

# 固相含量对单螺杆挤出式3D打印PLZT陶瓷浆料流动性能的影响

李彬<sup>1,2</sup>,顾海<sup>1,2</sup>,张捷<sup>1,2</sup>,姜杰<sup>1,2</sup>,孙健华<sup>1</sup>

(南通理工学院 1. 机械工程学院, 2. 江苏省3D打印装备及应用技术重点建设实验室, 南通 226002)

**摘要:** 针对单螺杆挤出结构的浆料直写陶瓷3D打印工艺, 配制了不同固相含量(60%, 70%, 75%, 体积分数)的锆钛酸铅镧(PLZT)陶瓷浆料, 利用MRT LBM方法研究了固相含量对浆料在螺槽内流动性能的影响。结果表明: 3种陶瓷浆料均呈现出明显的剪切变稀的非牛顿流体特征; MRT LBM方法可以有效实现3D打印过程中陶瓷浆料的流动仿真; 随固相含量增大, 浆料流速减小; 在保证浆料流变性满足打印要求的情况下, 固相含量不应过高。

**关键词:** 3D打印; 陶瓷浆料; 固相含量; MRT LBM; 流变性

中图分类号: TP3; TQ174.6

文献标志码: A

文章编号: 1000-3738(2020)11-0111-04

## Effect of Solid Content on PLZT Ceramic Slurry Flowability in 3D Printing by Single Screw Extrusion Mode

LI Bin<sup>1,2</sup>, GU Hai<sup>1,2</sup>, ZHANG Jie<sup>1,2</sup>, JIANG Jie<sup>1,2</sup>, SUN Jianhua<sup>1</sup>

(1. School of Mechanical Engineering, 2. Jiangsu Key Laboratory of 3D Printing Equipment and Application Technology, Nantong Institute of Technology, Nantong 226002, China)

**Abstract:** For the 3D printing process of slurry direct writing ceramics with single screw extrusion structure, lead lanthanum zirconate titanate (PLZT) ceramic slurries with different solid content (60%, 70%, 75%, volume fraction) were prepared, and the effect of solid content on the slurry flow performance in screw groove was studied by MRT LBM method. The results show that the three ceramic slurries all showed obvious non-Newtonian fluid characteristics of shear thinning. MRT LBM method could effectively realize the flow simulation of ceramic slurries during 3D printing. With the increase of solid content, the slurry flow speed decreased. In the case of ensuring that the slurry rheology met the printing requirements, the solid content should not be too high.

**Key words:** 3D printing; ceramic slurry; solid content; MRT LBM; rheology

## 0 引言

陶瓷材料因具有较好的稳定性、优良的耐腐蚀和耐高温性能等优点而广泛应用于机械工程、航空

收稿日期: 2020-04-28; 修訂日期: 2020-09-07

基金项目: 江苏省“青蓝工程”资助项目(苏教师〔2016〕15号); 江苏省重点建设学科资助项目(苏教研〔2016〕9号); 江苏省高校品牌专业建设工程资助项目(PPZY2015C251); 江苏省高等学校自然科学研究重大项目(18KJA460006); 江苏省科技计划项目(BE2018010-4); 南通市科技计划项目(JC2018144, JCZ19122)

作者简介: 李彬(1988—), 男, 江苏南通人, 讲师, 硕士

通信作者: 顾海副教授

航天、生物工程以及化工等重要工业领域, 但成形难的特点限制了其进一步的应用。近年来, 增材制造(3D打印)技术的出现和迅速发展为陶瓷粉末材料成形提供了一种新思路<sup>[1-4]</sup>。前期研究发现, 固相含量对3D打印陶瓷浆料的流变性具有较大影响<sup>[5]</sup>。对于浆料流动过程可以通过试验或仿真进行分析, 其中仿真计算通常利用Fluent、CFD以及Polyflow等软件结合流体力学原理进行求解。然而, 在解决复杂流体流动问题时, 仿真计算求解过程繁琐, 存在无法获得稳定解的情况<sup>[6-9]</sup>。格子玻尔兹曼(LBM)方法从介观角度入手, 通过碰撞和迁移来解释流动过程, 原理简单易懂, 且计算方便, 在解决复杂流体的流动问题方面具有明显的优

势<sup>[10-12]</sup>。多松弛时间参数格子玻尔兹曼方法(MRT LBM)则含有更多的参数,通过参数设置可实现模型性能的优化。

在传统浆料直写陶瓷3D打印工艺中,通常使用针筒式挤压作为陶瓷浆料的挤出形式,作者以单螺杆结构替换原有针筒结构,以保证浆料可以连续平顺挤出,并配制不同固相含量的浆料,利用MRT LBM方法对直写陶瓷3D打印时陶瓷浆料在螺槽内的流动性能进行了对比分析。

## 1 试验材料及单螺杆挤出结构

### 1.1 试验材料

制备陶瓷浆料的有机溶剂包括季戊四醇三丙烯酸酯、苯偶酰、季戊四醇三丙烯酸酯以及甲基丙烯酸甲酯。将上述4种溶剂混合均匀后加入锆钛酸铅镧(PLZT)粉末,高速搅拌使粉末迅速分散,获得陶瓷浆料,固相含量(PLZT体积分数,下同)分别为60%,70%,75%。

利用Rheolab MC型旋转粘度计对不同固相含量的浆料进行黏度测定,获取其流变方程以为后续数值模拟分析作准备。黏度测定结果显示,3种浆料均呈现出明显剪切变稀的非牛顿流体特征。利用MATLAB软件拟合得到固相含量为60%,70%,75%的3种浆料的流变方程分别为

$$\begin{cases} \tau_a = 1.451 + 0.783\dot{\gamma}^{0.355}, |\tau_a| > 1.451 \\ \dot{\gamma} = 0, |\tau_a| < 1.451 \end{cases} \quad (1)$$

$$\begin{cases} \tau_a = 1.597 + 0.912\dot{\gamma}^{0.365}, |\tau_a| > 1.597 \\ \dot{\gamma} = 0, |\tau_a| < 1.597 \end{cases} \quad (2)$$

$$\begin{cases} \tau_a = 1.921 + 1.102\dot{\gamma}^{0.411}, |\tau_a| > 1.921 \\ \dot{\gamma} = 0, |\tau_a| < 1.921 \end{cases} \quad (3)$$

式中: $\tau_a$ 为浆料的剪切应力; $\dot{\gamma}$ 为剪切速率。

可见:3种浆料均趋向于Herschel-Bulkley流体种类;在室温条件下,随着固相含量的增加,浆料的剪切应力呈现逐渐增大的趋势。

### 1.2 单螺杆挤出结构

螺杆的基本结构如图1所示,其中内杆直径D为15 mm,内筒直径 $D_a$ 为25 mm,螺棱高h为4 mm,螺距(螺槽宽度)W为8 mm,倾斜角 $\theta=20^\circ$ ,螺槽深度H为6 mm。将其充分展开后呈现出如图2所示的腔体,陶瓷浆料在原螺道内的流动即可转换成在腔体内的流动。

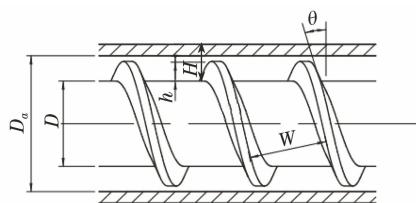


图1 螺杆结构示意

Fig. 1 Schematic of screw structure

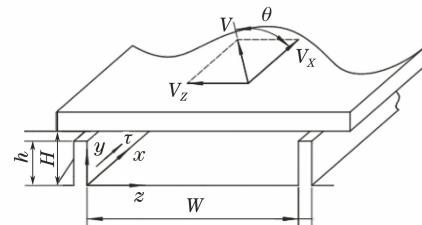


图2 螺杆展开结构示意

Fig. 2 Schematic of the screw expansion structure

## 2 MRT LBM 流动分析

### 2.1 MRT LBM 在非牛顿流体中的应用

MRT LBM与单松弛时间参数的LBM的主要区别在于前者涉及到矩空间的转换<sup>[8]</sup>,其基本方程为

$$f(\mathbf{r} + \mathbf{e}_i \delta t, t + \delta t) - f(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{M}^{-1} \bar{\mathbf{S}} \mathbf{M} [f(\mathbf{r}, t) - f^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t)] \quad (4)$$

速度配置 $\mathbf{e}_i$ 的表达式如下<sup>[9]</sup>:

$$\mathbf{e}_i = \begin{cases} e(0,0), & i = 0 \\ e\left(\cos \frac{i-1}{2}\pi, \sin \frac{i-1}{2}\pi\right), & i = 1, 2, 3, 4 \\ \sqrt{2}e\left(\cos \frac{2i-9}{4}\pi, \sin \frac{2i-9}{4}\pi\right), & i = 5, 6, 7, 8 \end{cases} \quad (5)$$

式中: $\mathbf{r}$ 为位移; $t$ 为时间; $\mathbf{M}$ 为中间变换矩阵; $\bar{\mathbf{S}}$ 为一个主对角线矩阵; $f(\mathbf{r}, t)$ 和 $f^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t)$ 分别为位移为 $\mathbf{r}$ ,时间为 $t$ 时的瞬时和平衡分布函数的分布函数; $e$ 为基本速度量,其大小为格子步长 $\delta x$ 和时间步长 $\delta t$ 的比值,通常情况下,两者均取1,那么其值为1。

宏观物理量速度 $\mathbf{U}$ 、密度 $\rho$ 可以根据平衡态分布函数以及格子声速获得,公式<sup>[10]</sup>如下:

$$\begin{cases} \rho = \sum_i f_i^{\text{eq}} \\ \rho \mathbf{U} = \sum_i \mathbf{e}_i f_i^{\text{eq}} \end{cases} \quad (6)$$

则式(4)中的分布函数两项可以通过中间变换矩阵 $\mathbf{M}$ 转换为矩空间 $e(\mathbf{r}, t)$ 和 $e^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t)$ , $e(\mathbf{r}, t) = \mathbf{M}f(\mathbf{r}, t)$ , $e^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{M}f^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t)$ ,其中 $\mathbf{M}$ 的表达

式<sup>[12]</sup>为

$$\mathbf{M} =$$

$$\begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ -4 & -1 & -1 & -1 & -1 & 2 & 2 & 2 & 2 \\ 4 & -2 & -2 & -2 & -2 & 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 1 & -1 & -1 & 1 \\ 0 & -2 & 0 & 2 & 0 & 1 & -1 & -1 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 1 & 1 & -1 & -1 \\ 0 & 0 & -2 & 0 & -2 & 1 & 1 & -1 & -1 \\ 0 & 1 & -1 & 1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & -1 & 1 & -1 \end{bmatrix} \quad (7)$$

$\bar{\mathbf{S}}$  的具体形式为一对角矩阵:

$$\bar{\mathbf{S}} = \text{diag}(s_0, s_1, s_2, s_3, s_4, s_5, s_6, s_7, s_8) \quad (8)$$

式中:  $s_0, s_3, s_5$  均为与密度和动量相关的参数, 而密度和动量皆为守恒量, 因此其值为 0;  $s_7$  和  $s_8$  是与松弛过程相关的量, 取值为  $1/\tau$  ( $\tau$  为单松弛参数 LBM 模型中的松弛时间);  $s_1, s_2, s_4, s_6$  为与密度等物理量相关的参数, 通常稍大于 1 即可,  $s_1, s_2$  取 1.3,  $s_4, s_6$  取 1.1。

使用 MRT LBM 进行流体分析时, 其基本过程主要由碰撞和迁移组成, 其中迁移步的表达形式为

$$f(\mathbf{r} + \mathbf{e}_i \delta t, t + \delta t) = f^+(\mathbf{r}, t) \quad (9)$$

式中:  $f^+(\mathbf{r}, t)$  为碰撞后的密度分布函数。

碰撞步的表达形式<sup>[12]</sup>为

$$f^+(\mathbf{r}, t) = f(\mathbf{r}, t) - \mathbf{M}^{-1} \bar{\mathbf{S}} [\mathbf{e}(\mathbf{r}, t) - \mathbf{e}^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t)] \quad (10)$$

在 MRT LBM 中, 应变速率张量  $S_{xy}$  比单松弛参数 LBM 中的复杂, 可以推导得到:

$$S_{xy} = -\frac{1}{2\rho c_s^2 \delta t} \cdot \left\{ \sum_{i=0}^8 \mathbf{e}_{ix} \mathbf{e}_{iy} \sum_{j=0}^8 (\mathbf{M}^{-1} \bar{\mathbf{S}} \mathbf{M})_{ij} [f_j(\mathbf{r}, t) - f_j^{\text{eq}}(\mathbf{r}, t)] \right\} \quad (11)$$

式中:  $c_s$  为与声速相关的参数, 具体为  $c_s = |\mathbf{e}| / \sqrt{3}$ 。

应变速率张量的第二不变量  $D_{II}$  可以描述为

$$D_{II} = \sum_{x,y=1}^l S_{xy} S_{xy} \quad (12)$$

式中:  $l$  表示模型的维数。

非牛顿流体的动力黏度  $\mu$  主要与松弛时间  $\tau$  和密度  $\rho$  相关, 公式为

$$\mu = \frac{(2\tau - 1)\rho}{6} \quad (13)$$

由于试验主要为二维计算, 因此  $l$  取 2, 则剪切速率  $\dot{\gamma}$  为

$$\dot{\gamma} = \sqrt{2D_{II}} \quad (14)$$

综上, 在利用 MRT LBM 进行模拟计算时, 其主要过程<sup>[9-12]</sup>描述如下: (1) 确定物理模型的主要基本参数, 如计算域、初始速度或压力值以及密度等; (2) 根据式(4)计算并确定平衡态分布函数; (3) 根据式(11)计算应变速率张量; (4) 结合式(6)、式(13)以及非牛顿流体的本构模型, 计算获得当前计算循环步内的松弛时间  $\tau$ ; (5) 计算碰撞步和迁移步, 主要参考式(9)和式(10); (6) 选择非周期性边界条件进行边界处理<sup>[13]</sup>; (7) 根据式(6)计算密度和速度; (8) 返回第(4)步执行下一次循环计算。

## 2.2 陶瓷浆料的流动分析

以固相含量为 70% 的陶瓷浆料为例, 对浆料在螺道内的流动情况进行分析。取图 2 中  $y-z$  截面, 根据螺杆挤出的实际运动, 将速度仅设定在与  $z$  轴方向一致的上表面。根据螺槽的几何尺寸, 模拟时的网格数设置为  $200 \times 150$ , 螺杆的转速  $N$  为  $36 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 。由图 3~图 4 可知, 水平流速分量  $u$  和垂直流速分量  $v$  的分布曲线是稳定且光滑的, 因此可以认为采用 MRT LBM 方法进行陶瓷浆料的流动分析是切实可行的。由图 3 可以看出: 越接近

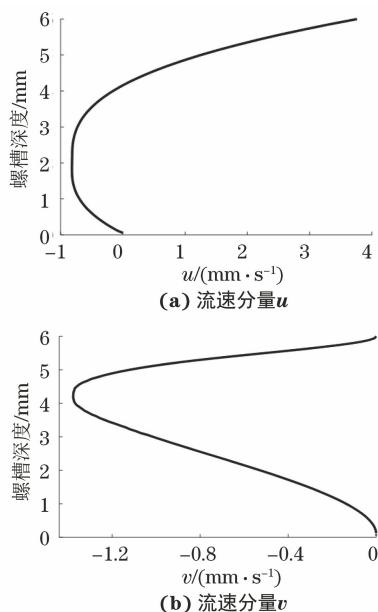


图 3 固相含量 70% 下陶瓷浆料流速分量  $u$  和  $v$  沿螺槽深度的分布曲线(螺槽宽度 4 mm)

Fig.3 Distribution of flow velocity component  $u$  (a) and  $v$  (b) of ceramic slurry along the screw groove depth at solid content of 70% (screw groove width of 4 mm)

螺杆(对应的螺槽深度越大),流速分量 $u$ 越大;分量 $v$ 的极限值出现在环流中心处,而在边界(螺槽深度为0,6 mm)处,速度分量 $v$ 均较小。由图4可以看出,流速分量 $u$ 在螺棱壁面(对应的螺槽宽度为0,8 mm)附近趋近于0,分量 $v$ 在螺槽流道中部(对应的螺槽宽度为4 mm)基本为0,往螺棱逐渐靠近时,浆料流速也随之发生变化。

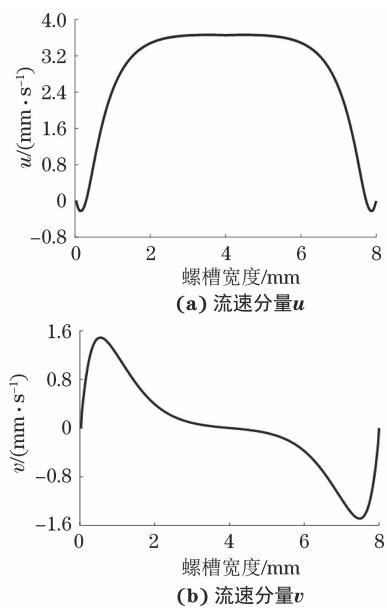


图4 固相含量70%下陶瓷浆料流速分量 $u$ 和 $v$ 沿螺槽宽度的分布曲线(螺槽深度4 mm)

Fig.4 Distribution of flow velocity component  $u$  (a) and  $v$  (b) of ceramic slurry along the screw groove width at solid content of 70% (screw groove depth of 4 mm)

## 2.3 固相含量对陶瓷浆料流动速度的影响

取螺槽宽度为2 mm、螺槽深度为4 mm和螺槽宽度为4 mm、螺槽深度为2 mm处3种不同固相含量浆料的流速分量进行对比分析。由表1可以看出,固相含量越高,浆料流速分量的绝对值越小。因此,当其他因素(螺杆尺寸和转速)保持不变时,在保证浆料流变性可以满足试验要求的情况下,固相含量不应过高,以确保其具有足够好的流动性。

表1 不同固相含量下陶瓷浆料的流动速度

Table 1 Flow velocity of ceramic slurry with different solid contents

固相含量/%	$W=2 \text{ mm}, H=4 \text{ mm}$		$W=4 \text{ mm}, H=2 \text{ mm}$	
	$u/(\text{mm} \cdot \text{s}^{-1})$	$v/(\text{mm} \cdot \text{s}^{-1})$	$u/(\text{mm} \cdot \text{s}^{-1})$	$v/(\text{mm} \cdot \text{s}^{-1})$
60	-0.924	-0.485	3.445	0.441
70	-0.892	-0.463	3.379	0.424
75	-0.875	-0.438	3.286	0.401

## 3 结论

(1) 固相含量为60%,70%,75%的3种陶瓷浆料均呈现出明显的剪切变稀的非牛顿流体特征,并趋向于Herschel-Bulkley流体;MRT LBM原理简单、计算过程清晰,可以有效实现单螺杆挤出式3D打印过程中该陶瓷浆料的流动仿真。

(2) 当螺槽宽度一定时,流速分量 $u$ 在靠近套筒内壁时最大,流速分量 $v$ 在套筒壁面和螺杆壁面处最小;当螺槽深度一定时,流速分量 $u$ 在螺槽流道中部最大且保持基本恒定,流速分量 $v$ 在该处则为0;随着固相含量的增大,浆料流速变小;在其他因素保持不变且浆料流变性可以满足要求的情况下,固相含量不应过高以满足较好的流动性能。

## 参考文献:

- [1] 李亚运,司云晖,熊信柏,等.陶瓷3D打印技术的研究与进展[J].硅酸盐学报,2017,45(6):793-805.
- [2] HUANG P, XIA Z D, CUI S. 3D printing of carbon fiber-filled conductive silicon rubber[J]. Materials & Design, 2018, 142:11-21.
- [3] CASTRO J, ROJAS-NASTRUCCI E A, ROSS A, et al. Fabrication, modeling, and application of ceramic-thermoplastic composites for fused deposition modeling of microwave components[J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 2017, 65(6):2073-2084.
- [4] WILKES J, HAGEDORN Y C, MEINERS W, et al. Additive manufacturing of  $\text{ZrO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  ceramic components by selective laser melting[J]. Rapid Prototyping Journal, 2013, 19(1):51-57.
- [5] 顾海,黄天成,吴伟伟,等.陶瓷3D打印中二氧化硅胶态分散体流变性研究[J].中国陶瓷,2019,55(1):22-25.
- [6] 朱向哲,石兆东.非啮合双螺杆挤出机三维流场数值模拟[J].机械设计与制造,2007(5):177-179.
- [7] 黄思,康文明,邱光琦,等.基于CFD的全金属单螺杆泵非稳态流场计算及性能预测[J].排灌机械工程学报,2018,36(12):1211-1215.
- [8] 王兆强,朱华炳,何干,等.高速高压三螺杆泵流场特性数值分析[J].煤矿机械,2018,39(8):66-69.
- [9] 王琪,王秋,方海峰,等.造纸废料单螺杆挤出机熔融输送流场数值模拟[J].机械设计与制造,2018(2):171-174.
- [10] BUDINSKI L. MRT lattice Boltzmann method for 2D flows in curvilinear coordinates[J]. Computers & Fluids, 2014, 96:288-301.
- [11] 杨帆,施徐明,刘连国.二维顶盖驱动半圆腔内流动MRT-LBM研究[J].工程热物理学报,2012,33(4):595-598.
- [12] WU W W, HUANG X D, FANG C G, et al. An improved MRT-LBM for Herschel-Bulkley fluids with high Reynolds number[J]. Numerical Heat Transfer, Part B: Fundamentals, 2017, 72(6):409-420.
- [13] 何雅玲,王勇,李庆.格子Boltzmann方法的理论及应用[M].北京:科学出版社,2009.