

镁粉粒度对点火延迟影响的实验和理论研究

潘宏亮 李逢春 王克秀

摘要

本文对复合推进剂用高能点火药点燃的点火特性，从实验与理论上进行分析研究。建立了一套采用高灵敏度测试记录仪器的点火装置，通过测定点火压力与热流率，考察了MT烟火剂($Mg/(C_2F_4)_n$)中镁粉粒度大小对丁羟推进剂点火特性的影响。在一定镁粉粒度范围内，当点火药中镁粉粒度增大时，推进剂所接受的热流率增加，点火延迟时间缩短。改变推进剂参数和工作条件进行理论预示的结果与已有研究的趋势一致。

主题词：1. 固体推进剂点火 2. 点火药一性能

符 号 表

B_{55}, B_{10}	凝相微粒沉积与辐射传热公式中系数	\dot{q}_{ox}'' , 辐射	氧化剂辐射深部吸收
f_s, f_g	固相与气相的 S、Z 坐标转换因子	$\Delta R, \Delta S, \Delta t$	径向、法向空间步长及时间步长
\dot{q}''	热流率(单位时间单位表面上热通量)	t_L	凝相微粒传热存在时间
$\dot{q}_{AC}'', \dot{q}_{RA}''$	凝相微粒沉积与辐射热流率	β	推进剂辐射深部吸收系数
		$\dot{\omega}_n''$	单位表面上质量生成率
		$\dot{\omega}_v'''$	单位体积质量生成率
		$\dot{\omega}_n''$	表面异相反应组分消耗率

一、引言

高能点火药的燃烧产物含有大量凝相微粒，这些微粒具有较大的热容和热辐射率。炽热的凝相微粒对推进剂表面的撞击，辐射和沉积等传热，大大增加了对推进剂的热交换率，缩短了点火延迟时间^[1]。因此有必要从实验与理论上探讨点火药燃烧产物中凝相微粒存在对推进剂点火特性的影响。

对用高能点火药点燃复合推进剂点火机理的研究，我们认为必须建立尽量接近真实点火条件的实验装置，采用高灵敏度的测试、记录仪器；理论模型除了考虑凝相微粒传热情况外，还要考虑复合推进剂异质结构的影响，包括较详细的化学动力学，从而建立用高能点火药点燃复合推进剂的二维综合理论模型。

我们进行的工作有：1) 在新建立的一套点火装置上，进行MT烟火剂点燃丁羟推进剂的点火试验。实验着重考察该烟火剂中镁粉粒度变化对推进剂点火延迟时间的影响，测定了三

种粒度下的点火热流率和压力。2) 建立用高能点火药点燃复合推进剂的综合点火理论模型。模型中包括了点火药凝相产物的传热作用，并借鉴文献[4]用二维轴对称体模拟复合推进剂异质特性的结构，还在其五反应的基础上增加了界面异相反应。3) 利用能获得精确解的交替方向隐式差分方法对所建立的二维抛物型偏微分方程进行了数值求解。计算结果与实验结果符合较好。最后利用该模型预示一些参数改变时，推进剂点火特性的变化规律，进一步验证了该模型的正确性。

二、实验研究

为了进行点火实验研究，新建立了一套实验装置，包括小火箭试验发动机和测试系统，对激光全息技术也提出了改进方案[5]，能完成压力、热流测量。置于发动机头部的点火器的燃烧产物平行流过底部的推进剂试件表面，根据压力与热流随时间变化曲线突升的特点，判断推进剂试件的着火。这种试验方法属于“动态方法”，点火条件比较接近真实点火情况。测试系统使用了频响为40K的压电晶体传感器测压，记录仪器瞬态波形存贮器能采集到微秒级的瞬态信号。这样一套与计算机技术结合的测试系统，数据处理迅速、精度较高。实验初期，我们主要完成了压力与热流测量。测试系统框图见图1。

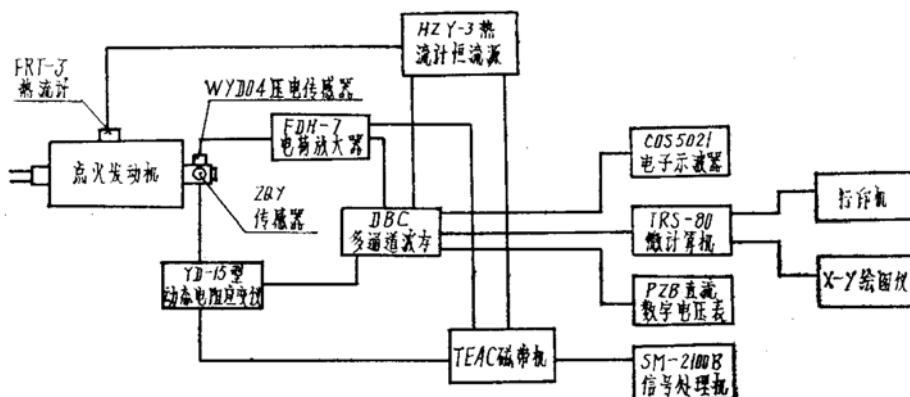


图1 实验测试系统框图

使用的高能点火药是MT烟火剂，它是聚四氟乙烯高聚物与镁粉的混合物。决定点火药产物凝相微粒特性的因素很多，实验主要考察MT烟火剂在其配比、点火药量一定时，镁粉粒度改变对推进剂点火特性的影响。镁粉与聚四氟乙烯的配比是1:1，通过改变点火药量，进行了多发试验，确定了合适的点火药量为0.7克。

推进剂试件为丁羟药、药条尺寸 $130\text{mm} \times 20\text{mm} \times 5\text{mm}$ 。喷喉直径为 $\phi 3.6\text{mm}$ 。

实验选用了三种药型：1#、2#、3#（对应镁粉粒度分别为 69μ 、 255μ 和 300μ ）。图2是2#药型下推进剂点火的压力、热统计电压及热流率处理曲线。所测得的压力、热流曲线反映了推进剂的点燃过程。曲线的第一个上升点对应了点火药燃烧产物充填到燃烧室中，推进剂试件接受热激励的时刻，第二个上升点则表示推进剂经过一段能量积累，表面开始部分点燃。推进剂的着火点即定义为此第二次上升点，曲线两次上升的时间间隔为点火延迟时间。结果见表1。

表1数据表明：在实验所用镁粉粒度范围内，当点火药中镁粉粒度增大时，推进剂所接受的热流率增加，点火延迟时间缩短。

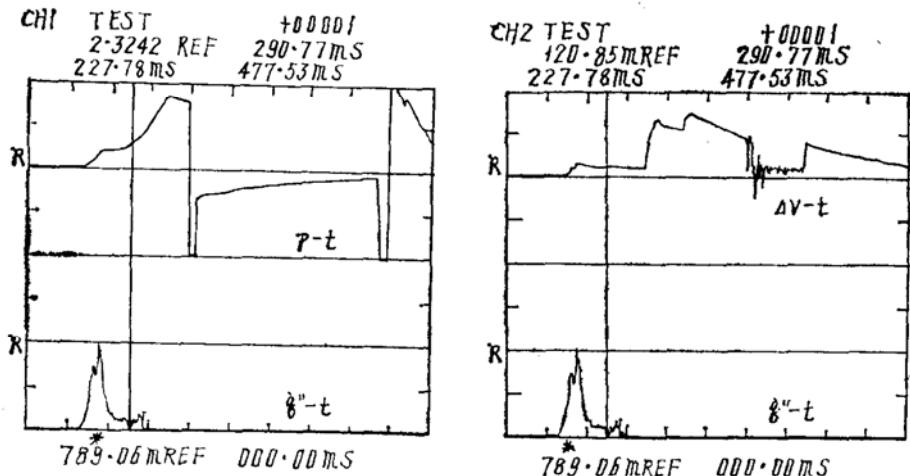


图2 2#药推进剂点火压力、热流计电压及热流率曲线(0.7g)

表1 实验测定延迟时间及平均热流率

点火药型	镁粉粒度 (μm)	延 迟 时 间 (ms)	时间平均热流率 ($\text{J}/\text{cm}^2\cdot\text{s}$)
1#	69	2460	2.261
2#	255	30	30.061
3#	300	15	70.757

点火热流率是由炽热的点火燃气和凝相微粒的传热大小决定的，而凝相微粒传热起主要作用[2,3,6]。实验所选镁粉50%的MT烟火剂是贫氧燃烧的。在该配比下，镁粉粒径越大时，镁粉与聚四氟乙烯接触面积越小，导致燃烧完全程度越低。燃烧越不完全，越会加大凝相成份的比例，产物中还会含有凝相镁粒子。如果镁粉粒径增大到一定限度后，与聚四氟乙烯接触面积很小，燃烧很不完全，其结果是燃烧温度低很多[6]。虽然凝相成份较多，但其传热是不会高于有较高燃烧温度，靠大部分凝相微粒传热的情况。因此可以预料：在一定的点火药配比及点火药量下，存在使微粒传热最强的点火药镁粉粒度，在该粒度下，点火延迟时间最小。

三、理 论 模 型

1. 物理模型

点火过程为通电的电阻丝引燃点火药，点火药燃烧产物流过推进剂表面并对推进剂传热。经过一段惰性加热时间，推进剂开始热分解。表面气化出的氧化剂，粘合剂气体向气相区扩散并相互混合，产生化学反应，与此同时进行表面反应（如热分解、异相反应）当净热释放超过热损失时，温度开始上升，最后达到以高的化学反应速率和高的热释放速率条件表征的着火。从施加点火热流起，到着火所对应的时间即为点火延迟时间。

物理模型考虑氧化剂粒子嵌入粘合剂基体的结构[4]，参看真实推进剂的截面视图（图3）。大量氧化剂粒子随机地分布于粘合剂基体中，取一典型的微元体，对复合推进剂结构的数学模拟可认为氧化剂粒子和粘合剂是两个同轴圆柱体夹层，其中 R_1 、 R_2 及 L 可根据氧化剂、粘合剂组分分布及氧化剂粒子大小统计地确定。该氧化剂和粘合剂的微元体可用柱坐标系描述如图4。

2. 数学模型

基本假设：

- (1) 固体推进剂和气相是二维轴对称的；
- (2) 各区域反应遵守阿累尼乌斯定律；
- (3) 气相所有组分质量扩散系数相等，气体服从理想气体定律；
- (4) 忽略点火前固相表面后退，只考虑表面质量，能量的轴向扩散、不考虑气相区对流效应；
- (5) 气相区压力均匀，不考虑压力随时间的变化；
- (6) 只计及点火药产物对推进剂表面的热传导作用。

分别考虑了固相氧化剂、粘合剂和气相的温度控制方程及气相质量方程。固相和气相通通过界面条件耦合。

图4所示轴对称坐标下控制方程形式为：

$$\text{固相 } \frac{\partial T_{0x}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial Z} (\alpha_{0x,s} \frac{\partial T_{0x}}{\partial Z}) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (\alpha_{0x,s} r \frac{\partial T_{0x}}{\partial r}) + \dot{q}_{0x}'' \text{, 辐射}$$



图3 复合推进剂结构

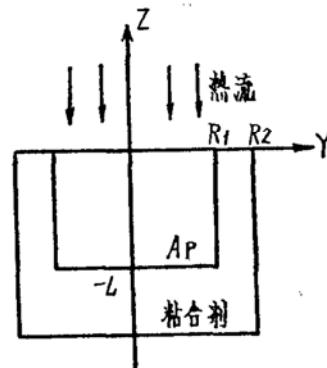


图4 微元柱坐标系

$$\frac{\partial T_F}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial Z} (\alpha_F, s \frac{\partial T_F}{\partial Z}) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (\alpha_F, s r \frac{\partial T_F}{\partial r}) + \dot{q}_F'' \text{, 辐射}$$

其中深部吸收服从Beer定律，

$$\dot{q}_{0x}'' \text{, 辐射} = \beta_{0x} \dot{q}_{RA}'' \exp(-\beta_{0x} Z)$$

$$\dot{q}_F'' \text{, 辐射} = \beta_F \dot{q}_{RA}'' \exp(-\beta_F Z)$$

$$\text{气相 } \rho_g c_g \frac{\partial T_g}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial Z} (K_g \frac{\partial T_g}{\partial Z}) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (K_g r \frac{\partial T_g}{\partial r}) + q_g$$

$$\frac{\partial Y_n}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} (D \frac{\partial Y_n}{\partial z}) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (D r \frac{\partial Y_n}{\partial r}) + \dot{\omega}_n'' \quad n = ox, F, NH_3$$

$HClO_4$ 通过与 NH_3 的类比获得，产物P由质量守恒关系求得。

$$\text{气相区服从状态方程 } p = \rho_g R_g T_g$$

下面列出了点火的初始和边界条件

$$\begin{aligned} \text{固相 } t=0 & \quad T_s = T_i \\ Z = -\infty & \quad T_s = T_i \\ T_s|_{r=R_1^+} & = T_s|_{r=R_1^-} \\ T_s|_{Z=-L^-} & = T_s|_{Z=-L^+} \\ r = 0 & \quad \frac{\partial T_s}{\partial r} = 0 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} r = R_2 & \quad \frac{\partial T_s}{\partial r} = 0 \\ r = R_1 & \quad -K_{fs,s} \frac{\partial T_s}{\partial r}|_{R_1^+} = -K_{ox,s} \frac{\partial T_s}{\partial r}|_{R_1^-} \\ -L < Z < 0 & \\ 0 < r < R_1 & \quad -K_{fs,s} \frac{\partial T_s}{\partial Z}|_{-L^-} = -K_{ox,s} \frac{\partial T_s}{\partial Z}|_{-L^+} \\ Z = -L & \\ \text{气相 } t = 0 & \quad T_g = T_{ig}, \quad Y_n = Y_{ni} \\ Z = \infty & \quad \frac{\partial T_g}{\partial Z} = 0, \quad \frac{\partial Y_n}{\partial Z} = 0 \\ r = 0 & \quad \frac{\partial T_g}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial Y_n}{\partial r} = 0 \\ r = R_2 & \quad \frac{\partial T_g}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial Y_n}{\partial r} = 0 \end{aligned}$$

$$\text{气-固相界面 } Z = 0 \quad T_s|_{z=0^-} = T_s|_{z=0^+}$$

$$\begin{aligned} K_s \frac{\partial T_s}{\partial Z}|_{z=0^-} & = K_g \frac{\partial T_g}{\partial Z}|_{z=0^+} + \dot{q}_{r,a}'' + \dot{q}_{a,c}'' + \dot{q}'' \\ \dot{\omega}_n'' & = -\rho_g D \frac{\partial Y_n}{\partial Z}|_{z=0^+} + \dot{\omega}_n'' \end{aligned}$$

3. 化学反应动力学

依据Kuo,K.K.的观点，点火过程中有五个主要反应：

- (1) AP(s) $\xrightarrow{70\%}$ OX(g)
- (2) AP(s) $\xrightarrow{30\%}$ NH₃(g) + HClO₄(g)
- (3) HTPB(s) \longrightarrow F(g)
- (4) NH₃(g) + HClO₄(g) \longrightarrow OX(g)
- (5) OX(g) + F(g) \longrightarrow P(g)
- (6) F(g) + AP(s) \longrightarrow P(g)

本文在Kuo,K.K.五反应基础上，增加了粘合剂气体与固相氧化剂之间的异相反应(6)。这是因为点火药总是负氧燃烧的，以加大凝相成份的比例。在环境氧化剂缺乏的情况下，低熔融温度而先分离出来的粘合剂气体会冲击氧化剂表面并反生异相反应。由假设(4)，该异相反应仅出现在AP与粘合剂交界面r=R₁处。

4. 点火药产物的传热

高能点火药燃烧产物中，凝相微粒含量较多，气相成份较少；同时凝相微粒存在降低了对流热交换效应^[7]，因此燃气在推进剂表面流过时，可以不考虑其对流传热效应。至于因燃气存在形成的高温环境对推进剂换热的贡献用一项导热 $K_g \frac{\partial T_g}{\partial Z}$ 表示。

文献[3]认为凝相微粒传热主要为两项：辐射传热 \dot{q}_{RA}'' 及沉积传热 \dot{q}_{AC}'' ，并推导了两项传热的公式，本文与之区别是该两式中的系数根据实验测得热流确定。

$$\dot{q}_{RA}'' = \begin{cases} B_{10} (1 - t/t_L) (T_{ig}^4 - T_s^4) & t \leq t_L \\ 0 & t > t_L \end{cases}$$

$$\dot{q}_{AC}'' = \begin{cases} B_{55} t/t_L (T_{ig} - T_s) & t \leq t_L \\ 0 & t > t_R \end{cases}$$

这两项热流是随时间而变的，从而考虑了推进剂的真实传热情况：到达推进剂表面某一位置的热流随时间变化很大。

四、数值计算

1. 计算方法

所提点火模型由一组偏微分方程构成。对这样一组瞬态、非齐次、非线性的二维抛物型偏微分方程，只能获得数值解。采用的计算方法为交替方向隐式差分法（亦称ADI方法）。其基本思想是采用时间分裂，将二维偏微分方程化为两个一维偏微分方程后，对所获得的三对角方程求解。时间导数为向前差分格式，空间导数为中心差分格式。有两点要指出的是：(1)对于 (Z, r) 坐标下的无限长同轴圆柱体结构，转化为有限长圆柱体的方法是，采用对数坐标转换。

$$\text{固相区 } S = \exp(f_s Z) - 1 \quad -1 \leq s \leq 0$$

$$\text{气相区 } S = 1 - \exp(-f_g Z) \quad 0 \leq s \leq 1$$

这样也提高了气-固相界面的分辨率。

(2) 边界条件的差分处理是，凡出现的一阶导数项，均采用向前差分格式：

$$\frac{\partial \varphi}{\partial S} |_W = \frac{\varphi_W - \varphi_{W-1}}{\pm \Delta S}$$

$$\frac{\partial \varphi}{\partial r} |_W = \frac{\varphi_W - \varphi_{W-1}}{\pm \Delta R}$$

W 表示边界， $W-1$ 表示边界第二层。若边界法线方向与 S 或 r 坐标轴方向一致，则取“+”，相反则取“-”。经过这样的处理，一般的初始和边界条件均化为 $T(i, i) = a$ 的形式，一步求解。而气-固相界面上的能量平衡，差分化后是一个非线性方程：

$$f(T_s) = a_1 T_s + a_2 T_s^4 + a_3 \exp(-a_4/T_s) + a_5$$

a_1, \dots, a_5 均为组合系数，是已知的。对这种超越方程，已往有人用一步迭代处理，虽然简便，但精度低。我们则采用0.618法寻优求表面温度。

计算所用参数适于丁羟推进剂，主要取自文献[3.4.8]。数值见表2和表3。计算网络 $\Delta R = 4.37 \mu\text{m}$, $\Delta S = 0.1$, $\Delta t = 5 \mu\text{s}$ 。点火药燃气温度 $T_{ig} = 2000\text{K}$, 初温 $T_s = -20^\circ\text{C} \sim 50^\circ\text{C}$, 压力 $P_i = 3.0398 \times 10^4 \sim 10.1325 \times 10^5 \text{Pa}$ 。

表 2 化学动力学参数

序号	活化能 (J/kmol)	反应热 (J/kg)	指前因子	反应级数
1	1.25×10^8	1.6×10^6	$0.65 \times 10^7 (\text{kg}/\text{m}^2 \cdot \text{s})$	0
2	1.25×10^8	-2.07×10^6	$0.65 \times 10^7 (\text{kg}/\text{m}^2 \cdot \text{s})$	0
3	1.30×10^8	-1.68×10^5	$0.45 \times 10^7 (\text{kg}/\text{m}^2 \cdot \text{s})$	0
4	0.45×10^8	8.23×10^9	$8.03 \times 10^9 (\text{m}^3/\text{mol} \cdot \text{s} \cdot \text{K})$	2
5	0.43×10^8	7.86×10^8	$1.5 \times 10^{10} (\text{m}^3/\text{mol} \cdot \text{s})$	2
6	0.50×10^8	7.9×10^6	$1.3 \times 10^4 (\text{l/s})$	1

表 3 物理参数

参数	量纲	气相	固相	
			AP	HTPB
C	J/kg·K	1950	1310	1260
K	W/m·K	$0.228(T/300)^{0.75}$	0.716	0.250
D	m ² /s	0.2×10^{-4}	---	---
ρ	kg/m ³	$P = \rho RT$	1950	947
W	kg/kmol	$W_{\text{OX}} = 29.2, W_F = 24.5$ $W_{\text{NH}_3} = 17.0, W_P = 20.4$ $W_{\text{HC}_1\text{O}_4} = 100.5$	117.5	100.8
L	μm	---	34.32	---
R_1	μm	---	34.96	---
R_2	μm	---	---	43.7

注：表中 R_1, R_2, L 值是相对 AP 粒径 75μ , 含量 75% 的推进剂而言。

2. 计算结果讨论

(1) 点火期间温度、浓度分布

推进剂表面温度径向分布见图 5，从中可看到粘合剂表面温度高于氧化剂的表面温度，粘合剂与氧化剂界面上的温度则介于两者之间。这是由于粘合剂的导热系数及热扩散系数值小于氧化剂的相应值，导致粘合剂温度增高较快所致。但因为粘合剂表面热解是一吸热过程，后期粘合剂与氧化剂温度差别缩小。

计算结果表明气相区径向温度分布没有明显受推进剂异质结构的影响，温度不均匀只有几度的差别。粘合剂气体质量分数最高点在半径 $r = R_2$ 处，氧化剂的最高点向中心 $r = 0$ 处移动，但径向质量分数数值差别对两者来说也不大。

随着时间增加，固相热波渗透厚度加大。对应固相温度的增加，气相区温度有一段下降时期，强烈气相反应发生时的气-固相温度分布如图 6 所示，点火位置在近壁区。气相区浓

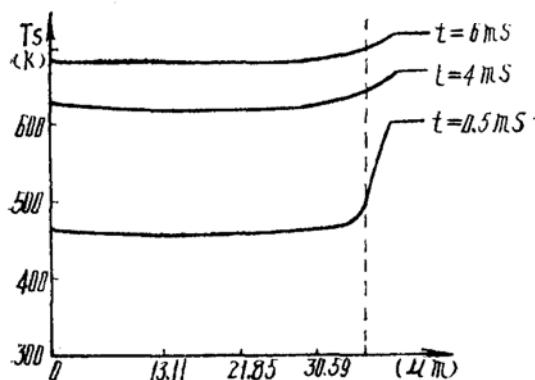


图 5 表面温度径向分布

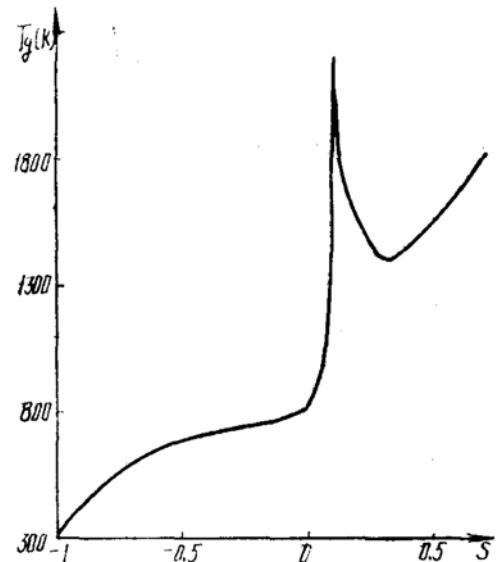


图 6 着火时 $r = R_1$ 处温度轴向分布

度分布见图 7，粘合剂分布有一拐点是异相反应消耗粘合剂气体的缘故。

(2) 与实验结果对比及理论预示

根据实验所测热流率大小，对镁粉粒度改变时的点火延迟时间进行了数值计算。从 2*、3* 药的计算结果来看与实验趋势一致，都反映了在一定镁粉粒度范围内，当镁粉粒度增大时，推进剂点火延迟时间缩短。图 8 为实验与计算结果的 $\log \tau_{ig} \sim d$ 曲线，两者符合较好。1* 药的点火延迟是根据 2*、3* 计算值估计的。

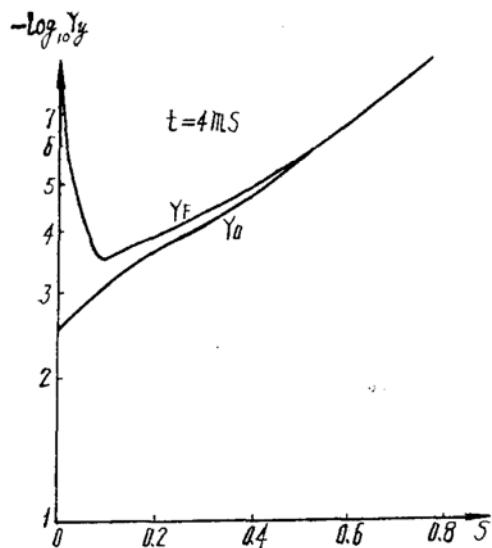


图 7 $r = R_1$ 处气相区轴向浓度分布

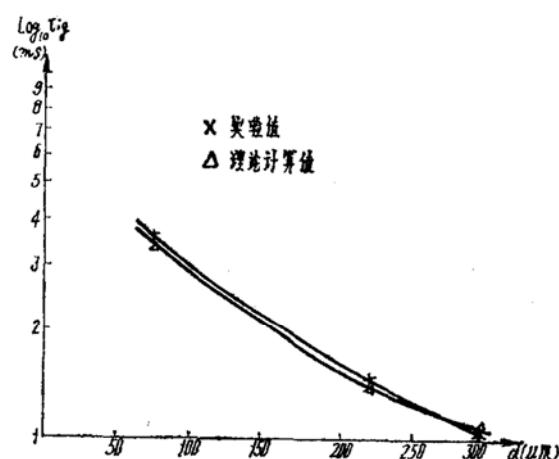


图 8 镁粉粒径大小对点火延迟时间影响

为了进一步验证理论模型的正确性，通过改变一些主要参数如初温，压力、活化能等，预估了推进剂的点火性能，以期与已有研究结果加以比较。计算表明：推进剂的初温越高，环境压力越大，则点火延迟越短；推进剂热分解活化能降低或气相反应活化能降低，都使点火延迟缩小。这些计算结果与已有研究结果反映的趋势一致。计算中较详细地考虑了异相反应作用大小。结果表明：异相反应存在，加大了点火延迟时间，但是当压力增高，或外部热流率较大时，异相反应所起的作用减弱。

五、结 束 语

理论模型的数值计算与实验结果符合较好，理论预示与前人研究结果趋势一致，表明该理论模型描述推进剂点火过程基本正确。通过实验研究和理论计算，本文所获得的结论有：

1. 在一定镁粉粒度范围内，当 $M T$ 烟火剂中镁粉粒度增大时，推进剂点火延迟时间缩短。可以预计有使点火延迟最小的最佳镁粉粒度存在。
2. 异相反应存在，加大了点火延迟时间。但当环境压力较高，或外部热流率较大时，异相反应作用不明显。
3. 复合推进剂结构异质特性，对固相温度分布影响较大，但对气相区温度，浓度分布影响不大。

本文的工作是课题研究的先行部分，实验研究还要进行大量试验，以确定最佳粒度；理论模型在寻找更准确的物理，化学参数和考虑对流效应上还有待进一步完善。

参 考 文 献

- [1] Williams, F. A.: 固体推进剂火箭发动机基本问题。下册。
- [2] Siddiqui, K. M. and Smith, I. E.: The ignition of double-base propellants by hot particles arising in the igniter products. AIAA74-1087.
- [3] 易建文：高能点火药中固体微粒对复合推进剂点火性能的影响，西工大硕士论文，1985。
- [4] Kumar, M. and Kuo, K. K.: A Model including gas-phase and subsurface reactions for APbased composite propellant. AIAA82-1109.
- [5] 潘宏亮、李逢春、王克秀，高能点火药点燃复合推进剂的实验研究。宇航学会威海会议，1986。
- [6] Peretz, A.: Investigation of pyrotechnic MTV compositions for rocket motor igniters. AIAA 82-1189.
- [7] Hall, A. R. and Southern, G. R.: Ignition of 127mm solid propellant motors by pyrogens with and without solid particles. AIAA78-1009.
- [8] Kishore, K. and Drasad, G.: 复合固体推进剂中氧化剂和粘合剂的分解/爆燃综述。国外固体火箭技术，1985，№2。

(上接第51页)

参 考 文 献

- [1] Transient coning in end-burning solid propellant grains. AIAA80-1138.
- [2] Burning rate enhancement phenomena in end-burning solid propellant grains. AIAA 85—1435.
- [3] Studies on coning in end-burning rocket motors. AIAA85—1179.
- [4] The effect of strain on the burning rates of high energy solid propellants. Proceedings of 13th JANNAF Combustion Meeting, Monterey, Calif. Sept. 1976, CPIA publication 281, Dec1976, Vol II.