

Morphologieausbildung in strömenden Kunststoffgemischen

Von der Fakultät Maschinenbau der Universität Stuttgart
zur Erlangung der Würde eines Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)
genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von

Matthias Rauwolf

aus Stuttgart

Hauptberichter: Prof. Dr.-Ing. H.-G. Fritz
Mitberichter: Prof. Dr.-Ing. habil. M. Piesche
Tag der mündlichen Prüfung: 8. März 2006

Institut für Kunststofftechnologie
der Universität Stuttgart
2006

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungen und Formelzeichen	VII
Kurzfassung	1
1 Einleitung und Aufgabenstellung	3
1.1 Problemstellung	3
1.2 Zielsetzung und Vorgehensweise	5
2 Ausgangssituation	6
2.1 Vorgänge beim dispersiven Mischen hochviskoser Flüssigkeiten	6
2.2 Stabilität hochviskoser Tropfen	7
2.3 Tropfenzerfall	12
2.4 Koaleszenzphänomene	17
2.5 Rheologie von Polymergemischen	20
2.6 Aufbereitung von Polymerblends	25
2.7 Folgerungen	28
3 Modellerweiterung zur Beschreibung des Fluidfadenzerfalls großer Tropfen in einer einfachen Scherströmung	30

3.1	Limitationen des bestehenden Modells zur Analyse des Fluidfadenzerfalls in Scherströmungen	30
3.2	Analyse der Tropfendeformation mit dem erweiterten Modell	31
3.3	Abbildung des Fluidfadenzerfalls mit dem erweiterten Modell	32
3.3.1	Ermittlung der kritischen Störung im Khakar/Ottino-Modell	32
3.3.2	Besonderheiten bei der linearen Stabilitätsanalyse großer Tropfen in einer einfachen Scherströmung	33
3.3.3	Ermittlung der kritischen Störung beim Fluidfadenzerfall großer Tropfen in einer einfachen Scherströmung	36
3.4	Diskussion des erweiterten Modells anhand von Berechnungsergebnissen	39
4	Analyse der Morphologieausbildung in einfachen Scherströmungen	41
4.1	Entwicklung eines Verfahrens zur morphologischen Analyse auf der Grundlage bestehender Modelle . . .	41
4.1.1	Eingrenzung	41
4.1.2	Zur morphologischen Analyse eingesetzte Modelle	42
4.1.3	Festlegung der Gültigkeitsbereiche der eingesetzten Modelle	42
4.1.4	Definition der Kopplungsbedingungen an den Grenzen der Gültigkeitsbereiche der unterschiedlichen Modelle	44

4.1.5	Darstellung einer Vorgehensweise zur Parameterbelegung der Modelle	45
4.1.6	Modellierung des morphologischen Gleichgewichts	48
4.1.7	Anmerkungen zur Strömungsberechnung . . .	49
4.2	Charakterisierung der in den Versuchen eingesetzten Materialien	50
4.3	Experimentelle Untersuchung der Morphologieausbildung im Flachsitzkanal	51
4.3.1	Versuchsapparatur und Versuchsdurchführung	51
4.3.2	Experimentelle Ergebnisse	53
4.4	Experimentelle Untersuchung der Wendelströmung im Schertorpedo	59
4.4.1	Versuchsapparatur und Versuchsdurchführung	59
4.4.2	Experimentelle Ergebnisse	62
4.5	Anwendung des entwickelten Verfahrens zur Analyse der Morphologieausbildung auf die Druckströmung im Flachsitzkanal	69
4.5.1	Strömungsvorgänge im Flachsitzkanal . . .	69
4.5.2	Bestimmung der kritischen Tropfenradien . . .	71
4.5.3	Analyse der Fluidfadenbildung	72
4.5.4	Analyse der Morphologieausbildung im Bereich des dynamischen Gleichgewichts	76
5	Praktische Umsetzung: Morphologieausbildung bei Compoundierprozessen mittels Zweischneckenextruder	80
5.1	Entwicklung eines Ersatzmodells für den Bereich vollgefüllter Schneckenkanäle	80

5.1.1	Ermittlung der Einflußfaktoren und Eingrenzung	80
5.1.2	Entwicklung eines Zonenmodells	82
5.2	Morphologische Analyse auf der Grundlage des Zonenmodells	87
5.2.1	Geometrische Daten und Betriebsparameter des Zweischnuckenextruders	87
5.2.2	Materialien und ihre Charakterisierung	88
5.2.3	Morphologische Analyse im dynamischen Gleichgewicht	88
5.2.4	Analyse der Morphologieausbildung	92
5.3	Detailuntersuchungen zur Tropfendeformation im Schneckenkanal	93
6	Zusammenfassung	97
A	Anhang	107
A.1	Übertragung der in ebenen Strömungen bestimmten kritischen Kapillarzahlen auf die Strömung in den Schneckenkanälen des Zweischnuckenextruders . . .	107
A.2	Rheologisches Stoffmodell für Dispersionen mit nichtaffinen Tropfendeformationen	110
A.3	Definition des Anisotropietensors bei polydispersen Gemischen	112
A.4	Berechnung der Fluidfadendeformation in der Wendelströmung	114
A.5	Abschätzung der Abweichung vom kreisrunden Fluidfadenquerschnitt in einer einfachen Scherströmung	117

Kurzfassung

Thema der vorliegenden Arbeit ist die Analyse der Dispersionsausbildung bei der Mischung hochviskoser und thermodynamisch unverträglicher Fluide. Den praktischen Hintergrund bildet die Herstellung von Zweiphasenwerkstoffen in der Kunststofftechnologie.

Mit einem Gemisch aus Polyethylen und Polystyrol werden Experimente in einfachen Scherströmungen durchgeführt und ausgewertet. Auf der Basis von Modellen aus der Literatur wird ein Verfahren zur morphologischen Analyse entwickelt und verifiziert.

Im zweiten Teil der Arbeit wird das Strömungsfeld im vollgefüllten Schneckenkanalbereich eines dichtkämmenden Zweischnuckenextruders mit gleichsinnig drehenden Wellen in Hinsicht auf die Morphologiausbildung theoretisch untersucht. Mittels eines Zonenmodells wird die komplexe Strömung im Schneckenkanalbereich auf einfachere Strömungsformen abgebildet. Mit Hilfe einer detaillierten Untersuchung wird der Gültigkeitsbereich des vereinfachten Modells eingegrenzt.

The subject of this thesis is the dispersion refinement in immiscible blends of highly viscous fluids. This is of practical interest for designing two-phase materials in polymer technology.

The mixing process for a blend consisting of polyethylene and polystyrene in simple shear flow is studied experimentally. Based on models given in literature a procedure for morphological analysis is developed and verified.

The second part of the paper deals with the classification of the flow

field that is generated along the filled screw section of a co-rotating intermeshing twin-screw extruder under morphological aspects. A zone model of reduced complexity is introduced for the fully filled screw sections. A detailed analysis is done to check the validity of this reduction of dimension.

Kapitel 1

Einleitung und Aufgabenstellung

1.1 Problemstellung

Durch Mischen bereits bekannter thermoplastischer Polymere werden Werkstoffe mit neuen Werkstoffeigenschaften erzeugt. Eine Klasse dieser Werkstoffgruppe bilden die physikalischen Gemische, die von den Thermoplastischen Vulkanisaten (TPV) zu unterscheiden sind, bei denen mindestens eine Phase im Herstellungsprozeß chemisch vernetzt wird. Beim physikalischen Mischen von zwei thermodynamisch unverträglichen Polymeren wird ein Zweiphasenwerkstoff ausgebildet. Die Grenzflächenstruktur zwischen den beiden Phasen, die sog. Morphologie, wird durch den Strömungszustand während des Mischungsvorgangs festgelegt.

Zur Erzielung definierter Werkstoffeigenschaften muß die Morphologieausbildung bei der Blendgenerierung gezielt beeinflußt werden. Häufig werden feine Dispersionen angestrebt, bei denen die disperse Phase in der Matrix mikrodispers verteilt vorliegt. Dadurch werden die mechanischen Kennwerte mit zunehmender spezifischer Grenzfläche verbessert [23]. Davon abweichend werden auch Aufbereitungskonzepte zur Erzielung co-kontinuierlicher Phasenstrukturen entwickelt [22].

Aufgrund seines hervorragenden Mischverhaltens werden bei der

industriellen Gemischaufbereitung häufig gleichsinnig drehende, dichtkämmende Zweischneckenknetzer zur Blendgenerierung eingesetzt. In Bild 1.1 ist der Prozeß zur Herstellung des in den Versuchen eingesetzten Gemischs aus Polyethylen und Polystyrol schematisch dargestellt.

Die i. a. granulatförmigen Polymerkomponenten werden je nach

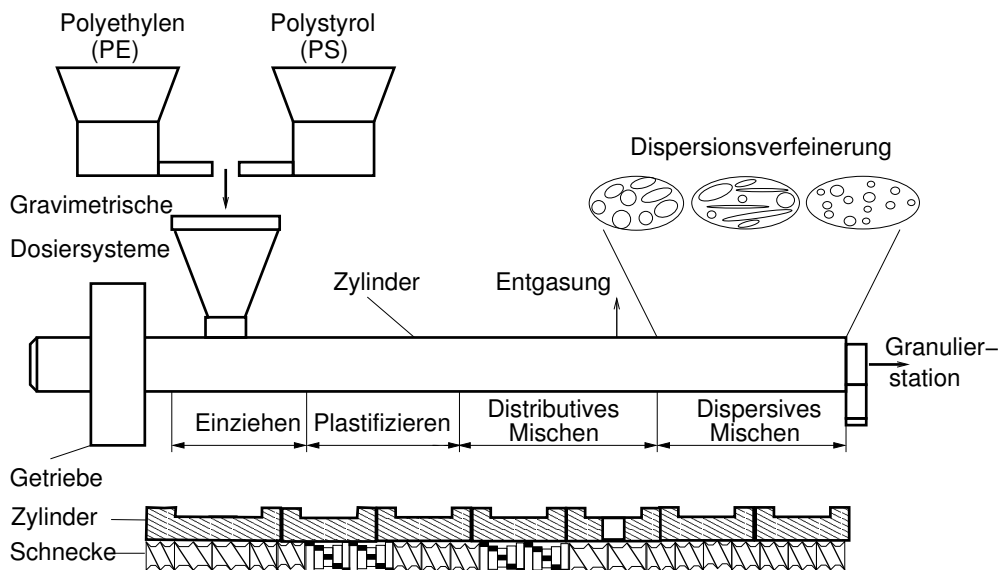


Bild 1.1: Compoundierprozeß im Zweischneckenextruder

Konzept gemeinsam oder getrennt zugegeben. Während der Plastifizierung werden die Polymere grob vermischt [41, 47]. Eine weitere Verfeinerung der diskontinuierlichen Gemischphase wird vor allem in den Knetblockstrukturen erreicht. An den distributiven Mischungsvorgang mit vernachlässigbar kleinen Grenzflächenspannungen schließt sich das dispersive Mischen an. So wird die endgültige Morphologie durch die im letzten Teil der Maschine ablaufenden Tropfenzerkleinerungen und -verschmelzungen festgelegt.

Beim gleichsinnig drehenden Zweischneckenextruder kann der Schneckenbau an die jeweilige Verfahrensaufgabe angepaßt werden. Bei vorliegendem Formulierungskonzept sind die Schneckenengeometrie und die Prozeßparameter so zu wählen, daß

die gewünschte Dispersionsfeinheit erzielt wird. Vor allem bei neuen Werkstoffkombinationen ist die optimale Prozeßauslegung mit erheblichem Aufwand verbunden.

1.2 Zielsetzung und Vorgehensweise

Ziel der durchgeführten Untersuchungen ist die Bereitstellung von Simulationswerkzeugen zur Klassifikation von Polymerblend-Strömungen hinsichtlich ihrer Mischungseffektivität als ein Hilfsmittel zur Prozeßauslegung.

Im ersten Schritt wird ein Verfahren zur Analyse der Morphologieausbildung in einfachen Scherströmungen auf der Grundlage bestehender Modelle entwickelt. Die experimentelle Analyse der Morphologieausbildung erfolgt in der Druckströmung im Flachsitzkanal und im diskontinuierlich betriebenen Schertorpedo. Die Komponenten des eingesetzten Gemischs aus Polyethylen und Polystyrol weisen ein pseudoplastisches Fließverhalten auf. Deshalb muß die Gültigkeit der eingesetzten Modelle, die Newtonsches Fließverhalten voraussetzen, überprüft werden. Durch Korrelation der Versuchsergebnisse mit dem aus Simulationsrechnungen bekannten Strömungszustand werden die Parameter für die Modellierung der Morphologieausbildung ermittelt und die modellgestützten Voraussetzungen über die Blendmorphologie überprüft.

Im zweiten Schritt wird das Strömungsfeld im vollgefüllten Kanalbereich eines Zweischnellenextruders unter morphologischen Gesichtspunkten anhand von Beispielrechnungen untersucht. Dabei werden Ähnlichkeiten und Unterschiede zur einfachen Scherströmung aufgezeigt. Die Entwicklung eines Zonenmodells zur Erfassung lokal unterschiedlicher Strömungszustände ermöglicht Aussagen über die Morphologie im Extruderkanalbereich auf Grundlage einfacher Strömungen. Mittels detaillierten Berechnungen werden die Grenzen der Übertragbarkeit aufgezeigt.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Verfahren zur morphologischen Analyse einfacher Scherströmungen entwickelt und verifiziert. In Ermangelung eines Modells, das alle beobachteten Phänomene umfaßt, wurde der gesamte Morphologieausbildungsprozeß in Abschnitte unterteilt und mit Hilfe unterschiedlicher Modelle abgebildet. Hierfür wurden modellspezifische Gültigkeitsbereiche festgelegt und Kopplungsbedingungen definiert. Die durchgängig eingesetzten morphologisch-rheologischen Modelle ermöglichen eine Abschätzung des Einflusses der Grenzfläche auf das Fließverhalten des Gemischs.

Vor diesem Hintergrund erfolgte eine Analyse des Strömungsfelds im Schneckenkanalbereich des Zweisechneckenextruders mittels Einführung eines Zonenmodells. Zur Modellreduktion wurde der schmelzegefüllte Bereich in unterschiedliche Zonen unterteilt. Auf der Grundlage der für die einzelnen Zonen ermittelten charakteristischen Größen wurden die kritischen Radien zur Abschätzung der Tropfengrößen im dynamischen Gleichgewicht bestimmt und für Aussagen über die Morphologieausbildung die Gesamtscherdeformation berechnet.

Mittels einer detaillierten Untersuchung der Tropfendeformation im Schneckenkanal wurden Einsatzgebiete und Grenzen des ver-

einfachten Modells ermittelt. Insbesondere im Bereich niedriger Schneckendrehzahlen erfahren große Tropfen aufgrund der Rotationsströmung im Schneckenkanal Stauchungen, die mittels des vereinfachten Modells nicht erfaßt werden. Unter diesen Bedingungen ist gegebenenfalls die mit der Umorientierung der Grenzfläche verbundene gesteigerte Mischungseffektivität auf Grundlage des Vektorfelds der Strömungsgeschwindigkeiten abzuschätzen.

Die im Zonenmodell abgebildete, alternierende Durchströmung von Kanal- und Zwickelbereichen bewirkt u. a. das hervorragende Mischungsverhalten des Zweischnellenextruders mit gleichsinnig drehenden Schnecken. Vor allem bei höherkonzentrierten Gemischen stellt dies jedoch hohe Anforderungen an das morphologische Modell. Durch die Modellreduktion wird der Einsatz der hierfür benötigten komplexeren Modelle ermöglicht. Zudem können aus Experimenten an einfachen Strömungen gewonnene Informationen über die Morphologieausbildung auf die Verhältnisse im Zweischnellenextruder übertragen werden.