

# ETFEを用いた共押出成形における液-液界面スリップに関する研究

## ETFE/Polymer Interfacial slip in coextrusion molding

(山形大院) ○(学)伊藤拓哉、(正)Sathish K. Sukumaran、(正)杉本昌隆、

(旭硝子)八百板隆俊、小寺省吾

**Abstract:** We studied a relationship between interfacial slip and interfacial roughness in coextrusion of ethylene-tetrafluoroethylene(ETFE)/PS. Observation of velocity distribution in coextrusion was carried out by PIV system. The interfacial slip of ETFE/PS was observed in coextrusion, but we did not confirmed interfacial roughness in straight die. It is suggested that the interfacial roughness depends on not only the polymer-polymer interfacial slip, but also the flow channel geometry.

**keywords:** ETFE, PS, interfacial slip, coextrusion

### 1.緒言

異なる樹脂を積層させて機能を付与する多層化技術は、食品包装材や輸液パックなどの医療分野、また有機薄膜太陽電池の保護フィルムなどの電子部品などに使用されている。高分子溶液をダイ内で合流させて多層フィルムを成形する共押出法は多層化技術の一つであるが、しばしば樹脂どうしの界面荒れが生じることが問題として挙げられている。高分子特有の粘弾性挙動により多層流動挙動が非常に複雑になるためこの原因の特定には至っていないが、界面荒れの原因の一つとして樹脂どうしの界面での滑り(液-液界面スリップ)が挙げられている。小室らの報告によると、キャピラリーレオメーターを用いてPP/PSにおける界面スリップ速度はべき乗則( $V_{s,i}=K\sigma^m$ )に従い、また、ある臨界応力値( $\sigma_c$ )においてべき乗則指数 $m$ が変化すること、 $\sigma_c$ より高い応力値で界面荒れが生じたことが知られている<sup>1,2</sup>。我々はキャピラリーレオメーターを用いてエチレン-テトラフルオロエチレン共重合体(ETFE)/PSにおける液-液界面スリップ

速度の測定を行ったところ、既報と同様にある臨界応力値 $\sigma_c$ においてべき乗則指数 $m$ が変化し、 $\sigma_c$ 以上で界面荒れが発生したことを確認した<sup>3</sup>。

本研究では実際の共押出成形において、(1)液-液界面スリップが発生しているかどうかを可視化ダイと共焦点レーザー顕微鏡、高速度カメラを用いて流速分布測定を行い、(2)成形後のフィルム界面粗さを目視及びレーザー顕微鏡を用いて評価を行った。

### 2.実験方法

本研究では、低融点ETFE(旭硝子製, $T_m\approx 190$ °C)と、PS(PSジャパン製,G9305)の2種類の試料に対し、それぞれに蛍光粒子(シンロイヒ製,FX-304)を0.5wt%ドライブレンドした。押出機は池貝製一軸押出機(スクリー径25Φ)と田辺プラスチック機械製一軸押出機(スクリー径20Φ)を用いた。ダイは樹脂合流後の流路形状が矩形のストレートダイと、樹脂合流後10mm部で4:1の縮小比を有する縮小ダイの2種類(結果3.1参照)で試験を行った。また、2つのダイには合流部から32mm下流中央に可視化ガラスが挿入されている。共焦点レーザー顕微鏡と高速度カメラをマイクロトラバース(XYZ軸移動ステージ)に装着し、底面からレーザーを照射することで蛍光粒子が励起した光を高速度カメラで撮影することができ、ダイ厚み方向に100μmずつトラバース

Takuya Ito<sup>1</sup>, Sathish K. SUKUMARAN<sup>1</sup>, Masataka Sugimoto<sup>1\*</sup>, Seigo Kotera<sup>2</sup>, and Toshitaka Yaoita<sup>2</sup>.

<sup>1</sup>Graduate school of Science and Engineering, Yamagata University.

<sup>2</sup>Asahi Glass Co., ltd.

\*4-3-16 Jounan, Yonezawa, Yamagata, 992-8510

E-mail: sugimoto@yz.yamagata-u.ac.jp

Tel:0238-26-3058, Fax:0238-26-3411

サーを移動させることで流速分布を算出した (Fig.1)。また、流動解析シミュレーションソフトSUNDYXTRUD(サイバネット)を用いて2次元流動解析を行い、安定流動下での界面応力を求め、これを参考に不安定流動となりうる応力値を推定した。

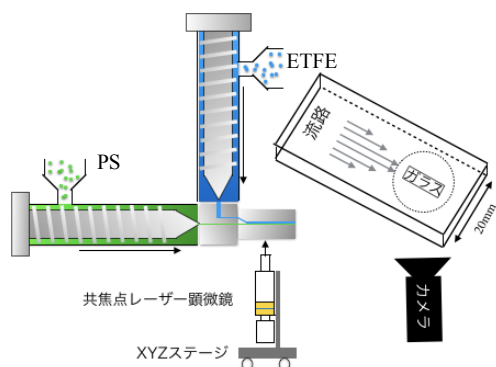


Fig.1. Schematic of flow visualization system.

### 3.結果と考察

本要旨には、ストレートダイを用いた共押出試験の結果を記載する。

#### 3.1 流動解析計算結果

ストレートダイ (厚み：合流前各1mm,合流後は2mm、幅：20mm) で押出温度260°C,体積流量 $Q_{ETFE}=440\text{cc/h}$ ,  $Q_{PS}=3960\text{cc/h}$ の条件で計算して得た応力値の結果を図3に示す。我々の過去の研究によると、キャピラリーレオメータで得られたETFE/PS界面スリップ臨界応力値 $\sigma_c$ は約 $3.0\sim 4.0\times 10^4\text{Pa}$ であった。今回の流動解析で得られたETFE/PS界面応力値 $\sigma_i$ は $3.4\times 10^4\text{Pa}$ で、界面スリップが発生する条件を再現できたため、この条件をもとに共押出試験を行った。

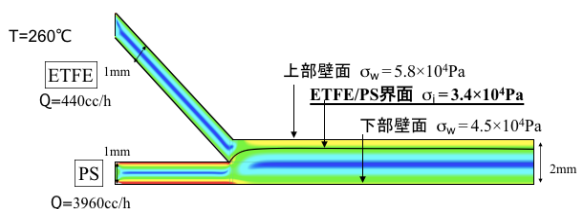


Fig. 2 Stress distribution for CAE at 260°C.

#### 3.2 ETFE/PS共押出試験結果

ストレートダイを用いてETFE(上層)/PS(下層)の共押出成形を行った。押出条件は260°C,

$Q_{ETFE}=440\text{cc/h}$ ,  $Q_{PS}=3960\text{cc/h}$ である。共焦点レーザー顕微鏡を用いて測定した速度分布結果と計算結果を図3に示す。

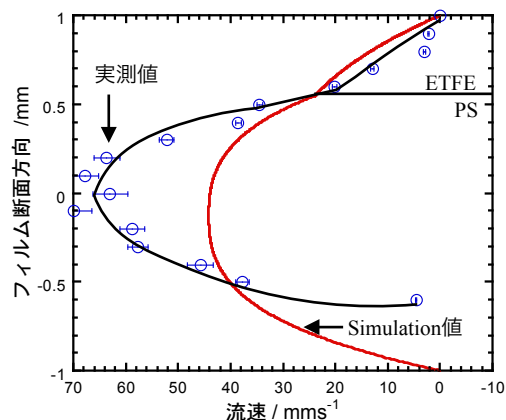


Fig.3 Velocity distribution in the straight die of ETFE/PS multi layer flow

Fig.3より、界面応力値 $\sigma_i$ は臨界応力値 $\sigma_c$ に達しているが、流速分布は粘弾性差によるか、もしくは液-液界面スリップによるかどうか判断が困難な結果となった。押出物の界面は平滑であり、界面荒れの発生は確認できなかった。PSの吐出量を増加させ、界面応力値を上昇させても界面荒れは発生しなかったことから、界面荒れの発生には液-液界面スリップだけでなく流路の形状も起因していることが示唆される。

### 4.緒言

ストレートダイを用いて、ETFE/PSの共押出試験を行った。本研究より、ストレートダイを用いてETFE/PSの多層押出物には界面荒れが生じていなかった。界面荒れには液-液界面スリップだけでなく流路の形状が起因していることが示唆されるため、今後は縮小ダイを用いて検討を行う。

#### 参考文献:

- 1)R. Komuro, S. K. Sukumaran, M. Sugimoto, K. Koyama, *Rheol. Acta*, **42**, 23-30 (2014)
- 2)H. E. Park, P. C. Lee, C. W. Macosko, *J. Rheol.*, **54**, 1207-1218 (2010)
- 3)伊藤拓哉, Sathish K Sukumaran, 杉本昌隆, 小寺省吾, 八百板隆俊, 成形加工学会第27回年次大会, 311(2016)