

共押出成形過程における  
ポリプロピレン/ポリスチレン溶融体界面スリップに関する研究  
Polymer/Polymer Interfacial Slip between Polypropylene/Polystyrene Melts  
in Co-extrusion Process

(山形大院) ○(学)小室綾平、(正)Sathish K. Sukumaran、(正)杉本昌隆、(正)小山清人

**Abstract:** We investigated the interfacial slip using immiscible polymer system in co-extrusion process. We found that the interfacial slip velocity of PP/PS/PP and PS/PP/PS could be evaluated by eq.(2), and the interfacial slip velocity depended on the interfacial shear stress. Furthermore, we demonstrated the existence of polymer/polymer interfacial slip in co-extrusion process by the visualization technique.

**Keywords:** Multi layer, Interface, Slip

1. 緒言

高分子多層フィルム製造方法の一つとして、共押出成形法がある。この方法は、複数台の押出機を用いて、各高分子材料を溶融させて押出した後合流させて共に押し出す方法である。この時、特に異種高分子材料の組み合わせでは、界面での吸着力が弱いために、それらを共押出した際に、条件によっては液/液界面でスリップが発生すると考えられる。しかしながら、多層流動挙動の複雑さや、液/液界面スリップの評価方法が十分に確立されていない事などの要因から、共押出成形プロセスにおける液/液界面スリップ現象は、未だに不明点が多い。

そこで著者らは、これまでに2層試料とキャピラリーダイを用いる事で積層流動挙動を単純化し、非相溶系液/液界面スリップ現象について明らかにしてきた<sup>1)2)</sup>。本研究では、小型の押出成形機を用いて、2層および3層流れ(異種材料)における液/液界面スリップを求め、前報(キャピラリーダイを用いた検討結果)と比較した。また、可視化によって、実際に液/液界面スリップが起きているかどうかを確認した。

2. 実験方法

2.1 試料・装置

図1に示すように、殆ど同じ粘弾性を持ったポリプロピレン(PP)とポリスチレン(PS)を用いた。図1中の実線は、次式の Carreau-Yasuda モデルをPPとPSに対してフィッティングさせたものであ

る。

$$\eta = \eta_0 \left\{ 1 + (\lambda \dot{\gamma})^\alpha \right\}^{(n-1)/\alpha} \quad |_{\omega = \dot{\gamma}} \quad (1)$$

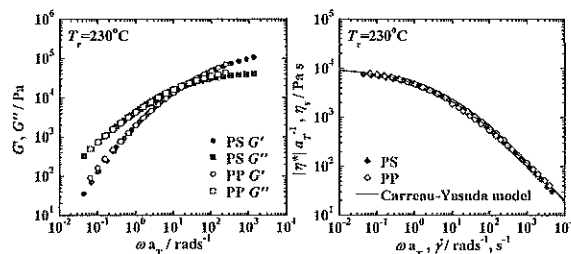


Fig.1  $G'$ ,  $G''$ , and  $|\eta^*|$  as a function of  $\omega$  at 230 °C.

共押出実験には小型の押出成形機(株式会社テクノベル製 ULT nano)を2台用いた。また、可視化実験では、試料に平均径  $3 \mu m$  の蛍光粒子を少量添加し、粒子の流れを共焦点レーザー顕微鏡(横河電機株式会社製)で撮影する事によって、厚さ方向の流速分布を評価した。

2.2 界面スリップ速度の導出

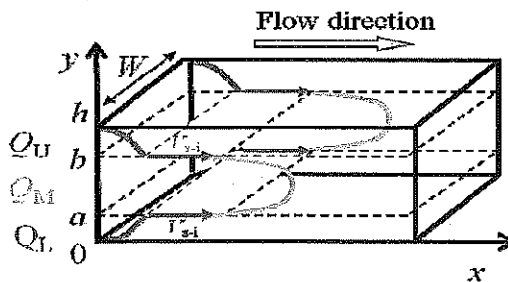


Fig.2 Boundary condition of flow velocity distribution in three-layer flow.

図2に3層試料の流速分布の模式図を示す。ここで、ダイ厚みを  $h$ 、ダイ幅を  $w$ 、全体の体積流量を  $Q$ 、界面スリップが無い場合の体積流量を  $Q_{no-slip}$ 、積層界面位置をそれぞれ  $a, b$  とし、界面スリップ速度を  $V_{s-i}$  とおくと、境界条件より  $V_{s-i}$

Ryohei KOMURO\*, Sathish K. SUKUMARAN,  
Masataka SUGIMOTO, Kiyohito KOYAMA  
Graduate School of Science and Engineering,  
Yamagata University,  
\* Yonezawa, Yamagata, 992-8510, Japan  
Tel.: +81-238-26-3058,  
Fax: +81-238-26-3411,  
E-mail: komuro@yz.yamagata-u.ac.jp

は次式のようになる。

$$V_{s-i} = (Q - Q_{no-slip}) / (b - a)W \quad (2)$$

ここで、 $Q_{no-slip}$  は式(1)から求めた。また、本研究で使用した PP と PS は、測定範囲内で壁面スリップが起きない事を確認している事から、式(2)から  $V_{s-i}$  を評価することが出来る。

### 3. 結果・考察

図3に、2種3層系である PS/PP/PS 系と、その内層と外層を逆転させた PP/PS/PP 系、及び細管流れにおける PP/PS 系の界面スリップ速度の界面応力依存性を示す。結果より、スリット流路における PP/PS 系積層流れにおいても、液/液界面スリップが発生し、その界面スリップ速度は、内層と外層を逆にした場合でも同じであることが分かった。更に、これらのスリップ速度の値は、キャピラリーを用いた検討結果<sup>3)</sup>と比較して良好に一致することが分かった。これらの結果より、界面スリップ速度は、ダイ形状に関わらず積層界面でのせん断応力によって関係づけられる事が分かった。

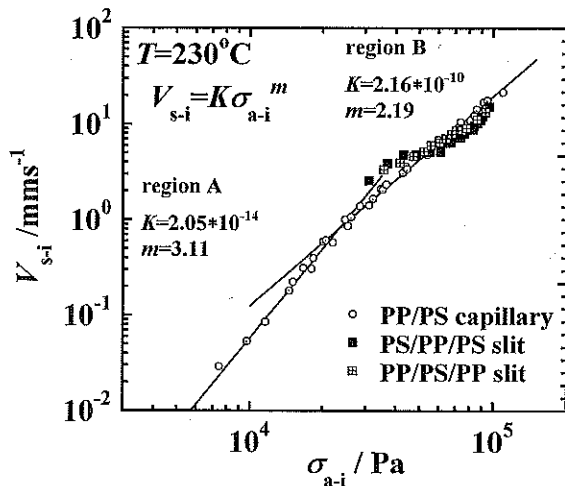
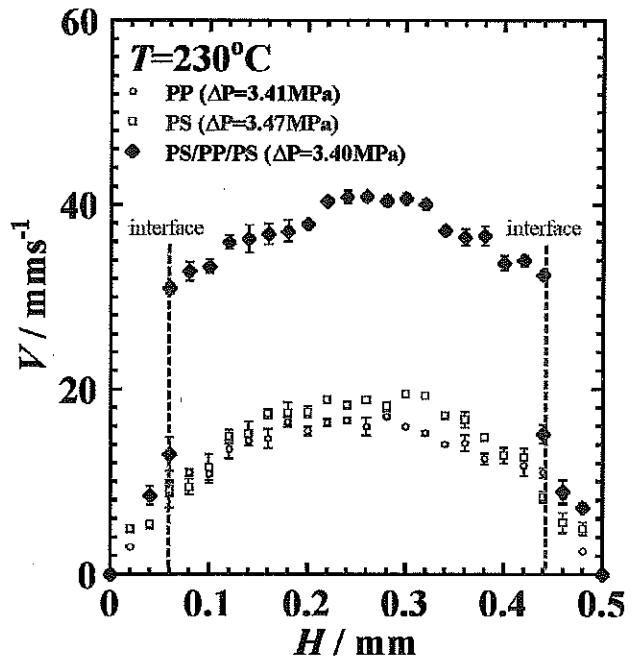


Fig.3 Interfacial slip velocity  $V_{s-i}$  as a function of interfacial shear stress  $\sigma_{a-i}$  for ○PP/PS (capillary), ■PS/PP/PS (slit), and ⊠PP/PS/PP (slit).

図4に、PP、PS、PS/PP/PS のダイ厚み方向の流速分布 (圧力勾配ほぼ一定) を示す。本研究で用いた PP と PS はほぼ等しい粘弾性を持つ事から、一定圧力勾配下では、厚み方向の流速分布は同じになる。この時、液/液界面スリップが発生しない場合、PS/PP/PS の厚み方向の流速分布は、PP および PS の流速分布と同じになる。しかし、図4より、PP と PS の厚み方向の流速分布は同じであったが、PS/PP/PS の厚み方向の流速分布は、内層(PP)の流速が全体的に増加しているこ

とが分かった。この結果から、積層流れ (異種材料) における液/液界面スリップが、実際に発生していることが分かった。

Fig.4 Velocity profile for PP, PS, and PS/PP/PS.



### 4. 結言

本研究により、以下の事が明らかとなった。  
 [1]積層流れ (スリット流路) において、式(2)から液/液界面スリップが求められ、その界面スリップ速度は内層と外層を逆にした場合でも同じ。  
 [2]界面スリップ速度は、ダイ形状に関わらず積層界面でのせん断応力によって関係づけられる事が分かった。  
 [3]積層流れにおける液/液界面スリップが起こることを、実際に可視化実験により明らかにした。

### 参考文献

- 1) 小室綾平、Sathish K. Sukumaran、杉本昌隆、小山清人、プラスチック成形加工学会第 19 回秋季大会, 353, (2011)
- 3) R Komuro; S. K. Sukumaran; M. Sugimoto; K. Koyama, The XVIth International Congress on Rheology, 200, (2012)

### 謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 (24350114) 及び小笠原科学技術振興財団 (研究助成) の助成を頂き遂行された。