二軸押出機内の樹脂挙動解明

—可塑化ステップにおける(懸濁重合)PVC 配合粉の 圧縮および輸送挙動—

元 田 武 彦*・石 原 誠*

Study on the Resin Behavior in Intermeshing Twin Screw Extruder

—Compacting and Conveying Behavior of (Suspension) PVC Compound in Plasticizing Step—

Takehiko MOTODA*, Makoto ISHIHARA*

This study was conducted both experimentally and theoretically in order to elucidate the behavior of particulate resin such as PVC compound in the compacting and plasticizing step in an intermeshing counter-rotating twin screw extruder. Firstly, the compaction and friction characteristics of PVC compound were measured, since they play an important role in the plastication of solid polymer. Then by using a counter-rotating twin screw extruder of 91.2 mm diameter, measurements of bulk density distribution, pressure and temperature rise in the plasticizing step were undertaken under various processing conditions in order to clarify the compacting and conveying behavior and to theoretically formulate the solids conveying efficiency and in-channel pressure rise.

It was found that the bulk density distribution is formed along the C-shaped chamber while exponential pressure rise is generated. The particulate solids conveying characteristic is determined by the amount of backward leakage flow through the intermeshing region and formulated as a conveying efficiency depending upon the screw shape and bulk density distribution due to the frictional forces on the plug state resin in the C-shaped chamber. Also, it has been clarified that over 80% of the plug temperature rise in the compacting and plasticizing step is due to frictional and viscous heat generation during passage through the intermeshing region. Observations of in-channel resin sampled after the barrel was pulled out, confirmed that material through the intermeshing region leaks backwards with a thin folded pattern being developed.

Key words : Intermeshing (counter-rotating) twin screw extruder/Polyvinylchloride/
Plasticizing/Friction coefficient/Conveying efficiency

1. 緒 言

二軸押出プロセスは、良好な混練性能と均一な熱履歴が達成できるため、各種ポリマーの混練機として広く用いられている。特に、かみ合い型異方向回転二軸押出機は滞留時間分布がシャープな特性を持つために、硬質 PVC 成形の主力機として活用されている。しかしながら、その性能を決定するスクリュ設計に関しては工学的に十分な基礎に基づいてなされていないのが現状で、これに関する体系的な研究も少ない^{1),2)}。

著者らは、PVC 用のスクリュ設計に合理的な設計

* 積水化成工業(株) 京都技術センター
京都市南区上鳥羽上調子町 2-2 (〒601)
Kyoto Technology Center
Sekisui Chemical Co., Ltd.
2-2 Kamichoshi-cho, Kamitoba, Minami-ku, Kyoto
601 Japan
1996. 3. 25 受理

Fig. 1 Powder compaction tester (① Plunger, ② Cylinder, ③ Band heater, ④ Thermocouple, ⑤ Pressure transducer)

基準を提供するために、二軸押出機内の樹脂挙動解明の研究を実施した。硬質 PVC 用のスクリュは、固体輸送および予熱ステップ、圧縮および可塑化ステップ、抽気ステップ、熔融吐出ステップの4つの基本ステップから成り立っている。

本研究は、固体輸送および予熱ステップの研究³⁾に続いて行った、圧縮および可塑化ステップに関するものである。

圧縮および可塑化ステップでは、粉体樹脂の圧縮によって、これに続く抽気ゾーンでのマテリアルシール機能を果たすと同時に、スクリュ・パレル表面と樹脂との摩擦によって可塑化が進行する。

懸濁重合 PVC パウダーの場合、可塑化とは微視的に見ると約 100 μm のグレイン同士の合着と一部グレインが約 1~2 μm の一次粒子 (primary particle) および約 10 μm の一次粒子の集合体 (agglomerate) に微細化される現象である^{4)~6)}。したがって、このような形態構造の変化を伴う圧縮・可塑化ステップは、成形品の品質を左右する重要なステップであると言える⁷⁾。しかしながら、かみ合い型異方向回転押出機の圧縮・可塑化ステップにおける樹脂挙動の研究は、単軸押出機の研究と比較すればほとんどなされていないのが現状である。

本研究では、まず押出機内の圧縮・可塑化ステップの樹脂挙動に密接に関係している粉体樹脂の基本的特性である圧縮特性と金属表面との摩擦特性を測定した。

Fig. 2 Bulk density-Pressure-Temperature relationship

次いで、スクリュ口径 91.2 mm の二軸押出機を用いて実験し、樹脂の輸送挙動、圧縮挙動および発熱挙動を測定することにより、押出機内の樹脂挙動を明確にした。なお、実験に用いた樹脂は重合度 1050 の懸濁重合 PVC の配合粉体で、グレインの粒径 80~150 μm 、常圧下のかさ密度 $0.53 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、実密度 $1.42 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ である。

2. 実験と解析

2.1 PVC 配合粉の粉体特性

a. PVC 配合粉の圧縮特性

本研究のために製作した圧縮特性測定装置を Fig. 1 に示す。この装置は機構的には Cheng ら⁸⁾の装置と同一の Piston-cylinder 方式であるが、圧縮方向の圧力 P_z に加え、シリンダー半径方向の圧力 P_r が測定できるようになっている。粉体樹脂の圧力 P とかさ密度 ρ の関係は Hyun と Spalding⁹⁾ によれば、PVDC, LDPE, PS などの熱可塑性樹脂に対して、次式で表されるモデルと良く一致することを報告している。

$$\frac{\rho_{\max} - \rho}{\rho_{\max} - \rho_{\min}} = e^{F \cdot P} \quad (1)$$

ここで、 $\rho_{\max}$ は実密度、 $\rho_{\min}$ は常圧下のかさ密度に対応する。また、 F は樹脂と温度と依存するパラメーターである。上式を導出する際の実験範囲は、圧力で 10 MPa 以下、温度で非晶性樹脂の場合、常温から T_g 付近、結晶性樹脂の場合、熔融温度付近までの範囲で行われている。

いっぽう、本研究で製作した測定装置を用いた PVC 配合粉体の圧縮特性試験の結果では、10 MPa 以下の

Fig. 3 Temperature effect on representative pressures P_{rep}

圧力範囲では、次式で示す実験式と良く一致する結果が得られた。その様子を Fig. 2 に示す。ここで、温度は約 80°C の PVC の T_g より 20°C 低い 60°C から実際の可塑化ステップにおける成形温度に対応する 147°C の範囲である。

$$\rho = \rho_m - \frac{\rho_m - \rho_0}{1 + \frac{P_z}{P_{rep}}} \quad (2)$$

ここで、 ρ_0 は常圧下のかさ密度で、 ρ_m は実密度を表す。上式 (2) の P_{rep} は $\rho_{rep} = (\rho_m + \rho_0)/2$ で与えられるかさ密度 ρ_{rep} における代表圧力である。 P_{rep} は Fig. 3 に示すように温度に依存し、80°C の T_g 付近から急激に圧縮性が大きくなり、100°C を超えとほぼ一定値になる。

また、圧力の異方性を表す特性値 $K_p = P_r/P_z$ を Fig. 4 に示す。この図から温度領域によって次の3つの特徴 A, B, C が見られる。

A : T_g 以下の温度領域では $K_p = 0.5$ ほぼ一定。

Fig. 5 Apparatus for friction measurement

Fig. 4 Resin temperature and anisotropic characteristics K_p

B : T_g から 100°C の温度領域では、かさ密度 $1.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 以下の場合、 $K_p = 0.3 \sim 0.4$ の値を示し、異方性が大きい一方、 $1.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 以上に圧縮していくと $K_p = 1$ に近づく。

C : 100°C 以上の温度では容易にかさ密度 $1.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 以上に圧縮され、 $K_p = 1$ に近づく。

これらの結果は、PVC 粉体粒子が独特の階層的形態構造を持つための特徴と考えられる。すなわち、PVC グレイン 1 個の密度は約 $1.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ であり¹⁰⁾、これが一次粒子に崩壊するための温度境界は 120°C 付近にあると考えられる¹¹⁾。

Fig. 6 Measuring instruments for normal pressure and torque induced by frictional forces

Fig. 7 Friction coefficient f_p against normal pressure p

T_g 以下では、グレインの表面を形成している Shell が形態を保持した状態で圧縮されるために、A のような挙動を示すと思われる。 T_g 以上から 100°C の温度領域では徐々に Shell が変形して空隙を埋めるため、B のようになると思われる。また、 135°C 以上では圧縮力によってグレインが崩壊して一次粒子となり、Solid material に近い状態になるために圧力の伝播も等方的になりやすく、C のようになると考えられる。

b. PVC 配合粉の外部摩擦係数

単軸押出機では粉粒体樹脂とバレル・スクリュ表面間に作用する摩擦力が粉粒体輸送の原動力となる一方、かみ合い型二軸スクリュでは金属壁面との摩擦に無関係に確動性 (positive movement) を持つと言われている¹²⁾。この理由から、二軸押出機における固体輸送と可塑性に及ぼす摩擦の影響に関する研究はほとんどなされてこなかった。しかしながら、本研究により摩擦特性が二軸押出機の粉体輸送、圧縮および可塑化挙動に重要な役割を担っていることがわかってきた。

本研究のために製作した摩擦係数測定装置を Fig. 5 に示す。基本構造は粉体樹脂を充填するシリンダーとこれを圧縮するプランジャーおよびモーターにより駆

動される回転軸で構成されている。Fig. 6 にこの装置の計測機器を示す。シリンダーには圧力計および粉体層内部の温度を測定する熱電対と回転軸を回転させた時に発生する摩擦による抵抗力を測定するトルク変換器がセットされている。粉体樹脂は所定の温度までシリンダーに取り付けられたバンドヒーターで加熱される。また、回転軸の材質は、押出機のパレル、スクリュの製作に通常用いられる窒化鋼である。

この装置による測定値から、摩擦係数 f_p は次式で与えられる。

$$f_p = \frac{2 T_q}{\pi D_s^2 H P} \quad (3)$$

ここで、 D_s は回転軸の外径、 H は粉体樹脂の圧縮高さ、 T_q は樹脂と回転軸表面に発生する摩擦力によるトルク、 P は樹脂圧力である。

摩擦係数測定の場合は、温度が 56°C 、 $72\sim 76^\circ\text{C}$ および $91\sim 92^\circ\text{C}$ の 3 水準、圧力が $0.01\sim 1\text{ MPa}$ の範囲である。また、回転軸の回転速度は周速度に換算して、 $2.8\times 10^{-2}\text{ m/s}$ 、 $8.33\times 10^{-2}\text{ m/s}$ 、 $12.5\times 10^{-2}\text{ m/s}$ の 3 水準である。

(3) 式より得られる摩擦係数を f_p 圧力を横軸にとってプロットしたものを Fig. 7 に示す。Chang と Daane¹³⁾ は、PVC 粉体の場合、温度と圧力の上昇とともに f_p は減少し、速度の増加に対しては若干ではあるが増加すると報告している。しかしながら、Fig. 7 からは f_p は圧力に依存するものの、温度および周速度に関しては顕著な影響は見られなかった。Friehe¹³⁾ は、PE の摩擦係数を測定しており、樹脂と金属壁面の摩擦係数 f_p と垂直荷重 N との関係に次の実験式が成り立つことを報告している。

$$f_p = C N^\alpha \quad (4)$$

ここで、 C は定数で、 α は通常 $-1/3\sim 0$ の間の値をとる。Fig. 7 の実線は上式のモデルを示したもので、次式で与えられる。

$$f_p = 0.156 p^{-0.093} \quad (5)$$

Fig. 8 Twin screw extruder used for temperature and pressure measurement

Fig. 9 Plasticizing segment screw shape

Table 1 Plasticizing segment screw specifications

Screw type	Pitch P_i	Number of starts SN	Flight width A	Pressure angle 2α	Intermeshing flight gap ξ	Calender roll gap ξ_R	Clearance volume V_C	K_2 see Epn. (12)
A	2.5	1	0.8	12	0.289	0	101.4	0.2047
B	2.5	1	0.95	12	0.139	0	90.1	0.1108
C	2.5	1	0.6	12	0.489	0	116	0.3027
D	2.5	1	0.8	12	0.289	0.15	108.1	0.2801
E	2.5	1	0.8	52.4	0.102	0	89.0	0.0823
unit	cm	—	cm	deg	cm	cm	cm ³	—

Fig. 10 Photograph of compacted PVC resin in E screw (The photograph was taken shortly after the barrel was pulled out. The extrusion output is 63.6 kg/h, screw speed is 15rpm and barrel temperature is 100°C, resulting in the average in-channel bulk density $\bar{\rho}$ of $0.870 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ and the temperature rise ΔT_R of 8.6°C)

Exploded C-shaped channel CBA

Fig. 11 Development view of in-channel bulk density measurement and C-shaped channel

Fig. 12 Inlet resin temperature T_{R0} and in-channel bulk density ρ

ここでは、垂直荷重 N の代わりに圧力 p を用いた。

2.2 圧縮・可塑化ステップの粉体樹脂挙動

a. 実験設備と実験方法

圧縮・可塑化ステップにおける粉体樹脂挙動を解明するために Fig. 8 に示すスクリュ径 91.2 mm の異方向回転二軸押出機で実験を行った。

スクリュはセグメントタイプになっている。スクリュ形状は根元から 1655 mm までの長さは 1 リード当

Fig. 14 Model of backward leakage flow through intermeshing region

Fig. 13 Inlet resin temperature T_{R0} and in channel average bulk density $\bar{\rho}$

りの容積 V_c が $280 \sim 424 \text{ cm}^3$ の 5 つのセグメントから構成され、先端には V_c が $89 \sim 108 \text{ cm}^3$ で、長さ 180 mm の 5 種類の可塑化実験用セグメントスクリュ（可塑化スクリュ）が取り付けられるようになってい。スクリュの詳細を Fig. 9 および Table 1 に示す。

実験条件は、押出量 Q_{fd} が $60 \sim 67 \text{ kg/h}$ 、スクリュ速度 N_s が $10 \sim 15 \text{ rpm}$ で実施した。この条件では先端部セグメントスクリュを除き、スクリュチャンパー内の樹脂は未充填 (starve) 状態で自己発熱 (heat generation) はほとんど認められなかった。すなわち、本実験では、まず可塑化スクリュをセットしない状態で、押出量 $60 \sim 67 \text{ kg/h}$ 、スクリュ速度 $8 \sim 16 \text{ rpm}$ 、バレル温度 T_B を $80 \sim 160^\circ\text{C}$ まで変化させ、樹脂を押し出した。この時、吐出される樹脂温度 T_{R0} は、 $\pm 3^\circ\text{C}$ でバレル温度 T_B にほぼ等しい温度であった。

次に、可塑化スクリュをセットし、先端解放状態で押出量 $60 \sim 67 \text{ kg/h}$ 、スクリュ速度 $10 \sim 15 \text{ rpm}$ 、バレル温度 $80 \sim 160^\circ\text{C}$ の条件で樹脂を押し出した。この時、可塑化スクリュのほぼ中央バレル下部より、樹脂圧力 P_D と押出機出口の樹脂温度 T_{R1} を測定した。

これによって先端可塑化部における昇温量 (temperature rise) $\Delta T_R (= T_{R1} - T_{R0} = T_{R1} - T_B)$ を求めた。

さらに、Fig. 10 に示すように各実験条件で押出機モーターを急停止した後、バレルを抜き出し、可塑化部に充填している樹脂を採取して Fig. 11 に示す部位のかさ密度を測定した。これにより、可塑化部における樹脂の圧縮挙動、輸送挙動および可塑化挙動の評価を実施した。

b. 粉体輸送モデル

二軸押出機の可塑化部における粉体輸送挙動は、スクリュの C 型形状チャンパー (C-shaped chamber) 内の圧縮された粉体のかさ密度を測定して、マテリアルバランスを考えることにより、評価することができ

$Q_{fd} : 60-67 \text{ kg/h}$

	Screw	N_s (rpm)	T_{R0} (°C)
▲	A	15	140
△	A	15	120
△	A	15	100
△	A	15	80
▼	B	15	140
▼	B	15	120
▼	B	15	100
▼	B	15	80
■	C	15	140
□	C	15	120
□	C	15	100
●	D	15	160
●	D	15	140
○	D	15	120
○	D	15	100
●	D	15	80
○	D	12	100
◆	D	10	100

Fig. 15 Relationship between K_2 and η_e

Fig. 16 Uniform plug flow model (The simplifying assumption is made that the plug exerts normal pressure equally on all metal surfaces with which it is in contact, and the pressure exerted on the plug is obtained by $K_p \sigma_z$, where σ_z is the principal resin stress at z in the channel diection and K_p is the anisotropy characteristic of particulate resin. Under these conditions, the tangential forces, that is, the frictional forces on the plug are given by multiplying the surface area by the pressure $K_p \sigma_z$ and then by the friction coefficient f_p . Then, the eq.(13) can be derived from a force balance applied to the infinitesimal plug at helical length z)

る。

本実験における粉体樹脂のかさ密度の測定の結果、C型形状のチャンパー内に密度分布が形成されることが見出された。スクルーDで入口樹脂温度 T_{R0} を変えた場合のチャンパー内の密度分布を Fig. 12 に示す。密度はスクルー回転方向に沿った方向にはほぼ単調増加し、かみ合い部入口付近（8 の位置）で最大密度 ρ_A になる。Fig. 13 にチャンパー内樹脂の平均密度 $\bar{\rho}$ を可塑化部入口樹脂温度 T_{R0} に対してプロットしたものを示す。 $\bar{\rho}$ は T_{R0} が 100°C から 140°C に上昇するとともに、増加していることがわかる。これは他のスクルーについても同じ傾向である。

以上の実験結果をもとに、可塑化部の輸送モデルを考える。いま、確動性の指標として輸送効率 η_e を次式で定義する。

$$\eta_e = \frac{Q_{fd}}{Q_{th}} \quad (6)$$

ここで、 Q_{th} は漏洩流の無い状態（完全確動）を仮定したときの理論輸送量で、次式で表される。

$$Q_{th} = \bar{\rho} N_s V_C \quad (7)$$

しかしながら、かみ合い型二軸押出機においては Fig. 14 に模式的に示すようにかみ合い隙間部分を通過して漏洩するバックフローが存在する。その結果、 $Q_{fd} > Q_{th}$ 、すなわち、 $\eta_e < 1$ となる。今、このバックフロー量を Q_{ld} と書くこととマテリアルバランスより、

$$Q_{ld} = Q_{th} - Q_{fd} \quad (8)$$

で表される。

Q_{ld} は、かみ合い部の両スクルーフライトの牽引により、かみ合い入口部のかさ密度 ρ_A の樹脂が漏洩すると考えると次式で表される。

	Screw	T_{R0} (°C)		Screw	T_{R0} (°C)
▲	A	140	■	C	140
△	A	120	□	C	120
△	A	100	●	D	160
▼	B	140	○	D	140
▽	B	120	○	D	120
▽	B	100	○	D	100
			○	D	80

Fig. 17 Comparison of $K_p \sigma_z$ obtained from in-channel bulk density with actual pressure P_D

$$Q_{id} = K_1 \rho_A N_s \quad (9)$$

ここで、 K_1 (cm³) はスクリュ形状によって決まる定数で、次式で表される。

$$K_1 = 2\pi \{L \cdot (R_o - R_i - \xi_R) \cdot \xi + (R_o + R_i) \cdot C \cdot \xi_R\} \quad (10)$$

(10) 式の形状パラメーターは Fig. 14 および Table 1 に示している。第一項は Fig. 14 の流速ベクトルによるもので、第二項は同じく V_R によるものである。したがって、輸送効率、(6)~(9) 式より、

$$\eta_e = 1 - K_2 \frac{\rho_A}{\bar{p}} \quad (11)$$

$$K_2 = \frac{K_1}{V_C} \quad (12)$$

K_2 はスクリュ形状で決定される無次元定数で、Table 1 に示す。

Fig. 15 は、各可塑性スクリュ内の密度分布データをもとにして (11) 式より求めた η_e と幾何定数 K_2 の関係をプロットしたものである。この図から、(9) 式で表されるバックフローのモデルが成立することがわかる。したがって、スクリュチャンパー内の密度分布 ($\rho_A, \bar{p}$) を決定するメカニズムがわかれば、可塑性部の輸送挙動および圧縮挙動が定量的に予測できることになる。⁷⁾

Fig. 18 Stress σ_z obtained from in-channel bulk density distribution

2.3 可塑性樹脂の圧縮挙動

a. スクリュ溝部樹脂の圧縮挙動

Tadmor ら¹⁴⁾の単軸スクリュの solids conveying model が二軸スクリュ溝部で成立していると仮定すると、圧縮挙動は Fig. 16 ようにモデル化でき、これを uniform plug flow model と称する。かみ合い出口部 C を原点とし、スクリュ溝に沿った座標軸を z とし、かみ合い部入口の A 点までの流路長さを Z_C とする。この時、(13) 式のように指数関数で表現される圧力発生 (exponential pressure rise) モデルを得る。

$$\sigma_z = \sigma_C \exp \left[f_p \cdot m^{-1} \frac{z}{Z_C} \right] \quad (13)$$

or

$$m \cdot \ln \sigma_z = m \cdot \ln \sigma_C + f_p \frac{z}{Z_C} \quad (13')$$

ここで、

$$m = \frac{1}{\kappa K_p}$$

$$\kappa = 2 \frac{2H + C - B(\cos \phi - \sin \phi)}{H(B - C)} Z_C$$

および ϕ は輸送角 (solids conveying angle) で、次式で与えられる。

$$\phi = \tan^{-1} \frac{\eta_e}{1 - \eta_e} + \tan^{-1} \frac{P_1}{\pi \bar{D}} \quad (14)$$

H, B および C は Fig. 9 に示すスクリュ形状の値で、 $\bar{D}$ は $(D_1 + D_0)/2$ で与えられる平均スクリュ径である。ここではモデルを単純化するために摩擦係数 f_p および圧力伝播の異方性の特性値 K_p は、スクリュチ

Fig. 19 Inlet resin temperature T_{R0} and temperature rise ΔT_R

チャンパー内で一定と仮定した。

(13) 式で表現されるモデルの妥当性について、次の2つのステップに分けて確認した。

まず、 z 方向に発生する応力 σ_z より、バレル・スクリュ壁面に作用する垂直圧力 P_D は、PVC の圧力伝播の異方性により、 $P_D = K_p \sigma_z$ で与えられる。今、圧力計による測定値 P_D とチャンパー内の比重分布データを用いて、(2) 式および Fig. 4 から求めた $K_p \sigma_z$ を比較したものを Fig. 17 に示す。このとき、輸送効率 η_e は Fig. 15 より、 $\eta_e = 0.963 \eta_{ed}$ として計算した。この図から実験値 P_D と比重から予測した $K_p \sigma_z$ が大略一致していることがわかる。したがって、比重分布から (2) 式を用いて応力に換算することで、チャンパー内の発生樹脂応力分布 σ_z が得られる。

このようにして求めた σ_z より、 z/Z_0 と $m \cdot \ln \sigma_z$ の関係をプロットしたものを Fig. 18 に示す。この図から、モデル (13') 式がほぼ成立していることが示され、チャンパーに沿って Exponential pressure rise が発生していることがわかる。また、図中の勾配は入口樹脂温度 T_{R0} 、スクリュ形状によらず、ほぼ一定で、この勾配、すなわち摩擦係数 f_p を求めると $f_p \approx 0.1$ 程度の値になる。この値は摩擦係数測定装置で得られた値とほぼ対応しており、これはプラグ樹脂に作用する摩擦力によって、応力および比重分布が生ずるモデルの妥当性を支持しているものと考えられる。

さらに、図から T_{R0} が 120°C と 140°C の条件では、スクリュ形状の差異は比較的小さいが、100°C の条件ではスクリュ形状によって切片、すなわち σ_0 の値が大きく異なり、スクリュ形状によるパフォーマンスの差が見られる。

b. 圧縮・可塑化ステップの昇温挙動

最後に、圧縮・可塑化ステップにおける昇温量 ΔT_R についての実験結果について報告する。Fig. 19 に可塑化部入口温度 T_{R0} に対する昇温量 ΔT_R を各種ス

Fig. 20 Estimation of dissipated energy ΔH_f due to in-channel friction

クリュについてプロットしたものを示す。

スクリュ形状によって昇温量の差が見られるが、傾向としては T_{R0} が 100°C 以下では T_{R0} の増加とともに ΔT_R は減少する一方、 T_{R0} が 100°C を超えると急激に ΔT_R は増加し、 T_{R0} が 120~140°C で ΔT_R は最大となる。 T_{R0} がさらに高くなると逆に ΔT_R は減少していく。100°C を境に急激に昇温量 ΔT_R が増大するのは、Fig. 12 に示すチャンパー内の樹脂のかさ比重の急激な増加と対応する。このことは、(9) 式より、かみ合い部をリークする流量 Q_{ld} の増加と対応しており、この昇温量は主として樹脂がかみ合い部を通過する時にスクリュフライトから受ける摩擦発熱によって生じていると考えられる。

これを裏付けるために、かみ合い部を除くチャンパー内の樹脂がバレル・スクリュから受ける摩擦による消費エネルギー量 ΔH_f (kJ/kg) をまず推算して、昇温量 ΔT_R に対応する樹脂のエンタルピーの増加 ΔH_p (kJ/kg) と比較することによって、かみ合い部での消費エネルギーの推定を行った。すなわち、 $\Delta H_p - \Delta H_f$ をかみ合い部における消費エネルギーと考える。可塑化部全域のかみ合い部を除くチャンパー部の消費エネルギー ΔH_f は、次式で与えられる。

$$\Delta H_f = \frac{3.6 M_N W_f}{Q_{fd}} \quad (15)$$

ここで、 M_N はスクリュリード数で、実験に用いたスクリュでは $M_N = 6$ である。また、 W_f (W) はおよそ次式で与えられる。

$$W_f = 0.0105 N_s \bar{R} Z_0 (C + 2H) f_p \cdot K_p \bar{\sigma}_z + 0.0333 N_s (1 - K_2) P_1 \frac{D_0}{D} Z_0 B \cdot f_p \cdot K_p \bar{\sigma}_z \quad (16)$$

いっぽう、PVC の比熱 C_p より、昇温量に対応するエンタルピーの増加 ΔH_p を次式から求めた。

Fig. 21 In-channel resin in E screws (The photograph shows the filling state with PVC resin in E screws under the processing conditions of $Q_{fd}=66.1$ kg/h, screw speed=15 rpm and inlet resin temperature=140°C, resulting in the average in-channel bulk density $\bar{\rho}$ of 1.02×10^3 kg/m³ and the temperature rise ΔT_R of 18°C)

$$\Delta H_p = \int_{T_{R0}}^{T_{R1}} C_p(T) dT \quad (17)$$

上式の値を求めるに当たり、PVCの比熱は温度に依存する¹⁵⁾ため、本研究に用いたPVCの比熱としてDSCにより測定したデータ³⁾を用いた。

(15)式および(17)式より、 ΔH_f と ΔH_p を求めて、 ΔH_f の ΔH_p に占める比率を T_{R0} を横軸にプロットしたものをFig. 20に示す。この図から、最も昇温量の大きい $T_{R0}=120 \sim 140^\circ\text{C}$ の条件においても ΔH_f の占める比率は20%以下となり、昇温量 ΔT_R の大半はかみ合い部での発熱によるものと考えられる。また、樹脂温度が高くなると、チャンパー内の樹脂の圧密とともにかみ合い部通過時の発熱が粉体の摩擦発熱から粘性発熱へと移行し、Fig. 19に示されるように昇温量が減少していくと考えられる。

3. 可塑性メカニズムの考察

異方向回転二軸スクリュの場合、先に述べた昇温挙動の解析から、樹脂はかみ合い部を通過することによって可塑性が進行すると考えられる。この二軸スクリュ内の可塑性の進行機構は、パレルを抜き出した後のスクリュ内の樹脂の観察からも認められる。

Fig. 21はスクリュDにおけるパレル抜き後に観察

(a) Filling state with PVC resin at the inlet temperature 120°C

(b) C-shaped resin samples taken off the screws at the inlet temperature 140°C

Fig. 22 In-channel resin sampled from E screws (The photographs show the filling state with PVC resin in E screws under the processing conditions of $Q_{fd}=59$ kg/h, screw speed=15 rpm at the inlet resin temperatures in 120°C (a) and 140°C (b))

した樹脂の状態である。実験条件は平均かさ比重 $\bar{\rho}$ および昇温量 ΔT_R が最大になる条件である。Fig. 10に示す条件ではPVCグレインを基本単位とする圧密充填層を形成している一方、Fig. 21では、かみ合い部を通過した樹脂がプラグ状のシート形態でチャンパーに流入しているのが認められる。このシート状樹脂のフライト側面に接する表面部分は可塑性が進行しており、これが写真では配合粉中に含まれる灰色の顔料の分散によって黒っぽい帯状の形態として観察されている。

この種の可塑性の進行の軽重は、先に述べた可塑性モデルからかみ合い部の樹脂通路形態を決めるスクリュ形状と密接に関係していると考えられる。そこで、かみ合い部を通過する樹脂の可塑性がより進行する形状を持つスクリュEを製作し、押出実験を実施した。

スクリュEは他の4種のスクリュと比較してフライトの圧力角 α が大きく、フライトクリアランス δ が小

さい形状を持つ。このとき、Fig. 14 に示すかみ合い入口部 A におけるクリアランス ξ_A と軸間上のクリアランス ξ の比 ξ_A/ξ を考えると、スクリュ E の場合、 $\xi_A/\xi=4.2$ でスクリュ D の $\xi_A/\xi=1.1$ に比べて約 4 倍の値を持つ。

Fig. 22 にスクリュ E におけるパレル抜き後に観察した樹脂の状態を示す。この図から、かみ合い部を通過して樹脂がリークする状態と可塑化の進行がより顕著に観察される。これは、クリアランスの比 ξ_A/ξ が大きいと Fig. 14 に示す流路 AC を樹脂が通過する際、A から D に輸送される間により圧縮され、圧力発生が大きくなる。このため、スクリュフライトから受ける摩擦力が大きくなり、発熱の増大とともに可塑化がより進行するもの考えられる。

4. 結 論

粉粒体樹脂の基本特性の測定および押出機内の樹脂のかさ比重、圧力および昇温挙動を測定することによって、異方向回転二軸押出機における圧縮・可塑化ステップの樹脂挙動を明確にし、従来不足していた最適スクリュ設計に必要な基礎データを得ると同時に、樹脂挙動予測の定式化において前進が図れた。なお、本研究で解明された結論をまとめると以下の通りである。

- ① 樹脂とパレル・スクリュ表面間の摩擦により、スクリュチャンパーに沿って比重分布が形成されるとともに指数関数で表現される圧力 (Exponential pressure) が生じている。
- ② このとき、樹脂輸送挙動は、(11)式で与えられる輸送特性を示す。
- ③ PVC 配合粉では、可塑化部の入口樹脂温度が $100^{\circ}\text{C}\sim 120^{\circ}\text{C}$ にかけてチャンパー内樹脂の平均密度 $\bar{\rho}$ および昇温量 ΔT_R は増加する。さらに約 140°C 以上から平均密度 $\bar{\rho}$ はほぼ一定値に達する一方、昇温量 ΔT_R は減少していく。
- ④ 昇温量の 80% 以上はかみ合い部を樹脂が通過する際に発生する摩擦および粘性発熱である。
- ⑤ このことから、かみ合い型二軸押出機においてはかみ合い部を樹脂が通過することによって可塑化が進行する。

参 考 文 献

- 1) Klenk, K. L.: *Beitrag zur Werkstoff-gerechneten verarbeitung von PVC Hart Pulver auf Ein- und Zwei-schnecken Extrudern*, (1969) Dissertation TH-Aachen
- 2) Alber, F.: *Beitrag zur Dimensionierung der Schnecken von gegenläufig kämmenden Doppelschnecken-extrudern*, (1976) Dissertation

Montanuniversität Leoben

- 3) 元田武彦, 石原誠: 成形加工, 8(7), 493 (1996)
- 4) Krüger, E.: *Adv. Polym. Tech.*, 6(1), 107 (1986)
- 5) Hattori, T., Tanaka, K. and Matsuo, M.: *Polym. Eng. Sci.*, 12(3), 199 (1992)
- 6) Pedersen, T. C.: *SPE ANTEC Tech. Pap.*, 30, 160 (1984)
- 7) Summers, J. W., Rabinovitch, E. S. and Quisenberry, J. G.: *J. Vinyl Techn.*, 7(1), 32 (1985)
- 8) Cheng, C. Y., and Gogos, C. G.: *SPE ANTEC Tech. Pap.*, 25, 156 (1979)
- 9) Hyun, K. S., and Spalding, M. A.: *Polym. Eng. Sci.*, 30(10), 571 (1990)
- 10) Nillson, H., Slivergren, C. and Tomnell, B.: *J. Vinyl Techn.*, 7(3), 119 (1985)
- 11) Janssen, L. P. B. M. and Smith, J. M.: *Understanding the Performance of Twin Screw Extruder, Science and Technology of Polymer Processing*, (1976) The MIT Press
- 12) Chang, H., and Daane, R. A.: *SPE ANTEC Tech. Pap.*, 20, 335 (1974)
- 13) Friehe, C. A.: *Polym. Eng. Sci.*, 13(5), 135 (1966)
- 14) Tadmor, Z. and Klein, J.: *Engineering Principles of Plasticating Extrusion*, (1970) van Nostrand Reinhold, New York
- 15) Gauer, U., Wunderlich, B. B.: *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 12(1), 52 (1983)

付 録

A. 比重分布を決定する解析式の導出

$n=f_p/m$ および $w=z/Z_0$ と置くと、スクリュ内にチャンパーに沿って次式で与えられる Exponential pressure rise が発生する。

$$\sigma_w = \sigma_0 e^{n \cdot w} \quad (\text{A-1})$$

ここで、チャンパー内の圧力伝播の異方性の特性値 K_p および摩擦係数 f_p は一定と仮定する。いっぽう、配合粉の圧縮特性より、 σ_w とかさ密度 ρ の関係は、

$$\sigma_w = \sigma_{\text{rep}} \left(\frac{\rho_m - \rho_0}{\rho_m - \rho} - 1 \right) \quad (\text{A-2})$$

で与えられることから、 $\partial_w = \sigma_w / \sigma_{\text{rep}}$ および $\partial_0 = \sigma_0 / \sigma_{\text{rep}}$ と置くと、(A-1), (A-2) より、かさ密度分布 $\rho(w)$ は、次式で与えられる。

$$\rho(w) = \rho_m - \frac{\sigma_m - \rho_0}{1 + \partial_0 e^{n \cdot w}} \quad (\text{A-3})$$

したがって、チャンパー内の平均かさ密度 $\bar{\rho}$ は、

$$\begin{aligned} \bar{\rho} &= \int_0^1 \rho(w) dw \\ &= \rho_0 + \frac{\rho_m - \rho_0}{n} \ln \frac{1 + \partial_0 e^n}{1 + \partial_0} \end{aligned} \quad (\text{A-4})$$

で与えられる。また、かみ合い入口部 A のかさ密度 ρ_A は (A-3) より、

$$\rho_A = \rho_m - \frac{\rho_m - \rho_0}{1 + \hat{\sigma}_C e^n} \quad (\text{A-5})$$

ここで、 $\bar{\rho}$ もしくは ρ_A が決定されれば、(A-4) もしくは (A-5) を用いて $\hat{\sigma}_C$ が与えられることから、チャンバー内のかさ密度分布 $\rho(w)$ は、(A-3) から求めることができる。

$\bar{\rho}$ および ρ_A は、スクリュ内の樹脂の輸送特性より決まる値であることから、次のようにして $\hat{\sigma}_C$ を求めることができる。

$$Q_{1d} = 6 \times 10^{-5} N_s V_C (1 - \eta_e) \bar{\rho}$$

および、

$$Q_{1d} = 6 \times 10^{-5} N_s K_1 \rho_A$$

の関係から、

$$\bar{\rho} = \frac{K_2}{1 - \eta_e} \rho_A \quad (\text{A-6})$$

Fig. 15 より、スクリュ形状によらず輸送効率 η_e は次式で与えられる。

$$\eta_e = 0.9631(1 - K_2) \quad (\text{A-7})$$

上式を (A-6) に代入して、

$$\bar{\rho} = \Psi(K_2) \rho_A \quad (\text{A-8})$$

$$\Psi(K_2) = \frac{K_2}{0.057 + 0.963 K_2} \quad (\text{A-9})$$

したがって、 $\hat{\sigma}_C$ は次式によって与えられる。

$$\rho_0 + \frac{\rho_m - \rho_0}{n} \ln \frac{1 + \hat{\sigma}_C e^n}{1 + \hat{\sigma}_C} = \Psi(K_2) \left(\rho_m - \frac{\rho_m - \rho_0}{1 + \hat{\sigma}_C e^n} \right) \quad (\text{A-10})$$