論文

Analysis of Irregular Dispersion of Carbon Black into
Polymeric Material in an Oval Type Mixer

by

Shinzi HASHIZUME

*Mechanical Engineering Research Laboratory, Kobe Steel LTD.,
1-3-18 Wakinohama-cho Chuo-ku, Kobe 651*

The dispersion behavior of particles added to polymeric materials in an oval-type mixer was investigated; to examine how the material quality correlates with two processes: 1) all material passes through the tip region of the rotor at least once during mixing, 2) irregular flow behavior in the initial period of mixing disappears. Irregular flow had been analyzed in previous studies in relation to a “breaking phenomenon” in which all of the highly viscous and undispersed material remaining on the rotor surface suddenly breaks and flows out through the tip region of the rotor. Also optimum mechanical dimensions for an oval rotor were evaluated by studying these effects. The dispersion levels for carbon black added to low-density polyethylene were measured under various mixing conditions in an oval-type twin-rotor mixer. A critical point was discovered in the relationship between dispersion level and specific energy charged to the material; there the energy efficiency drops suddenly. The total number of rotor revolutions required to reach this critical point was compared with that for the “breaking phenomenon”. The latter was calculated by estimating the passing rate of remaining material through the tip region of the rotor. Both numbers were in close agreement. An optimum tip clearance for dispersion of added particles was then calculated by maximizing a dispersion parameter, which indicates the energy charged to the remaining material passing through the rotor tip region. Subsequent experimental results confirmed the calculations. From these analyses, a scale-up rule for optimum tip clearance was developed.

Key words: Oval-type mixer / Irregular flow / Dispersion efficiency / Optimum operation

オーバル形混練機における高分子材料へのカーボン
ブラックの不規則分散過程の解析

橋 爪 慎 治*

(原稿受理：1986年10月15日)

1. 緒 言

高分子材料の混練は高分子加工における重要な過程の一つである。高分子材料中に混入される添加剤をより小さく破碎し、均一に分配して所定の分散状態とする最終目的を達成するために、消費されるエネルギーがより少ないこと¹⁾、および部分劣化などの混練過多現象が生じないことが望まれる。

一般の混練機では、混練の過程でまた混練機内の場所によって、不均一な混練作用が発生する^{2~4)}、特に混練初期のロータフロント部に未溶融固着層が発生する^{5),6)}、および閉塞流動領域またはロータチップ部からの未流出領域が発生する⁷⁾など、不均一混練現象が生じることが示され、分散品質の向上に支障となる可能性があった。そうした不均一混練現象は、混練初期の段階において材料が固体的挙動を強く示す時、あるいは材料内の温度分布が大きい時生じることがわかった。分散品質の評価法は、平均品質評

* (株)神戸製鋼所 機械研究所 〒651 神戸市中央区脇浜町 1-3-18

価法によらず最悪品質評価法^{8),9)}によっているため、特に混練作用のこうした不均一性を詳細に解析する必要が生じた。

混練機を用いてプラスチック、ゴムなどの高分子材料にカーボンブラック粒子を分散させる目的の混練を行う時、混練中のトルク値の経時変化に第2のトルクピークが発生することが報告されている^{10~12)}。このトルクピークまでの領域は、材料に加えられるエネルギーに対する分散性向上度が、その後の領域に比べて大きいこと、およびこのトルクピーク発生後に、ほぼ目標に近い分散水準に達することがわかった^{13),14)}。この現象なども品質向上度が消費されたエネルギーに比例しない分散特性を示し、その主要因は不均一混練であると考えられた。このように混練過程における分散品質の向上過程は、混練操作により発生する種々の物理量の内、単一要素のみに比例しない複雑な要因をもっている。

第1報⁵⁾および第2報⁶⁾（以下第1報、第2報とする）には、流動解析の基本となる材料内発生圧力の解析を通じて、混練初期の不均一混練現象を解析し、第3報⁷⁾（以下第3報とする）には、そうした不均一現象下で全材料が少なくとも一度、高せん断応力の発生するロータチップ部を通過する条件について解析した。

添加剤を破碎した後、これを均一に分配することによって、分散品質は向上する^{15~18)}。したがって、分散を目的とする混練では少なくとも添加剤の破碎作用を優先させなければならない。全材料が最低1回チップ部を通過する条件は、全材料が最低1回の破碎作用を受けることであり、分散性向上に特に効果的であると考えられた。

一方、混練機で添加剤を配合した高分子材料を混練する際、品質向上に最適なチップクリアランス値が存在することが報告されている^{8),19)}。こうした最適機械条件は、上記の混練の不均一性の解消およびチップ通過条件の影響を受けると考えられた。

本論文では、オーバル形2軸混練機を用いて、低密度ポリエチレン（以下 LDPE と略記する）にカーボンブラック（以下 CB と略記する）を分散させる混練において、全材料が最低1回チップ部を通過する条件と分散品質との関係を解析する。更に混練初期に発生する不均一性の解析を通して、最適機械条件を評価する。

2. 実 験

2.1 試料

形状がペレット状である2種類の市販の LDPE を用いた。それらは宇部興産製で、グレード C-100 ($MI=0.3$) およびグレード F-522 ($MI=5.0$) である。混入する CB は、キャボット製バルカン9A-32を用いた。試料はすべて LDPE と CB の重量比が74対26の配合とした。上記の種類の LDPE に対する混合物を、前者に対し試料A、後者に対し試料Bと呼ぶ。試料A、Bに対するニュートン粘度 μ_0 の実験式は次のとおりである。

$$\text{試料A: } \mu_0 = 0.22 \exp\left(\frac{2039}{T_0}\right) (\text{g} \cdot \text{sec}/\text{cm}^2) \quad (1)$$

$$\text{試料B: } \mu_0 = 0.11 \exp\left(\frac{2705}{T_0}\right) (\text{g} \cdot \text{sec}/\text{cm}^2) \quad (2)$$

ただし、 T_0 は材料の絶対温度である。

2.2 装置

Fig. 1 に示すパッチ形2軸混練機を用いた。本装置は異方向

Fig. 1 Sectional view of model internal mixer with twin oval-type rotors; (1) to (4) indicate rotor, chamber, floating weight, and connecting gear box, respectively.

Table I Rotors used in the experiments.

Angle between rotor and chamber degree	Tip clearance level cm		
	0.1	0.3	0.6
5		No. 1 rotor	
15		No. 2 rotor	
30	No. 4 rotor	No. 3 rotor	No. 5 rotor

回転非噛合オーバル形混練機であり、ロータ表面上のウイング（オーバル断面の突出部）はロータ軸方向に捉られていず、材料が軸方向に流動しない構造である。したがって、材料はロータ軸に垂直な平面上のみを流動した。各部の寸法は次のとおりである。 D (チャンバ径) = 76.2mm, l (チップランド長) = 5mm, x_e (ロータフロント部に溜まる材料がロータ、チャンバ間一杯に存在する限界までのチャンバ面上長さ) = 72mm, W (ロータ軸方向長さ) = 80mm。以上の値は次に示す各ロータおよび各実験条件で一定である。実験に用いたロータは5種類で、Table I に詳細を示す。これらは、チップクリアランス値 h_0 とロータフロント部の喰込角 θ を異にしている。

2.3 方法

LDPE と CB の混合物の所定量を、Fig. 1 に示す混練機に投入し混練した。ロータ、チャンバは実験前に50°Cに保っておき、実験中は自然放冷した。実験条件は、Table I に示す各ロータを用いて、試料を2水準、チップクリアランス値を3水準、ロータ喰込角を3水準およびロータ回転数 N を4水準 (400, 600, 750 および 900rpm) 設定した。この中で $h_0=3\text{mm}$, $\theta=30^\circ$ および $N=750\text{rpm}$ を基準条件とした。これらの実験条件各々に対し、混練時間 t を変化した数回の実験を行った。

混練実験を完了した直後に、サンプルの温度をサーミスター温度計により実測した。混練時間のみ変化した実験の測定値から、材料温度の経時変化を求めた。一方、各条件で混練したサンプル

について、 CDI 評価法^{8),9)}を用いてそれぞれの CB 分散品質を評価した。 CB 分散品質の評価法は、ASTM D2663-69 に規格化されているが、 CDI 評価法は実用的な評価方法である。これは CB 分散品質を示す指標として、式(1)に示す CDI (Carbon Dispersion Index) 値を用いるもので、この値が小さいほど良分散品質である。

$$CDI = D_1 \sum_{i=1}^n \left(\frac{D_i}{D_1} \right)^2 \cdot a_i \quad (1)$$

ただし、 D_1 は $5\mu m$ 以上の凝集 CB の直径、 a_i は同一直径 CB の個数を示す。本評価方法の詳細は別に報告されている^{8),9)}。

一方、各混練実験から消費エネルギーを測定し、同一条件で無負荷時の機械損失を求めて、正味の消費エネルギーを算定した。比エネルギー E_{sp} は、この正味の消費エネルギーを、混練された材料の全重量で除した値であり、 $kW \cdot hr/kg$ の単位をもつ。

2・4 結果

試料Aに対し、基準条件および基準条件と回転数のみを変化して測定した混練材料温度の経時変化を、Fig. 2 に示した。

試料Bに対し基準条件、および試料Aに対し基準条件を含む h_0 の3水準および N の4水準による実験条件から得られた CDI 値と E_{sp} の関係を Fig. 3 に示した。

いずれの条件においても、 $E_{sp}=0.95$ 近傍において、その前後で分散品質向上率が極端に変化する点が現れる。この変曲点における CDI 値を、特に $UCDI$ (Ultimate CDI) 値と呼ぶ。 $UCDI$ 点の発生前領域では、 E_{sp} に対する CDI 値の減少、すなわち分散性向上のエネルギー効率が高く、発生後領域では効率が低い結果を得た。しかも後者領域で、いずれの条件においても、上記効率がほぼ等しい結果を得たことから、 $UCDI$ 値が混練による CB 分散品質を決定する大きな要因となることが予想される。

Fig. 4 に、標準条件を用いて試料A, B, および比較のため

Fig. 2 Material temperature profile measured through experimental mixing under various rotor speeds for No. 3 rotor shown in Table I.

Fig. 3 Experimental relationship between CDI (Carbon Dispersion Index) and specific energy, E_{sp} ; LDPE with MI value of 0.3 was mixed with carbon black under various rotor speeds in Nos. 3, 4, and 5 rotors shown in Table I.

Fig. 4 Relationship between $UCDI$ (Ultimate Carbon Dispersion Index) and MI value of LDPE under the standard experimental mixing condition, that is, the mixing condition in No. 3 rotor at 750 rpm.

に $MI=2.0$ の $LDPE$ (宇部興産製、グレード F222) に対して得た $UCDI$ 値を示した。 MI 値は材料粘度の指標であり、高粘度物質ほど $UCDI$ 値が小さくなる、すなわち良分散結果となることがわかる。

Fig. 5 に、標準条件を用いて試料A, Bを用いた実験で測定された h_0 と $UCDI$ 値の関係を示す。いずれの場合にも $UCDI$ 値が最小値を示す、すなわち最高の分散水準を示す h_0 値が存在する。

Fig. 6 に、標準条件下、試料Aを用いた実験から得られた θ と $UCDI$ 値の関係を示す。 θ の減少に伴って分散水準は向上するが、

Fig. 5 Relationship between $UCDI$ and tip clearance, h_o , during LDPE mixing with carbon black under the standard experimental condition shown in Fig. 4; MI values for LDPE were 0.3 and 5.0.

Fig. 6 Relationship between $UCDI$ and angle θ at the front face of the rotor during LDPE mixing with carbon black under the standard experimental condition shown in Fig. 4.

しかし混練機内の混練空間が少なくなる結果をもたらしている。一般に $\theta = 20 \sim 30^\circ$ とされ、この理由は品質の向上と生産量の低下という相反する利害の上に立って、より経済的な生産性をねらった結果であると考えられている。

Fig. 7 は、Fig. 3 に示した E_{sp} と CDI の関係を、材料温度 T_o と CDI の関係として表した。第3報に示したように、閉塞形流動から開放形流動へ移り変わる条件が、LDPE では材料温度が融点近傍の 120°C であるということを用いて、試料Aに対する Fig. 2 および Fig. 7 の実験結果を用いて、材料温度が 120°C の時点から、 $UCDI$ 値が生じるまでの時間における、ロータ

Fig. 7 Experimental relationship between CDI and material temperature, T_o , during mixing in No. 3 rotor at various speeds.

の総回転数 N_0 を求めた。その結果、基本条件、およびロータ回転数のみを $N=450\text{rpm}$ に変化させる二つの条件で、 $N_0=400$ 回転および 398 回転という結果を得た。

3. 考 察

Fig. 8 に、オーバル形混練機内で混練される材料挙動の解析モデルを示した。本モデルは、オーバル形混練機のロータとチャンバの作る材料流動空間をモデル化したものであり、詳細は第1報に報告してある。Fig. 8 に示すモデル内の代表的な3断面に、せん断応力の σ 方向分布を示した。最大圧力の発生する面より下流のロータ壁面近傍、とりわけロータチップ部表面近傍に、高せん断領域が発生する。したがって、チップ部空間を流出する材料の中で、ロータ壁近傍を流れる材料に大きなせん断力が付加され、この領域の材料中に混入している添加剤粒子の破碎が進行することによって、分散水準が向上することが予想される。第3報に解析したように、ロータフロント壁面に発生し添加剤の未分散領域である未流出領域の材料は、徐々にチップ部を通過するが、この時この流出材料はロータチップ部のロータ壁面近傍を流れる。したがって、オーバル形混練機では添加剤の破碎が進んでいない未分散領域の優先分散が図られることになる。

未流出領域の材料が少しでも残存すると分散品質は極度に低いこと、またこの領域の消滅が分散程度を極度に向上させることが予想される。第1報に示したブレーキング現象は、現象的に見た未流出領域消滅現象である。したがって、ブレーキング現象が発生するまでの混練では、未分散領域範囲を減少させ最後にこれを消滅させる、すなわち領域面積にかかわる分散方法であり、ブレーキング現象発生後は、細かく破碎された添加剤粒子を均一分配する、すなわち全体の水準にかかわる分散方法であることがわかる。Palmgren¹⁵⁾の説明する分散過程は、大きく破碎工程主導形と単純混合主導形とに分けて考えることができ、ブレーキング現象は両工程の強さの逆転する境界であると考えられている²⁰⁾。そこで以下に、ブレーキング現象の発生条件と $UCDI$ 点の発生条件

Fig. 8 Geometric model for the analysis of material flow in an oval-type mixer, and pressure distribution analyzed by using this model; Shear stress distributions in three typical sections are indicated. (1) to (5) indicate rotor, chamber, polymeric material, pressure distribution, and shear stress distribution, respectively.

Fig. 9 Theoretical h_i/h_o distribution vs. material temperature, T_o , under the standard experimental condition shown in Fig. 4. Solid and broken curves represent the results for LDPE with MI values of 0.3 and 5.0, respectively.

の関係を求める。

第3報で、ラッセル現象後の流入層厚さ y_1 が次のように表されることを示した。すなわち、

$$y_1 = K_1 \frac{\mu_0^2 U}{\left[-\left(\frac{dP}{dx} \right)_{x=x_0} \right]} \quad (3)$$

一方、 y_1 点を通過する流線 (yh 流線と呼んだ) のロータチップ部における y 値である h_1 は、 α を含む y_1 の3次式で示された。

$$h_1 = f(\alpha, y_1) \quad (4)$$

混練材料温度の経時変化から、式(3)、(4)を用いて解析した h_1 の

理論曲線を、試料Aについて標準条件および $N=450\text{rpm}$ のみ変化した二つの条件、また試料Bにおける標準条件について Fig. 9 に示した。一方、未流出領域材料がかき取られた材料によって混合材料となる薄められ率として、第3報で解析の結果得られた $\beta=0.05$ を、以下の解析においても用いた。ロータチップ部において、 y 方向に h_1 から h_0 までの空間を流動する流量を Q_1 とし、この流量の内の未流出領域材料の時間積分値を Q_s とすると、次の関係が得られる。

$$Q_s = \int_{t_1}^t \beta Q_1 dt \quad (5)$$

ただし、 $t=t_1$ は未流出材料がチップ部流出を開始する時間であり、この時の材料温度は 120°C である。未流出領域材料の全量を Q_0 とすれば、 $Q_s=Q_0$ となる時がブレーキング現象の生じる時である。この時式(5)を満足する t 値を t_2 とする。したがって、未流出領域材料がロータチップ部を流出し始める時から流出し終える時までの時間 t_2-t_1 の間で、ロータの総回転数 N_0 は次のようになる。

$$N_0 = (t_2 - t_1) N \quad (6)$$

試料Aに対し、式(6)を用いた N_0 の理論解を、ロータ周速度 U の関数として、Fig. 10 に示した。前記の結果の項で述べた N_0 の実測値も Fig. 10 に示してあるが、両解析値はほぼ一致する。すなわち、UCDI 値の発生する条件は、ブレーキング現象の生じる条件と一致する。したがって、UCDI 点までの分散性向上に対するエネルギー効率の高い現象は、未分散 CB 粒子が順次破碎されることにより、かつ未分散領域が減少することにより生じることがわかる。更に未流出領域内の全材料がチップ部を通過し終える条件が、CB 分散水準を極度に向上させる条件となる。したがって、前記の高分子材料中への CB 分散の混練において現れる第2のトルクピークの発生も、ブレーキング現象と同一現象である可

Fig. 10 Theoretical and experimental relationships between rotor speed, U , and total number of revolutions, N_o , required to pass all material remaining at the front face of the rotor through the tip region. Solid curve represents theoretical solution and open circles represent experimental results.

能性が生じ、今後詳細な解析が必要であると考える。

Fig. 3 から、 $UCDI$ 値の発生する条件が、試料および混練条の違にかかわらず、 $E_{sp}=0.95$ 近傍であることがわかる。高粘度材料の方が短時間で $UCDI$ 点に達することから、チップ部に発生するせん断応力値は大きくなる。添加剤粒子の破碎現象は、せん断応力依存性が強いことから、添加剤粒子がチップ部を通過し終える条件と比較すると、高粘度材料の方が $UCDI$ 値が小さい、すなわち良分散値を示すと考えられる。この考えは、先に示した Fig. 4 の結果に合うものである。ところが、Fig. 3 および 5 の結果から、 h_0 値などの機械的条件によるせん断応力からは、 $UCDI$ 値に関する前記結果を説明できない。そこで以下に示す解析を行った。

上に示したように、未流出領域の減少が、添加剤の分散を向上させる要因となることが解明されたので、次に示す分散パラメータ⁹⁾ E_d を用いる。

$$E_d = \tau_i \cdot Q_i \quad (7)$$

ただし、 τ_i は未流出領域材料を含む混合材料がチップ部を通過する流出層の平均せん断応力である。 Q_i については既に述べた。式(7)に示す分散パラメータは、ロータチップ部から流出する未流出領域材料に付加されるエネルギーに比例する量である。

Fig. 8 に示したモデルを用いた流動解析から、 $\mu_i \dot{\gamma}_i$ および Q_i は次のように与えられる。

$$\tau_i = \frac{U}{h_0} \mu_0 + \frac{P_0}{6l} (2\alpha h_0^2 + 3h_i) \quad (8)$$

$$Q_i = \frac{U}{2h_0} (h_0 - h_i)^2 + \frac{P_0}{36\mu_0 l} \{ (3h_0^3 - 9h_0 h_i^2 + 6h_i^3) + \alpha(h_0^4 - 6h_0^2 h_i^2 + 8h_0 h_i^3 - 3h_i^4) \} \quad (9)$$

ただし、 P_0 はロータフロント側チップエンド点における材料圧力であり、次式で与えられる。

$$P_0 = \frac{6l\mu_0 U \left\{ 2\alpha \log \frac{h_e}{h_0} + 2(1 - \alpha h_0) \left(\frac{1}{h_0} - \frac{1}{h_e} \right) - h_0 \left(\frac{1}{h_0^2} - \frac{1}{h_e^2} \right) \right\}}{2l \tan \theta + h_0^3 \left\{ \left(\frac{1}{h_0^2} - \frac{1}{h_e^2} \right) + \alpha \left(-\frac{1}{h_0} - \frac{1}{h_e} \right) \right\}} \quad (10)$$

試料Aについて材料温度185°C、 $N=750\text{rpm}$ という条件下で、 h_0 に対する E_d 値をいろいろの θ に対して求め Fig. 11 に示した。ただし、 h_i/h_0 値の h_0 に対する実験式として次を用いた。

$$\frac{h_i}{h_0} = 1 - \frac{\mu(120) - \mu(T_0)}{\mu(120)} \exp(h_{00} - h_0) \quad (11)$$

ただし、 $\mu(T_0)$ は材料温度 T_0 の時の粘度を示し、 h_{00} は基準となるチップクリアランス値を示す。Fig. 11 の結果から、各 θ に対して E_d 値の分布中に最大値を示す点があり、 E_d を最大値とする最適なチップクリアランス値が存在することがわかる。Fig. 5 の実験結果、すなわち試料Aに対し $\theta=30^\circ$ における $UCDI$ 値を最小値とする h_0 値 3.0mm と、Fig. 11 に示した同一条件下における理論値は一致した。一方各 θ に対して、 E_d 値の最大点を結んだ曲線、すなわち Fig. 11 の曲線(1)は、分散条件を最適とする (θ, h_0) の組み合わせを示すものである。以上のことから、分散を目的とする混練を行う場合、材料特性および h_0 を除き θ を含めた機械的条件が決まると、これに対する最適チップクリアランス値が存在し、この値は分散パラメータ E_d に基づいて求められることがわかる。

Fig. 11 Dispersion parameter, E_d , from the analysis of equation, 7 vs. tip clearance, h_0 , for various θ levels; (1) indicates curve of the maximum points from the E_d profile at various θ levels.

Fig. 12 Optimum tip clearance, h_0 , vs. angle θ at the front face of the rotor, for various mixer sizes.

一方、 θ が小さいほど分散性向上が図られるという理論解析結果は、Fig. 6 の実験結果と一致する。しかし、これは前に述べたように、経済的效果から評価する必要がある。更に、式(8)に示す $\mu_i \dot{\gamma}_i$ 値は平均せん断応力を示し、各混練条件に対するこの値が、 $UCDI$ 値そのものを決定する要因であると考えられる。

次に、上に解析した最適チップクリアランス値の、スケールアップ^{21~24)}について考察した。Fig. 11 の曲線(1)で求めた最良分散状態を得るための θ と、 h_0 との関係を、混練機のサイズを変えて解析した結果を Fig. 12 に示す。最適チップクリアランス h_0 に対するスケールアップ則として、次式が得られる。

$$h_0 = \left(\frac{R}{R_0} \right)^{0.5} \cdot h_{00} \quad (12)$$

ただし、 R はロータ径でスケール因子である。添字 0 はスケールアップする基準条件を示す。一方、混練物の量に対する発熱量の比を一定に保つ条件として、ロータ周速度を次に示すスケールアップ則に従うと仮定する。

$$U = \left(\frac{R}{R_0} \right) \cdot U_0 \quad (13)$$

この場合、 U/h_0 におよそ比例するせん断速度 $\dot{\gamma}$ が、式(12)および(13)から次のように求まる。

$$\dot{\gamma} = \frac{U}{h_0} = \frac{U_0}{h_{00}} \quad (14)$$

最適チップクリアランス値のスケールアップ則、すなわち式(13)は同時にせん断速度、あるいはせん断応力が一定となる条件であることがわかる。

一方、式(7)および(11)を用いて求めた材料温度と E_d 値の関係を Fig. 13 に示した。LDPE 中へ CB を分散させる目的の混練では、200°C 近辺に E_d の最大値が存在していて、この温度を越えると、 E_d 値は徐々に低下する。したがって、CB 分散混練では $UCDI$ 値に達するまで、すなわちブレイキング現象の生じるまでは、少なくとも材料温度を 200°C 近辺に抑えるべきである。すなわち、分散が目的の混練においては最適混練温度が存在する。一般に混練機を用いて添加剤の分散を目的として混練する場合、この最適混練温度を大きく越えないように、ロータおよびチャンバを冷却することが行われているが、これは上記の理由によると考えられる。

Fig. 13 E_d vs. material temperature, T_0 , for LDPE ($MI=0.3$) with carbon black under the standard experimental condition shown in Fig. 4.

4. 結 論

以上の解析を通じて次の結論を得た。

- (1) 低密度ポリエチレンにカーボンブラックを分散する目的の混練において、混練初期にロータフロント壁面に発生する高粘度の未流出領域、すなわち添加剤の未分散領域における材料すべてがチップ部を完全に流出する（ブレイキング現象の発生）までの過程で、カーボンブラックの分散品質は極度に向上し、エネルギー効率が高いこと、しかしこれ以後の過程では、この効率が低下し、しかも異なった材料および異なった実験条件下にこの効率がほぼ一定となることが確かめられた。すなわち、前者は破碎分散が主要因で、未分散領域面積の減少による分散性の向上、一方後者は単純混合分散が主要因で、全材料の品質水準向上によっていることがわかった。分散過程に重要な、全材料がチップ部を少なくとも一回通過する条件、およびその条件までに発生する不均一混練、さらに不均一分散の詳細を明らかにした。
- (2) ブレイキング現象の発生する点の分散品質水準 ($UCDI$) は、ロータチップ部に発生するせん断応力に依存した。一方、 $UCDI$ 値が最良となる機械的条件として、最適チップクリアランス値が存在することを明らかにした。これらの結果は、分散パラメータとして、未流出領域材料がチップ部を通過する時に受けるエネルギー $E_d = \mu_i \dot{\gamma}_i Q_i$ を理論解析することによって得られ、また解析の結果は実験により確かめられた。
- (3) 最適チップクリアランスは、ロータフロント部喰込角の関数であった。一方分散目的の混練において、最適混練温度が存在することがわかった。
- (4) 最適チップクリアランスのスケールアップ則として、スケール因子の比の 0.5 乗が得られた。これはチップ部を通過する未流出領域材料に付加されるせん断速度、およびせん断応力を一定とする条件である。

謝 辞

この論文作成にあたり、終始御指導いただいた京都大学医用高分子研究センター升田利史郎教授に厚くお礼申し上げます。また、本論文の公表を許可下さった小松博康機械研究所長はじめ小浜弘幸化学研究所長および会社幹部の皆様に謝意を表します。

文 献

- 1) Nakajima, N., *Rubber Chem. Technol.*, **55**, 931 (1982).
- 2) 橋爪慎治, 神戸製鋼技報, **24**(4), 96(1974).
- 3) 橋爪慎治, プラスチックス, **24**(7), 78(1973).
- 4) 橋爪慎治, プラスチックス, **29**(12), 25(1978).
- 5) 橋爪慎治, 日本レオロジー学会誌, **15**, 19(1987).
- 6) 橋爪慎治, 日本レオロジー学会誌, **15**, 26(1987).
- 7) 橋爪慎治, 日本レオロジー学会誌, **15**, 115(1987).
- 8) 井上公雄, 橋爪慎治, 福井二志, 浅井俊博, 神戸製鋼技報, **32**(1), 77(1982).
- 9) 橋爪慎治, 日本レオロジー学会誌, **13**(1), 16(1985).
- 10) Tokita, N., Pliskin, I., *Rubber Chem. Technol.*, **46**, 1166(1973).

- 11) Dizon, E.S., *Rubber Chem. Technol.*, **49**, 12(1976).
- 12) 志賀周二郎, 山田秀昭, 市川一郎, 日笠忠, 日本ゴム協会誌, **54**(9), 587(1981).
- 13) 森田 繁, 吉田誠志, 関 知明, 住友化学, (2), 61, (1979).
- 14) 井上公雄, 田仲秀基, 中谷隆夫, 神戸製鋼技報, **20**(3), 52(1970).
- 15) Palmgren, H., *Rubber Chem. Technol.*, **48**, 350(1975).
- 16) Mckelvey, J.M., "*Polymer Processing*", Chap. 12(1962). John Wiley & Sons, Inc., New York.
- 17) Bernhardt, E.C., "*Processing of Thermoplastic Materials*", Chapt. 7(1965) Reinhold Publishing, New York.
- 18) Funt, J.M., "*Mixing of Rubbers*", Chap. 3 (1977) RAPRA, U.K.
- 19) Manas-Zloczower, I., Nir, A., Tadmor, Z., *Rubber Chem. Technol.*, **55**, 1250(1982).
- 20) Gotten, G.R., *Rubber Chem. Technol.*, **57**, 121(1984).
- 21) Manas-Zloczower, I., Tadmor, Z., *Rubber Chem. Technol.*, **57**, 48(1984).
- 22) Funt, J.M., "*Mixing of Rubbers*" Chap. 4 (1977) RAPRA, U.K.
- 23) Funt, J.M., *Plastic and Rubber*, (11), 127(1977).
- 24) White, J.L., *Polymer Eng. Sci.*, **19**(11), 818(1979).