复合材料学报 Acta Materiae Compositae Sinica
第28卷 第3期 6月 2011年
Vol. 28 No. 3 June 2011

文章编号：1000-3851(2011)03-0229-07

复合固体推进剂细观界面脱粘有限元分析

李高春*[1]，邢耀国[1]，戢治洪[2]，谢丽宽[3]

（1. 海军航空工程学院 飞行器工程系，烟台 264001，2. 海军航空工程学院科研部，烟台 264001；
3. 海军驻西安地区导弹发动机专业军代室，西安 710025）

摘 要： 针对复合固体推进剂细观损伤的特点，在颗粒与基体之间引入了粘结界面单元，采用双线性关系模型描述其界面损伤扩展特性，并对双线性关系模型中初始线性模量、最大粘结强度和最大张开位移等参数进行了预测。结合复合固体推进剂的填充模型，对推进剂内部细观界面脱粘过程进行了有限元分析。研究表明，采用粘结界面单元可以有效模拟推进剂颗粒的界面脱粘过程，推进剂在拉伸过程中力学性能的非线性与界面脱粘有密切关系，研究结果与试验观察结果相吻合。

关键词： 复合固体推进剂；界面脱粘；粘结界面单元；有限元

中图分类号： TB330.1；V512 **文献标志码：** A

Finite element analysis of microscale interfacial debonding in composite solid propellants

LI Gaochun*[1], XING Yaoguo[1], JI Zhihong[2], XIE Likuan[3]

(1. Department of Aircraft Engineering, Naval Aeronautical and Astronautical University, Yantai 264001, China;
2. Department of Scientific Research, Naval Aeronautical and Astronautical University, Yantai 264001, China;
3. Military Representatives Office of NDMMP in Xi′an, Xi′an 710025, China)

Abstract: Based on the micromechanical damage characteristics of composite solid propellants, a cohesive interface element was placed between particles and binder. The bilinear model was used to describe interfacial damage evolution, and its key parameters were determined, including the intial linear modulus, maxmial cohesive strength, and maximal displacement. Combined with packing models of composite solid propellant, the micromechanical interfacial debonding was analyzed by finite element method. The results show that cohesive interface element can effectively predict the progress of debonding of particles from binder. The nonlinear mechanical properties of propellant under tensile is closely related with interfacial debonding. The numerical results are in agreement with the experimental observations.

Keywords: composite solid propellant; interfacial debonding; cohesive interface element; finite element

从细观结构上看，复合固体推进剂是一种高填充比颗粒复合材料，主要由高分子聚合物黏合剂基体和掺入的大量固体氧化剂颗粒及金属燃料颗粒组成[1]。由于复合固体推进剂包含了大量的固体颗粒，因此在细观水平上应视为一种非均匀材料，其力学性能通常取决于颗粒与基体的力学性质、固体颗粒的体积分数以及颗粒与基体之间界面的性质。文献[2]根据推进剂组分的力学性质以及其填充颗粒的体积分数，采用细观力学有限元模拟和分析法相结合的方法对其初始模量进行了预估，得到了推进剂在没有界面脱粘情况下的力学性能。然而，实验表明[3-4]，推进剂在外界载荷作用下，颗粒与基体之间界面将发生脱粘，从而引起推进剂力学性能的非线性。因此，为了进一步描述推进剂的力学性能，需要对推进剂颗粒与基体的界面脱粘进行分析。

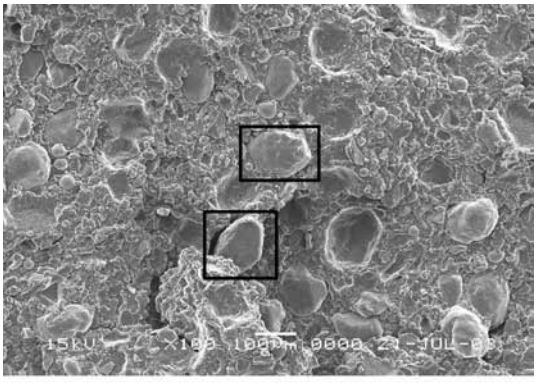
由于界面在脱粘过程中的几何拓扑结构发生变化，常用的有限元单元不适用，这样需要针对界面脱粘的特点，在界面处建立粘结界面单元[5-7]。本文作者在分析推进剂细观损伤机制的基础上，在颗粒与基体之间引入了粘结界面单元，对推进剂的细观界面脱粘进行了模拟，并研究了细观界面脱粘对

收稿日期： 2010-05-10；**收修改稿日期：** 2010-10-13
基金项目： 海军航空工程学院青年基金(HYQN200903)
通讯作者： 李高春，博士，讲师，研究领域为复合固体推进剂细观损伤及宏观力学性能 E-mail：leespring@sohu.com

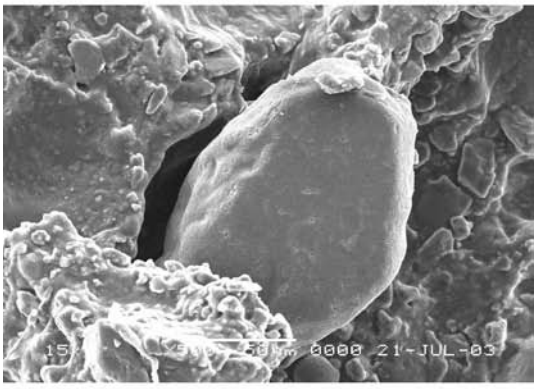
推进剂宏观力学性能的影响。

1　推进剂细观损伤

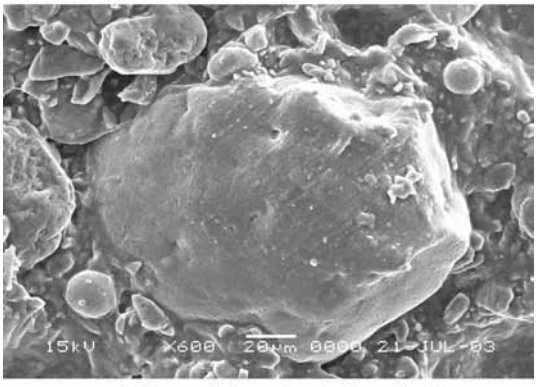
对拉伸试件在拉伸断裂后的断口进行 SEM 形貌观察，结果如图 1 所示。从推进剂的断口形貌可以观察到突出的推进剂颗粒和颗粒拔出后留下的凹坑，突出颗粒表面比较光滑，同时未见推进剂颗粒发生破碎。SEM 试验结果表明，在拉伸作用下颗粒与基体的粘结较弱，界面脱粘是推进剂拉伸情况下的主要损伤形式。



(a) Whole view



(b) Zoomed view of marked area in (a)



(c) Zoomed view of marked area in (a)

图 1　推进剂断面扫描电镜图片

Fig. 1　SEM photographs of propellant fracture surface

2　粘结界面单元模型

为了模拟界面脱粘过程，文献中针对界面脱粘特点提出了许多模型，包括弹簧模型和粘结界面单元模型。由于粘结界面单元模型能够自动模拟界面脱粘过程，在界面脱粘模拟中得到广泛的应用[8-11]，本文中采用该模型。

粘结界面单元模型所采用的粘结界面单元如图 2所示，它内嵌在颗粒与基体的界面中，一边与颗粒相连，另一边与基体相连。在初始状态下界面单元上、下表面重合。随着外界载荷的增加，颗粒与基体产生分离。当界面的法向和切向分离量达到某一临界值时，界面产生损伤，界面强度下降，直至界面完全脱粘。在单纯法向应力作用下，界面损伤扩展如图 3 所示。

描述界面损伤扩展的本构关系有多项式关系[9]

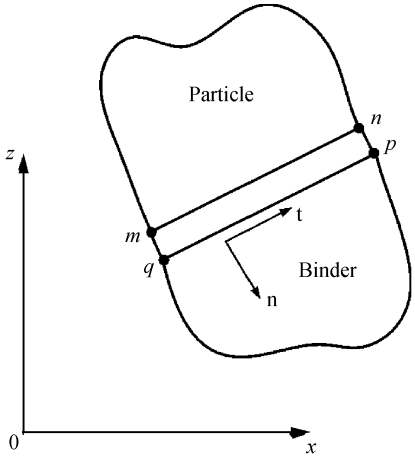


图 2　粘结界面单元模型

Fig. 2　Cohesive interface element model

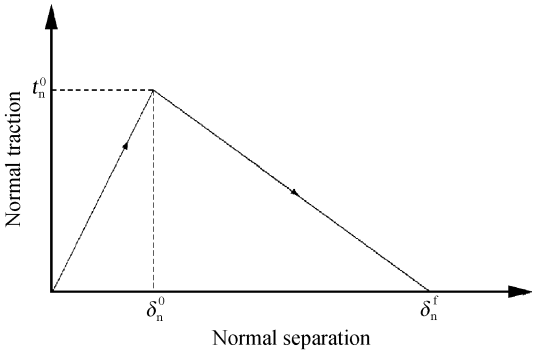


图 3　法向应用作用下界面力与界面分离量之间的关系

Fig. 3　Interfacial traction-separation response under normal force

和双线性关系[6-7, 10, 12]。对于推进剂这种高填充材料，人们通常采用的是双线性关系[6-7]。双线性关系模型中包括 3 个参数：初始线性模量、最大粘结强度和最大张开位移。由于在当前实验条件下，获得上述参数比较困难，本文中采用下列方法对其进行预估。

（1）初始线性模量。推进剂界面是由颗粒和基体通过化学反应、物理吸附等生成的一层复杂的物质。在推进剂的制造过程中，键合剂依靠其分子物理作用吸附在颗粒表面，形成大分子的包覆结构；同时键合剂上的活性基团与固化剂反应，进入交联弹性网络，固化后，在颗粒表面形成具有较高模量的界面，传递应力，达到提高力学性能的目的。由于键合剂的上述作用机制，使界面的模量较基体大。通过测定可知，含键合剂基体模量约为不含键合剂基体模量的 10 倍。另外，通过改变初始线性模量参数，在最大粘接强度一定的情况下，其对计算结果影响不大。因此，本文中在计算时取界面的初始线性模量为基体模量的 10 倍。

（2）最大粘结强度。为了得到推进剂界面的最大粘结强度，对颗粒质量分数为 75%的推进剂进行了紧凑拉伸试验，试件形状、尺寸如图 4 所示。拉伸试验条件：温度为 25 ℃，拉伸速率为 0.5 mm/min。

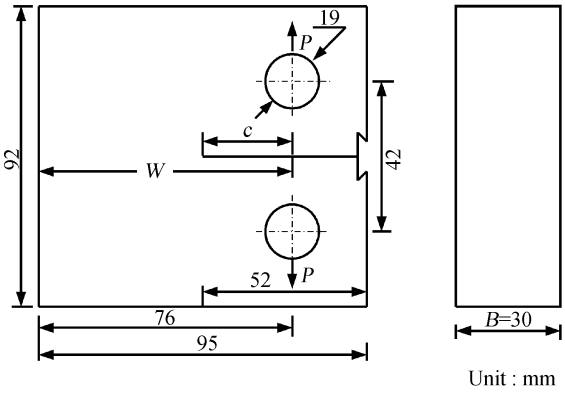


图 4　紧凑拉伸试件形状

Fig. 4　Shape of sample for compaction tension

测得的载荷-位移曲线如图 5 所示，载荷先随位移的增大而增大，达到极限载荷时，预制裂纹发生扩展。随裂纹的扩展，载荷逐渐减少。极限载荷值为 $P_{max}=108$ N。裂纹尖端的失效应力[13]

$$\sigma_{nf}=\frac{2P_{max}}{BW}\left(2+\frac{c}{W}\right)\left(1-\frac{c}{W}\right)^{-2}=0.73\ \text{MPa}$$

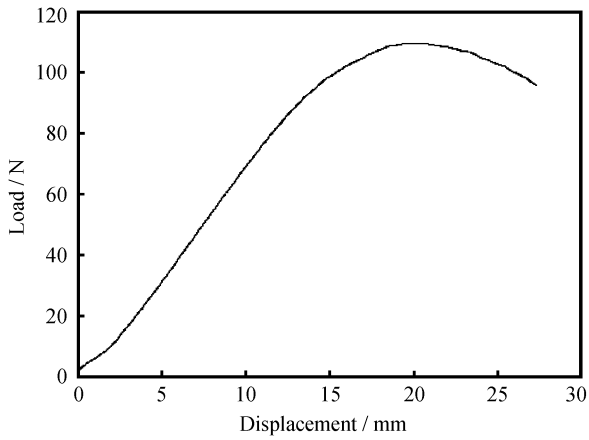


图 5　推进剂的载荷-位移曲线

Fig. 5　Load-displacement curve of propellant

文献[10]采用考虑界面脱粘的Mori-Tanaka方法对高颗粒填充材料的界面脱粘进行了研究，结果表明：对于高颗粒填充复合材料，其界面法向粘结应力等于裂纹尖端的失效应力。这样，在本文计算中，取界面法向最大粘结强度 $T_{max}=\sigma_{nf}$。

（3）最大张开位移。最大张开位移与界面粘结能有关，对于复合固体推进剂，推进剂的断裂能与界面粘结能和基体的断裂能满足下式：

$$VU_{int}+(1-V)\gamma_m=G \tag{1}$$

式中：V 为颗粒体积分数；U_{int} 为界面粘结能；γ_m 为基体的断裂能；G 为推进剂的断裂能。对于双线性界面单元，界面力与界面分离量关系曲线下的面积对应于使界面产生分离所需的能量，也就是界面粘结能，$U_{int}=\frac{1}{2}\delta_n^f t_n^0$。$\gamma_m$ 和 G 通过基体和推进剂的撕裂试验获得，其值分别为 1400 J/m^2 和 512 J/m^2。计算得到界面的最大张开位移为 $\delta_n^f=37\ \mu$m。

2.1　界面本构关系

将 n 表示界面的法向，t 表示所对应的切向，δ_n、δ_t 分别表示为界面的法向和切向分离量，L_0 为界面单元指定的初始厚度。这样，界面的应变为

$$\varepsilon_n=\frac{\delta_n}{L_0},\quad \varepsilon_t=\frac{\delta_t}{L_0} \tag{2}$$

界面力为

$$\boldsymbol{T}=\begin{Bmatrix}T_n\\T_t\end{Bmatrix}=\begin{bmatrix}(1-D)K_{nn} & 0\\ 0 & (1-D)K_{tt}\end{bmatrix}\begin{Bmatrix}\varepsilon_n\\\varepsilon_t\end{Bmatrix} \tag{3}$$

其中：D 表示界面损伤程度，在初始线性段其值为 0，当其值为 1 时，表示界面完全脱粘。

$$D=\frac{\delta_m^f(\delta_m^{max}-\delta_m^0)}{\delta_m^{max}(\delta_m^f-\delta_m^0)} \tag{4}$$

式中：δ_m^{max} 表示界面的最大有效位移 $\delta_m^{max}=\max\{\delta_m^{max},\delta_m\}$，其中有效位移 δ_m 定义为 $\delta_m=\sqrt{\langle\delta_n\rangle^2+(\delta_t)^2}$，$\delta_m^0=\sqrt{\langle\delta_n^0\rangle^2+(\delta_t^0)^2}$，$\delta_m^f=\sqrt{\langle\delta_n^f\rangle^2+(\delta_t^f)^2}$，$\langle x\rangle=\begin{cases}0 & x\leqslant 0\\ x & x>0\end{cases}$ 表示在压缩变形条件下，界面不会产生损伤；δ_n^0、δ_t^0 分别为界面达到最大粘结强度时的法向和切向张开位移。在保证界面粘结能不变的前提下，选取切向和法向的模型参数一致[6, 14]。

2.2　界面单元

设界面单元节点位移向量

$$\boldsymbol{q}=\{\boldsymbol{q}^-,\boldsymbol{q}^+\}=\{u_1,w_1,u_2,w_2,u_3,w_3,u_4,w_4\}^{\mathrm{T}} \tag{5}$$

式中：

$\boldsymbol{q}^-=\{u_1,w_1,u_2,w_2\}^{\mathrm{T}}$；$\boldsymbol{q}^+=\{u_3,w_3,u_4,w_4\}^{\mathrm{T}}$。

界面上、下表面分离量通过形函数差值得到

$$\boldsymbol{u}=[-\boldsymbol{N}\quad \boldsymbol{N}]\boldsymbol{q} \tag{6}$$

$\boldsymbol{N}$ 为形函数，即

$$\boldsymbol{N}=\begin{bmatrix}L_1 & 0 & L_2 & 0\\ 0 & L_1 & 0 & L_2\end{bmatrix} \tag{7}$$

式中：$L_1=\frac{1}{2}(1-\xi)$；$L_2=\frac{1}{2}(1+\xi)$；ξ 为有限元中坐标。

由于界面本构关系定义在局部坐标上，需将上述位移转换到界面局部坐标上，定义界面中线位移梯度为

$$\boldsymbol{g}=\frac{1}{2}\frac{\partial\boldsymbol{N}}{\partial\xi}(\boldsymbol{C}^++\boldsymbol{C}^-+\boldsymbol{q}^++\boldsymbol{q}^-) \tag{8}$$

其中：

$\boldsymbol{C}=\{\boldsymbol{C}^-,\boldsymbol{C}^+\}=\{x_1,z_1,x_2,z_2,x_3,z_3,x_4,z_4\}^{\mathrm{T}}$ 为节点坐标值，则转换张量 $\boldsymbol{R}$ 为

$$\boldsymbol{R}=\frac{1}{\sqrt{g_1^2+g_3^2}}\begin{bmatrix}g_1 & -g_3\\ g_3 & g_1\end{bmatrix} \tag{9}$$

在局部坐标下，界面上、下表面分离量为

$$\boldsymbol{\delta}=\boldsymbol{R}^{\mathrm{T}}[-\boldsymbol{N}\quad \boldsymbol{N}]\boldsymbol{q} \tag{10}$$

界面节点力

$$\widetilde{f}=b\int_{-1}^{1}\widetilde{\boldsymbol{B}}^{\mathrm{T}}\boldsymbol{T}\sqrt{g_1^2+g_3^2}\,\mathrm{d}\xi \tag{11}$$

式中：$\widetilde{\boldsymbol{B}}=\boldsymbol{R}^{\mathrm{T}}[-\boldsymbol{N}\quad \boldsymbol{N}]$。

界面刚度矩阵由虚功原理得到

$$\boldsymbol{K}_s=b\int_{-1}^{1}\widetilde{\boldsymbol{B}}^{\mathrm{T}}\frac{\partial\boldsymbol{T}}{\partial\boldsymbol{\delta}}\widetilde{\boldsymbol{B}}\sqrt{g_1^2+g_3^2}\,\mathrm{d}\xi \tag{12}$$

式中：b 为单元厚度。

得到界面单元的刚度矩阵，与常规单元刚度矩阵组合成总体刚度矩阵，通过Newton-Raphson方法进行求解。

3　计算模型

对于复合固体推进剂，颗粒大小各异，并且在基体中随机分布。为了进行推进剂界面脱粘分析，首要的问题是建立一个能够描述推进剂形态结构的颗粒填充模型。考虑到进行三维界面脱粘模拟需要很高的计算机配置，本文计算中采用了对计算机条件要求不是太高的二维颗粒填充模型。由于复合固体推进剂颗粒体积分数高，采用分子动力学模拟方法生成其颗粒填充模型[15]，该模型在初始模量预估中有较好的计算精度[2]。在上述模型颗粒与基体之间引入界面单元，推进剂颗粒体积分数为 63.6%（质量分数为 75%）时的有限元网格如图 6 所示（为了清楚起见，只显示颗粒中的有限元网格）。为了获得基体的力学性能，对基体胶片进行了拉伸试验。忽略基体的黏弹性，将其视为超弹性材料，对胶片单向拉伸数据用 $N=3$ 的 Ogden 模型[16]进行拟合，其形式为

$$U=\sum_{i=1}^{N}\frac{2\mu_i}{\alpha_i^2}(\bar{\lambda}_1^{\alpha_i}+\bar{\lambda}_2^{\alpha_i}+\bar{\lambda}_3^{\alpha_i}-3)+\sum_{i=1}^{N}\frac{1}{D_i}(J-1)^{2i} \tag{13}$$

式中：$\bar{\lambda}_i=J^{-\frac{1}{3}}\lambda_i$，$\lambda_i$ 为主伸长率；N、μ_i、α_i 为材料参数。求出 Ogden 模型的系数，结果如表 1 所示。

表 1　Ogden 模型参数

Table 1　Parameters of Ogden model

Constitutive equation	$i=1$	$i=2$	$i=3$
Coefficients μ_i/MPa	4.253×10^{-2}	3.889×10^{-5}	5.617×10^{-2}
Coefficients α_i	2.46	5.81	−0.117

对于推进剂中奥克托今和高氯酸氨颗粒，由于其强度比基体大几个数量级，可认为是弹性材料。其弹性模量和泊松比从文献中获得，分别为 $E_{HMX}=15.3$ GPa，$\upsilon_m=0.32$[17]；$E_{AP}=32.4$ GPa，$\upsilon_{AP}=0.14$[6]。高氯酸氨颗粒的大小为 130～140 μm，奥克托今颗粒大小约为 74 μm。

为了模拟推进剂在单向拉伸条件下的行为，计算采用如下边界条件：AB 边保持固定，AC、BD 边保持平直，CD 边沿 Z 向受均布位移作用，见图 6。

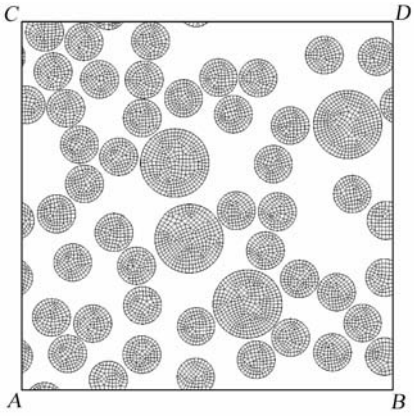


图 6　推进剂的有限元网格（体积分数为 63.6%）

Fig. 6　Mesh of finite element model of propellant (63.6% by volume fraction)

当界面发生脱粘后，为了避免界面完全脱粘导致的界面之间相互渗透，在界面处引入了接触算法。

4　计算结果与分析

通过逐步增加均布位移，获得不同应变条件下的应力，从而得到拉伸应力-应变曲线，如图 7 所示。可以看到，当应变较小时，应力与应变关系基本上是线性的。随应变增大，应力-应变曲线呈现非线性，达到最大应力后，推进剂逐渐失去承载能力。推进剂应力-应变曲线表现出明显的非线性和软化特征。推进剂界面损伤扩展曲线如图 8 所示，界面损伤分数定义为损伤界面的长度与总的界面长度之比。对比图 7 和图 8 可知，推进剂应力-应变曲线的非线性与细观界面脱粘密切相关，随外界载荷的增加，界面不断扩展，从而导致推进剂应力-应变曲线的非线性。为了详细分析推进剂在不同阶段下的细观损伤情况，给出了图 7 所示典型点下应力、应变分布，如图 9 所示。

图 9(a)给出了 A 点情况下的推进剂内最大主应变和 Von Mises 应力分布图。可以看出，在拉伸过程中，由于颗粒与基体界面是推进剂的薄弱环节，界面将产生脱粘。当颗粒产生脱粘时，在界面脱粘区域产生应力集中，使其附近的颗粒产生脱粘。另外，由于固体推进剂体积分数比较高，颗粒之间的相互作用比较明显，颗粒与基体之间的脱粘形成的微孔大小各不相同，脱粘形成的裂隙方向与所受的应力方向也不重合。

图 9(b)给出了 B 点情况下的推进剂内最大主

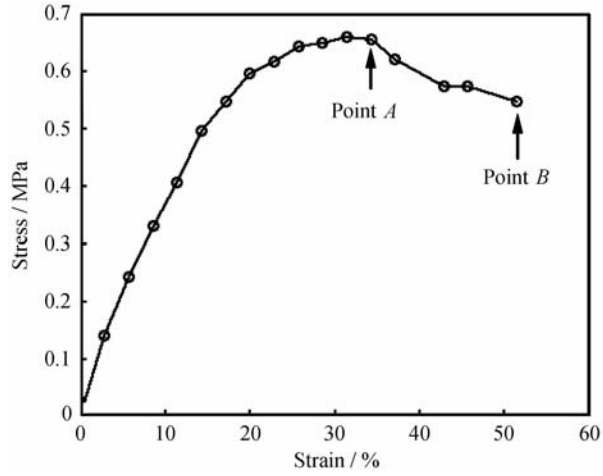


图 7　推进剂的宏观应力-应变曲线

Fig. 7　Macroscopic stress-strain curve of propellant

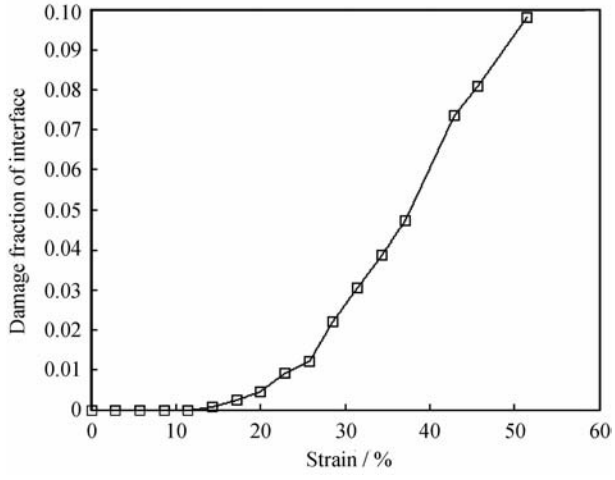


图 8　推进剂界面损伤扩展曲线

Fig. 8　Interface damage evolution curve of propellant

应变和 Von Mises 应力分布图。可以看出，随载荷的增加，界面不断扩展，颗粒与基体的分离程度也不断增加。界面脱粘后，由于颗粒不再承受应力，从而导致在颗粒脱粘形成的裂隙处产生应力集中。随着载荷的增大，这些应力集中处的微孔逐渐汇合，形成裂纹。但由于颗粒本身强度较大，颗粒一般不会产生断裂，这样，推进剂断裂时，裂纹在颗粒上下随机偏移，从而使断裂的推进剂表面产生凹凸不平，并且颗粒裸露在基体的表面，这在推进剂 SEM 试验中得到了证实。

5　结　论

（1）引入粘结界面单元可以有效地计算推进剂

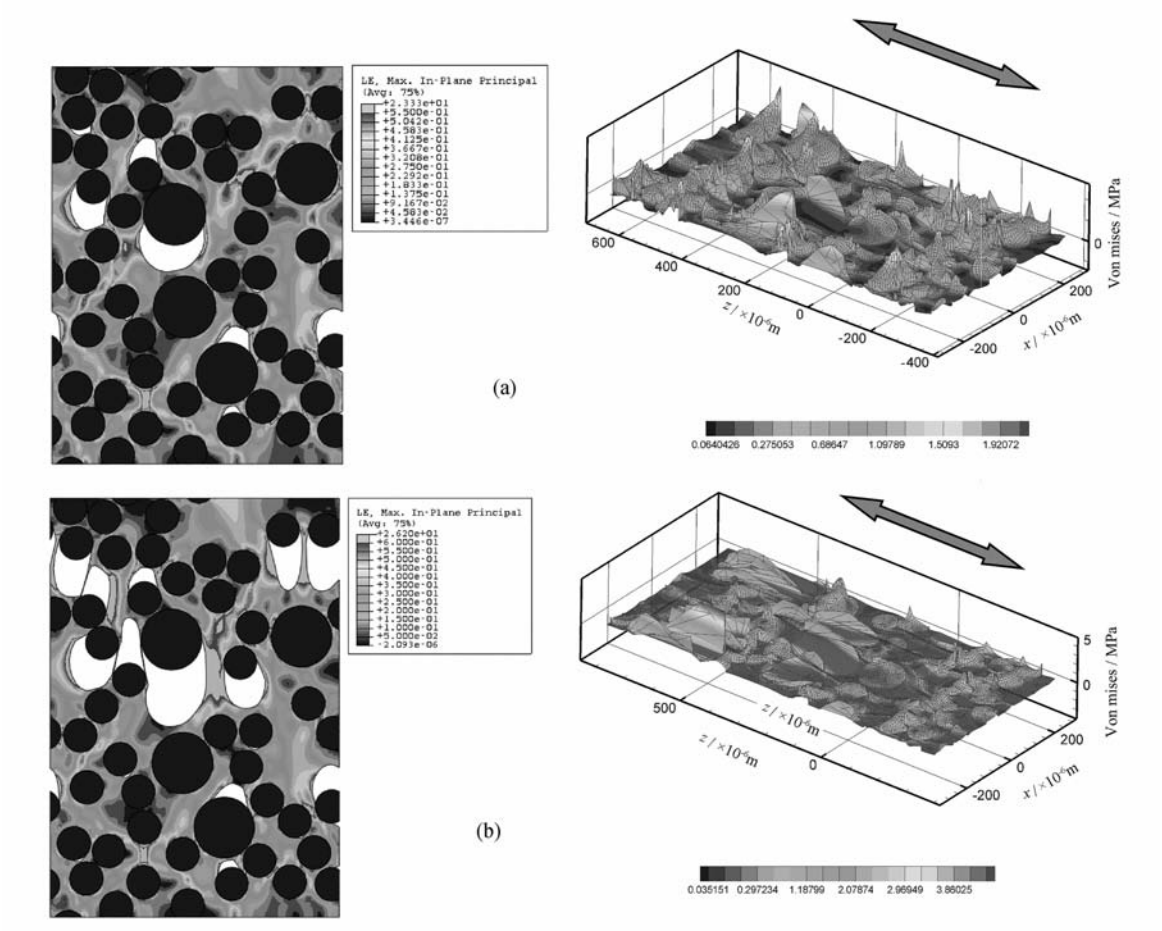


图 9　推进剂在图 7 中的 A 点(a)、B 点(b)处的主应变和 Von Mises 应力分布云图

Fig. 9　Contour of maximum principal strain and Von Mises stress of propellant at point A (a) and point B (b) in Fig. 7

的界面脱粘过程，从而获得了更为合理的推进剂内细观应力和应变分布。

(2) 推进剂在单向拉伸过程中呈现强烈的非线性，这与颗粒与基体界面脱粘有密切关系，进行推进剂的细观界面脱粘分析较好地解释了推进剂力学性能的非线性，并与试验观察结果相吻合。

参考文献：

[1] 侯林法. 复合固体推进剂 [M]. 北京：宇航出版社，1994：1-13.

[2] 李高春，邢耀国，王玉峰，等. 基于细观力学的复合固体推进剂模量预估方法 [J]. 推进技术，2007，28(4)：441-444.
Li Gaochun, Xing Yaoguo, Wang Yufeng, et al. A micromechanical method of the effective modulus estimation for the composite propellant [J]. Journal of Propulsion Technology, 2007, 28(4): 441-444.

[3] 曾甲牙. 丁羟基推进剂拉伸断裂行为的扫描电镜研究 [J]. 固体火箭技术，1999，22(4)：72-76.
Zeng Jiaya. Study on the fracture behavior of HTPB propellant by means of SEM [J]. Journal of Solid Rocket Technology, 1999, 22(4): 72-76.

[4] Bencher C D. Microstructural damage and fracture processes in a composite solid rocket propellant [J]. Journal of Spacecraft and Rockets, 1995, 32(2): 328-334.

[5] Zhong A X, Knauss W G. Analysis of interfacial failure in particle-filled elastomers [J]. Journal of Engineering Materials and Technology, 1997, 119: 198-204.

[6] Matous K, Inglis H M, Gu X. et al. Multiscale modeling of solid propellants: From particle packing to failure [J]. Composites Science and Technology, 2007, 67: 1694-1708.

[7] Matous K, Geubelle P H. Multiscale modeling of particle debonding in reinforced elastomers subjected to finite deformations [J]. International Journal for Numerical Methods in Engineering, 2006, 65: 190-223.

[8] 周储伟，杨　卫. 内聚力界面单元与复合材料的界面损伤分析 [J]. 力学学报，1999，31(3)：372-377.
Zhou Chuwei, Yang Wei. Cohesive interface element and interfacial damage analysis of composite [J]. Acta Mechanica

Sinica，1999，31(3)：372-377.

[9] Segurado J，Llorca J. A computational micromechanics study of the effect of interface decohesion on the mechanical behavior of composites [J]. Acta Materialia，2005，53：4931-4942.

[10] Tan H. The cohesive law for the particle matrix interfaces in high explosives [J]. Journal of the Mechanics and Physics of Solids，2005，53：1892-1917.

[11] 陈丽华，徐元铭，刘　博. 复合材料分层问题中界面层方法的数值研究 [J]. 复合材料学报，2010，27(3)：144-149.
Chen Lihua，Xu Yuanming，Liu Bo. Numerical study of cohesive zone approach for simulation of delamination in laminated composites [J]. Acta Materiae Compositae Sinica，2010，27(3)：144-149.

[12] Davila C G. Mixed-mode decohesion elements for analyses of progressive delamination [C] // Proc. 42nd AIAA/ASME/ASCE/AHS/ASC Structures，Structural Dynamics and Materials Conference. Washington：[s. n.]，2001：1-12.

[13] Rao S，Krishna Y. Fracture toughness of nitramine and composite solid propellants [J]. Materials Science and Engineering A，2005，403：125-133.

[14] 曾　东，方岱宁. 用界面元分析层状陶瓷的三点弯曲断裂性能 [J]. 应用基础与工程科学学报，2000，8(4)：398-404.
Zeng Dong，Fang Daining. Numerical analysis of fracture behavior of laminated ceramic in three-point bending [J]. Journal of Basic Science and Engineering，2000，8(4)：398-404.

[15] 史　佩，李高春，王玉峰. 固体推进剂颗粒填充模型的分子动力学模拟方法 [J]. 计算机与应用化学，2007，24(5)：665-668.
Shi Pei，Li Gaochun，Wang Yufeng. Generation of composite propellant filler packing model by molecular dynamics method [J]. Computer and Applied Chemistry，2007，24(5)：665-668.

[16] Diehl T. Two-dimensional and three-dimensional annlysis of nonlinear mechanics with hyperelastic material formulation [D]. New York：University of Rochester，1995.

[17] Banerjee B，Adams D O. Micromechanics-based determined of effective elastic properties of polymer-bonded explosives [J]. Physica B，2003，338：8-15.