単軸スクリュ押出機における熱可塑性 プラスチックの溶融の促進

中村和之*・酒井忠基*

Melting Acceleration of Thermoplastic Materials in the Single Screw Extruder

Kazuyuki NAKAMURA and Tadamoto SAKAI

In this report, the melting behavior of thermoplastic materials has been investigated, which is important in the analysis of the plasticating performance of single screw extruder with forced feeding section. Screw removal experiments were carried out to observe the melting process of polypropylene and polyethylene. Based on these experimental results, an improved melting mechanism was utilized to accelerate the melting rate in the screw channel. The rapid melting of the solid bed is accomplished by conduction heat, viscous dissipation in the melt film and solid circulations caused by drag force and high pressure gradients. This improved melting mechanism was observed experimentally in the newly developed screw channel, which was different from Tadmor's melting model.

Key words : Extrusion/Single screw/Forced feeding/Plasticating behavior/Thermoplastics/Melting

1. まえがき

近年、単軸スクリュ押出しに対する低温、かつ高押出し量の要望が高まるにつれて、これに対処するスクリュを設計するためには、スクリュの溶融部における溶融速度を考慮することが不可欠となってきた。

溶融に関しては、コンベンショナルスクリュを使つての Maddock¹⁾ のスクリュ引抜き実験から得られた溶融モデルに基づいて Tadmor²⁾ が最初に溶融理論を提案して以来、飛躍的な進歩がなされてある程度理論解析が可能となっている。しかし、低温かつ高押出し量を達成しようとする、これらの溶融理論から明らかかなように、溶融不足によりその良質限界押出し量には限界があった。そして単軸スクリュの溶融能力の飛躍的な改善が望まれていた。

筆者らも、熱可塑性プラスチックの押出しにおける溶融過程のもつ役割に注目して、すでに単軸スクリュの溶融、混練過程の検討^{3)~7)} および二軸スクリュの溶融、混練過程の検討と溶融速度の推定方法について検討を行ってきた^{8)~12)}。そして、従来のミキシングスクリュでは達成できなかった良質限界押出し量の飛躍的な向上を目指して、単軸スクリュでの新しい機構による溶融の促進を図った。そして高能力単軸スクリュ押出機を開発して実用に供している¹³⁾。

本報では、単軸スクリュ押出機の可塑化押出し特性を解明するうえで重要な溶融挙動について検討し、これらを積極的に利用して溶融の促進を図り、良質限界押出し量を飛躍的に向上した結果を報告する。

2. 供試材料および実験装置

2.1 供試材料

実験には代表的な熱可塑性プラスチックとしてポリプロピレン (PP と略記) と、直鎖状低密度ポリエチ

* (株)日本製鋼所機械電子技術研究所
広島市安芸区船越南 1-6-1 (〒736)
1989.2.8 受理

Table 1 Physical properties of raw materials used

	PP (1)	PP (2)	LLDPE (1)	LLDPE (2)
Grade	NOBLEN FY 6	NOBLEN MA 8	ULTZEX 2020 L	ULTZEX 3520 L
Melt index* (g/10 min)	2.26	0.43	2.10	2.10
ρ_s (kg/m ³)	9.00×10^2	9.00×10^2	9.20×10^2	9.35×10^2
ρ_m (kg/m ³)	7.60×10^2	7.60×10^2	7.80×10^2	7.80×10^2
C_s (J/(kg·°C))	2.01×10^3	2.01×10^3	2.76×10^3	2.76×10^3
C_m (J/(kg·°C))	2.85×10^3	2.85×10^3	2.93×10^3	2.93×10^3
K_m (W/(m·°C))	1.80×10^{-1}	1.80×10^{-1}	1.80×10^{-1}	1.80×10^{-1}
T_m (°C)	165	165	128	128
λ (J/kg)	1.33×10^5	1.33×10^5	1.09×10^5	1.09×10^5

* PP : temp. 230°C, weight 2.16 kg ; LLDPE : temp. 190°C, weight 2.16 kg

Fig. 1 Apparent melt viscosity of polypropylene

Fig. 2 Apparent melt viscosity of linear low density polyethylene

レン (LLDPE と略記) の 2 種類を用いた。本実験に用いた物性値を Table 1 に示す¹⁴⁾。また、高化式フローテスタを用いて測定した熔融粘度を Fig. 1 と Fig.

Fig. 3 Schematic view of grooved feeding section

diameter : 65×10^{-3} m, number of grooves : 8, width : 6.5×10^{-3} m, depth : 5×10^{-3} m tapered groove, $L/D : 5$

2 に示す。

2.2 実験装置

本実験に用いた装置は、供給部シリンダの内側に Fig. 3 に示すような縦方向に 8 本の縦溝を加工した溝付きライナを設置した、強制フィード機構付き単軸スクリュ押出機である。シリンダの加熱冷却は加熱した油の循環で行い、溝付きライナ部は強制水冷できる構造としている。なお、本実験に用いたスクリュ形状を Fig. 4 に示す。

2.3 実験方法

押出し条件を設定し運転を開始した後、温度および圧力がともに安定し定常押出しの状態になった後、スクリュを急停止させるとともにシリンダの外側に低温の油を循環してシリンダを急速冷却し、定常押出し時の熔融状態を保ち、スクリュを引抜いてスクリュ溝内から固化したサンプルを切出す。切出したサンプルは、熔融過程を定量化するためにスクリュフライトに直角に切断して横断面を観察する。なお、熔融状態を明瞭に観察するため有機顔料を少量添加した。固体相比は固体相の断面積/スクリュ溝の断面積で定義した。また、シリンダの温度は、溝付きライナ部は全ての運転において強水冷し、PP の押出しにおいて溝付きライ

Fig. 4 Schematic view of single screw geometries

Fig. 5 Melting process of PP (1) in the (a) screw channel

Fig. 6 Melting process of PP (2) in the (b) screw channel

ナ直後のシリンダを 170°C、それ以降は全て 230°C に設定し、LLDPE の押出しにおいては全てのシリンダを 200°C に設定した。

3. 実験結果および考察

3.1 溶融挙動の観察

スクリュ溝内から切出した固化サンプルを切断して

Fig.7 Melting process of LLDPE (1) in the (d) screw channel

溶融挙動を観察した結果を、Fig.5～Fig.10 に示す。各サンプルの上がシリンダ面、下がスクリュ面、右が押付けフライト面、左がスクリュ先端側の引付けフライト面に相当する。図中の番号は、ホッパ下からスクリュ軸方向に測った位置 (L/D) を示す。また、図中白っぽい部分は、未溶融ペレットあるいはペレット同士がその境界を消滅させて溶融しているが、まだ十分混練されていない状態の未混練相を示す。一方、黒っぽい部分は、融体が顔料と十分に混練された状態の混練相を示す。

Fig.5～Fig.8 は、強制フィード機構と浅溝で多条フライトスクリュを組合わせた場合の PP と LLDPE の溶融挙動を示す。図から明らかなように、ホッパから投入された固体ペレットは固体輸送部の $5D$ 区間で予熱、圧縮された後、溶融を開始すると同時に固体相内で明瞭な境界を消滅させて変形しながら流動している。すなわち、固体相内にうず状の循環流れを発生しながら急速に溶融している。その区間はわずか数ターンである。一方、半溶融あるいは溶融した固体相と顔料は順次層流混合されているが、十分に混練された混練相の発達には主にシリンダ壁と固体相の界面で行われており、押付け側フライトの前方に融体プールを形成しながら順次その量を増加させている。なお、固体

Fig.8 Melting process of LLDPE (2) in the (e) screw channel

Fig.9 Melting process of PP (2) in the conventional (c) screw channel

Fig. 10 Melting process of LLDPE (2) in the conventional full-flight (f) screw channel

相は溶融を開始する初期の段階では圧密状態のため、その形を崩すことなく全体的に循環流れを発生しているが、スクリュ流路方向に進むに従って、融体の侵入を受けて破壊する傾向を示している。そして、未混練相は混練された融体中に浮遊しながら順次混練されている。

Fig. 9 と Fig. 10 は、強制フィード機構と比較的深溝の1条フライトスクリュを組合わせた場合の PP と LLDPE の溶融挙動を示す。図から明らかなように、ホッパから投入された固体ペレットは固体輸送部での予熱、圧縮が緩く、シリンダ壁と固体相の界面で溶融を開始した後でも、固体相はその境界を明瞭に示す冷たいペレットから形成されている。すなわち、前述の固体相の循環流れが最後まで出現しない。そして融体プールの発達も遅く、かつ固体相の溶融速度は遅い。

以上のごとく、従来のスクリュでは単に強制フィード機構を付けて固体輸送量を高める、あるいはスクリュ回転数を増して押し出し量を比例的に増加しても、スクリュでの溶融能力が不足して多量の未溶融物あるいは未混練相がスクリュ先端部で観察される。したがって、押し出し物の品質が著しく損なわれて、良質限界押し出し量も非常に限定される欠点があった。

一方、これらの溶融を促進するため、強制フィード機構と浅溝で多条フライトスクリュを組合わせて、ホッパから投入された固体ペレットを予熱、圧縮しながら高圧力で圧密して、溶融開始と同時に牽引力と圧力の相乗作用で固体相にうず状の循環流れを発生させ

Fig. 11 Experimental and predicted solid bed profiles along (a) screw channel for PP (1)
 $Q=4.19 \times 10^{-2} \text{ kg/s}$, $N=2.48 \text{ rps}$

Fig. 12 Experimental and predicted solid bed profiles along (b) screw channel for PP (2)
 $Q=3.81 \times 10^{-2} \text{ kg/s}$, $N=2.5 \text{ rps}$

ば、Tadmor の溶融モデルとは異なる溶融機構が形成されて溶融の促進が図れる。よって、良質限界押し出し量も飛躍的に向上する。

各スクリュにおける溶融過程を定量化して、Tadmor の溶融モデルから計算した溶融速度との比較を Fig. 11~Fig. 14 に示す。図中縦軸は、計算値の場合は固体相比 X/W を示すが、実測値の破線はペレットがその境界を消滅させてうず状の循環流れを開始する場合を示し、実線は混練相の発達過程を示す。なお、計算に用いた Tadmor モデルの溶融フィルムの厚さと溶融速度は次の通りである^{2),15)}。

$$\delta = \left\{ \frac{[2K_m(T_b - T_m) + U_1]X}{V_{bx}U_{20m}[C_s(T_m - T_s) + \lambda]} \right\}^{1/2} \quad (1)$$

$$\phi = \left\{ \frac{V_{bx}U_{20m}[K_m(T_b - T_m) + U_1/2]}{2[C_s(T_m - T_s) + \lambda]} \right\}^{1/2} \quad (2)$$

$$\omega = \phi X^{1/2} \quad (3)$$

$$\frac{X}{W} = \frac{X_1}{W} \left[1 - \frac{\phi(z - z_1)}{2\rho_s V_{sz} H X_1^{1/2}} \right]^2 \quad (4)$$

ここで、 U_1 と U_2 はそれぞれ溶融フィルムの厚さ、温度およびシリンダ温度の関数である。

なお、計算機は DEC 11/44 を使用した。

Fig. 11 および Fig. 12 から明らかなように、強制フ

Fig. 13 Experimental and predicted solid bed profiles along (c) screw channel for PP (2)
 $Q=4.11 \times 10^{-2}$ kg/s, $N=2.5$ rps

Fig. 14 Experimental and predicted solid bed profiles along (f) screw channel for LLDPE (1)
 $Q=4.44 \times 10^{-2}$ kg/s, $N=2.5$ rps

ード機構と浅溝で多条フライトスクリュを組合わせると、図中破線で示したように、ペレットがその境界を消滅させて溶融する速度は非常に速い。これは固体相の循環流れに起因するものである。また、混練相の発達も、Tadmor モデルから計算した一定溝深さのフルフライトスクリュの溶融速度よりも速い傾向を示している。

一方、Fig. 13 から明らかなように、低圧縮比で深溝の1条フルフライトスクリュでは PP ペレットの溶融速度は計算値より若干遅れて順次溶融している。これは、強制フィード機構によりスクリュ回転当たりの輸送量が溝なしシリンダに比べて約2倍程度大きいので、固くて冷たいペレットの固体相がスクリュ溝内を速く移動することに起因する。ここで Fig. 13 において計算に用いた押出し量は強制フィード機構付き押出機における実測値である。一方、Fig. 14 に示した比較的圧縮比の高い1条フルフライトスクリュでは

Fig. 15 Measured pressure profiles in the forced feeding single screw extruder

- (a) PP (2), $Q=3.81 \times 10^{-2}$ kg/s, $N=2.5$ rps, (b) screw (newly developed)
- (b) PP (1), $Q=4.19 \times 10^{-2}$ kg/s, $N=2.5$ rps, (a) screw (newly developed)
- (c) PP (2), $Q=4.11 \times 10^{-2}$ kg/s, $N=2.5$ rps, (c) screw (conventional type)

Fig. 16 Measured pressure profiles in the forced feeding single screw extruder

- (a) LLDPE (1), $Q=4.47 \times 10^{-2}$ kg/s, $N=2.2$ rps, (d) screw (newly developed)
- (b) LLDPE (2), $Q=3.72 \times 10^{-2}$ kg/s, $N=2.5$ rps, (e) screw (newly developed)
- (c) LLDPE (2), $Q=4.44 \times 10^{-2}$ kg/s, $N=2.5$ rps, (f) screw (conventional type)

LLDPE ペレットの固体相は LLDPE の融点が低く、かつシリンダ設定温度が高いため比較的軟化しやすく、計算値より若干速めに順次溶融している。

3.2 圧力分布の測定

強制フィード機構付き単軸スクリュ押出機における PP と LLDPE の圧力分布を、Fig. 15 および Fig. 16 に示す。

図から明らかなように、強制フィード機構と浅溝で多条フライトスクリュを組合わせると圧力勾配はスクリュ根元側が高く、そしてスクリュ先端側に向かって漸減する傾向を示している。これは、溝付きライナ部

で固体とシリンダとの見掛けの摩擦係数を高めてスクリュ溝内に固体ペレットを予熱、圧縮するため、熔融開始時の固体相が高压力状態にさらされることに起因する。しかし、この状態は固体相が熔融するにつれて次第に緩和される。そしてスクリュ溝内の圧力は減少していく。固体輸送部におけるペレットの予熱、圧縮過程は明らかでないが、シリンダ壁に形成された縦溝部において固体ペレットがブロックされ、内部摩擦とこのブロック効果によりスクリュ溝内にペレットが予熱、圧縮されているようである。一方、強制フィード機構と深溝1条フライトスクリュを組合わせた場合には、圧力勾配はスクリュ根元側が低く、そしてスクリュ先端側に向かって漸増する傾向を示している。これは、固体輸送部終端でのスクリュ溝内の固体ペレットの予熱、圧縮状態が弱いためである。

ここで固体輸送領域におけるペレットの圧縮に必要な圧力を推定する。Broyer らの固体輸送式によれば、固体相の圧力上昇は次の通りである¹⁶⁾。

$$P_2 = P_1 \exp \left[\left(\frac{B_1 - A_1 K}{B_2 + A_2 K} \right) z \right] \quad (5)$$

ここで A_1 , A_2 , B_1 および B_2 はそれぞれ、スクリュ形状、固体とスクリュおよびシリンダとの摩擦係数、固体輸送量等の関数である。

溝なしのシリンダに比べて、溝付きシリンダ部では固体とシリンダとの見掛けの摩擦係数は大きく、固体ペレットのブロック効果と内部摩擦とにより約2倍程度に増大するようである¹⁷⁾。上式に従って、本実験スクリュでの固体輸送部終端での圧力値を試算すると、容易に 30~40 MPa まで指数関数的に上昇することがわかる。試算例には次のデータを用いた。入力値は $D=65 \times 10^{-3}$ m, $H=0.6 \times 10^{-3}$ m, $e=0.4 \times 10^{-3}$ m, $m=3$, $Q/N=18.767 \times 10^{-6}$ m³/rev., $l=65 \times 10^{-3}$ m, $z=195 \times 10^{-3}$ m, $f_s=0.23$, $f_b=0.44$ (個体と溝付きシリンダの摩擦係数), $P_1=1$ Pa である。出力値は $P_2=393$ Pa であった。これらの高压力により、固体相の密度はこの供給領域で指数関数的に増大する。

圧縮段階でのペレットの予熱機構は明らかではないが、ペレットは融点近傍まで温度上昇するようである。そして熔融開始と同時に、強い粘性牽引力と高い圧力によって、ペレットは変形、流動し激しい内部摩擦発熱を伴ったうず状の循環流れを発生する。

この強制移動作用は、スクリュ溝横断面内における等温ニュートン流れに準じて発生する。すなわち、一定溝深さの矩形断面を有するスクリュ溝における x 方向の運動方程式は、

$$\frac{\partial P}{\partial x} = \eta_a \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} \quad (6)$$

で表される。ここで、 η_a は固体相の見掛けの熔融粘度とする。境界条件を $v_x(0)=0$, $v_x(H)=-V_{bx}$ として、上式を積分して整理すると次式が得られる。

$$\frac{v_x}{V_{bx}} = -\frac{y}{H} + \frac{y}{H} \left(\frac{1}{2\eta_a} \cdot \frac{\Delta P}{4x} \cdot \frac{H^2}{V_{bx}} \right) \left(\frac{y}{H} - 1 \right) \quad (7)$$

ここで溝断面内の正味の流量はゼロであるから、

$$\int_0^H v_x dy = 0 \quad (8)$$

となる。よって、次式が得られる。

$$\frac{\Delta P}{4x} = -6\eta_a \frac{V_{bx}}{H^2} \quad (9)$$

上式はスクリュ溝横断面内の圧力勾配を示す。 ΔP 値はスクリュ溝深さ H の2乗に反比例することを示している。すなわち、本実験に用いたような浅溝で多条フライトスクリュでは圧力勾配が大きく、溝横断面内の循環流れがより助長される。本実験において、スクリュ位置が 7.3 L/D での圧力の振れは 3~4 MPa であった。なお、牽引力は周速成分 V_{bx} である。この

Fig. 17 Melting mechanism
(a) conventional melting
(b) improved melting newly developed

Table 2 Plasticating performance of the single screw extruder with forced feeding section ($D=90 \times 10^{-3}$ m, $L/D=34$)

Material	Polypropylene	
	PP (1)	PP (2)
N (rps)	2.50	2.33
Q (kg/s)	0.107	0.096
T (°C)	242	262
E_{sp} (J/kg)	0.893×10^6	1.076×10^6
Sheet surface	Good	Good

Fig. 18 Experimental output as a function of screw speed for polypropylene

- (a) conventional screw with Maddock barrier, PP (2)
- (A) MF screw with forced feeding sections, PP (2) (newly developed)
- (b) conventional screw with Maddock barrier, PP (1)
- (B) MF screw with forced feeding sections, PP (1) (newly developed)

牽引力と圧力勾配の相乗作用により、固体相の循環流れが発生すると推定できる。

3.3 可塑化押出し特性

これまで研究開発してきた本機の特長である新規溶融機構を Fig. 17 に示す。図中 (a) は従来の溶融モデルを示し、(b) は本実験で観察された溶融の促進を図った溶融方式である。

この特長を利用して実際に食品トレー用シート押出し成形を試み、その可塑化押出し特性を把握した。その結果の一部を Table 2 に示す。Fig. 18 と Fig. 19 に、従来から幅広く利用されている Maddock 形スクリュと本研究の成果である強制フィード機構と浅溝で多条フライトスクリュ (MF 形スクリュと略記) の可塑化押出し特性の比較例を示す。

図から明らかなように、MF 形スクリュの回転当たりの押出し量は約 6.94×10^{-4} kg/s と大きく、したがって同一スクリュ回転数で比較すると約 1.5~2 倍の押出し量が得られた。また、良質限界押出し量も従来の 0.056 kg/s 程度であったものが 0.096~0.107 kg/s まで増大した。このような押出し量の増大により、押出し物の温度はこれまで用いられているスクリュに比べて、MF スクリュの方が 10~15°C 低い値を示し、低温押出しが可能であることが判明した。また、比エネルギーも MF スクリュの方が小さい値を示して 10% 程度の省エネルギーであった。なお、押出し物の均質性の目安であるダイ前の圧力および温度の変動幅⁷⁾は MF スクリュの方が約 1/3 に減少した。例えば、PP

Fig. 19 Experimental melt temperature as a function of screw speed for polypropylene

- (a) conventional screw with Maddock barrier, PP (2)
- (A) MF screw with forced feeding sections, PP (2) (newly developed)
- (b) conventional screw with Maddock barrier, PP (1)
- (B) MF screw with forced feeding sections, PP (1) (newly developed)

(1) の押出しにおいて押出し量は 0.107 kg/s、圧力変動は $\pm 0.7\%$ 、温度変動は $\pm 1.6^\circ\text{C}$ であった。このときのシート物性は良好であり、熱成形性 (真空成形および圧空成形) も良好であった。

4. む す び

単軸スクリュ押出機において、強制フィード機構付きシリンダと浅溝で多条フライトスクリュを使って PP および LLDPE の溶融挙動を観察した結果、次の結論を得た。

(1) 供給部溝付きシリンダによる固体のブロック効果と内部摩擦により、見掛けの固体-シリンダ摩擦係数を高めてスクリュ回転当たりの固体輸送量高め、かつ固体ペレットを予熱、圧縮した状態で溶融を開始すると、固体相内においてペレットがその境界を消滅させていくような循環流れが発生し、溶融が著しく促進される。その結果、高いせん断応力が発生し混練相の生成速度も著しく速くなることが明らかとなった。

(2) これらの溶融機構は従来の Tadmor の溶融モデルとは異なるものである。

(3) これらの溶融機構を採用したスクリュでは、従来のミキシングエレメントを設備したフルフライト形スクリュに比べて約 1.5~2 倍の押出し量と良質限界の向上を図ることができた。

5. 記 号

A_1, A_2 : (5) 式における係数

B_1, B_2 : (5) 式における係数

C_m, C_s : 融体および固体の比熱 $J/(kg \cdot ^\circ C)$
 D : スクリュ外径 m
 e : スクリュフライト幅 m
 E_{sp} : 比エネルギー J/kg
 f_b, f_s : 固体とシリンダおよびスクリュの摩擦係数
 H : スクリュ溝深さ m
 K : (5)式における係数
 K_m : 融体の熱伝導率 $W/(m \cdot ^\circ C)$
 L : スクリュ軸方向長さ m
 l : スクリュリード m
 m : フライト条数
 N : スクリュ回転数 rps
 P : 圧力 Pa
 P_1 : 固体相の初期圧力 Pa
 P_2 : 固体相の終端圧力 Pa
 Q : 押出し量 kg/s
 T : 温度 $^\circ C$
 T_b : シリンダ温度 $^\circ C$
 T_m : 融点 $^\circ C$
 T_s : 固体相の温度 $^\circ C$
 U_1, U_2 : (1)式および(2)式における係数
 V_{bx} : x 方向のシリンダ周速成分 m/s
 V_{sz} : 固体相の移動速度 m/s
 W : スクリュ溝幅 m
 X : 固体相の幅 m
 X_1 : 固体相の初期幅 m
 x : x 方向のスクリュ溝内流路長さ m
 y : y 方向のスクリュ溝内流路長さ m
 z : z 方向のスクリュ溝内流路長さ m
 (x, y, z) については下図参照

z_1 : z 方向の初期スクリュ溝内流路長さ m

$\dot{\gamma}$: セン断速度 s^{-1}
 δ : 溶融フィルムの厚さ m
 η_a : 見掛けの溶融粘度 $Pa \cdot s$
 θ : スクリュフライトのねじれ角 rad
 λ : 溶融潜熱 J/kg
 ρ_m, ρ_s : 融体および固体の密度 kg/m^3
 ϕ : (2)式における溶融速度を示唆する量
 ω : (3)式における溶融速度 $kg/(m \cdot s)$

参 考 文 献

- 1) Maddock, B. H.: *SPEJ*, **15**, 383 (1959)
- 2) Tadmor, Z.: *Polym. Eng. Sci.*, **7**, 185 (1966)
- 3) 酒井忠基, 中村和之: 高分子学会年次大会, **6** (1974)
- 4) 中村和之, 酒井忠基: 日本化学会中国四国・九州支部合同大会, **11** (1974)
- 5) 酒井忠基, 溝口光明, 中村和之: 日本化学会中国四国・九州支部合同大会, **10** (1980)
- 6) 酒井忠基, 中村和之: 高分子学会年次大会, **5** (1981)
- 7) 酒井忠基, 中村和之, 山本伸治: 高分子学会高分子討論会, **10** (1982)
- 8) 酒井忠基: 日本機械学会論文集, **47**, 1556 (1981)
- 9) 酒井忠基: 日本機械学会講演論文集, **817**, 2 (1981)
- 10) 酒井忠基: 日本製鋼所技報, **41**, 36 (1982)
- 11) 酒井忠基: 日本機械学会論文集, **48**, 1306 (1982)
- 12) 酒井忠基: 日本機械学会論文集, **49**, 156 (1983)
- 13) 中村和之, 田村豊治, 酒井忠基: 合成樹脂, **29**, 3, 25 (1983)
- 14) Mount, E. and Chung, C.: *Polym. Eng. Sci.*, **18**, 9, 711 (1978)
- 15) 溝口光明: プラスチックス, **24**, 7, 60 (1973)
- 16) Broyer, E. and Tadmor, Z.: *Polym. Eng. Sci.*, **12**, 1 (1972)
- 17) Rautenbach, R. and Langecker, G. R.: *Powder Tech.*, **12**, 179 (1975)