

## 二軸押出シミュレーション「TEX-FAN」による 2成分系ポリマーアロイのコンパウンドプロセス予測技術の開発

### Development of Predictive Technology for Compounding Process of Two-component Polymer Alloys by Twin Screw Extrusion Simulation “TEX-FAN”



博士(工学) 福澤 洋平  
Dr. Yohei Fukuzawa



小田 智也  
Tomoya Oda



博士(工学) 富山 秀樹  
Dr. Hideki Tomiyama

#### 要 旨

二軸スクリュ押出機での2成分系ポリマーアロイのコンパウンドプロセスをFAN (Flow Analysis Network) 法によって予測する手法を新たに開発し、当社の二軸押出シミュレーションソフトウェア「TEX-FAN」に搭載した。また、新たにサイドフィード機能を搭載したことで、より実用的な装置構成での物理量予測が可能となった。実験との比較による定量評価では、押出機から吐出された樹脂の温度が比較的良く一致し、本解析手法の有用性が示唆された。

#### — Synopsis —

We have developed a method to predict compounding process of two-component polymer alloys in the twin screw extruder by FAN (Flow Analysis Network) method. The side-feed function makes it possible to predict physical quantity in a practical extrusion process. The results of verification experiment for process of polymer alloy shows the temperature were in good agreement with the experimental data.

#### 1. 緒 言

二軸スクリュ押出機を用いた混練プロセスでは、押出機内の樹脂の温度や圧力などのプロファイルがコンパウンド品の品質を左右する。一般的に、シミュレーションを駆使して押出機内の詳細なプロファイルを予測することが、プロセスの最適化や新規の材料開発を行う面で有効とされる。

二軸スクリュ押出シミュレーションで用いられる代表的な手法として、FAN (Flow Analysis Network) 法、FEM (Finite Element Method)、粒子法が挙げられるが、本報ではFAN法を採用した。FAN法は、樹脂物性とスクリュ構成および押出条件を与えることで、スク

リュ軸方向の滞留時間、充填率、トルク、動力、固相占有率(溶融率)、樹脂温度、樹脂圧力を予測することができる。FAN法はまた、FEMのようにメッシュを作成する手間が不要なため、シミュレーションに要する時間を短縮できることが大きな特徴であり、利便性と操作性に優れた実用性の高いシミュレーション手法である。これにより、実機テストに要する時間に対して、迅速にコンパウンドプロセスでの押出プロファイル予測が行えるため、テスト結果と当該条件での解析結果とを比較しながら、樹脂温度や圧力のプロファイルの改善を効率よく繰り返すことが可能となり、吐出される樹脂の品質調整が行えるといった効果が期待できる。

二軸スクリュ押出機では、単一の樹脂を混練する機会

よりも異なる樹脂同士、あるいは樹脂とフィラーなど、異なる材料をコンパウンディングする機会の方が圧倒的に多い。コンパウンド品の物性は内部のモルフォロジーに大きく影響され、そのモルフォロジーは押出機内での混練状態に左右されるため、目標とするモルフォロジーを得るには押出機の混練条件を最適化することが重要となる。混練過程を把握できれば、コンパウンド品のモルフォロジーを設計する技術者の有用な支援ツールになり得る。しかし、コンパウンド品の混練プロセスを予測する複数樹脂を取り扱うシミュレーションツールは未だ市場で実用化できておらず、それは上記FAN法ソフトウェアでも同様である。

そこで本研究では、2成分系ポリマーアロイコンパウンド品の混練挙動を予測するための演算手法を新たに開発し、当社の二軸押出シミュレーションソフトウェア「TEX-FAN」に搭載したので、その内容について述べる。

## 2. FAN法による2成分系ポリマーアロイの混練過程の解析手法

### 2.1 圧力と温度の演算手法

図1に二軸混練シミュレーションソフト「TEX-FAN」の操作画面を示す。解析条件として、樹脂物性、スクリュ構成、押出条件を設定する。解析を実行すると約10秒で終了し、スクリュ軸方向(樹脂の流れ方向)の各場所での滞留時間、充填率、トルク、パワー、固相率、樹脂温度、樹脂圧力が表示される(各物理量は周方向の平均値)。TEX-FANの詳細な演算手法は既報<sup>(1)</sup>で述べているため、参照されたい。

本節では、主にポリマーアロイの演算手法について述べる。FAN法<sup>(1)</sup>とは、図2のように押出機内の樹脂が通過する3次元の流路を2次元の平板流れに展開し、この平板間の流路を要素分割することで要素間での流入と流出の流量・圧力バランスを解く手法である。各要素間の圧力損失は牽引流と圧力流の合成で表される下記のスクリュ押出特性式<sup>(2)</sup>に基づいて計算される。

$$\bar{Q} = \alpha - \beta \frac{\Delta \bar{P}}{\bar{L}} \quad (1)$$

$$\bar{Q} = \frac{Q}{ND^3}, \quad \Delta \bar{P} = \frac{\Delta P}{\eta N}, \quad \bar{L} = \frac{L}{D} \quad (2)$$

ここで、 $\bar{Q}$ は無次元体積流量[-]、 $\Delta \bar{P}$ は無次元圧力差[-]、 $\bar{L}$ はスクリュエレメント長 $L$ [m]をスクリュ外径 $D$ [m]で無次元化したもの[-]、 $\alpha$ と $\beta$ は牽引流と圧力流の大小を示すパラメータ[-]、 $Q$ は体積流量[m<sup>3</sup>/s]、 $N$ はスクリュ回転数[rps]、 $\Delta P$ は無次元圧力差[Pa]、 $\eta$ は溶融粘度[Pa·s]である。 $\alpha$ と $\beta$ はスクリュのリードや外径

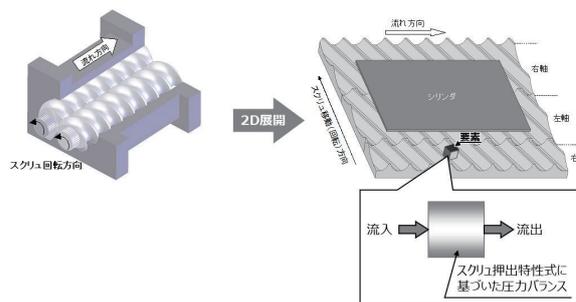


図2 押出機内流路のFAN法によるモデル化

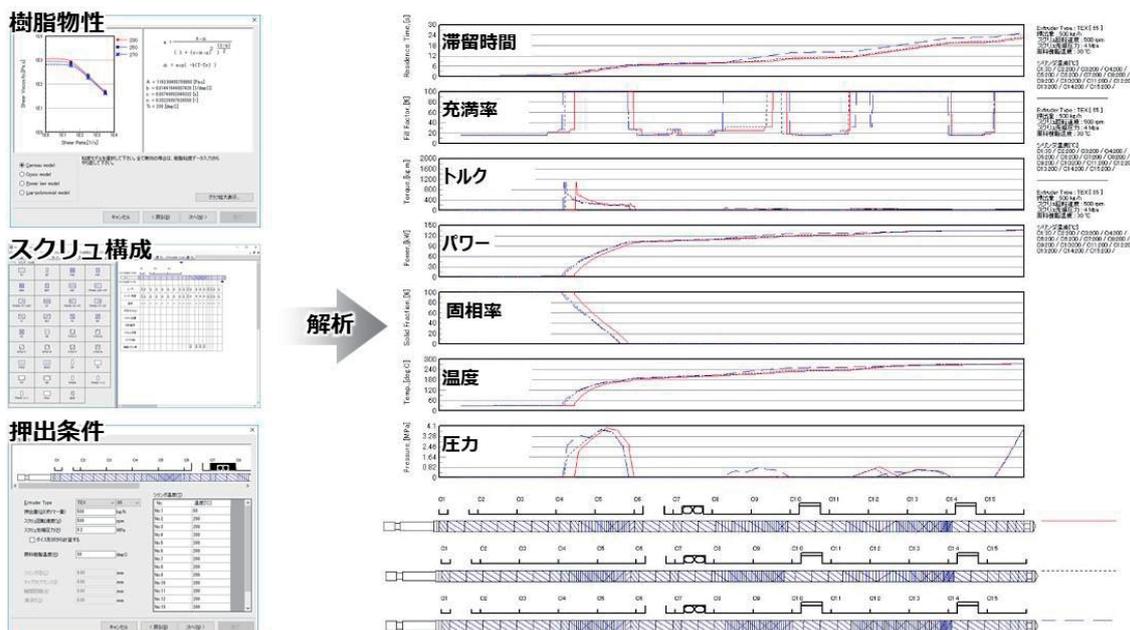


図1 TEX-FANの操作画面

などの形状因子によって決まる。例えばリードが大きいほど $\alpha$ は大きく $\beta$ は小さくなり、圧力流よりも牽引流の寄与が大きくなり前方(下流側)へ流れやすくなる。

2成分系ポリマーアロイの混練においては、(1)式の溶融粘度 $\eta$ に2つの樹脂の混合粘度 $\eta_b$ を用いる。これにより、樹脂が混合した状態での圧力差を算出できる。混合粘度 $\eta_b$ は、相溶系や非相溶系など様々な粘度モデル<sup>(3~5)</sup>が提案されているが、今回は(3)式で示す非相溶性の粘度モデル<sup>(5)</sup>を用いた。粘度モデルの例として、混合粘度と分散相樹脂の混合比の関係を図3に示す。

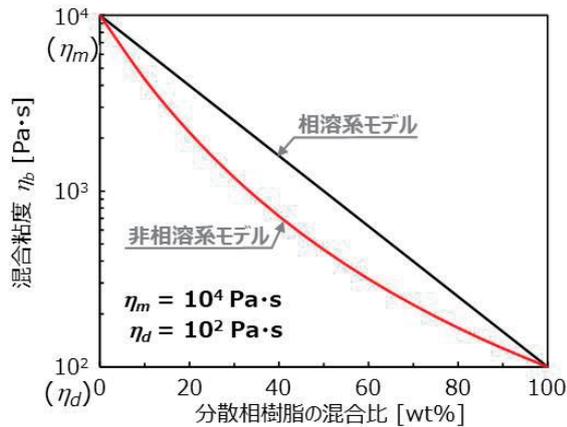


図3 分散相樹脂の混合比と混合粘度関係

$$\log \eta_b = \frac{\log \eta_m \log \eta_d}{C_m \log \eta_m + C_d \log \eta_d} \quad (3)$$

ここで、 $\eta_m$ と $\eta_d$ は2つの樹脂、すなわちマトリクス樹脂と分散相樹脂の粘度、 $C_m$ と $C_d$ はマトリクス樹脂と分散相樹脂の混合比率 [wt%] である。

樹脂温度は、シリンダからの伝熱と粘性発熱量のエネルギーバランスを、各要素内で(4)~(7)式を用いて計算することで導出される。

$$Q\rho Cp(T_{out} - T_{in}) = E_B + \bar{E}_V \quad (4)$$

$$E_B = h(T_{in} - T_c)Af \quad (5)$$

$$\bar{E}_V = \varepsilon_1 \bar{Q}^2 + \varepsilon_2 \bar{Q} + \varepsilon_3 \quad (6)$$

$$\bar{E}_V = \frac{E_V}{\eta N^2 D^3} \quad (7)$$

ここで、 $\rho$ は樹脂の密度 [kg/m<sup>3</sup>]、 $C_p$ は樹脂の比熱 [J/(kg·K)]、 $T_{in}$ と $T_{out}$ は要素に流入または流出する樹脂の温度 [K]、 $E_B$ はシリンダからの伝熱量 [W]、 $E_V$ は粘性発熱量 [W]、 $\bar{E}_V$ は $\eta N^2 D^3$ で無次元化したもの [-]、 $h$ は熱伝達係数 [W/(m<sup>2</sup>·K)]、 $T_c$ はシリンダ温度 [K]、 $A$ は接触面積 [m<sup>2</sup>]、 $f$ は充填率 [-]、 $\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3$ はスクリュの形状因子によって定まるパラメータ [-]である。

また、FAN法では温度計算だけでなく、伝熱とせん断エネルギーから樹脂の溶融挙動を予測できることも大きな特徴である。ポリマーアロイの温度計算においては、シリンダからの伝熱エネルギーとスクリュ回転によるせん断エネルギーが樹脂に加わることで温度変化が生じるとし、それぞれの樹脂に混合比率に応じてエネルギーを分配することで、各樹脂の温度を算出した。各樹脂に与えられるシリンダからの伝熱エネルギーとスクリュ回転によるせん断エネルギーは次式で表される。

$$E_B = h(T_{ave} - T_c)Af \quad (8)$$

$$E_{BA} = E_B x \quad (9)$$

$$E_{BB} = E_B(1 - x) \quad (10)$$

$$E_{VA} = \bar{E}_V x \quad (11)$$

$$E_{VB} = \bar{E}_V(1 - x) \quad (12)$$

ここで、 $T_{ave}$ はA成分樹脂とB成分樹脂(非相溶系の場合は、マトリクス樹脂と分散相樹脂に相当)との平均温度、 $E_{BA}$ と $E_{BB}$ はA成分樹脂とB成分樹脂に加わるシリンダからの伝熱量、 $E_{VA}$ と $E_{VB}$ はA成分樹脂とB成分樹脂に加わるスクリュ回転によるせん断エネルギー、 $x$ はA成分樹脂とB成分樹脂との総量に対するA成分樹脂の混合比率 [-]である。(13)、(14)式に示すA成分樹脂とB成分樹脂の温度変化量 $\Delta T_A$ と $\Delta T_B$ ((4)式の $T_{out} - T_{in}$ )は、(4)式と樹脂に寄与するエネルギー(9)~(12)式から算出した。

$$\Delta T_A = \frac{E_{BA} + E_{VA}}{Q_A C_{pA}} \quad (13)$$

$$\Delta T_B = \frac{E_{BB} + E_{VB}}{Q_B C_{pB}} \quad (14)$$

ここで、 $C_{PA}$ と $C_{PB}$ はA成分樹脂とB成分樹脂の比熱である。なお、各樹脂に加わるエネルギーはシリンダとスクリュ回転からとし、樹脂間のエネルギー交換は無いものと仮定した。

図4に2成分系ポリマーアロイの演算アルゴリズムを示す。初期条件(樹脂物性、押出条件、スクリュ構成)を設定後、まずスクリュ先端部の圧力を境界条件として、押出機内の運動量の計算を行う。このとき、押出条件として与えられる総押出量と2成分の平均粘度(3)式を用いて、(1)式から圧力を算出する。次に、ホッパーから投入する原料温度に基づいて押出機内のエネルギー計算を行う。エネルギー計算では、樹脂の混合比率から算出したエネルギーの割合に応じて各成分樹脂の温度を(13)式および(14)式から算出し、最終的にスクリュ軸方向の各位置での樹脂の圧力と温度が収束するまで反復計算を行う。

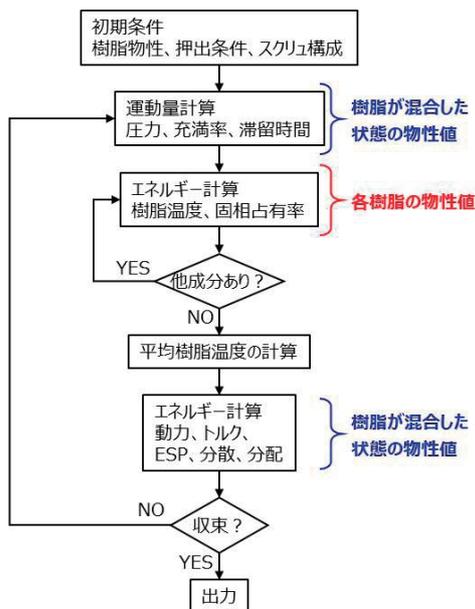


図4 2成分系ポリマーアロイの演算アルゴリズム

## 2.2 サイドフィード機能

ポリマーアロイのコンパウンドプロセスでは、主原料を押出機上流のメインホッパーから投入し、第二成分は押出機途中のサイドフィーダ(あるいはフィーダ)から供給することで混練度合を調整する場合がある。例えば、融点や粘度が大きく異なる原料同士を混合するプロセスでは、上記のように互いに離れた場所から供給する装置構成が適しており、メインホッパーとサイドフィーダとの位置関係によって、得られるコンパウンド品の物性に大きな影響を及ぼす。

このような分離供給プロセスに対応するため、押出機の途中から原料を供給できる解析機能を新たに開発し

た。具体的な計算方法は、押出機途中のサイドフィーダから原料を供給した場合、その供給位置から押出量が増加し、供給位置よりも下流では前節で示した演算アルゴリズムに従って各成分樹脂の物理量を計算する。

図5にアクリロニトリルブタジエンスチレン(ABS)とポリカーボネート(PC)とのアロイのコンパウンドプロセスの予測結果を示す。押出機はTEX54aⅢ(スクリュ $L/D = 42$ )を用い、押出条件は総押出量 600 [kg/h]、スクリュ回転数 800 [rpm]である。もっとも上流側のシリンダC1からABSペレット(押出量 420 [kg/h]、混合比: 70 [%])をトップフィードし、上流側から7番目のシリンダC7からPCペレット(押出量 180 [kg/h]、混合比: 30 [%])をサイドフィードするプロセスである。フィーダから供給したABSは第一混練部で温度上昇するとともに溶融が進行(固相率が低下)し、第一混練部(1st mixing area)を通過した際には完全に溶融状態となり下流へと搬送される。その後、PCをサイドフィード供給することで押出量の増加と共に充満率も上昇し、第二混練部(2nd mixing area)でPCの溶融・混合が進行する。各成分樹脂の固相率と温度および混合温度を予測結果として出力できており、このサイドフィード機能を搭載したことで、より実用的な装置構成での物理量予測が可能である。

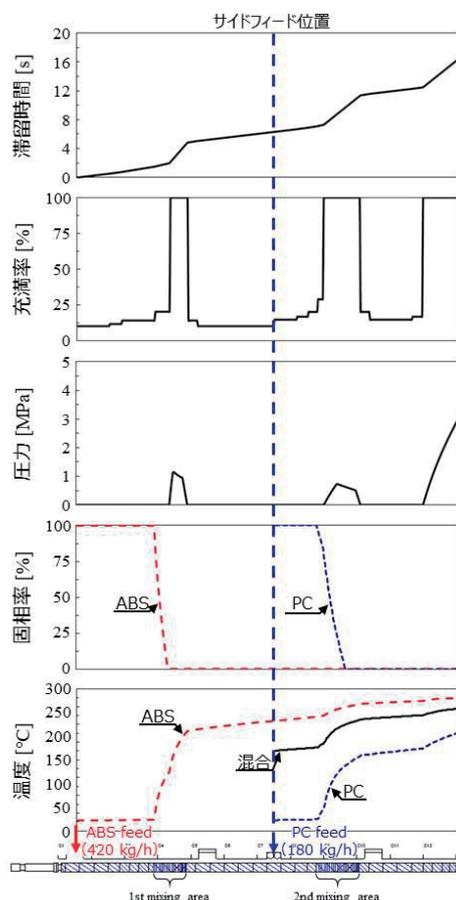


図5 ABS / PC アロイコンパウンドプロセスのFAN法シミュレーション結果

### 3. ポリマーアロイのコンパウンドプロセスの予測

開発したプログラムの妥当性を検証するため、ポリマーアロイのコンパウンドプロセスについて定量評価を実施した。押出機はTEX25aⅢ(スクリュウL/D = 52.5)を用い、スクリュウは2箇所の混練領域を有し、それ以外は全てフルフライトスクリュウ (FF)で構成する形状とした(図6)。使用した樹脂はマトリクス相にポリプロピレン(PP) (MFR=7 [g/10 min], プライムポリマー製 P704NP)、分散相にポリアミド6 (PA6) (相対粘度 2.45, 宇部興産製 1013B)を用いたPPとPA6のポリマーアロイである。押出条件は総押出量 20 [kg/h]、スクリュウ回転数 200 [rpm]とし、重量ベースでの混合比PP/PA6を80/20、70/30、60/40、および50/50の4水準とした。また、樹脂(ペレット状)はフィーダから一括で押出機に投入し、押出後はストランドカッターにてペレットを作製した。解析では、図7に示すCrossモデルでフィッティングしたPPおよびPA6の粘度データを用いた。

図8にPP/PA6アロイのコンパウンドプロセス(PP/PA6=80/20)の解析結果を示す。各混練部では充填率の上昇とともに圧力値が上昇し、これに伴い混練が促進されることで、それぞれの樹脂の温度が上昇し、かつ溶融が進行している。PPは第一混練部で完全に溶融が完了しているが、PA6は完全には溶融しておらず、一部は未溶融のまま押出機から吐出されるという結果になった。このPA6が未溶融状態で吐出する原因として、PA6の融点は230℃と高いため、今回のスクリュウ構成やシリンダ設定温度では完全に溶融させるのに必要なエネルギーが不足していたと推測される。未溶融成分の吐出を防ぐには、より混練性能が高いスクリュウ構成の採用やシリン

ダ設定温度を高くするなどの対策を講じる必要がある。

他の混合比の水準を含めて、シミュレーションと実験で得られた吐出温度を表1に示す。Calがシミュレーション結果、Exp.が実験結果である。解析結果の吐出温度は実測に対して全体的に高めに予測されており、最も大きいもので約8℃の差異が生じているが、これは樹脂の比熱や熱伝導率などの物性値を厳密に入力することで実測値と同等の結果が得られると考えられる。

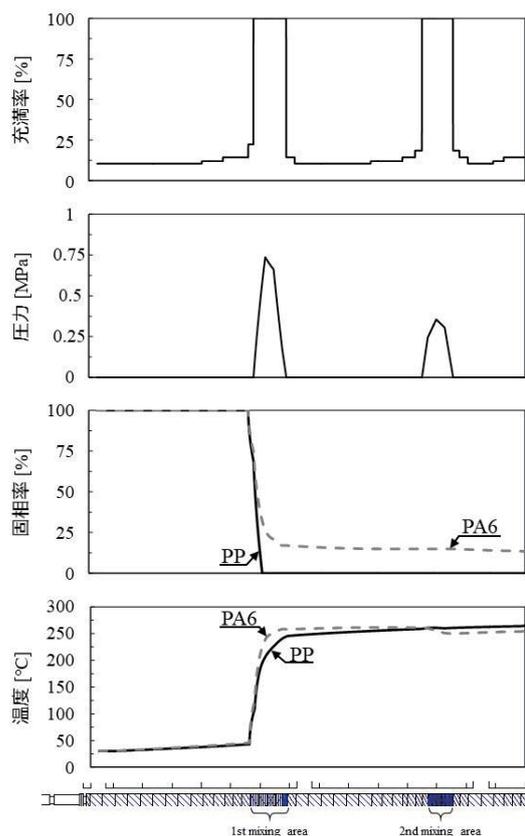


図8 PP / PA6アロイコンパウンドプロセスのFAN法シミュレーション結果(PP / PA6 = 80 / 20)

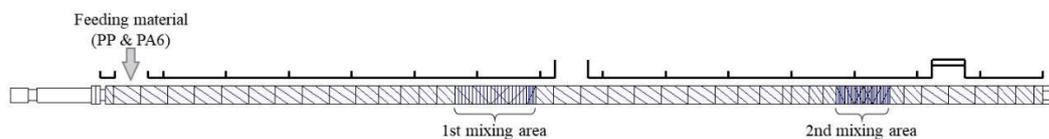


図6 スクリュ構成

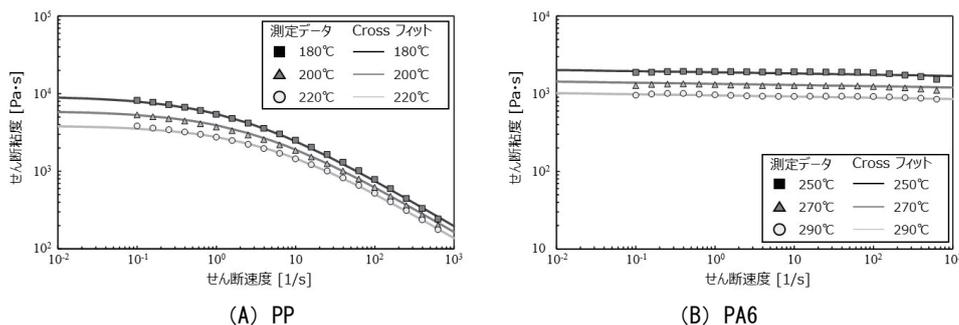


図7 PPとPA6の粘度データ

表1 シミュレーションと実験結果の比較：吐出温度

Throughput [kg/h]	Screw speed [rpm]	Mixing ratio [%]		Outlet temperature [°C]	
		PP	PA6	Exp.	Cal.
20	500	80	20	255	263
		70	30	256	258
		60	40	244	252
		50	50	246	247

#### 4. 結 言

FAN 法による2成分系ポリマーアロイのコンパウンドプロセスの解析手法を新たに開発し、二軸押出シミュレーションソフトウェア「TEX-FAN」に搭載した。この解析と実験との比較評価では、吐出温度が比較的良く一致した。また、新たにサイドフィード機能を搭載したことで、実機と同じ供給形態でも解析が可能となり、従来よりも解析対象の範囲が拡張した。以上より、本報の解析手法はポリマーアロイのコンパウンドプロセスを予測できる有用な手法といえる。今後も、押出機によるコンパウンドプロセスにおいて、実プロセスに沿ったシミュレーション技術の開発を行う所存である。

#### 参 考 文 献

- (1) 富山秀樹, 石橋正通, 井上茂樹: “二軸スクリュウ押出機内の樹脂挙動解析ソフトウェア「TEX-FAN」の開発”, 日本製鋼所技報, 55 (2004), p. 32
- (2) Carley, J. F., Mallouk, R.S. and Mckelvey: “Simplified Flow Theory for Screw Extruders”, industrial and Eng. Chem., Vol.45 (1953) No.5, p. 974
- (3) Shenoy, A. V., Saini, D. R.: “Melt Rheology of Polymer Blends from Melt Flow Index”, Int. J. Polym. Materials, Vol.10 (1984), p. 213
- (4) Bersted, B. H., Slee, J. D. and Richter, C. A.: “Prediction of Rheological Behavior of Branched Polyethylene from Molecular Structure”, J. Appl. Polym. Sci., Vol.26 (1985) No.3, p. 566
- (5) Venkatramanan, K., Padmanaban, R. and Arumugam, V.: “A Study on The Molecular Interaction of PPG 3000 and its Blend Using Ultrasonic Technique”, American Institute of Physics Conference Proceedings, 1433 (2012), p. 539