

# ANWENDUNG EINER ALLGEMEINEN VISKOSITÄTS- GLEICHUNG ZUR BESTIMMUNG DER VOM GERÄT UNABHÄNGIGEN RHEOLOGISCHEN PARAMETER, III

Von

L. HALÁSZ, I. MONDVAI und I. MOLNÁR

Lehrstuhl für Kunststoff- und Gummiindustrie, Technische Universität, Budapest

(Eingegangen am 25. Februar 1969)

Vorgelegt von Prof. Dr. GY. HARDY

## Extrusimetrische Messungen

Die Untersuchung der rheologischen Eigenschaften von Stoffen kann mit dem Plastometer und Konsistometer im Schergeschwindigkeitsbereich von  $10^{-2}$  bis  $10^3 \text{ sec}^{-1}$  erfolgen. Größere Schergeschwindigkeiten können mit Hochdruck-Kapillarviskosimetern oder Extrudern erreicht werden. Mit entsprechenden Extruder-Werkzeugen lassen sich rheologische Messungen im Schergeschwindigkeitsbereich von  $10^2$  bis  $10^6 \text{ sec}^{-1}$  durchführen. Zu genauen Messungen werden zweckmäßig Kapillaren (Schnur-Werkzeuge) oder Spalt-Werkzeuge verwendet. Zur Aufnahme der Fließkurven müssen die zusammengehörigen Schergeschwindigkeit—Schubspannung-Werte bestimmt werden.

Zu unseren Versuchen verwendeten wir einen Satz von Spalt-Werkzeugen. Ihrem Wesen nach sind das Kapillaren mit Rechteck-Querschnitt, für die man die Schergeschwindigkeiten und -spannungen ähnlich bestimmen kann wie für die Spalte mit kreisrundem Querschnitt.

Im allgemeinen Fall erhält man die Schubspannung aus der in einem rechtwinkligen Koordinatensystem aufgeschriebenen  $z$ -gerichteten Komponente der Bewegungsgleichung:

$$\frac{\partial P}{\partial z} = \frac{\partial \tau_{y,z}}{\partial y} . \quad (1)$$

Die Integration der Gleichung (1) ergibt für den Fall  $\tau(0) = 0$ :

$$\tau_{y,z} = y \frac{\partial P}{\partial z} . \quad (2)$$

Das Koordinatensystem wurde so gewählt, daß die  $y$ -Achse gleichzeitig auch die Symmetrieebene des Kanals war, die Kanalwand ist also  $-h/2 = y$

und  $+h/2 = y$ , wenn  $h$  die Kanalhöhe ist. Für die Schergeschwindigkeit an der Kanalwand gilt also:

$$\tau_f = \frac{h}{2} \frac{\Delta P}{L}. \quad (3)$$

Zur Bestimmung der allgemeinen Schubspannung soll von Gleichung (1) ausgegangen werden

$$\frac{\partial \tau_{y,z}}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \eta \frac{\partial v_z}{\partial y} \right). \quad (4)$$

Diese Gleichung ergibt nach Integration für  $y$  unter Berücksichtigung der Symmetrie die Zusammenhänge:

$$\left( \frac{\partial P}{\partial z} \right) y = \tau_{y,z} = \eta \frac{\partial v_z}{\partial y}. \quad (5)$$

Nach Differenzierung der linken Seite der Gleichung (5) erhält man

$$dy = \frac{1}{(\partial P / \partial z)} d\tau_{y,z} \quad (6)$$

und nach Umordnung und Integration zwischen  $v_z$  und  $0$  sowie  $\tau$  und  $\tau_f$

$$\int_{v_z}^0 dv_z = \frac{1}{(\partial P / \partial z)} \int_{\tau}^{\tau_f} \frac{\tau}{\eta} d\tau. \quad (7)$$

Die Integration der Geschwindigkeit im Kanalquerschnitt ergibt die durch den Kanal geflossene Stoffmenge

$$Q = 2w \int_0^{h/2} v_z dy \quad (8)$$

wobei  $w$  die Spaltbreite ist. Wird nun der Wert von  $v_z$  aus Gleichung (7) und der von  $dy$  aus Gleichung (6) angeschrieben, erhält man:

$$Q = \frac{2w}{(\partial P / \partial z)^2} \int_0^{\tau_f} \int_{\tau}^{\tau_f} \left( \frac{\tau}{\eta} \right) d\tau d\tau. \quad (9)$$

Das obige Doppelintegral kann unter Anwendung des Konvolutions-satzes [1] mit Hilfe der Laplace-Transformation umgestaltet werden und wir

gelangen dann zu

$$\int_0^{\tau_f} \int_{\tau}^{\tau_f} f(\tau) d\tau d\tau = - \int_0^{\tau_f} \tau f(\tau) d\tau \quad (10)$$

woraus folgt, daß Gleichung (9) in der Form

$$Q = \frac{-2w}{(\partial P/\partial z)^2} \int_0^{\tau_f} \frac{\tau^2}{\eta} d\tau \quad (11)$$

geschrieben werden kann. Schreibt man nun  $\eta$  in Form von  $\tau/\dot{\gamma}$ , bringt den Faktor vor dem Integral auf die andere Seite der Gleichung und setzt an Stelle von  $(\partial P/\partial z)^2$  die Gleichung (3), so ist

$$\frac{2 Q \tau_f^2}{h^2 w} = - \int_0^{\tau_f} \tau \dot{\gamma} d\tau. \quad (12)$$

Die Differentiation nach  $\tau_f$  ergibt dann

$$\frac{2}{h^2 w} \left( \tau_f^2 \frac{dQ}{d\tau_f} + 2 \tau_f Q \right) = \tau_f \dot{\gamma}_f \quad (13)$$

und daraus

$$\dot{\gamma}_f = - \frac{6Q}{h^2 w} \left[ \frac{1}{3} \frac{d \log Q}{d \log (\Delta P)} + \frac{2}{3} \right]. \quad (14)$$

Wird nun  $6 Q/h^2 w$  durch  $\Gamma$  bezeichnet, so erhält Gleichung (14) die Form

$$- \dot{\gamma}_f = \Gamma \left( \frac{1}{3} \frac{d \log \Gamma}{d \log \tau_f} + \frac{2}{3} \right) \quad (15)$$

und ist damit ein Analogon der Rabinowitschschen Gleichung.

Auf Grund unserer Versuchsergebnisse wurde die Schergeschwindigkeit mit Gleichung (15) und die Schubspannung nach der Differentialmethode berechnet. Die bei den einzelnen Spaltbreiten erhaltenen, zusammengehörigen Schubspannung-Druckabfall-Werte wurden graphisch dargestellt. Es wurden die Schergeschwindigkeiten von entsprechender Verteilung ausgewählt und die zu diesen gehörenden Druckabfall-Werte als Funktion von  $L/h$  dargestellt. Aus dem Anstieg der so erhaltenen Geraden ließen sich die wirklichen Schubspannungen auf Grund des Zusammenhanges

$$\tau_f = \frac{1}{2} \left[ \frac{d(\Delta P)}{d(L/h)} \right] \quad (16)$$

berechnen. Die zur Berechnung der reduzierten Viskositätswerte notwendigen maximalen Viskositätswerte enthält die II. Mitteilung dieser Reihe [2].

## Versuchsergebnisse

Die Versuche wurden mit einem Bandera-Extruder, Typ STR-30 durchgeführt, dessen wichtigste Daten in Tabelle 1 angegeben sind. Die angewandten Versuchsparameter enthält Tabelle 2.

Tabelle I

Charakteristische Daten des angewandten Extruders

Schneckendurchmesser: 3,0 cm  
 L/D-Verhältnis: 20  
 Zylinderheizung: 2500 W (2 Zonen)  
 Temperaturregelung: 50–350 °C  
 Schneckengeschwindigkeit: 0–90 U/Min (stufenlos regelbar)  
 Daten der Schnecke: eingängig, Gangtiefe: 1,50–5,50 mm  
 Gewindesteigungswinkel: 17,75°  
 Gewindesteigung: 3,0 cm  
 Breite des Schneckenflügels in Axialrichtung: 0,4 cm  
 Wichtigste Daten des Werkzeugs:  
 Breite: 6 mm  
 Glättlänge: 7 mm  
 Höhe: 0,19–2,4 mm (regelbar)

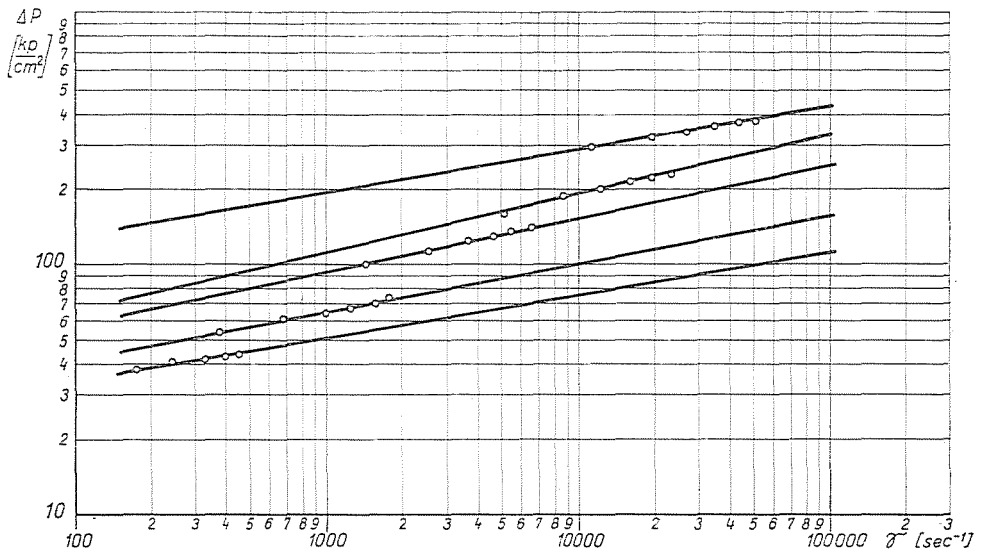


Abb. 1. Druckabfall-Schergeschwindigkeit-Zusammenhänge für P 2010 V Polyäthylen, bei 200 °C

Die Temperaturen der beheizten Zonen wurden so gewählt, daß zwischen der Werkzeug- und Stofftemperatur kein Unterschied bestand. Nach Erreichung des stationären Zustandes wurden bei den einzelnen Meßpunkten jeweils 5 Parallelmessungen durchgeführt.

Bei der Verarbeitung der Meßergebnisse bestimmten wir zunächst die Schubspannung auf Grund der Gleichung (15), dann wurde die Schergeschwin-

Tabelle II  
Versuchsparameter

Produkt	Temperatur °C	Spalthöhe mm	Schneckendreh- zahl Min <sup>-1</sup>
Bralen FA 7—16	150, 165, 180	2,4 1,85 1,2 0,6 0,25 0,19	10—90
P 2010 V	180, 200	2,4 1,2 0,6 0,3 0,2 0,18	10—90
Bralen FB 4—18	170, 180, 190	1,26 0,84 0,42	5—80
P 2020 T	170, 180, 190	1,26 0,84 0,42	5—80

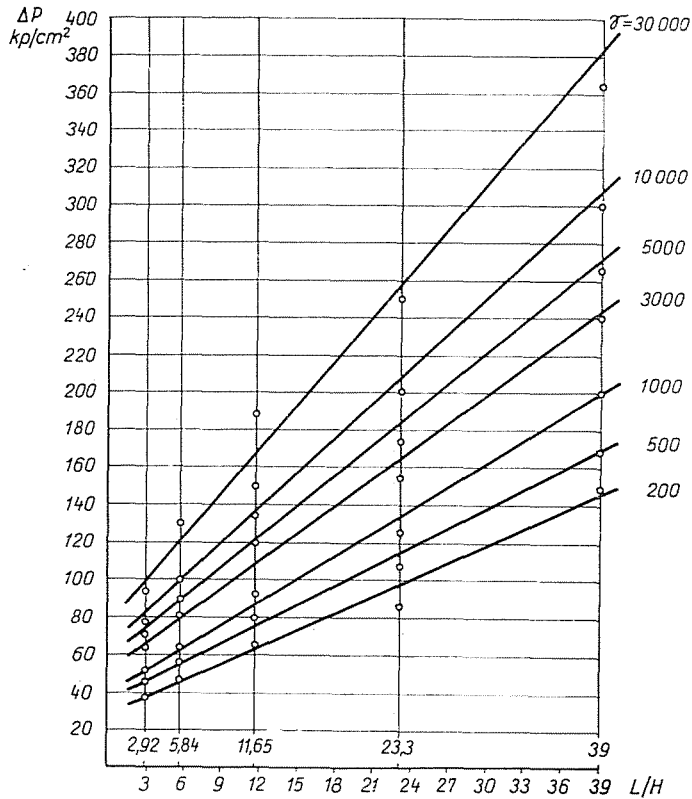


Abb. 2. Druckabfall als Funktion des Verhältnisses Höhe/Länge des Spalts bei verschiedenen Schergeschwindigkeiten

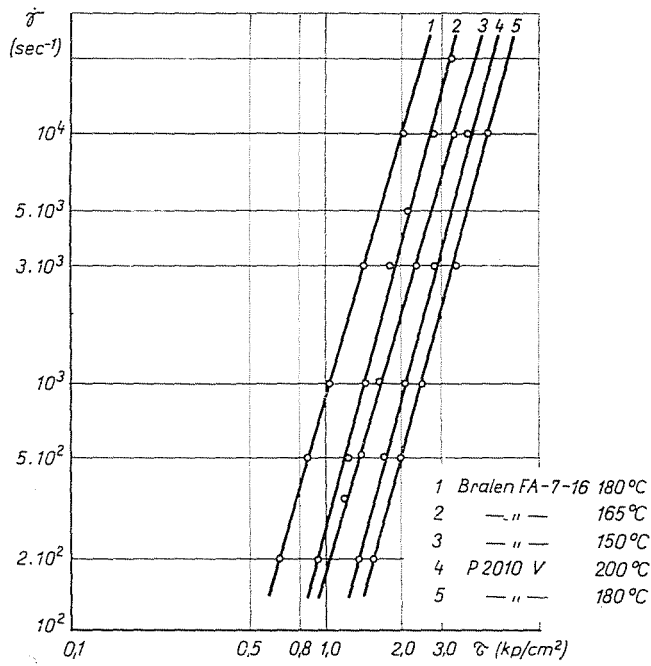


Abb. 3. Fließkurven von Bralen FA 7-16 und P 2010 V Polyäthylen

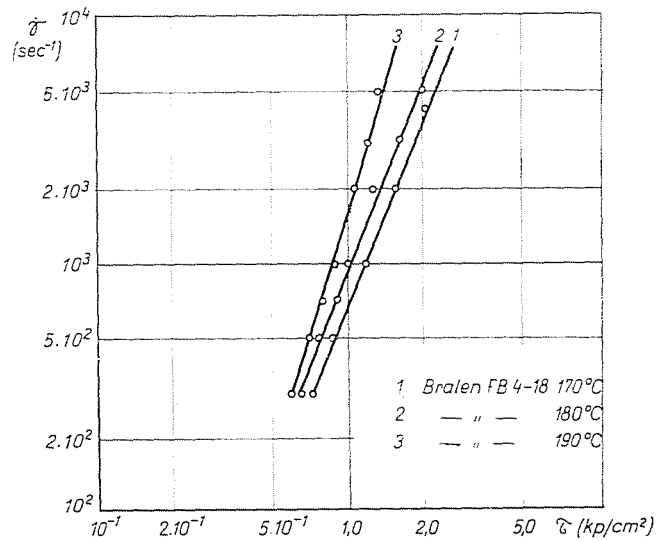


Abb. 4. Fließkurven von Bralen FB 4-18 Polyäthylen

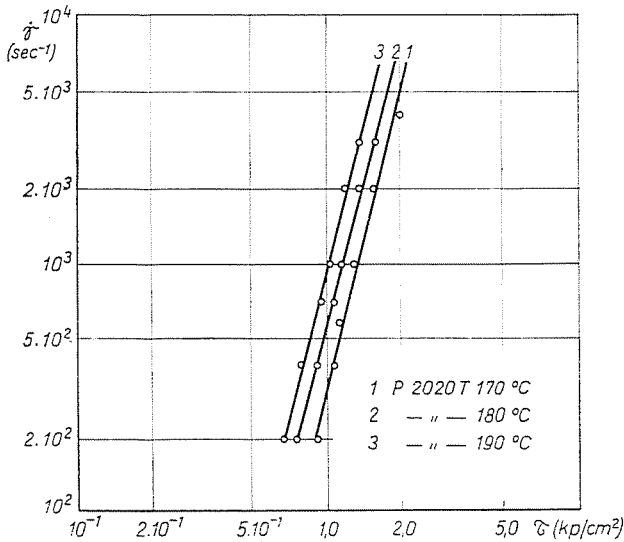


Abb. 5. Fließkurven von P 2020 T Polyäthylen

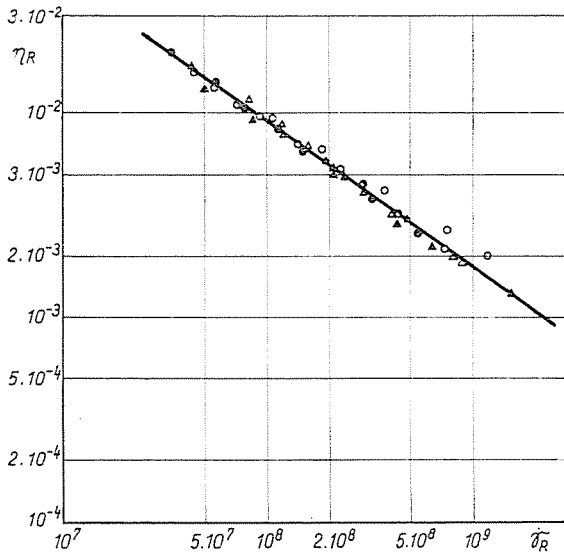


Abb. 6. Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und reduzierter Schergeschwindigkeit. Bralen FA 7-16, bei 150 °C:  $\circ$ ; bei 165 °C:  $\square$ ; bei 180 °C:  $\bullet$ . P 2010 V, bei 180 °C:  $\Delta$ ; bei 200 °C:  $\square$

digkeit bei den einzelnen Spaltbreiten, als Funktion des Druckabfalls, in einem logarithmischen Maßstab dargestellt; die Ergebnisse sind für P 2010 V Polyäthylen, bei 200 °C, in Abb. I gezeigt. Nach Darstellung des zu einigen gewählten Schergeschwindigkeitswerten gehörenden Druckabfalls als Funktion

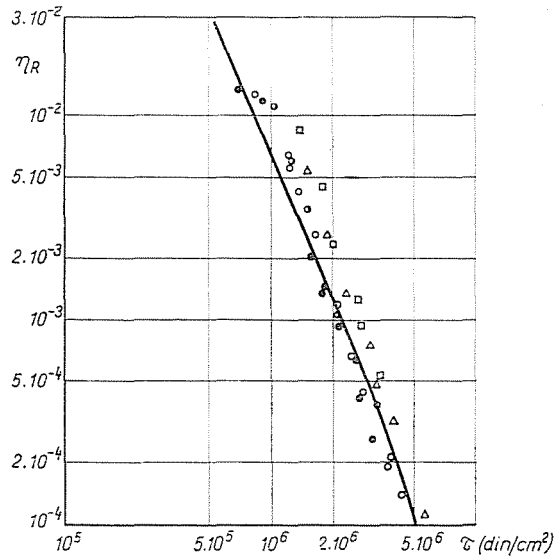


Abb. 7. Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und Schubspannung. Bezeichnungen wie in Abb. 6

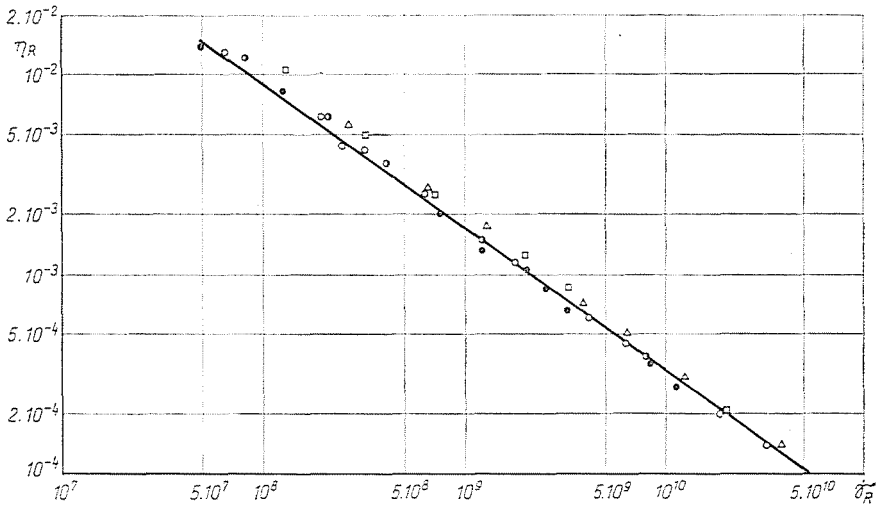


Abb. 8. Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und reduzierter Schergeschwindigkeit. Bralen FB 4—18, bei 172 °C: ○; bei 180 °C: ⊕; bei 190 °C: ⊗. P 2020 T, bei 172 °C: △; bei 180 °C: ▲; bei 190 °C: ▲

des Wertes Spaltlänge/Höhe (Abb. 2) wurde aus den Neigungswinkeln der Geraden mit Hilfe der Gleichung (16) die Schubspannung festgestellt.

Die Funktionen Schubspannung-Schergeschwindigkeit (Fließkurven) sind in den Abbildungen 3, 4 und 5 gezeigt. Die Abbildungen 6, 7, 8 und 9 zeigen die reduzierten Fließkurven. Wie in unserer II. Mitteilung (2) sind auch



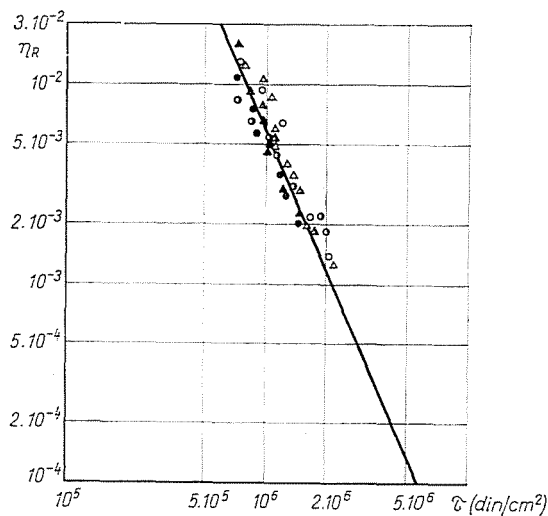


Abb. 9. Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und Schubspannung. Bezeichnungen wie in Abb. 8

hier mit ausgezogener Linie die aus der Winogradow-Malkinschen Gleichung bzw. ihrer für die Schubspannung aufgeschriebenen Form berechneten Werte angegeben.

### Diskussion der Versuchsergebnisse

Ähnlich, wie die Ergebnisse der konsistometrischen und plastometrischen Messungen, zeigen auch die auf Grund der extrusimetrischen Messungen konstruierten reduzierten Fließkurven gute Übereinstimmung mit den aus der Winogradow-Malkinschen Gleichung bzw. ihrer für die Schubspannung ausgedrückten Form erhaltenen Werten.

Aus den mit verschiedenen rheologischen Meßvorrichtungen erhaltenen Ergebnissen lassen sich unter Anwendung von Geräten sowie Meß- und Berechnungsmethoden hoher Genauigkeit für gegebene Temperaturen gleiche Fließkurven konstruieren. Diese Fließkurven können jedoch mit dem in der Praxis sozusagen ausschließlich angewandten Exponentialgesetz-Zusammenhang nur für eine gegebene Vorrichtung konstruiert bzw. nur unter identischen Schubbedingungen für andere Vorrichtungen angewandt werden.

Mit Hilfe unseres auf der Anwendung der allgemeinen Viskositätsgleichung beruhenden Verfahrens lassen sich die mit verschiedenen Einrichtungen aufgenommenen Fließkurven transformieren und auf Grund der in einem gegebenen Bereich bestimmten rheologischen Werte lassen sich die für andere Bereiche gültigen Werte ohne Schwierigkeit bestimmen. In der allgemeinen

Viskositätsgleichung ist die für die stoffliche Beschaffenheit charakteristische Konstante, die maximale Viskosität, von den rheologischen Merkmalen des jeweiligen Fließvorganges unabhängig und lediglich eine Funktion der Temperatur. Mit der Anwendung dieser Gleichung kann man die Fließkurve des Stoffes in Kenntnis der maximalen Viskosität, der Schubspannung sowie der Schergeschwindigkeit konstruieren bzw. die Viskosität für alle beliebigen Schubparameter bestimmen.

### Zusammenfassung

Die grundlegenden mathematischen Zusammenhänge des Fließens von Polymer-Schmelzen und die verschiedenen Formen der rheologischen Zustandsgleichungen werden behandelt. Mit Hilfe der von Winogradow und Malkin eingeführten allgemeinen Viskositätsgleichung lassen sich gerätunabhängige rheologische Kennwerte bestimmen. In Kenntnis der maximalen Viskosität läßt sich auf Grund der allgemeinen Viskositätsgleichung für den durch einen gegebenen Schubzustand charakterisierten rheologischen Prozeß die Viskosität berechnen. Charakteristisch für die Rheologie von Polymer-Schmelzen ist also die maximale Viskosität, während rheologische Prozesse durch die Schergeschwindigkeit oder Schubspannung gekennzeichnet werden können.

### Literatur

1. CHURCHILL, R. S.: Modern Operational mathematics in engineering, S. 37, McGraw-Hill, New York, 1944.
2. HALÁSZ, L., MONDVAI, I.: Műanyag és Gumi, 6, 427 (1969). Periodica Polytechnica, Series CH
3. WINOGRADOW, G. W., SABUGINA, M. P., Mitarb.: Wysokomol. Sojed. 6, 1647 (1964)

László HALÁSZ Dr. Imre MONDVAI Dr. Imre MOLNÁR	}	Budapest XI., Műegyetem rkp. 3. Ungarn
--	---	--