安 710025; 2. 火箭军工程大学导弹工程学院, 陕西 西安 710025; 3. 中国人民解放军 96863 部队, 河南 洛阳 471003)

**摘要:** 研究开展了宽温单轴拉伸条件下 HTPB 推进剂的微 CT 细观结构表征实验, 分析了在 -20 °C、20 °C、50 °C 三种温度环境中推进剂的细观脱湿损伤行为, 并基于 HTPB 推进剂的细观组分体积占比构建了三维细观代表体积分元模型, 分析了模型在不同温度和不同应变率条件下的应力-应变关系和脱湿率-应变关系。结果发现, HTPB 推进剂在低温环境下 (-20 °C) 脱湿更为严重, 推进剂断裂时界面脱湿率达到了近 30%, 导致推进剂的应力软化现象更为明显。通过数值模拟发现推进剂在低温及高应变率条件下脱湿更为严重, 对推进剂力学性能带来了极大的劣化。经实验和仿真结果对比, 本文所构造的数值模型能够有效预测推进剂的脱湿损伤行为及宏观力学性能。

**关键词:** HTPB 推进剂; 细观结构; 力学性能; 脱湿损伤

中图分类号: TJ55; V512

文献标志码: A

DOI: 10.11943/CJEM2024208

## 0 引言

HTPB 推进剂在载荷作用下既有可能引发细观脱湿, 脱湿程度将直接影响推进的宏观力学性能, 因此对脱湿损伤的评估将直接作用于推进剂材料的性能评价工作。HTPB 推进剂作为一种高填充比的颗粒增强型复合材料, 其细观结构非常复杂, 较难从理论层面解析推进剂的细观力学行为。运用微 CT 技术 (Micro-Computed Tomography, MCT) 和有限元数值模拟表征材料的细观力学行为是目前针对复合固体推进剂材料较为流行的研究方法, 其最大优势在于揭示了推进剂细观脱湿损伤的物理机理, 拓展了推进剂力学行为的研究尺度和研究方法。

微 CT 是一种利用具有微纳级焦点的 X 射线进行

成像, 具备非常高的损伤检测灵敏度及图像分辨率的计算机断层扫描技术。X 射线具备良好的透射性能, 因此微 CT 可获得材料内部的细观结构特征, 也可以通过断层图像重建材料三维结构进而分析不同组分的空间分布情况, 洞悉材料内部的脱湿损伤。近几年来有关复合固体推进剂的细观表征实验及细观数值模拟研究被大量报道, 刘新国等<sup>[1-3]</sup>运用微 CT 获取动态拉伸过程推进剂内部平均灰度值与平均孔隙率随拉伸应变的变化规律, 分析认为孔隙率可定量表征脱湿演化过程, 随后还研究了推进剂老化对细观损伤的影响规律。李世奇分别研究了 NEPE 推进剂<sup>[4]</sup>和 HTPB 推进剂<sup>[5]</sup>的细观损伤演化过程, 并用孔隙率定量表征了细观损伤程度。Liu 等<sup>[6]</sup>基于同步辐射 X 射线针对固体推进剂开展了成像实验研究, 通过三维数字图像处理与分析的方法从细观尺度实现了对试样内部颗粒的三维表征。VIJAY<sup>[7]</sup>利用 CT 技术对固体推进剂内部各相的体积分数进行统计, 得到了基于真实结构的固体推进剂配方统计信息。数值模拟方面的主要研究热点是颗粒填充模型的构建和界面本构关系的描述问题<sup>[8-11]</sup>。封涛等<sup>[12-13]</sup>基于分子动力学算法生成了推进剂的细观颗粒填充模型, 并引入一种改进型内聚力模型来表征颗粒/基体界面的力学响应。赵玖玲等<sup>[14]</sup>基于随机填

收稿日期: 2024-08-14; 修回日期: 2024-09-05

网络出版日期: 2024-11-12

基金项目: 国家自然科学基金 (11772352, 22205259); 陕西省自然科学基金 (20190504, 2020JQ-486)

作者简介: 邹子杰 (1996-), 男, 博士研究生, 主要从事固体火箭发动机结构完整性分析研究。e-mail: 799449341@qq.com

通信联系人: 王哲君 (1988-), 男, 副教授, 主要从事固体火箭发动机结构完整性分析研究。e-mail: qiulongzaitian@126.com

引用本文: 邹子杰, 强洪夫, 王哲君, 等. 不同温度条件下三组元 HTPB 推进剂细观脱湿行为实验及数值模拟[J]. 含能材料, DOI:10.11943/CJEM2024208.

ZOU Zi-jie, QIANG Hong-fu, WANG Zhe-jun, et al. Experimental Study and Numerical Simulation of Mesoscale Dewetting Behavior of HTPB Tripropellant under Different Temperature Conditions[J]. *Chinese Journal of Energetic Materials (Hanneng Cailiao)*, DOI:10.11943/CJEM2024208.

充算法构建了一种球型颗粒填充二维细观模型,并模拟了在单轴拉伸过程中界面脱湿的演化过程。赵蒙等<sup>[15]</sup>构建了一种考虑颗粒/基体间实际界面相的三维全级配 HTPB 固体推进剂细观模型并用于研究 HTPB 推进剂在高频空化冲击作用下的细观损伤机制。崔辉如等<sup>[16-17]</sup>和 JIN 等<sup>[18]</sup>构建了一种基于真实细观形貌的固体推进剂二维细观模型,并用于研究一种推进剂力学性能虚单元预示方法。

推进剂作为一种具有明显温度和应变率相关性的材料,在不同温度和加载速率条件下其细观损伤行为会有很大的差异。探索推进剂在复杂工况条件下的损伤行为是实现推进剂结构完整性分析的必由之路,将直接助力推进剂效能提升、寿命预测、贮存方案优化等工作,具有较大的工程应用价值。虽然目前针对推进剂材料的细观损伤演化实验研究已有过文献报道,但环境温度对损伤演化过程的影响规律及其作用机理还未得到过系统深入的分析。数值模拟方面目前相当一部分仿真都是基于二维情况开展的,且对细观界面的描述也以最简单的双线型内聚模型为主,不足以真正体现推进剂的细观力学行为。因此,构造出更为逼真的推进剂三维细观有限元模型,并采用更准确的内聚本构模型描述界面的力学行为是实现推进剂宏细观跨尺度研究的必由之路。

为此,本研究设计了一种小型 HTPB 单轴拉伸试件,开展宽温条件下 HTPB 推进剂的微 CT 细观原位表征试验。构建了 HTPB 推进剂颗粒填充细观三维代表体积单元模型,在宽温和宽应变率条件下计算了推进剂的细观力学行为,实现了对推进剂细观损伤及宏观力学性能的评估和预测。研究工作可为复合固体推进剂的细观损伤表征评估工作提供一定的参考借鉴。

## 1 宽温条件下 HTPB 推进剂细观脱湿损伤表征

### 1.1 仪器与实验装置

实验基于苏州微旷科技公司生产的 XPloreVista 2000 4D 型微 CT 设备开展。该仪器由 X 射线源、平板探测器、精密运动机构、样品台、热力耦合原位加载系统、数据采集和处理系统组成,管电压在 40~160 kV 之间,最大载荷为 20 kN,加载速率在 0.4~40/s 之间,温控范围可达 -100~1800 °C,其图像分辨率最高可达 0.5  $\mu\text{m}$ ,具有良好的细节检测能力,能够对物体内部细微结构进行观测和分析。设备如图 1 所示。



图 1 微 CT 设备

Fig.1 Micro-computed tomography equipment

### 1.2 实验件的设计

实验材料选用三组元 HTPB 推进剂,其基本组分包括固体填料(AP 颗粒、Al 颗粒),粘合剂基体以及小组分助剂(固化剂、键合剂、增塑剂等等)。试验件形状依据微 CT 设备加载台的尺寸要求进行设计,以满足原位观测需求,试件尺寸如图 2 所示。利用自制的刀具,对推进剂方坯进行切割,获得小型推进剂哑铃型试件如图 3 所示。

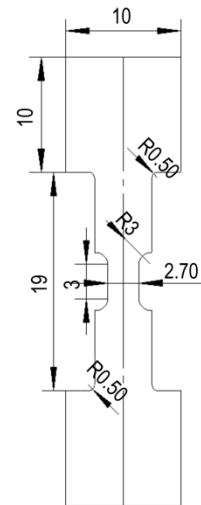
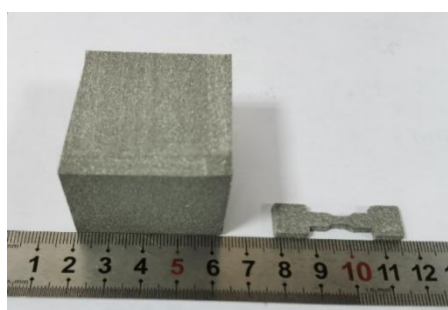


图 2 小型推进剂试件

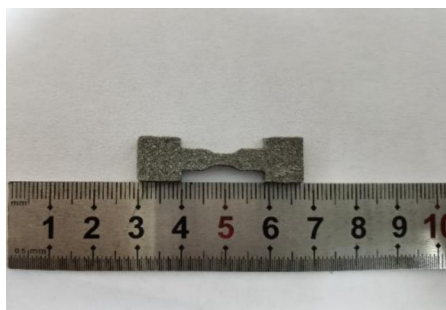
Fig.2 Small propellant specimen

### 1.3 宽温条件下 HTPB 推进剂 CT 试验

将小型 HTPB 单轴拉伸试件置于微 CT 的原位加载台上,调整环境腔温度至目标值并保温 30 min 后即可开始扫描。拉伸载荷采用位移加载模式,保持试件上夹头的位置固定不变,下夹头按设置的拉伸速率向下移动实现加载。当加载至指定位移后保持不动并进行扫描,扫描完成后继续加载至下一指定位移再次扫描,直到试件断裂或拉伸达到最终设定的位移。预设



a. HTPB billet



b. HTPB uniaxial specimen

图3 小型推进剂试件制作流程

Fig. 3 Manufacturing process of the small propellant specimen

推进剂拉伸至 0、10%、20%、30%、40%、50% 共 6 个应变后进行扫描分析,实验环境温度  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,图像分辨率  $3.5\text{ }\mu\text{m}$ ,拉伸加载速度  $9\text{ }\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  (应变率  $4.76\times 10^{-4}\text{ s}^{-1}$ )。为获得 HTPB 推进剂二维切面的细观结构特征,选取过试件几何中心且平行于拉伸方向的  $xoz$  平面为参考切面。

#### 1.4 实验结果与讨论

##### 1.4.1 HTPB 推进剂初始细观结构分析

利用图像重构算法将 HTPB 推进剂的原始 CT 检测图像重构后得到推进剂的二维切片图像,结果如图 4 所示。由图 6 可以看出,推进剂各细观组分的形貌清晰可辨:Al 颗粒密度最大,呈现亮白色,AP 颗粒密度居中,呈现灰白色,基体密度次之,呈现深灰色,孔隙内部填充着气体,密度非常小,呈现深黑色。分析认为这是由于不同密度的物质对 X 射线的吸收能力不同,密度大的物质吸收能力强,在原始图像中较暗,而在重构图像中较亮。此外,还可以看出,各组分的分布特点为:AP 颗粒和 Al 颗粒作为填充体占据了推进剂的绝大多数空间,较大的 AP 颗粒随机分布于推进剂当中且基本没有相互接触的情况,而较小的 AP 颗粒和 Al 颗粒则填充在大 AP 颗粒周围较好地弥补了填充间隙。其中,孔隙所处的位置共有 3 种类型,一种是 AP

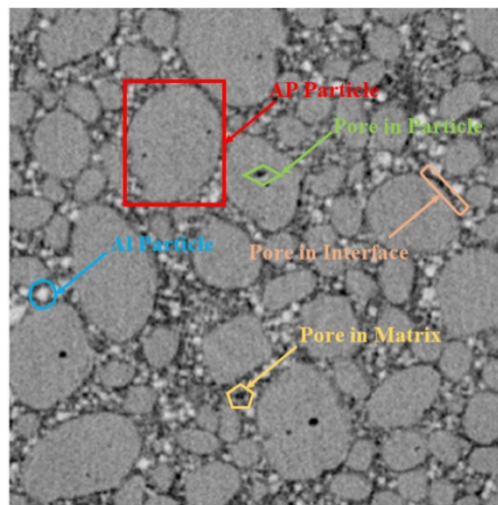


图4 HTPB 推进剂细观二维截面

Fig. 4 Two-dimensional mesoscopic cross-section of HTPB propellant

颗粒内部的孔隙源于 AP 颗粒材料本身的缺陷,另一种是基体内部的孔隙源于推进剂制备过程混入的气体,还有一种是颗粒/基体界面的孔隙源于推进剂制备过程颗粒与基体的不良浸润或固化应力而造成的初始脱湿。可见,CT 重构图像可较好地描述推进剂各组分的空间分布情况。

为进一步获得 HTPB 推进剂各细观结构的三维特征,依据不同组分在重构图像中的灰度值,采用灰度直方图对重构图像进行阈值分割,依次分割出 AP 颗粒、Al 颗粒和孔隙的细观结构。使用等效粒径  $EqD$  量化细观参量的尺寸大小,用与该细观结构体积相同的球体的直径表示,如式(1)所示<sup>[5]</sup>:

$$EqD = \sqrt[3]{\frac{6 \times V}{\pi}} \quad (1)$$

式中, $V$  为细观结构的体积,  $\mu\text{m}^3$ 。

据此,得到不同组分的分布特点、等效粒径以及在材料中的体积占比,如图 5 所示。

由图 5a 可以看出 AP 颗粒在材料内部分布相对均匀,体积占比最大,达到 51.98%,其颗粒粒径分布具有明显的三级配特征,大致可分为  $25\sim 250\text{ }\mu\text{m}$ ,分为  $25\sim 100\text{ }\mu\text{m}$ 、 $100\sim 200\text{ }\mu\text{m}$ 、 $200\sim 250\text{ }\mu\text{m}$  三个区间;极个别 AP 颗粒的粒径大于  $250\text{ }\mu\text{m}$ ,且几何形状极不规则,分析认为这是生产 AP 颗粒时偶然生成的多颗粒结合体,不具备代表性。由图 5b 可以看出 Al 颗粒的数量最多,占比约为 88.86%,体积比约为 5.08%,密集分布于 AP 颗粒的填充间隙;其单颗粒粒径绝大多数分布为  $10\sim 40\text{ }\mu\text{m}$ ,比 AP 颗粒的平均粒径小了近一个数



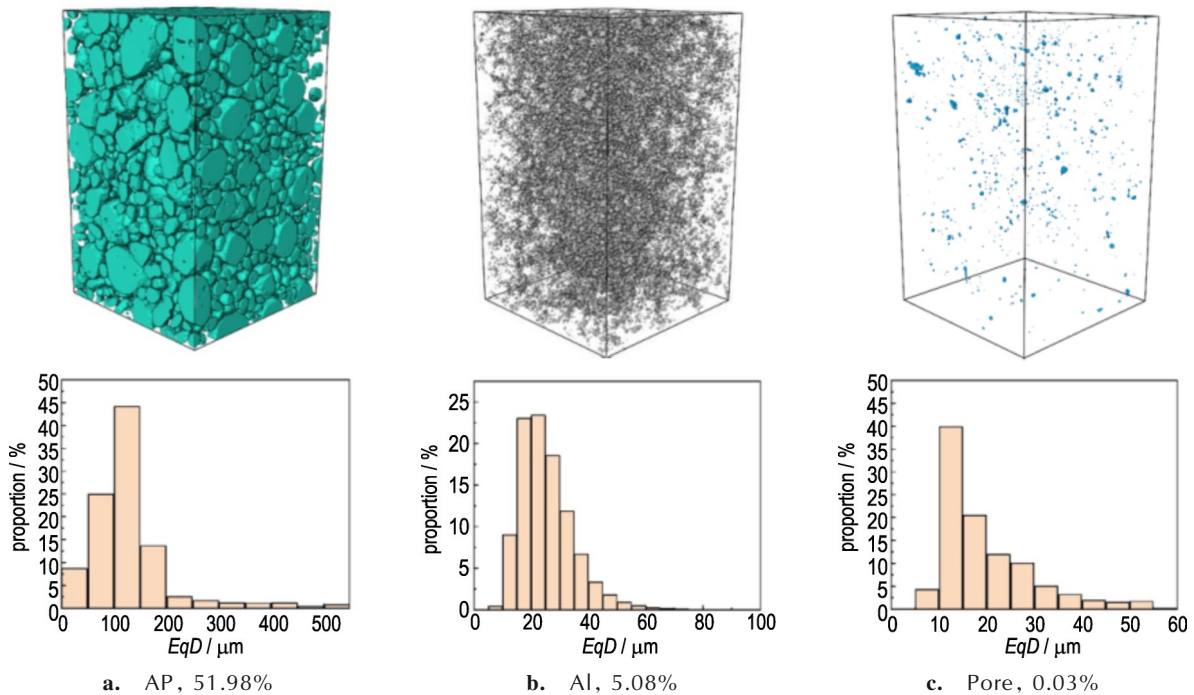


图5 HTPB推进剂各组分三维细观结构及尺寸分布

Fig.5 Three-dimensional mesostructures and size distributions of components of HTPB propellant

量级。由图5c可以看出,孔隙的分布区域更加随机,超过65%的孔隙的等效粒径小于20  $\mu\text{m}$ ,但也有极个别粒径较大的孔隙,达到50  $\mu\text{m}$ ;总的数量比占到了2.76%,体积比约为0.03%。可见在三组元HTPB推进剂的细观组分中,AP颗粒的粒径和体积占比都是最大的,而Al颗粒和孔隙的粒径及体积比远不及AP颗粒。

#### 1.4.2 推进剂脱湿损伤演化分析

目前已有常温20  $^{\circ}\text{C}$ 条件下HTPB推进剂原位CT表征的试验报道<sup>[5]</sup>,为此研究着重在-20  $^{\circ}\text{C}$ 和50  $^{\circ}\text{C}$ 条件下进行研究和分析,其中,推进剂在-20  $^{\circ}\text{C}$ 条件下拉伸时的细观结构变化如图6所示。

由图6可以看出,当拉伸应变达到10%时,绝大多数界面保持完好,并稳定承担应力传递的作用,仅有极个别界面发生了脱湿;这些脱湿大多数是界面的初始损伤引起的,在拉伸载荷的作用下使得这些初始脱湿所产生的孔隙逐渐膨胀,因而更容易被观测到;可见,该阶段大多是界面和基体内部初始孔隙的发展过程。当拉伸应变达到20%时,部分原本完好的大AP颗粒界面在拉伸载荷作用下开始破坏,该阶段原有的孔隙继续膨胀发展并伴随因界面脱湿而造成新孔隙的形核,新孔隙的形核部位在大AP颗粒的表面,据此判断大颗粒的界面越容易被破坏。当拉伸应变达到50%时,可以看到界面的破坏程度已十分严重,一些

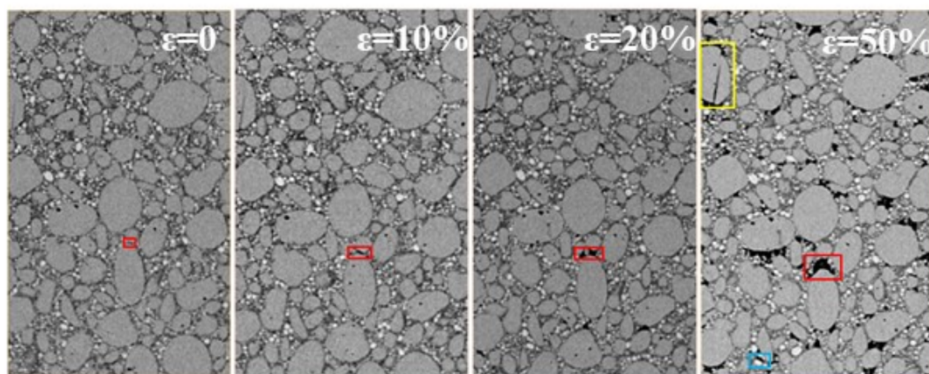


图6 -20  $^{\circ}\text{C}$ 不同拉伸应变下HTPB推进剂二维细观结构

Fig.6 Two-dimensional mesostructural changes of HTPB propellant at -20  $^{\circ}\text{C}$  under different tensile strain

中间粒径和小粒径的 AP 颗粒界面也发生了脱湿,孔隙不断在推进剂内部形核和发展,有的甚至汇聚在了一起,并连通成为一个大孔隙,颗粒间的基体也被拉成了丝状。此外,在图 6 中还可以看到一个大 AP 颗粒的穿晶断裂现象(黄框),分析认为这是由于 AP 颗粒自身内部存在初始缺陷,在  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$  的低温环境中颗粒内部的缺陷更易扩展,进而导致 AP 颗粒的断裂。与此同时,也可以观察到极个别 Al 颗粒的脱湿现象(蓝框)但并不显著,分析认为这因为 Al 颗粒的粒径比 AP 颗粒小,且 Al 颗粒与 HTPB 基体形成的界面力学性能更好的缘故。可见,推进剂在拉伸过程中其细观结构最大的变化特征就是界面脱湿的面积、孔隙的数量以及体积的占比。

为进一步分析不同的环境温度对推进剂细观脱湿损伤的影响,研究对比了推进剂在  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $50\text{ }^{\circ}\text{C}$  三种温度条件下进行原位 CT 表征实验时,其二维基准面的重构图像,结果如图 7 所示;以及三维孔隙的重构图像,结果如图 8 所示。

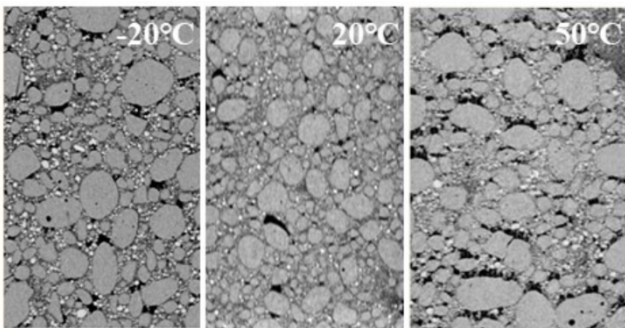


图 7 不同温度条件下拉伸应变 30% 时 HTPB 推进剂二维细观结构

Fig. 7 Two dimensional mesostructure of HTPB propellant under different temperature conditions with tensile strain of 30%

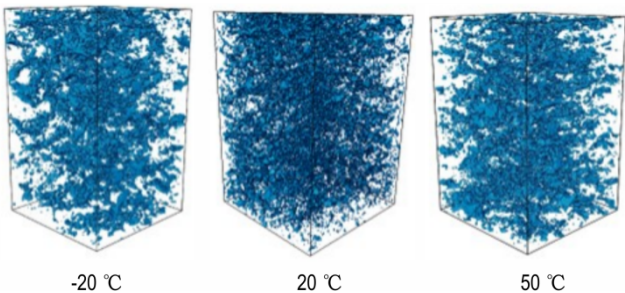


图 8 不同温度条件下拉伸应变 30% 时 HTPB 推进剂细观孔隙结构

Fig. 8 Mesoscopic pore structures of HTPB propellant under different temperature conditions with tensile strain of 30%

常温  $20\text{ }^{\circ}\text{C}$  和高温  $50\text{ }^{\circ}\text{C}$  环境下推进剂的细观结构变化规律与低温  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$  类似,但随着温度升高会使得基体材料变得更软从而促进了孔隙的生长,因此温度越高孔隙的增长也就更为明显。虽然当拉伸应变达到 10% 时也能够以上两种温度工况下观察到些许的脱湿迹象,但从后续的拉伸过程中可以明显观察到当温度升高后界面的脱湿量是有所减少的。这是由于基体和界面的变形能力会随着温度的升高而得到提升,致使其能够承受更大的拉伸位移,因此可以推断高温对孔隙的形核起到了抑制作用却促进了孔隙的发展。

为进一步分析推进剂在拉伸过程中的损伤演化情况,研究采用孔隙数比  $D_N$ ,界面脱湿率  $D_S$ ,孔隙率  $D_V$  三种指标定量表征推进剂的细观损伤程度。由上述分析可知推进剂在拉伸过程中伴随着内部孔隙的形核与发展两个过程。其中,孔隙的形核过程主要是界面产生新的脱湿点引起,用孔隙数比  $D_N$  来表征;孔隙的横向发展主要是脱湿沿颗粒表面逐渐进展引起,用脱湿率  $D_S$  来表征;孔隙的纵向发展主要是脱湿形成腔体的膨胀引起,用孔隙率  $D_V$  来表征;其计算式为式(2)~式(4):

$$D_N = \frac{N_p}{N_T} \quad (2)$$

$$D_S = \frac{S_D}{S_T} \quad (3)$$

$$D_V = \frac{V_D}{V_T} \quad (4)$$

式中,  $D_N$  为孔隙数比,  $N_T$  为推进剂除基体外所有细观组分的数量,个;  $N_p$  为不同应变下推进剂的孔隙数量,个;  $D_N$  越大代表孔隙的数量占比越多即脱湿点的数量越多。  $D_S$  为不同应变下的界面脱湿率;  $S_T$  为界面总面积,  $\mu\text{m}^2$ ;  $S_D$  为不同应变下的界面脱湿面积,  $\mu\text{m}^2$ ;  $D_S$  越接近 1 表示界面脱湿越严重。  $D_V$  代表不同应变下的推进剂的孔隙体积占比即孔隙率;  $V_T$  为推进剂的总体积,  $\mu\text{m}^3$ ;  $V_D$  为不同应变下的孔隙体积,  $\mu\text{m}^3$ ,  $V_D$  越大表示推进剂内部整体损伤越严重。

研究利用阈值分割技术逐个统计拉伸过程中各损伤指标的变化情况,由式(2)~式(4)计算后获得推进的损伤演化曲线。获得不同温度下 HTPB 推进剂在拉伸过程中的孔隙数比、脱湿率以及孔隙率变化情况如图 9 所示。

由图 9 可以看出,随着应变的增大,界面脱湿率  $D_S$  和孔隙率  $D_V$  不断增大,而孔隙数比  $D_N$  的变化在不同温度条件下各不相同。其中,拉伸初期(应变小于



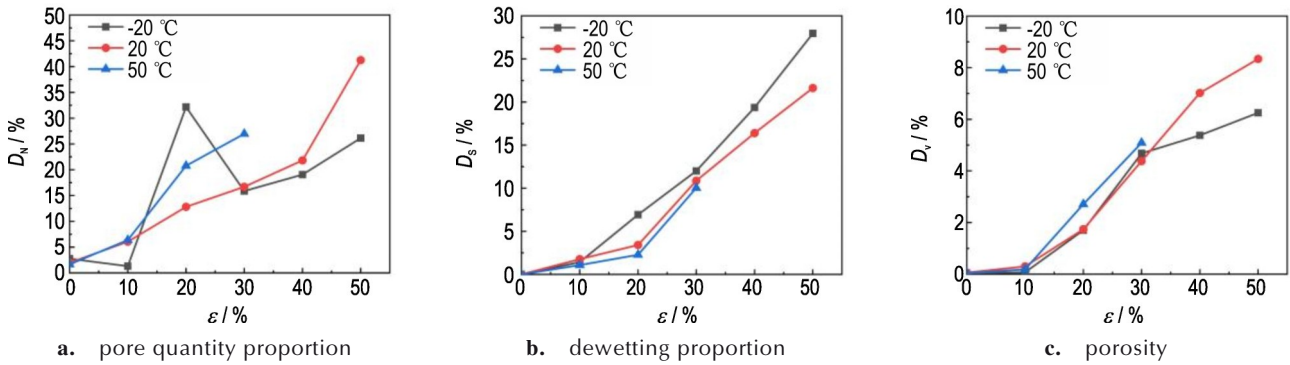


图9 不同温度条件下HTPB推进剂微观损伤统计

Fig.9 Mesoscopic damage statistics of HTPB propellant under different temperature conditions

10%)  $D_s$  增长有限而在中后期增长速度逐步加快; 不同温度条件下,  $D_s$  近似呈指数型增长, 说明界面的脱湿主要在拉伸的中后期展开; 随着温度的降低,  $D_s$  在拉伸的各个阶段均有所增大, 说明在低温环境下推进剂更易引发脱湿, 且脱湿程度更为严重。  $D_v$  在拉伸过程中近似呈“S”型增长, 即拉伸前后两段时期孔隙发展较慢而中期扩展速度最快; 随着温度的升高,  $D_v$  在拉伸后期(应变大于30%)的增长更为显著, 说明高温促进了孔隙的发展。值得注意的是, 50 °C条件下, 推进剂试件拉伸到40%应变时就发生了断裂, 因而未能获取到拉伸后期的实验数据, 分析认为这是由于在高温条件下推进剂内部微观微裂纹扩展速度更快的缘故。  $D_n$  在20 °C和50 °C条件下保持指数型增长趋势且没有特别明显的温度相关性规律, 而在-20 °C条件下有两次增减阶段;  $D_n$  减小说明孔隙的形核过程要小于孔隙的汇聚过程, 说明低温下推进剂孔隙更容易汇聚。

## 2 HTPB推进剂微观三维动态数值模拟

### 2.1 三维细观颗粒填充模型构建

受实验设备的限制, 推进剂在复杂加载条件下的力学试验及表征实验难以开展, 而数值模拟方法是解决该问题的有效技术途径。为此基于微CT实验的表征结果构建了HTPB推进剂的细观代表体积单元(Representative Volume Element, RVE)模型, 在各种工况条件下对HTPB推进剂的宏观力学性能及细观脱湿损伤进行评估和预测。

由于Al颗粒的等效粒径  $E_qD$  远小于AP颗粒且体积比也不大, 细观表征试验中也基本未发现Al颗粒的脱湿现象, 因此, 建模时不再单独考虑Al颗粒的填充, 初始孔隙的粒径和体积分数也足够小可以忽略不计,

参照文献[19]的方法, 通过分子动力学方法对HTPB推进剂的三维细观结构进行构建。

RVE模型的几何边界条件必须是周期性的, 为此以模型几何中心为原点构建笛卡尔坐标系, 则颗粒的坐标  $\eta_i(x_i, y_i, z_i)$  表示为:

$$\begin{cases} \eta_i = \eta_i + 2\eta_i < -1 \\ \eta_i = \eta_i - 2\eta_i > 1 \end{cases} \quad (5)$$

RVE的边长至少是最大颗粒粒径的4~5倍, 由CT试验结果可知, HTPB推进剂中AP颗粒以三级配的形式存在, 平均等效粒径  $E_qD$  主要分布在25~100 μm、100~200 μm、200~250 μm三个区间, 体积比约为50%。据此, 设RVE模型为边长1mm正方体, 颗粒粒径的生长范围为25~250 μm, 目标填充体积分数为50%。获得既定填充比的RVE模型如图10所示。

由图10a~c可以看到, RVE模型的填充颗粒具有明显的三级配特征, 大颗粒的体积占比最大但数量占比最小, 小颗粒则主要分布于大颗粒周围, 较好地占据了大颗粒之间的间隙, 起到提高填充比的效果。模型整体的填充构建效果与图5相当, 可较精确地描述了推进剂的细观结构组成。为兼顾算力与网格的质量和数量, 同时考虑RVE模型的几何结构的不均匀性, 采用四面体单元对RVE模型进行网格划分。其中, 实体网格采用三维四节点C3D4单元, 界面内聚域网格采用三维四节点COH3D6单元, 网格大小设置为2 μm。获得实体网格、内聚单元网格的划分情况如图10d~f所示。

### 2.2 模型参数设置

RVE模型的材料参数方面: HTPB基体为粘弹性体, 泊松比  $\nu_m = 0.495$  并采用表1中的4阶Prony级数描述其松弛模量<sup>[20]</sup>; AP颗粒为弹性体, 弹性模量  $E_p = 32250$  MPa、泊松比  $\nu_p = 0.143$ ; AP/HTPB界面的本构关系采用一种粘弹性内聚本构进行描述, 其本构关系

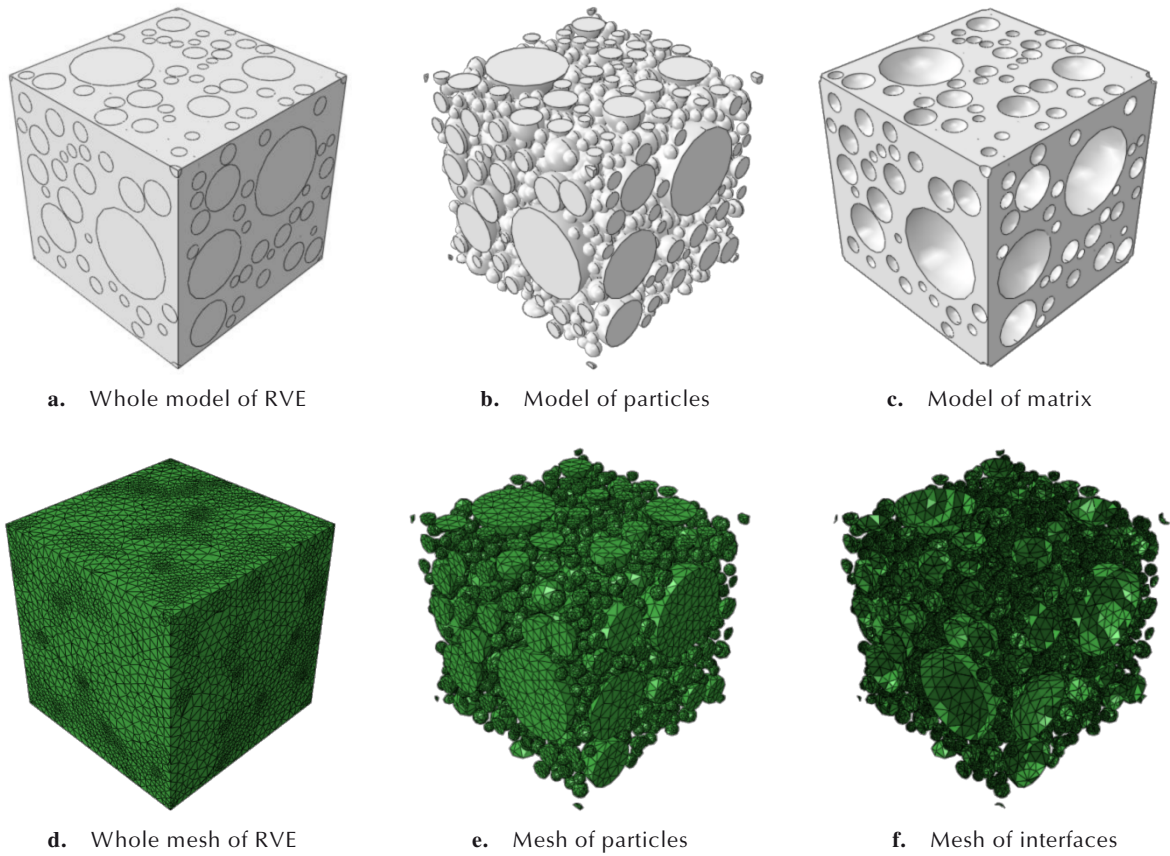


图 10 HTPB 推进剂微观 RVE 模型

Fig.10 Mesoscopic RVE Model of HTPB Propellant

表 1 基体 Prony 级数参数<sup>[20]</sup>

Table 1 Prony series for matrix<sup>[20]</sup>

n	$\tau_n / s$	$E_n / MPa$
0	—	1.12
1	1	0.23
2	10	0.17
3	100	0.19
4	1000	0.34

Note:  $\tau_n$ : relaxation time,  $E_n$ : relaxation modulus.

如式(6):

$$T_n(t) = \int_0^t \overline{D}_{nj} \cdot \frac{d\Delta_j(\tau)}{d\tau} d\tau + [1 - S(\Delta_n)] \int_0^t \overline{D}_{nj}(t) \cdot \frac{d\Delta_j(\tau)}{d\tau} d\tau$$

$$T_n(t) = \int_0^t \overline{D}_{nj} \cdot \frac{d\Delta_j(\tau)}{d\tau} d\tau + [1 - S(\Delta_n)] \int_0^t \overline{D}_{nj}(t) \cdot \frac{d\Delta_j(\tau)}{d\tau} d\tau \quad (6)$$

式中,  $T_n(t)$  为内聚力, MPa;  $\Delta$  为分离位移, nm;  $\overline{D}_{nj}(t)$  为 PPR 型内聚力模型的内聚刚度,  $MPa \cdot nm^{-1}$ , 具体形式可参考文献[21];  $k_i$  为内聚松弛刚度,  $MPa \cdot nm^{-1}$ ;  $\tau_i(s)$ , 为松弛时间, s;  $\xi(t)$  为时温等效缩减时间, s;  $S(\Delta)$  为基于 Weibull 分布的损伤函数, 其表达式为:

$$S(\Delta) = 1 - \exp\left(-\left(\frac{\Delta - \Delta_{nc}}{q}\right)^p\right) \quad (7)$$

式中,  $\Delta_{nc}$  为特征位移, nm, 预示内聚本构进入损伤阶段。  $p, q$  为 Weibull 分布的无量纲形状参数。内聚本构参数的具体数值见表 2~4。

其中  $\overline{\sigma}_{max}$  为 PPR 型内聚模型的内聚强度,  $\overline{\sigma}_{max}(T), p(T)$  经非线性拟合后, 表达式如式(8)~式(9)所示:

$$\overline{\sigma}_{max}(T) = 0.095(\lg \alpha_T - 0.373) + 0.65 \quad (8)$$

$$q(T) = -0.021 \exp(\lg \alpha_T) + 0.554 \quad (9)$$

表 2 粘弹 PPR 内聚本构的材料参数

Table 2 Material parameters of viscoelastic PPR cohesive model

$\alpha_k$	$m$	$\delta_{nf} / nm$	$p$	$q$	$\overline{\sigma}_{max} / MPa$
7.66563	0.54271	2	$p(T)$	0.42054	$\overline{\sigma}_{max}(T)$

Note:  $\alpha_k$ : PPR shape factor parameter,  $m$ : PPR initial slope parameter,  $\delta_{nf}$ : Failure displacement,  $\overline{\sigma}_{max}$ : PPR strength parameter,  $p$ : Weibull factor parameter,  $q$ : Weibull factor parameter.

表 3 粘弹 PPR 内聚本构的 Prony 级数

Table 3 Prony series for viscoelastic PPR cohesive model

$i$	$\tau_i / s$	$k_i / \text{MPa}$
0	$\infty$	1.12
1	48551.6866	0.29134
2	371.48414	0.31485
3	4.07369	0.50189
4	0.04357	0.71556

表 4 粘弹 PPR 内聚本构的时温等效因子

Table 4 Time-temperature equivalent factors of viscoelastic PPR cohesive model

$T / ^\circ\text{C}$	-20	0	20	50
$\lg \alpha_T$	2.581	2.012	0	-2.997
$\alpha_T$	381	103	1	0.001

Note:  $\alpha_T$ : Time-temperature equivalent factor.

### 2.3 模型的验证

为分析推进剂细观 RVE 模型的计算可靠性, 利用单轴拉伸试验机开展了  $20^\circ\text{C}$ 、 $1 \cdot \text{s}^{-1}$  拉伸工况条件下三组元 HTPB 推进剂哑铃型试件的单轴拉伸试验, 并获得了推进剂的应力-应变曲线用于对比 RVE 模型的应力计算精度; 而脱湿率的计算精度则对照本文 1.4.2 节的实验数据。脱湿率定义为模型拉伸至一定应变时已失效的界面单元面积与界面单元总面积 (约  $22.75 \text{ mm}^2$ ) 的比值, 量化了界面脱湿的严重程度; 而临界脱湿应变则量化了界面脱湿的难易程度。将两者对比, 结果如图 11 所示。

由图 11 可以看出, 当界面还未脱湿破坏时考虑界

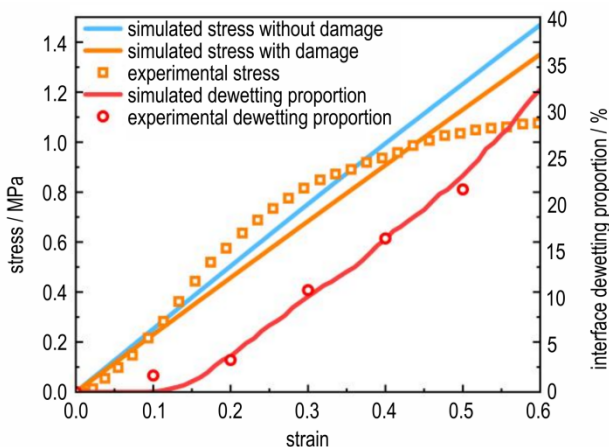


图 11 HTPB 推进剂应力-应变及界面脱湿率-应变曲线的仿真和实验对比

Fig. 11 Comparison of stress-strain curve and dewetting proportion-strain curve of HTPB propellant between simulation and experiments

面损伤的应力曲线与不考虑界面损伤的应力曲线的斜率基本相同, 此时界面脱湿率恒定为 0; 随着拉伸加载到 12% 应变时界面损伤曲线逐渐开始呈指数型增长, 与此同时应力曲线的斜率遂即开始逐渐减小, 说明界面损伤对模型的模量产生了明显的软化效应。通过与实验值对比, RVE 模型的界面脱湿率-应变曲线在整个拉伸过程中的计算结果均与实验值较为接近, 计算误差在 10% 以内, 具备较好的评估预测精度; 应力-应变曲线在拉伸初始阶段计算较为准确而在中后期出现了较大的误差, 主要原因是仿真计算过程中未考虑基体的撕裂破坏。

综上所述, 研究所构建的 HTPB 细观 RVE 模型及采用的材料参数能够准确反映推进剂材料的细观力学行为, 且具有足够的计算精度。

### 2.4 不同温度和应变率条件下推进剂单轴拉伸数值模拟

为评估推进剂在不同工况条件下的宏观力学性能及其细观脱湿损伤程度, 研究计算了  $-20^\circ\text{C}$ 、 $20^\circ\text{C}$ 、 $50^\circ\text{C}$  三种温度以及  $0.01 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $0.1 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $1 \cdot \text{s}^{-1}$  三种应变率共 9 种拉伸工况条件下 RVE 模型的应力-应变曲线以及脱湿率-应变曲线, 结果如图 12 所示。

从图 12 的应力-应变曲线中可以看出, 推进剂 RVE 模型的应力-应变曲线随温度的降低和应变率的增大而变得越来越陡峭, 曲线的非线性特征也随之减弱, 模型的模量和抗拉强度均有明显的提升, 说明推进剂在低温、高应变率条件下的强度会更大, 该结论符合推进剂材料的宏观力学特性, 并且充分证明研究所构建的 RVE 模型具备应变率和温度相关特性。从脱湿率-应变曲线中可以发现, RVE 模型的脱湿率-应变曲线均呈指数型增长趋势, 随应变率的增大以及温度的降低, 模型的临界脱湿应变略微减小, 在拉伸各个阶段模型的脱湿率也随之增大, 说明推进剂在低温、高应变率条件下更容易引发脱湿且脱湿程度更为严重, 该结论与前述 CT 表征实验的结论相符, 也充分证明本研究所构建的内聚本构具备温度和应变率相关特性。推进剂的脱湿行为拥有应变率相关性的主要原因在于高应变率条件下基体及界面等粘弹性组分没有充分的时间进行松弛并释放应力致使推进剂各细观组分的应力水平均会明显增大进而导致界面更容易遭到破坏。而温度相关性的主要原因在于低温环境下基体及界面的变形能力及松弛效应会减弱, 致使界面层更为脆弱。



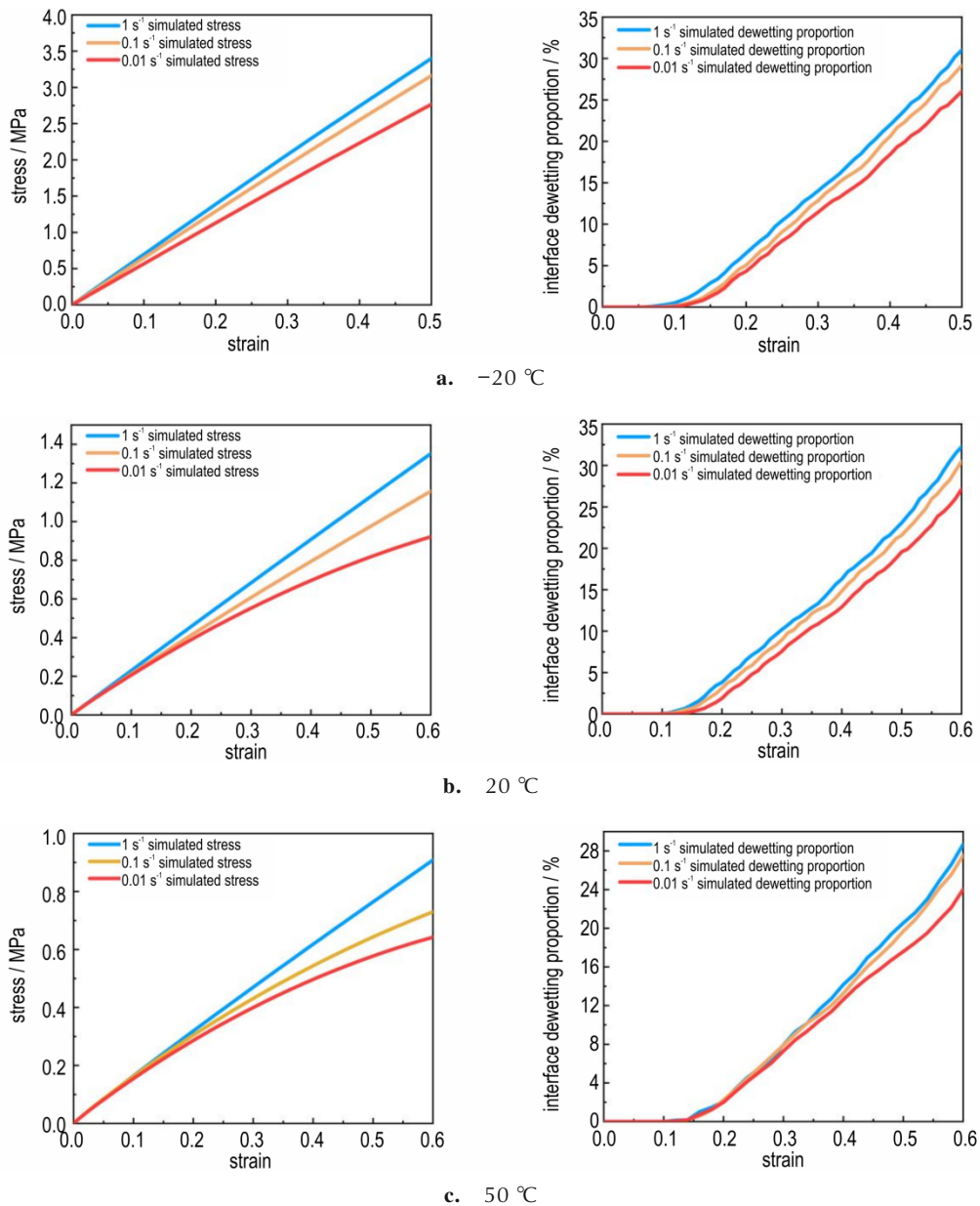


图 12 不同温度和拉伸速率工况下推进剂应力-应变曲线以及脱湿率-应变曲线的实验与仿真对比

Fig. 12 Comparison of stress-strain curve and dewetting proportion-strain curve of HTPB propellant between experiments and simulation for different temperatures and strain rates

### 3 结论

(1) 通过微 CT 细观表征实验, 发现推进剂的细观损伤演化主要存在两个过程: 孔隙的形核以及孔隙的发展。其中形核过程主要与界面新脱湿点的形成有关, 界面脱湿率随拉伸应变呈指数型增长; 孔隙的发展过程主要与界面脱湿后形成孔隙随基体变形逐步膨胀有关, 孔隙率随拉伸应变呈“S”型增长。

(2) 通过分析推进剂的孔隙数量比、界面脱湿率、

孔隙率随拉伸应变的变化规律, 发现拉伸应变达到 30% 时, HTPB 推进剂的界面脱湿率分别达到了 ( $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 12%、 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 11.87%、 $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 10.03%), 孔隙率 ( $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 4.68%、 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 4.38%、 $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 5.09%), 孔隙数比 ( $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 15.88%、 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 16.7%、 $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ : 26.96%)。即在低温环境下界面更容易引发脱湿且脱湿程度更加严重, 但孔隙的增长却受到抑制。

(3) 通过构建推进剂三维细观有限元 RVE 模型, 计算了推进剂在不同温度、不同应变率条件下的单轴

拉伸过程。研究发现随着温度降低、应变率增大, 推进剂拥有更高的初始模量、拉伸强度以及更严重的界面脱湿损伤程度。

#### 参考文献:

- [1] 刘新国, 刘佩进, 强洪夫, 等. 基于微CT技术的丁羟推进剂脱湿定量表征方法研究[J]. 推进技术, 2019, 40(5): 1162-1168.  
LIU Xinguo, LIU Peijin, QIANG Hongfu, et al. Quantification method of dewetting damage of HTPB propellant based on micro-CT detection [J]. *Journal of Propulsion Technology*, 2019, 40(5): 1162-1168.
- [2] 刘新国, 刘佩进, 王哲君. 低温动态加载下老化HTPB推进剂微观损伤研究[J]. 固体火箭技术, 2019, 42(1): 72-77.  
LIU Xinguo, LIU Peijin, WANG Zhejun. Microscopic damage of aged HTPB propellant at low temperatures under dynamic loading [J]. *Journal of Solid Rocket Technology*, 2019, 42(1): 72-77.
- [3] 刘新国, 王哲君, 韩永恒, 等. 拉伸加载下老化复合固体推进剂的损伤演化定量分析[J]. 装备环境工程, 2024, 21(4): 1-8.  
LIU Xinguo, WANG Zhejun, HAN Yongheng, et al. Quantitative characterization of damage evolution for aged composite solid propellant under tensile loading [J]. *Equipment Environmental Engineering*, 2024, 21(4): 1-8.
- [4] 李世奇, 强洪夫, 陈铁铸, 等. 单轴拉伸下NEPE固体推进剂微观结构演化行为研究[J]. 含能材料, 2024, 32(2): 175-182.  
LI Shiqi, QIANG Hongfu, CHEN Tiezhu, et al. Mesostructure evolution behavior of NEPE solid propellant under uniaxial tension [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2024, 32(2): 175-182.
- [5] 李世奇, 强洪夫, 王广, 等. 单轴拉伸下HTPB推进剂微观损伤演化实验研究[J]. 推进技术, 2022, 43(9): 411-417.  
LI Shiqi, QIANG Hongfu, WANG Guang, et al. Experimental study on meso-damage evolution of HTPB propellant under uniaxial tensile load [J]. *Journal of Propulsion Technology*, 2022, 43(9): 411-417.
- [6] LIU Yue-xun, QIAN Wei-jian, FEDERICO Bosia, et al. In situ X-ray tomography study on internal damage evolution of solid propellant for carrier rockets [J]. *Materials Science and Engineering A*, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2023.145451>.
- [7] VIJAY C, RAGUVARUN K, BHARGHAV K V S, et al. Use of X-ray computed tomography for validation of random packs of composite solid propellants [J]. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 2019, 44(7): 915-922.
- [8] 李永强, 李高春, 林明亮. 基于原位拉伸的HTPB推进剂多尺度损伤演化分析[J]. 含能材料, 2024, 32(2): 124-132.  
LI Yong-qiang, LI Gao-chun, LIN Ming-liang. Multi-scale damage evolution analysis of HTPB propellant based on in-situ stretching [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2024, 32(2): 124-132.
- [9] OLOKUN A M, PRAKASH C, EMRE G I, et al. The role of microstructure in the impact temperature rise in hydroxyl terminated polybutadiene (HTPB)-cyclotetra-methylene-tetranitramine(HMX) energetic materials using the cohesive finite element method [J]. *Journal of Applied Physics*, 2020, 128(6): 065901.
- [10] WAKIERS D J, LUSCHER D J, YEAGER J D, et al. Cohesive finite element modeling of the delamination of HTPB binder and HMX crystals under tensile loading [J]. *International Journal of Mechanical Sciences*, 2018, 140: 151-162.
- [11] 韩龙, 许进升, 周长省. HTPB/IPDI复合固体推进剂细观界面率相关参数的反演识别研究[J]. 含能材料, 2016, 24(10): 928-935.  
HAN Long, XU Jin-sheng, ZHOU Chang-sheng. Inverse identification of the rate-dependent micro interface parameters of HTPB/IPDI composite propellant [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials(Hanneng Cailiao)*, 2016, 24(10): 928-935.
- [12] 封涛, 郑健, 许进升, 等. 复合固体推进剂细观结构建模及脱黏过程数值模拟[J]. 航空动力学报, 2018, 33(1): 223-231.  
FENG Tao, ZHENG Jian, XU Jin-sheng, et al. Mesoscopic structure modeling and numerical simulation of debonding process of composite solid propellants [J]. *Journal of Aerospace Power*, 2018, 33(1): 223-231.
- [13] 封涛, 许进升, 韩龙, 等. 细观结构对HTPB推进剂力学性能影响的数值研究[J]. 功能材料, 2018, 49(1): 1078-1082.  
FENG Tao, XU Jin-sheng, HAN Long, et al. Numerical research on the influence of mesoscopic structure on HTPB propellant mechanical properties [J]. *Journal of Functional Materials*, 2018, 33(1): 223-231.
- [14] 赵玖玲. 基于全域CZM的复合推进剂细观损伤与断裂研究[J]. 固体火箭技术, 2019, 42(3): 269-274.  
ZHAO Jiu-ling. Research on microscopic damage and fracture of composite propellant based on global CZM [J]. *Journal of Solid Rocket Technology*, 2019, 42(3): 269-274.
- [15] 赵蒙, 刘博, 周文君, 等. 高频空化冲击作用下HTPB固体推进剂的细观损伤机制[J]. 火炸药学报, 2024, 47(4): 354-364.  
ZHAO Meng, LIU Bo, ZHOU Wen-jun, et al. Mesoscale damage mechanism of HTPB solid propellants by high frequency cavitation impact [J]. *Chinese Journal of Explosives & Propellants*, 2024, 47(4): 354-364.
- [16] 崔辉如, 吕轩, 许玉容. 推进剂“脱湿”损伤研究的内聚力单元方法[J]. 国防科技大学学报, 2022, 44(3): 112-120.  
CUI Hui-ru, LV Xuan, XU Yu-rong. Cohesive element method for "dewetting" damage research of propellant [J]. *Journal of National University of Defense Technology*, 2022, 44(3): 112-120.
- [17] 崔辉如. 基于真实细观形貌的固体推进剂力学性能虚单元预示方法[J]. 固体火箭技术, 1-10. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/61.1176.V.20240805.1320.002.html>.
- [18] 崔辉如. 虚拟单元方法用于推进剂力学性能预测[J]. 固体火箭技术, 1-10. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/61.1176.V.20240805.1320.002.html>.
- [19] 韩龙. 复合固体推进剂细观损伤机理及本构模型研究[D]. 南京: 南京理工大学, 2017.  
HAN Long. Study on the Microscopic Damage Mechanism and Constitutive Model of Composite Solid Propellants [D]. Nanjing: Nanjing University of Science and Technology, 2017.
- [20] 职世君. 固体推进剂细观力学性能、热物理性质以及燃烧数值仿真研究[D]. 北京: 北京航空航天大学, 2013.  
ZHI Shi-jun. Study on the Mesoscopic Mechanical Properties,

Thermophysical Properties, and Combustion Numerical Simulation of Solid Propellants [D]. Beijing: Beihang University, 2013.

[21] 崔辉如. 基于粘弹性内聚模型的固体发动机界面力学性能研

究[D]. 长沙:国防科技大学, 2020.

CUI Hui-ru. Research on the Interface Mechanical Properties of Solid-State Motors Based on Viscoelastic Cohesion Model [D]. Changsh: National University of Defense Technology, 2020.

## Experimental Study and Numerical Simulation of Mesoscale Dewetting Behavior of HTPB Tripropellant under Different Temperature Conditions

ZOU Zi-jie<sup>1</sup>, QIANG Hong-fu<sup>1</sup>, WANG Zhe-jun<sup>2</sup>, LI Shi-qi<sup>1</sup>, WANG Xue-ren<sup>1</sup>, LI Yi-yi<sup>3</sup>

(1. Zhijian Laboratory of Rocket Force University of Engineering, Xi'an 710025, China; 2. Missile Engineering Department of Rocket Force University of Engineering, Xi'an 710025, China; 3. 96863 PLA troops, Luoyang 471003, China)

**Abstract:** This study conducted micro-CT characterization experiments on HTPB propellant under wide temperature range and uniaxial tension conditions. The mesoscopic dewetting damage behavior of the propellant with three environmental temperatures of  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ , and  $50\text{ }^{\circ}\text{C}$  was analyzed, and a three-dimensional mesoscopic representative volume element model based on the volume proportions of the mesoscopic components of HTPB propellant was constructed. The stress-strain relationship and dewetting proportion-strain relationship of the model for different temperatures and strain rates were analyzed. It was found that HTPB propellant had more severe dewetting at low temperatures ( $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ ), with an interface dewetting proportion of nearly 30% when the propellant fractured, resulting in a pronounced stress softening phenomenon of the propellant. Through numerical simulation, it was found that the propellant undergoes more severe dewetting with low temperature and high strain rate, which greatly deteriorates the mechanical properties of the propellant. By comparing experimental and simulation results, the numerical model constructed in this paper can effectively predict the dewetting damage behavior and macroscopic mechanical properties of propellants.

**Key words:** HTPB propellant; mesostructure; mechanical behavior; dewetting damage

**CLC number:** TJ55;V512

**Document code:** A

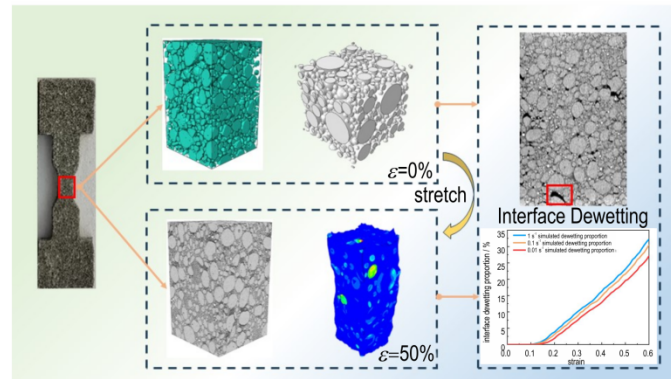
**DOI:** 10.11943/CJEM2024208

Grant support: National Natural Science Foundation of China (11772352, 22205259); Natural Science Foundation of Shaanxi Province (2019054220JQ-486)

(责编:姜梅)



图文摘要:



This paper investigated the mesoscopic damage evolution process of HTPB propellant under wide temperature range conditions, and analyzed the mesoscopic dewetting damage behavior of the propellant at three environmental temperatures of  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ , and  $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ . A three-dimensional mesoscopic RVE model of HTPB propellant was constructed based on the actual mesoscopic components of the propellant. The stress-strain curve and dewetting proportion-strain curve of the model were calculated for different temperatures and strain rates, achieving the evaluation and analysis of the dewetting behavior of the propellant.