押出ブロー成形法における パリソン形成過程の数値解析

谷藤 眞一郎*・滝本 淳一*・小山 清人*

Numerical Analysis of Parison Formation Process in Extrusion Blow Molding

Shin-ichiro TANIFUJI*, Jun-ichi TAKIMOTO*, Kiyohito KOYAMA*

In the present study, a mathematical model employing the K-BKZ integral type viscoelastic constitutive equation was developed for a numerical analysis of the parison formation process in extrusion blow molding. The parison shape is controlled by the two competing influences of swell and draw-down. This mathematical model was made on the assumptions that swell and draw-down contributions could be separately considered and simply added in order to avoid elaborate computations. The swell phenomena was estimated by a steady state viscoelastic flow analysis using a streamline finite element method. On the other hand, the draw-down was modeled in terms of the uniaxial extension that could be analyzed by an unsteady numerical technique. To evaluate the capability of the present model, firstly, steady state annular die swell simulations were carried out using the flow characteristics of high density polyethylene (HDPE) resin. By a modification of the model prediction for the elongational viscosity at high stretching rates beyond the experimental range, the calculated swell ratio was in reasonable agreement with the experimental data. Secondly, unsteady numerical simulations were performed for the extrusion experiment with HDPE and polycarbonate (PC) under conditions of severe draw-down. In the HDPE extrusion simulation, there was good qualitative agreement between numerical results and the experimental data for time-dependent effects on the parison shape. The good model fitting of the elongational viscosity for the PC extrusion simulation yielded a good prediction of the parison length as a function of the extrusion time.

Key words: Numerical analysis/Parison formation/K-BKZ viscoelastic model/
Swell/Draw-down

1. 緒 言

ブロー成形プロセスは、熔融樹脂を二重管から押し出すことによって、パリソンと呼ばれる袋状の成形素

材を形成するプロセス（パリソン形成過程）と、その後、パリソンを金型内で拘束膨張させて製品を成形するプロセス（型締・吹込冷却過程）に大別される。現在、実用化、あるいは開発が進められている CAE システムの多くは、後者のプロセスを解析対象とし、弾性体の大変形構造解析を通じて、最終製品の肉厚分布を精度良く予測できる技術レベルに到達している。

いっぽう、パリソン形成過程の数値解析では、樹脂特性を表現する粘弾性構成方程式の選定や自由表面を

* 山形大学 工学部 物質工学科
米沢市城南 4-3-16 (〒 992)
Department of Materials Science and Engineering,
Yamagata University
4-3-16 Jonan, Yonezawa, Yamagata 992 Japan
1996. 4. 23 受理

伴う粘弾性流体の数値解析的な取り扱いが難しく、パリソン形状を精度良く予測し得る解析技術はまだ確立されていない。

パリソン形成過程では、熔融樹脂の弾性回復現象として発生する押出物の径方向への膨張（スウェル）と自重による垂れ下がり現象（ドロダウ）が重視される。現在、これらの成形現象を予測するための数値解析法として、

解析法①：スウェルを押出実験から得られる実測データを用いて定量化する。ドロダウを熔融樹脂の非定常一軸伸長変形としてモデル化し、両者の重ね合わせからパリソンの押出形状を予測する方法^{2)~4)}

解析法②：流体保存方程式と粘弾性構成方程式から成る流体力学モデルを非定常的に解析することによって、スウェルとドロダウがパリソン形状に及ぼす影響を予測する方法⁵⁾

解析法③：解析法①におけるスウェルの実測的な定量化法に代え、幾何計算⁶⁾あるいは流体力学モデルの定常解析^{7),8)}を通じてスウェルを数値的に評価する方法

などが提案されている。

従来、主として研究されてきた解析法①は、小さな計算負荷のもとにパリソンの非定常押出形状の予測が可能であるが、スウェルを定量化するために実測データを要する。

解析法②は、流量、成形温度やダイ形状などの基本的な成形条件と樹脂のレオロジー特性を利用してパリソン形状の予測が可能な理想的な方法である。しかしながら、自由表面を伴う粘弾性流体の非定常解析技術は、Weissenberg 数 (We) が低い条件下においてのみ成功した段階である。実用上重視される高 We の現象を取り扱うには、数値解析技術をさらに進歩させる必要がある。

解析法③に分類されるアプローチとして、篠原⁹⁾は、ダイ内流動を伸長流れとする仮定と Larson モデルを採用した数値解析を通じて、ドロダウと伸長粘度の Strain-hardening 性との相関について詳しく検討し、パリソン長の押出時間依存性についての実測値を良好に表現する計算結果を得ている。また、田上ら^{7),8)}は、解析領域をスウェルが支配的な領域とドロダウと弾性回復が支配的な領域に分離し、Giesekus モデルを採用した数値解析を行っている。実測値との対比により、シュリンクバックを含めたパリソン挙動の時間的な変化が定量的にうまく予測されることを報告している。これらの研究例で開発された解析法は、実用的と言えるが、微分型粘弾性構成方程式による各種レオロジー特性の表現能力やスウェルの定量化法など

について、今後改良すべき点も多い。

最近、スウェルの定量化法に関わる数値解析技術として、自由表面を伴う粘弾性流体の定常解析法^{10)~12)}が目覚ましい進展を遂げた。高 We 条件下において、精密な流体力学モデルに立脚した定常粘弾性解析が可能になっている。

本研究では、解析法③に従い、K-BKZ 積分型粘弾性構成方程式を採用した定常流動解析法と一軸伸長の非定常変形解析法を併用することによってパリソンの非定常押出シミュレーションを試みた。本解析法の適用性を検討するために、シミュレーション結果を、ブロー成形用高密度ポリエチレン (HDPE) とポリカーボネート (PC) の押出実験から収集された実測値を用いて検証した。

2. 成形現象の定量化法

2.1 スウェル現象

スウェルは、自由表面を伴う粘弾性流体の定常解析を通じて定量化される。解析では、以下に示す等温非圧縮性流体の保存方程式を採用した。

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

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

ここで、 $\mathbf{v}$ は流速ベクトル、 p は圧力である。余剰応力テンソル $\boldsymbol{\tau}$ は、次の K-BKZ 積分型粘弾性構成方程式⁹⁾

$$\boldsymbol{\tau}(t) = \int_{-\infty}^t \mu(t-t') \Phi(t, t') \{ (1+b) \mathbf{C}_t^{-1}(t') + b \mathbf{C}_t(t') \} dt' \quad (3)$$

から計算される。記憶関数 μ は、離散モード k の緩和弾性率 a_k と緩和時間 λ_k を用いて、

$$\mu(t-t') = \sum_k \frac{a_k}{\lambda_k} \exp\left(-\frac{t-t'}{\lambda_k}\right) \quad (3.1)$$

と表される。減衰関数 Φ は、PSM モデル¹³⁾の場合、

$$\Phi(t, t') = \frac{\alpha}{\alpha + I(t, t')} \quad (3.2)$$

となる。また、Wagner モデル^{14),15)}の場合では、

$$\Phi(t, t') = \exp\{-\alpha \sqrt{I(t, t')}\} \quad (3.3)$$

と表される。ここで、ひずみ量 $I(t, t')$ は、Finger ひずみテンソル $\mathbf{C}^{-1}$ と Cauchy ひずみテンソル $\mathbf{C}$ の第一不変量

$$I_1(t, t') = \text{tr}\{(\mathbf{C}_t^{-1}(t'))\}, \quad I_2(t, t') = \text{tr}\{\mathbf{C}_t(t')\} \quad (3.4)$$

を用いて、

$$I(t, t') = \beta I_1(t, t') + (1-\beta) I_2(t, t') - 3 \quad (3.5)$$

と定義される。物質パラメーター α と β は、高分子溶融体の Shear-thinning 性や Strain-hardening 性などの非線形レオロジー特性に対するモデルフィットをコントロールする。また、物質パラメーター b は、せ

ん断流動における第一法線応力差と第二法線応力差の比で定義される。

減衰関数として PSM モデルを採用したダイスウェルシミュレーションにおいて、各種スウェル比の予測値が実測値を過大評価することは、すでに問題視されており、その原因として、高ひずみレベルでの定常伸長粘度の実測値に対するモデルフィットのずれ^{10),11)}や反復変形における可逆減衰関数の問題^{16),17)}が指摘されている。高ひずみレベルでの定常伸長粘度のモデルフィットを改善する上で、

- ① PSM モデルの減衰関数に切断パラメーターを設定して高ひずみ量の応力への寄与量を切断する方法¹⁰⁾
- ② 物質パラメーター β をモードごとに区別する方法¹¹⁾

が提案されている。

前者は、(3.5) 式で定義されるひずみ量が、ある基準値(切断パラメーターの設定値)を超えた際に、減衰関数を強制的にゼロとし、高ひずみ量の粘弾性応力への寄与を切断する方法である。この方法は、せん断と伸長粘度の両特性に対するモデルフィットに影響を与える。いっぽう、後者は、単一パラメーター β をモードごとに区別して伸長粘度のモデルフィットに関する自由度を高める方法であり、伸長粘度のみを変化させることができる。これらの方法は、いずれも実測データの収集が難しい定常伸長粘度の利用を前提としている。したがって、本研究では、伸長粘度のモデルフィットの変更が容易な前者の方法を採用し、切断パラメーターを実測粘度のモデルフィットを改悪させない

Fig. 1 Schematic diagram of notations and boundary conditions for the steady state viscoelastic flow analysis

範囲で変化させて、伸長粘度の未知特性がスウェル現象の定量化に及ぼす影響について検討した。

可逆減衰関数の問題に関連した研究としては、Goublomme ら¹⁷⁾によるコンバージタイプ円管ダイスウェルシミュレーション例があげられる。彼らは、PSM タイプ減衰関数を可逆 (reversible) から非可逆 (irreversible) に変更することによって、径スウェル比が 9.19 から 5.44 に減少したと報告している。しかしながら、本研究においては非可逆減衰関数を採用しても解析結果に有意な変化が示されなかったため、この問題については詳しく言及しない。

流線要素法¹⁰⁾を採用し、支配方程式 (1)~(3) を Fig. 1 に示す境界条件のもとに解析した。

2.2 ドローダウン現象

定常粘弾性流動解析から得られるパリソン長 L と径 $R(L)$ の関係を、流体粒子のダイ流出後の平均経過時刻 t と径 $R(t)$ の関係に変換する。また、 L と肉厚 $H(L)$ の関係についても同様の変換を施す。こうして得られる関係式より、以下に示す時間依存性を持つ径スウェル比: χ_R と肉厚スウェル比: χ_H が定義できる。

$$\chi_R(t) = 1 + (\chi_{R\infty} - 1) \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\zeta_R}\right) \right\},$$

$$\chi_H(t) = 1 + (\chi_{H\infty} - 1) \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\zeta_H}\right) \right\} \quad (4.1)$$

ここで、 ζ_R と ζ_H は径と肉厚スウェル比の時定数である。また、各スウェル比の平衡値 $\chi_{R\infty}$ と $\chi_{H\infty}$ は二重管ダイの径 R_d とクリアランス H_d およびパリソン先端の径 R_p と肉厚 H_p を用いて、それぞれ次式で定義される。

$$\chi_{R\infty} = \frac{R_p}{R_d}, \quad \chi_{H\infty} = \frac{H_p}{H_d} \quad (4.2)$$

時間的に変化するパリソン形状を表現するために Fig. 2 に示すような計算モデルを考える。パリソンの

Fig. 2 Model segments for the unsteady calculation of the parison formation process

押出時間 t_e を n 個の計算時間刻み Δt に等分割する。計算モデルを構成する要素 i は、計算時刻の区間 $((i-1)\Delta t, i\Delta t)$ に押し出された部分に相当する。ダイ流出口での平均流速を v_d 、その流出断面積を S_d と表すと、各要素は共通の体積、

$$V = v_d S_d \Delta t \quad (5)$$

を持つ。

計算時刻 $t = m\Delta t$ において、要素 $i (i \leq n)$ の流出後の経過時間、すなわち要素 i がスウェルやドローダウンによる変形を受けた時間 t_i は、

$$t_i = (m - i + 1)\Delta t, \text{ for } 1 \leq i \leq \min(n, m) \quad (6)$$

である。また、要素 i の断面積を S_i と表すと、その長さ L_i は (5) 式と非圧縮条件により、

$$L_i(t_i) = v_d S_d \Delta t / S_i(t_i) \quad (7)$$

で与えられる。時間 $t_i = 0$ では、要素 i は変形を受けておらず、 $L_i(0) = v_d \Delta t$ となる。

ドローダウンを無視し、スウェルのみによる要素の変形を考えた場合の要素長さ L_{si} は、(7) 式から

$$L_{si}(t_i) = \frac{v_d(2R_d - H_d)\Delta t}{\{2R_d\chi_R(t_i) - H_d\chi_H(t_i)\}\chi_H(t_i)} \quad (8.1)$$

と計算される。ここで、(4.1) 式で定義された時間依存性を持つスウェル比と要素径 R_i および肉厚 H_i の間に、

$$\chi_R(t_i) = \frac{R_i(t_i)}{R_d}, \quad \chi_H(t_i) = \frac{H_i(t_i)}{H_d} \quad (8.2)$$

が成立すると考えている。

いっぽう、ドローダウンは、要素の非定常的な一軸伸長変形としてモデル化される。ドローダウンのみによる要素長さ L_{gi} の時間変化を計算するために、要素 i に作用する重量と法線応力差 τ_i による張力の釣り合い式、

$$\tau_i = \tau_{zz} - \tau_{rr} = \rho L_{gi}(t_i)(i-1)g \quad (9)$$

を考える。ここで、 ρ は密度、 g は重力加速度である。また、法線応力差 τ_i は、構成方程式 (3) を用いて以下に示すように評価される。

$$\begin{aligned} \tau_i = & \sum_k a_k \exp(-t_i/\lambda_k) \Phi(t_i, 0) B(t_i, 0) \\ & + \int_0^{t_i} \sum_k \frac{a_k}{\lambda_k} \exp\left(-\frac{t_i - t'}{\lambda_k}\right) \Phi(t_i, t') B(t_i, t') dt' \end{aligned} \quad (10.1)$$

ここで、

$$\begin{aligned} B(t_i, t') = & (1+b) \{L_{gi}^2(t_i)/L_{gi}^2(t') \\ & - L_{gi}(t')/L_{gi}(t_i)\} \\ & + b \{L_{gi}^2(t')/L_{gi}^2(t_i) - L_{gi}(t_i)/L_{gi}(t')\} \end{aligned} \quad (10.2)$$

である。また、(3.4) 式で定義されたひずみの不変量 I_1 と I_2 は、次式で与えられる。

$$\begin{aligned} I_1(t_i, t') = & L_{gi}^2(t_i)/L_{gi}^2(t') + 2L_{gi}(t')/L_{gi}(t_i), \\ I_2(t_i, t') = & L_{gi}^2(t')/L_{gi}^2(t_i) + 2L_{gi}(t_i)/L_{gi}(t') \end{aligned}$$

Table 1 Relaxation time and modulus used to describe the linear viscoelastic behavior of HDPE at temperature 190°C

Mode k	$\lambda_k(\text{s})$	$a_k(\text{Pa})$
1	1.00×10^{-2}	6.94×10^4
2	6.31×10^{-2}	3.75×10^4
3	3.98×10^{-1}	1.56×10^4
4	2.51×10^0	6.13×10^3
5	1.59×10^1	2.04×10^3
6	1.00×10^2	6.40×10^2

(10.3)

(9) 式と (10.1) 式から得られる L_{gi} に対する積分方程式を逐次代入計算法を用いて解析した。

次に、スウェルとドローダウンがパリソン形状に及ぼす影響を同時に考慮するために、以下に示す2つの仮定を採用する。

仮定①：要素の伸長ひずみ ϵ_i

$$\epsilon_i(t_i) = \ln \frac{L_i(t_i)}{L_i(0)} \quad (11)$$

は、スウェルによるひずみ ϵ_{si} とドローダウンによるひずみ ϵ_{gi} の線形的な重ね合わせで表現される²⁾。

仮定②：ドローダウンによって要素径 R_i と肉厚 H_i は変化するが、 χ_R と χ_H の商はその影響を受けない。すなわち、

$$\frac{\chi_R(t_i)}{\chi_H(t_i)} = \frac{R_i(t_i)/R_d}{H_i(t_i)/H_d} \quad (12)$$

の関係が成立する⁴⁾。

仮定①に従い、スウェルとドローダウンを同時に考慮した場合の L_i は、すでに前述の計算手順に従って評価されている L_{si} と L_{gi} とを用いて、

$$L_i(t_i) = \frac{L_{si}(t_i)L_{gi}(t_i)}{v_d \Delta t} \quad (13)$$

と表される。さらに仮定②を導入すると、この L_i と定常粘弾性流動解析結果として得られるスウェルパラメーターを用いて、 H_i と R_i をそれぞれ以下に示すように計算できる。

$$\begin{aligned} H_i(t_i) = & H_d \sqrt{\frac{v_d \Delta t}{L_i(t_i)} \frac{(2R_d - H_d)\chi_H(t_i)}{\{2R_d\chi_R(t_i) - H_d\chi_H(t_i)\}}}, \\ R_i(t_i) = & R_d \chi_R(t_i) \\ & \times \sqrt{\frac{v_d \Delta t}{L_i(t_i)} \frac{(2R_d - H_d)}{\{2R_d\chi_R(t_i) - H_d\chi_H(t_i)\}\chi_H(t_i)}} \end{aligned} \quad (14)$$

3. 数値解析

3.1 定常ダイスウェルシミュレーション

熔融樹脂の伸長流動特性と二重管定常ダイスウェルシミュレーションを通じて算出される押出物形状の相

Fig. 3 Shear viscosity, first normal stress difference : (a) and elongational viscosity : (b) calculated from different damping function models₂ with the experimental data of HDPE

関について検討するために、ほぼ等しいせん断粘度を考慮した以下に示す3ケースの比較解析を行った。

Case 1 : PSM モデル (3.2) 式を採用。

Case 2 : Wagner モデル (3.3) 式を採用。

Case 3 : PSM モデルに対して切断パラメーターを設定 (切断パラメーターの設定値は、せん断と伸長粘度の実測データのモデルフィットを損なわない範囲で選択)。

シミュレーションに要する構成方程式 (3) のモデルパラメーターは、HDPE のせん断と伸長粘度の実測値を用いて決定した。

まず、離散モード数を6に選択し、貯蔵弾性率と損

失弾性率の周波数依存性の実測値から Tschoegl¹⁾の第二近似公式¹⁹⁾を用いて離散型緩和スペクトル a_k, λ_k ($k=1\sim6$) を決定した (Table 1)。

次いで、定常せん断粘度 η_s のせん断速度 $\dot{\gamma}$ 依存性の実測値とモデル予測値のフィッティング計算を通じて α を決定した。Fig. 3 (a) に示すように、 η_s の $\dot{\gamma}$ 依存性に対する実測値と各モデル予測値 (実線 : Case 1, 破線 : Case 2, 一点鎖線 : Case 3) は定量的に良く一致する。

最後に、一軸伸長粘度 η_e の過渡応答特性の実測値をモデル予測値がうまく表現するように、 β をトライアンドエラー的に推定した。Fig. 3 (b) に様々な伸長

Fig. 4 Final streamline element mesh patterns for the straight annular die-swelling calculations using different damping function models

Fig. 5 Extrusion time dependency of the diameter swelling ratio

速度 $\dot{\epsilon}$ に対して、 β に推定値 0.1 を設定した場合の η_e に対する実測値とモデル予測値の比較を示す。PSM モデルに対する切断パラメーターの設定値 (1000) は、Wagner モデルと同様、伸長粘度の定常値と第一法線応力差を低下させる効果を示すが、実測値が存在する短時間側の伸長粘度とせん断粘度のモデルフィットにはほとんど影響を与えない。なお、 b は、HDPE のレオロジー特性を考慮したダイスウェルシミュレーション例¹²⁾を参考にして、 -0.2 、あるいは -0.15 に設定した。物質パラメーター b は、せん断粘度のモデルフィットには影響を及ぼさないが、法線応力差を変化させる。本研究では、 b の絶対値を減少させて第二法線応力差の比率を小さくすると、径スウェル比の予測値は増加し、逆に肉厚スウェル比は減少する傾向が示された。

実験で採用されたストレートタイプの二重管ダイ形状 ($R_d=1.5$, $H_d=0.2$ cm) と成形条件 (流量 1.9 cm³/s, 温度 200°C 等温), および Fig. 3 に示すレオロジー特性を考慮したダイスウェルシミュレーションを行った。ダイ流入口に設定される完全発達流れにおける壁面上の真のせん断速度は、各解析ケースとも約 50.0 s⁻¹ である。

Fig. 4 に定常解として計算された流線要素形状を示す。パリソン押出形状の実験データには、ドローダウンが含まれているため、自重の影響が最も少ない先端外径形状の時間変化の実測値を用いて解析結果の妥当性を検討した。

Case 1 では、外径スウェル比と肉厚スウェル比の予測値 ($\chi_{R\infty}=1.81$, $\chi_{H\infty}=3.65$) が実測値 ($\chi_{R\infty}=1.47$, $\chi_{H\infty}=1.86$) を過大に評価する。対して Case 2, 3 では、平衡スウェル比の実測値が定量的にうまく表現されるようになる。この結果より、スウェル実測値と予測値のずれの要因として、従来の研究で指摘された通り、実測データが収集されていない高ひずみレベルでの伸長粘度特性、あるいは第一法線応力差が大きく影

Fig. 6 Parison length as a function of time for HDPE extrusion

響していることが推察される。せん断速度が、 $10^{-1} \sim 10^2$ s⁻¹ の領域では、Wagnerモデル、PSMモデル (切断パラメーター採用)、PSMモデルの順に第一法線応力差が大きくなる。第一法線応力差がスウェル現象を支配的に決定することは良く知られている。解析結果では、定性的に予測される通り、第一法線応力差の増加に伴ってスウェル計算値が大きくなることが示されている。

解析結果として得られるパリソン長と径の関係は、流体粒子のダイ流出後の平均経過時間を用いて押出時間と径の関係に変換できる。このようにして決定された関係と実測値との比較を Fig. 5 に示す。Case 1 では、外径スウェル比の平衡予測値が実測値を過大評価するとともに、予測値の方が実測値よりも平衡値に速く漸近する傾向を示す。この傾向は、Case 2, 3 の方がより顕著に現れる。この問題点は、ドローダウンが無視できる理想的な条件下において定常的に押し出されるパリソン形状が予測形状よりも下流側で最大径を持つことを意味する。

3.2 非定常押出シミュレーション

ドローダウン現象に対する非定常解析法の定量化能力を検討するために、HDPE に加え、ドローダウンの著しいPCのレオロジー特性を考慮した非定常押出シミュレーションを行った。

まず、HDPE の非定常押出シミュレーションでは、前述した解析 Case 3 の一環として行ったケーススタ

Fig. 7 Parison radius : (a) and thickness : (b) as a function of length and time

ディの中で、実測データを最も良好に表現する定常解析結果（スウェルパラメーター： $\chi_{R\infty}=1.51$, $\chi_{H\infty}=1.91$, $\zeta_R=4.4$ s, $\zeta_H=4.2$ s）を利用し、パリソンの非定常押出形状を予測した。シミュレーション時間は、実測データが押出時間 50 s まで収集されていることを考慮し、押出終了後 10 s のパリソン挙動の推定を含めた計 60 s に設定した。ドローダウンの評価に当たっては、定常解析と同様の緩和スペクトルとパラメーター（ $\alpha=8.0$, $\beta=0.1$, $b=-0.15$ ）を考慮した。また、樹脂密度は、 0.729 g/cm³、成形温度は 190°C 等温とした。

比較のため、Fig. 6 に仮想的な条件下において計算されるパリソン長の時間依存性を示す。スウェルとドローダウンを無視した理想的な条件下（破線）で計算されるパリソン長さが 54 cm であるのに対し、スウェルのみを考慮したケース（一点鎖線）では、パリソン径と肉厚が増加するため、押出終了時のパリソン長は 21 cm に減少する。また、このケースでは、押出終了後 10 s 間にスウェルの時間的な緩和が生じてパリソン長は短くなる。このシュリンクバックは、スウェルパラメーターの時定数が大きくなるほど、また、ドローダウンの影響が少なくなるほど、顕著に現れる。

ドローダウンが伸長応力と自重の釣り合い式から評価されることに留意すれば、ドローダウンのみを考慮したケース（二点鎖線）と理想的な条件下におけるパ

Table 2 Relaxation time and modulus used to describe the linear viscoelastic behavior of PC at temperature 230°C

Case a : Using the modification of the model fitting for elongational viscosity data

Mode k	$\lambda_k(\text{s})$	$a_k(\text{Pa})$
1	1.00×10^{-2}	3.68×10^5
2	6.31×10^{-2}	1.44×10^5
3	3.98×10^{-1}	2.16×10^4
4	2.51×10^0	5.00×10^3

Case b : Calculated from shear viscosity data

Mode k	$\lambda_k(\text{s})$	$a_k(\text{Pa})$
1	5.00×10^{-5}	1.66×10^6
2	5.00×10^{-4}	2.11×10^6
3	5.00×10^{-3}	1.16×10^6
4	5.00×10^{-2}	1.60×10^5
5	5.00×10^{-1}	1.21×10^4
6	5.00×10^0	9.06×10^1

リソンの伸長比： $(70.4/54.0=1.3)$ が、スウェルとドローダウンの双方を考慮した実成形条件下とスウェルのみを考慮したケースの伸長比： $(26.9/20.8=1.3)$ に定量的に一致することが理解できる。

実成形条件を採用した解析においては、スウェルとドローダウンが競合して、パリソンの非定常押出形状を決定する。Fig. 7 にパリソン外径と肉厚に対する予測値と実測値の比較を示す。外径スウェル比の時定数が実際よりも小さいため、押出の初期段階において外径の予測値は実測値よりも大きく評価される。この誤差は、時間経過に伴って見掛け上減少し、押出後 30 s での外径位置がかなりの精度で表現されるようになる。しかしながら、さらに時間が経過するとドローダウンによる伸長が大きく影響し、押出終了時 50 s での外径予測値には 10% 程度の誤差が見られる。

実験条件では、流量が低く抑えられ、押出時間が長く設定されているため、この誤差の要因として、押出時間内におけるパリソン温度の低下が考えられる。

今後、本非定常計算モデルに非等温解析機能を付加し、温度低下に伴う耐ドローダウン性への影響について詳細に検討する必要がある。

PC の非定常押出実験においては、ドローダウンが顕著に現れるが、実測されるスウェルが小さいため、ドローダウンのみを考慮した非定常シミュレーションを行った。

本溶融樹脂に対しても前述した手順に従って、構成

Fig. 8 Elongational viscosity functions of PC

Fig. 9 Parison length as a function of time for PC extrusion

式のモデルパラメーターが決定できるが、せん断と伸長粘度の双方を良好に表現するパラメーターの決定が困難であった。せん断流動特性のモデルフィットを重視して決定された緩和スペクトルを採用した場合（解析 Case b）では、短時間側の過渡伸長粘度が実測よりも高く評価される。そこで、本非定常計算モデルを利用することによって、伸長粘度とドロウダウンに関する実測値をベストフィットする緩和スペクトルを推定した（解析 Case a）。

各解析ケースにおける緩和スペクトルの一覧と伸長粘度のモデルフィットを、それぞれ、Table 2とFig. 8に示す。短時間緩和モードは、過渡伸長粘度の短時間側の特性と定常せん断粘度の高ひずみ側の特性を支配的に決定する。伸長粘度のモデルフィットを改善した Case a では、短時間緩和モードの寄与が Case b と

Fig. 10 Parison shape as a function of time for PC extrusion

比較して低く設定されている。

シミュレーションは、パリソンが切断される直前まで行った。また、計算条件として、流量：4.0 cm³/s、樹脂密度：1.16 g/cm³、成形温度：290°C 等温を採用した。

Fig. 9 に各解析ケース（実線：Case a、破線：Case b）で算出されたパリソン長の時間依存性と実測値を示す。せん断流動特性を重視してスペクトルを決定した Case b は、短時間的に高い耐ドロウダウン性を示し、パリソン長の時間変化の実測値を表現できない。また、このケースでは、Fig. 10 に示すような実測形状には見られない大きなくびれが生じて、パリソンが瞬間的に切断される。いっぽう、Case a では、パリソン長の実測値が定量的に捉えられるとともに、非定常押出形状の観測データも良好に再現される。

これらの比較解析より、ドロウダウンを以下に示すように伸長粘度の時間依存性に関連付けて考察することができる。

- ① 短時間緩和モードが支配的に伸長粘度を決定する溶融樹脂は、重力による伸びに直ちに反応して抵抗力を示すが、伸長応力の時間的な成長が少ないため、重力効果が伸長応力を上回った際に瞬間的に切断される。
- ② 逆に長時間緩和モードが支配的な溶融樹脂は、短時間側での伸長応力が小さいために重力効果による伸びが大きくなるが、長時間側では伸長応力が時間的に成長するため切断されにくくなる。

4. 結 言

自由表面を伴う粘弾性流体の定常解析法と熔融樹脂の一軸伸長変形の変常解析法を併用することによって、押出ブロー成形法におけるパリソン形成過程の数値解析を試みた。以下に今回の研究成果と今後の課題について要約する。

- ① 自由表面を伴う粘弾性流体の定常解析法は、実験条件を考慮した数値解析が可能な技術レベルにある。しかしながら、定常ダイスウェルシミュレーションから予測されるスウェルは、実測データを過大に評価する傾向を示した。実測データと定量的に一致する予測結果を得るには、過渡一軸伸長粘度の長時間側特性や第一法線応力差を低下させる効果を持つ PSM モデルの切断パラメーター、あるいは、Wagner モデルを採用する必要がある。

数値解析の本来の目的は、高分子溶融体のレオロジー特性と成形条件のみを利用して、実現象を予測することにあるが、現状においては、実測データと数値解析結果を対比することによって、構成式のモデルパラメーターやスウェルパラメーターを逆に推定するような手順を踏まえる必要がある。この問題点は、解析プログラムの性能のみならず、レオロジー特性の測定精度や構成式の性能にも関わるものであり、当面、実測値と予測値のずれに対する分析を進めながら対応していかなければならない。

- ② パリソンの非定常的な押出形状を予測する解析法は、スウェルとドロウダウンによるひずみの線形的な重ね合わせから全体ひずみが評価されるとする仮定、およびドロウダウンによるひずみが存在する場合にも、外径スウェル比と肉厚スウェル比の商が不変に保たれるという仮定を採用している。理論的に妥当性が証明されていないこれらの仮定を採用しているにもかかわらず、パリソンの非定常押出形状の予測値は、実測値を定性的に表現することが可能である。予測値と実測値の間の定量的な誤差は、解析で採用する仮定の妥当性に関する問題点よりも、むしろスウェルの時間依存性や伸長粘度に対する予測値と実測値のずれに起因する。したがって、パリソンの定常押出形状と伸長粘度の推定精度が向上すれば、本解析法を用

いることによって、十分な精度で、非定常的なパリソンの押出形状の予測も可能になると考えている。

今回の研究では、低流量で形成される小型パリソンを解析対象とした。今後、実用上重視される大型成形品の成形プロセスに対する本解析法の適用性について検討が必要である。

付 記

本研究で利用したブロー成形 CAE システム：SIMBLOW 開発プロジェクトの関係各位に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 中西清隆, 日経メカニカル, 459, 46 (1995.7.24)
- 2) Ajroldi, G.: *Polym. Eng. Sci.*, **18**, 742 (1978)
- 3) Kamal, M. R., Tan, V., and Kalyon, D.: *Polym. Eng. Sci.*, **21**, 331 (1981)
- 4) Dealy, J. M. and Orbey, N.: *AIChE J.*, **31**, 807 (1985)
- 5) 谷藤眞一郎, 渡辺一彦, 多田和美, 小山清人: 化学工学会第 27 回秋季大会研究発表講演要旨集, L-119 (1994)
- 6) 篠原正之: 第 1 回高分子加工技術討論会講演要旨集, 32 (1989)
- 7) 田上秀一, 中島田義敬, 梶原稔尚, 船津和守, 寺田耕輔, 山部 昌: 成形加工 '94, 197 (1994)
- 8) Tanoue, S., Kuwano, Y., Kajiwara, T., Funatsu, K., Terada, K., and Yamabe, M.: *Polym. Eng. Sci.*, **35**, 1546 (1995)
- 9) Bernstein, B., Kearsley E. A., and Zapas, L. J.: *Trans. Soc. Rheol.*, **7**, 391 (1963)
- 10) Luo, X.-L., and Tanner, R. I.: *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **22**, 61 (1986)
- 11) Luo, X.-L., and Tanner, R. I.: *Int. J. Numer. Methods Eng.*, **25**, 9 (1988)
- 12) Luo, X.-L., and Mitsoulis, E.: *J. Rheology*, **33**, 1307 (1989)
- 13) Papanastasiou, A. C., Scriven, L. E. and Macosko, C. W.: *J. Rheol.*, **27**, 387 (1983)
- 14) 杉山一久: 成形加工 '94, 133 (1994)
- 15) 大槻安彦, 梶原稔尚, 船津和守: 成形加工 '95, 63 (1995)
- 16) Wagner, M. H.: *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **4**, 39 (1978)
- 17) Goublomme, A., Draily, B., and Crochet, M. J.: *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **44**, 171 (1992)
- 18) Tschoegl, N. W.: *Rheological Acta*, **10**, 582 (1971)