

金属熔丝成型复合丝材流体动力学特性

姜世杰^{1,2}, 李曙光¹, 许子沼¹, 王 菲¹

(1. 东北大学 机械工程与自动化学院, 沈阳 110819; 2. 东北大学 辽宁省机械装备动力学可靠性重点实验室, 沈阳 110819)

摘 要: 针对影响金属熔丝成型复合丝材质量的流体动力学问题, 首先自制 3 种不同高填充率的 17-4PH 不锈钢粉末/聚合物复合丝材, 并利用快速成型设备进行生坯样件的成型研究, 分析了复合丝材的可成型性条件。其次, 通过自主搭建的实验平台对成型过程中不同金属粉末填充率熔融复合丝材的压降进行测量, 进而分析了相关流体动力学特性参数的实验结果。再次, 建立了熔融材料的流体动力学解析模型, 完成了相应特性参数的理论解析, 通过理论与实验结果的对比, 验证了所建解析模型的正确性, 阐明了熔融材料流体动力学特性的机理。最后, 针对解析模型进行敏感性分析, 探究了过程参数对流体动力学特性的影响规律。结果表明: 自制的复合丝材可以成型出质量良好的生坯样件; 熔融材料的流体动力学特性参数随着金属粉末填充率的增大而逐渐增大; 理论与实验结果吻合度较好, 验证了解析模型的正确性; 在讨论的参数范围内喷嘴直径对熔融材料的流动行为影响最为显著, 其次是成型速度, 而熔融温度的影响相对最弱。

关键词: 机械工程; 金属熔丝成型增材制造技术; 17-4PH 不锈钢/聚合物复合丝材; 流体动力学特性; 解析模型

中图分类号: TH145.9 文献标志码: A 文章编号: 1671-5497(2025)07-2180-13

DOI: 10.13229/j.cnki.jdxbgxb.20231144

Rheological property of composite filament in metal fused filament fabrication process

JIANG Shi-jie^{1,2}, LI Shu-guang¹, XU Zi-zhao¹, WANG Fei¹

(1. School of Mechanical Engineering & Automation, Northeastern University, Shenyang 110819, China; 2. Key Laboratory of Dynamics Reliability of Mechanical Equipment of Liaoning Province, Northeastern University, Shenyang 110819, China)

Abstract: Concerning the rheological problems affecting the quality of composite filament in metal fused filament fabrication, Firstly, self-made three types of 17-4PH stainless steel powder/polymer composite filaments with different high filling rate were studied in this paper, rapid prototyping equipment was used to conduct molding research on green samples, and the formability conditions of the composite filaments were canalized. Secondly, the pressure drop of the molten composite filament with different metal powder filling ratio during the shaping process was measured by the self-constructed experimental platform, and the test

收稿日期: 2023-10-23.

基金项目: 中央高校基本科研业务费项目(N2303019).

作者简介: 姜世杰(1985-), 男, 副教授, 博士. 研究方向: 熔丝成型增材制造技术. E-mail: jiangsj@me.neu.edu.cn

results of the relevant rheological properties were analyzed. Thirdly, an rheological property model of the molten material was established, and the theoretical analysis on the corresponding characteristic parameters was completed. Through the comparison between the theoretical and experimental results, the correctness of the theoretical model was verified, and the mechanism of the rheological properties of molten materials were elucidated. Finally, a sensitivity analysis was carried out on the analytical model to investigate the influence of processing parameters on rheological property. The results show that the self-made composite filament can be used to form good-quality green samples; the rheological property parameters of the molten material gradually increase with the increasing filling ratio of the metal powder; the theoretical and experimental results are in good agreement, validating the correctness of the analytical model; the nozzle diameter has the most significant effect on the melt flow behavior of the molten material in the discussed parameter ranges, followed by the building speed, while the effect of the molten temperature is relatively weak.

Key words: mechanical engineering; metal fused filament fabrication; 17-4PH stainless steel/polymer composite filament; rheological property; analytical model

0 引言

金属熔丝成型增材制造技术(Metal fused filament fabrication, MFFF)^[1]是在熔丝成型增材制造技术(Fused filament fabrication, FFF)基础上,以金属粉末/聚合物复合丝材为原料,通过成型-脱脂-烧结(Shaping-debinding-sintering, S-D-S)工艺制造纯金属制品的材料挤出式增材制造技术,广泛应用于快速成型制造和特定产品加工领域,理论上能生产任意材料、复杂几何形状的结构。成型过程中,进给轮将复合丝材送入熔融喷头加热熔化,喷头通过预定轨迹行进并将熔融材料挤出至指定位置冷却凝固,经过逐层堆叠最终完成制品的成型。若熔融材料的压降或者表观黏度过高,则极易导致材料挤出困难甚至出现堵塞喷嘴的现象;若表观黏度过低,则可能导致制品质量差甚至成型失败。为此,需要对熔融材料的流体动力学特性参数进行系统性研究。

近年来,国内外学者对MFFF熔融复合材料的流体动力学特性进行了一系列研究。Ren等^[2]以石蜡、低密度聚乙烯和硬脂酸组成热塑性有机粘结剂,以铜粉为金属填充物制备丝材,并对丝材的流变特性进行分析。研究发现,成型过程中的熔融丝材具有明显的剪切稀化行为,使得剪切力更容易在熔融丝材间传递,保证了丝材在较低压降下的可成型性。Ismael等^[3]将热塑性粘结剂与高填充锆钛酸铅混合作为原料,发现低密度聚乙烯具有低黏度、低模膨胀的优点,可作为粘结剂的首选材料。Benz等^[4]将聚乳酸与不同长径比的铜颗粒混合,发现铜颗粒长径比为1(球形颗粒)的

物料黏度最低。Hausnerova等^[5]研究了17-4PH不锈钢粉末颗粒形状及粒径对物料流变特性的影响,发现不锈钢粉末颗粒形状及粒径皆影响物料的流变特性,且粒径的影响更为显著。Kukla等^[6]制备了不同粒径的316L不锈钢复合丝材,并对其在185℃熔融温度、113 s⁻¹剪切速率下的黏度进行分析,研究发现在此条件下的可成型丝材需具有中等黏度;增大316L填充颗粒粒径可进一步降低丝材黏度。Gonzalez-Gutierrez等^[7]制备了含有锆铁氧体粉末的丝材,并通过实验研究了不同粉末含量和黏度的关系,结果表明随着锆铁氧体粉末含量的增加,物料的黏度呈指数增长;若在保证锆铁氧体粉末含量较高的丝材成功被挤出,必须进一步提高熔融温度。Gloeckle等^[8]利用旋转流变仪在振荡模式下对黏结剂和原料进行了流变实验,研究发现金属颗粒间的弹性和黏性相互作用极大地影响甚至支配着原料的流动特性;金属粉末填充率越低,物料黏度对温度越敏感。

少数学者在复合物料流变特性的理论和数值模拟方面进行了研究。Dimitri等^[9]以718合金粉末、聚乙二醇、聚丙烯、硬脂酸为原料制备了复合丝材,并针对其流变特性建立了理论模型,分析了金属粉末填充率、温度、粒径等参数的影响情况,最后通过实验验证了理论模型的正确性;结果表明,所建立的流变模型理论与实验结果吻合良好,模型准确可靠。Singh等^[10]制备了不同粒径的Ti-6Al-4V钛合金复合丝材(体积填充率为59%),完成了流体动力学理论模型的创建,分析了不同进给速率下熔融材料的压降及所需进给力等参

数;研究发现,熔融材料压降随着丝材进给速率的增大而增大;需要提高丝材的刚度,以保证在进给速率增大的同时,避免因克服熔融材料的压降导致进给失效。Nikzad 等^[11]对由丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物和铁粉制成的复合丝材的流动行为进行了仿真研究,为开发 MFFF 流体动力学模型和优化过程参数提供了基础信息。综上所述,对于 MFFF 生坯样件,其拉伸强度等力学性能受到逐层堆叠材料之间的黏结强度的影响,而熔融复合材料的流变性能是影响黏结强度的关键因素之一。因此,亟需研究熔融复合材料的流变性能但多数学者针对 MFFF 熔融材料流体动力学的研究主要集中在优化黏结剂组分或提高金属粉末颗粒质量以降低物料黏度等方面。此外,文献中普遍利用流变仪测试熔融材料的流变特性,与实际工况明显不同,难以保证结果的准确性,且该方法属于间接测量,无法反映成型过程中熔融材料的实时流变特性,具有明显的局限性。

为此,首先本文自主研制了 40%、45% 及 50% 3 种体积填充率的 17-4PH 不锈钢粉末/聚合物复合丝材,探讨了其可成型性及填充率对 MFFF 生坯样件性能的影响规律;其次,自主搭建实验平台,实现了熔融材料流体动力学特性参数的直接实时监测;再次,建立了熔融材料的流体动力学解析模型,从理论机理方面分析了熔融丝材的流体动力学特性,为提高生坯制品成型质量提供有效的过程参数设计建议,同时避免反复冗长的实验过程;最后,对解析模型进行敏感性分析,探究了过程参数(喷嘴直径、熔融温度、成型速度)对流体动力学特性的影响规律,分析不同过程参数对流体动力学性能的影响趋势和影响程度,阐明了金属粉末填充率与复合丝材可成型性及流体动力学特性的对应关系,为后续优化 MFFF 生坯样件成型质量指明方向。

1 实验

1.1 丝材制备

为研究流体动力学特性对 MFFF 生坯成型过程及其质量的影响,本文自主研制了 40%、45% 及 50% 3 种体积填充率的 17-4PH 不锈钢粉末/聚合物黏结剂复合丝材。17-4PH 不锈钢粉末粒度分布及颗粒属性分别如图 1 和表 1 所示。由图 1 可知,粉末粒度为 10~50 μm ,最大体积分数出现在 30.663 μm ;聚合物黏结剂系统具体包

括聚乳酸、乙烯-醋酸乙烯共聚物以及高密度聚乙烯。

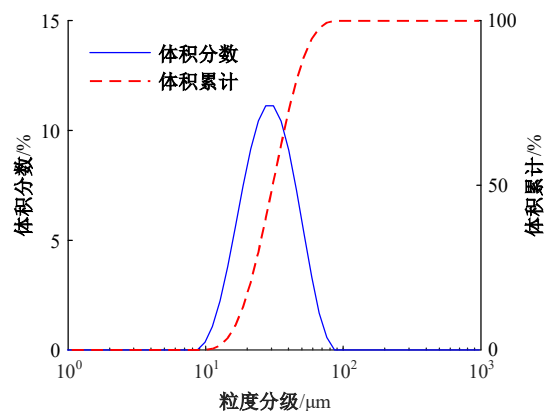


图 1 17-4PH 不锈钢粉末粒度分布

Fig. 1 Particle size distribution of 17-4PH stainless steel powder

表 1 17-4PH 不锈钢粉末颗粒属性

Table 1 Particle properties of 17-4PH stainless steel powder

μm		
D_{10}	D_{50}	D_{90}
17.417	30.663	52.869

注: D_{10} 、 D_{50} 和 D_{90} 分别表示金属粉末粒径<17.417、30.663及52.869 μm 的颗粒占比为10%、50%及90%。

丝材制备过程如下:①利用捏合机(1L-真空型)混合 17-4PH 不锈钢粉末和聚合物黏结剂组分,温度设定为 200 $^{\circ}\text{C}$,2 个反向旋转的搅拌桨转速分别为 48 和 26 r/min,混合时间为 3 h,以保证材料均匀混合;②将混合物料取出静置并冷却至室温,然后放入破碎机(BP-180)中破碎成颗粒物料;③将颗粒物料置入挤出机(Well zoom),其混合段和挤出段温度分别设定为 165 和 170 $^{\circ}\text{C}$,螺杆挤出速度为 30 r/min;④挤出丝材经过水冷机冷却,再经在线辅助直径测量装置逐步调整挤出和牵引速度,保证丝材的成型精度(直径为 1.75 mm $\pm$ 0.2 mm);⑤利用卷丝机完成丝材的收卷储存。

1.2 样件成型及静力学实验

以 3 种自制复合丝材为原材料,利用 FL-SUN QQ 型快速成型设备制备不同的 MFFF 生坯样件(如图 2 所示),其中标准拉伸、压缩及弯曲实验样件各 15 个,每种复合丝材制成的样件各 5 个,以验证丝材的可成型性。需要注意,样件除金属粉末填充率不同以外,其他过程参数的设置均相同,如喷嘴直径、熔融温度、层厚、成型速度等,具体的过程参数如表 2 所示。

利用材料试验机(SHIMADZU EHF-EV101K

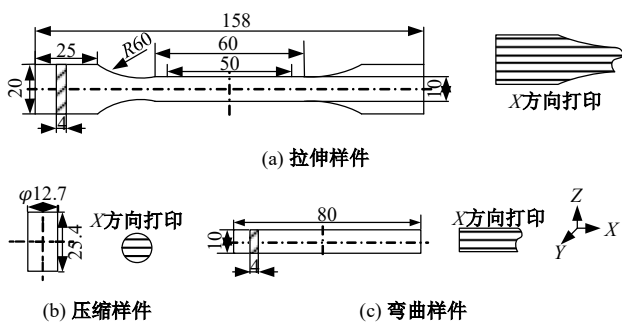


图 2 MFFF 生坯样品
Fig. 2 MFFF green samples

1-040-1A)对不同金属粉末填充率丝材成型的拉
伸样品 (T_{40-i} 、 T_{45-i} 和 T_{50-i} , $i=1\sim 5$)、压缩样品

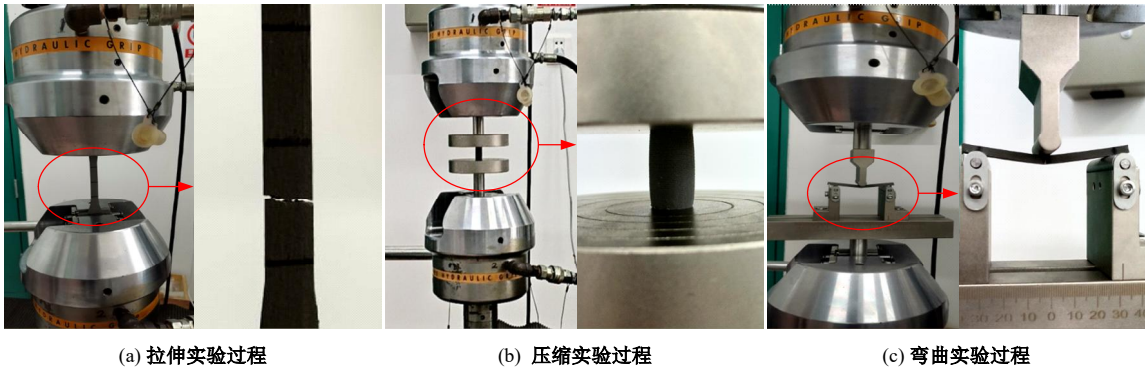


图 3 生坯样品静力学实验
Fig. 3 Static experiments on green sample

表 3 静力学实验过程参数				
Table 3 Statics experiments process parameters				
实验名称	实验标准	加载速度/ (mm·min ⁻¹)	夹持力/ MPa	实验 次数
拉伸实验	ISO527—4:2023	5	2	5
压缩实验	ASTM—695	1	—	5
弯曲实验	ISO178—2001	2	—	5

1.3 流变实验

为明确熔融复合丝材流体动力学特性与可成型性及制品性能的关系,使用如图 4 所示自主设计搭建的测试系统对 MFFF 熔融材料流体动力学特性参数进行了测试分析。该测试系统主要包括 MFFF 设备(FLSUN QQ)、称重传感器(OMAGA LCL-010)、信号调节器(OMAGA DRF-LC-24VDC-20MV-0/10)和数据采集卡(NI USB-4431)。

首先针对喷嘴进行了重新设计,加装了压降转移孔和螺纹孔。其中,压降转移孔为直径 1 mm 的通孔(主要由称重传感器的容量决定),用以安装负载柱;直径为 4.5 mm 的螺纹孔用于安装螺

表 2 过程参数设置	
Table 2 Setting of process parameters	
过程参数	数值
熔融温度/℃	240
成型速度/(mm·s ⁻¹)	10
层厚/mm	0.25
床温/℃	90
喷嘴直径/mm	0.4
填充比例/%	100
填充方式	直线填充

(C_{40-i} 、 C_{45-i} 和 C_{50-i} , $i=1\sim 5$)及弯曲样品 (F_{40-i} 、 F_{45-i} 和 F_{50-i} , $i=1\sim 5$) 分别进行静力学实验(如图 3 所示),进而分析填充率对生坯样品静力学性能的影响规律。具体静力学实验过程参数如表 3 所示。

杆(固定称重传感器和安装套件)。实验前利用安装套件将称重传感器固定在螺杆上,然后将负载柱通过压降转移孔与喷头内部流体直接接触,负载柱的另一端嵌入固定称重传感器的安装套件中,以便熔融材料的压降能及时传递给称重传感器;根据称重传感器量程调整信号调节器,保证其将完整信号进行放大,并最终由数据采集卡完成信号采集。

实验过程中,启动 FLSUN QQ 型快速成型设备,熔融材料由喷嘴挤出并流经压降转移孔,使负载柱受迫移动,进而挤压称重传感器变形产生电压信号。电压信号经信号调节器(与称重传感器相连)放大,再由数据采集卡采集并分析确定熔融材料的压降。不同金属粉末填充率丝材的压降分别表示为 P_{40} 、 P_{45} 及 P_{50} ,对应的剪切应力及表观黏度分别为 τ_{40} 、 τ_{45} 、 τ_{50} 、 η_{40} 、 η_{45} 及 η_{50} 。流变实验中的过程参数与样品成型时保持一致,为保证实验数据的可重复性和准确性,每组实验重复进行 10 次,每次持续 1 min,并将 10 次测量数据的平均值

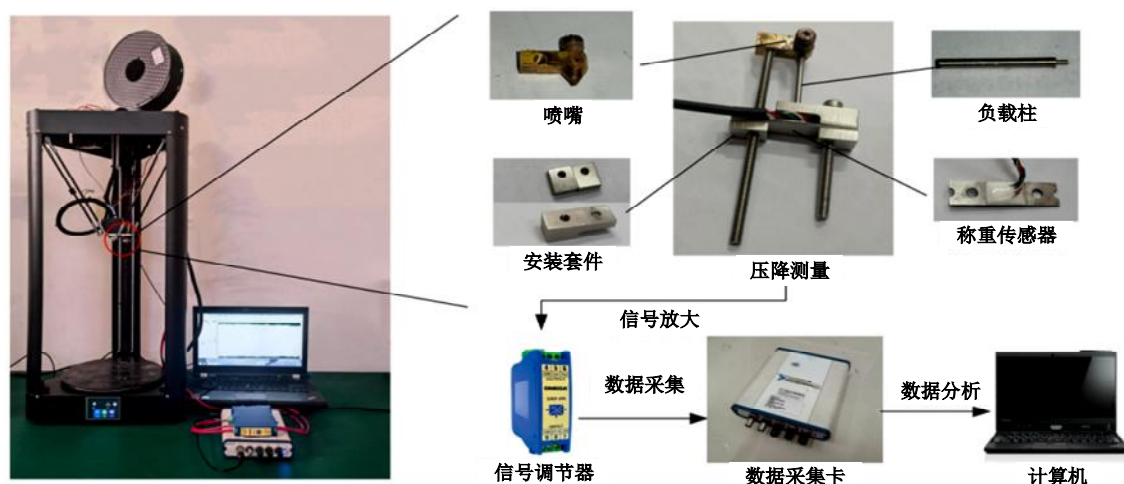


图 4 熔融材料流体动力学特性测试系统

Fig. 4 Molten material rheological property test system

作为每组实验的最终分析结果。

由于称重传感器输出的是电压值,需要将电压值转换为压降值。实验前,将不同质量数据(0、0.1、0.2、0.5、1、1.5、2 kg)依次直接连接到负载柱上以校对并拟合电压与压降的关系曲线,如图 5 所示。

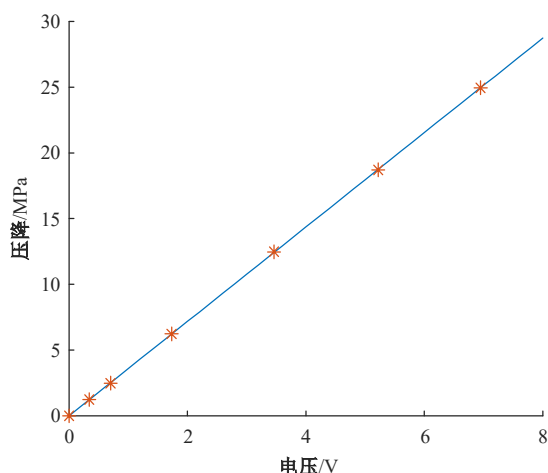


图 5 电压-压降转化曲线

Fig. 5 Voltage-pressure transformation curve

2 理论分析

为了评估热熔喷头内部熔体的流动行为,使用旋转流变仪(型号为 TA-HR10)分析 240 ℃、0.1~1 000 s⁻¹剪切速率范围内自制复合丝材黏度的变化情况,其表现出剪切稀化行为,即物料黏度随着剪切速率的增加而降低。因此,利用非牛顿流体的幂律定律对数据进行拟合,确定了材料在 240 ℃时表观黏度、稠度系数及非牛顿指数之间的关系,即:

$$\eta = K \cdot \dot{\gamma}^{n-1} \quad (1)$$

式中: η 为表观黏度; $\dot{\gamma}$ 为剪切速率; K 为稠度系数; n 为非牛顿指数。

熔融材料压降与喷头内部通道的几何形状、尺寸以及熔体的粘弹性行为有着直接的关联。根据热熔喷嘴内部的结构特征,可以将其分为 3 个几何区域(见图 6)。区域 I 是热熔喷嘴的上部区域,为圆柱形,丝材由此进入并熔化为半熔融状态;区域 II 是半熔融材料在热熔喷头中从区域 I

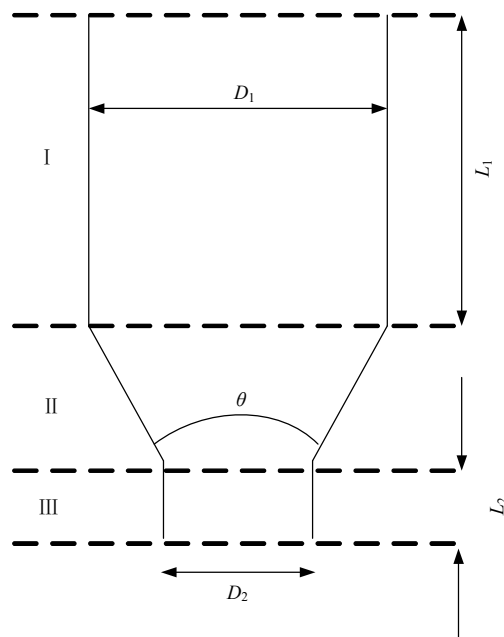


图 6 嘴头几何形状示意图

Fig. 6 Schematic of nozzle geometry

进入区域 III 的过渡区域,为圆锥台形,使流体以更高的剪切速率加速进入区域 III;区域 III 是热熔喷嘴的下部区域,为圆柱形,半熔融材料从该区域挤

出到外部。热熔喷嘴符号释义如表 4 所示。

表 4 热熔喷嘴符号释义

Table 4 Interpretation of hot melt nozzle symbols

符号	释义	数值
D_1/mm	区域 I 处的直径	1.75
D_2/mm	区域 III 处的直径	0.4
L_1/mm	区域 I 处的长度	10
L_2/mm	区域 III 处的长度	0.6
$\theta/(\text{^\circ})$	喷嘴的收缩角	60

区域 I 几何形状及内部流体流动示意图如图 7 所示,假设圆柱形通道的长度和半径分别为 L_1 和 R_1 。为了便于分析,使用圆柱坐标系来描述坐标点。其中, z 为熔体的流速方向; r 为速度梯度方向; θ 为中性方向。

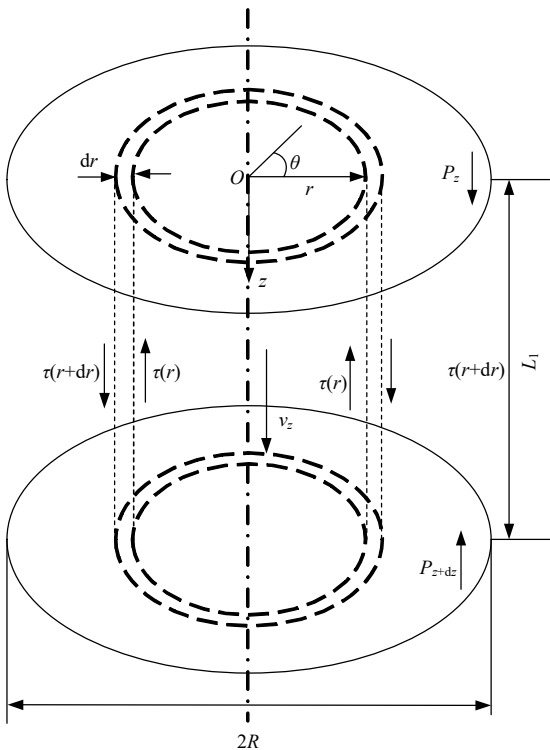


图 7 喷嘴区域 I 几何形状及内部流体流动示意图
Fig. 7 Nozzle region I geometry and internal fluid flow schematic

为了便于分析区域 I 内的熔体流动特性,做出以下假设:①流体不可压缩;②热熔喷头内部温度恒定;③流体流动为层流(雷诺数 $Re < 2\,300$);④无额外的力影响;⑤忽略重力对流体的影响;⑥流体为一维单向流动,即 $v_r = v_\theta = 0$;⑦流体完全流动并轴向分层;⑧流体在喷头内壁处无滑移,即 $v_z(R) = 0$;⑨层流条件下,喷头中心到壁面的剪切应力沿径向呈线性变化。

由于流体不可压缩,取喷嘴区域 I 中轴向长度为 dz 、厚度为 dr 的差分圆柱形流体,并建立平衡方程:

$$2\pi r dr P_1(z) + \tau_1(r) 2\pi r dz = 2\pi r dr P_1(z + dz) + \tau_1(r + dr) 2\pi(r + dr) dz \quad (2)$$

式中: $P_1(z)$ 为喷嘴区域 I 中差分圆柱形流体入口处压降; $\tau_1(r)$ 为喷嘴区域 I 中差分圆柱形流体内壁剪切应力。

由于流体为处于充分流动状态的层流,对 $P_1(z + dz)$ 以及 $\tau_1(r + dr)$ 进行泰勒展开并进一步简化式(2),可得:

$$\frac{\Delta P_1}{L_1} = -\frac{\tau_1}{r} - \frac{d\tau_1}{r} - \frac{\partial \tau_1}{\partial r} \quad (3)$$

如图 8 所示,流体在喷头内部流动时,距离 O 点对称处的剪切应力大小相等,所以有:

$$\partial \tau_1 = -\partial \tau_1 \quad (4)$$

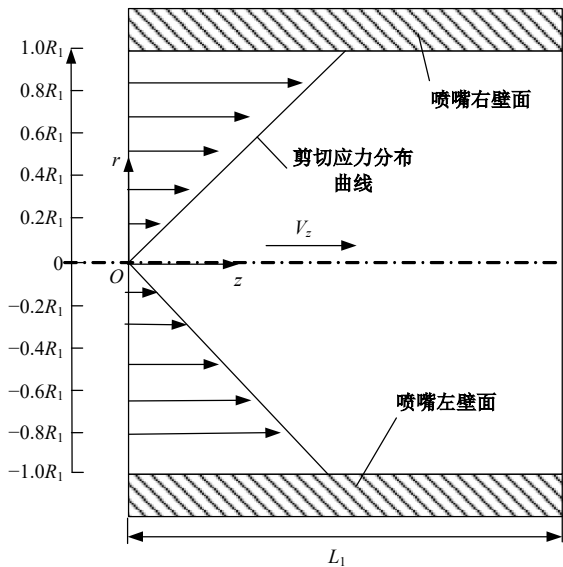


图 8 喷嘴区域 I 剪切应力分布
Fig. 8 Shear stress distribution in nozzle region I

由于流体在内壁处森严无滑移且喷头内部的径向剪切应力呈线性分布,即喷头中心处的剪切应力为零,壁面处的剪切应力最大。因此,流体剪切应力从左壁面到右壁面呈现逐渐减小至零再逐渐增大的趋势,即:

$$\int_{-\tau_1}^{\tau_1} d\tau_1 = \tau_1 - (-\tau_1) = 2\tau_1 \quad (5)$$

将式(4)和式(5)代入式(3),并对微分方程进行求解,可得:

$$\tau_1 = \frac{\Delta P_1}{2L_1} r + \frac{C_1}{r} \quad (6)$$

式中: C_1 为积分常数。

因为喷头中心处流体的剪切应力为零,所以积分常数 C_1 必须为零,则剪切应力为:

$$\tau_1 = \frac{\Delta P_1}{2L_1} r \quad (7)$$

利用基于 Max-wall 线性本构方程改良的 Tanner 非线性本构方程^[12]描述流体的非线性粘弹性行为,其表达式为:

$$\tau_1 + \lambda \frac{\partial \tau_1}{\partial t} = \eta(\dot{\gamma}) \dot{\gamma} = K \left(-\frac{\partial v}{\partial r} \right)^n \quad (8)$$

式中: λ 为松弛时间; t 为时间; v 为速度。

将式(7)代入式(8)并进行积分,可得:

$$v(r) = - \left(\frac{\Delta P_1}{2KL_1} \right)^{\frac{1}{n}} \frac{n}{n+1} r^{\frac{n+1}{n}} + C_2 \quad (9)$$

进一步将 $v_z(R_1) = 0$ 代入式(9),可得:

$$v(r) = \left(\frac{\Delta P_1}{2KL_1} \right)^{\frac{1}{n}} \cdot \frac{n}{n+1} R_1^{\frac{n+1}{n}} \cdot \left[1 - \left(\frac{r}{R_1} \right)^{\frac{n+1}{n}} \right] \quad (10)$$

式中: R_1 为喷嘴区域 I 处的半径。

流体在喷头中的体积流量和速度之间的关系可表示为:

$$Q = \int_0^{R_1} 2\pi r v dr \quad (11)$$

熔体的平均流速为:

$$\bar{v} = \frac{Q}{\pi R_1^2} = \left(\frac{\Delta P_1}{2KL_1} \right)^{\frac{1}{n}} \cdot \frac{n}{3n+1} R_1^{\frac{n+1}{n}} \quad (12)$$

将式(12)进行整理,可得:

$$\Delta P_1 = \left[\frac{K \bar{v} \cdot \left(\frac{3n+1}{n} \right)^n}{R_1^{n+1}} \right] \cdot 2L_1 \quad (13)$$

在挤出过程中,忽略其他作用力的影响,熔融材料由后续进给的丝材推动,即熔体的平均流速与丝材的进给速度一致:

$$V_1 = \bar{v} \quad (14)$$

式中: V_1 为丝材的进给速度; $\bar{v}$ 为熔融材料的平均流速。

此外,喷头内部流体流动过程中的温度变化对压降有一定影响。由 Arrhenius 关系^[13]可得:

$$H(T) = \exp \left(E \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_a} \right) \right) \quad (15)$$

式中: E 为活化能; T 为熔融温度; T_a 为参考温度,用于计算 K 和 n 。

结合式(13)和式(15)可得区域 I 的压降为:

$$\Delta P_1 = \left[\frac{K \bar{v} \cdot \left(\frac{3n+1}{n} \right)^n}{R_1^{n+1}} \right] \cdot 2L_1 \cdot \exp \left(E \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_a} \right) \right) \quad (16)$$

区域 III 的压降方程 ΔP_3 和区域 I 的类似,区域 II 的压降方程 ΔP_2 可以通过低雷诺数流量假设以及将锥形区域离散成差分圆柱区域,并对差分圆柱区域求和得到。最终表达式分别如下:

$$\Delta P_2 = \frac{2}{\tan(\theta/2)} \cdot K \bar{v}^n \cdot R_1^{2n} \cdot \left(\frac{3n+1}{n} \right)^n \cdot \frac{1}{3n} \cdot \left(\frac{1}{R_2^{3n}} - \frac{1}{R_1^{3n}} \right) \cdot \exp \left(E \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_a} \right) \right) \quad (17)$$

$$\Delta P_3 = \left[\frac{K \bar{v} \cdot \left(\frac{3n+1}{n} \right)^n R_1^{2n}}{R_2^{3n+1}} \right] \cdot 2L_2 \exp \left(E \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_a} \right) \right) \quad (18)$$

因此,喷嘴内部总压降为:

$$\Delta P = \Delta P_1 + \Delta P_2 + \Delta P_3 \quad (19)$$

进一步可得喷嘴出口壁面处的剪切应力 τ_w 为:

$$\tau_w = \frac{\Delta P R_2}{2L_2} \quad (20)$$

式中: R_2 为喷嘴出口半径; L_2 为喷嘴区域 III 的长度。

非牛顿流体的材料可以用幂律定律进行描述:

$$\begin{cases} \eta = K \cdot \dot{\gamma}^{n-1} \\ \tau = K \cdot \dot{\gamma}^n \end{cases} \quad (21)$$

喷头内部流体由金属粉末和聚合物黏结剂组成,流体存在剪切稀化行为,导致流体在喷头内部的流动速度分布情况与牛顿流体的流动速度分布情况不同。为说明这一点,利用 Rabinowitsch 修正方法^[14]将剪切速率修正为:

$$\dot{\gamma} = \left(\frac{3n+1}{4n} \right) \cdot \frac{4Q}{\pi R_2^3} \quad (22)$$

由质量守恒定律(假设流体不可压缩)可得,进入喷头内部材料的体积与喷嘴挤出材料的体积相等,根据体积流量与平均流速之间的关系,可得:

$$Q = A_1 V_1 = A_2 V_2 \quad (23)$$

式中: A_1 为喷嘴区域 I 的横截面积,即喷嘴入口处的横截面积; A_2 为喷嘴区域 II 的横截面积,即喷嘴出口处横截面积; V_2 为流体在喷嘴出口处的速度,即成型速度。

结合式(20)~(23)得到喷头内部熔体表观黏度为:

$$\eta=\frac{\Delta PnR_2^2}{2L_2V_2(3n+1)}$$

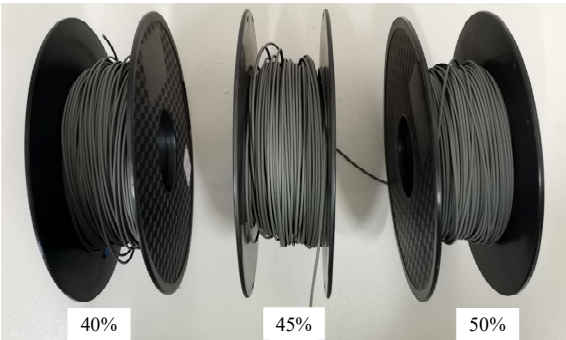
(24)

3 结果与讨论

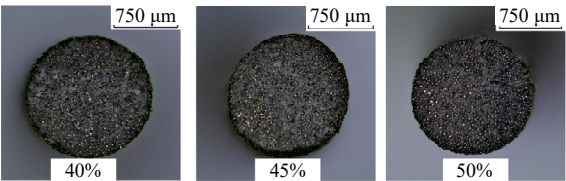
3.1 丝材可成型性及样件的静力学性能

丝材可成型性包括丝材自身可成型及丝材可用于成型生坯样件。其中,丝材自身可成型要求所制备的丝材直径均匀,可实现良好缠绕,并且金属粉末均匀分布于聚合物黏结剂;丝材可成型样件要求样件成型过程的连续性以及所制备的MFFF生坯样件满足所需的尺寸和几何形状要求。

图9(a)为收卷状态下自制的3种17-4PH不同金属粉末填充率丝材,可见丝材尺寸均匀、柔韧性好,可以进行批量制备。图9(b)为对应丝材的



(a) 收卷状态的不同金属粉末填充率丝材



(b) 不同金属粉末填充率丝材的横截面形貌

图9 自制的17-4PH不锈钢粉末/聚合物复合丝材

Fig. 9 Self-made 17-4PH stainless steel powder/polymer composite filaments

横截面形貌,可见金属粉末及聚合物黏结剂混合均匀,未产生团聚或不均匀团块等缺陷问题,降低了丝材缺陷问题导致熔融状态流动性差进而造成样件成型困难的可能性。

由图10可得,所制备的3种复合丝材都可以成型出不同几何形状和尺寸的MFFF生坯样件,即所制备的不同金属粉末填充率的丝材皆可用于MFFF成型工艺。进一步分析自制的3种复合丝材成型的生坯样件的静力学性能,如表5和图11所示。可见,随着金属粉末填充率的增大,生坯样件的各项静力学性能皆下降。这是由于MFFF生坯成型过程中,随着金属粉末填充率的增加,熔融材料的熔化程度有所降低,进而导致熔体的流动性变差,逐层堆积的材料之间的黏结强度降低,从而降低了生坯样件的可成型性以及样件的力学性能。因此,复合丝材的流变性能是影响样件成型质量的关键因素之一,为保证样件的成型质量,要求熔融复合材料具有良好的流变特性。

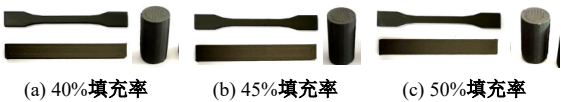


图10 自制复合丝材成型的生坯样件

Fig. 10 Self-made composite filament shaped green samples

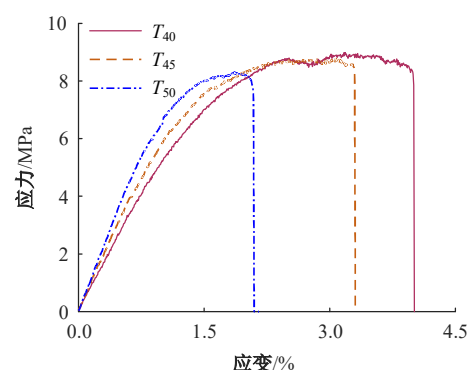
3.2 丝材流变性能

图12为不同金属粉末填充率丝材在240℃、0.1~1 000 s⁻¹剪切速率范围内的表观黏度变化情况。可见,复合丝材为非牛顿流体,表现出剪切稀化行为,即在同一温度条件下,丝材的表观黏度随着剪切速率的增加而降低,并且在低剪切速率范围内变化较迅速,随着剪切速率的增大,表观黏度变化逐步趋于平缓。进一步推断,随着金属粉末填充率的增加,丝材的表观黏度也逐渐增大。当丝材内的金属粉末填充率达到临界值时,黏度理论上应接近无穷大。这是由于熔体是由金属粉

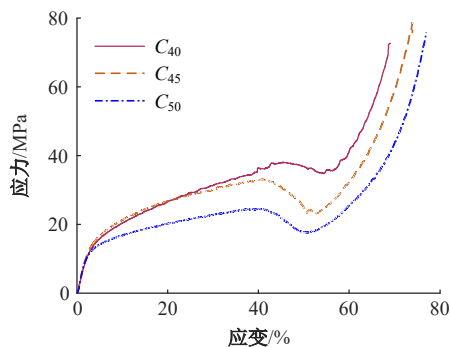
表5 不同17-4PH不锈钢粉末填充率生坯样件静力学实验结果

Table 5 Static experimental results of green samples with different 17-4PH stainless steel powder filling ratio

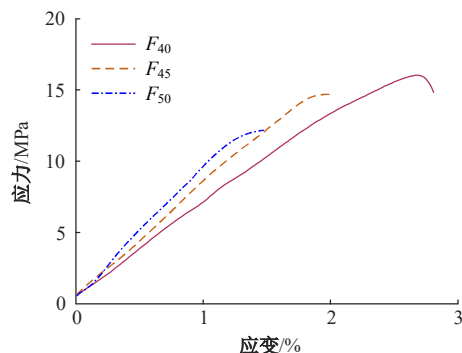
金属粉末 体积填充 率/%	拉伸实验				压缩实验			弯曲实验			
	平均最大 拉伸力/N	平均拉伸 强度/MPa	平均拉 伸模量/ MPa	平均断裂 应变/%	平均最大 压缩力/N	平均压 缩强度/ MPa	平均压缩 模量/ MPa	平均最 大弯曲 力/N	平均弯 曲强度/ MPa	平均弯曲 模量/MPa	平均断裂 应变/%
40	359.5	9.0	530.3	4.01	6 853.3	54.1	533.8	26.7	16.1	601.2	2.79
45	351.9	8.8	615.2	3.30	5 421.1	42.8	628.7	24.5	14.7	746.3	2.01
50	332.8	8.3	751.1	2.16	4 171.6	32.9	725.4	20.3	12.2	905.4	1.48



(a) 拉伸样件应力-应变曲线



(b) 压缩样件应力-应变曲线



(c) 弯曲样件应力-应变曲线

图 11 不同 17-4PH 不锈钢粉末填充率生坯样件静力学性能

Fig. 11 Static properties of green samples with different 17-4PH stainless steel powder filling rates

末和聚合物黏结剂系统组成的两相分散体系,分散的金属粉末对熔体的流动起阻碍作用,随着金属粉末填充率的增加,熔体的流动性变差,表现为表观黏度逐步增大。因此,金属粉末填充率越高,复合丝材挤出越困难,甚至堵塞喷嘴。

利用幂律定律对图 12 中的表观黏度进行拟合,得到稠度系数与非牛顿指数,如表 6 所示。随着金属粉末填充率的增大,稠度系数增大而非牛顿指数减小,进一步说明金属粉末填充率越高,物料的表现黏度越大,流变稳定性越差,进而导致所

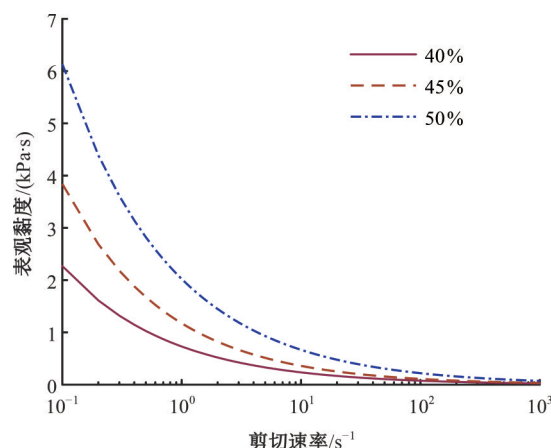


图 12 不同金属粉末填充率丝材的表现黏度与剪切速率的关系

Fig. 12 Apparent viscosity versus shear rate of filaments with different metal powder filling ratio

表 6 不同金属粉末填充率丝材的稠度系数与非牛顿指数

Table 6 Consistency coefficients and non-Newtonian indices of filaments with different metal powder filling ratio

体积填充率/%	K	n
40	730.6	0.533 4
45	1 225	0.510 2
50	2 097	0.496 8

制备生坯样件的可成型性和力学性能越差。

3.3 模型验证

图 13 为不同金属粉末填充率熔融复合丝材流体动力学特性参数的理论和实验结果,具体数值如表 7 所示。可见,理论与实验结果之间的误差较小(7.07%~8.10%),解析模型可以较好地预测熔融材料的流体动力学特性参数。同时发现,流体动力学特性参数(压降、剪切应力及表观黏度)皆随金属粉末填充率的增加而增大,即金属粉末含量越高,熔融材料的流动性越差,成型越困难。此外,特性参数的理论计算值皆略低于实际测量值,这是因为理论计算时,默认成型过程中熔融温度稳定无变化,而在实际成型过程中,固体丝材的进给会降低局部区域的温度,进而增大实际参数数值。

4 模型敏感性分析

为进一步探究解析模型的正确性,通过改变成型速度、熔融温度及喷嘴直径 3 个关键过程参

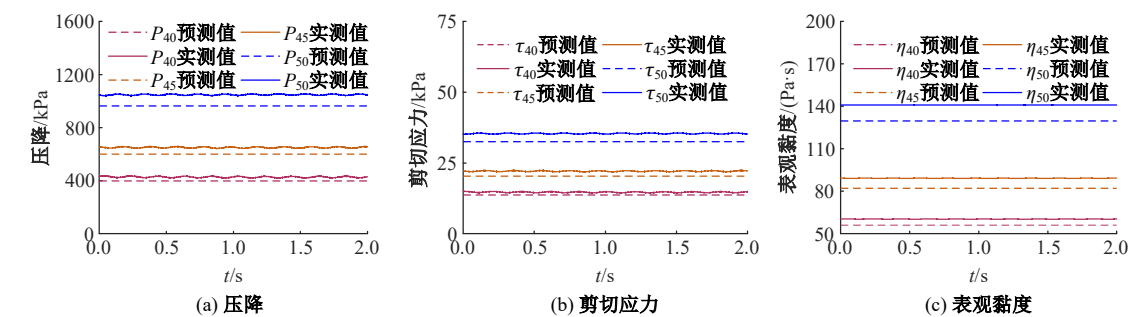


图 13 不同金属粉末填充率熔融复合丝材流体动力学特性参数的理论和实验结果

Fig. 13 Theoretical and experimental results of rheological property parameters of molten composite filaments with different metal powder filling ratio

表 7 不同金属粉末填充率熔融复合丝材流体动力学特性参数理论与实验结果对比

Table 7 Comparison of theoretical and experimental results of rheological property parameters of molten composite filaments with different metal powder filling ratio

体积填充率/%	参数	理论预测值	实验测试值	相对误差/%
40	压降/kPa	398.01	428.72	7.16
	剪切应力/kPa	13.67	14.71	7.07
	表观黏度/(Pa·s)	56.09	60.44	7.19
45	压降/kPa	598.83	650.15	7.89
	剪切应力/kPa	20.36	22.12	7.96
	表观黏度/(Pa·s)	82.09	89.22	8.00
50	压降/kPa	963.23	1 048.10	8.10
	剪切应力/kPa	32.54	35.38	8.03
	表观黏度/(Pa·s)	129.83	141.01	7.93

表 8 模型敏感性测试参数

Table 8 Model sensitivity test parameters

参数	值 1	值 2	值 3
喷嘴直径/mm	0.4(默认)	0.6	0.8
熔融温度/℃	240(默认)	250	260
成型速度/(mm·s ⁻¹)	10(默认)	15	20

4.1 喷嘴直径的影响

图 14 为喷嘴直径对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数的影响。可见,熔融材料的压降和剪切应力皆随喷嘴直径的增大而减小,表观黏度则相反,即压降和剪切应力皆与喷嘴直径负相关,而表观黏度与喷嘴直径正相关,具体数值如表 9 所示。这是因为当喷嘴直径增大时,喷头内部区域Ⅲ的压降会减小,进而减小喷头内部总压降;与此同时,喷嘴处的熔体流动速度减小,致使剪切速率降低,从而降低熔体的剪切应力;但由于流体为假塑性流体,表观黏度与剪切速率呈负相关。在任意喷嘴直径下,剪切速率的降幅皆大于压降的降幅。因此,表观黏度将随着喷嘴直径的增大而逐渐增大。但表观黏度并不会无限增大,当熔体的剪切速率接近于零时,熔体近似于牛顿流体,表观黏度达到最大值。

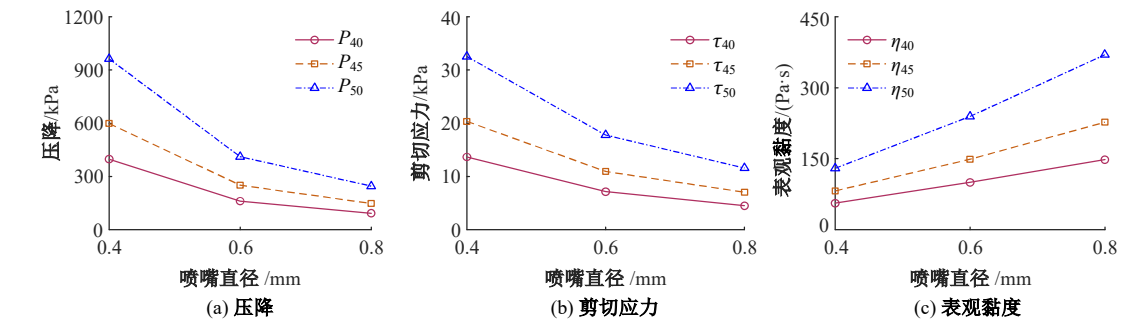


图 14 喷嘴直径对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数的影响

Fig. 14 Effect of nozzle diameter on rheological property parameters of molten materials with different metal powder filling ratio

表 9 喷嘴直径对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数影响结果

Table 9 Results of effect of nozzle diameter on rheological property parameters of molten materials for different metal powder filling ratio

体积填充率/%	参数	喷嘴直径/mm		
		0.4(默认值)	0.6	0.8
40	压降/kPa	398.01	161.21	92.78
	增幅/%	—	−59.49	−76.69
	剪切应力/kPa	13.67	7.14	4.51
	增幅/%	—	−47.77	−67.00
	表观黏度/(Pa·s)	56.09	99.93	147.99
	增幅/%	—	78.16	163.84
45	压降/kPa	598.83	250.98	147.83
	增幅/%	—	−58.09	−75.32
	剪切应力/kPa	20.36	10.95	7.05
	增幅/%	—	−46.22	−65.37
	表观黏度/(Pa·s)	82.09	148.95	227.31
	增幅/%	—	81.45	176.9
50	压降/kPa	963.23	411.76	245.75
	增幅/%	—	−58.25	−74.49
	剪切应力/kPa	32.54	17.78	11.58
	增幅/%	—	−45.36	−64.41
	表观黏度/(Pa·s)	129.83	239.45	369.67
	增幅/%	—	84.43	184.73

4.2 熔融温度的影响

图 15 为熔融温度对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数的影响。可见,熔融材料的压降、剪切应力及表观黏度皆随熔融温度的升高而减小,即压降、剪切应力及表观黏度皆与熔融温度负相关,具体数值如表 10 所示。这是因为随着熔融温度的升高,丝材接收的热量更多,熔化更充分,流动性更好;从微观角度分析,由于温度更高,分子变得更加活跃,分子间距加大,流体

流动过程中的阻力更小。虽然提升温度可以改善熔融材料的流变特性,但温度不能无限升高,以防丝材中的聚合物黏结剂组分因温度过高而无法成型。

表 10 熔融温度对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数影响结果

Table 10 Effect of molten temperature on rheological property parameters of molten materials for different metal powder filling ratio

体积填充率/%	参数	熔融温度/℃		
		240(默认值)	250	260
40	压降/kPa	398.01	397.01	396.05
	增幅/%	—	−0.25	−0.49
	剪切应力/kPa	13.67	13.64	13.60
	增幅/%	—	−0.22	−0.51
	表观黏度/(Pa·s)	56.09	55.94	55.81
	增幅/%	—	−0.27	−0.5
45	压降/kPa	598.83	597.33	595.88
	增幅/%	—	−0.25	−0.49
	剪切应力/kPa	20.36	20.31	20.26
	增幅/%	—	−0.25	−0.49
	表观黏度/(Pa·s)	82.09	81.88	81.69
	增幅/%	—	−0.26	−0.49
50	压降/kPa	963.23	960.81	958.49
	增幅/%	—	−0.25	−0.49
	剪切应力/kPa	32.54	32.46	32.38
	增幅/%	—	−0.25	−0.49
	表观黏度/(Pa·s)	129.83	129.51	129.20
	增幅/%	—	−0.25	−0.49

4.3 成型速度的影响

图 16 为成型速度对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数的影响。可见,压降和剪切应力皆随成型速度的增大而增大,表观黏度则随成型速度的增大而减小。即压降和剪切应

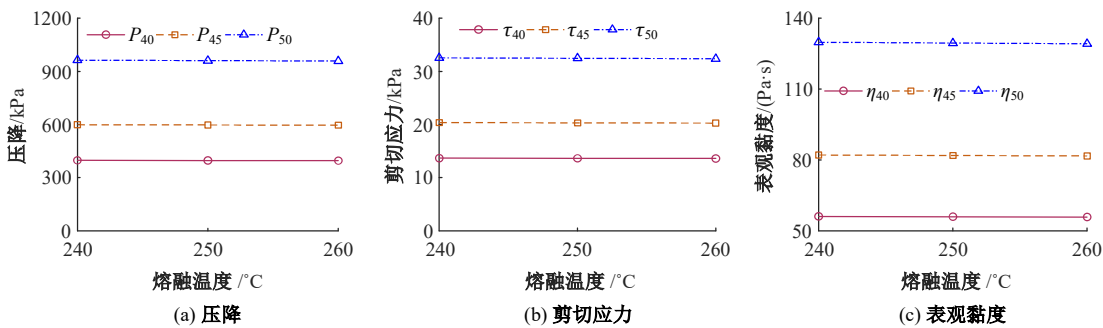


图 15 熔融温度对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数的影响

Fig. 15 Effect of molten temperature on rheological property parameters of molten materials with different metal powder filling ratio

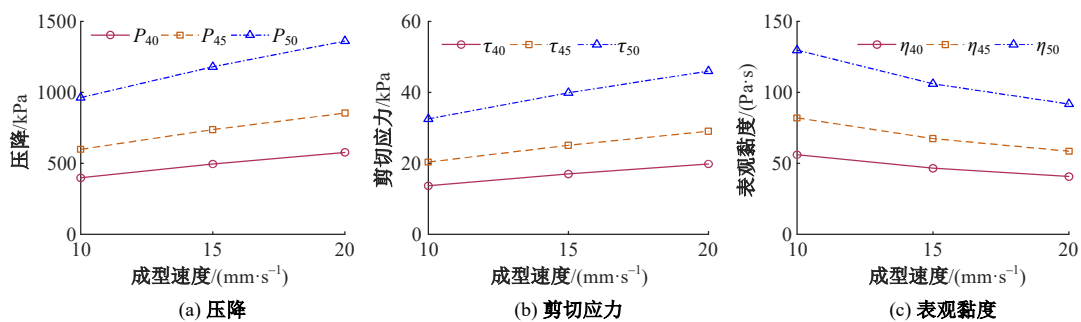


图 16 成型速度对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数的影响

Fig. 16 Effect of building speed on rheological property parameters of molten materials with different metal powder filling ratio

力皆与成型速度正相关,而表观黏度与成型速度负相关,具体数值如表 11 所示。这是因为成型速度增大,丝材的进给速度及喷头内部阻力增大,压降和剪切应力也随之增大。随着成型速度的提高,样件成型过程中会因为丝材的刚度以及进给轮的推挤力不足而无法克服压降,出现丝材剪切失效甚至进给轮打滑的问题,所以压降不会无限增大,其影响作用逐渐变缓。此外,随着成型速度的增大,熔体剪切速率也相应增大。与喷嘴直径

表 11 成型速度对不同金属粉末填充率熔融材料流体动力学特性参数影响结果

Table 11 Effect of building speed on rheological property parameters of molten materials for different metal powder filling ratio

体积填充率/%	参数	成型速度/(mm·s ⁻¹)		
		10(默认值)	15	20
40	压降/kPa	398.01	495.35	577.50
	增幅/%	—	24.46	45.1
	剪切应力/kPa	13.67	17.01	19.84
	增幅/%	—	24.43	45.14
	表观黏度/(Pa·s)	56.09	46.53	40.69
	增幅/%	—	-17.04	-27.46
45	压降/kPa	598.83	738.22	854.93
	增幅/%	—	23.28	42.77
	剪切应力/kPa	20.36	25.10	29.07
	增幅/%	—	23.28	42.78
	表观黏度/(Pa·s)	82.09	67.47	58.59
	增幅/%	—	-17.81	-28.63
50	压降/kPa	963.23	1 180.90	1 362.40
	增幅/%	—	22.60	41.45
	剪切应力/kPa	32.54	39.90	46.03
	增幅/%	—	22.62	41.46
	表观黏度/(Pa·s)	129.83	106.12	91.82
	增幅/%	—	-18.26	-29.28

类似,成型速度对熔体表观黏度的影响趋势根据压降和剪切速率对表观黏度的影响程度判断。随着成型速度的提高,剪切速率的增幅大于压降的增幅,表观黏度则逐渐减小。

综上所述,当喷嘴直径由 0.4 mm 增至 0.8 mm 时,压降与剪切应力最大降幅分别为 76.69% 和 67%,表观黏度最大增幅为 184.73%;当熔融温度由 240 ℃ 增至 260 ℃ 时,压降、剪切应力及表观黏度最大降幅分别为 0.49%、0.51% 和 0.5%;当成型速度由 10 mm/s 增至 20 mm/s 时,压降与剪切应力最大增幅为 45.1% 和 45.14%,而表观黏度最大降幅分别为 29.28%。可见,喷嘴直径对熔融材料的流动行为影响最为显著;其次是成型速度;相比其他 2 个过程参数,熔融温度的影响最弱。因此,在改善喷嘴内部流体流变特性时,可适当增大喷嘴直径,降低成型速度以减小喷嘴内部压降和剪切应力,保证成型的连续性,避免因丝材强度不足出现剪切失效的问题;适当提高熔融温度可提高样件的可成型性以及力学性能。

5 结 论

- (1)自制的 17-4PH 不锈钢/聚合物复合丝材直径均匀、柔韧性好,可进行批量缠绕储存,且所制丝材皆能成型出 MFFF 生坯样件。
- (2)流变实验结果表明,金属粉末填充率越高,熔融复合材料的流变特性越差,进而导致 MFFF 生坯样件的力学性能越差。
- (3)复合丝材的流体动力学特性参数理论与实验结果吻合度较好,误差为 7.07%~8.10%,表明所建立的解析模型能够准确预测熔融复合材料的流体动力学特性参数。
- (4)敏感性分析结果表明,适当增大喷嘴直径和熔融温度、降低成型速度,可进一步优化生坯样

件的可成型性及力学性能。

(5) 本文研究结果为改善 MFFF 生坯样件质量、探究不同金属粉末填充率对最终烧结制品力学性能的影响提供了理论研究基础和保障。

参考文献:

- [1] Thompson Y, Gonzalez-Gutierrez J, Kukla C, et al. Fused filament fabrication, debinding and sintering as a low cost additive manufacturing method of 316L stainless steel[J]. Additive Manufacturing, 2019, 30: No. 100861.
- [2] Ren L Q, Zhou X L, Song Z Y, et al. Process parameter optimization of extrusion-Based 3D metal printing utilizing PW-LDPE-SA binder system[J]. Materials, 2017, 10(3): 305-321.
- [3] Ismael M R, Clemens F, Graule T, et al. Effects of different thermoplastic binders on the processability of feedstocks for ceramic co-extrusion process[J]. Ceramics International, 2011, 37(8): 3173-3182.
- [4] Benz J, Bonten C. Influence of polymer-particle-interaction on the flow behavior of highly filled plastics[C]//The 34th International Conference of the Polymer-Processing-Society(PPS), Taipei, China, 2019, 2065(1): No. 030045.
- [5] Hausnerova B, Mukund B N, Sanetrik D. Rheological properties of gas and water atomized 17-4PH stainless steel MIM feedstocks: effect of powder shape and size[J]. Powder Technology, 2017, 312: 152-158.
- [6] Kukla C, Gonzalez-Gutierrez J, Duretek I, et al. Effect of particle size on the properties of highly-filled polymers for fused filament fabrication[C]//The 32nd International Conference of the Polymer-Processing-Society(PPS), Lyon, France, 2016, 1914(1): No. 190006.
- [7] Gonzalez-Gutierrez J, Duretek I, Holzer C, et al. Filler content and properties of highly filled filaments for fused filament fabrication of magnets[C]// Proceedings of the 75th Annual Technical Conference and Exhibition of the Society of Plastics Engineers, Anaheim, USA, 2017: 1-4.
- [8] Gloeckle C, Konkol T, Jacobs O, et al. Processing of highly filled polymer-metal feedstocks for fused Filament fabrication and the production of metallic implants[J]. Materials, 2020, 13(19): 4413-4429.
- [9] Dimitri C, Mohamed S, Thierry B, et al. Influence of particle-size distribution and temperature on the rheological properties of highly concentrated Inconel feedstock alloy 718[J]. Powder Technology, 2017, 322: 273-289.
- [10] Singh P, Balla V K, Tofangchi A, et al. Printability studies of Ti-6Al-4V by metal fused filament fabrication(MF3)[J]. International Journal of Refractory Metals & Hard Materials, 2020, 91: No. 105249.
- [11] Mostafa N, Masood S H, et al. A study of melt flow analysis of an ABS-Iron composite in fused deposition modelling process[J]. Tsinghua Science & Technology, 2009, 14: 29-37.
- [12] Hong X, Xiao X, Zhang Z, et al. Effects of ultrasonic vibration on the rheological behavior of high-density polyethylene composites filled with flash aluminum flake pigments[J]. Journal of Applied Polymer Science, 2017, 134(23): 44906-44914.
- [13] Pandey A, Pradhan S K. Investigations into complete liquefier dynamics and optimization of process parameters for fused deposition modeling[C]//International Conference on Materials Manufacturing and Modelling(ICMMM), Vellore, India, 2017: 12940-12955.
- [14] Turner B N, Strong R, Gold S A. A review of melt extrusion additive manufacturing processes: I. Process design and modeling[J]. Rapid Prototyping Journal, 2014, 20(3): 192-204.