

二層共押出での界面不安定性の粘弾性流動解析

Interfacial instabilities in two-layer coextrusion: insights from viscoelastic flow simulations

(山形大院) ○ (正) 武田敬子, (正) サティシュクマル スクマラン,
(正) 杉本昌隆

During the coextrusion of multilayer films, interfacial instabilities have been observed under certain conditions. Such instabilities occur even during the two-layer coextrusion of the same material. Therefore, the cause of the instability cannot be any difference in the material characteristics but is likely to be due to the different flow histories of the two layers. Past work has suggested a heuristic criterion to determine the origin of the instability. To shed further light on this issue, we performed three-dimensional viscoelastic flow simulations of two-layer coextrusion. Dynamic viscoelasticity and elongational rheology were modelled using the Phan Thien-Tanner equation. Comparing coextrusions at different mass flow rate ratios, we found that the major layer pushes up against the minor layer resulting in the elongation of the minor layer. The presentation will focus on the characteristics of the deformation of the two layers and their relationship to the origin of the interfacial instability. Keywords: interfacial instability, strain hardening, viscoelastic flow simulation, Phan-Thien Tanner model

1. 緒言

フィルムを多層にすることで高機能化することは、材料削減などの点からも、今後益々望まれる方法であるが、薄膜化することで、界面間の荒れや厚さ不均一など問題が生じることがある。

多層化する方法、共押出成形では、流路内の樹脂の不安定な流動挙動により、同種を使用しても荒れが起こることがある¹⁾。波状の界面荒れ発生要因として、第一法線応力差²⁾、合流部³⁾や縮小部⁴⁾での高い伸長率が挙げられる。特にダイ内の合流部や縮小部では、せん断と伸長流動が混在するため、高分子材料の粘弾性特性を把握することが重要となるがダイ内のせん断と伸長流の分布等不明な点が多い。また粘弾性特性を詳細に表すため複数の緩和時間を使用する必要があるが、計算収束が難しく解析例は未だ少ない。

本研究では、同種二層共押出ダイ内合流部での、高分子材料の粘弾性特性が界面不安定現象に与える影響を3次元マルチモード粘弾性モデルによる数値流動解析により検討した。

Keiko Takeda*, Sathish K. Sukumaran,
Masataka Sugimoto
Graduate School of Organic Materials Science,
Yamagata University, 4-3-16, Jonan Yonezawa,
992-8510, Japan
Tel: 0238-26-3055, Fax: 0238-26-3411
E-mail: kei@yz.yamagata-u.ac.jp

2. モデル材料

フラットダイ(幅 16 mm, 長さ 41 mm, 厚み 1.6 mm)を使用して、流量比 1:8 で同種二層共押出を行った実験⁵⁾で、波状の荒れが確認されたひずみ硬化性を持つ低密度ポリエチレン(LDPE)(JPE 製 LF128 MFR=0.25g/10 min)を使用した。

3. 流動解析

定常流れ、非圧縮性流体として共押出ダイ内の3次元流動解析を行った。高分子溶融体は、高粘性のため、慣性力、重力は無視できる。3次元での粘弾性解析は非線形性のある樹脂は、計算負荷が高いため、まず等温で二層が合流するダイ内での粘弾性特性の荒れへの影響を検討した。計算には、有限要素法流体解析ソフトウェア Polyflow[®]を使用した。計算負荷減少のため、ダイの対称性により幅は1/2とし、長さは 13 mm とした。実験と同様に同種を上層:下層で1:8の流量比で流した。流路内での二層の流体の界面位置は ALE 法により求めた。有限要素法を用いて運動方程式、連続の式、粘弾性の式を分離、圧力、余剰応力テンソル、速度を計算した。構成方程式は高分子溶融体の粘弾性特性を表すため、Phan-Thien Tanner (PTT) モデル⁶⁾(式 1)を使用した。

$$\exp\left[\frac{\varepsilon\lambda}{\eta}\text{tr}(\tau)\right]\tau + \lambda\left[\left(1 - \frac{\xi}{2}\right)\nabla\tau + \frac{\xi}{2}\Delta\tau\right] = 2\eta D \quad (1)$$

ここで、 τ は余剰応力テンソル、 λ は緩和時間、 η はせん断粘度、 D は速度勾配テンソル、 ∇ と Δ はUpper-convected、Lower-convected 時間微分、 ξ と ϵ は、それぞれせん断と伸長を制御する材料パラメータを示す。

図1に実験データ⁵⁾(LDPE 200°Cでのせん断粘度、貯蔵弾性率、損失弾性率の周波数依存性、一軸伸長定常粘度)とフィッティングデータを示す。このフィッティングにより5モードのPTTパラメータを決定した。

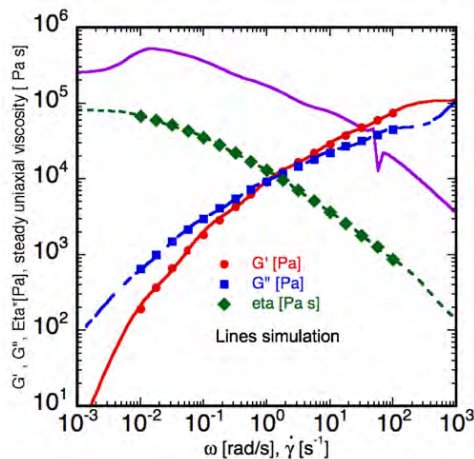


Figure 1 The fit of G' , G'' , shear viscosity η and steady uniaxial viscosity at 200 °C. The symbols and the lines represent the experiments and the PTT model fitting respectively.

3. 数値解析結果

第一法線応力差(N_1)は式(2)に従い求めた。

$$N_1 = \sigma_{11} - \sigma_{22} \quad (2)$$

σ は応力テンソル、1は流線に対して接線方向、2は法線方向を表す。図2に流量比1:8、PTTモデルで計算したダイ中央界面(合流部から流動方向へ2mmまで)の N_1 とせん断速度を示す。合流直後中央界面の N_1 は最大を示し、その後減少、せん断速度も急激に減少した。

次に伸長速度を速度勾配テンソルの第3不変量(III_D)と第2不変量(II_D)の比で表した(式3)⁷⁾で検討した。

$$\dot{\epsilon} = 6 \frac{\text{III}_D}{\text{II}_D} \quad (3)$$

図3に合流直後のダイ中央の伸長速度分布を示す。負の値は、伸長、正の値は圧縮を表す。合流直後、下層は流量が多いため上層を押し上げ、界面位置が上昇した。流路が広がるため流速が遅

くなり、幅、厚み方向に伸長速度が増加した。上層は下層に押し上げられたためとひずみ硬化性を持つため、伸ばされるが、余地がないため、伸長速度の絶対値は下層より小さくなった。

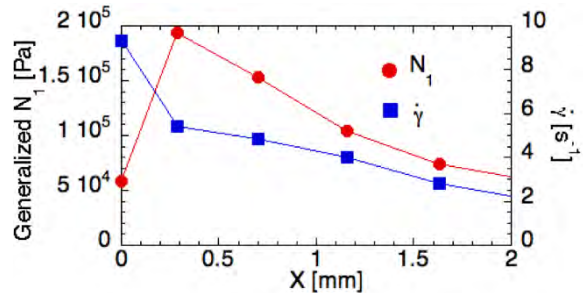


Figure 2 Generalized first normal stress difference and shear rate of the PTT model along the interface in the merging area at the middle of the die.

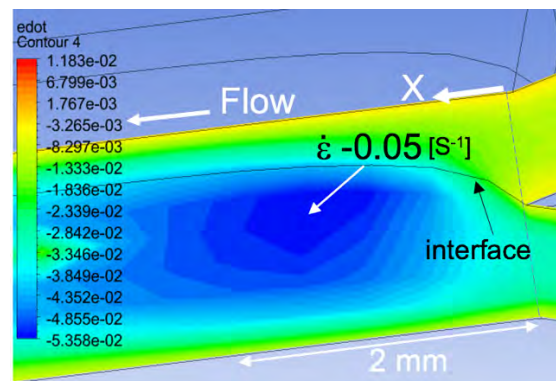


Figure 3 Elongation rate of the PTT model in the merging area at the middle of the die.

4. 結言

同種二層共押出の合流直後の流動挙動のマルチモード PTT モデルを使用した3次元粘弾性数値解析を行った。合流直後、主流と副流に伸長速度差が生じ、波状荒れにつながる可能性を示唆した。

参考文献

- 1) C. Tzoganakis and J. Perdikoulis: Polym. Eng. Sci., **40** (5), 1056 (2000)
- 2) 松尾雄二, 名嘉山祥也, 梶原稔尚: 日本機械学会論文集, **75** (753), 47 (2009)
- 3) M. Zatloukal et al.: J. Appl. Polym. Sci., **98**, 153 (2005)
- 4) 中村直貴, 山崎英数, 横山敦士: 成形加工'10, 265 (2010)
- 5) 見川尚輝: 山形大学工学部学位論文, (2017)
- 6) N. Phan-Thien and R.I. Tanner: J. Non-Newt. Fluid Mech., **2**, 353 (1977)
- 7) B. Debbaut and M. J. Crochet: J. Non-Newt. Fluid Mech., **30**, 169 (1988)