

Pom-Pom 分子在平面收缩流场中的流变行为*

王 伟^{1,2} 李锡夔^{1**} 韩先洪³

(¹ 大连理工大学 工业装备结构分析国家重点实验室 大连 116023)

(² 青岛科技大学橡塑材料与工程教育部重点实验室 青岛 266042) (³ 上海交通大学塑性成形工程系 上海 200030)

摘 要 用基于管子理论发展的 XPP (extended Pom-Pom) 模型描述支化高分子熔体——低密度聚乙烯 (LDPE) 的分子流变特性, 实现了从分子微观结构到宏观响应的跨尺度模拟. 引入有限增量微积分 (FIC) 过程重构了压力稳定质量守恒方程以克服因流体不可压缩性引发的压力场空间分布虚假振荡现象. 采用离散的弹性——黏性应力分裂技术 (DEVSS) 以在缺失纯黏性项情况下保持动量方程弱形式中的椭圆项贡献. 利用迎风流线 (SU) 方法离散黏弹性 XPP 本构方程中的对流项, 以基于 Crank-Nicolson 隐式差分格式的迭代稳定分步算法求解质量、动量守恒方程和本构方程. 采用等低阶有限元模拟了平面黏弹性收缩流, 考察了不同 Weissenberg 数、支化程度和分子结构参数对 Pom-Pom 分子在收缩流场中流变行为的影响, 数值结果与相关文献和试验结果吻合得较好.

关键词 黏弹性流, 有限元, 流变行为, 分步算法, XPP 模型

在过去的十几年里描述高分子熔体的本构方程有了重要发展. 1998 年, McLeish 和 Larson^[1,2] 基于 de Gennes 提出, Doi 和 Edwards 发展的管子理论^[3] 来描述支化高分子的简化拓扑结构, 首先提出了 Pom-Pom 模型, 该本构方程由两个方程组成, 一个描述高分子主链方向的弛豫; 另一个描述主链的拉伸. 其关键的特征是将支化高分子的弛豫时间在两个不同的时间尺度上分别描述. Pom-Pom 分子模型的引入为发展高分子流体新的本构方程注入了活力, 是基于分子理论构造本构方程上的一个突破. 该模型有助于人们更深入的洞察高分子熔体加工中复杂的流动行为, 并推动了该领域广泛的研究. 缠结高分子动力学的研究日臻成熟, 必将推动多尺度方法从分子设计、材料加工到最终产品性能的深入应用^[4]. Bishko 等^[5] 对支化高分子低密度聚乙烯 (LDPE) 熔体的 4:1 平面收缩几何的瞬态流动进行了计算. Blackwell 等^[6] 建议修正 Pom-Pom 模型使分子被完全拉伸之前引入局部支化点回缩的思想. Öttinger^[7] 研究了 Pom-Pom 模型的热力学相容性, 指出尽管该模型是热力学相容的, 他建议修正本构模型中的方向方程, 并改写此模型为两个或一个方程, 称为 DIPP 或 SIPP 模型. 鉴于 Pom-Pom 模型存在的部分缺陷, Verbeeten 等^[8] 提出了 XPP 模型, 它包含了第二

法向应力差效应并消除了方向方程中有限拉伸的条件不等式. XPP 模型与黏弹性熔体的拉伸和简单剪切流的流变试验数据吻合得很好. 此后, Verbeeten 等^[9] 用 XPP 模型和 DEVSS/DG (discontinuous Galerkin) 有限元法 (速度二次、压力线性 and 应力间断线性插值) 研究了复杂的黏弹性流, 模拟结果与试验结果吻合相当好, 但遇到收敛困难和不稳定的问题. 后来, Clemeur 等^[10,11] 沿用 Verbeeten 的类似方法又进一步发展了 XPP 模型, 并称之为 DCP (double convected Pom-Pom) 模型, 并模拟了平面突然收缩的黏弹性流, 但当收缩口的转角为尖角时计算同样遇到不收敛的问题, 只好采用小的圆角过渡. 这说明对于带有尖角的黏弹性收缩流问题, 由于存在应力奇异现象, 因而许多方法就显得无能为力.

近几年, 基于分步算法的有限元被广泛应用于非牛顿流的数值模拟. 分步算法首先被用于有限差分法来求解不可压缩牛顿流; 后来被 Comini 和 Guidice^[12] 以及 Donea 等^[13] 引入到有限元中. 利用杂交的有限元/有限体积法, Aguayo 等^[14] 用 XPP 模型模拟了 4:1 平面圆角的收缩流问题, 考察了 Pom-Pom 分子末端支链数对流场的影响. 他们用分步的 Taylor-Galerkin/压力校正有限元法求解动量-质量守恒方程; 用有限体积法求解 XPP 本

* 2009-03-13 收稿, 2009-05-08 修稿; 国家自然科学基金重大基金资助项目 (基金号 90715011, 10590354)、国家重点基础研究发展计划 (973 项目, 项目号 2010CB731502); ** 通讯联系人, E-mail: xikuili@dlut.edu.cn

构方程. 韩先洪和李锡夔^[15,16]用迭代稳定的分步算法和特征 Galerkin (CG) 法计算了非等温非牛顿黏性流和黏弹性的 4:1 收缩流问题.

本文的主要贡献在于,在现有 DEVSS 算法中引入迭代分步算法和 FIC 过程,发展了新的 DEVSS 算法版本. 提高了所发展算法的稳定性和克服时间步长限制,并允许对速度、压力和应力均采用等低阶有限元线性插值. 通过对带有尖角的黏弹性收缩流问题的数值模拟,在 Weissenberg (We) 数较高的情况下仍保持求解过程的收敛性,以表明所发展算法的良好性能. 此外,详细考察了 XPP 模型中不同分子结构参数和 We 对流场中 Pom-Pom 分子流变行为的影响,并可视化地给出了大分子拉伸较大的区域和最大拉伸出现的位置. 这有助于洞察高分子复杂的黏弹性流动行为,成为解决一些工程问题比较有效的方法,如塑料熔体在模具中的充填过程、高聚物的挤出胀大、薄膜吹塑、纤维纺丝和微尺度的高分子加工等,以获得合适的加工工艺条件、优化模具结构,最终提高制品的性能.

1 黏弹性流体控制方程组

在 Eulerian 描述下,不可压缩黏弹性流体的动量守恒和质量守恒方程分别表示如下:

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} \right) = \rho \mathbf{g} + \nabla \cdot \mathbf{T} - \nabla p \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (2)$$

其中, ρ 是流体密度, $\mathbf{g}$ 是体力加速度, $\mathbf{u}$ 是流体速度, p 是静水压力, $\mathbf{T}$ 是黏弹性流动中的偏应力张量.

一般地,偏应力张量可分裂成纯黏性应力和黏弹性应力组成,即

$$\mathbf{T} = 2\eta_v \mathbf{D} + \mathbf{f} \quad (3)$$

η_v 为纯黏性力的黏性系数, $\mathbf{f}$ 为黏弹性应力, $\mathbf{D}$ 为变形率张量, $\mathbf{D} = (\nabla \mathbf{u} + \nabla \mathbf{u}^T)/2$.

单模式的广义黏弹性本构方程可表示为:

$$\frac{\nabla}{f} + f_c(f, \mathbf{D}) + f_{\infty}^{-1} \mathbf{f}_d = 2G_0 \mathbf{D} \quad (4)$$

其中 f_{∞} 和 G_0 分别是主链的方向弛豫时间和弛豫模量. 上标 ∇ 表示上随体导数, 定义为

$$\frac{\nabla}{f} = \frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla f - (\nabla \mathbf{u})^T \cdot \mathbf{f} - \mathbf{f} \cdot \nabla \mathbf{u}$$

对于修正的 XPP 模型^[9], 则

$$f_c = 0, f_d = \left[\frac{a}{G_0} f \cdot f + F f + G_0 (F - 1) \mathbf{I} \right] \quad (5)$$

其中 a 是材料参数 ($a > 0$), 表示各向异性程度的量; 式中 F 定义为:

$$F(f) = 2re^{v(\Lambda-1)} \left(1 - \frac{1}{\Lambda} \right) + \frac{1}{\Lambda^2} \left[1 - \frac{a \text{tr}(f \cdot f)}{3G_0} \right] \quad (6)$$

其中 $\Lambda = \sqrt{1 + \frac{|\text{tr}(f)|}{3G_0}}$, $r = \frac{f_{\infty}}{f_s}$, $v = \frac{2}{q}$. 这里 f_s 为主链上表示拉伸的弛豫时间, q 为主链末端的支链数, Λ 表示主链的拉伸程度.

2 数值方法

2.1 基于 FIC 的压力稳定方法

Oñate^[17,18]提出了在有限域上利用泰勒级数展开引入高阶项来修改微分方程的 FIC (finite increment calculus) 法, 然后再运用标准的 Galerkin 方法, 从而可获得求解时数值上的稳定性. 一个修正的 FIC 过程推导的质量守恒方程和稳定性分析详见文献^[19], 其形式如(7)式:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} - \underline{f}_s^d \cdot \nabla \cdot (\underline{\varphi} + \nabla p / \rho) = 0 \quad (7)$$

式中下划线部分为 FIC 引入的稳定项, 这使得速度和压力采用等低阶插值成为可能. 其中 $\underline{\varphi} = \mathbf{u}_i + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} - (\nabla \cdot \mathbf{T}) / \rho - \mathbf{g}$, f_s^d 为单位体积的本征时间. 若 f_s^d 为 0, 则退化为(2)式.

由动量方程可知:

$$\underline{\varphi} + \nabla p / \rho = 0 \quad (8)$$

2.2 DEVSS/SU 方法

在黏弹性流模拟中, 若不存在纯黏性项或纯黏性项远小于黏弹性项时, 则在动量方程中缺少椭圆算子, 导致数值求解不稳定.

为了构造 DEVSS 方法, 引入作为变形率张量 $\mathbf{D}$ 的离散等价量的新变量 $\mathbf{D}$, 在弱形式下满足:

$$\underline{\mathbf{D}} - \mathbf{D} = 0 \quad (9)$$

$$\text{即 } (\mathbf{W}, \underline{\mathbf{D}} - \mathbf{D}) = 0 \quad (10)$$

其中 $\mathbf{W}$ 为权函数. 将式(9)取散度后加权, 代入动量方程(1), 并利用 $\eta = \eta_e + \eta_v$ 得到:

$$\rho(\mathbf{u}_t + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u}) = -\nabla p + \nabla \cdot (2\eta \mathbf{D} + \mathbf{f}) + \rho \mathbf{g} - \nabla \cdot (2\eta_e \underline{\mathbf{D}}) \quad (11)$$

式(11)即为由 DEVSS 方法引入黏性椭圆算子导出的稳定的动量方程. 式(11)、(9)、(7)、(8)、(4)组成了引入 FIC 和利用 DEVSS 方法的控制方程组, 它包含了 3 个待求变量 $\mathbf{u}, p, f$ 和 2 个辅助变量 $\underline{\varphi}, \underline{\mathbf{D}}$.

另外, 因本构方程中存在对流项 $\mathbf{u} \cdot \nabla f$, 使标

准 Galerkin 离散过程对具有非自伴随性质的双曲型方程不再最优,当 Weissenberg 数增大时这一特征带来的数值求解过程的稳定性问题愈显突出,需采用稳定的数值方法,如 SUPG、SU、特征线法等. 本文采用 SU 方法,上风加权函数仅作用于本构方程的对流项,而时域离散本构方程的其余项还是前乘标准 Galerkin 近似中的标准权函数,即等于有限元形函数,它可表示为:

$$\langle N_f, \frac{\nabla}{f} + f_c(f, D) + f^{-1}f_d - 2G_0D \rangle + \langle \partial u \cdot \nabla N_f, u \cdot \nabla f \rangle = 0 \quad (12)$$

式中 $\langle \square, \square \rangle$ 表示标准的内积, N_f 表示标准的 Galerkin 权函数, $\partial u \cdot \nabla N_f$ 为 SU 方法的上风项.

2.3 迭代稳定的分步算法

定义 A^n 和 A^{n+1} 分别为 t_n 和 t_{n+1} 时刻的各变量值 ($A = u, p, f, \varphi, D$). $\Delta t = t_{n+1} - t_n$, $\Delta p = p^{n+1} - p^n$, $t_{n+\theta}$ 时刻的变量值定义为 $A^{n+\theta} = (1 - \theta)A^n + \theta A^{n+1}$.

在一个时间步 $I_n \in [t_n, t_{n+1}]$ 上离散控制方程 (11)、(9)、(7)、(8)、(4), 并引入中间速度 u^* , 分别得到:

$$\left(\frac{\rho}{\Delta t} - \theta S^T f D_0 S \right) (u^* - u^n) = \rho g - (\rho u \cdot \nabla u)^{n+\theta} + S^T (f D_0) S u^n + \nabla \cdot f^{n+\theta} - f \nabla p^n - \nabla \cdot 2\eta_e D^{n+\theta} \quad (13)$$

$$\left(\frac{\rho}{\Delta t} - \theta S^T f D_0 S \right) (u^{n+1} - u^*) = - \nabla (p^{n+\theta} - f p^n) \quad (14)$$

$$\varphi^{n+1} = - \frac{1}{\rho} \nabla p^{n+1} \quad (15)$$

$$D^{n+1} = D^{n+1} \quad (16)$$

$$\frac{1}{\Delta t} (f^{n+1} - f^n) = [-u \cdot \nabla f + (\nabla u)^T \cdot f + f \cdot \nabla u - f_c(f, D) - f^{-1}f_d + 2G_0D]^{n+\theta} \quad (17)$$

其中 $D_0 = \text{diag}(2 \ 2 \ 1)$, S 表示应变算子矩阵.

采用 Crank-Nicolson 格式离散, $\theta = 0.5$. 其中 $f \approx 0, 1$ 分别对应全量型和增量型分步算法. 式 (13) 和 (14) 中含有 u^* 的扩散项移至方程的左边, 有利于增加算法的稳定性.

将 (14) 式两边求散度, 并省略速度的高阶导数, 可得到:

$$\left(\theta + \frac{f_d}{\Delta t} \right) \nabla^2 (p^{n+1} - p^n) = \frac{\rho}{\Delta t} (\nabla \cdot u^* - f_d \nabla \cdot \varphi^{n+1}) - \left(\frac{f_d}{\Delta t} + 1 - f \right) \nabla^2 p^n \quad (18)$$

式 (13)、(18) 和 (14) 分别被称为预测步、投影步和校正步, 对应求解 u^* , p^{n+1} 和 u^{n+1} .

2.4 有限元离散

对各变量 A ($A = u, p, f, \varphi, D$) 在有限元空间上离散为 $A = N_a \bar{A}$, 其中 N_a ($a = u, p, f, \varphi, D$) 分别对应各变量的形函数, $\bar{A}$ 为相应变量的节点值. 采用 T3P3 平面单元, 即速度、压力、应力均用线性插值. 然后采用标准 Galerkin 过程, 对 (13) ~ (18) 式进行离散, 即可得到各方程的有限元列式.

3 黏弹性收缩流的结果与讨论

通常, 黏弹性 4:1 收缩流的数值结果表明, 黏弹性流体在远离收缩口的区域受简单剪切作用 (剪切流), 而沿收缩流道的中心线受到纯的拉伸作用 (拉伸流); 在收缩口附近这两种流动都存在. 一般认为高分子在流道中心线上受到纯拉伸流作用, 其拉伸程度应最大; 而本文用基于 Pom-Pom 分子理论的 XPP 模型描述支化 LDPE 熔体, 给出了流场中高分子受拉伸较大的区域和最大拉伸出现的位置, 发现拉伸程度最大的高分子并非位于收缩流道的中心线上, 而是靠近收缩口的下游壁面处, 这有助于深入理解高分子流体的壁滑移和挤出不稳定现象. 实际上, 这类收缩流动广泛存在于高分子材料的加工和试验中, 如高聚物的挤出和注射成形, 毛细管流变仪试验等.

Pom-Pom 分子^[1,5]可被理解为一种广义的 H 型高分子, 它仅有两个支化点, 其间通过主链连接, 每个支化点上可有若干个支链. 当 Pom-Pom 分子受到拉伸时, 支化点可回缩到主链周围的其他分子所形成的“管子”中. Pom-Pom 分子模型将支化高分子的弛豫时间在两个不同的时间尺度上分别描述, 并引入表示主链拉伸行为的参数, 使人们基于分子尺度可考察大分子复杂的宏观流变行为.

计算域中收缩口附近的网格划分如图 1 所示, 共有 4800 个单元, 2537 个节点, 靠近尖角处和壁面附近网格细化. 整个流域中, 上下游流道长度分别为下游宽度 1 的 30 和 40 倍, 图中 x 轴为对称轴. 另外, 按文献 [14] 的方法施加“充分发展流动”假设下的入口和出口的速度、应力边界条件. 具体地讲, 假设上游流道足够长, 按与收缩流模型等宽等流量足够长直流道且材料参数相同的 UCM 流体计算得到充分发展的速度 ($V_x = V_x(y)$, $V_y = 0$) 施加; 入口应力也按计算得到的充分

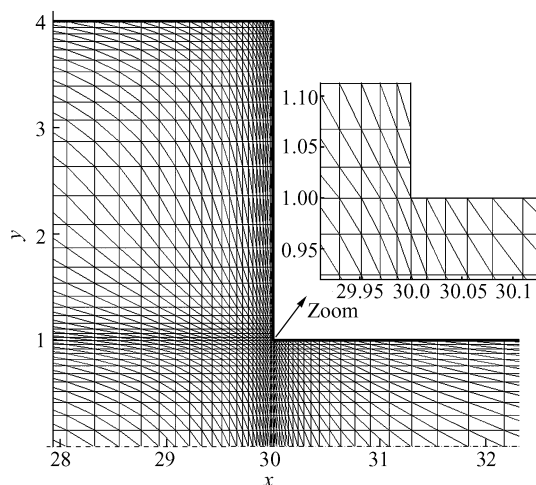


Fig. 1 Computational mesh around the re-entrant corner

发展的应力节点值施加. 出口速度按类似入口速度的方式施加, 但该直流道的宽度为 1. 在对称轴上 $V_y = 0$, $f_{xy} = 0$. 固壁面假设无滑动, 出口对称点压力为 0. 最后, 初始条件按 UCM 模型计算相同收缩几何模型得到的速度和应力来施加. 计算时采用 IUPAC A LDPE 熔体在 150℃ 下的材料参数^[8]见表 1.

Table 1 Some parameters of the IUPAC A LDPE melt at 150℃

Maxwell parameters		XPP model		
G_0 (Pa)	f_{0b} (s)	q	f_{0b}/f_{0s}	a
859.6	20	4	2	0.025

为了便于叙述, 简要说明两个流变参数:

$$We = \frac{f_{0b} U}{H} \quad (19)$$

式中 We 、 U 和 H 分别表示 Weissenberg 数、下游流道的特征速度和长度.

$$N_1 = f_{xx} - f_{yy} \quad (20)$$

式中 N_1 为第一法向应力差.

3.1 Weissenberg 数对 Pom-Pom 分子流变行为的影响

图 2 给出了不同 Weissenberg 数下, 沿下游壁面 ($y = 1.0$) 上应力分量和第一法向应力差分布. 由图 2 看出, We 对应力场有显著的影响, 应力分量和 N_1 在收缩口的转角附近产生突变, 并随着 We 的增大而增大, 这是黏弹性熔体弹性增大的具体表现. 流体在远离收缩口的上下游, 充分发展的流动使应力场达到平稳, 表现为应力分量和 N_1 的值不再变化. 从 σ_{yy} 的分布看, 除收缩口附近外, 上下游的 σ_{yy} 均小于零, 即第二法向应力差为负值;

而由 N_1 的分布看, 除 We 为 2 时转角附近局部 N_1 小于零, 其余均为正值, 这说明 XPP 模型较好地反映了实际高分子流体的流变特性.

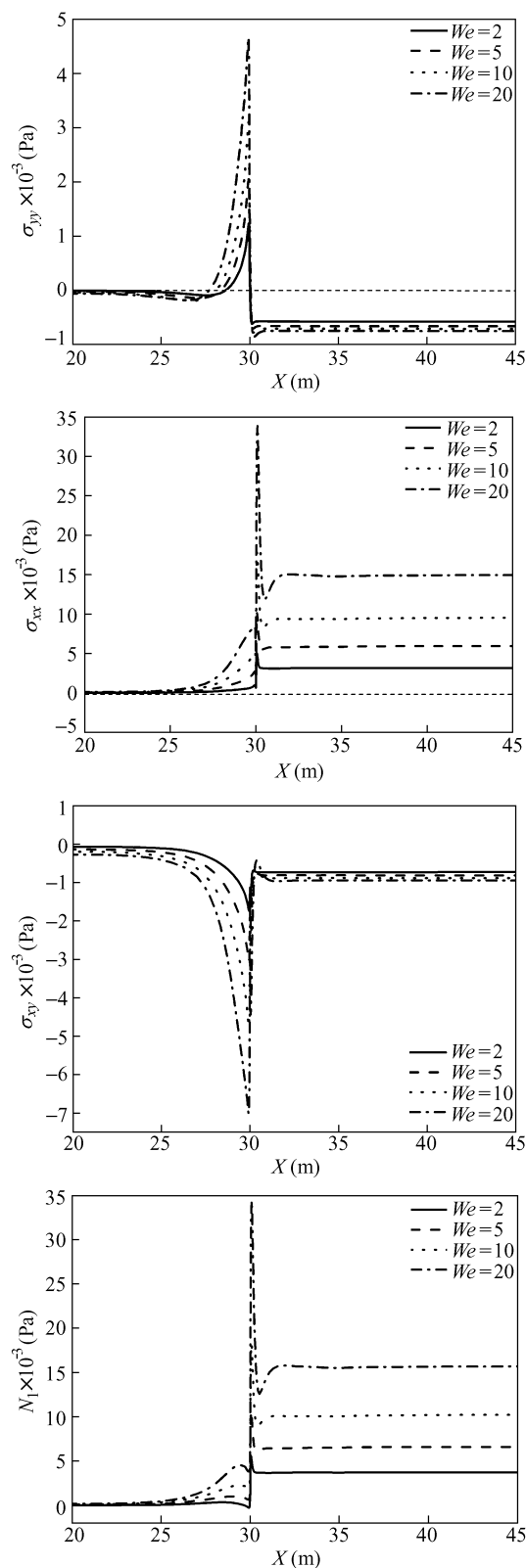
Fig. 2 Profiles of each stress component and N_1 along downstream wall ($y = 1$) for different We

图 3 是不同 We 下流场中支化高分子熔体主链拉伸情况的等值线分布. 随着 We 的增大, 主链的拉伸程度明显增大; 最大拉伸出现在收缩口转角附近的下游壁面处 (插图中箭头所指), 并且最大拉伸随 We 增大而增大. 从图 3 看出, 靠近下游壁面处主链受到的拉伸较大, 尤其是收缩口附近最大, 而并非出现在拉伸率最大的流道中心线上, 这与流场中的角漩涡大小、流体的拉伸增稠^[5] 和剪切速率分布有关. Bishko 等^[5] 研究支化 LDPE 熔体时也发现了该现象.

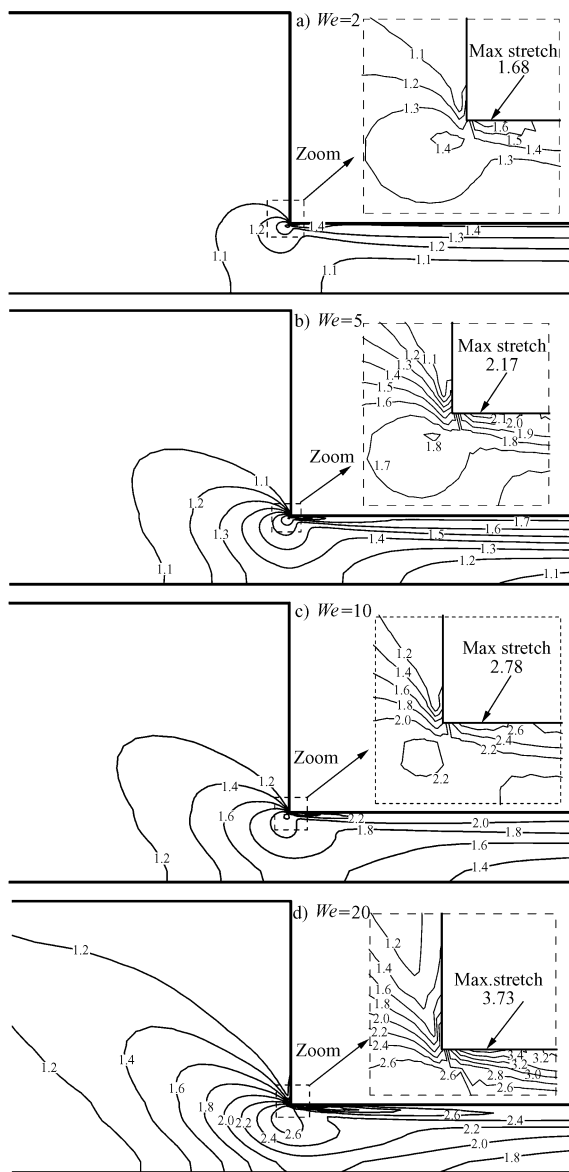


Fig. 3 Backbone stretch (λ) fields for different We

3.2 支化程度对 Pom-Pom 分子流变行为的影响

为了考察支链数 q 对收缩流场中 Pom-Pom

分子流变行为的影响, 保持表 1 中除 q 外的参数不变, We 恒为 20. 由图 4 可知, q 对 4:1 收缩流道转角附近和下游流道中支化高分子的 N_1 和主链拉伸 λ 有显著的影响, 并且随着 q 的增大, N_1 和 λ 明显增大. 远离转角上游处流体的应力和拉伸几乎不受 q 的影响. 对 σ_{yy} 影响较大的区域仅位于转角附近; 并随着 q 的增大而增大, 但当 q 增大到一定程度后对 σ_{yy} 的影响不明显 (图 4 中对应 $q = 10, 15$ 时 σ_{yy} 的分布十分相近). 这与 Aguayo 等^[14] 用 XPP 模型模拟 4:1 平面圆角几何型腔的收缩流问题得出的结果相符.

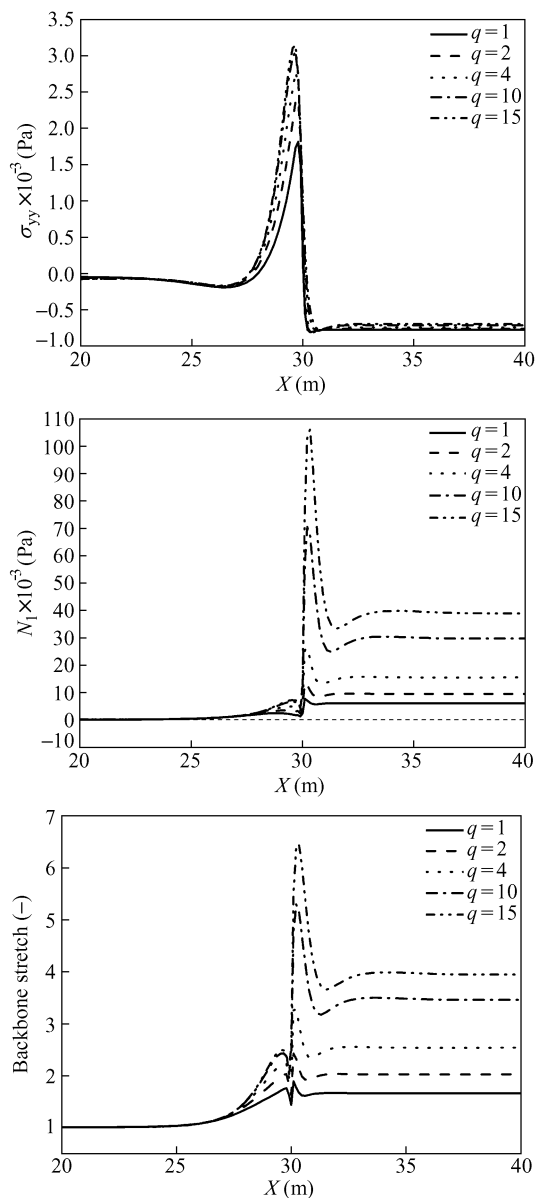


Fig. 4 Profiles of σ_{yy} , N_1 and backbone stretch along downstream wall ($y = 1$) for various q ($We = 20$)

不同 q 对沿流道中心线上高分子熔体拉伸变化的分布如图 5 所示. 从图中看出, 远离收缩口处的的主链拉伸 Λ 接近 1, 并受 q 的影响较小; 而在 $25 < x < 57$ 的中心线上, Λ 的变化显著, 并随着 q 的增大而增大, 但当 q 增大到一定程度后对 Λ 的影响不明显 (图 5 中对应 $q = 10, 15$ 时 Λ 的分布十分相近), 这可能与大分子末端支链较多易缠结而难取向有关. 图 4, 5 中 q 为 1 时, 表示线型高分子的流变响应, 可以看出它与支化高分子熔体的流变行为有明显不同, 这可由图 6 中角漩涡的大小进一步得到证实.

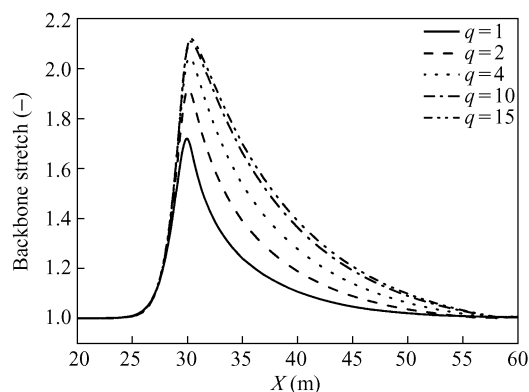


Fig. 5 Profiles of backbone stretch along centerline ($y = 0.0$) for various q ($We = 20$)

在入口流量和材料参数 (除 q 外, 见表 1) 完全相同的情况下, 图 6 为分子末端不同支链数 q 下收缩流场中高分子拉伸程度较大的分布区域, 图中细线表示流线和角漩涡的大小. 当 q 为 1 时表示线型高分子熔体的拉伸场分布, 明显看出线型高分子流体的角漩涡较小, 这可能与某些试验^[20] 给出的漩涡很小或不出现不相符, 毕竟 XPP 模型是针对长支链的高分子熔体提出的; 而 q 大于 1, 即支化高分子流体的漩涡显著增大并延伸至收缩口的转角处, 且随 q 的增大而有所增大. 这与一些试验^[2] 和模拟结果^[5] 得出的结论是吻合的. 另外, 由图 6 可知流场中受拉伸较大的支化高分子位于收缩口附近, 呈蝶翅形分布; 其次是上、下游壁面, 并且随着 q 的增大, Λ 值增大, 受拉伸较大的区域也明显增大. 受拉伸最大的高分子则位于收缩口附近的下游壁面边界层.

3.3 分子结构参数对 Pom-Pom 分子流变行为的影响

为了考察 XPP 模型中分子结构参数 r 和 a 对流场中支化高分子流变行为的影响, 仍采用表 1

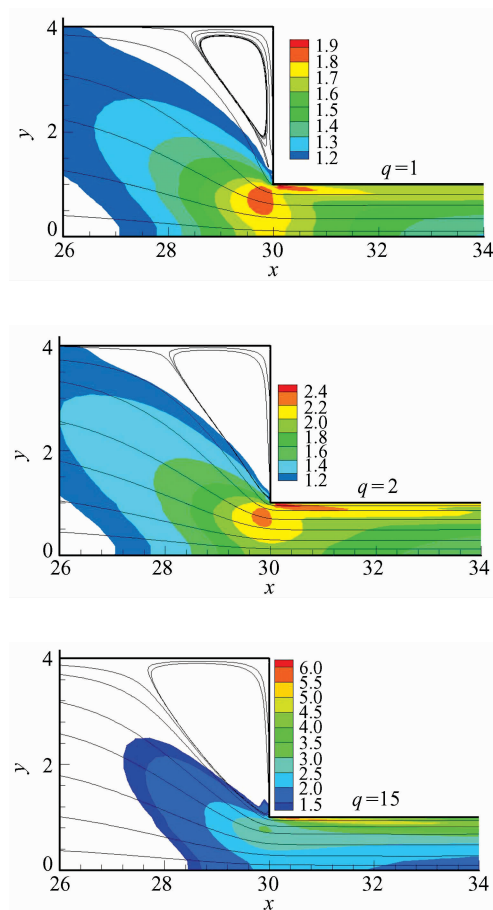


Fig. 6 Backbone stretch (Λ) contours for different q ($We = 20$)

中的材料参数. 为保持 We 不变, 需固定 f_{0b} 值, r 的变化通过改变高分子主链的拉伸松弛时间 f_s 来实现. 参数 a 作为一个 Giesekus 常数^[21] 包含到本构方程中, 从而引入了第二法向应力差效应. 改变 a 的情形 ($a \leq 0.5$) 也进行了计算, 发现其变化对流场中高分子的流变行为影响甚小, 在此略去讨论. 这也正是 Clemeur 等^[11] 改变引入第二法向应力差的方法, 发展 DCP 模型的原因之一. r 从 1 变化到 4, 对应 f_s 分别为 20 s, 10 s, 6.67 s, 5 s. 由图 7 可知, 随着拉伸松弛时间的增大, σ_{yy} , N_1 和 Λ 在转角附近和下游流道都呈增大的趋势. 沿流道中心线上 ($25 < x < 65$) 高分子流体的拉伸产生显著变化, 且随 f_s 的增大而增大; 当流动充分发展后, 不同拉伸松弛时间高分子的拉伸行为趋于一致, 如图 8 所示.

4 结论

本文用 XPP 模型描述支化 LDPE 熔体, 利用

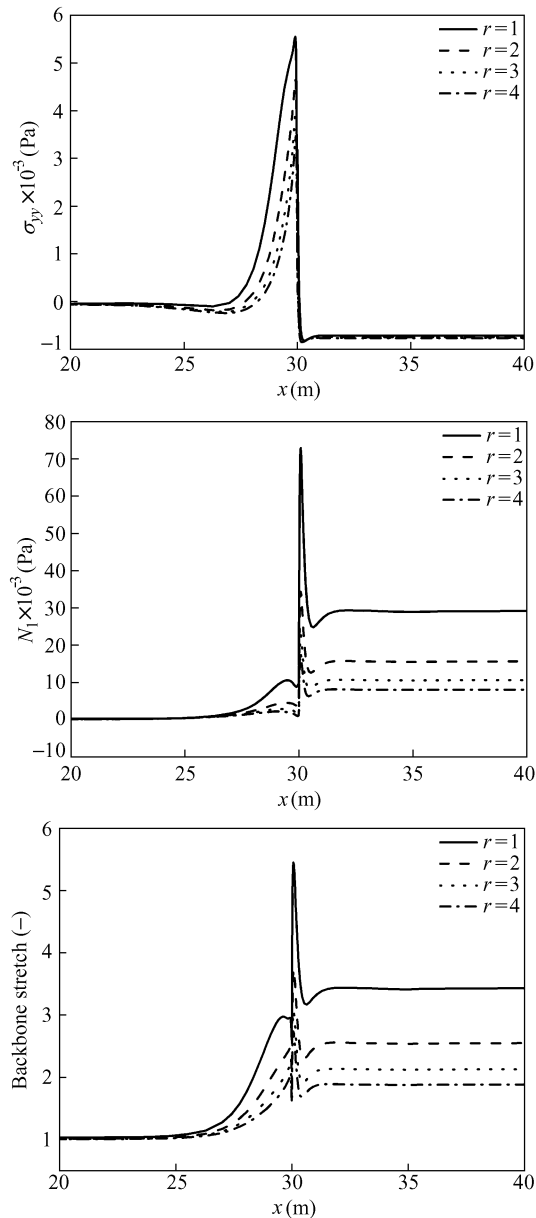


Fig. 7 Profiles of σ_{yy} , N_1 and backbone stretch λ along downstream wall ($y=1$) for various r ($We=20$)

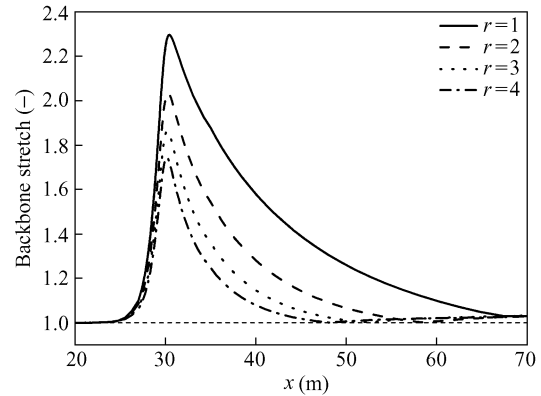


Fig. 8 Profiles of backbone stretch along centerline ($y=0.0$) for various r ($We=20$)

压力稳定的迭代分步算法和等低阶有限元计算了黏弹性收缩流动,探讨了不同 Weissenberg 数、分子结构参数对支化高分子熔体流变行为的影响,实现了从分子尺度到宏观流动响应的跨尺度模拟.结果表明,随着 We 的增大,高分子主链拉伸和应力均显著增大;大分子末端支链数对流场中 Pom-Pom 分子的流变行为有较大影响,支化高分子流体的角漩涡比线型高分子的明显增大,并随支链数的增多,角漩涡、应力和主链拉伸都有所增大,但 q 增大到一定程度后,对 σ_{yy} 和主链拉伸的影响不明显,这与大分子末端支链的缠结效应有关;收缩流场中主链拉伸最大的高分子位于收缩口附近的下游壁面,而非流道中心线.流场中宏观的流变响应是高分子微观拓扑结构的真实体现,这有助于深入研究高分子熔体加工中复杂的流动行为,推动多尺度方法从分子设计、材料加工到最终产品性能的深入应用.

REFERENCES

- 1 McLeish T C B, Larson R G. *J Rheol*, 1998, 42(1): 81 ~ 110
- 2 McLeish T C B, Milner S T. Entangled Dynamics and melt flow of branched polymers. In: *Branched polymers II*, Roovers J. *Advances in Polymer Science*, Vol. 143. Berlin: Springer-Verlag, 1999. 195 ~ 254
- 3 Doi M, Edwards S F. *The Theory of Polymer Dynamics*. New York: Oxford, 1986. 188 ~ 217
- 4 Bent J, Hutchings L R, Richards R W, Gough T, Spares R, Coates P D, Grillo I, Harlen O G, Read D J, Graham R S, Likhtman A E, Groves D J, Nicholson T M, McLeish T C B. *Science*, 2003, 301: 1691 ~ 1695
- 5 Bishko G, McLeish T C B, Harlen O G. *Phys Rev Lett*, 1997, 79(12): 2352 ~ 2355
- 6 Blackwell R J, McLeish T C B, Harlen O G. *J Rheol*, 2000, 44: 121 ~ 136
- 7 Öttinger H. *Rheol Acta*, 2001, 40: 317 ~ 321
- 8 Verbeeten W M H, Peters G W M, Baaijens F P T. *J Rheol*, 2001, 45(4): 823 ~ 844
- 9 Verbeeten W M H, Peters G W M, Baaijens F P T. *J Non-Newtonian Fluid Mech*, 2004, 117: 73 ~ 84
- 10 Clemeur N, Rutgers R P G, Debbaut B. *J Non-Newtonian Fluid Mech*, 2004, 117: 193 ~ 209

- 11 Clemeur N, Rutgers R P G, Debbaut B. Rheol Acta, 2003, 42(3): 217 ~ 231
- 12 Comini G, Guidice S D. Numerical Heat Transfer, Part A, 1972, 5: 463 ~ 478
- 13 Donea J, Giuliani S, Laval H, Quartapelle L. Comput Meth Appl Mech Eng, 1982, 30: 53 ~ 73
- 14 Aguayo J P, Tamaddon-Jahromi H R, Webster M F. J Non-Newtonian Fluid Mech, 2006, 134: 105 ~ 126
- 15 Han X H, Li X K. Int J Heat Mass Tran, 2007, 50: 847 ~ 856
- 16 Li X K, Han X H, Wang X P. Comput Methods Appl Mech Engrg, 2009, doi:10.1016/j.cma.2009.10.010
- 17 Oñate E. Comput Methods Appl Mech Eng, 1998, 151(1-2): 233 ~ 265
- 18 Oñate E, García J, Idelsohn S R, Pin F D. Comput Meth Appl Mech Eng, 2006, 195: 3001 ~ 3037
- 19 Duan Q L, Li X K. Comput Methods Appl Mech Engrg, 2007, 196(49-52): 4911 ~ 4933
- 20 Ahmed R, Liang R F, Mackley M R. J Non-Newtonian Fluid Mech, 1995, 59: 129 ~ 153
- 21 Tanner R I. Korea Aust Rheol J, 2006, 18(1): 9 ~ 14

RHEOLOGICAL BEHAVIOR OF POM-POM MOLECULES THROUGH PLANAR CONTRACTION FLOW

WANG Wei^{1,2}, LI Xikui¹, HAN Xianhong³

(¹ State Key Laboratory of Structural Analysis of Industry Equipment, Dalian University of Technology, Dalian 116023)

(² Key Laboratory of Rubber-Plastics, Ministry of Education, Qingdao University of Science & Technology, Qingdao 266042)

(³ Department of Plasticity Technology, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030)

Abstract The molecular rheological characteristics of branched polymer melts (low density polyethylene, LDPE) are described by the extended Pom-Pom (XPP) model based on the tube theory, which results in the bridging scale simulation from the molecular-scale structure to macroscopic flow responses. The finite increment calculus (FIC) procedure is introduced to reformulate the mass conservation equation and to overcome spurious oscillations of pressure field due to incompressibility of fluids. In order to retain an elliptic contribution in the weak form of the momentum equation in the absence of a purely viscous contribution or as the viscous contribution is negligible in comparison with the viscoelastic contribution, the discrete elastic viscous stress splitting (DEVSS) technique is employed. Inconsistent streamline-upwind (SU) method is applied to spatially discretize the constitutive equation of the XPP model with modified stretch dynamics. Moreover, mass, momentum and constitutive equations are discretized and solved by the iterative stabilized fractional step algorithm based on Crank-Nicolson implicit difference scheme. Thus the finite elements with equal low-order interpolation approximation for velocity-pressure-stress variables are adopted to calculate the 4:1 planar contraction transient viscoelastic flows. The influences of Weissenberg number, the amount of branched-arms (q) at the end of the Pom-Pom molecule and the molecular-scale structure parameters on the rheological behavior generated in this complex flow are discussed. Numerical results demonstrate good agreement with those given in the literatures.

Keywords Viscoelastic flow, Finite element method, Rheological behavior, Fractional step algorithm, XPP model