同方向回転二軸混練機のニーディングブロックにおける 非等温流動シミュレーションと混合性能評価

石川 健^{*1,*2}・木原 伸一^{*3}・船津 和守^{*3}・天野 太郎^{*2}

Numerical Simulation of Non-isothermal Flow and Evaluation of Mixing in Kneading Block of Co-rotating Twin Screw Extruder

ISHIKAWA, Takeshi^{*1,*2}/KIHARA, Shin-ichi^{*3}/FUNATSU, Kazumori^{*3}/AMANO, Taro^{*2}

We have been developed a three-dimensional non-Newtonian and non-isothermal flow simulation code of Twin Screw Extruder (TSE) using the finite element method. This code can simulate the fully filled part with several types of screw elements such as full flight screws, kneading blocks, rotors and their combinations. A marker particle tracking analysis has also been developed to estimate the stress, strain and temperature histories that polymer melts experience in the TSE. These results are expected to be useful data for understanding distributive, dispersive mixing and chemical reactions.

In this paper, simulations for the kneading blocks in a co-rotating TSE are carried out at rotational speeds of 200 and 400 rpm. The screw configuration is 2-lobe kneading block with 90° stagger and the number of discs is 10. The pressure and temperature distributions obtained by numerical simulations are verified by experimental observations. A marker particle tracking analysis is also carried out under the same operational conditions. A broader residence time distribution and a higher temperature history are obtained at high rotational speeds. We also discuss the effect of differences in the rotational speed of the TSE on the distributive mixing.

Key words : Twin screw extruder/Numerical simulation/Non-isothermal flow/Residence time distribution/Marker particle tracking

1. 緒 言

二軸混練機はその優れた混練性能や高吐出量により、ポリマー材料の混練装置として幅広く用いられており、ポリマー材料はこの装置内で熔融混練され、異種ポリマー、フィラー、また各種添加剤を混合・分散することにより高機能をもった材料へと進化する。この混練過程において化学反応を伴う場合を一般に反応混練と呼び、重合、グラフト反応、ポリマーアロイ等の開発、生産に盛んに利用されている。また最近では環境問題への関心の高まりから、ポリマー材料のリサイクル装置としても注目されている。このように二軸混練機の用途は多様であり、それぞれの目的に応じてスクリュ構成、回転速度等混練条件を最適化していく必要がある。このためコンピューターシミュレーションによる理論的研究の発展が以前にも増して強く求められてい

^{*1} 九州大学 大学院工学研究科 化学システム工学専攻
社会人博士課程
福岡市東区箱崎 6-10-1 (〒 812-8581)
Department of Chemical Systems and Engineering,
Graduate School of Engineering, Kyushu University
6-10-1, Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812-8581
Japan

^{*2} 三菱化学(株) 四日市事業所
四日市市東邦町 1 (〒 510-8530)
Mitsubishi Chemical Corporation, Yokkaichi Plant
1, Toho-cho, Yokkaichi 510-8530 Japan

^{*3} 九州大学 大学院工学研究科 化学システム工学専攻
福岡市東区箱崎 6-10-1 (〒 812-8581)
Department of Chemical Systems and Engineering,
Kyushu University
6-10-1, Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812-8581
Japan
1998.12.4 受理

る。しかしながら現在のところ、そのスクリュ形状の複雑さからか、十分満足のいく結果が得られているとは言えない。

二軸混練機のシミュレーションには大別して2種類の手法がある。一つはコンピューター負荷の小さい簡略化手法を用いる方法であり、White¹⁾, Meijer²⁾, Potente³⁾らにより行われている。これらは複雑なスクリュ形状を物理モデルで表現したり、また Flow Analysis Network (FAN) 法を組み合わせることにより多くのエレメントのつなぎ合わせた系を計算することが可能であり、最近ではフィードからダイスまで計算可能な市販コードも開発されている。しかしながらこの手法で得られるデータはあくまで回転周方向や半径方向の平均値であり、局所的な、また詳細な情報は無視される。また簡略化手法であるために形状が複雑になれば計算精度の低下は避けられない。もう一つの手法は簡略化を行わずに三次元形状を直接解く方法であり、Yang⁴⁾, Kajiwar⁵⁾, 劉⁶⁾らは有限要素法 (FEM) を用いて、また Kiani⁷⁾らはスペクトル要素法 (SEM) を用いて各種スクリュエレメントの解析を行っている。この手法は計算負荷が大きいものの解析精度が高く、また形状、スクリュ回転方向を問わず混練機内の詳細な情報の把握が可能である。さらには昨今のコンピューター処理速度の向上を鑑みても、筆者らは後者の手法が十分実用的に有効であると判断している。しかしながらこの方法においては現在等温解析しか行われておらず、混練の重要な因子である温度を定量化できていない。

以上のことから、筆者らは FEM を用いた完全充満部における三次元非等温非ニュートン解析コードを開発した。このコードは回転方向にかかわらず、フルフライトスクリュ、ニーディングディスク、ローター等各種スクリュエレメントとその組み合わせが解析可能である。またマーカー粒子追跡手法を組み合わせることにより滞留時間、ポリマーの受ける温度、応力履歴を定量化できる。これらの情報は分配・分散混合、化学反応を定量化する上で重要なデータとなりうる。

本論文では上記コードを同方向回転二軸混練機のニーディングブロック部に適応した。用いた混練機は日本製鋼所製 TEX 30 であり、ニュートラルニーディングディスク 10 枚、回転速度 200, 400 rpm を解析対象とした。これらのシミュレーション結果は圧力、温度分布の測定結果と比較し、いずれも良い一致を示すことを確認した。さらにマーカー粒子追跡を行い、滞留時間、またポリマーがニーディングブロックで受ける温度履歴を定量化した。また最近接マーカー粒子間距離を用いて混練性能の評価を行った。

2. 三次元非等温非ニュートン流動解析手法

2.1 支配方程式

二軸混練機内のポリマー流動を数値解析する場合、その流路形状の複雑さのみならず、スクリュの回転により境界条件が変化するため問題が一層複雑化する。高粘性であるポリマー流動の場合レイノルズ数が十分小さく慣性力が無視できるため、運動方程式中の Dv/Dt を省略することができる。このためある回転角度ごとに行った擬定常解析をつなぎあわせることにより、スクリュの回転を表現するのが一般的である⁴⁾。しかしながら非等温解析においてその温度分布が移流に支配されている場合、この擬定常仮定は問題となる。本解析の場合、せん断発熱と熱伝導の比であるプリングマン数が 10^2 オーダーと十分大きいいため、温度分布がせん断発熱に主に依存するものとして擬定常解析を適用した。もちろん回転速度が高い場合にはペクレ数も大きくなりこの仮定には問題があるが、本解析では後で述べる実験結果から判断して妥当な仮定であると思われる。

ポリマーを非圧縮性純粘性流体と仮定すると、連続の式、運動方程式は以下ようになる。

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (1)$$

$$-\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} = 0 \quad (2)$$

Fig.1 Flow diagram of 3-D non-isothermal flow analysis

(a) Finite element design

(b) Screw dimensions

Fig.2 Finite element design of kneading block of TEX 30 and dimensions

Table 1 Dimensions of 2-lobe kneading block

Barrel diameter	D (mm)	30.0
Screw tip diameter	D_s (mm)	29.2
Screw root diameter	D_r (mm)	11.0
Centerline distance	C_L (mm)	26.0
Disk width	W (mm)	7.8
Disk gap	δ_s (mm)	1.5
Stagger angle	Ψ (deg)	90
Number of discs	N_D	10

Table 2 Process conditions

Barrel temperature	T_B (°C)	200
Rotational speed	N (rpm)	200, 400
Flow rate	Q (kg/h)	15

Table 3 Flow boundary conditions

Inlet cross section	Constant flow rate (15 kg/h)
Barrel inner surface	No slip
Screw surface	Tangential velocity by screw rotation
Outlet cross section	Outflow

T_a : 基準温度である。本解析では速度場と温度場を別々に解き、粘度の非ニュートン性と温度依存性が収束するまで計算を繰り返した。ここで速度場は一般的な Galerkin 法により、また温度場は Streamline-Upwind/Petrov-Galerkin (SUPG) 法⁸⁾を用いて離散化した。ここで用いた有限要素は 6 面体 27 節点の 2 次要素である。本数値解析手法のフローチャートを Fig.1 に示す。

2.2 数値解析条件

TEX 30 のミキシングエレメント部すなわちねじれ角 90° ニュートラルタイプのツーチップニーディングブロック、ディスク 10 枚分を解析対象とした。メッシュ分割とスクリュディメンジョンをそれぞれ Fig.2 と Table 1 に示す。Fig.2 では噛み合い部形状が明らかになるように、メッシュの一部分を取り除いて表示した。また入り口境界条件の影響を低減するために、ダミーメッシュを装着した。

TEX 30 の運転条件を Table 2 に示す。ここでバレル温度はバレル内部に装着したヒーターの設定温度であり、樹脂温度とは若干異なる。回転速度は 200, 400 rpm であり、押出量は回転速度によらず 15 kg/h 一定とした。

Table 3 に流動解析に用いた境界条件を示す。こ

ここで、 $\mathbf{v}$ は速度ベクトル、 p は圧力、 $\boldsymbol{\tau}$ は応力テンソルである。またエネルギー方程式は、密度を ρ 、温度を T 、比熱を C_p 、熱伝導率を k とすると、

$$\rho C_p \mathbf{v} \cdot \nabla T = k \nabla^2 T + \boldsymbol{\tau} : \nabla \mathbf{v} \quad (3)$$

となる。ポリマーの熔融粘度を表す構成方程式には Carreau モデルを用い、その温度依存性は Arrhenius 式で表現した。

$$\boldsymbol{\tau} = 2\eta \mathbf{D} \quad (4)$$

$$\eta = H(T) F(\dot{\gamma} H(T)) \quad (5)$$

$$\dot{\gamma} = \sqrt{2\mathbf{I}_D} \quad (6)$$

$$F = \eta_0 [1 + \lambda_c^2 (2\mathbf{I}_D)]^{(n-1)/2} \quad (7)$$

$$H(T) = \exp[-\beta(T - T_a)] \quad (8)$$

ここで、 $\mathbf{D}$: 変形速度テンソル、 η_0 : 零せん断粘度、 λ_c , n : Carreau モデルパラメーター、 $\mathbf{I}_D$: 変形速度テンソルの第二不変量、 β : Arrhenius 式パラメーター、

Table 4 Temperature boundary conditions

Dummy mesh	Constant temperature 208, 216°C at 200, 400 rpm
Barrel inner surface	Heat flux : $q = h(T - T_a)$ $h = 3000$ (W/m ² K) T_a = Inlet cross section temperature
Screw surface	Adiabatic
Outlet cross section	Adiabatic ($dT/dz = 0$)

Fig.3 Sequential geometries representing a quarter of rotation cycle

でダミーメッシュ端面である入り口断面に一定流量を、またスクリュ面にはスクリュ回転による接線速度を与えた。また Table 4 に温度解析に用いた境界条件を示す。入り口ダミーメッシュ部には実測で得られた入り口温度を、バレル面には熱伝達境界を、またスクリュ面と出口には断熱境界を与えた。

スクリュの回転による境界条件の変化であるが、対称性を考慮して、回転角 α を 3° ごとに回転させた計 30 種類 (Fig.3) を計算することで対処した。ここで α とは Fig.3 に示すように X 軸とチップ先端との角度のことである。

2.3 材料物性

Fig.4 に今回用いた材料である三菱化学社製ホモ PP の粘度データと Carreau モデルによるフィッティング結果を示す。粘度データはメカニカルスペクトロ

Fig.4 Viscosity curve of polypropylene and curve fitted results by Carreau model

Table 5 Material data of polypropylene

Carreau model param.	λ	2.15
Carreau model param.	n	0.38
Zero shear rate viscosity	η_0 (Pa·s)	26470.0
Arrhenius' law param.	β (1/K)	0.02
Reference temp.	T_a (K)	200.0
Density	ρ (kg/m ³)	735.0
Specific heat	C_p (J/kgK)	2100.0
Thermal conductivity	k (W/mK)	0.15

メーター Rheometric RMS-800 とキャピラリレオメーター Goettfert Rheograph 2002 により測定した。Table 5 にフィッティングに用いたパラメーターの値および計算に用いた PP の熱物性値を示す。

3. マーカー粒子追跡手法

二軸混練機の特性を理解するためには瞬間的かつ局所的な速度場や応力場では不十分であり、混練機内部での履歴を評価する必要がある。その有効な手段となりうるのがマーカー粒子追跡であり、混練機中に仮想的に配置したマーカー粒子の動きを追うことにより滞留時間分布、応力・温度履歴等が定量化できる⁶⁾。またこの手法は数値流体力学の可視化分野で盛んに行われており、本解析もその分野の研究者である Kenwright らの方法⁹⁾に基づくものである。ここでマーカー粒子に関して以下の仮定が成り立つものとしている。

- ・マーカー粒子は体積、質量をもたない。
- ・マーカー粒子間の相互作用は無視する。
- ・マーカー粒子の動きは流体の速度場のみに支配さ

れる。

3.1 マーカー粒子追跡手法のアルゴリズム

本手法のアルゴリズムを以下に示す。

- 1) マーカー粒子を適当な位置に初期配置する。
- 2) マーカー粒子の存在する要素を特定する。
- 3) 前節で用いた手法により計算した速度場を用い、マーカー粒子の受ける速度ベクトルを求める。
- 4) 次式を積分することにより次タイムステップのマーカー粒子位置 $\mathbf{r}(t+\Delta t)$ を決定する。

$$\mathbf{r}(t+\Delta t) = \mathbf{r}(t) + \int_{t=t}^{t'+t+\Delta t} \mathbf{v}(t') dt' \quad (9)$$

- 5) 上記2)~4)を繰り返し、全マーカー粒子が解析領域外へ出ていくまで計算する。

ここでスクリュ回転による境界条件の時間変化は、前節に述べたものと全く同様の方法で対処した。

本解析の特徴は、流動場の計算に用いた6面体2次の有限要素を4面体1次要素まで細分割することにより、マーカー粒子の存在する要素の特定を簡便化したこと (Tetrahedral Decomposition Method)、また時間積分には4次のRunge-Kutta法を用いたことが挙げられる。

Fig.5 Initial position of marker particles

P : Pressure gauge, T : Thermocouple

Fig.6 Location of pressure gauge and thermocouples

3.2 数値解析条件

スクリュ形状、運転条件は前節と全く同様であり、Fig.5に示す初期マーカー粒子配置で解析を行った。入り口より2枚目のディスク部にマーカー粒子を配置した理由は、入り口境界条件の影響を低減させるためである。ここでマーカー粒子数は1465であり、マーカー粒子間隔が一定になるよう配置した。

4. 実験解析による数値解析の検証

数値解析結果の検証のため、TEX 30 実験機を用い数値解析と同じ条件で圧力および温度測定を行った。ここでスクリュ形状は解析対象であるニーディングブロックの上流側に順ねじのフルフライトスクリュを、また下流側に逆ねじのフルフライトスクリュを配置した。このためニーディングブロック部は完全充満状態となっている。圧力ゲージ (K.K. Dynisco NP 462-1/2-2 CK-15/45) とサーモカップル (Okazaki Manufacturing Company OKAZAKI AEROPAK SHEATHED THERMOCOUPLES T 90 TYPE K) を Fig.6に示す位置に装備し、樹脂表面の値を直接測定した。

5. 解析結果および考察

5.1 圧力および温度

圧力および温度分布の数値解析結果と実験結果の比較を Fig.7, 8 に示す。圧力、温度測定値は Fig.6 に示す位置での値であり、圧力計算値はその位置での値そのものを、温度計算値はスクリュが1回転した場合の平均値を示している。いずれも計算値と実験値はよく一致している。温度に関して高回転速度で計算結果が実験値に比べ過大見積もりする傾向にあるのは、擬定常仮定と高せん断でのスリップが原因として考えられる。

5.2 滞留時間

マーカー粒子追跡結果より得られた各時間でのマーカー粒子位置を Fig.9 に、滞留時間分布を Fig.10 に示す。Fig.10 より高回転速度の場合、滞留時間分布が広がる傾向にある。この原因を明らかにするために、ランダムに選んだ初期位置の異なる 30 個のマーカー粒子の時間に対する軸方向位置を Fig.11 に示す。この図は時間 0 において軸方向位置 0.01~0.02 m に配置されたマーカー粒子 30 個が、スクリュの回転すなわち横軸に示す時間の経過に対し、縦軸に示す軸方向にどれだけ進んだかを表している。つまり実線で表した

Fig.7 Comparison between calculated and experimental value of pressure profiles ; rpm=200

Fig.8 Comparison between calculated and experimental value of temperature profiles in the axial direction at different rotational speed

それぞれのマーカー粒子が時間に対し縦軸負方向へ動いた場合がバックミキシングを表現しており、出口すなわち軸方向位置 0.09 m での時間がそれぞれのマーカー粒子の滞留時間を表現している。この図より高回転速度のほうが、ディスクギャップでのマーカー粒子の軸方向前後への動きが促進され滞留時間分布がブロードになることが理解される。これは高回転速度のほうが、ディスクギャップ部でバックフローが大きくなることに起因している。

5.3 温度履歴

ポリマーが混練機内でのどのような温度履歴を受けるかは、混練過程を理解する上で重要である。この情報もそれぞれのマーカー粒子が受ける温度履歴により定量化することが可能である。ここで初期位置の異なる 3 つのマーカー粒子の各回転速度に対する温度履歴を Fig.12 に示す。この図よりマーカー粒子により受ける温度履歴は様々であるが、回転速度が大きいほど高い

Fig.9 Evolution of the trajectories of marker particles ; rpm=200

Fig. 10 Residence time distribution at different rotational speed

温度履歴を受け、かつ温度の振動幅も大きいことが理解できる。

5.4 分配混合特性

分配混合特性を評価するには、最近接マーカー粒子間距離の平均とその分布を求めるのが有効である。前者を $\bar{d}$ 、後者を σ^2 とすると、それぞれ

$$\bar{d} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N d_i \quad (10)$$

$$\sigma^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (d_i - \bar{d})^2 \quad (11)$$

となる。ここで N はマーカー粒子の総数、 d_i は i 番目のマーカー粒子の最近接距離を表している。マーカー粒子は初期状態で入口近傍に等間隔に緊密に配置しており、時間の経過とともに広がっていくことを考慮すれば、 $\bar{d}$ は大きいほど分配混合が促進され、かつ σ^2 は小さいほどその混合が均一であると考えられる。

Fig. 13, 14 にそれぞれの結果を示すが、出口より流れ出るマーカー粒子の影響が少ない 5 秒までの値を示している。Fig. 13 より初期段階（～1 秒）では 200 rpm と比較し 400 rpm の $\bar{d}$ が大きく分配混合性に優れるものの、それ以後の両者の差は小さく低回転速度においても十分分配混合がなされたものと理解される。また Fig. 14 より σ^2 は全く逆の傾向を示し、初期段階（～1 秒）では 200 rpm でより均一に混合されるものの、時間の経過に従い 400 rpm の均一混合性が 200 rpm を上回るものと考えられる。

6. 結 言

二軸混練機内の三次元非等温非ニュートンシミュレーションプログラムの開発を行い、実験機を用いた圧力、温度測定結果との比較検討を行った。またマーカー粒子追跡機能を用いて滞留時間分布やポリマーが混

(a) rpm=200

(b) rpm=400

Fig. 11 Relationship between axial position of marker particles and time (30 marker particles are randomly selected at each rotational speed)

練機内で受ける温度履歴を定量化した。さらには回転速度が分配混合特性に与える影響を検討し、その結果以下の結論を得た。

- 1) 圧力に関して、数値解析結果と実験結果は値また振動の周期ともおよそ一致した。
- 2) 温度に関して、数値解析結果と実験結果は低回転速度では一致するものの、高回転速度では過大見積もりする傾向がみられた。擬定常の仮定とスリップが原因と考えられる。
- 3) マーカー粒子追跡手法により求めた滞留時間分布は高回転速度で広くなることが示された。これは回転速度の増加によりバックフローが大きくなり、ディスクギャップでのミキシングが促進されるからである。
- 4) マーカー粒子追跡手法により混練機内でポリマーが受ける温度履歴を定量化し、高回転速度で高い温度履歴を受けることを確認した。

Fig.12 Temperature history of marker particles (3 marker particles are selected at each rotational speed)

Fig.13 Mean nearest distance of marker particles with time

Fig.14 Variance of nearest distance distribution of marker particles with time

5) 最近接マーカー粒子間距離を求めることにより分配混合特性を評価し、高回転速度での分配混合特性の向上を定量化した。

参考文献

- 1) White, J.L. and Szydlowski, W.: *Adv. Polym. Technol.*, **7**, 419 (1987)
- 2) Meijer, H.E.M. and Elemans, P.H.M.: *Polym. Eng. Sci.*, **28**, 275 (1988)
- 3) Potente, H. and Klarholz, B.: *Intern. Polym. Proc.*, **9**, 11 (1994)
- 4) Yang, H.-H. and Manas-Zloczower, I.: *Polym. Eng. Sci.*, **32**, 1411 (1992)

- 5) Kajiwara, T., Nagashima, Y., Nakano, Y. and Funatsu, K.: *Polym. Eng. Sci.*, **36**, 2142 (1996)
- 6) 劉麗潔, 東久光, 長島勇希, 梶原稔尚, 船津和守: *成形加工*, **9**, 169 (1997)
- 7) Kiani, A. and Samann, H.J.: *SPE ANTEC Tech. Papers*, 2758 (1993)
- 8) Brooks, A.N. and Hughes, T.J.R.: *Comp. Meth. Appl. Mech. Eng.*, **32**, 199 (1982)
- 9) Kenwright, D. N. and Lane, D.A.: *IEEE Trans. Visualization and Computer Graphics*, **2**, 120 (1996)