

doi:10.3969/j.issn.1001-8352.2016.04.002

Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂的配方优化及声辐射特征*

李成龙 关 华

南京理工大学化工学院(江苏南京,210094)

[摘要] 为了寻求具有宽频特征的燃烧型烟火水声药剂材料,基于爆炸声具有水声频带较宽的特点,将 Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂引入水下。首先,研究 Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂中 Pb₃O₄ 组分含量变化对 A 声压级的影响规律,并优选出 A 声压级最高的药剂,制成样品,并在水下点燃,利用水声测试系统研究其声频特征。结果表明,Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂 A 声压级随着 Pb₃O₄ 含量的增加而增大,当外加 Pb₃O₄ 的质量分数为 75%~100% 时,A 声压级最高,可达到 108.3 dB。将此 Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂与烟火药制成样品,在水下点燃,产生的水声频率覆盖 0~8 000 Hz,且出现锯齿形峰,0~1 000 Hz 范围内最大声压级为 116 dB。因此,Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂可作为一种潜在水声干扰材料。

[关键词] 烟火药;Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂;配方优化;水下燃烧;声压级

[分类号] TQ567

引言

烟火药是由氧化剂、可燃剂和黏合剂等组成的机械混合物。烟火药种类很多,可以产生声、光、烟、色、气动等特种效应。一般烟火药以燃烧特性为主^[1],利用烟火药水下燃烧可产生低频声辐射特征,美国专利^[2]报道了一种在港口等有限区域内用于扫除水雷的一种简便、低廉的低频、高强度水下噪声源,该声源装置利用的是烟火药水下燃烧与水作用形成的声能。国内,欧阳的华等^[3,4]的相关研究结果表明,具有脉动燃烧效应的烟火药水下燃烧频率主要集中在 0~2 000 Hz 频率范围,最高声压级为 51 dB;添加高热剂后,烟火药的水下能量主要集中在 0~5 000 Hz 范围。Li 等^[5]将烟火药与哈特曼结构组合进行水下试验,结果表明,增加该结构只能在 125~1 000 Hz 范围内增加一定声压级。由于烟火药水下燃烧产生的声辐射具有持续时间长、频率低、声源结构简单等其他声源无法比拟的优点,因此,燃烧型声源可满足水声对抗需要,但主频范围应有所拓展。而炸药水下声源具有宽频带特性^[6],试验证实^[7],水下爆炸声波从几赫兹到几万赫兹都有相当强的声功率,可完全覆盖各类水声器材的各个工作频段;但其声持续时间很短,只有 2 ms^[8]。

结合两种水下声源的优势,基于炸药爆炸水声

高功率、宽频带的特性,拟将具有微爆性能的烟火药引入水下,试图拓展烟火药燃烧产生水声频率。因此,本文首先对 Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂配方进行了优化,研究了 Pb₃O₄ 含量对 Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂声特征的影响规律,再对 A 声压级较高的药剂进行水下燃烧试验,探讨其水下声频特性。该研究对探索新型低频化、宽频带、高功率水声对抗器材具有一定的参考价值。

1 试验部分

1.1 药剂

Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂被点燃后,发生铝热反应,产物 MgO 和 Al₂O₃ 形成密封外壳,而产物中形成的 Cu-Pb 合金受大量热作用,迅速汽化冲破外壳,形成振动,产生爆炸效果。

经过氧平衡计算,微爆药剂基础配方为 $m(\text{CuO}) : m(\text{Mg}_4\text{Al}_3) = 7 : 3$,称量质量为 10 g 的上述原料,将 Pb₃O₄ 按比例加入,充分混合后形成均匀的微爆药剂。过筛,取 10 目筛下物、20 目筛上物在干燥箱中烘干,用于大气试验。将大气中 A 声压级值较高的配方取药剂 20 粒,用于水下试验。

1.2 大气中声响特征测试

仪器:声级计主要由单通道声学振动分析仪、前置放大器、声校准器、传声器、图谱分析软件数据处

* 收稿日期:2015-09-23

作者简介:李成龙(1990-),男,硕士,主要从事军事烟火技术的研究。E-mail:lclzz@126.com

通信作者:关华(1965-),女,博士,教授,主要从事无源干扰与光电对抗研究。E-mail:guanhu@njust.edu.cn

理系统等组成。其中,声学振动分析仪采用 B&K2250L;图谱分析软件采用 BZ-5503 Utility Software。

方法:测试试验在大气中进行,试验环境开阔,声级计与样品水平距离为 1 m,两者高度为 1.5 m。安置好试验仪器后,经测定,环境噪声在 55 dB 以下,声级测定仪参数设置为 A 计权网络和 1/3 倍频程,开始测量后点燃样品。

试验中的声级测定,假设样品 1[#]的 A 声压级为 $L_{A_{1i}}, L_{A_{1j}}$ 表示配方 1[#]的第 i 个样品在 1/3 倍频程下第 j 个频带上的声压级(其中 $i = 1, 2, 3, 4; j = 1, 2, 3, \dots, 32$)。根据噪声声级叠加公式(1),获得了配方 1[#]的各个样品 A 声压级:

$$L_{A_{1i}} = 10 \times \log_{10} \sum_j^{32} 10^{L_{A_{1j}}} \quad (1)$$

将配方 1[#]的 4 个样品 A 声压级值的算术平均值作为配方 1[#]的 A 声压级值:

$$L_{A_1} = \frac{\sum_i^4 L_{A_{1i}}}{4} \quad (2)$$

1.3 水下声辐射特征测试

仪器:水声测试仪器由水听器(B&K-8104)、电荷放大器(B&K-2610, 1 mV/Pa)、信号采

集分析系统等组成,测试范围 20 ~ 100 000 Hz。其中,消声水池规格为 15 m × 15 m × 8 m,其内注满自来水,装置与水听器之间的距离为 1 m,装置及水听器均放置在水下 1 m 处。测试装置见文献[3]。

方法:选出的药剂与 2 g 黑火药混合均匀,放置在直径 18 mm、高 30 mm 的金属管壳中,再将装药管壳放置在直径 100 mm、高 500 mm 的非密闭金属管壳中,仅在距端口 50 mm 处有 4 个直径为 20 mm 的对称的出气孔。测试方法参照国家标准^[9-10],采用恒定带宽,水听器采集到的信号经电荷放大器,再由信号采集分析系统记录下来,以 1 μPa 为参考声压,在计算机中进行分析和处理。

2 结果与讨论

2.1 $Mg_4Al_3/CuO/Pb_3O_4$ 爆响剂大气中的声辐射特征

Pb_3O_4 含量对 $Mg_4Al_3/CuO/Pb_3O_4$ 爆响剂影响较大,按照 Pb_3O_4 质量分数由低到高顺序依次添加到反应体系中,共设计 21 个配方样品,并按顺序燃放,每个配方有 4 个样品,总质量 1 g。试验测定样品的 A 声压级, $Mg_4Al_3/CuO/Pb_3O_4$ 爆响剂中 Pb_3O_4 质量分数变化对 A 声压级影响如表 1 所示。

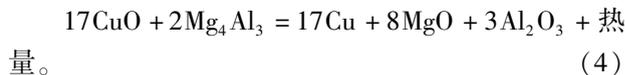
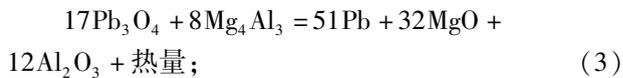
表 1 $Mg_4Al_3/CuO/Pb_3O_4$ 爆响剂中 Pb_3O_4 质量分数对 A 声压级的影响

Tab. 1 Effect of Pb_3O_4 content in $Mg_4Al_3/CuO/Pb_3O_4$ explosive agent on A-weighted sound pressure level

配方	外加 Pb_3O_4 质量分数/%	A 声压级/dB				平均值	氧平衡/(g · g ⁻¹)
		1	2	3	4		
1 [#]	0	78.4	83.9	77.8	83.6	80.9	-0.860
2 [#]	5	81.8	85.7	84.8	83.1	83.9	-0.815
3 [#]	10	83.3	84.8	86.2	84.0	84.6	-0.770
4 [#]	15	82.6	82.9	85.1	83.6	83.6	-0.725
5 [#]	20	78.2	86.3	81.5	84.0	82.5	-0.680
6 [#]	25	85.9	77.4	82.9	85.2	82.9	-0.635
7 [#]	30	89.0	85.3	84.3	82.8	85.4	-0.590
8 [#]	35	86.0	85.3	83.3	85.9	85.1	-0.545
9 [#]	40	85.0	90.2	82.1	84.6	85.5	-0.500
10 [#]	45	94.3	93.2	86.3	90.1	91.0	-0.455
11 [#]	50	90.1	87.4	90.6	92.6	90.2	-0.410
12 [#]	55	91.8	97.3	94.7	99.6	95.9	-0.365
13 [#]	60	93.6	92.3	91.1	99.4	94.1	-0.320
14 [#]	65	102.3	97.7	99.2	106.1	101.3	-0.275
15 [#]	70	104.3	103.3	106.8	105.7	105.0	-0.230
16 [#]	75	109.8	111.3	108.9	103.3	108.3	-0.185
17 [#]	80	109.0	103.8	108.5	102.3	105.9	-0.140
18 [#]	85	104.6	109.2	106.0	105.0	106.2	-0.095
19 [#]	90	103.3	106.1	110.0	101.6	105.3	-0.050
20 [#]	95	100.3	106.0	107.9	109.9	106.0	-0.005
21 [#]	100	101.0	107.8	105.3	107.3	105.4	0.040

由表 1 可知, Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂中 Pb₃O₄ 含量与其 A 声压级关系存在以下特点: 配方 1[#]~9[#], 即 Pb₃O₄ 质量分数在 0~40% 之间, A 声压级集中在 80.9~85.5 dB, 呈现缓慢的递增趋势; 配方 9[#]~16[#], 即 Pb₃O₄ 质量分数在 40%~75% 之间, A 声压级集中在 85.5~108.3 dB, 声压级递增较快; 配方 16[#]~21[#], 即 Pb₃O₄ 质量分数在 75%~100% 之间, A 声压级在 105.3~108.3 dB, 变化幅度不大。因此, 随着爆响剂中 Pb₃O₄ 含量增加, A 声压级逐渐增加, 当 Pb₃O₄ 质量分数为 75%, A 声压级达到最大值 108.3 dB, 再增加 Pb₃O₄ 含量, A 声压级变化不显著。

爆响剂主要组分为 Mg₄Al₃、Pb₃O₄ 和 CuO, 当药剂点火后, 三者发生铝热反应如下:



在这两个反应体系中, 各物质的标准生成热为: Pb₃O₄, 715 kJ/mol; MgO, 611 kJ/mol; Al₂O₃, 1 675.7 kJ/mol; CuO, 175 kJ/mol; 金属单质都为 0。经过计算, 反应(3)中每克 Pb₃O₄ 反应释放的热量为 2.76 kJ; 反应(4)中, 每克 CuO 反应释放的热量为 5.36 kJ。假设药剂混合均匀, 则配方中每克 Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂反应释放的热量见表 2。

表 2 每克爆响剂释放热量

Tab.2 Heat released by 1 g explosive agent in the reaction

配方	1 [#]	2 [#]	3 [#]	4 [#]	5 [#]	6 [#]	7 [#]
热量/kJ	3.75	3.70	3.66	3.62	3.59	3.55	3.52
配方	8 [#]	9 [#]	10 [#]	11 [#]	12 [#]	13 [#]	14 [#]
热量/kJ	3.49	3.47	3.44	3.42	3.40	3.38	3.36
配方	15 [#]	16 [#]	17 [#]	18 [#]	19 [#]	20 [#]	21 [#]
热量/kJ	3.34	3.33	3.31	3.30	3.28	3.27	3.26

由表 2 可知, 随着 Pb₃O₄ 含量的增加, 每克药剂的产热量有所下降, 配方之间最多相差 0.50 kJ。但结合表 1 可知, Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂的 A 声压级与药剂的放热量及氧平衡有着密切的关系。

当 Pb₃O₄ 质量分数不高于 40%, 氧平衡为 -0.86~-0.50 g/g, 放热量为 3.47~3.75 kJ, 而此时的 Pb₃O₄ 量还不能产生足够的 Cu-Pb 蒸汽, 而使多余的 Mg₄Al₃ 汽化热量不够, 导致 A 声压级较低。随着 Pb₃O₄ 质量分数增加至 40%~75%, 出现第二个阶段, 形成的 Cu-Pb 蒸汽逐渐增多, 引起空气振动

的反应也就越多。当 Pb₃O₄ 质量分数达到 80% 以上时, 配方的氧平衡也开始接近 0。反应中, 产物 Cu、Pb 与未参加反应的 Mg₄Al₃ 形成 Cu-Pb-Mg-Al 合金, 配方 17[#] 的放热量为 3.31 kJ, 恰好使该合金汽化, 进而达到较高的 A 声压级。

配方主成分为 CuO 和 Mg₄Al₃ 的时候, 放热量会很大, 多余的 Cu-Mg-Al 合金吸收释放的热量。但是, 含有 Pb₃O₄ 药剂的配方, 反应产物中沸点更低的 Cu-Pb-Mg-Al 合金会吸收其释放的热量, 而同样的热量会使更多质量的 Cu-Pb-Mg-Al 合金汽化。所以, 当配方中放热量与形成的合金汽化吸热量相匹配时候, 即反应热恰好能使反应产物的金属合金汽化, 进而蒸汽冲破 MgO 和 Al₂O₃ 形成的坚硬外壳, 使空气压缩, 产生较高的 A 声压级。

为了解声响药剂在大气中的声谱特征, 将样品声谱特征进行归纳总结, 发现其特点为: 400~5 000 Hz 的 A 声压级较高。其中, 与样品 16[#] A 声压级对应的声响频谱曲线如图 1 所示。

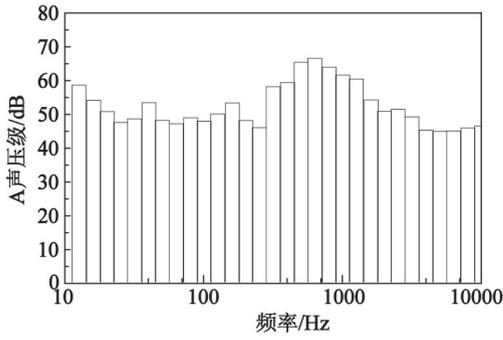
由结果可知, Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂中 Pb₃O₄ 含量的增加, 对频率范围 10~400 Hz 处影响较小, 对于频率大于 1 000 Hz 处的声压级提高有明显作用; 当 Pb₃O₄ 质量分数从 25% 加到 75%, 1 000 Hz 处声压级从 70 dB 上升到 80 dB。主要原因是 Cu-Pb-Mg-Al 合金的含量增加, 其汽化吸热量与反应放热量逐渐匹配, 冲破 MgO 和 Al₂O₃ 的能力更强, 表现为 1 000 Hz 以上频率 A 声压级增加。

2.2 Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂的水下声辐射特征

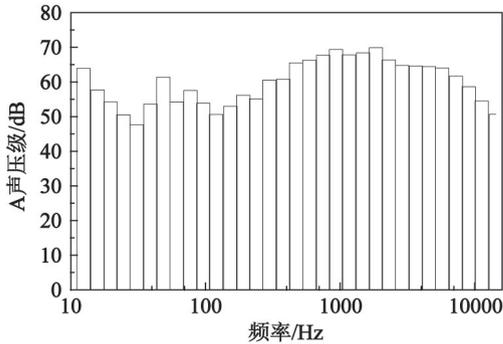
按照水下声辐射特征测试方法, 将 A 声压级较高的 Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂颗粒 (Pb₃O₄ 外加质量分数 75%) 放入水下, 点火后测试其水声特征, 获得的声谱特征如图 2 所示。

从图 2 可看出, Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响药在设计装置中作用, 在中、低频段都有覆盖。其中 0~1 000 Hz 对应最高声压级为 116 dB, 在 2 000~8 000 Hz 处, 最高声压级为 129 dB。本文试验结果相较于文献[3]中烟火药水下试验(图 3) 频率范围更宽(在 2 000~8 000 Hz 也有作用), 且低频处声压级也高出 65 dB。

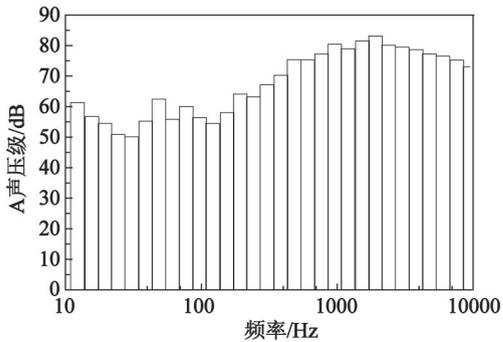
从图 1 与图 2 可知, Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ 爆响剂在大气中与水下声频的峰值处基本没有变化, 集中在 2 000 Hz 处附近, 且能量都集中在高频 1 000~8 000 Hz 范围。这主要是因为声波的频率决定于振动源的振动频率, 与介质无关。



(a) $w(\text{Pb}_3\text{O}_4) = 25\%$



(b) $w(\text{Pb}_3\text{O}_4) = 45\%$



(c) $w(\text{Pb}_3\text{O}_4) = 75\%$

图 1 不同 Pb_3O_4 含量的声频谱图

Fig. 1 Sound spectrum of the explosive agent with different Pb_3O_4 contents

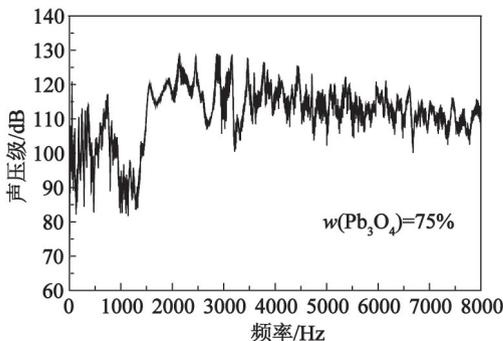


图 2 $\text{Mg}_4\text{Al}_3/\text{CuO}/\text{Pb}_3\text{O}_4$ 爆响剂水下声辐射作用频谱

Fig. 2 Sound spectrum of $\text{Mg}_4\text{Al}_3/\text{CuO}/\text{Pb}_3\text{O}_4$ explosive agent working underwater

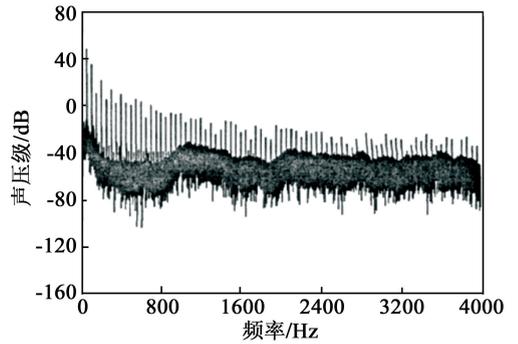


图 3 具有脉动燃烧效应的烟火药水下燃烧的频谱图^[3]

Fig. 3 Spectrum of pyrotechnic composition pulsating combustion underwater^[3]

分析表明,出现间断锯齿形尖峰的主要原因是:本试验中黑火药点燃后,引爆爆响药剂,引起金属管壳中的空气振动,经过金属壁传递入水中,进而引起水中的振动。此过程中每个爆响药粒都是一个独立的声源,而黑火药不断点燃的爆响药,直接导致几个声源产生的振动叠加,在不同频率处具有峰值。但是,整个过程相对于水中爆炸来说是一个持续的、相对稳定的过程,可以存在较长的作用时间,而不是水中爆炸能量瞬间释放。

3 结论

1) 不同含量的 Pb_3O_4 对 $\text{Mg}_4\text{Al}_3/\text{CuO}/\text{Pb}_3\text{O}_4$ 爆响药剂 A 声压级影响规律为:随着基础配方中 Pb_3O_4 含量的增加,其 A 声压级值改变不明显 (Pb_3O_4 质量分数为 0 ~ 40%);之后 A 声级值级不断升高,当 Pb_3O_4 质量分数为 75% ~ 100% 时,可得到较高 A 声压级值,微爆性能更好。其中,当 Pb_3O_4 外加质量分数 75%,每克药剂放热量为 3.33 kJ, A 声压级最高,为 108.3 dB,频率集中在 400 ~ 5 000 Hz。

2) $\text{Mg}_4\text{Al}_3/\text{CuO}/\text{Pb}_3\text{O}_4$ 爆响剂水下试验结果与烟火药水下燃烧相比,作用频率范围更广(烟火药为 0 ~ 2 000 Hz,爆响剂为 0 ~ 8 000 Hz),低频段最大 A 声压级高出 65 dB (烟火药为 51 dB,该爆响剂为 116 dB)。可以考虑作为一种燃烧式水声频率拓展材料。

参考文献

[1] 潘功配,杨硕.烟火学[M].北京:北京理工大学出版社,1997:42-44.
 [2] WATSON J C. Apparatus for sweeping acoustic mines: US2994268[P]. 1961-08-01.
 [3] 欧阳的华,潘功配,关华,等.具有脉动燃烧效应的烟火药水中燃烧声频特性[J].含能材料,2008,16(5):

- 603-605.
- OUYANG D H, PAN G P, GUAN H, et al. Experimental study on acoustic frequency property of pulsating combustion underwater for pyrotechnic composition [J]. Chinese Journal of Energetic Materials, 2008, 16(5): 603-605.
- [4] 欧阳的华, 潘功配, 关华, 等. 高热剂含量对烟火药水下燃烧声辐射特性的影响 [J]. 含能材料, 2010, 18(1): 55-57.
- OUYANG D H, PAN G P, GUAN H, et al. Effect of thermite content on acoustic radiation characteristics of pyrotechnic composition underwater combustion [J]. Chinese Journal of Energetic Materials, 2010, 18(1): 55-57.
- [5] LI J, GUAN H, SONG D M, et al. Application of Hartmann acoustic generator in source of underwater pyrotechnic combustion [J]. Advanced Materials Research, 2013, 787: 638-643.
- [6] 潘正伟, 焦善武, 顾晓辉. 水下爆炸: 高功率宽频带的水声干扰源 [J]. 南京理工大学学报, 1999, 23(6): 507-509, 526.
- PAN Z W, JIAO S W, GU X H. Underwater explosion is an acoustic interference source with high power and wide band [J]. Journal of Nanjing University of Science and Technology, 1999, 23(6): 507-509, 526.
- [7] 李宁, 陈建峰, 黄建国, 等. 各种水下声源的发声机理及其特性 [J]. 应用声学, 2009, 28(4): 241-248.
- LI N, CHEN J F, HUANG J G, et al. Sounding mechanisms and characteristics of various underwater sound sources [J]. Applied Acoustics, 2009, 28(4): 241-248.
- [8] 吴成, 廖莎莎, 李华新, 等. 水下爆炸的一些声学特性分析 [J]. 北京理工大学学报, 2008, 28(8): 719-722.
- WU C, LIAO S S, LI H X, et al. Analysis of acoustic characteristics for HE charge underwater explosion [J]. Transactions of Beijing Institute of Technology, 2008, 28(8): 719-722.
- [9] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局. 声学 水声换能器测量: GB/T7965—2002 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2002.
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China. Acoustic; measurement of underwater sound transducers: GB/T7965—2002 [S]. Beijing: China Standard Press, 2002.
- [10] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 声学 水下噪声测量: GB/T5265—2009 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2009.
- General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, Standardization Administration of the People's Republic of China. Acoustic; measurement of underwater noise: GB/T 5265—2009 [S]. Beijing: China Standard Press, 2009.

Optimization of Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ Explosive Agent and Its Acoustic Radiation Characteristics

LI Chenglong, GUAN Hua

School of Chemical Engineering, Nanjing University of Science & Technology (Jiangsu Nanjing, 210094)

[ABSTRACT] In order to obtain a combustible pyrotechnic material with a characteristic of broadband, which can be used as an underwater acoustic agent, Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ explosive agent was studied basing on the wide frequency band of underwater detonation. Effect of Pb₃O₄ content in Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ explosive agent on the A-weighted sound pressure level (SPL), was researched, and agent with the highest A-weighted SPL was selected. The sample made from the optimal agent was lighted underwater, and the acoustic features were analyzed by an acoustic test system. Results show that A-weighted SPL of the Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ explosive agent increases with the increasing of Pb₃O₄ content. When mass fraction of Pb₃O₄ is 75% -100%, its SPL is the highest, which can reach to 108.3 dB. When samples made from the explosive agent with the highest SPL and the pyrotechnic is lighted underwater, the acoustic frequency of detonation could cover from 0 to 8 000 Hz, jagged peaks appears, and the highest SPL is 116 dB in the range of 0 to 1 000 Hz. So pyrotechnic can be used as a potential acoustic jamming material.

[KEYWORDS] pyrotechnic; Mg₄Al₃/CuO/Pb₃O₄ explosive agent; optimization of formulation; underwater combustion; sound pressure level (SPL)