

第二法向应力差与气辅共挤出胀大的关系

邓小珍^{1,2}, 曾宇露¹, 肖 兵¹, 唐 刚¹, 张志杰¹

(1. 南昌工程学院 江西省精密驱动与控制重点实验室, 江西 南昌 330099)

(2. 上饶师范学院 江西省塑料制备成型重点实验室, 江西 上饶 334001)

摘 要: 采用 Phan-Thien-Tanner (PTT) 本构方程描述聚合物熔体共挤分层流动的黏弹行为, 建立了 C 形双层气辅共挤非等温流动理论模型, 并数值实现, 研究了熔体入口体积流率对挤出胀大率和第二法向应力差的影响, 同时分析了熔体挤出胀大率与第二法向应力差之间的规律性联系。研究结果表明, 当两熔体流率不相等时, 单层熔体挤出胀大率随着自身流率的增大而增大, 随着另一熔体流率的增大而减小, 甚至出现负值; 当两熔体流率相等时, 单层熔体挤出胀大率不随流率的变化而变化; 熔体整体挤出胀大率则不随流率的变化而变化, 始终接近零值; 熔体的挤出胀大率与第二法向应力差有关, 且正比于第二法向应力差的绝对值。

关键词: 第二法向应力差; 气辅共挤; 挤出胀大; 黏弹流动; 数值模拟

中图分类号: TQ320.66⁺3 **文献标志码:** A **文章编号:** 1674-3962(2019)05-0517-06

Relation Between Secondary Normal Stress Difference and Die Swell in Gas-Assisted Coextrusion Process

DENG Xiaozhen^{1,2}, ZENG Yulu¹, XIAO Bing¹, TANG Gang¹, Zhang Zhijie¹

(1. Jiangxi Province Key Laboratory of Precision Drive & Control, Nanchang Institute of Technology, Nanchang 330099, China)

(2. Jiangxi Province Key Laboratory of Polymer Preparation and Processing, Shangrao Normal University, Shangrao 334001, China)

Abstract: A 3D non-isothermal viscoelastic numerical model was found for a two-layer gas-assisted coextrusion through the C-profiled channel with PTT model describing the viscoelastic flow behavior of molten polymer and the simulation was carried out. The influence of melt inlet volumetric flow rate on die swell and secondary normal stress difference was researched and the relation between dying swell and secondary normal stress difference was investigated. The study results show that the melt swell ratio increases with its flow rate increasing and decreases with other melt flow rate increasing when two melts' flow rate is not equal. The melt flow rate has little influence on melt swell ratio when two melts' flow rate is equal. But the whole die swell ratio is always close to zero, whether the flow rate of the two melts is equal or not. In addition, the die swell ratio is proportional to the second normal stress difference in a gas-assisted coextrusion process.

Key words: secondary normal stress difference; gas-assisted coextrusion; die swell; viscoelastic flow; numerical simulation

1 前 言

聚合物气辅共挤成型技术是将气体辅助技术应用于共挤成型的一种新型聚合物加工成型工艺, 它不仅具有

传统共挤成型技术高效、低耗、环保等特点, 还能有效减小甚至消除传统共挤成型过程中普遍存在的挤出胀大^[1]、黏性包围^[2]、界面不稳定^[3]等内在缺陷。聚合物挤出胀大是指从挤出口模挤出的熔体横截面积大于口模横截面积的现象^[4], 影响聚合物挤出胀大的因素很多, 除聚合物本身的结构特性(如分子量、分子结构等)外^[5], 剪切速率、可回复剪切应变、熔体成型温度、熔体流率、口模构型等因素的影响也很重要^[6-8]。此外, 邓小珍等^[9]研究了传统共挤成型过程中两熔体入口层间界面位置(r)对挤出胀大和界面稳定性的影响, 研究结果表明, r 值对 C 形截面共挤制品的挤出胀大程度和界面稳定性均有一定影响; 张敏等^[10]研究了口模壁面质量、

收稿日期: 2017-09-13 修回日期: 2018-09-21

基金项目: 江西省教育厅科研技术研究项目(GJJ161124, GJJ161103); 江西省塑料制备成型重点实验室开放基金项目(JXSR201603); 江西省重点研发计划项目(20151BBE50044)

第一作者: 邓小珍, 女, 1977 年生, 副教授, Email: pearl617@163.com

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.2019.05.14

熔体在口模内的停留时间等对挤出胀大的影响规律, 研究表明, 提高口模壁面质量和延长熔体在口模内的停留时间均能有效减小挤出胀大率; Karagiannis 等^[11]研究了聚合物包覆共挤成型时, 芯、壳层熔体黏度差异对挤出胀大的影响, 研究表明, 相对于芯层熔体, 壳层熔体黏度对挤出胀大的影响更明显, 且壳层熔体黏度越大, 影响越明显; Keawkanoksilp 等^[12]实验研究了熔体剪切速率和口模温度对聚合物包覆共挤成型过程中挤出胀大的影响, 研究表明, 壳层熔体的剪切速率对挤出胀大的影响比芯层熔体更为明显, 适当提高口模温度有利于减小挤出胀大率; 任重等^[13]研究了口模壁面滑移条件对“回”形中空型材挤出胀大的影响, 研究表明, “回”形中空型材的挤出胀大率随着外壁面滑移系数的增大而增大, 随着内壁面滑移系数的增大而减小。然而, 有关聚合物熔体第二法向应力差与气辅共挤出胀大之间的规律性联系目前少有公开报道。

本文以 C 形双层共挤口模中两种不同物性的聚丙烯 (PP) 和聚苯乙烯 (PS) 熔体的流动过程为研究对象, 研究气辅共挤成型过程中, 聚合物熔体入口体积流率对挤出胀大和第二法向应力差的影响, 同时分析熔体第二法向应力差与入口体积流率之间的规律性联系。

2 数值模型

2.1 几何结构和有限元网格划分

本研究中 C 形双层共挤口模横截面几何形状及有限元网格如图 1 所示, 其中图 1a 为口模横截面几何形状示意图, 外层为 PP 熔体流动区 (半径 R 取值 15 mm), 内层为 PS 熔体流动区 (半径 r 取值 10 mm), 共挤口模沿熔体挤出流动方向 (z 轴方向) 分口模内气辅共挤流动区和口模外熔体自由胀大区两部分, 两部分长度均取 35 mm; 图 1b 为 C 形口模数值模型有限元网格图, 由于流道的对称性, 为节省计算资源, 模拟取 1/2 流道区域计算, 采用八节点全六面体单元将求解区域离散, 靠近壁面和层间界面处网格适当加密。

2.2 控制方程和本构方程

根据聚合物熔体在口模内的流动特点, 本研究假定口模内熔体的流动为不可压缩的全展层流, 忽略熔体惯性力、重力及表面张力的影响, 熔体与口模壁面间的气垫层则简化为完全滑移边界条件 (具体见“2.4 边界条件设置”), 由此, 可得聚合物气辅共挤成型流动的控制方程为:

$$\text{连续方程: } \nabla \cdot \mathbf{v}_k = 0 \quad (1)$$

$$\text{动量方程: } -p_k + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau}_k = 0 \quad (2)$$

$$\text{能量方程: } \rho_k C_{pk} \mathbf{v}_k \nabla T_k = \alpha_k \nabla^2 T_k + \boldsymbol{\tau}_k : \nabla \mathbf{v}_k \quad (3)$$

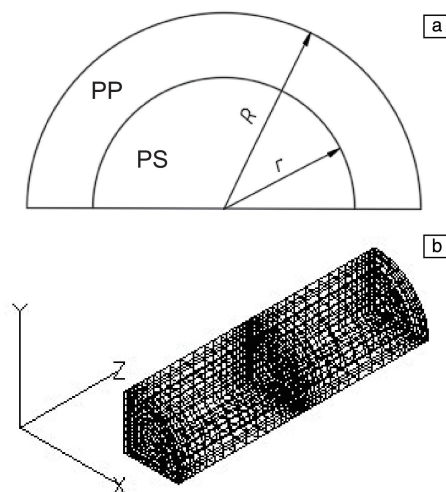


图 1 共挤口模横截面几何形状(a)及有限元网格图(b)

Fig. 1 Die cross-section geometry (a) and finite element mesh (b)

式中, ∇ 为哈密顿算子; \mathbf{v} 为速度矢量, m/s; $k = \text{I}, \text{II}$, 分别代表物性参数不同的 PP 和 PS 聚合物熔体; p 为熔体静压力, Pa; $\boldsymbol{\tau}$ 为偏应力张量, Pa; ρ 为熔体密度, kg/m^3 ; C_p 为熔体定压比热容, $\text{J}/(\text{kg} \cdot \text{K})$; T 为熔体温度, K; α 为熔体导热系数, $\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 。

本构方程采用能较好描述单相或多相聚合物熔体在挤出口模内分层流动行为和口模外挤出胀大行为的 Phan-Thien-Tanner (PTT) 微分黏弹本构方程^[14], 其表达式为:

$$\exp \left[\frac{\varepsilon \lambda}{(1 - \eta_r) \eta_0} \text{tr}(\boldsymbol{\tau}_1) \right] \boldsymbol{\tau}_1 + \lambda \left[\left(1 - \frac{\zeta}{2} \right) \frac{\nabla}{\tau_1} + \frac{\zeta}{2} \frac{\Delta}{\tau_1} \right] = 2(1 - \eta_r) \eta_0 D \quad (4)$$

式中, ε 为与熔体拉伸特性有关的材料参数; λ 为松弛时间, s; η_r 为黏度比, $\eta_r = \frac{\eta_1}{\eta_0}$, 其中 η_1 为熔体零剪切黏度中的黏性分量; η_0 为熔体零剪切黏度, $\text{Pa} \cdot \text{s}$; ζ 为与熔体剪切黏度有关的材料参数; $\frac{\nabla}{\tau_1}$ 为偏应力张量 $\boldsymbol{\tau}_1$ 的上随体导数, $\frac{\nabla}{\tau_1} = \frac{D\boldsymbol{\tau}_1}{Dt} - \boldsymbol{\tau}_1 \cdot \nabla \mathbf{v} - \nabla \mathbf{v}^T \cdot \boldsymbol{\tau}_1$; $\frac{\Delta}{\tau_1}$ 为偏应力张量 $\boldsymbol{\tau}_1$ 的下随体导数, $\frac{\Delta}{\tau_1} = \frac{D\boldsymbol{\tau}_1}{Dt} + \boldsymbol{\tau}_1 \cdot \nabla \mathbf{v}^T + \nabla \mathbf{v} \cdot \boldsymbol{\tau}_1$; D 为形变速率张量, $D = \frac{1}{2}(\nabla \mathbf{v}^T + \nabla \mathbf{v})$ 。

熔体黏度对温度的依赖性采用阿伦乌斯 (Arrhenius) 实用表达式:

$$\eta = \eta_0 \exp \left(\frac{E}{RT} \right) \quad (5)$$

式中, η 为熔体黏度, $\text{Pa} \cdot \text{s}$; E 为熔体的活化能, kJ/mol ; R 为气体常数 $8.32 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$ 。

2.3 熔体物性参数及工艺条件

模拟研究中熔体温度设定为 473.15 K, 环境温度设定为 298.15 K, 两熔体入口体积流率分别设定为 3×10^{-6} 、

4×10^{-6} 、 5×10^{-6} 、 6×10^{-6} 、 $7 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ (具体见“3 模拟结果及分析”), 文章研究用材料物性参数及 PTT 本构模型参数^[1, 4]如表 1 所示。

表 1 熔体物性参数及 PTT 本构模型参数^[1, 4]

Table 1 Material property and PTT model parameters^[1, 4]

| Materials | $\rho/(\text{kg} \cdot \text{m}^{-3})$ | λ/s | $\eta_0/(\text{Pa} \cdot \text{s})$ | ε | ζ | η_τ | $E/(\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1})$ | $C_p/(\text{J}/(\text{kg} \cdot \text{K}))$ | $\alpha/(\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K}))$ |
|-----------|--|--------------------|-------------------------------------|---------------|---------|-------------|---------------------------------------|---|---|
| PP | 910 | 0.1 | 1500 | 0.16 | 0.25 | 1/9 | 45 | 2800 | 0.142 |
| PS | 1030 | 0.2 | 2700 | 0.23 | 0.18 | 1/9 | 94 | 2040 | 0.167 |

2.4 边界条件设置

边界条件中用 v_n 、 v_s 、 f_n 和 f_s 分别表示边界面上的法向速度、切向速度、法向应力和切向应力, 具体设置如下:

(1) 熔体入口: 假设入口处熔体流动为全展流, 即满足 $\partial v_z / \partial z = 0$ 、 $v_x = v_y = 0$, 其中 z 方向为熔体共挤出流动方向。入口处恒温条件为热力学边界条件。

(2) 共挤壁面: 将气垫层简化为完全滑移边界条件, 则熔体呈完全滑移状态挤出, 即 $f_s = 0$ 、 $v_n = 0$ 。设定壁面为恒温条件。

(3) 熔体层间界面: 满足动力学条件 $f_{nl} = f_{nII} = f_{sl} = f_{sII}$ 和运动学条件 $v_{sl} = v_{sII}$ 、 $v_n = 0$ 。界面上温度连续、热通量连续, 即满足 $T_{nl} = T_{nII}$ 、 $q_{nl} = q_{nII}$ (q 为热通量)。

(4) 自由胀大表面: $f_n = f_s = 0$; $v_n = 0$ 。自由胀大表面设定为恒温环境温度。

(5) 口模对称面: $f_n = 0$; $v_n = 0$ 且 $T_{nl} = T_{nII}$ 、 $q_{nl} = q_{nII}$ 。

(6) 自由胀大末端: $f_n = 0$; $v_s = 0$ 。

3 模拟结果及分析

3.1 熔体入口体积流率对气辅共挤出胀大的影响

聚合物熔体挤出胀大程度一般采用挤出胀大率来衡量, 根据挤出胀大率计算公式(式 6)^[4], 可计算得挤出胀大率与熔体入口流率之间的关系如图 2 所示, 其中图 2a 为 PS 熔体流率 Q_{ps} 取 $3 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$, PP 熔体流率 Q_{pp} 分别取 3×10^{-6} 、 4×10^{-6} 、 5×10^{-6} 、 6×10^{-6} 、 $7 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ 时, 熔体流率与挤出胀大率之间的关系; 图 2b 为 PP 熔体流率取 $3 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$, PS 熔体流率分别取 3×10^{-6} 、 4×10^{-6} 、 5×10^{-6} 、 6×10^{-6} 、 $7 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ 时, 熔体流率与挤出胀大率之间的关系; 图 2c 为 PP 和 PS 两熔体流率相等且同时取 3×10^{-6} 、 4×10^{-6} 、 5×10^{-6} 、 6×10^{-6} 、 $7 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ 时, 熔体流率与挤出胀大率之间的关系。

$$B = \frac{A - A_0}{A_0} \times 100\% \quad (6)$$

式中, B 为熔体挤出胀大率, %; A 为挤出熔体自由胀大末端横截面积, mm^2 ; A_0 为共挤口模横截面积, mm^2 。

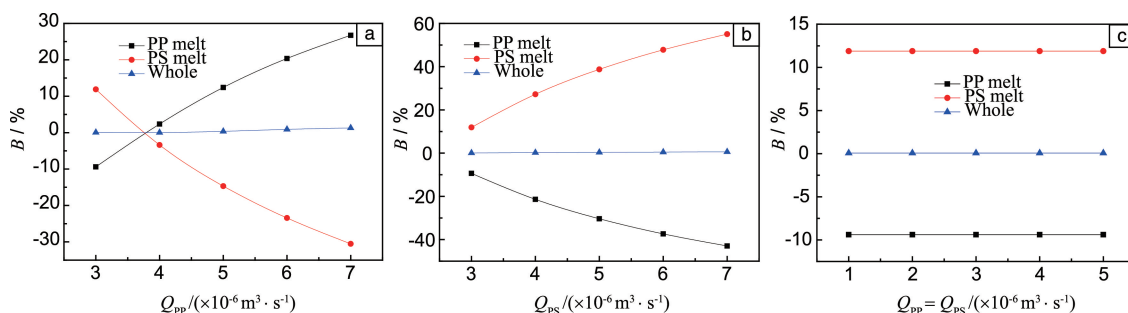


图 2 PP 熔体(a)、PS 熔体(b)、PP 和 PS 熔体(c)流率与挤出胀大的关系曲线

Fig. 2 Relation curves between PP (a), PS (b) and PP & PS (c) melt flow rate and die swell

由图 2a 可知, 当 PS 流率不变, PP 熔体流率变化时, PS 熔体的挤出胀大率随着 PP 熔体流率的增大而减小, B 值由正值逐渐减小为负值, 实际挤出成型时表现为由离模膨胀逐渐转变为离模收缩; PP 熔体的挤出胀大

率随着 PP 流率的增大而增大, B 值由负值逐渐增大为正值, 实际挤出成型时表现为由离模收缩逐渐转变为离模膨胀。由图 2b 可知, 当 PP 熔体流率不变, PS 熔体流率变化时, PS 熔体始终呈现离模膨胀现象, B 值为正且随

着 PS 熔体流率的增大而增大, 即离模膨胀现象增强; PP 熔体始终呈现离模收缩现象, B 值为负且随着 PS 流率的增大而减小, 即离模收缩现象增强。由图 2c 可知, 当 PP 和 PS 流率相等且同时变化时, PS 熔体呈现离模膨胀现象, B 值为一定值, 即熔体的离模膨胀现象不随熔体流率的变化而变化; PP 熔体呈现离模收缩现象, B 值亦为一定值, 即熔体的离模收缩现象不随熔体流率的变化而变化。然而, 不论 PP 和 PS 熔体入口体积流率如何变化, 熔体共挤出的整体胀大率 B 值均接近零值, 最大不超过 1%。

由此可知, 气辅共挤成型技术因在熔体与口模壁面间形成了稳定的气垫膜层, 使熔体在口模内呈完全滑移

流动, 基本能消除传统共挤成型过程中存在的熔体整体挤出胀大现象, 且不受熔体流率波动的影响。

3.2 熔体入口体积流率对第二法向应力差的影响

聚合物熔体流动时, 与流动方向垂直的两个方向上的法向应力之差称为第二法向应力差, 常用 N_2 表示。图 3 和图 4 分别为 PP 和 PS 熔体流率与第二法向应力差之间的关系, 其中图 3 为 PS 熔体流率取定值 $3 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$, PP 熔体流率分别取 3×10^{-6} 、 4×10^{-6} 、 5×10^{-6} 、 6×10^{-6} 、 $7 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ 时, 两熔体外表面和层间界面上的第二法向应力差; 图 4 为 PP 熔体流率取定值 $3 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$, PS 熔体流率分别取 3×10^{-6} 、 4×10^{-6} 、 5×10^{-6} 、 6×10^{-6} 、 $7 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ 时, 两熔体外表面和层间界面上的第二法向应力差。

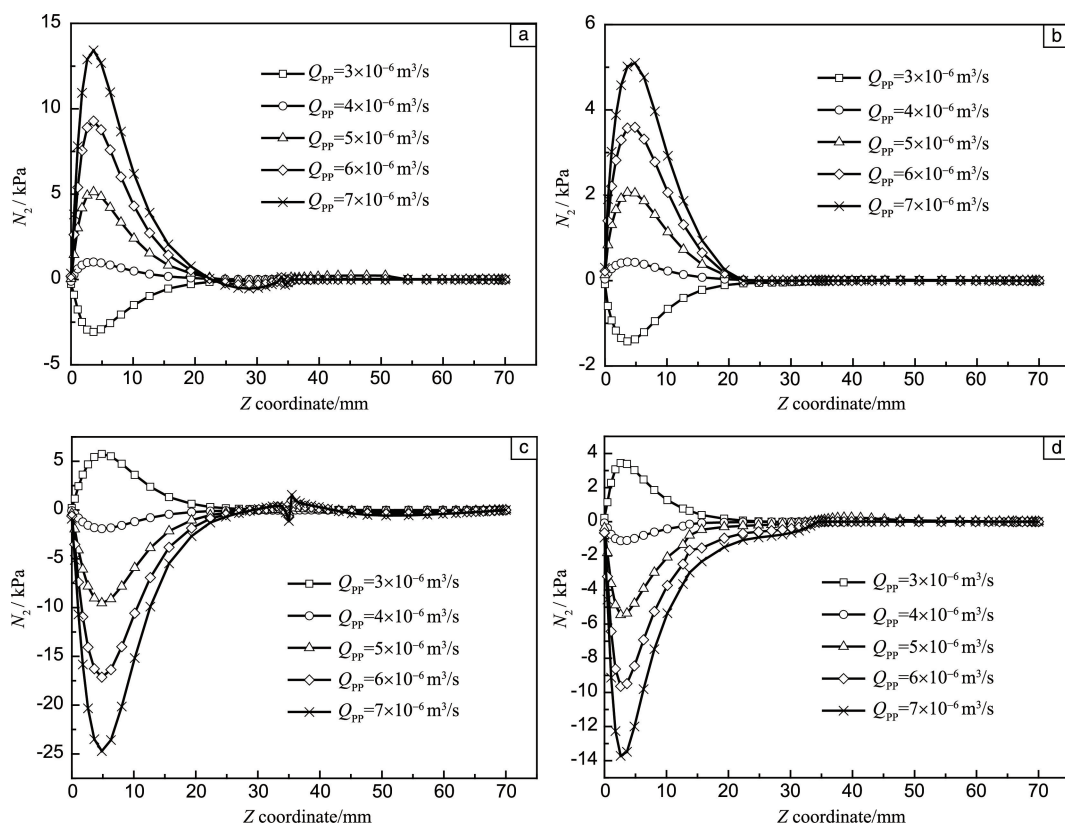


图 3 PP 熔体流率与第二法向应力差 N_2 的关系: PP 熔体外表面(a)、界面(b)上的 N_2 , PS 熔体外表面(c)、界面(d)上的 N_2

Fig. 3 Relation between PP melt flow rate and N_2 : N_2 on PP melt surface (a) and interface (b), N_2 on PS melt surface (c) and interface (d)

由图 3 可知, 不管在外表面还是界面上, 当 PP 流率取 $3 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ 时, PP 熔体的第二法向应力差为负值, 随着 PP 流率的增大, PP 熔体的第二法向应力差由负值变为正值, 其值逐渐增大; PS 熔体的第二法向应力差情况则与 PP 熔体相反, 不管在外表面还是层间界面上, 当 PP 流率为 $3 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ 时, PS 熔体的第二法向应力差为正值, 随着 PP 流率的增大, PS 熔体的第二法向应力

差由正值变为负值, 其绝对值逐渐增大。

由图 4 可知, 不管在外表面还是层间界面上, PP 熔体的第二法向应力差均为负值, 随着 PS 流率的增大, 其绝对值逐渐增大; PS 熔体的第二法向应力差情况则与 PP 熔体相反, 不管在外表面还是层间界面上, PS 熔体的第二法向应力差均为正值, 随着 PS 流率的增大, 其值逐渐增大。

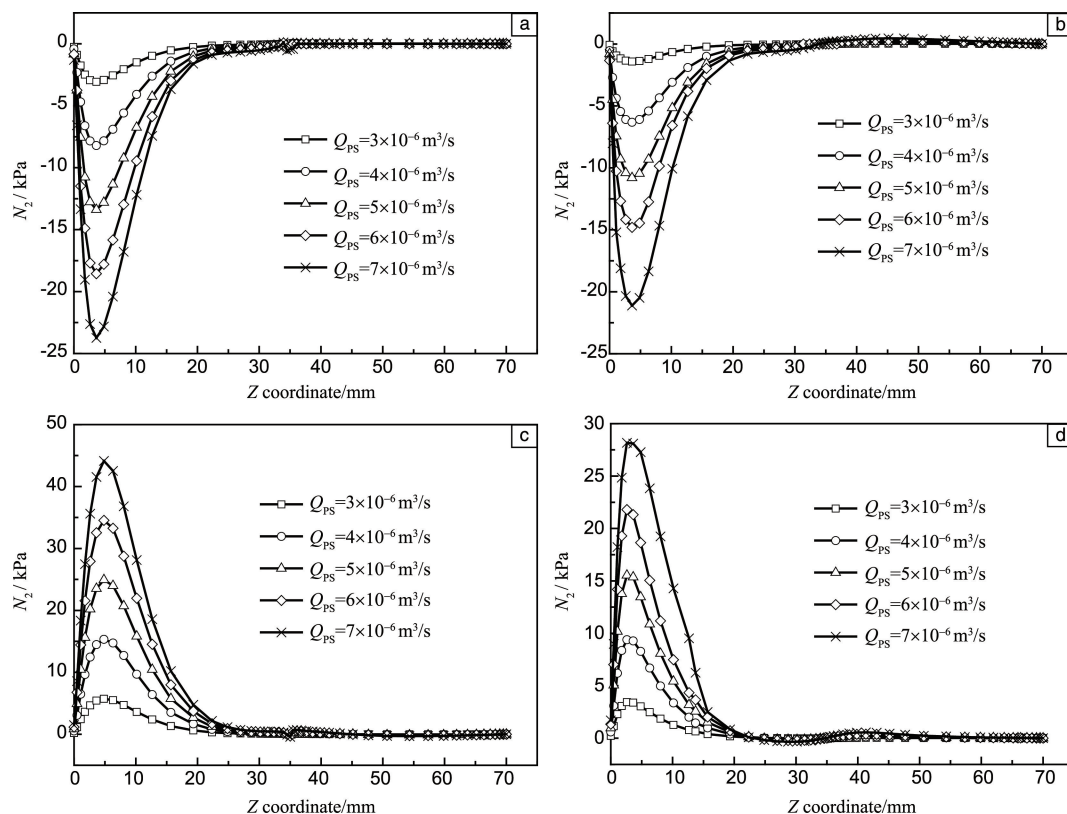


图4 PS熔体流率与第二法向应力差的关系: PP熔体外表面(a)和界面(b)上的 N_2 , PS熔体外表面(c)和界面(d)上的 N_2

Fig. 4 Relation between PS melt flow rate and N_2 : N_2 on PP melt surface (a) and interface (b), N_2 on PS melt surface (c) and interface (d)

3.3 第二法向应力差与挤出胀大率之间的关系

结合 3.1 和 3.2 可得, 气辅共挤出成型过程中, 挤出胀大现象与第二法向应力差有关, 当 N_2 为正值时, 熔体表现为离模膨胀现象, B 值为正, 且随着 N_2 的增大而增大; 当 N_2 为负值时, 熔体表现为离模收缩现象, B 值为负, 且其绝对值随着 N_2 绝对值的增大而增大。这与 Yue 等的研究结果^[15]相吻合, Yue 等的研究表明黏弹性熔体的二次流动是由其第二法向应力差引起, 二次流动的强弱正比于第二法向应力差, 即熔体的第二法向应力差越大, 其二次流动越强, 从而导致熔体的离模膨胀(收缩)率增加。

4 结 论

(1) 气辅共挤过程中, 两熔体挤出胀大率均随着熔体自身流率的增大而增大, 随着另一熔体流率的增大而减小, 当两熔体流率同时增大但保持流率相等时, 各自的挤出胀大率 B 始终为一定值。整体挤出胀大现象则由于内外两熔体的胀大和收缩相互抵消, 其挤出胀大率接近零值(小于 1%), 即气辅共挤基本能消除传统共挤过程中出现的挤出胀大现象。

(2) 第二法向应力差为负值时, 熔体呈现离模收缩

现象, 第二法向应力差为正值时, 熔体呈现离模膨胀现象。

(3) 熔体挤出胀大率正比于第二法向应力差, 即从单层熔体来看, 当一熔体流率固定时, 另一熔体的第二法向应力差随着其流率的增大而增大, 二次流动增强, 挤出胀大率增大。

参考文献 References

- [1] Huang Yibin (黄益宾), Liu Hesheng (柳和生), Huang Xingyuan (黄兴元). *Journal of Basic Science and Engineering* (应用基础与工程科学学报) [J], 2010, 18(4): 657-665.
- [2] Masanori T, Shin-ichi K, Funatsu K. *Rheologica Acta* [J], 1998, 37(6): 624-634.
- [3] Zatloukal M, Kopytko W, Saha P, et al. *Plastics, Rubber and Composites* [J], 2005, 34(9): 403-409.
- [4] Xu Peixian (徐佩弦). *Polymer Rheology and Its Application* (高聚物流变学及其应用) [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2003.
- [5] Zhou Yanhao (周彦豪). *Rheology Fundamentals of Polymer Processing* (聚合物加工流变学基础) [M]. Xi'an: Xi'an Jiaotong University Press, 1988.
- [6] Graessley W W, Glasscock S D, Crawley R L. *Journal of Rheology* [J], 1970, 14(4): 519-526.
- [7] Garcia-Rejon A, Diraddo R W, Ryan M E. *Journal of Non-Newtonian*

- Fluid Mechanics*[J], 1995, 60(2-3): 107-128.
- [8] Liang J Z. *Polymer Testing*[J], 2008, 27(8): 936-940.
- [9] Deng Xiaozhen(邓小珍), Liu Hesheng(柳和生), Huang Yibin(黄益宾). *China Plastics*[J], 2013, 27(2): 74-79.
- [10] Zhang Min(张敏), Huang Chuanzhen(黄传真), Sun Sheng(孙胜), et al. *Polymer Materials Science and Engineering*[J], 2012, 28(6): 176-179.
- [11] Karagiannis A, Hrymak A N, Vlachopoulos J. *Rheologica Acta*[J], 1990, 29(1): 71-87.
- [12] Keawkanoksilp C, Apimonsiri W, Patcharaphun S, et al. *Journal of Applied Polymer Science*[J], 2012, 125(3): 2187-2195.
- [13] Ren Zhong(任重), Huang Xingyuan(黄兴元), Liu Hesheng(柳和生). *Journal of Basic Science and Engineering*[J], 2015, 23(5): 1025-1034.
- [14] Phan-Thien N, Tanner R I. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*[J], 1977, 2(4): 353-365.
- [15] Yue P T, Dooley J, Feng J J. *Journal of Rheology*[J], 2008, 52(1): 315-332.

(编辑 张雨明)