粘弾性流体の異常流出の初期形状 (プラグの発生としわの周方向局所性)

牧 博 司^{*1}, 小 川 信 夫^{*1}, 木 島 崇^{*2}

Initial Behavior of Anomalous Extrudate of Viscoelastic Fluid (Occurrence of Plug and Locality of Wrinkles in Circumferential Direction)

Hiroshi MAKI, Nobuo OGAWA and Takashi KIJIMA

An initial distortion of anomalous extrudate of polyethylene when wall shear rate increases has been categorized as "sharkskin". We examine two distinct extrudate distortions in this study. One is locality of wrinkles in the circumferential direction of the extrudate, which occurs when the temperature of polyethylene is increased from that before the experiment. The other is generation of plugs overlapped with the wrinkles, which occurs when the temperature is decreased from that before the experiment. They suggest a memory effect which appears frequently in a flow of viscoelastic fluid. Two kinds of shear stress-shear rate characteristics appeared and they merged into one line when the wall shear rate was increased and the well-known sharkskin phenomenon was then generated. Frequencies of the wrinkles and the plugs were measured and some qualitative discussions were given for theoretical treatments which will be performed in the future.

Key Words: Fluid Mechanics, Viscoelastic Fluid, Surface Shape, Plug, Wrinkles

1. 緒 言

粘弾性流体をノズルより押し出す際に、定常流出から最初に発生する異常流出物の形状が Sharkskin と呼ばれている流出物の表面がさめ肌状を呈する現象であることは長く信じられてきた。また、この現象がノズル内(の出口部の)滑りに起因して発生することも大方の認めるところであろう。しかし、文献(1)では流出物の全周にわたって最初にしわが発生し、ずり速度の増加とともにしわの高さが減少するという現象も報告されている。これまでの多くの報告ではこのしわと Sharkskin を混同しているきらいもなくはないが、現物を観察する機会もないので断定はできない。しかし、本研究では周方向に連続している小さなきずをしわ(Wrinkle)と呼び、連続しておらず文字どおりのさめ肌を Sharkskin と呼ぶことにする。

さて、LDPE を用いた本研究において、表面に深くくびれた形状(本論文ではプラグと呼ぶ)が周期的に発生する現象ならびに周方向に局所性をもつしわが発生する現象が先行し、それら二つの現象は一つに合流し、

その後、ずり速度が増すと Sharkskin に移行するという現象が見いだされた。すなわち、Sharkskin に先行する異常流出現象が存在するという意味で新しい知見であると考えられる。この現象の発生は実験条件に左右され、試作された本実験装置において、前者は作動流体の温度を下げたとき、後者は上げたとき以後の実験において発生し、再現性はあるが実験順序によって支配される。すなわち記憶効果(memory effect)の存在が示唆される現象である。また、ノズル入口部の面取りの大きさにも左右され、本研究で試みた C 0, C 0.5 では発生せず、C 1 の(C は JIS で規定の面取りの記号)の場合に発生した。すなわちノズル入口部の形状も、この種の現象が発生するための重要な因子であることが明らかになった。この実験的事実は重要であると考えられるので、本報告ではプラグ、ならびにしわのピッチ等を測定し、二、三の考察を加えたものである。

2. 実験装置と実験方法

作動流体には日本石油化学(株)製の商品名“日石リニレックス(Grade: AF 1210)”を用いた。このレジンを市販の押出機〔文献(1)に示してあるので本論文では説明を省略する〕より次に示すダイより大気中に押

* 原稿受付 1995年4月5日。

*¹ 正員、東京理科大学理工学部 (〒278 野田市山崎 2641)。

*² 東京理科大学大学院。

し出した。ダイは厚さ 7.4 mm, 直径 200 mm の円板の周方向に直径 2 mm の穴(ノズル)を 15 個もち、その穴の上流側を C0, C0.5, C1 に面取りしてある。したがって、平行部すなわち断面積一定部のノズル長さはその順に短くなっている。流出物の温度は自動制御され、穴の上流側の圧力はブルドン管式圧力計で測定した。流量はスクリーンの回転数により変化させた。また、密度は体積置換法によって測定し、温度変化による密度変化は無視した。

実験は、作動流体の温度が設定温度一定になるまで長時間連続運転の後開始した。なお、流出物の再利用は行っていない。流出物は各実験条件で約 1 m ずつ、約 10 m 採取し、表面を観察した。流出物表面のしわならびにプラグのピッチは読取り顕微鏡で測定した。

3. 実験結果と考察

3.1 セン断応力-ずり速度特性と流出物の表面形状

図 1 には、C1 のノズルを用い作動流体の温度を 180°C に保った場合の壁面せん断応力 $\tau_w = \Delta P D / 4L$, $\Gamma = 32Q / \pi D^3 n$ の関係を示す。ただし、 ΔP はノズル前後の圧力差、 D はノズルの内径、 L はノズルの長さ、 Q は全体積流量、 n はノズルの個数(15 個)である。図 1 において○印と△印の実験値は作動流体の温度を 180°C より高温に保った後 180°C に下げた場合、▲印はそれとは逆の低温状態から 180°C に上昇させた場合をそれぞれ表している。図 1 より、 $\Gamma < \text{約} 1100 \text{ s}^{-1}$ なる領域では両者の特性が明らかに異なっていることがわかる。すなわち、 Γ の上昇に伴って前者では右下がりから右上がりに変化し、後者ではつねに右上がりの特

性で、 Γ が 1100 s^{-1} 付近で両特性は合流する。後述するが、 $\Gamma > \text{約} 1100 \text{ s}^{-1}$ なる領域では両者(前者の場合には△印で区別してある)ともに Sharkskin に移行する。

図 2 は比較のために C0 のノズルを用い温度を変えた場合の $\tau_w - \Gamma$ 特性を示したもので、各温度における実験値はなめらかにかつ温度の順に連なっており、異常は認められない。すなわち、図 1 と図 2 の相違はノズル入口部の面取り(の大きさ)にのみ依存していることは明らかである。

図 1 に示した $\tau_w - \Gamma$ 特性の差異と流出物の表面形状との関係を明らかにするために図 3 に前者の、図 4 に後者の場合の流出物の写真を示す。図 3 は(a)からアルファベット順にずり速度を上昇したときの形状の変化を示したもので、図 3 (a)～(c)には周期的なくびれがはっきり認められ、 Γ の上昇とともに単位長さ当たりのその数が減少していることが認められる。ところが図 3 (d)～(f)の写真ではそのくびれの中に新たなしわの発生が認められ、くびれ部近傍においてあたかもピッチが大なるしわの連続のような形状に変化していることが認められる。一方、ピッチが小なるしわは図 3 (c)～(f)に認められる。図 3 (a), (b)ではくびれのピッチが小さいために、小なるピッチのしわはくびれと区別がつかないので観測されない。また、図 3 (f)ではピッチの小なるしわとピッチの大なるしわが交互にある距離だけ出現するように見えるわけである。本研究では上述のくびれをプラグと呼び、ピッチの大なるしわが連続している箇所をもとめて一つのプラグと考えた。なお、 $\Gamma > \text{約} 1100 \text{ s}^{-1}$ なる領域でプ

Fig. 1 $\tau_w - \Gamma$ characteristics (C1, 180°C)

Fig. 2 $\tau_w - \Gamma$ characteristics (C0, 180°C)

Fig. 3 Typical shapes of extrudate (Plug)

Fig. 4 Typical shapes of extrudate (Locality)

Fig. 5 Circular chart of exsiting region for wrinkle and sharkskin (180°C)

ラグが消滅するがその領域ではピッチの小なるしわのみの表面形状に移行し、その後に Sharkskin となる。

このプラグは15個のノズル全部でほぼ一斉に発生し、ずり速度の増加とともにその発生するノズル数が急激に減少し、図3(f)は1個のみ発生している場合の写真である。Lin⁽²⁾は τ_w - Γ 曲線の微妙な変化と流出物の表面形状との関係を実験的に調べ多くの知見を得、かつその曲線の変化を分子同士を結合している鎖の“もつれ”や張力の緩和を仮定し、理論的に説明しようと試み、ある程度成功しているが、形状の変化までを見体的に求めるには至っていない。現状では限られた測定量しか得られない状態なので、やむをえず実験値の整理に τ_w や Γ という量を使用せざるをえないところが今後の研究の発展のための最大の課題であろう。すなわち、流出物の形状を予測することは現在では困難であろう。したがって、今後の理論的推定のために、現象論的な報告も必要であろうと考えている。

一方、図4は流出方向にほぼ垂直な平面内で周方向に約60°異なった方向から撮影したもので、図4(a)と図4(b)は明らかに異なっていることがわかる。すなわち図4(a)では写真上の上、下は異なった形状をしており、図4(b)は次に示す図5(d)の矢印〔図4(b)〕の方向から撮影した写真で、図4(b)の上側は流れ方向に垂直なしわ、下側はさめ肌状(Sharkskin)、中央はなめらかな形状であることがわかる。すなわち、周方向に局所性をもった表面形状の損傷が出現している。

これは、しわ等の発生が壁との滑りに起因していると考えれば、周方向に局所的な滑りが発生しており、滑り方が異なっていると推測せざるをえない。さらに、しわならびにさめ肌の発生している場所が Γ が一定ならば周方向に変化していないことより、発生場所は拡大も縮小も、すなわち変化していないと考えられる。

この垂直なしわが存在する中心角(の合計)は、流量

を増すと徐々に減少していき、あるずり速度で消失する。そのしわの減少とは逆に、通常のさめ肌が存在する中心角は増加し、しわの消失と同時に全周(全表面)が通常の Sharkskin 状態となる。図5は上述の中心角の変化を模式的に示したもので、左より右に Γ が増加している。また、太い破線は垂直なしわの存在範囲、太い実線は Sharkskin の存在範囲、そして細い実線は滑らかな部分の存在範囲を表している。図6は、各存在範囲の中心角を 360° で除した比 R を Γ に対してプロットしたもので、実験精度の範囲内ではほぼ直線的に増減していることがわかる。図6より、しわと Sharkskin それぞれの存在範囲の発生ならびに消滅

($R=0$ または1)は不連続的であることがわかる。

また、垂直なしわの消失前後で流出物の直径が変化することがわかったので、図7に流出物の外径の平均値を d としたときの直径増加率 d/D を示す。 Γ が約 1400 s^{-1} でわずかではあるが不連続的に変化していることがわかる。ただし、図1に示した $\tau_w - \Gamma$ 特性に変化はない。

上述の周方向に局所的なしわの発生原因としては、ノズルの加工の際の周方向の微妙な不均一性が考えられる。その不均一性としては、表面粗さ、面取りの際の角部の曲率(かえりの除去の際の)が考えられるが、円筒部の周方向の加工上の不均一性は少ないと考えられるので面取り部の詳細な観察等と合わせて今後の研究課題であろう。

しかし、メルトフラクチャと呼ばれる異常流出の形状は周方向に局所的であり、周方向の局所性が異常流出の本質なのかもしれない。すなわち、異常流出の理論的取扱いに三次元的考察が不可欠であり、さらに記憶効果も考慮しなければ形状の予測は困難であろう。

3.2 プラグとしわの発生周波数 図1ならびに3.1節に示した結果より、Sharkskin 現象の発生はプラグの発生を伴う場合とある中心角の範囲のみにしわが発生し、ずり速度の増加に伴って Sharkskin 状態になる場合の2とおり存在し、この現象の発生時には $\tau_w - \Gamma$ 特性は異なった傾向を示すが、ずり速度の増加とともに1本の特性曲線に収束することがわかる。このプラグならびにしわの発生は比較的規則性があるので、それらの発生状態を調べるために、プラグ(くびれ)ならびにしわのピッチを l 、 Γ 平均流出速度を U_m

Fig. 6 Variation of central angle for wrinkle and sharkskin (C1, 180°C)

Fig. 7 Diameter increasing rate (C1, 180°C)

Fig. 8 Frequency of plug and wrinkle (180°C)

としたときのプラグならびにしわの発生周波数 $F = U_m/l$, ならびに $F' = U_m/l'$ とずり速度 Γ の関係を図8に示す。図8より、棒プロットしてある実験値のちからは認められるものの、 Γ の増加により F は減少し、ある値に漸近する傾向にあることがわかる。すなわち、実験値を結んだ直線のこう配が零でないことより、その発生原因として直接 U_m と関連付けられず、例えばノズル上流側の流体の圧縮性を考慮⁽³⁾ することなどが有力な考え方であろう。一方、 F' は横軸にほぼ平行であるので U_m の l' の関係があることがわかる。しかし、 F と F' は傾向も大きさも異なるので同じ原因で発生しているとは考えられないが、本実験範囲内でこれ以上の考察はできない。

3・3 ノズル入口部の形状 2章に記してあるが、3・1、3・2節に示した実験結果はノズル入口部の面取りがC1の場合に得られたもので、他のC0の場合には発生しない。しかし、C0の場合には周方向に局所性のない、すなわち全周でしわが発生するので、そのしわのピッチを l' として計算した F' を図8に△印で示してある。図8よりこの場合の F' はずり速度の増加とともにわずかに増加しており、発生初期の値は F の約1/2である。すなわち、しわの発生原因が作動流体の方向変化だと予想すれば、C1の場合には45°ずつ2回の方向変化であり、C0の場合は90°の1回である。角度の大小はあるものの理屈は通っている。なお、C0.5の場合にはC0とほぼ同様の結果が得られたことより、C0.5では面取りが小さいので2回ではなく1方向の方向変化という現象が生じているものと考えることができる。また、C0の場合には、本実験範囲内ではSharkskinには移行しない。

3・4 異常流出の初期形状 本研究範囲内で粘弾性流体の異常流出の初期形状は、Sharkskin以外にしわの場合も存在する。さらに作動条件によってプラグを伴う場合もある。プラグを伴う場合にはSharkskinに移行するずり速度がプラグを伴わない場合より小さい。なお、文献(1)を参照すれば、しわの発生がかならずしもSharkskinの前段階ではなく、ずり速度の増加とともに滑らかな正常流出へ移行する場合もある。

これらの諸現象を説明するためには、原料のもつ諸特性(物性値)を知ることと構成方程式の確立が不可欠であることを知らされたわけである。

4. 結 論

粘弾性流体(LDPE)をノズルより押し出し、正常流出から異常流出に変化する際の流出物の表面形状はしわの発生であり、作動条件が同じでも温度の履歴により2とおりの形状となる。

(1) その1は、しわにそれよりはるかに深い構(プラグと呼んだ)が周期的に発生する現象である。

(2) その2は、しわが周方向に局所性をもって発生する現象である。

(3) (1)、(2)より記憶効果の存在が示唆される。

文 献

- (1) 牧博司・小川信夫・塙康弘・ほか2名, 機論, 57-539, B (1991), 2247-2253.
- (2) Lin, Y. H., *J. Rheol.*, 29-6(1985), 605.
- (3) Lupton, J. M. and Regester, R. W., *Polym. Eng. Sci.*, 5 (1965), 235.