

熱可塑性溶融樹脂の粘度特性を 数式化するソフトの開発

Computer Analysis for Fitting Viscosity Data of Molten Thermoplastics by a Polynominal

畑中 貞男* 北川 博*
Sadao Hatanaka Hiroshi Kitagawa
山根 喜実** 福田 厚**
Yoshimi Yamane Atushi Fukuda

The viscosity of molten thermoplastics depends on both shear rate and temperature. Those viscosity data are essential to computer flow analysis which is now a powerful tool for predicting the flow of molten thermoplastics into an injection mold. Then it is desirable to describe the viscosity data with a mathematical model over the wide range of shear rate and temperature.

In the present paper, we develop a computer program, which is capable of allowing us to fit the viscosity data by a polynominal including Bagley and Rabinowitsch corrections of the measured raw data, to show fitted curves obtained at each stage of calculations on a CRT screen and to take copies of those shown figures with a laser printer.

This program was verified, using the measured raw data of PE and PP. The agreement between data points and fitted curves was quite good except that at low shear rates.

1. はじめに

熱可塑性溶融樹脂の粘度特性は、射出成形における金型内の樹脂の流れを解析するうえで最も重要な材料特性である。最近ではコンピュータを利用したシミュレーション技術の進歩により、樹脂の流れを解析するソフトを用いて、金型の検討が設計段階から行えるようになっていく。しかし、この種のソフトを用いた解析を行うには、粘度特性や熱的特性など樹脂の材料特性をコンピュータに入力する必要がある。したがって、材料特性は単に測定するだけでなく、さらに、それをコンピュータで利用しやすい形に数式化しておくことが望ましい。

樹脂の粘度特性は、細管式の測定装置を用いて測定できるが、その特性はせん断速度や温度に依存し、また、測定値はそのままで利用できず、圧力の補正など^{1),2)}を

行う必要がある。したがって、完全な粘度特性を求めるには、種々のキャピラリを用いた、種々の温度と種々のせん断速度のもとでの測定が要求され、その測定や数式化のために費やす労力や時間は無視できない。

粘度特性を数式化する方法は種々提案されているが³⁾、対数関数の多項式を用いるMünstedtの方法⁴⁾は低せん断速度域および高せん断速度域においてそれぞれ直線で近似する必要があるものの、そのソフト化は比較的容易に行える。そこで本報ではMünstedtの方法を用いて、粘度特性をコンピュータで利用しやすい形に数式化するソフトの開発を行う。そして、細管式の粘度特性測定装置で測定したポリエチレン、ポリプロピレンの粘度特性データをコンピュータ処理し、開発したソフトの有用性について検討する。

2. 記号

本報で用いた記号は次のとおりである。
a_n, a_r: シフトファクタ

* 材料技術部 プラスチック材料研究室

** 大宝工業(株)

$c_0 \sim c_4, c'_0 \sim c'_4$: 粘度特性曲線の定数

c_5, c_6, c'_5, c'_6 : シフトファクタの定数

D: キャピラリの直径

L: キャピラリの長さ

Pe, Pm: 圧力の補正值および測定値

Q: キャピラリー中を流れる樹脂の流量

R: キャピラリの半径

T, T₀: 樹脂の温度および基準温度

Γ, γ : 見掛けおよび真のせん断速度

η', η : 見掛けおよび真の粘度

τ : キャピラリー壁面のせん断応力

3. ソフトの開発

Münstedtの方法を用いて、粘度特性曲線をせん断速度と温度の関数として数式化するソフトの開発を行った。

3-1 数式化のための基礎式

半径R, 長さLのキャピラリー中を温度Tの樹脂が流量Qで流れるとき、壁面におけるせん断応力 τ , 見掛けのせん断速度 Γ および見掛けの粘度 η' はそれぞれ次式で記述できる^{1),2)}。

$$\tau = R(P_m - P_e) / 2L \quad (1)$$

$$\Gamma = 4Q / \pi R^2 \quad (2)$$

$$\eta' = \tau / \Gamma \quad (3)$$

ある基準温度T₀の見掛けの粘度 η' の特性曲線が

$$\log \eta'(\Gamma, T_0) = c'_0 + c'_1 \log \Gamma + c'_2 (\log \Gamma)^2 + c'_3 (\log \Gamma)^3 + c'_4 (\log \Gamma)^4 \quad (4)$$

で近似できると、シフトファクタ a'_T を用いて、任意の温度Tに対する見掛けの粘度 η' の特性曲線を

$$\log \eta'(\Gamma, T) = \log a'_T + c'_0 + c'_1 \log(a'_T \Gamma) + c'_2 (\log(a'_T \Gamma))^2 + c'_3 (\log(a'_T \Gamma))^3 + c'_4 (\log(a'_T \Gamma))^4 \quad (5)$$

で数式化できる¹⁾。シフトファクタ a'_T については、種々の式が提案されているが^{5),6)}、ここではアレニウス型のシフトファクタ

$$\log a'_T = c_5 + c_6 / T \quad (6)$$

を用いる。また、真のせん断速度 γ と真の粘度 η はそれぞれ次式で記述できる^{1),2)}。

$$\gamma = \frac{3}{4} \Gamma + \frac{\tau}{4} \frac{d\Gamma}{d\tau} \quad (7)$$

$$\eta = \tau / \gamma \quad (8)$$

式(7), (8)は式(3)を用いて変形することにより、それぞれ次式を得る。

$$\gamma = \frac{\Gamma}{4} \left\{ 3 + \frac{1}{\left(\frac{\Gamma}{\eta'} \frac{\partial \eta'}{\partial \Gamma} + 1 \right)} \right\} \quad (9)$$

$$\eta = \eta' \Gamma / \gamma \quad (10)$$

したがって、式(5)が既知であれば、真の粘度 η の特

性曲線に対しても、見掛けの粘度特性曲線の場合と同様

$$\log a_T = c_5 + c_6 / T \quad (11)$$

$$\log \eta(\gamma, T) = \log a_T + c_0 + c_1 \log(a_T \gamma) + c_2 (\log(a_T \gamma))^2 + c_3 (\log(a_T \gamma))^3 + c_4 (\log(a_T \gamma))^4 \quad (12)$$

で数式化できる¹⁾。ただし、いずれの場合も低せん断速度および高せん断速度域においては、それぞれ直線で近似する必要がある。

3-2 ソフトの概要

FORTRAN, CおよびGKS⁷⁾(2次元グラフィックス・ライブラリ)を用いて、エンジニアリングワークステーション上で動くソフトを開発した。本ソフトは、細管式の粘度特性測定装置で測定した見掛けのせん断速度 Γ と圧力Pmを入力することにより、以下に示す各計算が行えると同時に、その結果をワークステーションのディスプレイ上に描画させて確認できる機能がある。

(1) L/D 10, 20, 30, 40の各キャピラリーに対する見掛けのせん断速度 Γ と圧力Pmのデータ点を平滑化する近似曲線をそれぞれ求める。

(2) 平滑化した各近似曲線から、 Γ 一定のときの圧力値をそれぞれ求める。その結果を用いて、 Γ 一定のときのL/Dと圧力のデータ点を近似する直線を求める。さらに、その直線の式から、圧力の補正值Pe (L/D=0のときの圧力値)を求める。

(3) 式(1)~(3)から見掛けの粘度 η' を計算し、各測定温度Tに対する Γ と η' のデータ点を近似する曲線(式(4))をそれぞれ求める。

(4) 基準温度T₀を選択し、その温度T₀に対する近似曲線を他の温度の近似曲線上に重ね、そのときの移動量 $\log a'_T$ を求める。

(5) $\log a'_T$ と $1/T$ のデータ点を近似する直線を求め、その直線(式(6))の定数 c'_5, c'_6 と基準温度T₀に対する近似曲線(式(4))の定数 $c'_0 \sim c'_4$ から任意の温度Tに対する近似曲線(式(5))を求める。

(6) 式(9), (10)を用いて、真の粘度特性曲線に対しても、見掛けの粘度特性曲線の場合と同様の方法で、式(11), (12)の定数 $c_0 \sim c_6$ を求める。

4. 粘度特性の測定

細管式の粘度特性測定装置(キャピログラフ1B形式P-C)と、直径1 mm, L/D 10, 20, 30, 40の4種類のキャピラリーを用いて、ポリエチレン(HDPE), ポリプロピレン(PP)の粘度特性を測定した。測定温度は、ポリエチレンの場合150, 170, 190, 210, 230°C, ポリプロピレンの場合180, 200, 210, 220, 240°Cとし、それぞれの温度に対して、見掛けのせん断速度 $6.08 \sim 6.08 \times 10^4 \text{ sec}^{-1}$ の範囲で測定した。

5. 結果と考察

ポリエチレンおよびポリプロピレンの見掛けのせん断速度 $\dot{\Gamma}$ と圧力 P_m をエンジニアリングワークステーションに入力して計算させ、ディスプレイ上に描画させた結果を図1~6および表1, 2に示す。図中の記号 \circ , \times は測定値あるいは計算後のそれぞれのデータ点を、また、記号 \cdots は近似曲線あるいは直線を示す。

5-1 圧力の補正

図1は、粘度特性測定装置を用いて測定したポリエチレンの見掛けのせん断速度 $\dot{\Gamma}$ と圧力 P_m のデータ点およびその近似曲線を描画させた例である。曲線は $\log \dot{\Gamma}$ の二次の多項式で近似した。この曲線により、データ点の平滑化が行える。

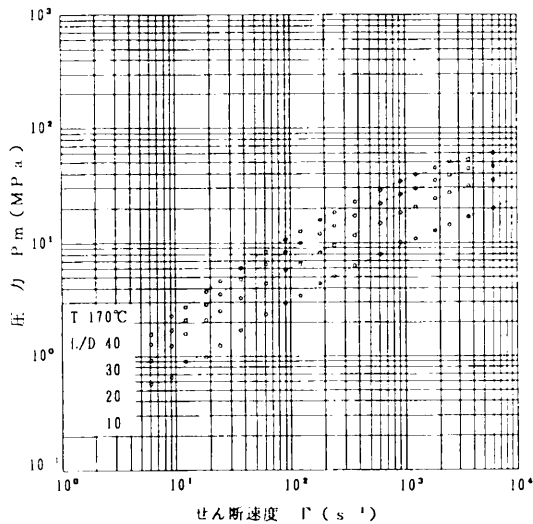


図1 ポリエチレンのせん断速度 $\dot{\Gamma}$ と圧力 P_m のデータ点およびその近似曲線 ($T=170^\circ\text{C}$)

Plot of pressure P_m vs shear rate $\dot{\Gamma}$ for HDPE at 170°C (\circ) and fitted curves (\cdots).

図2は、図1の曲線から $\dot{\Gamma}$ 一定のときの L/D と圧力を求め、そのデータ点とそれを近似した直線とをそれぞれ描画させた例である。図2 (a) および (b) から明らかのように、ポリエチレンの圧力補正值 $Pe (L/D)=0$ のときの圧力値は、見掛けのせん断速度が高いほど、また、温度が低いほど大きくなる。これは流量が増すほど、また、粘度が高いほどキャピラリの入口および出口における圧力損失が大きくなることを示している。なお、ポリプロピレンの圧力補正值についても、ポリエチレンの場合と同様のことがいえる²⁾。

5-2 粘度特性曲線の数式化

図3は、式(1)~(3)から各測定温度の見掛けのせん断速度 $\dot{\Gamma}$ に対応する見掛けの粘度 η' をそれぞれ求め、

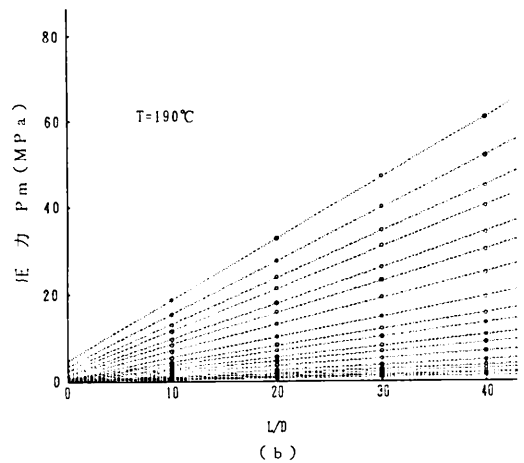
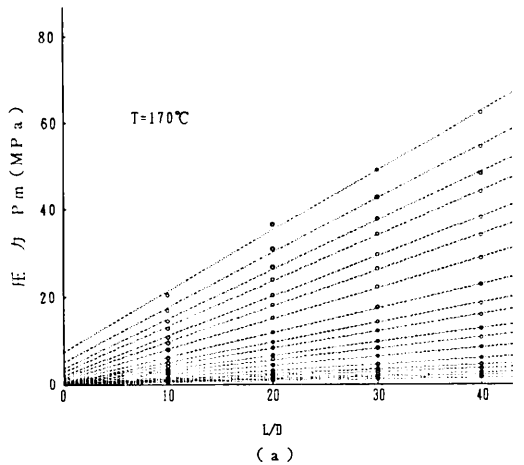


図2 ポリエチレンの L/D と圧力 P_m のデータ点およびその近似直線 ((a) : $T=170^\circ\text{C}$, (b) : $T=190^\circ\text{C}$)

Plot of pressure P_m obtained from fitted curves of Fig. 1 vs L/D for HDPE (\circ) and fitted straight lines (\cdots), (a) at 170°C , (b) at 190°C .

そのデータ点および各測定温度の近似曲線(式(4))を描画させた例である。ポリエチレン(図3 (a)), ポリプロピレン(図3 (b))いずれの場合も、各近似曲線は各測定温度のデータ点を良く近似している。ただし、ポリエチレンの場合の近似曲線は低せん断速度域での形状に差があり、また、ポリプロピレンの場合も温度 200°C の近似曲線は、温度 210°C の近似曲線と低せん断速度域で交差しており、他の近似曲線に比べ若干その形状に差がある。これは低せん断速度域におけるデータ点のばらつきが大きいことに起因していると考えられる。粘度特性測定装置の圧力センサは温度の影響を受けやすく、また、低せん断速度域での圧力 P_m は小さい。そのために、高い温度で、かつ、低せん断速度で測定するときは、圧力 P_m への測定誤差の影響が大きくなる。このような条件下での測

定には、測定開始直前に再度ゼロおよびフルスケールの調整をし、センサ周囲の温度変化にともなう測定誤差が小さくなるよう注意すべきである。

図4は、図3(a)の温度190℃の曲線および図3(b)の温度210℃の曲線を基準曲線とし、その曲線をそれぞれ図3(a)および図3(b)の他の曲線上に移動させて、そのときの移動量 $\log a_T$ と $1/T$ のデータ点およびその近似直線をそれぞれ描画させたものである。直線はいずれの場合もデータ点とよく一致しており、この直線からシフトファクタ(式(6))の定数 c'_5 、 c'_6 が求まる。

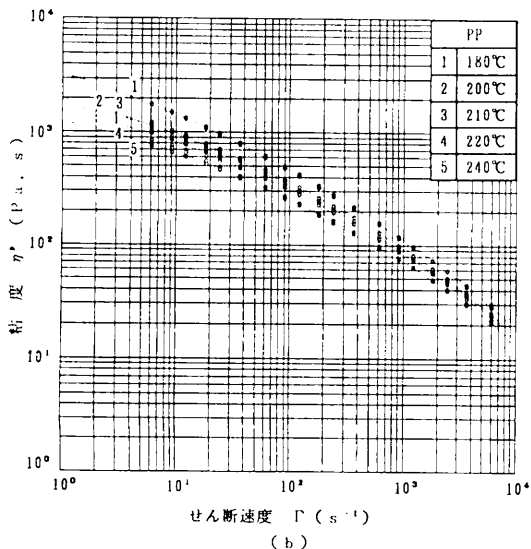
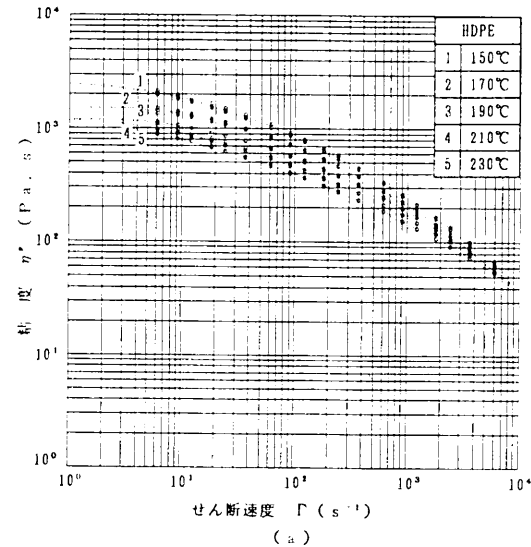


図3 各測定温度のせん断速度 Γ と粘度 η^* のデータ点および式(4)を用いたそれぞれの近似曲線((a):HDPE,(b):PP)

Plot of viscosity η^* vs shear rate Γ after Bagley correction (O) and fitted curves with Eq.4 (---), (a) for HDPE, (b) for PP.

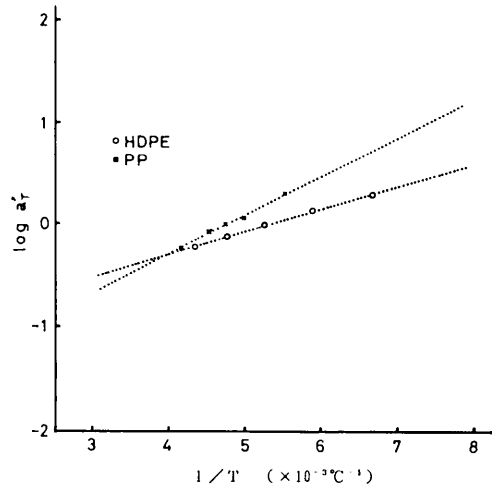


図4 移動量 $\log a_T$ と $1/T$ のデータ点およびその近似直線(HDPE: $T_0=190^\circ\text{C}$, PP: $T_0=210^\circ\text{C}$)
Plot of $\log a_T$ vs $1/T$ for HDPE (O), PP (×) and fitted straight lines (---).

図3の基準曲線の定数 $c'_0 \sim c'_4$ と図4の直線の定数 c'_5 、 c'_6 を利用して、見掛けの粘度特性曲線をせん断速度と温度の関数として数式化(式(5))できる。図5は見掛けのせん断速度 Γ と見掛けの粘度 η^* のデータ点および式(5)を用いた曲線をそれぞれ描画させたものである。図5(a)および(b)から明らかのように、式(5)による各データ点のあてはめは、ポリエチレン、ポリプロピレンいずれの場合も一部の低せん断速度域を除いた他の全領域でよく一致している。表1に式(5)、(6)の各定数を示す。

図6は真のせん断速度 γ と真の粘度 η のデータ点および式(12)を用いた曲線をそれぞれ描画させたものである。図5の場合と同様、式(12)による各データ点のあてはめは、ポリエチレン(図6(a))、ポリプロピレン(図6(b))いずれの場合も一部の低せん断速度域を除いた他の全領域でよく一致している。表2に式(11)、(12)の各定数を示す。

6. 結論

粘度特性曲線を数式化するソフトの開発を行った。測定したポリエチレン、ポリプロピレンの粘度特性データをコンピュータに入力して計算させ、その結果をディスプレイ上に描画させて、開発したソフトの有用性について検討した。一部の低せん断速度域でのあてはめは悪かったが、その他の領域では精度よく近似できた。本ソフトを利用すれば、入力データを作成するだけで、粘度特性曲線の数式化が短時間に行え、また、レーザプリンタなどを接続すれば、ディスプレイ上に描画させた結果のハードコピーが得られる。

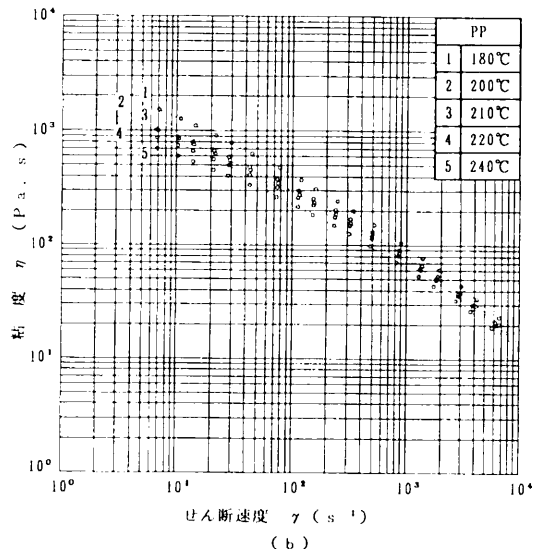
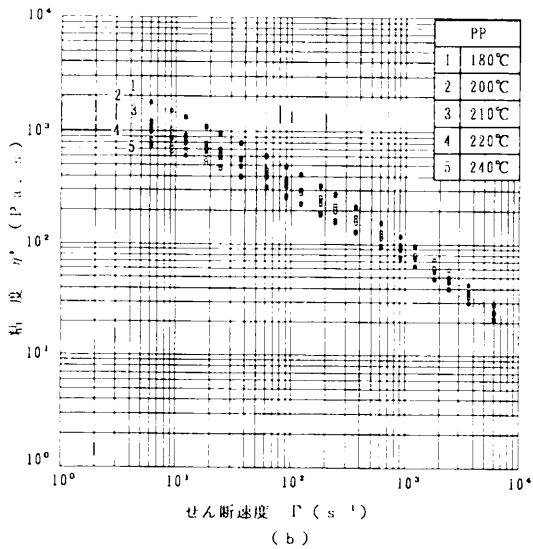
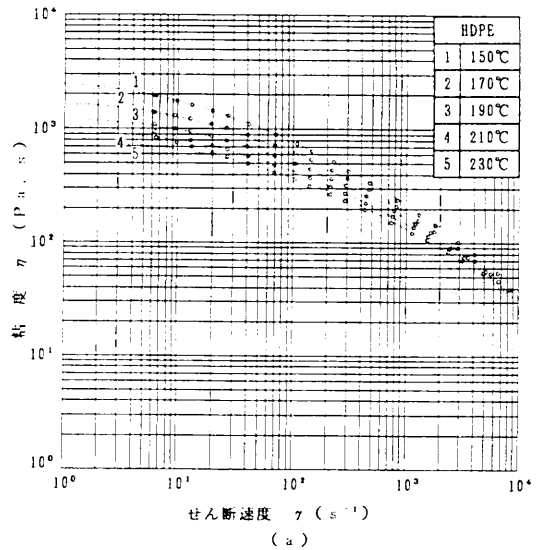
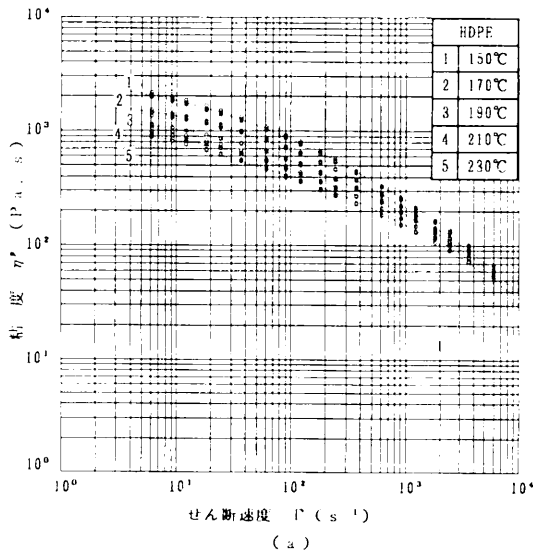


図5 各測定温度のせん断速度 Γ と粘度 η' のデータ点および式(5)を用いた近似曲線((a):HDPE,(b):PP)
Plot of viscosity η' vs shear rate Γ after Bagley correction (○) and fitted curves with Eq. 5 (---), (a) for HDPE, (b) for PP.

図6 各測定温度のせん断速度 γ と粘度 η のデータ点および式(12)を用いた近似曲線((a):HDPE,(b):PP)
Plot of viscosity η vs shear rate γ after Bagley and Rabinowitsch corrections (○) and fitted curves with Eq. 12 (---), (a) for HDPE, (b) for PP.

表1 式(5),(6)の定数
Coefficients of Eqs. 5 and 6 for HDPE and PP

定数	HDPE	PP
c_0	3.067	3.297
c_1	7.453×10^{-2}	-2.537×10^{-1}
c_2	1.321×10^{-1}	-6.482×10^{-2}
c_3	9.094×10^{-3}	5.656×10^{-4}
c_4	-9.282×10^{-4}	4.431×10^{-5}
c_5	1.190	-1.823
c_6	2.247×10^2	3.811×10^2

表2 式(11),(12)の定数
Coefficients of Eqs. 11 and 12 for HDPE and PP

定数	HDPE	PP
c_0	3.073	3.268
c_1	5.036×10^{-2}	-2.593×10^{-1}
c_2	1.301×10^{-1}	-6.897×10^{-2}
c_3	8.650×10^{-3}	6.995×10^{-4}
c_4	8.012×10^{-4}	-3.235×10^{-5}
c_5	1.190	1.823
c_6	2.247×10^2	3.811×10^2

参 考 文 献

- 1) 伊藤勝彦訳, 高分子加工工学, 丸善(株), (昭和47)
- 2) R.Darby, Viscoelastic Fluid An Introduction to Their Properties and Behavior, Marcel Dekker Inc., (1976)
- 3) 大柳 康, 合成樹脂, 35-7, 2 (1989)
- 4) H.Münstedt, Kunststoffe, 68-2, 92 (1978)
- 5) H.Kühnle, Intern.Polym.Processing, 1-2, 89 (1987)
- 6) P.Tanguy, L.Choplin and P.Hurez, Polym.Eng. Sci., 28-8, 529 (1988)
- 7) OMRONIX-Σグラフィックスシステム解説書, 立石電機(株), (1988)
- 8) 山根喜実, 福田 厚, 大阪府技術バイオニア養成事業ORT研修平成元年度研究成果報告書, 57 (1990)