

## 固体推进剂螺旋压伸挤出过程流变模型建立

何家隆<sup>1</sup>, 谷琳<sup>1</sup>, 朱钰婷<sup>1</sup>, 宋秀铎<sup>2</sup>, 杨雪琴<sup>3</sup>, 马玉录<sup>1</sup>, 谢林生<sup>1\*</sup>

(1. 华东理工大学绿色高效过程装备与节能教育部工程研究中心, 上海 200237; 2. 西安近代化学研究所, 西安 710065; 3. 山西北方兴安化学工业有限公司, 太原 030000)

**摘 要:** 在对固体推进剂的螺旋压伸过程进行研究的基础上, 探究了一种新型的固体推进剂流变模型的建立方法, 即采用最小二乘法拟合基于毛细管流变仪测试所得数据, 得到初步固体推进剂流变本构模型, 利用 Polyflow 有限元仿真软件模拟毛细管流变仪测试过程, 对流变本构模型参数进行修正, 确定最终的推进剂流变本构模型。通过实验数据拟合与有限元模拟相结合的方法建立推进剂的流变本构模型, 为用有限元法仿真模拟固体推进剂的螺旋挤出过程奠定基础。结果表明, 采用数据拟合和数值模拟相结合得到的推进剂流变模型进行模拟实验得到的数据与真实数据误差均在 10 % 左右, 符合数值模拟预期结果。

**关 键 词:** 固体推进剂; 流变模型; 数值模拟; 最小二乘法

中图分类号: TQ320.66

文献标识码: B

文章编号: 1001-9278(2021)02-0058-05

DOI: 10.19491/j.issn.1001-9278.2021.02.010

## Establishment of Rheological Model of Solid Propellant in Spiral Extrusion Process

HE Jialong<sup>1</sup>, GU Lin<sup>1</sup>, ZHU Yuting<sup>1</sup>, SONG Xiuduo<sup>2</sup>, YANG Xueqin<sup>3</sup>, MA Yulu<sup>1</sup>, XIE Linsheng<sup>1\*</sup>

(1. Engineering Center of Efficient Green Process Equipment and Energy Conservation of Ministry of Education, Shanghai 200237, China; 2. Xi'an Institute of Modern Chemistry, Xi'an, 710065, China; 3. Shanxi North Xing'an Chemical Industry, Taiyuan 030000, China)

**Abstract:** On the basis of research results in the spiral compression and extension process of solid propellant, a new method was explored to establish a rheological model of solid propellant. To develop this new method, a least square method was used to fit the data obtained from the capillary rheometer test to achieve a preliminary solid propellant rheological constitutive model. The test process of the capillary rheometer was then simulated by using by a Polyflow finite element simulation software to correct the parameters of the rheological constitutive model so as to determine the final propellant rheological constitutive model. The rheological constitutive model of the propellant was established through a combination of experimental data fitting and finite element simulation. This lays a foundation for simulating the spiral extrusion process of solid propellant with a finite element method. The results indicated that there was only an error of around 10% between the real data and the data obtained from the simulation with the propellant rheological model by a combination of data fitting and numerical simulation. The obtained results were in good agreement with the expected results from the numerical simulation.

**Key words:** propellant; rheological model; numerical simulation; least square

## 0 前言

推进剂是指通过有规律的燃烧释放能量并产生气体来推送火箭和导弹的火药, 它在军事武器及航空、航天领域得到广泛的应用, 在国防科技的快速发展中有着不可替代的作用<sup>[1-3]</sup>。推进剂根据其形态可以分为固体推进剂、液体推进剂和气体推进剂, 目前被广泛使用的主要是固体推进剂和液体推进剂<sup>[4]</sup>。

固体推进剂的螺旋压伸生产工艺是最重要的工

序, 也是最危险的工序, 极易发生着火或者爆炸等危险事故。物料在螺杆挤出机中的运动还完全处于“黑箱状态”, 给工艺与装备的优化带来了诸多困难, 也制约了新产品的开发与质量的管控。

随着计算机技术和数学方法的不断发展, 数值模拟技术也越来越广泛地应用于高分子材料挤出过程研究以及模具结构优化。采用数值模拟技术对物料在螺旋压机内的传递过程进行分析是一种行之有效的分析手段<sup>[5]</sup>。而决定模拟准确性的关键之一是推进剂流变模

收稿日期: 2020-08-25

\* 联系人, lsxie@ecust.edu.cn

型的建立和边界条件的设定。

本构方程是描述物料流动最重要的方程,是研究物料流动行为和数值模拟分析的基础,本构方程越能反应实际推进剂的力学行为,计算机仿真模拟的结果越可靠。而本构方程的模型也非常多,常见的黏弹性材料的本构模型有 Maxwell 模型、Kelvin 模型、三参数固体模型、Bird-Carreau 模型以及 Leaderman 本构关系<sup>[6]</sup>。

高分子物料在螺杆挤出过程中受到的剪切作用,以及所处的应力应变状态与在毛细管流动过程中的应力应变状态相似<sup>[7-8]</sup>。目前,大部分专家学者对高分子材料挤出成型过程的本构方程建立都是基于各种流变测试仪所测定的流变测试数据,并在后续数值模拟实验中得到的模拟数据与实验数据具有较高的吻合性<sup>[9-10]</sup>。但是推进剂的特殊性,极大地限制了专家学者采用物理实验对其流变行为的研究,现有的流变学测试方法也无法满足研究需求。所以,仅用现有的测试方法并不能得到能准确描述推进剂挤出过程的本构方程。

本文提出了一种新型的固体推进剂的挤出流变模型的建立方法。基于已有的毛细管流变仪测试的物理实验数据,在利用 Bird-carreau 本构方程基础上,借助于 Matlab 运用最小二乘法对实验数据中剪切速率和剪切黏度拟合,得到初步的流变本构方程。通过 Polyflow 仿真模拟软件,代入拟合的本构方程进行仿真模拟,根据数值模拟得到的出口产量和毛细管流变仪测试得到的产量对比,对参数方程修正,得到最后准确描述推进剂的流变特性的流变模型。

## 1 数学模型建立

### 1.1 基本假设

毛细管流变仪流道示意图如图1所示,结合模拟实验中物料的黏弹性特点以及在毛细管中的流动特点,在本次数值模拟实验中做出以下假设:固体推进剂为广义牛顿流体,其流动特性符合指数函数的非牛顿流体特性;固体推进剂为不可压缩流体,密度为常数;忽略固体推进剂的重力和惯性力;固体推进剂与毛细管壁面之间无滑移;忽略推进剂物料的入口效应。

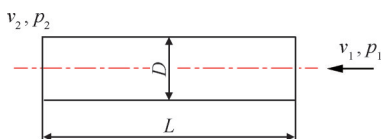


图1 毛细管流道示意图

Fig. 1 Schematic diagram of material flow in capillary tube

### 1.2 连续性方程

对于任何给定组成的流体,在运动过程中,根据质量守恒定律可知具有的质量保持不变,可得连续性方程如式(1)所示:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot (\rho \vec{v}) \quad (1)$$

式中  $\rho$ ——推进剂物料密度, kg/m<sup>3</sup>

$t$ ——流动时间, s

$\vec{v}$ ——物料熔体速度, m/s

### 1.3 动量方程

因为固体推进剂不可压缩的性质,密度为常数,所以动量守恒定律在毛细管中的张量表达式如式(2)所示:

$$\rho \frac{D\vec{v}}{Dt} = -\nabla P + \nabla \cdot \tau + \rho g \quad (2)$$

式中  $P$ ——推进剂物料所受压力, Pa

$\tau$ ——推进剂物料熔体剪切速率, s<sup>-1</sup>

$g$ ——重力加速度, m/s<sup>2</sup>

### 1.4 能量方程

考虑到体积的任意性和流体不可压缩的性质,在没有热源的情况下,能量方程的张量表达式如式(3)所示:

$$\rho C_v \frac{DT}{Dt} = -\nabla \cdot \vec{q} - T \left( \frac{\partial P}{\partial T} \right) (\nabla \cdot \vec{v}) + \tau : \nabla \vec{v} \quad (3)$$

式中  $C_v$ ——推进剂物料比热容, J/(m<sup>3</sup>·K)

$T$ ——物料熔体温度, K

### 1.5 本构方程

在实际的预测过程中,推进剂药料内部成分结构复杂,且有一定的孔隙结构<sup>[11]</sup>,不符合牛顿流体的流动特征,故考虑到推进剂特殊的流变特性,本次实验选取 Bird-Carreau 模型对固体推进剂物料的流变性能测试数据进行拟合。

Bird-Carreau 模型的黏度不是对牛顿黏度公式进行简单的非线性推广得出,而是根据经验的非线性黏弹性本构关系推导出的材料函数。Bird-Carreau 模型可表示为式(4):

$$\eta = \eta_{\infty} + (\eta_0 - \eta_{\infty}) \frac{1}{\left[ 1 + (\lambda \dot{\gamma})^2 \right]^{\frac{1-n}{2}}} \quad (4)$$

式中  $\eta_0$ ——零剪切黏度, Pa·s

$\eta_{\infty}$ —— $\dot{\gamma}$  趋近无穷大时非牛顿流体剪切变稀所达到的平衡黏度, Pa·s

$\lambda$ ——松弛时间, s

$\dot{\gamma}$ ——剪切速率, s<sup>-1</sup>

$n$ ——非牛顿指数

考虑到  $\dot{\gamma}$  趋近无穷大时大都会引起聚合物熔体裂

解,所以 $\eta_{\infty}$ 一般取值为零。

### 1.6 固体推进剂流变特性的测试

本次实验模拟针对的推进剂物料温度为85℃,密度为1.65 kg/cm<sup>3</sup>。实验过程中采用了毛细管流变仪对推进剂物料进行了流变特性测试,流变仪的长径比为5:1,直径为3 mm。实验流变测试结果如表1所示。

表1 流变测试结果

Tab. 1 Rheological behavior

剪切速率/ s <sup>-1</sup>	剪切应力/ MPa	表观黏度/ Pa·s	压力/ MPa	温度/ ℃	流量/ g·h <sup>-1</sup>
5.61	0.62	109 901.45	24.67	89.53	209.40
8.68	0.70	80 327.84	27.89	90.87	324.00
15.21	0.18	51 034.33	31.05	91.50	567.60
17.59	0.16	43 413.08	30.54	91.83	656.40

### 1.7 基于非线性回归的本构模型建立

回归分析在自然科学和工程技术等领域具有广泛的应用。对于可线性化的非线性相关关系,目前常用的方法是首先通过变量代换化为线性模型,其次利用线性回归方法推求线性回归系数,再根据变量代换的具体情况,由线性回归系数反求非线性回归系数<sup>[12]</sup>。

#### 1.7.1 最小二乘法

最小二乘法(又称最小平方方法)是一种数学优化技术。它的主要思想是通过最小化误差的平方和寻找数据的最佳函数匹配。

对于一般的非线性回归方法,采用最小二乘法的表达式如式(5)所示:

$$O = \sum_{i=1}^n (y_i^e - y_i)^2 \quad (5)$$

式中  $O$ ——目标函数或称损失函数

$y_i^e$ ——目标量

$y_i$ ——观测量

对于无约束的非线性回归问题,一般寻求最佳的 $y_i^e$ 使得目标函数 $O$ 达到最小值。

在本文中,利用最小二乘法拟合的是剪切速率和剪切黏度的关系式。经变换可表示为式(6):

$$O = \sum_{i=1}^n (\eta_i^e - \eta_i)^2 \quad (6)$$

式中  $\eta_i$ ——表观黏度实验数据值

$y_i^e$ ——熔体实际黏度值

由代入剪切速率 $\dot{\gamma}_{\text{measure}}$ 的本构方程得式(7):

$$\eta_i^e = \eta_{\infty} + (\eta_0 - \eta_{\infty}) \frac{1}{\left[1 + (\lambda \dot{\gamma}_{\text{measure}})^2\right]^{\frac{1-n}{2}}} \quad (7)$$

式中  $\dot{\gamma}_{\text{measure}}$ ——剪切速率实验值, s<sup>-1</sup>

当剪切速率为无穷大时,剪切黏度是一个趋近于零的值,故将 $\eta_{\infty}$ 取零,以简化式(7)来提高拟合精度。所以式(7)变换得式(8)。

$$\eta_i^e = \frac{\eta_0}{\left[1 + (\lambda \dot{\gamma}_{\text{measure}})^2\right]^{\frac{1-n}{2}}} \quad (8)$$

由式(6)和式(8)可知目标函数是关于松弛时间、零剪切黏度和非牛顿指数3个参数的函数,即得式(9)。

$$O = O(\eta_0, \lambda, n) \quad (9)$$

在式(9)中,在收敛情况下,目标函数 $O$ 取最小值时,此时的松弛时间、零剪切黏度和非牛顿指数即为本文的目标参数值,根据拟合得到的3个参数构建初步的推进剂的流变模型。

#### 1.7.2 信赖域收敛算法

为保证计算过程的收敛,在Matlab拟合曲线的过程中,采用了信赖域算法以保证拟合过程的收敛。信赖域算法是一种求解非线性优化问题的数值方法,也是一种迭代算法,即从给定的初始解出发,通过逐步迭代,不断改进,直到获得满意的近似最优解<sup>[13]</sup>。

#### 1.7.3 拟合结果

通过最小二乘法拟合得到的曲线方程如式(10)所示。

$$\eta = 1.73 \times 10^7 \frac{1}{\left[1 + (254.30 \dot{\gamma})^2\right]^{0.35}} \quad (10)$$

即零剪切黏度为 $1.73 \times 10^7$  Pa·s, 松弛时间为254.3 s, 非牛顿指数为0.3, 流变曲线如图2所示。

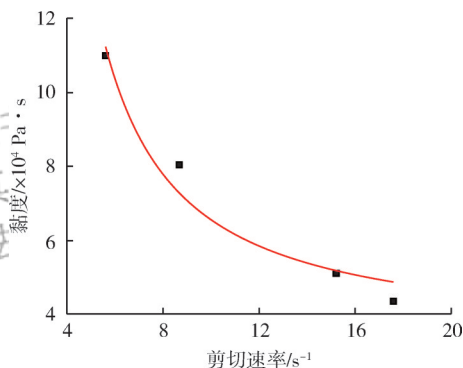


图2 最小二乘法拟合得到的剪切速率-黏度曲线

Fig. 2 Shear rate-viscosity curves obtained by least squares fitting

## 2 基于Polyflow的本构模型参数修正

### 2.1 网格划分

在Polyflow模拟中,需要进行计算的部分是毛细



管中的流道,且毛细管处于静止状态,所以只需要绘制毛细管流道的模型。数值模拟计算时所使用的毛细管流道模型如图3所示,流道直径为3 mm,长径比为5:1。采用网格划分软件Gambit对流道网格进行划分。由于毛细管结构简单,在模拟中采用了以六面体为主、部分含有四面体的网格划分方法,六面体网格在圆管中的网格质量比四面体网格更高,为了使模拟更加精确,需要让六面体网格数量尽可能多。在网格划分时,采用边界层画法,从流道圆柱面向内分别绘制了10层边界层,以此增加了六面体网格数量。经过网格划分后得到毛细管流道的网格数为54 285。

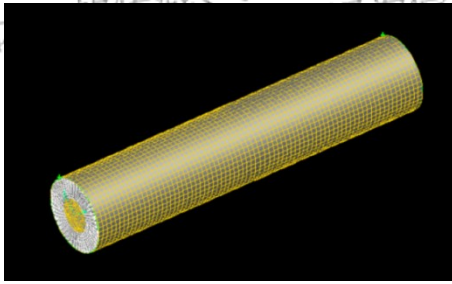


图3 毛细管流道模型

Fig. 3 Capillary runner model

## 2.2 边界条件

毛细管数值模拟的边界条件较为简单,流道模型入口设置压力边界,其中法向压力即实验数据中的压力数值,切向压力为零。流道与毛细管内壁接触的圆柱壁面设置成壁面无滑移边界。出口设置成出口条件。

## 2.3 模拟参数设定

模拟实验过程中,根据先前拟合的Bird-Carreau模型的本构方程,将拟合所得到的参数设定为实验模拟参数。根据数值实验所得结果和所测结果比较,对设定的参数进行修改,最后得到与所测结果相近的本构方程。

## 2.4 数值模拟结果与实验结果对比

将拟合所得到的本构方程代入到模拟实验中,当入口压力为31.04 MPa时,出口速度分布云图如图4所示,推进剂物料在毛细管流变仪中的流动呈充分发展流,可以观察到出口截面上速度沿径向逐渐减小,在管道中心处速度达到最大值为 $3.3 \times 10^{-2}$  m/s。

根据复合指数函数的非牛顿流体,在圆管中的流动中平均速度和最大速度的关系式(11)和式(12)平均流速与产量的关系式,可将圆管出口的最大速度换算成圆管出口截面的平均流速。

$$v_m = \left( \frac{n+1}{3n+1} \right) v_{\max} \quad (11)$$

式中  $v_m$ ——平均流速, m/s

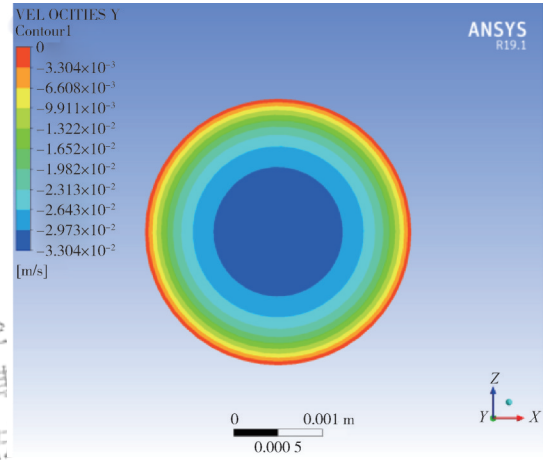


图4 修正前毛细管出口截面速度云图

Fig. 4 Speed cloud diagram of capillary exit interface before correction

$v_{\max}$ ——最大速度, m/s

$n$ ——非牛顿指数

$$Q = \frac{\pi D^2}{4} v_m \quad (12)$$

式中  $Q$ ——出口产量,  $\text{m}^3/\text{s}$

$D$ ——圆管直径, m

换算结果发现,出口流速与实验值存在较大误差,误差值为30.96%。根据式(1)~(3)可知,推进剂物料的流动速度和熔体流动的剪切速率有关,而剪切速率是根据物料的黏度,结合物料在流场中的动力学影响因素得到的,所以物料黏度的大小会影响到剪切速率的大小。由式(8)可得,熔体黏度与零剪切黏度、松弛时间和非牛顿指数有关。推进剂物料组合成分较多,各个成分之间的影响影响复杂,与一般高分子材料相比,其松弛时间对物料黏度的影响更加明显,故根据经验调整松弛时间大小,使得误差在允许范围之内。

修正后,将松弛时间减小到220 s,在与实验结果对比,考虑到入口压力为30.54 MPa时,毛细管流变仪测试得到的出口产量与实际不符,所以剔除这组数据。模拟所得出口产量与实验数据对比如表2所示,可知采用修正后的本构方程进行模拟时得到的产量与实验误差较小,都在10%左右。此时的本构方程如式(13)所示。

$$\eta = 1.73 \times 10^7 \frac{1}{\left[ 1 + (220\dot{\gamma})^2 \right]^{0.35}} \quad (13)$$

即零剪切黏度为 $1.73 \times 10^7$  Pa/s,松弛时间为220 s,

表2 实验数值与模拟数值出口产量对比

Tab. 2 Export output comparison of experimental values and simulated ones

压力/MPa	实验产量/g·h <sup>-1</sup>	模拟产量/g·h <sup>-1</sup>	误差/%
24.67	209.40	229.98	9.83
27.90	324.00	346.45	6.93
31.04	567.60	495.51	12.7

非牛顿指数为0.3。无穷大黏度为零,即该本构方程表示的流变特性曲线如图5所示。

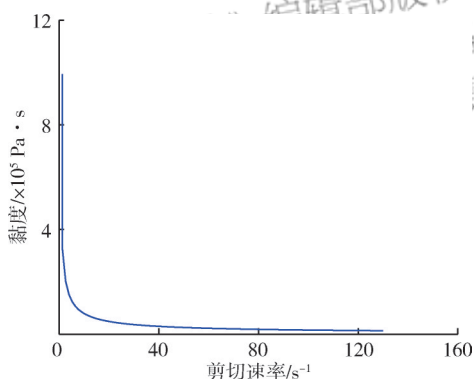


图5 流变曲线

Fig. 5 Rheological curve

### 3 结论

(1)提出了一种新型的固体推进剂的流变模型的建立方法,即采用拟合实验数据与有限元模拟相结合的方法来确定推进剂的流变本构模型;

(2)比较模拟数据和实验数据的毛细管流变仪出口的产量误差,发现采用这种新型方法得到的流变模型数值模拟后的结果与实验误差均在10%左右,符合结果预期;

(3)经过数据拟合的本构方程结合数值模拟修正模型系数后,得到了最后能准确描述推进剂流变性能的流变本构模型。

#### 参考文献:

- [1] 张续柱. 双基火药[M]. 北京: 北京理工大学出版社, 1997:169-171.
- [2] 孟祥荣. 国外低特征信号推进剂应用研究及发展趋势[J]. 飞航导弹, 1999(8):3-5.  
MENG X R. Application Research and Development Trend of Low Characteristic Signal Propellant Abroad [J]. Airborne Missiles, 1999(8):3-5.
- [3] 吴世玉. 大型实用发动机推进剂燃速评估技术初探——固体推进剂应用性能评估技术之一[J]. 飞航导弹, 1988(11):21-26.
- WU S Y. Primary Probe into the Application Performance Evaluation Technology of Large-scale Practical Engine Propellant——One of the Technologies [J]. Airborne Missiles, 1988(11):21-26.
- [4] 陈 雄. 固体推进剂黏弹性力学[M]. 北京: 北京理工大学出版社, 2016:12-14.
- [5] 冯 刚. 螺杆挤出机挤出过程数值模拟研究进展[J]. 工程塑料应用, 2012, 40(4):96-99.  
FENG G. Research Progress in Numerical Simulation of Screw Extruder Process [J]. Engineering Plastics Application, 2012, 40(4):96-99.
- [6] LEADERMAN H. Large Longitudinal Retarded Elastic Deformation of Rubber-like Network Polymers[J]. Journal of Polymer Science, 1962, 59(168):361-382
- [7] 陈晋南, 王 建, 彭 炯. 热敏高黏度材料的流变测试方法及其本构方程[C]. 全国流变学学术会议. 2014, 9.
- [8] 吕章林, 裴云梦, 王烨烨, 等. TPU流变性能测试及胶片挤出过程模拟仿真[J]. 塑料工业, 2018, 46(11):57-61,84.  
LV Z L, PEI Y M, WANG Y Y, et al. Rheological Property Test of TPU and the Simulation of Film Extrusion Process[J]. China Plastics Industry, 2018, 46(11):57-61,84.
- [9] 宋大余, 刘 颖, 连利仙, 等. 稀土磁性塑料充模流动过程模拟[J]. 模具工业, 2005, 31(9):41-46.  
SONG D Y, LIU Y, LIAN L X, et al. Mould-Filling Flow Process Simulation of Rare-Earth Magnetic Plastics [J]. Die & Mould Industry, 2005, 31(9):41-46.
- [10] 丁亚军, 应三九. 螺杆挤出过程中物料在线流变行为及其数值模拟[J]. 兵工学报, 2015, 36(8):1437-1442.  
DING Y J, YING S J. In-Line Rheological Behaviors and Numerical Simulation of Material in Extrusion Processing [J]. Acta Armamentarii, 2015, 36(8):1437-1442.
- [11] BUSBY A J, MORRIS K, FLOWER P Q. Twin-screw Extrusion of Gun Propellants Based on Energetic Binders [C]. International Annual Conference of ICT, Karlsruhe, June 24-June 27, 2008.
- [12] 张子贤. 可线性化的非线性回归的有关问题与几种回归方法的比较[J]. 数学的实践与认识, 2015, 45(18):167-173.  
ZHANG Z X. Issues in Linearization Nonlinear Regression and Comparison of Several Regression Methods[J]. Mathematics in Practice and Theory, 2015, 45(18):167-173.
- [13] 刘 新, 王大尉. 基于信赖域方法的矿井通风网络解算[J]. 辽宁工程技术大学学报(自然科学版), 2008, 27(z1):10-12.  
LIU X, WANG D W. Mine Ventilation Network Solution Based on Trust Region Method[J]. Journal of Liaoning Technical University (Natural Science Edition), 2008, 27(z1):10-12.