

表1 3D打印过程中的参数选择

成形道宽 (mm)	1
层厚 (mm)	0.3
成形速度 (mm/s)	5
喷嘴直径 (mm)	1
成形温度 (°C)	220

### 3 连续纤维复合材料丝材成形机理

本文使用螺杆挤出工艺实现连续纤维增强热塑性树脂复合材料丝材的成形,在丝材成形过程中存在纤维和树脂的熔融浸渍、复合、挤出等物理过程。相较于图1中原位浸渍混合的成形方式,本文纤维和树脂在螺杆机头处的模具中浸渍成形,温度、压力、螺杆转速、牵引速度等工艺参数对树脂的流动过程和包覆过程具有重要影响,为此,需要研究螺杆挤出过程中各参数的耦合关系,调控复合材料丝材成形过程中纤维和树脂的配比和浸渍程度。

#### 3.1 连续纤维复合材料丝材螺杆挤出原理

在连续纤维复合丝材成形设备中,螺杆挤出机构是核心,其结构设计和工艺选择直接决定了热塑性树脂的熔化和流动状态,进而影响后续纤维和树脂的浸渍效果。为此,需要计算和分析树脂的流动速度和压力分布,辅助后续丝材成形过程工艺参数的选择。LI等<sup>[20]</sup>建立了基于等温的、牛顿流体的有限槽宽的挤出理论,其结果较无限平板模型的挤出理论更接近熔体挤出的真实情况。由于热塑性树脂流动过程中剪切速率较小,故假设热塑性树脂基体是牛顿流体,具有不可压缩的特性,且通过温度精确控制可保证任意界面处的温度和压力稳定

不变。忽略重力和螺杆壁的摩擦和接触,树脂在流动中存在如下三种流量:由机筒内螺杆的旋转对树脂熔体产生的拖曳流动,称为正流,其流量用 $q_d$ 表示;由机筒内树脂的压力梯度造成的反向流动,称为压力流,其流量用 $q_p$ 表示;由机筒和螺杆内部间隙引起的漏流,其数值较小,可忽略不计。

由熔体输送理论可知螺杆挤出机的流量<sup>[21]</sup>

$$q = q_d - q_p \quad (1)$$

$$q_d = \frac{\pi^2 D^2 H \sin \varphi \cos \varphi}{2} n = F_d n \quad (2)$$

$$q_p = \frac{\pi D H^3 \sin^2 \varphi}{12 \eta} \frac{dp}{dL} = \frac{F_p}{\eta} p \quad (3)$$

其中,  $n$ 为螺杆转速;针对本文的丝材成形机,螺杆直径 $D=20\text{mm}$ ,螺槽深 $H=2\text{mm}$ ,螺纹升角 $\varphi=18^\circ$ ,熔融段长度 $L=70\text{mm}$ ;对于牛顿流体,由于螺杆在整个熔融区域的黏度 $\eta$ 和压力梯度不变,故使用机头出口处的压力 $p$ 来代替全段的压力降 $dp$ ;为方便表征,定义 $F_d$ 、 $F_p$ 为以上参数相关的常量。

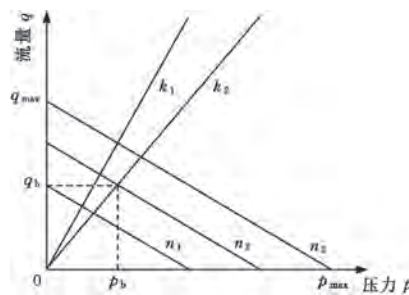


图3 螺杆挤出机构的流量 $q$ 与压力 $p$ 的关系图

当螺杆转速 $n$ 固定后,挤出过程逐

渐稳定,挤出机的流量 $q$ 与压力 $p$ 成线性关系,如图3所示。在不同转速 $n$ 下,可以得到相互平行的 $q$ - $p$ 曲线,当出口为开放时,压力为0,挤出机的流量达到最大, $q_{\max}=q_d$ ;当出口封闭时,挤出机的流量为0,挤出机的压力达到最大, $p_{\max}=F_d n / F_p$ 。

在正常流动情况下,挤出压力 $0 < p < p_{\max}$ ,且与黏度 $\eta$ 等物料参数和工艺条件有关,还与出口处的尺寸大小和形状相关。根据Hagen-Poiseuille公式,通过出口的熔体流量与两侧的压力降 $\Delta p$ 之间的关系为<sup>[22]</sup>

$$q = k \frac{\Delta p}{\eta} \quad (4)$$

$$k = \frac{\pi D_n^4}{128 L_n} \quad (5)$$

式中, $k$ 为出口的 shape 和尺寸系数; $D_n$ 为出口模具直径, $D_n=1.2\text{mm}$ ; $L_n$ 为出口流道长度, $L_n=40\text{mm}$ 。

如图3所示,式(1)和式(4)曲线中的交点即为螺杆挤出机工作的流量和压力,考虑到出口压力为0,联立求解可得稳定状态树脂流量和机头压力分别为:

$$q_b = k \frac{F_d n}{k + F_p} \quad (6)$$

$$p_b = \frac{F_d n \eta}{k + F_p} \quad (7)$$

不难看出,螺杆转速 $n$ 的增加会引起正流和压力流的增大,也会因不同流道结构而达到不同的稳定流量和压力。

#### 3.2 丝材成形控制建模

螺杆挤出机构为PLA树脂提供了一定的温度和压力来保证足够低的熔融黏度,促进纤维和树脂的浸渍,形成良好的界面配合。在一定的牵引速度 $v$ 下,将纤维束模拟成直径为 $d_r$ 的圆柱,

单根纤维的直径为 $d_f$ ，纤维根数为 $N$ ，牵引速度 $v$ 和复合材料丝材直径 $d_0$ 满足：

$$\frac{1}{4}\pi(d_0^2 - d_f^2)v = q_b \quad (8)$$

$$d_f = \sqrt{N}d_f \quad (9)$$

结合式(6)，当树脂在机头处的流量稳定在 $q_b$ 时，螺杆转速 $n$ 、牵引速度 $v$ 和复合丝材直径 $d_0$ 存在以下关系：

$$v = \frac{4kF_d}{\pi(d_0^2 - Nd_f^2)(k + F_p)}n \quad (10)$$

计算得理论纤维体积含量 $V_f$ ：

$$V_f = \frac{1}{\frac{4kF_d}{\pi N(k + F_p)d_f^2} \frac{n}{v} + 1} \quad (11)$$

针对不同3D打印成形件的性能要求，综合考虑成形时间、成形精度等，根据式(11)，通过改变螺杆转速 $n$ 和牵引速度 $v$ 等参数，可成形不同直径和纤维体积分量的复合材料丝材。

### 3.3 连续纤维浸渍质量调控机理

在纤维束与树脂的熔融浸渍过程中，浸渍温度、压力及牵引速度都会影响浸渍的质量，本文基于等温挤出理论，仅考虑压力和牵引速度两个参数的影响。如图4所示，熔融态的热塑性树脂对连续纤维的浸渍过程可以根据Darcy定律来分析，在压力作用下，树脂沿纤维束内部渗透，其流动速度。

$$v_r = \frac{K_r}{\eta} \frac{dp}{dr} \quad (12)$$

式中， $v_r$ 为树脂沿纤维束径向流动速度； $K_r$ 为纤维束的渗透率； $r$ 为树脂沿纤维束径向流动半径。

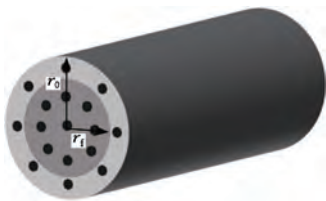


图4 纤维束内部浸渍示意图

沿纤维束半径方向，树脂的质量流动速率恒定不变，在半径 $r$ 处的流量为：

$$q_m = \rho V = 2\pi r l(1 - V_f)\rho V_r = C \quad (13)$$

式中， $l$ 为纤维束的长度； $\rho$ 为树脂的密度； $C$ 为常量。

假设纤维束在 $r=r_0$ 处时受到外部树脂流体的浸渍压力为 $p_0$ ，在纤维束浸渍的内部位置 $r=r_i$ 处受到内部大气压力为 $p_a$ ，未浸渍区域的半径为 $r_r$ ，对式(12)积分后可得：

$$\frac{q_m}{2\pi r l(1 - V_f)\rho} \ln \frac{r_f}{r_0} = \frac{K_r}{\eta} (p_0 - p_a) \quad (14)$$

将 $q_m = 2\pi r l(1 - V_f)\rho \frac{dr}{dt}$ 代入，积分并简化得：

$$r_f^2 \left(1 - 2 \ln \frac{r_f}{r_0}\right) = r_0^2 - \frac{4K_r}{\eta} (p_0 - p_a)t \quad (15)$$

浸渍时间：

$$t = \eta \frac{r_0^2 - r_i^2 \left(1 - 2 \ln \frac{r_f}{r_0}\right)}{4K_r(p_0 - p_a)} \quad (16)$$

当树脂完全浸渍纤维束时， $r_f=0$ ，则需要浸渍的时间为：

$$t_0 = \frac{\eta r_0^2}{4K_r(p_0 - p_a)} \quad (17)$$

渗透率 $K_r$ 与纤维束的半径以及纤维含量等因素有关，由于该流体在流动过程中剪切速率较低，故可用牛顿流体的相关方程描述。渗透率 $K_r$ 可用Carman-Kozeny理论<sup>[23]</sup>方程表示：

$$K_r = d_f^2 \frac{(1 - V_f)^3}{16k_0 V_f^2} \quad (18)$$

其中， $k_0$ 为常数，对于碳纤维， $k_0=17.9$ ，代入式(18)可得树脂完全浸渍纤维束的时间：

$$t_0 = \frac{4\eta k_0 r_0^2}{d_f^2(p_0 - p_a)} \frac{V_f^2}{(1 - V_f)^3} \quad (19)$$

假设纤维束的截面为圆形，则纤维束半径 $r_0$ 可以由纤维根数 $N$ 来表示：

$$r_0 = \frac{1}{2}d_f \sqrt{\frac{N}{V_f}} \quad (20)$$

代入式(19)得

$$t_0 = \frac{\eta k_0 N}{(p_0 - p_a)} \frac{V_f}{(1 - V_f)^3} \quad (21)$$

综上，理论的树脂完全浸渍纤维束的时间为 $t_0$ ，由纤维含量 $V_f$ 和螺杆机头的机头处的压力 $p_b$ 共同决定。由于树脂在螺杆的机头处与纤维混合浸渍，故 $p_0=p_b$ ，通过式(6)、式(7)、式(11)、式(21)，本文建立了螺杆挤出过程参数对纤维浸渍过程影响的数学模型，可以通过设定螺杆转速 $n$ 和牵引速度 $v$ 来计算纤维的完全浸渍时间。

## 4 试验研究和结果分析

### 4.1 复合丝材成形试验

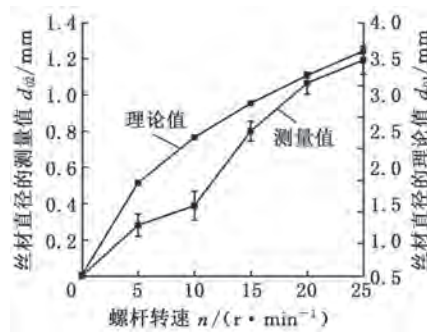
根据螺杆挤出理论，熔融树脂从螺杆推进面开始，向拖曳面逐步蔓延，直至流道内熔体分数达到稳定最大值，进而保证机头处熔体压力和流速的稳定<sup>[24]</sup>。图5给出了丝材成形理论预测的螺杆转速对丝材直径和纤维含量的影响，丝材成形过程中的牵引速度为20mm/min，通过试验结果可得，复合丝材直径随着螺杆转速的增大而增大，增大的趋势趋于平缓，当纤维丝材中包含1K纤维时，其纤维含量随螺杆转速的增大而减小。对比丝材直径的测量值和理论值，结果相差约3倍，但曲线的整体变化趋势趋同，分析原因是出口的形状和尺寸系数 $k$ 、熔融段长度 $L$ 以及参数 $F_b$ 的不确定性，导致计算的理论值产生偏差，也从侧面说明了通过改变出口模具内流道的结构尺寸参数可以进一步优化成形工艺。在

试验过程中,当螺杆转速低于5r/min时,一方面,出料不稳定;另一方面由于树脂的凝固收缩作用,成形丝材的表面存在凹凸不平现象,即存在未包裹区,丝材直径不稳定。当螺杆转速高于25r/min时,树脂含量过高,在纤维束表面堆积成不连续的凝固液滴,丝材内部的纤维含量随纤维排布方向存在不均匀变化,故试验中选择螺杆转速范围为5~25r/min。螺杆转速与树脂的流速存在式(6)中的对应关系,虽然提高螺杆转速可大幅度地提高复合丝材的产量,但从稳定挤出的角度来讲,需控制螺杆转速的波动。

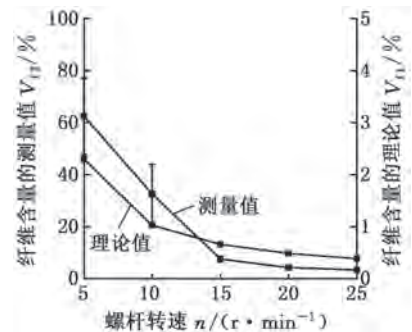
图6给出了丝材成形理论预测的牵引速度对丝材直径和纤维含量的影响,丝材成形过程中的螺杆转速为15r/min,随着牵引速度的增大,成形丝材的直径减小,即纤维束表面包裹的树脂量减少,进而影响成形丝材中的纤维含量提高。在试验过程中,当牵引速度小于10mm/s时,树脂在纤维束表面形成液滴状堆积,成形丝材直径不稳定;当牵引速度大于50mm/s时,纤维含量过高,树脂无法完全包裹纤维,表面存在大量未包裹区,无法实现打印,且高速的拉伸对纤维的磨损较大,影响纤维的使用性能,故试验中选择牵引速度范围为10~50mm/s。针对式(10)、式(11)中的对应参数关系,使用测得的拉丝速度和螺杆转速的数据,代入修正前期计算的 $k$ 、 $F_b$ 、 $F_p$ 。

#### 4.2 成形工艺对浸渍程度的影响

连续纤维与树脂间的浸渍程度直接影响纤维-树脂界面的结合性能,进而对3D打印成形件的力学性能产生影响。以往的研究中通过对树脂的掺杂改性、纤维的去浆处理、增加纤维

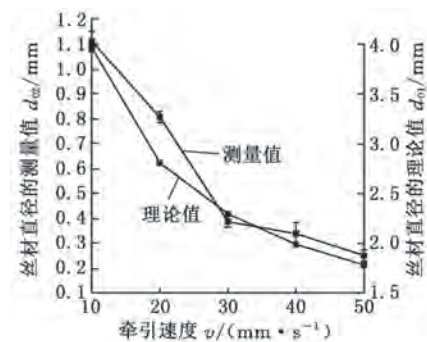


(a) 丝材直径

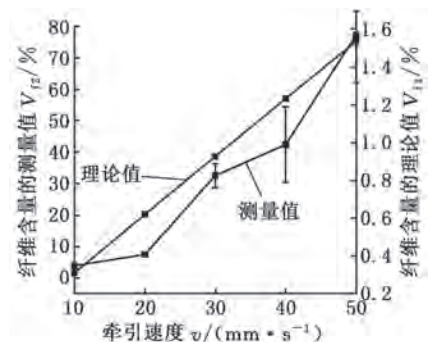


(b) 纤维含量

图5 螺杆转速对成形复合丝材直径和纤维含量的影响



(a) 丝材直径



(b) 纤维含量

图6 牵引速度对成形复合丝材直径和纤维含量的影响

表面的含氧官能团来提高纤维-树脂的表面结合性能,较少关注成形过程中工艺参数对界面结合效果的影响。采用本文上述优化后工艺,复合材料丝材的截面如图7所示。其中,浅灰色斑点是连续纤维,深灰色表示树脂基体,纤维中少量黑色斑点为成形后存在的孔隙。

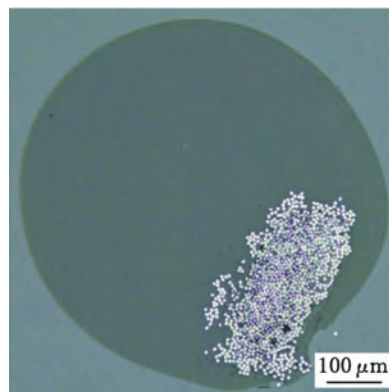


图7 复合材料丝材的截面图

经工艺参数及结构设计优化,当

牵引速度为 $v$ 时,假设实际纤维束的浸渍时间为 $t_r$ ,用 $\delta$ 来表示纤维的浸渍程度,有:

$$\delta = \omega \frac{t_r}{t_0} \quad (22)$$

$$t_r = \frac{L_0}{v} \quad (23)$$

其中, $L_0$ 为浸渍段的长度, $\omega$ 为修正系数。因为理论计算的浸渍时间为理想状态的,故结果远小于实际需要浸渍时间。针对本试验中设备的调节范围和前期的工艺试验,经校准修正 $k$ 、 $F_b$ 和 $F_p$ 等常量后, $\delta = \phi(n,v)$ 可由图8表示。将螺杆处于最大转速、牵引速度处于最低时的纤维浸渍程度设定为100%,其他螺杆转速和牵引速度参数下纤维的浸渍程度变化可对比得出。

随着牵引速度的增大,而模具的结构尺寸不变,导致纤维在树脂内部停留的时间缩短,由于树脂的高黏度,

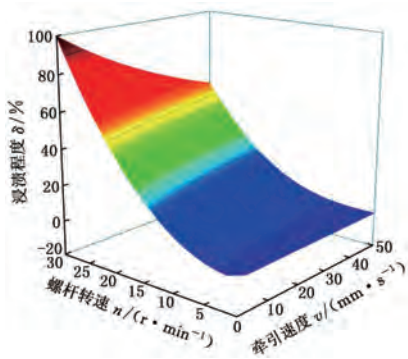


图8 螺杆转速和牵引速度对浸渍程度的影响

使得树脂渗透进入纤维束的过程较为缓慢，纤维中的空隙来不及被树脂置换，如图9a所示，而且过快的牵引速度使树脂经过机头处高压区的时间变短，树脂基体只能在纤维表面进行包裹，还未与纤维混合浸渍便被拉出成形；当牵引速度较低时，纤维浸渍程度提高，图9b为较好浸渍程度下的丝材截面图。而且随着牵引速度的降低，浸渍程度提高的速度变缓，这表明浸渍过程中，在此牵引速度下树脂已经完成对纤维束的浸渍。此外，单纯增大螺杆转速虽然能够通过提高浸渍压力而改善纤维浸渍程度，还可提高丝材的产量，但容易产生树脂堆积，纤维含量过低，需匹配相应的牵引速度，从而获得具有优异浸渍效果的高纤维含量复合丝材。

在连续纤维增强复合材料丝材中存在并未被树脂填充的空隙，其数量可以从侧面反映材料的浸渍程度。如

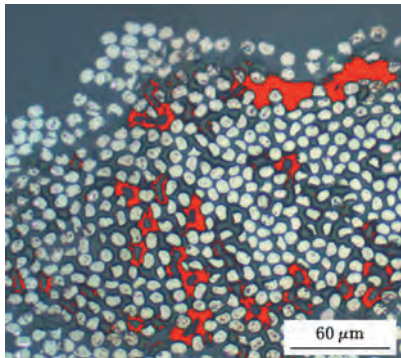
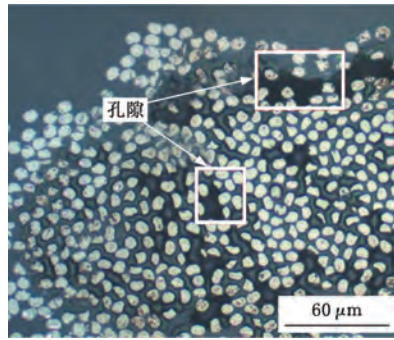
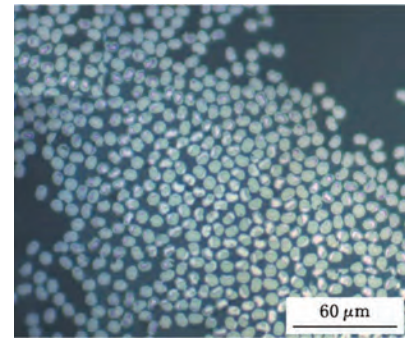


图10 自动识别生成复合材料丝材中的孔隙



(a) 牵引速度较高



(b) 牵引速度较低

图9 不同浸渍程度的连续纤维增强复合丝材

图10所示，识别复合材料丝材截面中的空隙并计算丝材截面处的孔隙率。表2列出了所有样品的孔隙率测定结果，随浸渍程度的提高，更多的树脂渗透进入纤维束，孔隙率下降。

#### 4.3 复合丝材的3D打印成形试验

在3D打印成形试验中，由复合材料的混合方程可知，其强度和模量随纤维含量的提高而提高。这是因为纤维含量的提高使得纤维-树脂的结合面积增大，可承受更大的应力，表现为拉伸强度的增加。然而，纤维含量的提高与纤维和树脂的浸渍程度并无关系，在较高的纤维含量下，树脂和纤维界面结合较弱的问题凸显，复合材料的主要破坏形式转为纤维拔出，使得结合较弱的短纤维和基体之间的载荷

传递能力成为限制其性能提高的关键因素。为此，本文将成形件中的纤维含量稳定在8%，通过改变螺杆转速和牵引速度来改变纤维和树脂的浸渍程度（表2），研究不同工艺下纤维浸渍程度对拉伸强度和弯曲强度的影响，其力学性能测试样件如图11所示。



图11 连续纤维增强热塑性树脂基复合材料弯曲性能测试样件

表2 不同工艺下的纤维浸渍程度

序号	螺杆转速 (r/min)	牵引速度 (mm/s)	直径 (mm)	纤维含量 (%)	浸渍程度 (%)	孔隙率 (%)
1	15	20	0.82	7.6	17.25	9.22
2	20	30	0.76	8.4	27.42	2.87
3	25	40	0.78	8.1	40.02	2.20

如图12所示，在纤维含量一定时，拉伸强度随着浸渍程度 $\delta$ 的提高而提高，当 $\delta = 40.02\%$ 时拉伸强度从132MPa提高至160MPa，提高约21%，弯曲强度也随之提高约16%。图13为拉伸性能测试断面的图片，图13a为纤维

中存在大量孔隙的典型样件图片，较差的浸润程度导致树脂无法进入到纤维束内部，此外，在成形件断裂时，低浸渍程度的成形件易出现纤维被完全拔出现象。当浸渍程度为40.02%时，由图13b可看到大量的纤维束与树

脂熔合,纤维束内的孔隙显著减少。综上所述,当成形件中纤维含量相同时,良好的纤维浸渍程度有利于纤维和基体之间的载荷传递,从而发挥连续纤维高强度和高模量的特点。随着浸渍程度的提高,纤维束内部的孔隙率也会相应降低,纤维单丝之间的空隙被树脂占据。

#### 4.4 复合材料成形件的动态力学性能测试

基于动态力学性能分析(DMA)测量三种不同浸渍程度成形件的动态力学特性,测试结果如表3所示,丝材浸渍程度分别为17.25%、27.42%、40.02%。储能模量的变化反映了材料刚性的提高,在纤维增强复合材料体系中,材料的储能模量主要来自于转换为界面的那部分基体和树脂的材料。三个试样的储能模量在试验开始时达到最大值,随温度升高而减小。

$\delta = 40.02\%$ 样件的储能模量最大,证明了通过优化工艺参数增强树脂对纤维的浸渍程度,成形件的储能模量可以显著增大。浸渍程度的提高使树脂基体间的界面结合得到改善,大部分应力通过纤维和树脂界面转移到碳纤维,此外,更多的树脂和纤维能够参与到界面层的形成中,分子间的内聚能密度增大,相互作用增强,最后使材料的硬度和强度均得到提高。

损耗模量的峰值出现在复合材料玻璃化转变温度处。观察到浸渍程度高的碳纤维增强PLA试样具有最大的存储模量和损耗模量,通过改善纤维和树脂的浸渍程度其储能模量可增大118%。显然, $\theta_g$ 值并未得到较大程度的改变,说明复合材料的热稳定性并未有较大提高。损耗因子随着浸渍程度的提高先增大后减小,但损耗模量随浸渍程度的提高而增大,损耗模

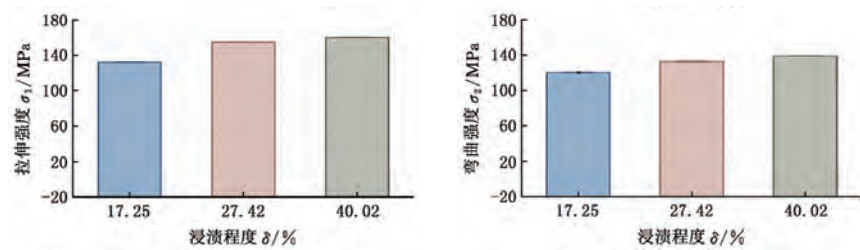
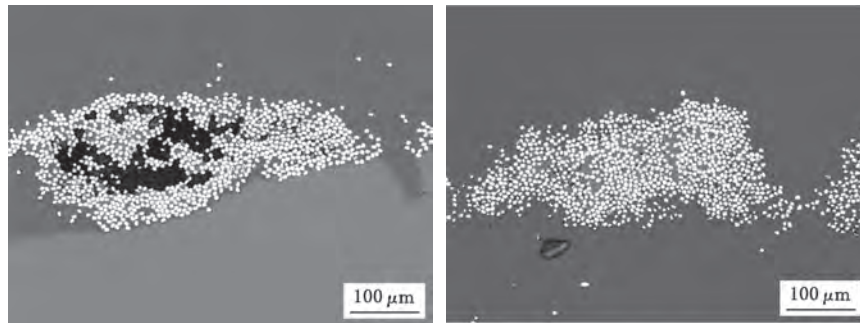


图12 浸渍程度对3D打印成形件的拉伸性能和弯曲性能的影响



(a)  $\delta = 17.25\%$

(b)  $\delta = 40.02\%$

图13 不同浸渍程度的拉伸性能测试样件断面

表3 不同浸渍程度下的DMA测试结果

	1	2	3
浸渍程度 (%)	17.25	27.42	40.02
储能模量 (GPa)	1.78	2.14	3.89
损耗模量 (GPa)	0.39	0.53	0.96
损耗因子	1.114	1.960	1.760
玻璃化转变温度 $\theta_g$ (°C)	63	60	60

量能够反映材料黏性变形的能力,说明纤维和基体间的界面结合得到了改善,复合材料的黏性耗散能量减少,材料的阻尼特性提高。

## 5 结论

(1) 研究了热塑性树脂在螺杆挤出过程中的流动机理,掌握了螺杆转速和牵引速度对复合材料丝材成形直径和纤维含量的影响。随牵引速度的增大,成形复合材料丝材表面包裹的树脂量减少,纤维含量随之增加,当牵引速度大于50mm/s时,树脂在纤维束表面形成液滴状堆积,直径不稳定。经工艺优化,螺杆转速区间为5~25r/

min,牵引速度区间为10~50mm/s。

(2) 通过改变成形工艺参数得到纤维含量为8%的复合材料丝材,由于成形过程中存在不同的浸渍压力和浸渍时间,故3种复合丝材中的浸渍程度 $\delta$ 有所不同。随浸渍程度的提高,成形丝材内部的孔隙率降低,3D打印成形件的力学性能升高。对打印成形件进行DMA测试,浸渍程度高的PLA试样具有最大的存储模量和损耗模量,说明纤维和基体间的界面结合得到了改善。

(3) 通过优化丝材成形过程中的工艺参数提高纤维和树脂的浸渍程度,从而提高3D打印成形件的力学性