

固体推进剂铝团聚模型

敖文, 刘佩进

(西北工业大学 航天学院 燃烧、流动和热结构国家级重点实验室, 西安 710072)

摘 要: 综述了固体推进剂铝团聚研究进展,对现有研究中存在的局限性进行了讨论,并分析了未来团聚模型的趋势。铝团聚物理过程可抽象为堆积、聚集和团聚3个阶段。现有团聚模型可分为5类,分别是经验模型、口袋模型、物理模型、随机装填模型和凝相边界层模型。目前缺乏高精度、宽适用性的模型来准确预测铝的团聚过程。团聚模型未来发展的趋势应具备能够预测团聚物粒度分布和计算量小两大优势。由于能描述团聚过程的本质,物理模型具有很好的研究前景。开展了5 MPa下含铝推进剂燃烧实验,采用高速显微拍摄技术获得推进剂燃面处铝颗粒的团聚直径,与 Hermesen 模型和 Salita 模型预测数据进行了比较,对于燃速分别为5.1 mm/s和8.0 mm/s的推进剂,Salita 模型对于团聚直径的预示误差分别为8.7%和9.6%,而 Hermesen 模型对于高燃速推进剂的预示误差为19.2%。总体看来,Salita 模型预示精度更为合理。

关 键 词: 固体火箭发动机; 固体推进剂; 燃烧; 团聚模型; 铝团聚

中图分类号: V512

文献标志码: A

Models of aluminum agglomeration in solid propellants

AO Wen, LIU Pei-jin

(Science and Technology on Combustion, Internal Flow and Thermal-structure Laboratory,
School of Astronautics, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

Abstract: The research progress on the aluminum agglomeration in solid propellants was reviewed. The limitations of present studies was discussed, followed by the analysis of valuable research directions of agglomeration models in future. The physical process of aluminum agglomeration can be divided into three stages, accumulation, aggregation and agglomeration. The present agglomeration models may be classified to five categories, which are empirical model, pocket model, physical model, random packing model and condensed-layer model, respectively. Highly accurate and widely applicable models used to predict the aluminum agglomeration behavior is still lacking. Developing new agglomeration models which can predict the size distribution of the agglomerates with low computational expense will be a hot issue in future. Physical model is promising due to its capability of the description of agglomeration nature. The combustion experiments of aluminized propellants was conducted at pressure of 5 MPa, and agglomerate diameters on the propellants burning surface were obtained by a high-speed camera coupled with a microscope. The experimental results were compared with the prediction results of Hermesen model and Salita model. The prediction errors of agglomeration diameter are 8.7% and 9.6% by Salita model, for propellants with burning rate of 5.1 mm/s and 8.0 mm/s, respectively, whereas the prediction error reaches 19.2% by Hermesen model for the high burning rate propellant. Overall, it is

收稿日期: 2016-09-02

基金项目: 国家自然科学基金(51506181); 中央高校基本科研业务费专项资金(3102015ZY083)

作者简介: 敖文(1988—),男,讲师,博士,主要从事金属燃烧和燃烧不稳定研究。

引用格式: 敖文,刘佩进. 固体推进剂铝团聚模型[J]. 航空动力学报,2017,32(5):1224-1233. AO Wen, LIU Peijin. Models of aluminum agglomeration in solid propellants[J]. Journal of Aerospace Power, 2017, 32(5): 1224-1233.

shown that Salita model has a more reasonable accuracy.

Key words: solid rocket motor; solid propellant; combustion; agglomeration model; aluminum agglomeration

现代固体火箭发动机固体推进剂普遍使用铝粉作为金属添加剂,以提高推进剂能量,抑制不稳定燃烧.但另一方面,固体推进剂燃烧过程中铝会发生团聚现象,带来两相流损失、推进剂能量特性下降、声场颗粒阻尼改变、发动机比冲降低等一系列影响.铝在推进剂燃面具有团聚的趋势,团聚物,尤其是大粒度的团聚物将给发动机工作和安全性带来严重影响.首先,大尺寸团聚物将增加两相流损失,导致发动机比冲下降.其次,金属颗粒过度团聚将导致铝的燃烧不完全,影响推进剂能量释放特性.再次,金属颗粒的团聚将改变发动机声场颗粒阻尼特性,可能引起燃烧不稳定.此外,团聚将增加发动机内的熔渣沉积,进而加剧发动机绝热层的烧蚀,影响发动机的工作安全性,这一现象在潜入式喷管发动机中更为显著.铝在推进剂燃面的团聚机理和影响因素十分复杂.固体推进剂燃速、燃面上升气流、团聚物在燃面停留时间尺度等因素,都将影响团聚物的形成,改变最终凝相燃烧产物形态,进而影响发动机性能.因此,掌握推进剂中团聚物形成机制、运动状态及粒度特性非常重要.

鉴于推进剂燃烧过程中铝的团聚对发动机性能和工作安全性影响重大,开展固体推进剂中铝颗粒的团聚过程和团聚物特性研究,揭示铝在推进剂燃面的团聚机理,获得团聚过程的变化规律及影响因素,探索降低推进剂燃面铝团聚的方法和途径,具有重要的科学意义和研究价值.铝团聚理论近 10 年来已经成为固体发动机领域的一个研究热点和难点.本文综述目前固体推进剂铝团聚理论有关研究,重点介绍讨论现有的团聚模型,剖析现有模型存在的问题和不足之处,并提出改进方向.本文所述内容可为固体发动机性能预示、燃烧稳定性分析、烧蚀和熔渣沉积模拟提供理论基础和途径.

1 固体发动机中铝的反应历程及团聚现象

固体发动机中铝(Al)的反应历程可分为两个阶段(图 1).首先是推进剂中的铝颗粒在燃面的逸出过程,其中一部分铝将发生团聚.在推进剂燃烧过程中,随着燃面退移,铝颗粒从推进剂内部

暴露至燃面.部分铝颗粒在燃面上停留、移动、并与邻近的其他颗粒聚集,形成大尺寸的团聚物,随气流运动离开燃面,进入高温燃烧室.另一部分未参与团聚的铝则直接脱离燃面进入燃烧室中.第 2 阶段是燃烧室中铝的燃烧过程.铝在燃烧时,气相的燃烧产物会凝结成液态的氧化铝,沉积在颗粒表面,形成一个氧化帽,使铝表面的气化速率、温度等参数的分布发生变化.经过燃烧的铝形成凝相燃烧产物(CCPs).一般认为 CCPs 有两种形式:团聚物(agglomerates)及氧化铝烟雾(smoke oxide particles, SOPs).前者是由团聚的铝燃烧形成大尺寸的氧化物,后者则由铝蒸气氧化而成的小尺寸的氧化铝颗粒.

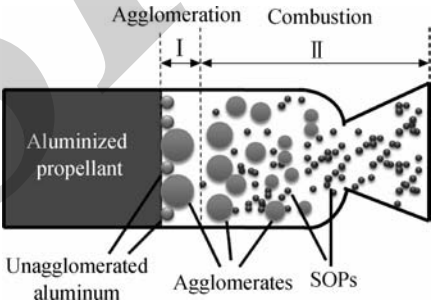


图 1 固体发动机中铝的反应历程示意图
Fig.1 Schematic of the evolution of aluminum in solid rocket motor

团聚对铝的燃烧过程将产生显著影响.通过实验观察到的推进剂燃面铝颗粒的典型团聚现象为^[1]:当推进剂燃烧时,燃面退移,金属颗粒逸出至火焰锋面(预混气体的反应区).铝被火焰及当地混合物的反应产生的热反馈加热,相邻的铝颗粒开始聚集黏合呈珊瑚状.当最终的扩散火焰接触到这一结构时,金属颗粒温度升高,发生点火,这一聚集体坍塌成一熔融液滴,脱离燃面.铝团聚模型的建立是基于对铝团聚这一物理过程的基本认识,图 2 给出了较为直观的铝团聚原理示意图.初始时刻,铝颗粒独立分散在推进剂基体中(图 2(a)).随着燃面退移,铝在燃面发生融化,随后相邻的颗粒开始堆积在一起(图 2(b)),这一过程称为堆积(accumulation).当局部地区铝颗粒堆积完成时,就形成了图 2(c)所示的聚集体(aggregation),聚集体具备两大特征:一是此时铝团尚未

成型,因此具有不规则的形状;另一个特征是未完全融化成液态铝,可看成是某种固液共存体.随着聚集体不断融化,铝团将逐渐坍塌,最终形成规则的圆球状铝滴,整个团聚过程完全结束,这一球形铝滴才能称为团聚物.

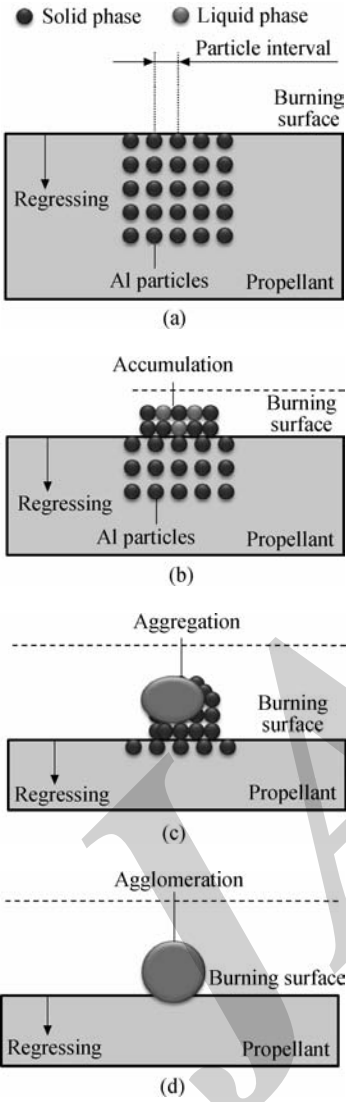


图 2 铝团聚原理示意图(堆积—聚集—团聚)
Fig. 2 Schematic of aluminum agglomeration process
(accumulation, aggregation, and agglomeration)

2 铝团聚研究现状分析

国内外研究者针对固体发动机中铝团聚和铝燃烧这两大科学问题开展了大量的研究,研究工作总体可以分为 3 个方面:①固体推进剂燃烧过程燃面铝的团聚机理研究,包括实验和团聚模型研究.由于捕捉铝团聚的微观动态过程难度大,实验研究依赖于精细化的燃烧诊断尤其是光学诊断技术,研究结果以定性分析为主.团聚模型方面,目前发展了几种物理数学模型来描述铝的团聚动

力学.②铝颗粒的燃烧研究.③CCPs 收集与分析研究,通过这一方法可以较为简便且定量地分析团聚物粒度分布等影响因素,进而揭示铝团聚机理.以上 3 个方面研究中,铝颗粒的燃烧机理自 20 世纪 50 年代以来被多个国家学者广泛研究,已积累了大量的成果,研究相对完善.而铝的团聚研究在 20 世纪 80 年代开始才陆续出现相关报道,由于团聚涉及的物理过程十分复杂,当中尚有许多问题有待研究.自 2000 年以来,铝的团聚机理和 CCPs 研究成为固体推进剂领域的研究热点之一,美国、俄罗斯、日本、意大利、加拿大、印度等多个国家的学者开展过相关研究,而国内在此领域的研究则非常薄弱,尤其针对团聚模型的研究近乎空白.

综合现有的固体推进剂铝团聚研究结果^[2-17],影响铝团聚的因素包括压力、AP(高氯酸铵)粒度级配、AP 粒度、氧化剂种类、铝粒度、铝质量分数、黏合剂性质、黏合剂种类、燃速、CCPs 距燃面距离、燃烧气氛、RDX(黑索金)及 HMX(奥克托金)、加速度、推进剂几何结构等.其中,压力、燃速、铝粒度、铝质量分数、AP 粒度级配、AP 粒度为主要影响因素.值得注意的是,推进剂配方和燃速两者是互相耦合的.在其他条件不变的前提下,改变铝的粒度或质量分数、AP 粒度级配、氧化剂类型等因素必然会引起燃速的变化,而燃速变化将影响团聚过程.另外,由于推进剂燃速随压力变化通常很敏感,压力的影响作用可归咎于燃速的影响.压力越大,燃速越高,团聚程度越低^[18].值得注意的是,新型的铝团聚抑制方法研究有望成为未来固体推进剂研究领域的热点之一^[19-20],应当重点关注和探索.研究采用点火性能较好的金属镁、镍、钛等对铝进行包覆后对团聚的抑制效果具有重要价值^[21].

虽然现有研究取得了一定的进展,但尚存在一定局限性.首先,主要影响因素对团聚的影响规律还不够清晰.如 Sambamurthi 等^[22]研究结果显示在 5~30 μm 范围内,随着初始铝粒度增大,收集到的 CCPs 中团聚物粒度先增大后减小.而 Liu^[23]和 Anand 等^[24]实验结果表明在 7~85 μm 范围内,团聚物粒度是随初始铝粒度增大而单调递减的,具体的原因有待通过系统的实验进行验证分析.其次,各影响因素缺乏横向比较.现有研究集中于对某一因素的纵向探讨,而对于影响因素相互之间的重要性缺乏定量比较,如同样增大铝和 AP 粒度 10 μm ,两者对于团聚的影响的差异性目前尚不得而知,即对于影响团聚的主导因素

目前并不明确.再次,相对实验研究,铝的团聚理论模型研究较为匮乏,而高精度宽适用性的团聚模型可谓是铝团聚领域研究的焦点之一,这也是本文的关注点.

3 团聚模型

铝在推进剂燃面的团聚是一个复杂的物理过程,包括一些列未知的竞争动力学过程,对其详细的细节过程进行理论分析和建模是非常困难的.关于铝团聚模型的研究前人作了一定的探索,目前形成了 5 类团聚模型,分别是经验模型、口袋模型、物理模型、随机装填模型、凝相边界层模型.其中,应用较为广泛的有经验模型、口袋模型和随机装填模型.在介绍团聚模型前,先说明几个基本概念.首先是团聚(平均)直径 D_{agglom} ,这是表征铝颗粒团聚程度最重要的参数之一,通常采用所有团聚颗粒的体积平均粒度 D_{43} 来表示,如式(1).另一个用来衡量团聚程度的参数是团聚分数 f_{agglom} ,定义为原始铝颗粒中参与团聚的颗粒分数,如式(2).有时也采用团聚物占全部颗粒的质量分数来计算团聚分数,如式(3).实际上,从推进剂燃面出来的铝滴有一部分是原始铝,另一部分则来自团聚,要想从实验中区分某个铝滴是否来自于团聚是十分困难的.通常可以认为很大的颗粒是团聚物,而很小的颗粒则未团聚.对于中间粒度的颗粒,必须规定一个临界的数值来判别,这个值叫做截断直径 D_{cut} (cut-off diameter).需要注意的是,截断直径本身并没有物理意义,它只是一个理论数值,可以利用这一数值从实验中提取铝颗粒最终粒度分布情况,然后通过实验来验证理论的准确性.截断直径的取值目前尚无统一标准,基于理论预示精度考量,Gallier 给出了较为合理的规定^[25],认为截断直径取决于铝的初始粒度.对于初始粒度是 $40\text{ }\mu\text{m}$ 的铝, D_{cut} 取 $80\text{ }\mu\text{m}$,而对于初始粒度是 $6\text{ }\mu\text{m}$ 的铝, D_{cut} 取 $22\text{ }\mu\text{m}$.

$$D_{\text{agglom}} = \left[\sum_{i=1}^{N_{\text{agglom}}} D_i^4 \right] / \left[\sum_{i=1}^{N_{\text{agglom}}} D_i^3 \right] \quad (1)$$

$$f_{\text{agglom}} = N_{\text{agglom}} / N \quad (2)$$

$$f_{\text{agglom}} = \left[\sum_{i=1}^{N_{\text{agglom}}} D_i^3 \right] / \left[\sum_{j=1}^N D_j^3 \right] \quad (3)$$

式(1)~式(3)中, D_i 为任一团聚物粒度, N_{agglom} 为团聚铝的数量, N 为所有铝颗粒的数量.

3.1 经验模型

经验模型早在 20 世纪 70 年代就出现,是最

简单的一类团聚模型.早期的团聚模型都是经验模型,通过实验拟合得到,以 Salita, Beckstead, Cohen 和 Strand 等为代表^[26].通常输入参数为推进剂的特性,输出为团聚直径和团聚分数等.式(4)~式(7)给出了一些典型的经验模型表达式.

团聚直径计算模型如下:

Hermesen 拟合模型^[27]

$$D_{\text{He}} = \frac{907.4}{r w_{\text{AP}}} \quad (4)$$

Salita 拟合模型^[28]

$$D_{\text{Sa}} = \frac{869}{r(w_{\text{AP}} + w_{\text{Al}})^2} \quad (5)$$

团聚分数计算模型如下:

Beckstead 拟合模型^[29]

$$f_{\text{Be}} = 5 \times 10^{-4} D_{\text{AP,c}} D_{\text{Al}}^{0.25} \cdot \left[\frac{1 + 30(w_{\text{AP,f}}/w_{\text{AP,c}})}{1 + 80(w_{\text{AP,f}}/w_{\text{AP,c}})^2} \right] \quad (6)$$

Cohen 拟合模型^[30]

$$f_{\text{Co}} = A_1 + 0.479 \lg D_{\text{AP,c}} + (D_{\text{AP,f}}/100) \cdot (2.01 - 0.48 \lg D_{\text{AP,c}}) - 1.964 \quad (7)$$

式中

$$A_1 = (w_{\text{AP,f}}/w_{\text{AP}}) [(0.38 \lg D_{\text{AP,c}} - 1.61) (D_{\text{AP,f}}/40) - 0.96 \lg D_{\text{AP,c}} + 4.13] \quad (8)$$

式(4)~式(8)中, r 为燃速; w_{AP} , $w_{\text{AP,c}}$, $w_{\text{AP,f}}$ 分别为 AP、粗粒度 AP、细粒度 AP 的质量分数; w_{Al} 为铝的质量分数; $D_{\text{AP,c}}$, $D_{\text{AP,f}}$ 分别为粗粒度 AP 和细粒度 AP 的粒度; D_{Al} 为铝的粒度.

经验模型在发动机设计时具有一定价值,尤其是考虑压力变化和铝粒度分布的情况下.但不足之处在于经验模型不能计算团聚物粒度分布,而团聚物粒度分布对于喷管侵蚀是非常重要的,只有大于某些临界尺寸的颗粒能够撞击喷管,发生侵蚀.此外,这些公式并未与能控制团聚的物理过程联系,因此难以改进和完善.

3.2 口袋模型

口袋模型弥补了经验模型的缺点,针对推进剂燃烧中铝团聚物理过程,Cohen 在 1983 年提出著名的“口袋模型”概念^[30].模型基本框架是:AP 颗粒之间的间隙假设成被 AP 包围的孤立的口袋,这些口袋由黏合剂 and 其所含铝颗粒组成.团聚物由贮存在这些口袋中的铝颗粒群形成.口袋的尺寸越小,团聚物尺寸及团聚程度就越小.由于口袋容积随 AP 粒度减小而减小,因此减小 AP 尺寸可以减小团聚,这一结论完全适用于 AP 粒度大于铝粒度的单级配推进剂.然而在实际的推进

剂中,由于不同维度的颗粒尺寸效应,此结论缺乏系统性.口袋模型的核心就是考虑多级配 AP 推进剂组成的有效口袋问题.

口袋模型的基本思想是团聚分数取决于(可认为成正比)融于黏合剂有效口袋体积的铝颗粒的数量.在逸出推进剂表面的金属颗粒中,未融化的颗粒被认为不参与团聚,而其他金属颗粒均参与团聚.金属融化分数可由颗粒热分析确定,有效口袋大小可由几何口袋体积得到.假设推进剂固体组分按立方体均匀分布,颗粒均呈球状.AP 粒度呈离散分布,小粒度 AP 阵列被大粒度 AP 阵列包裹.最小几何口袋由最小粒度 AP 决定,最大几何口袋由最大粒度 AP 决定.图 3 给出了双级配 AP 推进剂口袋模型示意图,具有粗细两个几何口袋体积.粗口袋体积是 8 个粗粒度 AP 颗粒包围的立方体阵列体积.通常,其中包含许多细口袋体积,并包括了所有铝的粒度分布.细口袋体积中包含黏合剂,但不一定包括铝的所有粒度分布.有效口袋由最小几何口袋尺寸决定,其中相应的 AP 应对铝颗粒同时满足“嵌入”及“局部点燃”2 个条件.所谓嵌入,意为口袋中包含的铝与旁边口袋中的铝是相互独立的.嵌入通过比较 AP 和铝的粒度分布得到.只要铝不被最小口袋嵌入,它将被分配到旁边更大的口袋中.所谓“局部点燃”,意味着口袋内 AP/黏合剂火焰须达到铝点火温度(1700~2200 K).“局部点燃”限制的依据是液态铝密度要低于固态铝,铝只有在重力小的情况下才能逸出燃面.如果最小口袋当地火焰温度太低,铝将被分配到旁边更大的口袋中.如果最小口袋(1 级口袋)能同时满足“嵌入”及“局部点燃”,团聚物将限于这一口袋中,点燃的团聚物随后将从这些口袋中逸出.如果不满足,铝颗粒就会跨越 1 级口袋进入旁边更大的口袋(2 级口袋),这意味着最终形成的团聚物尺寸将更大.

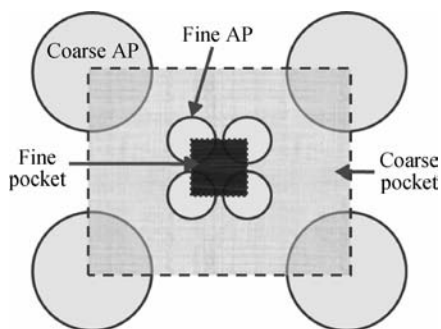


图 3 双级配 AP 推进剂口袋模型示意图

Fig. 3 Pocket model concept of bimodal AP propellant

以 3 级配推进剂来说明口袋模型具体的计算流程,双级配的计算方法可以在此基础上很容易实现.首先须计算几何口袋体积.根据模型原理,3 级配推进剂包括 3 种口袋,分别是粗口袋、中口袋和细口袋,其口袋体积分别为

$$V_3 = (\Delta_3 + D_{AP,3})^3 - (\pi/6)D_{AP,3}^3 \quad (9)$$

$$V_2 = (\Delta_2 + D_{AP,2})^3 - (\pi/6)D_{AP,2}^3 \quad (10)$$

$$V_1 = (\Delta_1 + D_{AP,1})^3 - (\pi/6)D_{AP,1}^3 \quad (11)$$

式(9)~式(11)中 Δ_i 为 AP 颗粒间距($i=1, 2, 3$); $D_{AP,i}$ 为 AP 粒度.

然后计算口袋中铝的融化分数 α . 首先计算得到通过黏合剂中的热波加热而融化的最大铝颗粒粒度,凡是小于等于这一粒度的铝颗粒将发生融化.在给定铝的粒度分布后,融化分数即可确定.这一分析基于两点:一是铝球体是等温的;二是黏合剂热储量巨大.由于铝具有很高的热扩散系数,在热波中可以认为是一个点热沉.铝对黏合剂中的热量和温度影响忽略不计,因为其热容相对较低,对推进剂燃速影响通常不大.燃速是决定逸出黏合剂表面的熔融铝颗粒数量的关键参数.燃速高,临界铝粒度小,铝融化分数小.以初始粒度 $30\mu\text{m}$ 的铝颗粒为例,当燃速为 5mm/s 时,融化分数为 50%;当燃速为 10mm/s 时,融化分数仅为 19%.

第 3 步是根据“嵌入”及“局部点燃”两个准则确定有效口袋体积 V_p .例如细口袋体积 V_1 同时满足“嵌入”及“局部点燃”两个条件,则有效口袋体积 $V_p = V_1$.若细口袋体积 V_1 不能同时满足“嵌入”及“局部点燃”两个条件,则 V_1 不能形成有效口袋,此时铝颗粒就会跨越进入中口袋体积 V_2 中,再判断 V_2 是否同时满足两大准则,若满足,则有效口袋体积 $V_p = V_2$.

最后基于之前得到的融化分数和有效口袋体积便可以得到最终的团聚分数

$$f_{\text{agglom}} = K(\alpha w_{\text{Al}} V_p)^{1/3} \quad (12)$$

式中比例系数 K 是综合考虑了堆积、初始团聚物的分布、团聚物在推进剂表面增长以及逸出等物理过程的参数,一般取 $1/150$, w_{Al} 为推进剂中铝的质量分数.

通过口袋模型,可以预测 AP 粒度分布、铝粒度和质量分数、压力、HTPB 等参数对团聚分数的影响.计算结果给出了 7 条可减小团聚的途径,包括:增加 AP 质量分数,降低黏合剂或铝质量分数;增加铝的粒度;存在最佳的细粒度 AP 粒度,约在 $20\sim 90\mu\text{m}$ 范围内;增加中粒度 AP 质量分数

(替代除细粒度 AP 以外的其他组分);减小中粒度 AP 的粒度;减小粗粒度 AP 的粒度和质量分数(如用更细的 AP 替代);增加燃速. 口袋模型虽然考虑了影响团聚的重要因素,但缺乏对团聚过程本身复杂机理的分析,同时仍然不能预示团聚物粒度分布.

3.3 物理模型

物理模型考虑了铝团聚复杂物理化学过程,其基本思想是先将复杂的团聚过程简化为相对简单的过程进行建模,再将所有简单模型综合成一个复杂模型,最早在 1999 年由 Babuk 等提出^[31],骨架层(skeleton layer, SL)是物理模型的核心. SL 是推进剂燃烧时燃烧表面存在一特殊层状结构,在铝团聚过程中扮演着重要角色. 铝颗粒在 SL 中发生燃烧,SL 区域越大,所形成的团聚物的数量越多. 物理模型包含很多实验观察到的过程的物理描述,分别是金属燃烧;金属和团聚物中的氧化物发生化学反应;SOPs 与团聚物的碰撞;团聚物结构的变化;团聚物与携带气流的作用. 物理模型能在一定程度上描述铝团聚现象的本质,但受限於各种过程的复杂度,模型尚有许多有待完善之处,如团聚物/燃面的吸附、气流的升力、液态颗粒在燃面的运动以及 SL 的建模等.

3.4 随机装填模型

由于可以预测铝团聚物的粒度分布,随机装填模型近年来应用广泛,2005 年由 Jackson 等提出^[26]. 模型以 AP 和铝颗粒在黏合剂中随机装填为出发点(图 4),首先利用装填算法构建复合推进剂的几何拓扑模型,在此基础上考虑相邻颗粒发生团聚的有关条件,计算所有铝颗粒的团聚情况.

装填模型又可分为模型 A 和模型 B 两类,均基于随机堆填的假设. 随机装填模型 A 描述的是球形团聚区域,认为发生团聚的条件是两个铝颗粒间距小于某一临界距离 S_d . 对于任意 2 个铝球 (i, j) ,半径分别为 r_i, r_j ,中心坐标为 (x_i, y_i, z_i) 和 (x_j, y_j, z_j) ,则其间距为

$$S_{i,j} = \sqrt{(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2 + (z_i - z_j)^2} - (r_i + r_j) \tag{13}$$

当满足

$$S_{i,j} < S_d \tag{14}$$

这两个颗粒将发生团聚. 具体算法如下:

1) 给定初始推进剂配方,构建 AP 和铝球在推进剂中的三维装填模型,如图 4 所示.

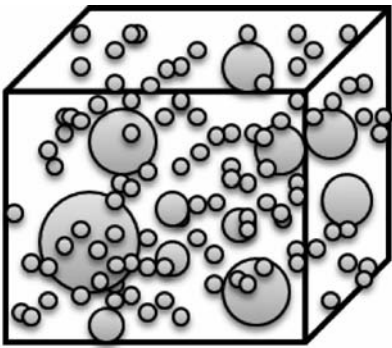


图 4 铝颗粒在推进剂中的随机装填示意图
Fig. 4 Sketch of aluminum particle random packing in propellant

- 2) 沿 z 轴方向从顶部到底部依次对铝颗粒排序,总共得到 N 个颗粒.
- 3) 设定临界距离 S_d 的取值.
- 4) 标记每一个铝颗粒一个初始值 $t_{ag}(i)=0$,并且标记团聚物数量 $N_{agglom}=0$.
- 5) 设 $i=1$.
- 6) 查找所有满足 $j>i$,且 $S_{i,j} < S_d$ 的颗粒.
- 7) 设 $i=i+1$;如果 $i < N$,继续返回步骤 6.
- 8) 对所有具有相同 t_{ag} 值的颗粒分组,这些颗粒组成了团聚物. 而所有 $t_{ag}=0$ 的颗粒将以未团聚的形式离开表面.
- 9) 计算团聚分数.

图 5 给出了利用上述算法计算得到的 7 个颗粒的团聚情况,最终颗粒 1, 2, 3 和 5 形成了一个团聚物,颗粒 4 和 6 形成另一个团聚物,而颗粒 7 未团聚.

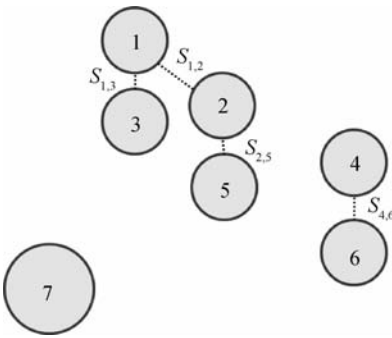


图 5 随机装填模型 A 示意图(以 7 个铝颗粒为例)
Fig. 5 Sketch of random packing model A (example of 7 aluminum partides)

随机装填模型 B 描述的是圆柱形团聚区域,考虑了燃面平均停留时间(垂直距离)和铝颗粒在推进剂燃面的水平运动(水平距离). 当垂直方向的气动力大于表面张力时,认为铝颗粒将与燃面

发生分离. 首先考虑燃面平均停留时间对团聚影响, 对于任意两个铝颗粒, 设其垂直方向距离为

$$d_{i,j} = (z_i - r_i) - (z_j + r_j) \tag{15}$$

定义在 τ 时间段内, 燃面沿法向的退移距离为

$$S_{m,1} = r_b \tau \tag{16}$$

式中 r_b 为平均燃速, τ 为颗粒在燃面的平均停留时间. 只有满足式(17), 垂直方向的团聚才可能发生.

$$d_{i,j} \leq S_{m,1} \tag{17}$$

考虑铝颗粒在燃面水平运动对团聚的影响, 对于任意两个铝颗粒, 设其水平方向距离为

$$g_{i,j} = \sqrt{(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2} - r_j \tag{18}$$

只有满足式(19), 水平方向的团聚才可能发生.

$$g_{i,j} \leq S_{m,2} \tag{19}$$

式中 $S_{m,2}$ 为与压力和推进剂组分有关的参数, 取值因不同推进剂而异. 综上, 只有同时满足式(17)和式(19), 两个颗粒才会团聚, 如图 6 所示.

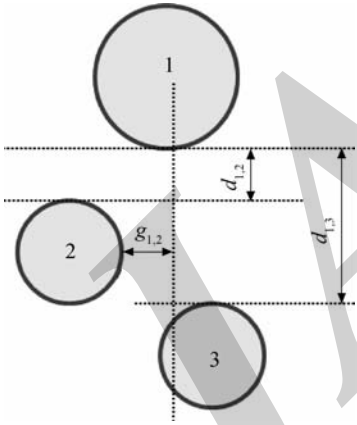


图 6 随机装填模型 B 示意图(以 3 个铝颗粒为例)
Fig. 6 Sketch of random packing pocket model B (example of 3 aluminum particles)

Gallier 等^[32]基于实验数据, 采用概率密度函数的方法对实验数据进行科学处理, 以规避体积分数分布带来的粗粒偏差, 提炼出团聚状态的凝相产物粒度分布, 并用数值计算方法对随机装填模型中临界距离 S_d 进行标定, 结果发现当 S_d 取值与初始铝颗粒平均粒度接近时, 模型预测与实验吻合度高. Gallier^[25]还结合随机装填模型和口袋模型, 建立了随机口袋模型来预测铝在推进剂燃面的团聚物尺寸和团聚分数. 模型采用装填方法考虑了推进剂实际微观结构, 对于发动机中 CFD 两相流计算提供准确的输入条件具有一定意义. Srinivas 等^[33], Maggi 等^[1]也基于随机装填

算法建立了团聚模型. 尽管随机堆填模型能够给出铝粒度的全部信息, 但其精度依赖于实验数据对临界距离参数 S_d , S_1 和 S_2 的校准, 而且模型并未不能合理地描述团聚内在的机理.

3.5 凝相边界层模型

凝相边界层模型是一个定性模型, 但它能清晰地阐述铝团聚的物理过程, 2010 年由以色列学者 Marvin 等^[34]建立. 模型假设推进剂燃面附近存在一个凝相边界层, 厚度为 λ , 颗粒均匀分布(图 7), 结合推进剂燃面退移和颗粒的运动速度分析团聚过程. 团聚所需时间取决于燃面退移速度、粒度和颗粒体积分数. 当凝相边界层被颗粒完全填充后, 团聚物由燃面脱离至气相产物. 燃面-颗粒运动机理包括两大过程, 颗粒清扫(sweeping)和颗粒合并(coalescence). 当燃面退移时间 $t=0$ 时, 燃面及其内部颗粒开始向下移动, 颗粒被清扫入基体内, 此时并未发生颗粒碰撞. 在 $t=t_c$ 之前, 颗粒仅在边界层表面累积. 当 $t>t_c$, 凝相边界层内颗粒开始发生碰撞、团聚. 由于表面温度高, 颗粒在燃面处的合并是最剧烈的. 当 $t=t_f$, 由于凝相边界层内颗粒密度达到饱和, 推进剂内部的颗粒不能轻易地渗透进入凝相边界层, 所以边界层底部构成了阻碍移动边界层、颗粒、团聚物运动的界面. 当 $t>t_f$, 团聚物逸出凝相边界层, 进入主流中. 很明显, 逸出开始得越早, 团聚物越小. 凝相边界层模型从全新的角度来描述铝颗粒团聚动力学过程, 但该模型目前仅是定性模型, 不能进行定量计算.

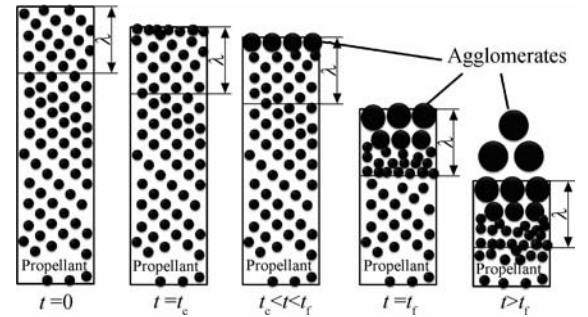


图 7 凝相边界层模型示意图
Fig. 7 Sketch of condensed-layer model

3.6 模型发展趋势分析

目前的团聚模型除了随机装填模型之外, 大部分模型仅能够预测团聚分数和团聚直径, 不能预测团聚物粒度分布, 更不能预测燃面出来所有铝颗粒的粒度分布. 而预测铝颗粒粒度分布具有

重要意义:一是可以为燃烧不稳定计算提供颗粒阻尼信息,而颗粒阻尼计算必须知道铝及其团聚物的粒度分布,不同粒度的颗粒其阻尼系数是不同的;二是可以用于模拟和预测两相流对绝热层的烧蚀及喷管熔渣沉积.但随机装填模型的缺点在于其中的临界距离参数是人为给定的,缺乏取值的科学依据,其预测精度的达到是“试凑”的结果,这很可能导致模型在预测实际情况时出现严重偏差.因此,迫切需要通过实验手段来对颗粒的团聚进行测量和分析,以获得模型中临界距离参数的实际数值或取值范围,建立更具科学依据的团聚模型,提高现有模型的预示精度和适用范围.另一方面,随机装填模型的计算基于装填算法,需要追踪成千上万个颗粒的数据,计算量巨大,因此在实际应用中存在不便之处.综上所述,建立一个能够预测团聚物粒度分布,同时计算量较小的模型,是团聚模型未来发展的趋势,也是固体推进剂铝团聚理论研究的关键.表1总结了目前5类团聚模型的优缺点,模型精度等级与计算量成正比,研究者可结合实际需要选择不同的模型来进行有关分析.

表1 不同团聚模型适用性比较

Table 1 Applicability of various agglomeration models					
模型	D_{agglom}	f_{agglom}	团聚物 粒度分布	完全粒 度分布	计算 精度
经验	○	○	×	×	很低
口袋	○	○	×	×	低
物理	○	×	×	×	高
随机装填	○	○	○	○	很高
凝相边界层	×	×	×	×	定性

注:○表示能够预测,×表示不能预测.

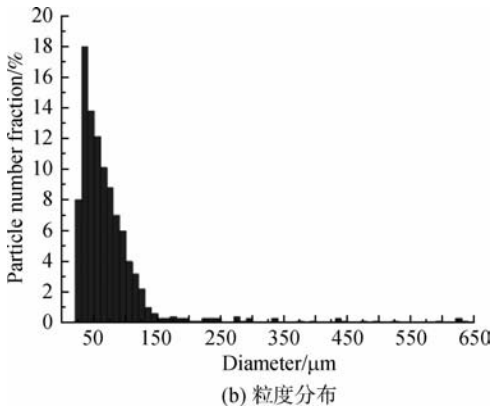
4 模型校验

为更为直观地阐述团聚模型的应用,本文采用高速显微拍摄技术,观测拍摄推进剂燃面处铝颗粒的团聚过程,获得团聚物的平均粒度,并将实验结果与模型预测结果进行了对比.实验系统详细介绍见文献[35].通过 Matlab 软件编程对图像进行处理,使用图像识别技术,从图像中识别确定铝的团聚物,并由程序自动得到图像中团聚物的尺寸.在图像处理中最后得到的尺寸是像素点的数目,每个像素点代表的真实长度尺寸需进行尺寸标定,最终从像素点数目转化为实际尺寸.

图 8(a)为通过 Matlab 处理得到的典型团聚物图像,取长宽之和的平均值为团聚物粒度.图 8(b)为最终得到的粒度分布结果.每次实验统计了超过 600 个颗粒的尺寸,由式(1)得到了团聚直径的统计学结果.本实验所测试的两组推进剂各组分对应的质量分数分别如下:AP 为 42%,Al 为 18%,RDX 为 15%,含能黏合剂为 23.5%,以及添加剂为 1.5%,由于添加剂的不同,燃速存在较大差异,环境压强为 5 MPa.采用的铝颗粒初始粒度为 16 μm ,根据 Gallier 对截断粒度的规定^[25], D_{cut} 取值约为 25.8 μm ,即拍摄得到的颗粒中尺寸在 25.8 μm 以上的颗粒才能认为是团聚物.同时,采用 Hermesen 模型和 Salita 模型两个经验模型对团聚直径进行计算,计算公式分别为式(4)和式(5).实验和模型预测的团聚直径对比情况如表 2 所示.从实验数据来看,燃速较高的推进剂铝团聚直径要小于燃速较低的推进剂,这一趋势与 Takahashi 等^[36-37],Liu^[23],Babuk 等^[38],Sambamurthi 等^[22]诸多研究人员得到的结果一致.根据口袋模型理论,燃速越高,口袋中的铝的融化分数就越小,而铝团聚直径正比于铝的融化



(a) 利用Matlab处理得到的图像



(b) 粒度分布

图 8 团聚直径的统计学测量
Fig. 8 Statical measurement of the agglomerates diameter

表 2 实验和模型预测的团聚直径对比

Table 2 Comparison of agglomerate diameter between experimental and predicted results

推进剂 编号	燃速/ (mm/s)	$D_{\text{exp}}/$ μm	$D_{\text{He}}/$ μm	$E_{\text{He}}/\%$	$D_{\text{Sa}}/$ μm	$E_{\text{Sa}}/\%$
1	5.1	435	424	-2.5	473	8.7
2	8.0	334	270	-19.2	302	-9.6

注:表中实验数据来自文献[39].

分数,因此团聚直径将越小。Hermsen 模型对低燃速推进剂预测误差(E_{He})仅有 2.5%,精度高于 Salita 模型的 8.7%。但对较高燃速推进剂,Hermsen 模型预测误差达到了 19.2%。Salita 模型对两组实验数据的预测误差(E_{Sa})均低于 10%,从这个角度看来,相对 Hermsen 模型,实际应用中采用 Salita 模型来对团聚物进行预示相对合理。

5 结 论

本文介绍了目前固体推进剂铝团聚的 5 类模型,分别是经验模型、口袋模型、物理模型、随机装填模型和凝相边界层模型。除了随机装填模型之外,其他模型仅能预测团聚分数和团聚直径,不能预测团聚物粒度分布,但随机装填模型计算成本很高。建立一个能够预测团聚物粒度分布、同时计算量较小的模型,是团聚模型未来发展的趋势之一,基于现有口袋模型做出改进是一个可能的方向。物理模型目前虽不成熟,但能描述铝团聚现象的物理化学本质,具有很好的研究前景。通过实验验证了 Hermsen 模型和 Salita 模型这两个典型的经验模型,结果表明 Salita 模型预示结果更为合理。

固体推进剂燃烧过程中铝的团聚对发动机工作过程具有重要影响,近年来成为固体推进剂和发动机领域一大研究热点。铝团聚的详细动力学过程是非常复杂的,目前尚存在许多未知的科学难题亟待研究,因此有必要从实验和理论两大方面对铝团聚的形成机理、变化规律和影响因素开展基础研究,力求在一些关键性科学问题上有所突破和进展,促进我国固体火箭发动机领域基础理论的不断丰富、提升和发展。

参考文献:

[1] Maggi F,Bandera A,Luca T L. Approaching solid propellant heterogeneity for agglomerate size prediction[R].

AIAA-2010-6751,2010.

[2] Oide S,Takahashi K,Kuwahara T. Characteristics of aluminum agglomeration in AP/AN composite propellants[J]. Science and Technology of Energetic Materials,2012,73(5/6):153-156.

[3] Mullen J C,Brewster M Q. Reduced agglomeration of aluminum in wide-distribution composite propellants[J]. Journal of Propulsion and Power,2011,27(3):650-661.

[4] Jayaraman K,Chakravarthy S R,Sarathi R. Quench collection of nano-aluminium agglomerates from combustion of sandwiches and propellants[J]. Proceedings of the Combustion Institute,2011,33(2):1941-1947.

[5] Hijlkema J,Prevot Y,Prevost M,et al. Particle size distribution measurements in the Keldysh Research Centre experimental setup at ONERA[R]. AIAA-2011-5712,2011.

[6] Jeenu R,Pinumalla K,Deepak D. Size distribution of particles in combustion products of aluminized composite propellant[J]. Journal of Propulsion and Power,2010,26(4):715-723.

[7] Jayaraman K,Chakravarthy S R,Sarathi R. Accumulation of nano-aluminium during combustion of composite solid propellant mixtures[J]. Combustion Explosion and Shock Waves,2010,46(1):21-29.

[8] Babuk V A,Vasil'ev V A,Potekhin A N. Experimental investigation of agglomeration during combustion of aluminized solid propellants in an acceleration field[J]. Combustion Explosion and Shock Waves,2009,45(1):32-39.

[9] Babuk V A,Belov V P,Khodosov V V,et al. Study of the structure of agglomerates with combustion of aluminized mixed condensed systems[J]. Combustion Explosion and Shock Waves,1988,24(5):552-557.

[10] Babuk V A,Dolotkazin I N,Sviridov V V. Simulation of agglomerate dispersion in combustion of aluminized solid propellants[J]. Combustion Explosion and Shock Waves,2003,39(2):195-203.

[11] Babuk V A,Vassiliev V A,Sviridov V V. Propellant formulation factors and metal agglomeration in combustion of aluminized solid rocket propellant[J]. Combustion Science and Technology,2001,163(1):261-289.

[12] Glotov O G. Condensed combustion products of aluminized propellants:Ⅲ effect of an inert gaseous combustion environment[J]. Combustion Explosion and Shock Waves,2002,38(1):92-100.

[13] Glotov O G. Condensed combustion products of aluminized propellants:Ⅳ effect of the nature of nitramines on aluminum agglomeration and combustion efficiency[J]. Combustion Explosion and Shock Waves,2006,42(4):436-449.

[14] Glotov O G,Karasev V V,Zarko V E,et al. Evolution of aluminum agglomerates moving in combustion products of model solid propellant[J]. Combustion of Energetic Materials,2002,5(1):397-406.

[15] Glotov O G,Onischuk A A,Karasev V V,et al. Size and morphology of the nanooxide aerosol generated by com-

- bustion of an aluminum droplet [J]. *Doklady Physical Chemistry*, 2007, 413(1): 59-62.
- [16] Glotov O G, Yagodnikov D A, Vorob'ev V S, et al. Ignition, combustion, and agglomeration of encapsulated aluminum particles in a composite solid propellant II: experimental studies of agglomeration [J]. *Combustion Explosion and Shock Waves*, 2007, 43(3): 320-333.
- [17] Glotov O G, Zhukov V A. Evolution of 100 μm aluminum agglomerates and initially continuous aluminum particles in the flame of a model solid propellant I: experimental approach [J]. *Combustion Explosion and Shock Waves*, 2008, 44(6): 662-670.
- [18] Babuk V A, Vasilyev V A, Malakhov M S. Condensed combustion products at the burning surface of aluminized solid propellant [J]. *Journal of Propulsion and Power*, 1999, 15(6): 783-793.
- [19] Yavor Y, Rosenband V, Gany A. Reduced agglomeration in solid propellants containing porous aluminum [J]. *Journal of Aerospace Engineering*, 2014, 228(10): 1857-1862.
- [20] Sippel T R, Son S F, Groven L J. Aluminum agglomeration reduction in a composite propellant using tailored Al/PTFE particles [J]. *Combustion and Flame*, 2014, 161(1): 311-321.
- [21] 敖文, 刘佩进, 吕翔, 等. 固体推进剂燃烧过程铝团聚研究进展 [J]. *宇航学报*, 2016, 37(4): 371-380.
AO Wen, LIU Peijin, LÜ Xiang, et al. Review of aluminum agglomeration during the combustion of solid propellants [J]. *Journal of Astronautics*, 2016, 37(4): 371-380. (in Chinese)
- [22] Sambamurthi J K, Price E W, Sigman R K. Aluminum agglomeration in solid-propellant combustion [J]. *AIAA Journal*, 1984, 22(8): 1132-1138.
- [23] Liu T K. Experimental and model study of agglomeration of burning aluminized propellants [J]. *Journal of Propulsion and Power*, 2005, 21(5): 797-806.
- [24] Anand K V, Roy A, Mulla I, et al. Experimental data and model predictions of aluminium agglomeration in ammonium perchlorate-based composite propellants including plateau-burning formulations [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2013, 34(2): 2139-2146.
- [25] Gallier S. A stochastic pocket model for aluminum agglomeration in solid propellants [J]. *Propellants Explosives Pyrotechnics*, 2009, 34(2): 97-105.
- [26] Jackson T L, Najjar F, Buckmaster J. New aluminum agglomeration models and their use in solid-propellant-rocket simulations [J]. *Journal of Propulsion and Power*, 2005, 21(5): 925-936.
- [27] Willoughby P G, Baker K L, Hermsen R W. Photographic study of solid propellant burning in an acceleration environment [J]. *Symposium on Combustion*, 1971, 13(1): 1033-1045.
- [28] Salita M. Survey of recent Al_2O_3 droplet size data in solid rocket chambers, nozzles and plumes [C] // *Proceedings of 21st JANNAF Combustion Meeting*. Sunnyvale, US: JANNAF, 1994: 1-17.
- [29] Beckstead M W. A model for solid propellant combustion [J]. *Symposium on Combustion*, 1981, 18(1): 175-185.
- [30] Cohen N S. A pocket model for aluminum agglomeration in composite propellants [J]. *AIAA Journal*, 1983, 21(5): 720-725.
- [31] Babuk V A, Vasilyev V A. Model of aluminum agglomerate evolution in combustion products of solid rocket propellant [J]. *Journal of Propulsion and Power*, 2002, 18(4): 814-823.
- [32] Gallier S, Yiao M. Aluminum agglomeration model calibration with improved experimental data [J]. *Journal of Propulsion and Power*, 2013, 29(5): 1252-1255.
- [33] Srinivas V, Chakravarthy S R. Computer model of aluminum agglomeration on burning surface of composite solid propellant [J]. *Journal of Propulsion and Power*, 2007, 23(4): 728-736.
- [34] Marvin V, Marvin L, Natan B. Effect of the combined burning-surface/particle motion on aluminum agglomeration [J]. *Journal of Propulsion and Power*, 2010, 26(2): 379-381.
- [35] 刘鑫, 刘佩进, 关昱, 等. 复合推进剂中铝的燃烧实验研究方法 [J]. *固体火箭技术*, 2015, 38(6): 833-836.
LIU Xin, LIU Peijin, GUAN Yu, et al. Experiment research method of aluminum in the composite propellant [J]. *Journal of Solid Rocket Technology*, 2015, 38(6): 833-836. (in Chinese)
- [36] Takahashi K, Oide S, Kuwahara T. Agglomeration characteristics of aluminum particles in AP/AN composite propellants [J]. *Propellants Explosives Pyrotechnics*, 2013, 38(4): 555-562.
- [37] Takahashi K, Nakadai K, Oide S, et al. Agglomerate and ignition characteristics of aluminum particles in AN composite propellants [J]. *Science and Technology of Energetic Materials*, 2013, 74(5/6): 144-152.
- [38] Babuk V A, Dolotkazin I N, Glebov A A. Burning mechanism of aluminized solid rocket propellants based on energetic binders [J]. *Propellants Explosives Pyrotechnics*, 2005, 30(4): 281-290.
- [39] LIU Xin, AO Wen, LIU Huan, et al. Aluminum agglomeration on burning surface of NEPE propellants at 3-5 MPa [J]. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 2017, 42(3): 260-268.