溶融ポリマーにおけるスティックスリップ・メルトフラクチャーの機構解明
(高密度ポリエチレン溶融体の不安定流動についての実験的解析)山本 政夫^{*1}Elucidation of mechanisms for stick slip melt fracture of polymer melt
(Experimental analysis of unstable flow of high density polyethylene melt)Masao YAMAMOTO^{*1}^{*1} Yamamoto Plastics Co. LTD.

2-4-1 Keihinjima, Ota-ku, Tokyo 143-0003, Japan

Received: 19 July 2018; Revised: 24 March 2019; Accepted: 25 August 2019

Abstract

During polymer melt extrusion from a circular nozzle, the extrudate at low flow rate shows a stable linear shape with smooth surface but the extrudate at higher flow rate shows unstable shapes with spiral, rosary, or zig-zag structures. This phenomenon is known as melt fracture and hampers high throughput production in polymer processing. For linear polymers, synchronized oscillation of flow volume, extrusion pressures, and shape distortion is frequently observed, and it is known as stick-slip melt fracture (SSMF). Since this phenomenon is an oscillation phenomenon, many studies have been performed to analyze the mechanisms based on the oscillation theory. However, most of previous studies have mainly used mathematical calculation, and therefore experimental evaluations of SSMF have rarely been performed. In this study, we conducted an experimental approach to elucidate the mechanism of SSMF by using high density polyethylene as a polymer with varied lengths of the extrusion nozzle. Experimental results were analyzed by the simple model based on the oscillation theory. In the model, we introduced a supply curve representing a relationship between flow rate and pressure at the supplying side and a flow curve representing a flow resistance at the nozzle side. As a result, it was clarified that SSMF is a phenomenon of self-excited oscillation and also relaxation oscillation caused by the compressive elasticity of polymer melt and the negative damping appearing in a flow curve. We verified that SSMF does not occur when the negative damping is lost by repressing slip at inner side of the nozzle. Furthermore, we identified conditions under which SSMF does not occur despite the existence of negative damping; occurrence of SSMF depends on the mode of polymer supplying, a constant flow mode or a constant pressure mode. The former causes SSMF but the latter does not.

Keywords : Stick slip melt fracture, High density polyethylene, Self-excited oscillation, Relaxation oscillation, Negative damping, Flow curve, Supply curve

1. 緒言

溶融ポリマーを円形断面のノズルから押出すと、流量が少ないときの押出物は丸棒状で表面が平滑なフィラメントであり安定しているが、流量を増していくと外形が乱れ始め、らせん状、数珠状、ジグザグ状になり不安定になる。この現象は一般にメルトフラクチャー (melt fracture) と呼ばれており (Tordella, 1956, 1957, and 1963; Bagley et al., 1958), ポリマーの成形加工においては生産量増大の要求に対して大きな制約となっている。

メルトフラクチャーのなかでも、高密度ポリエチレンや直鎖状低密度ポリエチレン等の線形ポリマーの場合は押出圧力と流量と外形の乱れが周期的に変動することがあり、スティックスリップ・メルトフラクチャー (stick slip melt fracture) と呼ばれている。これは振動現象であり振動理論によって解明しようとする研究がなされた (大久保, 堀, 1977 ; Okubo and Hori, 1980; Molenaar and Koopman, 1994; Durand et al., 1996)。

しかしながらこれらの従来の研究はいずれも計算機による数値計算に大きく依存しているため、この振動現象の本質を十分に捉えるための実験的解析はなされておらず、その後も振動理論に基づく注目すべき研究は報告されていない。そこで筆者らは実験を行い、その結果を負性抵抗による自励振動理論をもとに分析することによりスティックスリップ・メルトフラクチャー（以下、SSMF と記す）の本質を解明することを試みた。

2. 記号

P	ポリマー圧力	Q_B	中間点流量	l, l_1	ノズル長さ
P^*	流路抵抗圧力	Q_e	流出流量	l_2	入口部長さ
P_B	中間点圧力	Q_i	供給流量	d_1	ノズル内径
P_H	射出油圧	Q_0	流量差	d_2	入口部内径
P_I	射出圧力	q_i	Q_B を基準とする供給流量	s_1	ノズル流路面積
P_r	リザーバー内圧力	q_e	Q_B を基準とする流出流量	s_2	入口部流路面積
p	P_B を基準とする圧力	q_0, q_1, q_2	流量差	v_1	ノズル内平均流速
p^*	P_B を基準とする流路抵抗圧力			v_2	入口部平均流速
p_w	圧力振幅				

t	時間	T	周期	B	減衰係数
$\alpha, \beta, \gamma, \delta$	勾配	T_1	圧力上昇時間	C	復元係数
ε	移動係数	T_2	圧力下降時間	M	流路係数
ρ	密度	T_E	周期（実験値）	K	勾配
k	リザーバー係数	T_0	周期（計算値）	V	リザーバー容積

3. 実験

3・1 実験材料、実験装置

実験には高密度ポリエチレン（HB530RN，メルトフローレート 0.7，日本ポリエチレン株式会社）を使用した。実験装置は図 1 に示すように 28 mm のインラインスクリューを装備した油圧式射出成形機の射出シリンダー先端に取り付けた。加熱と保温のために実験装置はヒーターで覆ってある。ノズルは鋼製であり交換可能である。ノズルの内径 d_1 は 1.0 mm であり、長さ l が 0.10, 2.10, 4.18, 6.20, 8.18, 9.11, 10.10, および 11.31 mm のものを使用した。ノズル入口角度は 180° である。圧力測定はノズルの入口側より 14 mm 上流側の流路壁に垂直にあけた直径 2 mm の穴に挿入したロッドに加わる荷重をフォースゲージにより測定した。実験はすべて 190°C で行った。適時、押出物を採取して直接温度を測定した。その結果は $190 \pm 1^\circ\text{C}$ であった。

Fig. 1 Sketch of the experimental setup. The experimental device was attached on the tip of injection cylinder. l : nozzle length.

3・2 実験手順

スクリー回転による摩擦発熱の影響を小さくするために低速回転（約 10 rpm）によりポリマーを溶融させスクリー先端の射出チャンバーに充填し、均温化のために数分間放置してから射出動作により押出した。フォースゲージの値が安定したらリザーバー内のポリマー圧力 P と流量 Q_e を測定した。圧力 P はフォースゲージの荷重より換算し、流量 Q_e は一定時間採取した押出物の重量から測定した。初めは射出圧力 P_i を低く設定し順次増加させた。射出圧力 P_i と流出流量 Q_e と圧力 P がワンセットのデータとして得られた。実際には射出圧力 P_i のかわりに射出用油圧 P_H を記録した。この作業を各長さ l のノズルについて 2 回ずつ実行した。

Fig. 2 Flow curves: a relationship between P (pressure) and Q_e (outflow rate). Stick slip melt fracture (SSMF) and double balance point (DBP) are observed depending on nozzle length (l) and hydraulic pressure of injection (P_H). Black arrow indicates SSMF. Blue shading indicates DBP per one P_H .

Fig. 3 Supply curves: a relationship between P (pressure) and Q_i (supply flow rate). Supply curves obtained within an indicated range of hydraulic pressure of injection (P_H) and Q_i are the lines having similar slopes.

3・3 実験結果

- (1) 各ノズル長 l で得られた P_H と Q_e と P のデータを Q_e vs P のグラフ上にプロットし、 P_H をパラメータとする Q_e と P の関係を表す曲線（フローカーブ）を得た（図2）。フローカーブはある Q_e において圧力測定点からノズル出口までの間の圧力損失が P であることを示している。
- (2) ノズル長 l が 0.10, 2.10 mm の場合では実験を行ったすべての P_H において P_H と Q_e と P のデータセットが得られ、SSMF は発生しなかった（図2）。

- (3) l が 4.18, 6.20, 8.18, 9.11 mm の場合では P_H を増加させていくとある P_H から SSMF が発生し, Q_e と P が測定できず, P_H と Q_e と P のデータセットが得られなくなった (図 2 中矢印の領域). さらに P_H を増加させていくと SSMF は終息し再び P_H と Q_e と P のデータセットが得られた. SSMF の発生状態では圧力をレコーダーに記録することで圧力波形を得て, 記録紙より圧力変動周期 T を読み取った.
- (4) l が 10.10, 11.31 mm の場合では 実験を行ったすべての P_H において P_H と Q_e と P のデータセットが得られ, SSMF は発生しなかった (図 2). しかし, l が 10.10 mm の場合では $P_H=3.1$ MPa, l が 11.31 mm の場合では $P_H=3.3 \sim 3.4$ MPa の範囲において, 同一 P_H に対して 2 つの Q_e と P のデータセットが得られた (図 2 中影付きの部分). これらの領域を二重安定点 (double balance point; DBP) とする.
- (5) l が 4.18~11.31 mm の場合ではフローカーブが低流量側と高流量側の 2 つに分かれていて不連続な領域があり, この領域では流量 Q_e が増加しているにもかかわらず P が減少していた. すなわち負性抵抗となっていた. 上述のように, これらの領域において SSMF が発生, あるいは DBP がみられた.
- (6) SSMF が発生していない安定流動状態では, 流出流量 Q_e と実験装置に供給される流量 Q_i とは等しいため, 図 2 中において同一 P_H の点を各フローカーブから抽出しそれらを線で結ぶと, 各 P_H ごとに Q_i と P との関係, すなわちサプライカーブが得られた (図 2 中の点線群). 流量 Q_i が $8 \sim 18 \text{ g min}^{-1}$ の範囲について同一 P_H の点をプロットしこれを直線近似すると図 3 に示す直線群が得られ, この流量範囲におけるサプライカーブは勾配がほぼ一定の直線群と見なすことができた.
- (7) 2 つに分かれたフローカーブのうち, 低流量側においては, 押出物は不透明な丸棒状であり表面は平滑であった (図 4-1). 高流量側においては, 押出物の外形はらせん状であり, 押出直後は透明であったが固化すると不透明になった (図 4-2). さらに流量を増加させると外形は数珠状になった (図 4-3).
- (8) SSMF が発生している領域においては, 押出物は丸棒状で表面が平滑かつ不透明の状態と外形がらせん状で透明の状態とを交互に繰り返した (図 4-4).

Fig. 4 The extrudate samples showing distinct shapes according to pressure and flow rate. Polymer shape changed from (1) smooth, (4) SSMF, (2) spiral to (3) rosary with increasing hydraulic pressure of injection (P_H). Nozzle length $l = 6.20$ mm.

- (9) SSMF の発生状態で P_H を連続して増加させていくと、圧力変動周期 T が長→短→長と変化し最小値が存在した。圧力が上昇している時間を T_1 とし降下している時間を T_2 とすると、 P_H の増加に伴って $T_1 > T_2$ から $T_1 < T_2$ へと変化した (図 5)。圧力波形は鋸歯状であった。

Fig. 5 Pressure waveforms change according to increasing P_H . Waveforms were obtained by the experiment. P_H : hydraulic pressure of injection. T : period of pressure fluctuation. T_1 : pressure increasing time. T_2 : pressure decreasing time. Nozzle length $l = 6.20$ mm.

押出物の形状は上記のように複雑に変化した。この研究では SSMF の本質をとらえるために押出物の外形や表面の変化についてはあえて解析対象とせず、簡明な取扱いを試みることにする。

実験の結果、SSMF が発生するのはフローカーブにおいて負性抵抗を示す流量域であった。このことから SSMF は負性抵抗による自励振動であることが強く示唆された。この予測をもとに振動理論に基づいて本現象の分析を試みる。

4. 分析

4・1 簡略なモデル

実験装置を図 6 に示す簡略なモデルで近似する。ノズル内径を d_1 、長さを l_1 、流路面積を s_1 、入口部流路の内径を d_2 、長さを l_2 、流路面積を s_2 、ノズル内を流れるポリマーの平均流速を v_1 、入口部流路を流れるポリマーの平均流速を v_2 とする。フローカーブを $P = F_e(Q_e)$ 、サプライカーブを $P = F_i(Q_i)$ によってそれぞれ表す。この 2 つのカーブは P と Q_e と Q_i が時間変化しない状態で得られたデータに基づいて導出したものであるが、 P と Q_e と Q_i が時間の経過に伴って変化する場合も成り立つとする。フローカーブについては流量 Q_e のときの圧力測定点より下流の流路のノズル部および入口部の合計抵抗圧力を表す。混乱を避けるためにこの流路抵抗圧力を P^* で表すと

$$P^* = F_e(Q_e) \quad (1)$$

となる。

またサプライカーブについては流量 Q_i のときの供給圧力を表している。リザーバー内の圧力を P_r とし、リザーバー内での圧力降下が無いものと見なせば

$$P_r = P = F_i(Q_i) \quad (2)$$

となる。

Fig. 6 Schematic of simplified model of experimental setup. P : pressure. P_I : injection pressure. V : reservoir volume. Q_e : outflow rate. Q_i : supply flow rate. d_1 : nozzle inner diameter. d_2 : inner diameter of entrance part. l_1 : nozzle length. l_2 : entrance part length. $F_e(Q_e)$: function of flow resistance (flow curve). $F_i(Q_i)$: function of supply power (supply curve).

4・2 エネルギーバランス

圧力測定点より下流側の流路について考える。これまでに考案された手法（藤井，1947）に倣い，流路内のポリマーの運動を次のように近似する。

この流路に Δt 秒間のうちに流入するエネルギーは溶融ポリマーの密度を ρ とすれば

$$(\text{加わる力}) \times (\text{移動した長さ}) = (\text{加わる圧力 } P \times \text{面積}) \times (\text{平均流速} \times \Delta t)$$

であるので

$$(P \times s_2) \times (v_2 \times \Delta t) = P \frac{1}{\rho} Q_e \Delta t \quad (3)$$

また，この流路で Δt 秒間のうちに損失となるエネルギーは

$$(\text{抵抗力}) \times (\text{移動した長さ}) = (\text{流路抵抗圧力 } P^* \times \text{面積}) \times (\text{平均流速} \times \Delta t)$$

であり， $P^* = F_e(Q_e)$ であるので

$$(F_e(Q_e) \times s_2) \times (v_2 \times \Delta t) = F_e(Q_e) \frac{1}{\rho} Q_e \Delta t \quad (4)$$

流路内の溶融ポリマーの持つ運動エネルギーは第一近似として

$$\frac{1}{2} \times \text{質量} \times \text{平均流速の自乗}$$

と考えることができる。するとこのエネルギーは， ρ が圧力によらず一定であると見なせば，ノズル部分と入口部分を合計して

$$\frac{1}{2} s_1 l_1 \rho \left(\frac{1}{\rho} Q_e \frac{1}{s_1} \right)^2 + \frac{1}{2} s_2 l_2 \rho \left(\frac{1}{\rho} Q_e \frac{1}{s_2} \right)^2 = \frac{1}{2} \frac{1}{\rho} \left(\frac{l_1}{s_1} + \frac{l_2}{s_2} \right) Q_e^2 \quad (5)$$

流れが変動して Δt 秒間に増大する運動エネルギーは式（5）を時間微分して Δt 秒を乗ずれば

$$\frac{1}{\rho} \left(\frac{l_1}{s_1} + \frac{l_2}{s_2} \right) Q_e \frac{dQ_e}{dt} \Delta t \quad (6)$$

この流路内に蓄えられるエネルギーは、この流路内の溶融ポリマーの圧縮弾性を無視して全部運動エネルギーになると考えれば、式 (3), (4), (6) より

$$P \frac{1}{\rho} Q_e \Delta t - F_e(Q_e) \frac{1}{\rho} Q_e \Delta t = \frac{1}{\rho} \left(\frac{l_1}{s_1} + \frac{l_2}{s_2} \right) Q_e \frac{dQ_e}{dt} \Delta t \quad (7)$$

$$\therefore M \frac{dQ_e}{dt} = P - F_e(Q_e) \quad (8)$$

但し M は流路定数として次の式で与えられる.

$$M = \frac{l_1}{s_1} + \frac{l_2}{s_2} \quad (9)$$

4・3 リザーバー

リザーバーの機能について考える. 溶融ポリマーの圧縮性により, リザーバー内に滞留するポリマーの量の増減に比例してリザーバー内圧力 P_r が上下すると考えられる. そして圧力が変動する速度は滞留するポリマー量の変動する速度に比例すると考えられる. すなわち次の式で表すことができる. $P_r = P$ であるから,

$$\frac{dP}{dt} = k(Q_i - Q_e) \quad (10)$$

k はリザーバー定数であり, 後述 4・8 節で示すように実験データから求めることができる.

4・4 流動安定性

4・4・1 フローカーブとサブライカーブの近似

- (1) 実験より得られた図 2 のフローカーブのうち, 低流量側と高流量側との 2 つに別れていて不連続な領域のあるものに注目する. 低流量側フローカーブにおいて Q_e が 8 g min^{-1} 以上で上端点 (E_0 とする) までの部分を直線近似しその勾配を α とする. 高流量側フローカーブにおいては Q_e が 18 g min^{-1} 以下で下端点 (F_0 とする) までの部分を直線近似しその勾配を γ とする. フローカーブの不連続な流量域については, 便宜上フローカーブが連続していると仮定して点 E_0 と点 F_0 とを直線で結び, その勾配を $-\beta$ とする (ただし $\beta > 0$). 以上の操作によりフローカーブは連続した 1 本の折れ線で近似された. これを図 7 に示し, フローカーブを $P^* = F_e(Q_e)$ と記す.
- (2) 点 E_0 と点 F_0 における流量の平均値を Q_B とし, 圧力の平均値を P_B とする. 図 7 において流量が Q_B で圧力 P_B の点を B_a とする. 点 B_a は線分 $E_0 F_0$ の中間点である. また点 E_0 と点 F_0 の流量の差を $2Q_0$ とする.
- (3) 実験で得られた図 3 のサブライカーブ群について, 勾配が同一の平行直線群として近似しこの勾配を $-\delta$ とする (ただし $\delta > 0$).
- (4) 近似したサブライカーブのうち, 流量が Q_B のとき圧力が P_B となるものを選択し図 7 に示す. このサブライカーブは点 B_a を通り, $P = F_i(Q_i)$ と記す.
- (5) $Q_e = q_e + Q_B$, $Q_i = q_i + Q_B$, $P = p + P_B$, $P^* = p^* + P_B$ とする座標変換をおこない, 新たな座標系ではフローカーブは $p^* = f_e(q_e)$, サブライカーブは $p = f_i(q_i)$ でそれぞれ表す. $P^* = F_e(Q_e) = p^* + P_B = f_e(q_e) + P_B$ であるので式 (8) は次のように書き替えられる.

$$M \frac{dq_e}{dt} = p - f_e(q_e) \quad (11)$$

同様に式 (10) は次のように書き替えられる.

$$\frac{dp}{dt} = k(q_i - q_e) \quad (12)$$

以上の操作により図 7 は図 8 となり, フローカーブ $p^* = f_e(q_e)$, サプライカーブ $p = f_i(q_i)$ は以下のよう
に表すことができる.

$$p^* = f_e(q_e) = \begin{cases} \alpha q_e + (\alpha + \beta)Q_0 & q_e < -Q_0 \quad \text{zone I} \\ -\beta q_e & |q_e| \leq Q_0 \quad \text{zone II} \\ \gamma q_e - (\gamma + \beta)Q_0 & q_e > Q_0 \quad \text{zone III} \end{cases} \quad (13)$$

$$p = f_i(q_i) = -\delta q_i \quad (14)$$

Fig. 7 Approximation of discontinuous flow curve $F_e(Q_e)$ by simple model. $F_i(Q_i)$: supply curve. P, P^* : pressure. P_B : pressure at middle point. Q_e : outflow rate. Q_i : supply flow rate. Q_B : flow rate at middle point. Q_0 : flow difference. B_a : middle point. E_0, F_0 : changing points. $\alpha, \beta, \gamma, \delta$: gradients.

Fig. 8 Approximation of discontinuous flow curve $f_e(q_e)$ by simple model. $f_i(q_i)$: supply curve. Three zones are defined (zone I: $q_e < -Q_0$, zone II: $|q_e| \leq Q_0$, zone III: $q_e > Q_0$). p, p^* : pressure. q_e : outflow rate. q_i : supply flow rate. Q_0 : flow difference. E_0', F_0' : changing points. $\alpha, \beta, \gamma, \delta$: gradients.

以上のように設定したパラメータのうち, 各勾配 $\alpha, \beta, \gamma, \delta$ を図 2 のデータより求めた (表 1). なお δ については図 3 のフローカーブ群の勾配の平均値を採用した.

Table 1 Gradients obtained from the experimental data.

l (mm)	4.18	6.20	8.18	9.11	10.10	11.31
$\alpha (10^9 \text{ m}^{-1} \text{ sec}^{-1})$	23.792	39.985	41.052	37.320	43.061	36.253
$\beta (10^9 \text{ m}^{-1} \text{ sec}^{-1})$	16.511	8.476	11.494	22.541	39.991	63.450
$\gamma (10^9 \text{ m}^{-1} \text{ sec}^{-1})$	14.031	14.354	17.693	21.459	20.624	24.491
$\delta (10^9 \text{ m}^{-1} \text{ sec}^{-1})$	42.393	42.393	42.393	42.393	42.393	42.393

l : nozzle length

$\alpha, \beta, \gamma, \delta$: gradient

4・4・2 安定性

図8において原点0（図7では点B_a）は静的安定点であるが、この点の動的安定性を考える。サブライカーブは $p = f_i(q_i)$ であり式(14)より

$$q_i = -\frac{1}{\delta}p \quad (15)$$

式(12)と式(15)より

$$\frac{dp}{dt} = -k\left(\frac{1}{\delta}p + q_e\right) \quad (16)$$

原点0は、図8のゾーンⅡにあるので式(11)と式(13)より

$$p = M \frac{dq_e}{dt} - \beta q_e \quad (17)$$

式(16)と式(17)より

$$M \frac{d^2q_e}{dt^2} + \left(\frac{k}{\delta}M - \beta\right) \frac{dq_e}{dt} + k\left(1 - \frac{\beta}{\delta}\right)q_e = 0 \quad (18)$$

式(18)は線形振動方程式である。振動理論によれば $B = \left(\frac{k}{\delta}M - \beta\right)$ 、 $C = k\left(1 - \frac{\beta}{\delta}\right)$ とおくと $B > 0$ かつ $C > 0$ の場合のみ原点0に収束し安定となる。ノズル長さ6.20 mmの場合を検証してみる。 $d_1 = 1.0$, $l_1 = 6.2$, $d_2 = 10$, そして $l_2 = 14$ mmであるので式(9)より $M = 8.077 \times 10^3 \text{ m}^{-1}$ となる。 β と δ は表1より、 k は仮に後述4・8節の値($k = 40.9113 \times 10^9 \text{ m}^{-1}\text{sec}^{-2}$)を用いると

$$\frac{k}{\delta}M = 7.7945 \times 10^3 \text{ m}^{-1}\text{sec}^{-1} \ll \beta \quad (19)$$

となり $B \approx -\beta$ となる。 $B < 0$ であるので原点0は安定点ではない。同様にしてノズル長さ4.18, 8.18, 9.11, 10.10 mmそして11.31 mmの場合も原点0は安定点ではない。

以上は $f_i(q_i)$ が $f_e(q_e)$ と原点0で交叉している場合であったが、 $f_i(q_i)$ がゾーンⅡにおいて $f_e(q_e)$ と交叉していれば同様の推論によって不安定である（この場合、式(13)は後述の式(37)となる）。

ノズル長さ4.18, 6.20, 8.18, 9.11 mmの場合ではSSMFが発生するが、10.10, 11.31 mmの場合には原点0が不安定であるにもかかわらずSSMFは発生しない。この現象を説明するために図9のような場合を考えてみる。 $\beta > \delta$ であり $f_i(q_i)$ は $f_e(q_e)$ とO, E, Fの3点で交叉している。点EはゾーンⅠであるので式(11), (13)より

$$p = M \frac{dq_e}{dt} + \alpha q_e + (\alpha + \beta)Q_0 \quad (20)$$

式(16), (20)より

$$M \frac{d^2q_e}{dt^2} + \left(\frac{k}{\delta}M + \alpha\right) \frac{dq_e}{dt} + k\left(1 + \frac{\alpha}{\delta}\right)q_e + \frac{k}{\delta}(\alpha + \beta)Q_0 = 0 \quad (21)$$

ここで $q'_e = q_e + \left(\frac{\alpha+\beta}{\alpha+\delta}\right) Q_0$ とおけば

$$M \frac{d^2 q'_e}{dt^2} + \left(\frac{k}{\delta} M + \alpha\right) \frac{dq'_e}{dt} + k \left(1 + \frac{\alpha}{\delta}\right) q'_e = 0 \quad (22)$$

式 (20) は線形振動方程式であり $\left(\frac{k}{\delta} M + \alpha\right) > 0$ かつ $k \left(1 + \frac{\alpha}{\delta}\right) > 0$ であるので安定である。点 F も同様に安定である。以上の推論は $f_i(q_i)$ が $f_e(q_e)$ と原点 0 以外であってもゾーン II で交叉していれば同様に成り立つ(この場合、式 (13) は後述の式 (37) となる)。図 9 でみればノズルの長さ 11.31 mm の場合は $P_H = 3.3 \sim 3.4$ MPa に対して低流量側と高流量側のフローカーブ両者に安定点が存在しどちらかで安定する。ノズルの長さ 10.10 mm の場合は、 $\beta \equiv \delta$ であるので、 $P_H = 3.1$ についてのみ 2 つの安定点が存在し、これが DBP となる。

Fig. 9 A case that flow curve and supply curve can cross at three points within a certain range of hydraulic pressure of injection. Crossing points (E and F) are stable.

以上の考察によりフローカーブとサプライカーブとの関わり方によって SSMF の発生条件が規定されることが解明された。SSMF の発生に関する β と δ の関係を図 10 に示す。なお、ノズルの長さ 2.10 mm の場合は図 2 より $\beta = 0$ とした。 $\beta > 0$ は負性抵抗がある場合であり、 $\delta > \beta$ ならば SSMF が発生するが、 $\delta \leq \beta$ ならば発生しない。図 10 は実験装置の溶融ポリマーの供給特性によって SSMF の発生が支配されていることを示している。すなわち、供給側の特性が定流量押しモードならば(極限は $\delta = \infty$) SSMF が発生する β の値の範囲が広くなり、定圧力押しモードならば(極限は $\delta = 0$) SSMF が発生する β の値の範囲は狭くなる。従来の研究ではこうした SSMF の発生・非発生を説明するモデルは構築できていなかったが(大久保, 堀, 1977; Hatzikiriakos and Dealy, 1992), 本研究においてサプライカーブをモデルに導入することで SSMF 発生条件を明確に定義することができた。この結果から、ポリマー成形加工の現場において SSMF を回避するには押し出し装置の特性の選択とノズル長さの選択が重要であることが示された。

Fig. 10 Map for SSMF occurrence. Occurrence of SSMF is governed by the relationship between δ and β . Stable region (blue shading) : $\beta \leq 0$. SSMF region (pink shading) : $\beta > 0$ and $\beta < \delta$. DBP region (yellow shading) : $\beta > 0$ and $\beta \geq \delta$. Circles indicate experimental values. Neither SSMF nor DBP occurred at $l = 2.10$ mm (blue circle). SSMF and DBP occurred at $l = 4.18 \sim 9.11$ mm (red circles) and at $l = 10.10$ and 11.31 mm (orange circles), respectively. β , δ : gradients. l : nozzle length.

4・5 リミットサイクル

非線形振動理論の手法を用いて $q_e - p$ 平面においてリミットサイクルの存在について考察する.

4・5・1 領域設定

まずノズルの長さ 6.20 mm の場合について、 $q_e - p$ 平面に次の対象領域を設定する (図 11).

領域1 $-1 \leq p \leq 1$ (MPa) かつ $-0.1 \leq q_e \leq 0.15$ (g sec⁻¹)

領域2 $p \leq f_e(q_e) - 0.01$ (MPa) または $p \geq f_e(q_e) + 0.01$ (MPa)

Fig. 11 Area of state point defined in q_e - p plane. Region 1 : $-1 \leq p \leq 1$ and $-0.1 \leq q_e \leq 0.15$. Region 2 : $p < f_e(q_e) - 0.01$ or $p \geq f_e(q_e) + 0.01$. Common area of region 1 and 2 is shown by pink shading.

4・5・2 トrajekトリー

$q_e - p$ 平面において任意の状態点のトラjekトリーについて考える．式 (11), (16) より

$$\frac{dp}{dq_e} = \frac{\frac{dp}{dt}}{\frac{dq_e}{dt}} = -\left(\frac{k}{\delta}M\right) \frac{p + \delta q_e}{p - f_e(q_e)} \quad (23)$$

領域 1 と 2 の共通領域 (図 11 色付きの領域) において $\left|\frac{dp}{dq_e}\right|$ の最大値は次の K の値を越えることがない．

$$K = \left(\frac{k}{\delta}M\right) \frac{|p + \delta q_e|_{\text{MAX}}}{|p - f_e(q_e)|_{\text{MIN}}} \quad (24)$$

ただし $|p + \delta q_e|_{\text{MAX}}$ は $|p + \delta q_e|$ の最大値, $|p - f_e(q_e)|_{\text{MIN}}$ は $|p - f_e(q_e)|$ の最小値を表す． $|p + \delta q_e|_{\text{MAX}}$ は図 10 の点 X で与えられ 7.029 MPa である．また $|p - f_e(q_e)|_{\text{MIN}}$ は 0.01 MPa である．式 (19) より $\left(\frac{k}{\delta}M\right) = 7.7945 \times 10^3 \text{ m}^{-1}\text{sec}^{-1}$ であるので $K = 5.4787 \times 10^6 \text{ m}^{-1}\text{sec}^{-1}$ となる． K を図 11 中の勾配 α と比較してみると $\frac{K}{\alpha} = 1.3701 \times 10^{-4}$ となる． $\left|\frac{dp}{dq_e}\right|$ は K よりも小さいのでこの共通領域においてトラjekトリーは q_e 軸に平行である．

また, $p = f_e(q_e)$ 上では式 (23) より $\left|\frac{dp}{dq_e}\right|$ が ∞ となりトラjekトリーは p 軸に平行となる．

4・5・3 リミットサイクルの存在

次に $q_e - p$ 平面において状態点が進む方向を考える．図 12 に示すように, 状態点は式 (11) から $p > f_e(q_e)$ では $\frac{dq_e}{dt} > 0$ となり q_e の増加方向へ進む, $p < f_e(q_e)$ では $\frac{dq_e}{dt} < 0$ となり q_e の減少方向へ進む．式 (16) から $p < -\delta q_e$ では $\frac{dp}{dt} > 0$ となり p の増加方向へ進む, $p > -\delta q_e$ では $\frac{dp}{dt} < 0$ となり p の減少方向へ進む．図 12 において任意の状態点 Y を例に挙げると, 点 Y は q_e の増加方向へ進む, 図 11 で示す対象領域を越えると式 (23) より $p = f_e(q_e)$ へ近づくとつれて $\left|\frac{dp}{dq_e}\right|$ が増加する．また $\frac{dp}{dt} < 0$ であるので状態点は p の減少方向へ進む, $p = f_e(q_e)$ を越えると $\frac{dq_e}{dt} < 0$ となり q_e および p の減少方向へ進むので $p = f_e(q_e)$ にトラップされその直近を進む．状態点は点 D に達すると $p = f_e(q_e)$ から離れ図 11 で示す対象領域に入り, p はさらに変化しようとする ($\frac{dp}{dt}$ は有限値) が, この領域においてトラjekトリーは q_e 軸に平行であるので状態点は瞬時にジャンプして点 A 直近に至る．ここで状態点が初めに $p = f_e(q_e)$ へ到達した時と同様に再び $p = f_e(q_e)$ にトラップされ, 点 B を経由しジャンプして点 C に到達する．このようにして A→B→C→D→A の直近を進みサイクルが形成される．点 Y 以外の状態点もすべてこのサイクルに収束する．すなわちリミットサイクルが存在し振動が発生する．これが SSMF の発生機構であり, 状態点がジャンプすることから弛緩振動現象である．以上はノズル長さが 6.20 mm の場合であったが, ノズル長さ 4.18, 8.18, 9.11 mm の場合も $p = f_e(q_e)$ の形状が同形であることから, 同様にリミットサイクルが存在し振動が発生する．

Fig. 12 Limit cycle in q_e - p plane. Dots are arbitrary state points. Any arbitrary points in this plane will be trapped in the limit cycle consisting of A, B, C, and D. Arrows indicate progress direction. State points A and C are on $p=f_e(q_e)$ and have the same p with D and B, respectively. State points B and D are changing points.

4・5・4 周期

リミットサイクルは実際には $p = f_e(q_e)$ のごく近傍に存在すると考えられるが、ここでは $p = f_e(q_e)$ と一致すると見なして周期を計算する。このリミットサイクルでは常に $p = p^*$ である。図 12 においてリミットサイクルが $A \rightarrow B \rightarrow C \rightarrow D \rightarrow A$ であるとして $A \rightarrow B$ の所要時間を T_1 、 $C \rightarrow D$ の所要時間を T_2 とし $B \rightarrow C$ と $D \rightarrow A$ の所要時間は 0 とする。周期 T_0 は

$$T_0 = T_1 + T_2 \quad (25)$$

式 (12) と式 (15) より

$$q_e = -\frac{1}{k} \left(\frac{dp}{dt} \right) - \frac{1}{\delta} p \quad (26)$$

T_1 を計算する。 $A \rightarrow B$ はゾーン I であるから式 (13) と式 (26) より

$$p = \alpha \left\{ -\frac{1}{k} \left(\frac{dp}{dt} \right) - \frac{1}{\delta} p \right\} + (\alpha + \beta) Q_0 \quad (27)$$

$$\frac{dp}{dt} = \frac{k}{\alpha} \left\{ (\alpha + \beta) Q_0 - \left(1 + \frac{\alpha}{\delta} \right) p \right\} \quad (28)$$

$$dt = \frac{\alpha}{k} \left(\frac{\delta}{\alpha + \delta} \right) \frac{1}{\left(\frac{\delta}{\alpha + \delta} \right) (\alpha + \beta) Q_0 - p} dp \quad (29)$$

$$T_1 = \int_A^B dt = \int_{-\beta Q_0}^{\beta Q_0} \frac{\alpha}{k} \left(\frac{\delta}{\alpha + \delta} \right) \frac{1}{\left(\frac{\delta}{\alpha + \delta} \right) (\alpha + \beta) Q_0 - p} dp \quad (30)$$

$$\therefore T_1 = -\frac{\alpha}{k} \left(\frac{\delta}{\alpha + \delta} \right) \left\{ \ln \left| \left(\frac{\delta}{\alpha + \delta} \right) (\alpha + \beta) - \beta \right| - \ln \left| \left(\frac{\delta}{\alpha + \delta} \right) (\alpha + \beta) + \beta \right| \right\} \quad (31)$$

T_2 を計算する。 $C \rightarrow D$ はゾーン III であるから式 (13) と式 (26) より

$$p = \gamma \left\{ -\frac{1}{k} \left(\frac{dP}{dt} \right) - \frac{1}{\delta} p \right\} - (\gamma + \beta) Q_0 \quad (32)$$

$$\frac{dP}{dt} = -\frac{k}{\gamma} \left\{ (\gamma + \beta) Q_0 + \left(1 + \frac{\gamma}{\delta} \right) p \right\} \quad (33)$$

$$dt = -\frac{\gamma}{k} \left(\frac{\delta}{\gamma + \delta} \right) \frac{1}{\left(\frac{\delta}{\gamma + \delta} \right) (\gamma + \beta) Q_0 + p} dp \quad (34)$$

$$T_2 = \int_c^D dt = -\int_{\beta Q_0}^{-\beta Q_0} \frac{\gamma}{k} \left(\frac{\delta}{\gamma + \delta} \right) \frac{1}{\left(\frac{\delta}{\gamma + \delta} \right) (\gamma + \beta) Q_0 + p} dp \quad (35)$$

$$\therefore T_2 = -\left(\frac{\gamma}{k} \right) \left(\frac{\delta}{\gamma + \delta} \right) \left\{ \ln \left| \left(\frac{\delta}{\gamma + \delta} \right) (\gamma + \beta) - \beta \right| - \ln \left| \left(\frac{\delta}{\gamma + \delta} \right) (\gamma + \beta) + \beta \right| \right\} \quad (36)$$

ノズル長さ 4.18, 6.20, 8.18, そして 9.11 mm について周期を計算し (計算周期 T_0) 表 2 に示す. ただし, k は各ノズル長で同一であるとして後述 4・8 節の値を用いた ($k = 40.9113 \times 10^9 \text{ m}^{-1} \text{ sec}^{-2}$).

Table 2 Period of pressure fluctuation obtained by the experiment and the calculation.

l (mm)	4.18	6.20	8.18	9.11
T_E (sec)	1.000	0.708	0.925	1.875
T_0 (sec)	1.039	0.641	0.853	1.589
T_E/T_0	0.962	1.104	1.084	1.179

l : nozzle length T_E : Period of pressure fluctuation (experimental) T_0 : Period of pressure fluctuation (calculated; $\varepsilon = 0$)

4・6 サプライカーブの選択

これまでに検証したサプライカーブは図 7 において流量が Q_B のとき圧力が P_B となるもの, すなわち点 B_a を通るものであったが, この条件にあてはまらないサプライカーブについて考える. そうしたサプライカーブにおいては, ①射出油圧 P_H を低くした場合にはサプライカーブが低流量側に移動し, ②高くした場合にはサプライカーブが高流量側に移動する. この移動量を εQ_0 で表すと ($|\varepsilon| < 1$), ①は $\varepsilon < 0$ に相当し, ②は $\varepsilon > 0$ に相当する. 式 (13) は次の式 (37) になる. なお, サプライカーブについては式 (14) と同様である.

$$p^* = f_e(q_e) = \begin{cases} \alpha q_e + (1 + \varepsilon)(\alpha + \beta) Q_0 & q_e < -(1 + \varepsilon) Q_0 \quad \text{zone I} \\ -\beta q_e & -(1 + \varepsilon) Q_0 \leq q_e \leq (1 - \varepsilon) Q_0 \quad \text{zone II} \\ \gamma q_e - (1 - \varepsilon)(\gamma + \beta) Q_0 & q_e > (1 - \varepsilon) Q_0 \quad \text{zone III} \end{cases} \quad (37)$$

この場合のフローカーブとサプライカーブの関係を図 13 に示す. 前述 4・5・3 項において行った推論 (図 12) がここでも同様に成立し, リミットサイクルは $A \rightarrow B \rightarrow C \rightarrow D \rightarrow A$ の直近に存在する.

$\varepsilon = 0$ の場合 (図 7) と同様にして T_1 , T_2 を求めると

$$T_1 = -\left(\frac{\alpha}{k}\right)\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)\left[\ln\left|(1+\varepsilon)\left\{\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)(\alpha+\beta)-\beta\right\}\right| - \ln\left|(1+\varepsilon)\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)(\alpha+\beta) + (1-\varepsilon)\beta\right|\right] \quad (38)$$

$$T_2 = -\left(\frac{\gamma}{k}\right)\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta}\right)\left[\ln\left|(1-\varepsilon)\left\{\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta}\right)(\gamma+\beta)-\beta\right\}\right| - \ln\left|(1-\varepsilon)\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta}\right)(\gamma+\beta) + (1+\varepsilon)\beta\right|\right] \quad (39)$$

ノズル長さ 6.20 mm の場合について実験データを用いて T_1 , T_2 を計算すると図 14 が得られた. ただし k については後述 4・8 節の値を用いた ($k = 40.9113 \times 10^9 \text{ m}^{-1}\text{sec}^{-2}$). 図 14 に示すように T_0 のプロットは ε が 0~0.25 でほぼフラットになり 0.1 近傍で最小となった. この結果はノズル長さ 4.18, 8.18, そして 9.11 mm においても同様であった (図は省略). すなわち, 実験で得られた周期の最小値 T_E をこのモデルにおける $\varepsilon = 0$ のときの値と対応しても差しつかえないと考えられる. 各ノズル長さにおける T_E および T_E/T_0 を表 2 に示す. 簡略なモデルによる計算値と実験値は概ね良好に一致した. 図 14 と同様の実験結果は従来の研究においても観察されている (大久保, 堀, 1977; Kay et al., 2003).

Fig. 13 A relationship between flow curve and supply curve for curves having variable crossing points. Crossing point of flow curve and supply curve can be moved but a limit cycle stably exists. ε : transfer coefficient.

Fig. 14 A relationship of pressure transition period and transfer coefficient (ε) T_0 curve has a peak around $\varepsilon = 0 \sim 0.25$. T_0 : calculated pressure transition period. T_1 : pressure increasing time. T_2 : pressure decreasing time.

4・7 圧力波形

前節 4・6 で扱ったフローカーブとサプライカーブの交点が移動した場合 (図 13) における圧力波形を解析する. A→B はゾーン I にあり点 A の p 座標は $-(1-\varepsilon)\beta Q_0$ であるので式 (26), (37) より

$$t = \int_A^p dt = \int_{-(1-\varepsilon)\beta Q_0}^p \frac{\alpha}{k} \left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right) \frac{1}{\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)(1+\varepsilon)(\alpha+\beta)Q_0 - p} dp \quad (40)$$

$$t = -\left(\frac{\alpha}{k}\right)\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)\left[\ln\left|\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)(1+\varepsilon)(\alpha+\beta)Q_0 - p\right|\right]_{-(1-\varepsilon)\beta Q_0}^p \quad (41)$$

$$t = -\left(\frac{\alpha}{k}\right)\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right) \ln \left| \frac{\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)(1+\varepsilon)(\alpha+\beta)Q_0-p}{\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)(1+\varepsilon)(\alpha+\beta)Q_0+(1-\varepsilon)\beta Q_0} \right| \quad (42)$$

$$\therefore \frac{p}{Q_0} = (1+\varepsilon)\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)(\alpha+\beta) - \left\{ (1+\varepsilon)\left(\frac{\delta}{\alpha+\delta}\right)(\alpha+\beta) + (1-\varepsilon)\beta \right\} \times \exp \left\{ -t \left(\frac{k}{\alpha} \right) \left(\frac{\alpha+\delta}{\delta} \right) \right\} \quad (43)$$

C→D はゾーンⅢにあり点Cの p 座標は $(1+\varepsilon)\beta Q_0$ であるので式(26), (37)より

$$t = \int_C^p dt = - \int_{(1+\varepsilon)\beta Q_0}^p \frac{\gamma}{k} \left(\frac{\delta}{\gamma+\delta} \right) \frac{1}{\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta} \right)(1-\varepsilon)(\gamma+\beta)Q_0+p} dp \quad (44)$$

$$t = -\left(\frac{\gamma}{k}\right)\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta}\right) \left[\ln \left| \left(\frac{\delta}{\gamma+\delta} \right)(1-\varepsilon)(\gamma+\beta)Q_0+p \right| \right]_{(1+\varepsilon)\beta Q_0}^p \quad (45)$$

$$t = -\left(\frac{\gamma}{k}\right)\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta}\right) \ln \left| \frac{\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta} \right)(1-\varepsilon)(\gamma+\beta)Q_0+p}{\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta} \right)(1-\varepsilon)(\gamma+\beta)Q_0+(1+\varepsilon)\beta Q_0} \right| \quad (46)$$

$$\therefore \frac{p}{Q_0} = -(1-\varepsilon)\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta}\right)(\gamma+\beta) + \left\{ (1-\varepsilon)\left(\frac{\delta}{\gamma+\delta}\right)(\gamma+\beta) + (1+\varepsilon)\beta \right\} \times \exp \left\{ -t \left(\frac{k}{\gamma} \right) \left(\frac{\gamma+\delta}{\delta} \right) \right\} \quad (47)$$

ノズル長さ 6.20 mm のとき, 3 つの ε ($-0.95, 0, 0.75$) について圧力の時間変化を計算すると図 15 の圧力波形が得られた. ただし k については後述 4・8 節の値を用いた ($k = 40.9113 \times 10^9 \text{ m}^{-1}\text{sec}^{-2}$). また図 2 より $Q_0 = 1.85 \text{ g min}^{-1}$ とした. この計算値と実験値とを比較すると, $\varepsilon = -0.95$ および $\varepsilon = 0.75$ のときの圧力波形 (図 15) はそれぞれ射出圧力 P_H が低い条件と高い条件における圧力波形 (図 5) と同様の形状を示した. このように, 前節 4・6 で規定した ε と P_H との関係性 (低 P_H は $\varepsilon < 0$, 高 P_H は $\varepsilon > 0$ に相当) が圧力波形の形状から確認され, SSMF 発生時の圧力の挙動を説明する本モデルの有効性を示している.

Fig. 15 Pressure waveform obtained by theoretic calculation. Transition of T_1 and T_2 is similar to that obtained by experimental data (Fig. 5). ε : transfer coefficient. T : period of pressure fluctuation. T_1 : pressure increasing time. T_2 : pressure decreasing time. Nozzle length $l = 6.20$ mm.

4・8 リザーバー定数

リザーバー定数 k の値を実験的に求めるため、長さ 6.20 mm のノズルを使用し押出実験を行い連続的に p_H を変化させることで SSMF を発生させて圧力波形を 2 例得た (図 16, 17). これらの波形において圧力振幅の中間点を G' , H' とし, G' および H' における勾配 $\frac{dp}{dt}$ を測定することで k を求めた.

Fig. 16 An example of SSMF pressure waveform obtained by the experiment. G' , H' : middle points of pressure amplitude. p_w : pressure amplitude. Gradient k was determined at G' and H' .

Fig. 17 An example of SSMF pressure waveform obtained by the experiment. G' , H' : middle points of pressure amplitude. p_w : pressure amplitude. Gradient k was determined at G' and H' .

フローカーブとサプライカーブの関係図 (図 18) において, 圧力振幅 p_w の中間線と $p = f_e(q_e)$ との交点を G , H とし $p = f_i(q_i)$ との交点を R とする. $\overline{GH} = q_0$, $\overline{GR} = q_1$, $\overline{RH} = q_2$ とすると $q_0 = q_1 + q_2$ である.

Fig. 18 A relationship between flow curve and supply curve. $p^* = f_e(q_e)$: flow curve. $p = f_i(q_i)$: supply curve. p_w : pressure amplitude. ε : transfer coefficient. Q_0, q_0, q_1, q_2 : flow difference. q_0 is constant for any εQ_0 . G, H : middle points of pressure amplitude.

図 18 に示すように, εQ_0 の値にかかわらず q_0 は一定である. 式 (12) を再掲する.

$$\frac{dp}{dt} = k(q_i - q_e) \quad (12)$$

点 G においては $\left(\frac{dp}{dt}\right)_G = kq_1$, 点 H においては $\left(\frac{dp}{dt}\right)_H = -kq_2$ である. よって

$$\left(\frac{dp}{dt}\right)_G - \left(\frac{dp}{dt}\right)_H = k(q_1 + q_2) = kq_0 \quad (48)$$

$$\therefore k = \frac{1}{q_0} \left\{ \left(\frac{dp}{dt}\right)_G - \left(\frac{dp}{dt}\right)_H \right\} \quad (49)$$

図 2 よりノズルの長さ 6.20 mm については $q_0 = 5.4 \text{ g min}^{-1} = 0.09 \text{ g sec}^{-1}$ である. よって図 16 より $k = 41.0271 \times 10^9 \text{ m}^{-1} \text{ sec}^{-2}$, 図 17 より $k = 40.7955 \times 10^9 \text{ m}^{-1} \text{ sec}^{-2}$ となるため, これらの平均値 $k = 40.9113 \times 10^9 \text{ m}^{-1} \text{ sec}^{-2}$ を k の実験値として採用する. なお, $1 \text{ MPa} = 10^6 \text{ kg m}^{-1} \text{ sec}^{-2}$ である.

k についてより詳細に解析するため図 1 に示す増設リザーバーによりリザーバーの容積 V を増加させて実験を行った. ノズル長さ 6.20 mm について V を順次増加させて周期 T_E を測定した (図 19). V の初期値は 14.02 mL であり 20.3 mL までは T_E に対して次式で示す比例関係が成立する.

$$T_E = 0.0505V \quad (50)$$

周期とリザーバーの体積とが比例関係にあることは従来の研究における実験結果とも一致する (Hatzikiriakos and Dealy, 1992; Doelder et al., 1998; Kay et al., 2003).

前述のモデル (図 6) を用いた解析によれば式 (25), (31), (36) より

$$T_0 \propto \frac{1}{k} \quad (51)$$

実験と理論が一致すると仮定, すなわち $T_E = T_0$ と仮定すると

$$k \propto \frac{1}{V} \quad (52)$$

これはリザーバーの容積が増加すれば圧力の変動速度が反比例して遅くなることを示している. しかしリザーバーの容積が 20.3 mL 以上ではこの関係は成り立たず, より周期が長くなっている. この原因として, リザーバー増設部分が流路からより遠くなることで, 圧力変動に対する応答が遅れるようになったと考えられる. このことから k はリザーバーの容積と形状の両者に依存すると考えられる.

Fig. 19 Transition of pressure fluctuation period (T_E) depending on reservoir volume (V).
 T_E is proportional to V ($V < 20.3 \text{ mL}$).

4・9 負性抵抗

負性抵抗の発現メカニズムを解析するため、ノズルの内径の表面粗さを変えて実験を行った。実験には Wang and Drda (1997) の方法に倣ってねじ切りノズルを用いた。このノズルは材質が鋼製で内径 1.0 mm、長さ 6.20 mm で内表面にねじ切りがしてある (図 20)。このねじ切りノズルを用いて得られたフローカーブを通常ノズルの場合のフローカーブと比較したところ (図 21)、ねじ切りノズルのフローカーブでは流量の増加に伴って連続的に圧力も増加しており、負性抵抗を示さず SSMF も発生しなかった。また、低流量時においてはねじ切りノズルの場合のフローカーブは通常ノズルのものとよく一致した。これらの結果から、通常ノズルではある特定の流量域でノズル壁面と熔融ポリマーとの間でスリップが発生し負性抵抗が発現するのに対し、ねじ切りノズルではポリマーがねじ溝に拘束されてスリップが起きず負性抵抗が発現しないと考えられる。

Fig. 20 Sectional view of threaded nozzle.

Fig. 21 Effect of surface roughness of nozzle inside on flow curve. Red and black dots and lines indicate the data obtained by using threaded and normal nozzles, respectively. Continuous flow curve was observed for the case using threaded nozzle. $l = 6.20$ mm. Black arrow indicates stick slip melt fracture (SSMF).

5. 結言

本研究では実験的解析とモデル解析を実施し、スティックスリップ・メルトフラクチャーの原因は熔融ポリマーの圧縮弾性とフローカーブにあらわれる負性抵抗であることを解明した。サプライカーブを導入したモデルを構築したことで、スティックスリップ・メルトフラクチャーの発生をフローカーブとサプライカーブによって示される圧力と供給流量および流出流量の関係の相互作用によって説明可能になり、その発生条件を明確に定義づけることに成功した。本研究の結果は、ポリマー成形加工の現場においてスティックスリップ・メルトフラクチャーの発生を回避するためのシステム設計に関する基盤的知見として有用なものである。

謝 辞

この研究の当初より終始懇切なご指導をいただいた堀幸夫先生に深く感謝いたします。また、常に適切なお助言をいただき、サポートしていただいた山崖佳昭様に感謝いたします。そして、論文草稿作成および投稿にあたって尽力していただいた山本京祐様（産業技術総合研究所）に感謝いたします。

文 献

- Bagley, E.B., Cabot, I.M. and West, D.C., Discontinuity in the flow curve of polyethylene, *Journal of Applied Physics*, Vol.29, No.1 (1958), pp.109-110.
- den Doelder, C.F.J., Koopmans, R.J. and Molenaar, J., Quantitative modelling of HDPE spurt experiments using wall slip and generalised Newtonian flow, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Vol.79 (1998), pp.503-514.
- Durand, V., Vergnes, B., Agassant, J.F., Benoit, E. and Koopmans, R.J., Experimental study and modeling of oscillating flow of high density polyethylene, *Journal of Rheology*, Vol.40, Issue 3 (1996), pp.383-394.
- 藤井澄二, 遠心式ポンプの安定性およびサージングについて (第1報), *日本機械学会論文集*, Vol.13, No.44 (1947), pp.184-191.
- Hatzikiriakos, S.G. and Dealy, J.M., Role of slip and fracture in the oscillating flow of HDPE in a capillary, *Journal of Rheology*, Vol.36, Issue 5 (1992), pp.845-884.
- Kay, D., Carreau, P.J., Lafleur, P.G., Robert, L. and Vergnes, B., A study of the stick-slip phenomenon in single-screw extrusion of linear polyethylene, *Polymer Engineering and Science*, Vol.43, Issue 1 (2003), pp.78-90.
- Molenaar, J. and Koopmans, R.J., Modeling polymer melt-flow instabilities, *Journal of Rheology*, Vol.38, Issue 1 (1994), pp.99-109.
- 大久保誠介, 堀幸夫, 高分子溶融体の不安定流動, *日本機械学会論文集*, Vol.43, No.372 (1977), pp.3057-3063.
- Okubo, S. and Hori, Y., Model analysis of oscillating flow of high density polyethylene melt, *Journal of Rheology*, Vol.24, Issue 2 (1980), pp.253-257.
- Tordella, J.P., Fracture in the extrusion of amorphous polymer through capillaries, *Journal of Applied Physics*, Vol.27, No.5 (1956), pp.454-458.
- Tordella, J.P., Capillary flow of molten polyethylene a photographic study of melt fracture, *Transaction of the Society of Rheology*, Vol.1 (1957), pp.203-212.
- Tordella, J.P., Unstable flow of molten polymers: a second site of melt fracture, *Journal of Applied Polymer Science*, Vol.7 (1963), pp.215-229.
- Wang, S.Q. and Drda, P.A., Stick-slip transition in capillary flow of linear polyethylene: 3. Surface conditions, *Rheologica Acta*, Vol.36, No.2 (1997), pp.128-134.

References

- Bagley, E.B., Cabot, I.M. and West, D.C., Discontinuity in the flow curve of polyethylene, *Journal of Applied Physics*, Vol.29, No.1(1958), pp.109-110.
- den Doelder, C.F.J., Koopmans, R.J. and Molenaar, J., Quantitative modelling of HDPE spurt experiments using wall slip and generalised Newtonian flow, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Vol.79 (1998), pp.503-514.
- Durand, V., Vergnes, B., Agassant, J.F., Benoit, E. and Koopmans, R.J., Experimental study and modeling of oscillating flow of high density polyethylene, *Journal of Rheology*, Vol.40, Issue 3 (1996), pp.383-394.
- Fujii, S., Stability and surging of centrifugal pump (1), *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers*, Vol.13, No.44 (1947), pp.184-191 (in Japanese).
- Hatzikiriakos, S.G. and Dealy, J.M., Role of slip and fracture in the oscillating flow of HDPE in a capillary, *Journal of Rheology*, Vol.36, Issue 5 (1992), pp.845-884.
- Kay, D., Carreau, P.J., Lafleur, P.G., Robert, L. and Vergnes, B., A study of the stick-slip phenomenon in single-screw extrusion of linear polyethylene, *Polymer Engineering and Science*, Vol.43, Issue 1 (2003), pp.78-90.
- Molenaar, J. and Koopmans, R.J., Modeling polymer melt-flow instabilities, *Journal of Rheology*, Vol.38, Issue 1 (1994), pp.99-109.

- Okubo, S. and Hori, Y., Unstable flow of polymer melt, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Vol.43, No.372 (1977), pp.3057-3063 (in Japanese).
- Okubo, S. and Hori, Y., Model analysis of oscillating flow of high density polyethylene melt, Journal of Rheology, Vol.24, Issue 2 (1980), pp.253-257.
- Tordella, J.P., Fracture in the extrusion of amorphous polymer through capillaries, Journal of Applied Physics, Vol.27, No.5 (1956), pp.454-458.
- Tordella, J.P., Capillary flow of molten polyethylene a photographic study of melt fracture, Transaction of the Society of Rheology, Vol.1 (1957), pp.203-212.
- Tordella, J.P., Unstable flow of molten polymers: a second site of melt fracture, Journal of Applied Polymer Science, Vol.7 (1963), pp.215-229.
- Wang, S.Q. and Drda, P.A., Stick-slip transition in capillary flow of linear polyethylene: 3. Surface conditions, Rheologica Acta, Vol.36, No.2 (1997), pp.128-134.