

一个新的挤出胀大方程*

郑融 唐国俊

(华南工学院, 广州)

摘 要

本文对粘弹性流体在应力消除后的自由弹性回复进行了分析, 提出一个新的挤出胀大方程, 把挤出胀大比和可回复剪切应变联系起来。并与 Graessley 等和 Tanner 的理论以及实验数据作了比较。

当粘弹性流体经毛细管挤出时, 挤出物的直径 D_e 明显大于模口直径, 这种现象称为挤出胀大。通常用比值 $B = D_e/D$ 来衡量其大小, B 称为挤出胀大比。

对其起因曾有过若干不同的解释, 目前较普遍认为有两个原因, 一是入口收敛流所引起的拉伸形变的弹性回复, 二是毛细管中剪切应力和法向应力差引起的剪切形变的弹性回复。若毛细管长径比 L/D 很小, 前者是主要因素; 在 L/D 较大的情况下, 后者是主要因素, 因为入口弹性形变在毛细管中逐渐松弛了。实验和数值计算^[1]都表明牛顿流体在低雷诺数下也会出现 B 值约为 1.13 的轻微挤出胀大, 这被归为流线的重新分布。

粘弹性流体的挤出胀大对聚合物成型加工有实际意义, 因此引起广泛重视, 特别是挤出胀大比 B 对切变弹性的表征量(第一法向应力差, 可回复剪切应变)的依赖关系, 自 70 年代以来讨论比较活跃。已提出一些描述这种关系的数学模型, 其中比较有代表性的模型之一是 Graessley 等^[2]基于弹性储能理论导出的方程:

$$B^4 + 2B^{-2} - 3 = \frac{J_0(\sigma_{12})_{\omega}^2 \int_0^1 \xi^3 d\xi / (\eta/\eta_0)}{2G_e \int_0^1 \xi^3 d\xi / (\eta/\eta_0)} \quad (1)$$

式中 η/η_0 为约化粘度, $\xi = r/R$ 为约化径向位置, J_0 为剪切柔量, G_e 为弹性模量, $(\sigma_{12})_{\omega}$ 为壁面剪切应力。Vlachopoulos 等^[3]将其简化为便于应用的形式:

$$S_R = \sqrt{3(B^4 + 2B^{-2} - 3)^{1/2}} \quad (2)$$

S_R 为可回复剪切应变, 定义为壁面第一法向应力差 $N_{1\omega}$ 与二倍壁面剪切应力 $(\sigma_{12})_{\omega}$ 之比 $N_{1\omega}/2(\sigma_{12})_{\omega}$ 。

另一个有代表性的是 Tanner^[4]根据 Lodge 弹性回复理论所得到的方程:

$$B = 0.1 + \left(1 + \frac{1}{2} S_R^2\right)^{1/6} \quad (3)$$

* 1984 年 1 月 4 日收到。

近年来开始应用有限元法来研究挤出胀大问题, 提供了更能反映复杂实际情况的计算结果。但数值结果对工程应用并不方便。

本文在前人工作的基础上, 推导了一个新的挤出胀大方程。理论分析基于下述简化假设:

(1) 流体的记忆特性用只有一个松弛时间常数的 Maxwell 模型描述, 剪切模量对剪切应力无依赖性; (2) 流动是等温和体积不可压缩的; (3) 毛细管长径比 $L/D \rightarrow \infty$, 入口效应可以忽略; (4) 不考虑惯性力、重力和表面张力的影响。

从具有单一时间常数的 Maxwell 模型可以得到如下推论: 当作用在流体上的外力突然消除时, 流体内全部应力分量立即为零, 而且弹性回复在这一瞬间完成。

理 论 分 析

1. 坐标系、基向量和度量张量

我们采用两种坐标系——固定坐标系和对流坐标系。

由于流动的轴对称性, 以模口截面的圆心为原点建立一个固定的柱面坐标系 (x, r, θ) 是方便的, x 轴与毛细管轴线重合并指向流动方向。对这个坐标系, 可以定义三个切线基向量 $\mathbf{e}_i (i = 1, 2, 3)$, 称为共变基向量, 任何向量 $\mathbf{a}$ 都可以表示为它们的线性组合:

$$\mathbf{a} = a^i \mathbf{e}_i \quad (4)$$

这里采用 Einstein 求和约定, $\mathbf{e}_i$ 与笛卡尔直角坐标系的标准正交基向量 $\mathbf{i}_i$ 有如下关系:

$$\mathbf{e}_1 = \mathbf{i}_1, \quad \mathbf{e}_2 = \mathbf{i}_2, \quad \mathbf{e}_3 = r \mathbf{i}_3 \quad (5)$$

由下式定义的张量称为共变度量张量:

$$g_{ij} = \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j \quad (\text{可以看出 } g_{ij} = g_{ji}) \quad (6)$$

满足关系式

$$\mathbf{e}^i \cdot \mathbf{e}_j = \delta_j^i = \begin{cases} 1 & \text{当 } i = j \\ 0 & \text{当 } i \neq j \end{cases} \quad (7)$$

的三个向量 $\mathbf{e}^i$, 称为逆变基向量, 相应地, 逆变度量张量定义为

$$g^{ij} = \mathbf{e}^i \cdot \mathbf{e}^j \quad (8)$$

我们将用到度量张量的如下重要性质:

$$g^{ik} g_{kj} = \delta_j^i \quad (9)$$

$$\det g_{ij} = |\mathbf{e}_1 \cdot (\mathbf{e}_2 \times \mathbf{e}_3)|^2 = V^2 \quad (10)$$

$$\det g^{ij} = V^{-2} \quad (11)$$

在文献^[1]中可以找到上述性质的证明。需要指出的是, (10) 式表明, 共变度量张量的行列式的值等于共变基向量所确定的平行六面体的体积 V 的平方。

与固定坐标系不同, 对流坐标系“嵌入”物体中, 受到跟物体一样的变形。坐标值 ξ^i 不随时间而变, 但基向量 (记为 $\mathbf{g}_i, \mathbf{g}^i$) 和度量张量 (记为 $\hat{g}_{ij}, \hat{g}^{ij}$) 则随时间而变化。 $\hat{g}_{ij}$ 和 $\hat{g}^{ij}$ 同样具有 (9) 至 (11) 式所描述的性质, 因此, 体积不可压缩条件可表示为:

$$\det \hat{g}_{ij}(t) = \text{常数} \quad (12)$$

或

$$\det \hat{g}^{ij}(t) = \text{常数} \quad (13)$$

固定和对流坐标系的度量张量按如下关系转换:

$$\hat{g}_{ij} = \frac{\partial z^m \partial z^n}{\partial \xi^i \partial \xi^j} g_{mn} \quad (14)$$

$$\hat{g}_{ii} = \frac{\partial \xi^i \partial \xi^i}{\partial z^m \partial z^m} g^{mn} \quad (15)$$

式中 $z^1 = z, z^2 = r, z^3 = \theta$

2. 毛细管挤出过程的运动学描述

考察一个由对流基向量 g_i 确定的流体元, 它在时间 $-\infty < t' < t_R$ 处于 Poiseuille 流动场中, 经受剪切变形, 在时刻 t_R 之后离开模口, 发生回弹形变。对流坐标系这样选择, 使其在微元体即将离模的时刻(记为 t_R)恰好与柱面坐标重合, 如图 1 所示。

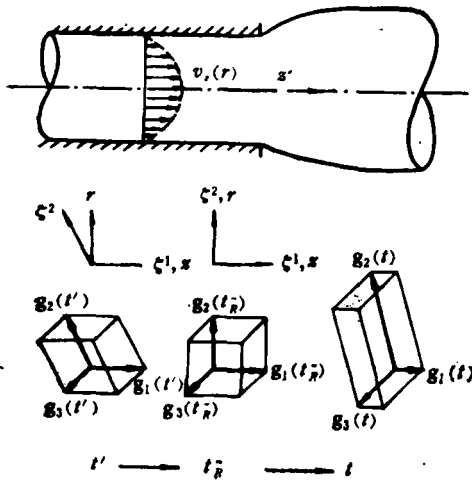


图 1 流体微元在毛细管挤出过程中的变形

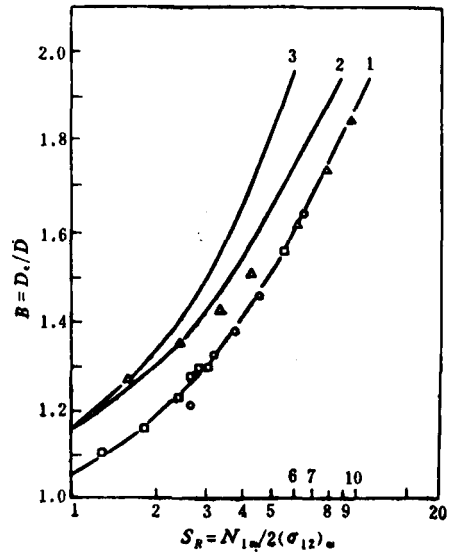


图 2 $B-S_R$ 理论曲线与实验数据的比较

—○—文献[7]; —△—文献[2]; —□—文献[3].
1—方程35; 2—方程3; 3—方程2

于是, 在时刻 $t' \leq t_R$, 对流坐标与固定柱的坐标的关系为:

$$\left. \begin{aligned} \xi^1 &= z + (t_R - t')v_z(r) \\ \xi^2 &= r \\ \xi^3 &= \theta \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

从 5、6、9、15 和 16 式可求出 $t' < t_R$ 时的 $\hat{g}^{ij}(t')$:

$$\begin{bmatrix} \hat{g}^{11}(t') & \hat{g}^{12}(t') & \hat{g}^{13}(t') \\ \hat{g}^{21}(t') & \hat{g}^{22}(t') & \hat{g}^{23}(t') \\ \hat{g}^{31}(t') & \hat{g}^{32}(t') & \hat{g}^{33}(t') \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 + (t_R - t')^2 \dot{\gamma}^2 & (t_R - t') \dot{\gamma} & 0 \\ (t_R - t') \dot{\gamma} & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1/r^2 \end{bmatrix} \quad (17)$$

式中 $\dot{\gamma} = dv_z(r)/dr$ 为切变速率。当 $t' = t_R$, 有:

$$\begin{bmatrix} \hat{g}^{11}(\bar{t}_R) \hat{g}^{12}(\bar{t}_R) \hat{g}^{13}(\bar{t}_R) \\ \hat{g}^{21}(\bar{t}_R) \hat{g}^{22}(\bar{t}_R) \hat{g}^{23}(\bar{t}_R) \\ \hat{g}^{31}(\bar{t}_R) \hat{g}^{32}(\bar{t}_R) \hat{g}^{33}(\bar{t}_R) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1/r^2 \end{bmatrix} \quad (18)$$

3. 挤出胀大方程的推导

现在,问题归结为求微元体离模后即 $t = t_R^+$ 时刻的形变,也就是求 $\hat{g}_{ij}(t_R^+)$ 。仅从运动学分析是得不到这个张量的表达式的,它和流体本身的性质有关,涉及到本构方程的选择。

最近许元泽^[6]对非牛顿流体本构方程方面的理论工作的近况及发展趋势作了评述,介绍了从不同模型得到的几种主要类型的本构方程。分析挤出胀大问题可供选择的本构方程是很多的,我们选用 Lodge 基于网络理论提出的单积分本构方程,这一流体模型不能预示粘度对切变速率的依赖性,但能预示稳态剪切流动中的第一法向应力差效应,其形式为:

$$\sigma^{ij}(t) = -p\hat{g}^{ij}(t) + \int_{-\infty}^t m(t-t')\hat{g}^{ij}(t')dt' \quad (19)$$

$\sigma^{ij}(t)$ 为“现在时刻” t 的应力张量; p 为各向等值的压力; m 是记忆函数。根据假设(1),它具有如下指数衰减形式:

$$m(t-t') = \frac{G}{\tau} \exp\left(-\frac{t-t'}{\tau}\right) \quad (20)$$

式中 τ 为松弛时间常数, G 是剪切模量。以流体微元刚刚离开模口的时刻 t_R^+ 为“现在时刻”,则 $\sigma^{ij}(t_R^+) = 0$ 。因此 19 式可写成:

$$p\hat{g}^{ij}(t_R^+) = \int_{-\infty}^{\bar{t}_R} m(t_R - t')\hat{g}^{ij}(t')dt' + \int_{t_R^+}^{\bar{t}_R} m(t_R - t')\hat{g}^{ij}(t')dt' \quad (21)$$

右边第二个积分号下的 $\hat{g}^{ij}(t')$ 是未知的,但因被积函数有界而积分域无穷小,故最后一个积分项视为小量略去,于是 21 式又简化为:

$$p\hat{g}^{ij}(t_R^+) = \int_{-\infty}^{\bar{t}_R} m(t_R - t')\hat{g}^{ij}(t')dt' \quad (22)$$

由体积不变条件(13)式,并由(18)式,可得

$$\det \hat{g}^{ij}(t_R^+) = \det \hat{g}^{ij}(\bar{t}_R) = 1/r^2 \quad (23)$$

将(17)及(20)式代入(22),结合(23)式,得到 t_R^+ 时刻的流逆变度量张量 $\hat{g}^{ij}(t_R^+)$ 的表达式:

$$\begin{bmatrix} \hat{g}^{11}(t_R^+) \hat{g}^{12}(t_R^+) \hat{g}^{13}(t_R^+) \\ \hat{g}^{21}(t_R^+) \hat{g}^{22}(t_R^+) \hat{g}^{23}(t_R^+) \\ \hat{g}^{31}(t_R^+) \hat{g}^{32}(t_R^+) \hat{g}^{33}(t_R^+) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{1+2\tau^2\dot{\gamma}}{(1+\tau^2\dot{\gamma}^2)^{1/3}} & \frac{\tau\dot{\gamma}}{(1+\tau^2\dot{\gamma}^2)^{1/3}} & 0 \\ \tau\dot{\gamma} & \frac{1}{(1+\tau^2\dot{\gamma}^2)^{1/3}} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{r^2(1+\tau^2\dot{\gamma}^2)^{1/3}} \end{bmatrix} \quad (24)$$

从而又可得相应的共变度量张量 $\hat{g}_{ij}(t_R^+)$:

$$\begin{bmatrix} \hat{g}_{11}(t_R^+) \hat{g}_{12}(t_R^+) \hat{g}_{13}(t_R^+) \\ \hat{g}_{21}(t_R^+) \hat{g}_{22}(t_R^+) \hat{g}_{23}(t_R^+) \\ \hat{g}_{31}(t_R^+) \hat{g}_{32}(t_R^+) \hat{g}_{33}(t_R^+) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{1}{(1 + \tau^2 \dot{\gamma}^2)^{2/3}} - \frac{\tau \dot{\gamma}}{(1 + \tau^2 \dot{\gamma}^2)^{2/3}} & 0 \\ -\frac{\tau \dot{\gamma}}{(1 + \tau^2 \dot{\gamma}^2)^{2/3}} & \frac{1 + 2\tau^2 \dot{\gamma}^2}{(1 + \tau^2 \dot{\gamma}^2)^{2/3}} & 0 \\ 0 & 0 & r^2(1 + \tau^2 \dot{\gamma}^2)^{1/3} \end{bmatrix} \quad (25)$$

根据定义,

$$\hat{g}_{11} = \mathbf{g}_1 \cdot \mathbf{g}_1 = |\mathbf{g}_1|^2$$

即 $\sqrt{\hat{g}_{11}}$ 表示流体微元在流动方向上的线元长度(参看图 1)。由此, 从(18)和(25)式, 可以得到流体离模前、后流动方向上线元长度之比:

$$\lambda_s = \left[\frac{\hat{g}_{11}(t_R^-)}{\hat{g}_{11}(t_R^+)} \right]^{1/2} = (1 + \tau^2 \dot{\gamma}^2)^{1/3} > 1 \quad (26)$$

$\lambda_s > 1$ 证明流体离模后在流动方向上发生回缩。

再以时刻 $t < t_R$ 为“现在时刻”, 并取对流坐标系使之在 t 时刻恰与固定坐标系重合, 则由本构方程可导出

$$\sigma_{12} = G\tau\dot{\gamma} \quad (27)$$

$$N_1 = \sigma_{11} - \sigma_{22} = 2G\tau^2\dot{\gamma}^2 \quad (28)$$

从而

$$\tau\dot{\gamma} = \sigma_{12}/G = N_1/2\sigma_{12} \quad (29)$$

又由动量方程

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r\sigma_{12}) = \frac{\partial p}{\partial z} \quad (30)$$

及边界条件, 可以推出

$$\sigma_{12} = r(\sigma_{12})_w/R \quad (31)$$

式中 R 为毛细管半径, 因此有:

$$\tau\dot{\gamma} = \sigma_{12}/G = S_R \cdot r/R \quad (32)$$

代入(26)式得

$$\lambda_s = [1 + (S_R/R)^2 r^2]^{1/3} \quad (33)$$

由于流体离模前后体积不变, 故有

$$\int_0^R 2\pi r \lambda_s dr = \int_0^{R_e} 2\pi r dr \quad (34)$$

式中 R_e 为挤出物半径。将(33)式代入(34)式得到最终结果:

$$B = R_e/R = \sqrt[3]{3} [(1 + S_R^2)^{4/3} - 1]^{1/2} / 2S_R \quad (35)$$

与实验值及其它理论之比较

挤出胀大方程的实验验证是比较困难的, 因为涉及到独立测量 S_R (或 N_{1w}) 和 B , 为测定 S_R 或 N_{1w} 虽已发展了一些直接或间接的实验技术, 但不同方法得到的结果相当分散。

锥-板流变仪可以直接测定第一法向应力差, 不幸的是这种仪器测试的切变速率限于相当低的范围。

为了在较宽的切变速率范围内取得数据,通常采用毛细管流变仪。用这种仪器测定 S_R 的一个方法是基于 Bagley 末端校正理论和 Philippoff 及 Gaskins 的下述公式:

$$e = n_c + (\sigma_{12})_w / 2G \quad (36)$$

$$S_R = (\sigma_{12})_w / G \quad (37)$$

式中 e 为 Bagley 校正因子, N_c 为 Couette 校正因子,后者是表示粘性贡献的常数。如果 G 与 $(\sigma_{12})_w$ 无关,利用(36)式可从 e 和 $(\sigma_{12})_w$ 的实验数据求得 G ,然后由(37)式算出 S_R 。然而,并非对所有材料, e 和 $(\sigma_{12})_w$ 都能在所考察范围内呈现线性关系,而且这一方法没有区别入口拉伸流动和毛细管剪切流动中材料的不同响应,因此所得的结果是比较粗糙的。

Graessley 等^[2]建议从分子参数的测试数据来间接计算 S_R :

$$S_R = J_0(\sigma_{12})_w \quad (38)$$

式中 J_0 为与分子参数相联系而与剪切速率无关的剪切柔量。

Vlachopoulos 等^[3]发展了上述方法,提出如下公式:

$$S_R = J_0(\dot{\gamma})(\sigma_{12})_w \quad (39)$$

称之为切速依赖形式的 Graessley 关系。

挤出胀大比 B 的测定往往也不易准确,特别是离模后的固化条件影响较大。

表 1 列出了三篇文献报道的实验数据。将这些数据与 Graessley 方程(2)、Tanner 方程(3)以及本文的方程(35)的理论曲线绘在同一半对数坐标系中,如图 2 所示。从表 1 和

表 1 文献[7,2,3]报道的实验数据

资料出处	测量 S_R 的依据	试 样	实 验 结 果	
			$S_R = N_{1w}/2(\sigma_{12})_w$	$B = D_e/D$
文献[7]表 4a、4b	Philippoff-Gaskins 关系式	Styron 634 $T = 200^\circ\text{C}$	2.63	1.221
			3.05	1.321
			3.70	1.377
			4.46	1.445
			5.84	1.559
			6.42	1.637
文献[2]表 III	Graessley 关系式	样本 D-A $T = 180^\circ\text{C}$	1.47	1.28
			2.40	1.36
			3.23	1.43
			4.22	1.51
			6.10	1.62
			7.74	1.74
文献[3]表 II	切速依赖型 Graessley 关系式	PS $\bar{M}_w = 1.8 \times 10^4$ $\frac{\bar{M}_w \bar{M}_{2+1}}{\bar{M}_n^2} = 1.25$ $T = 250^\circ\text{C}$	1.17	1.11
			1.80	1.16
			2.38	1.23
			2.57	1.28
			2.75	1.30
			2.99	1.30

图 2 可以看出,所引用的数据来源于不同的试样,温度条件和实验方法,但大体上都落在这三条理论曲线的附近。

致谢 本工作得到华南工学院高分子材料科学与工程系朱敏副教授的关心和指教,谨此致谢。

参 考 文 献

- [1] Nickel, R. E., Tanner, R. I. and Caswell, B., *J. Fluid Mech.*, 1974, 65, part 1, 189.
- [2] Graessley, W. W., Glasscock, S. D. and Crawley, R. I., *Trans. Soc. Rheol.*, 1970, 14, 519.
- [3] Vlachopoulos, J., Horie, M. and Lidorikis, *Trans. Soc. Rheol.*, 1973, 16, 669.
- [4] Tanner, R. T., *J. Polym. Sci.*, 1970, A2, 8, 2067.
- [5] Darby, R., "Viscoelastic Fluids" Dekker, New York, 1976.
- [6] 许元泽, 力学进展, 1982, (12), 399.
- [7] Pena, J. J., Guzman, G. M. and Santamaria, A., *Polym. Eng. Sci.*, 1981, 21, 507.

A NEW EQUATION ON DIE SWELL

ZHENG Rong and TANG Guojun

(South China Institute of Technology, Guangzhou)

ABSTRACT

An analysis of unconstrained elastic recovery of viscoelastic fluids following the release of stress is presented and a new equation relating die swell ratio to recoverable shear strain is developed. The prediction from the new equation was compared with the experimental data and with the theories of Graessley et al. and Tanner.