
HASL社製品改良成果資料(II)

(発表用ダイジェスト版)

自由表面/界面形成状態の評価を目的とした熱流動問題
への当社製品の適応性向上について

2023/11/17

株式会社HASL

自由表面/界面形成を伴う熱流動問題

① 多層押出

FSM(Flat Simulator Multi), SSM(Spiral Simulator Multi)

② スロットコーティング

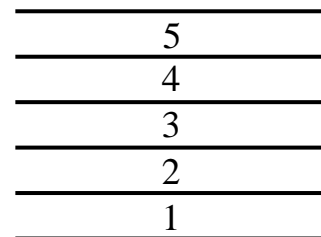
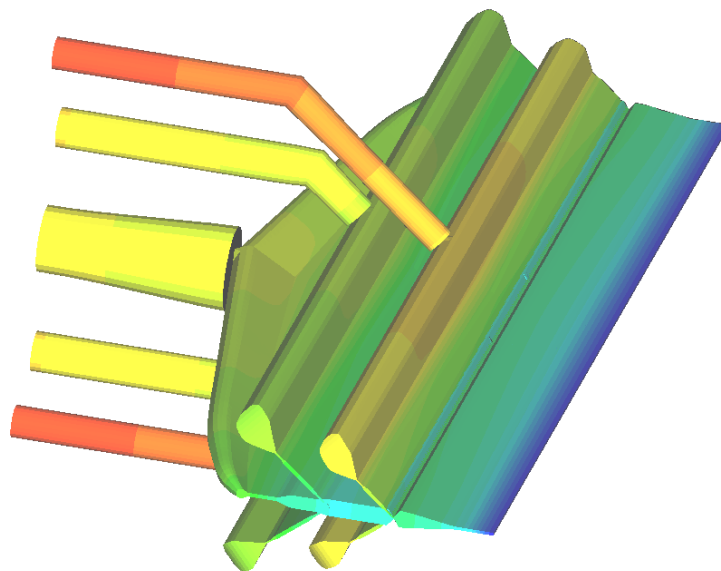
FS (Flat Simulator), SCS (Slot Coating Simulator)

③ 発泡押出

FS3D(Multi Profile Simulator)

① 多層押出

逐次合流多層流動解析の安定性向上 (FSM,SSM)



既往計算手順

1→2→3→4→5

新規計算手順

1→5→2→4→3

3種5層逐次合流形式マルチマニフォールドダイ内多層熱流動解析
(圧力分布, JCTIMES : 精誠模具機械有限公司殿ご提供資料)

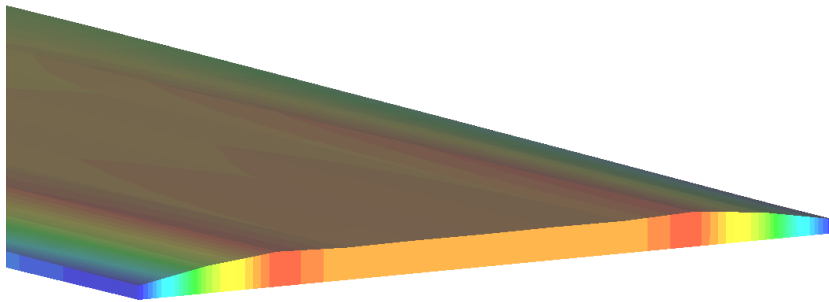
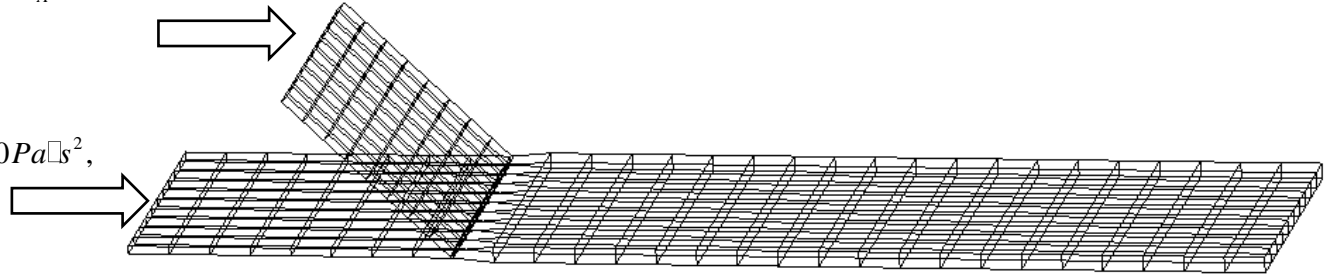
IPF Japan 2023, 2023/11/28(火)~12/2(日) 5日間, 幕張メッセ1~8ホール
GSIクレオス, JCTIMES, JCM, 三井物産プラスチック共同出展, 小間番号:80808

特許取得: ①日本 6908904 号
②米国 11,353,323 B1
③米国 11,580,282 B2
④中国 ZL 2022 1 0099936.9

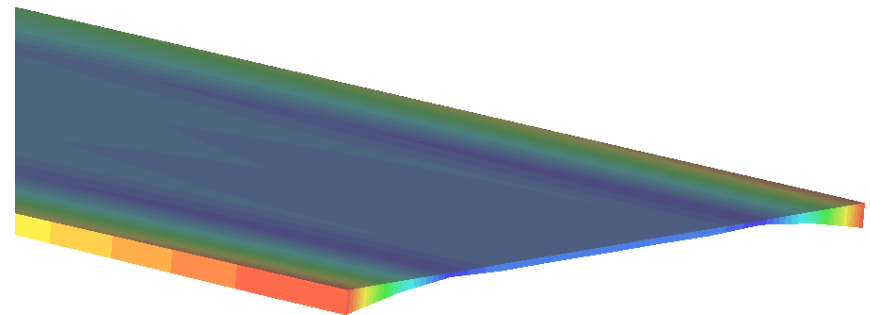
層構成の汎用化 (FSM)

$$\eta_A = 1000 \text{ Pa}\cdot\text{s}, \psi_A = -20 \text{ Pa}\cdot\text{s}^2, \\ Q_A = 2.5 \text{ kg} / \text{h}$$

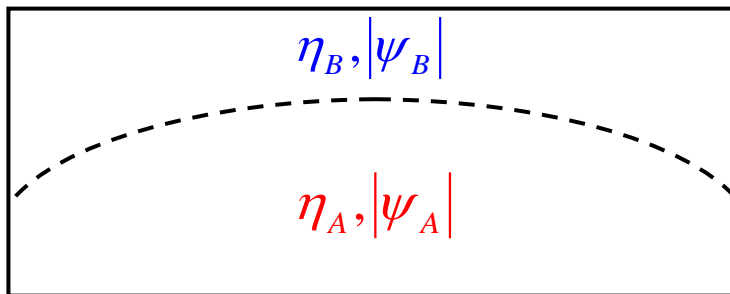
$$\eta_A = 5000 \text{ Pa}\cdot\text{s}, \psi_A = -40 \text{ Pa}\cdot\text{s}^2, \\ Q_A = 10 \text{ kg} / \text{h}$$



高粘性/高弾性層肉厚分布

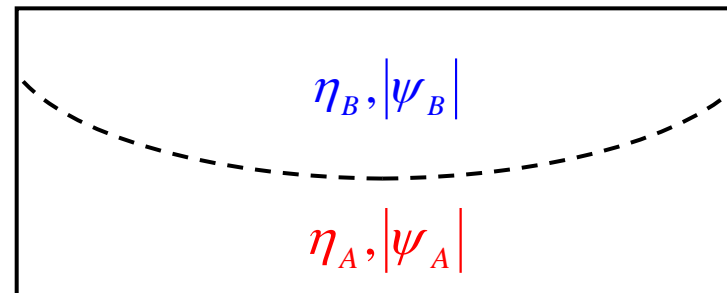


低粘性/低弾性層肉厚分布

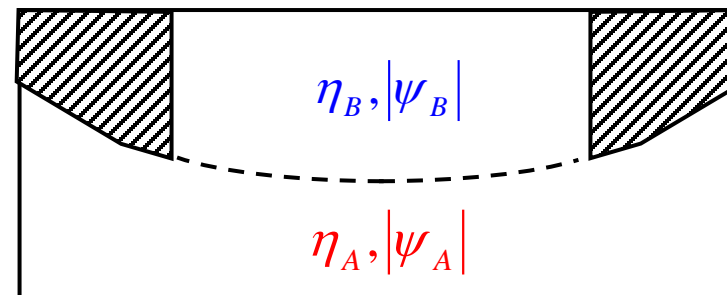


$$\eta_A, |\psi_A| > \eta_B, |\psi_B|$$

界面包み込み現象
(Encapsulation Phenomenon)



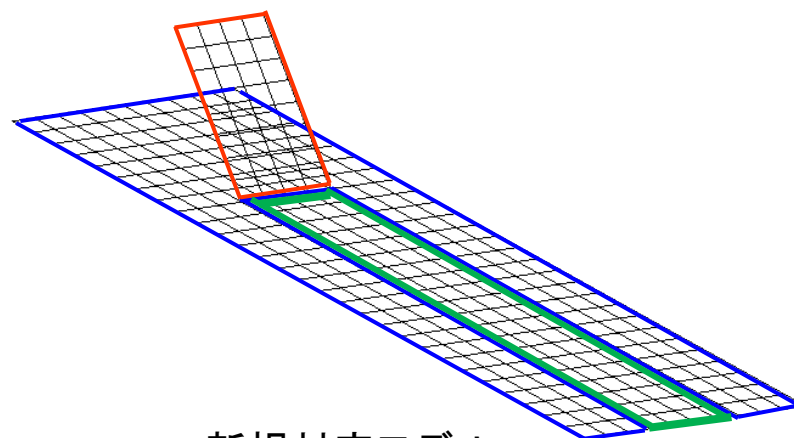
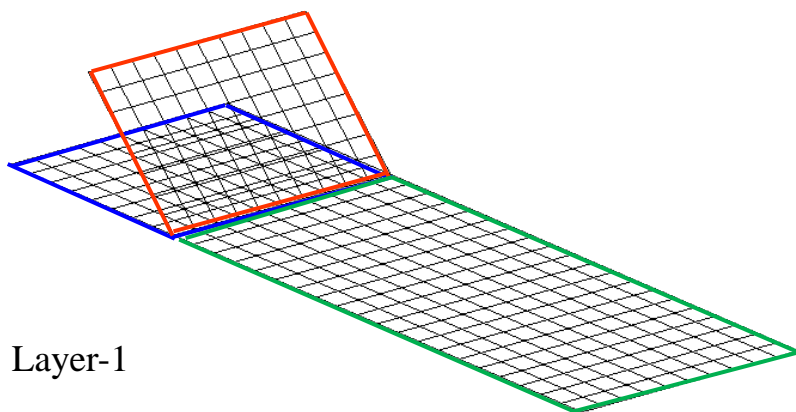
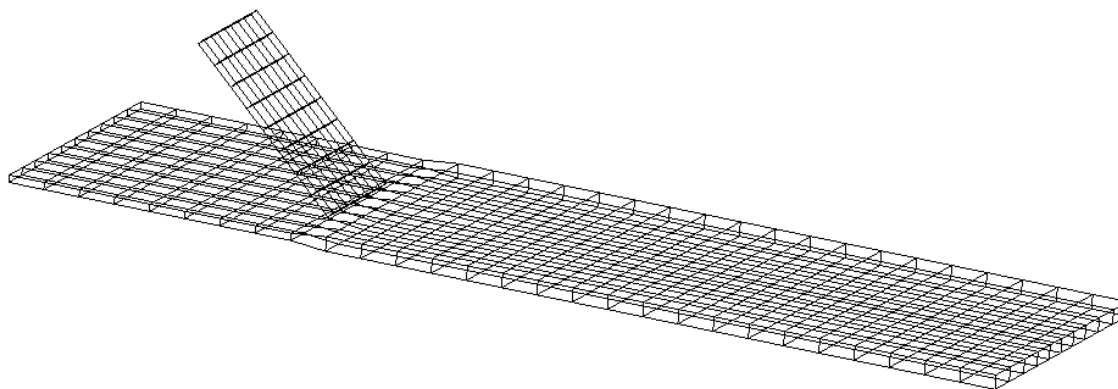
既往Ver.対応可






既往Ver.対応不可, 新規Ver.対応可

多層合流断面の調整
(Feed block profile)

Problem solved with Art than Science



-  Layer-1
-  Layer-2
-  Layer-1,2

既往モデル

新規対応モデル

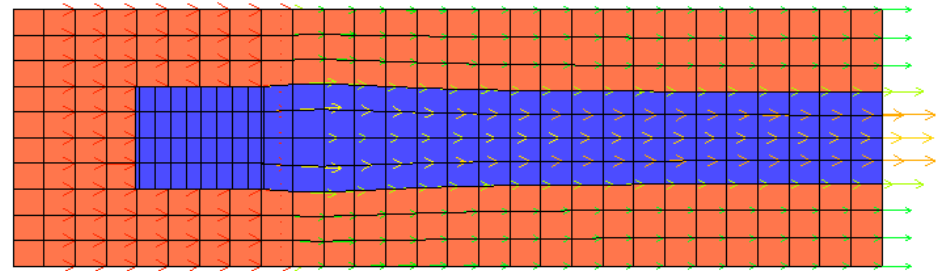
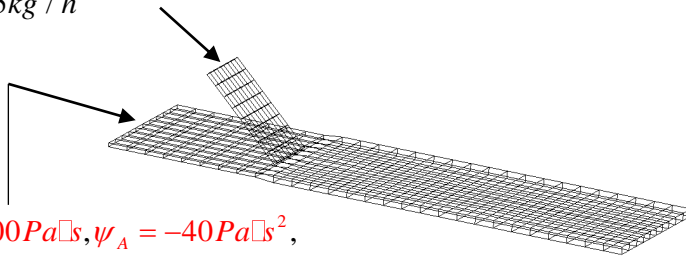
層構成

$$\eta_B = 1000 Pa \cdot s, \psi_B = -20 Pa \cdot s^2,$$

$$Q_B = 2.5 kg / h$$

$$\eta_A = 5000 Pa \cdot s, \psi_A = -40 Pa \cdot s^2,$$

$$Q_A = 10 kg / h$$

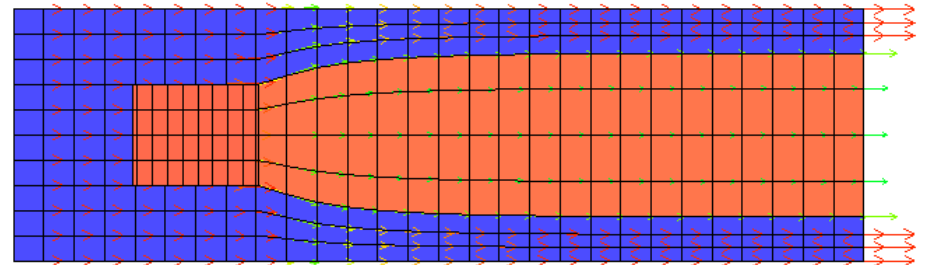
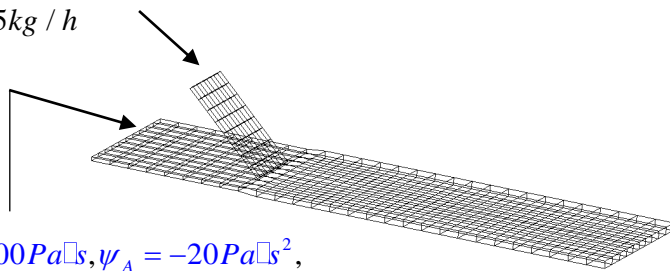


$$\eta_B = 5000 Pa \cdot s, \psi_B = -40 Pa \cdot s^2,$$

$$Q_B = 2.5 kg / h$$

$$\eta_A = 1000 Pa \cdot s, \psi_A = -20 Pa \cdot s^2,$$

$$Q_A = 10 kg / h$$



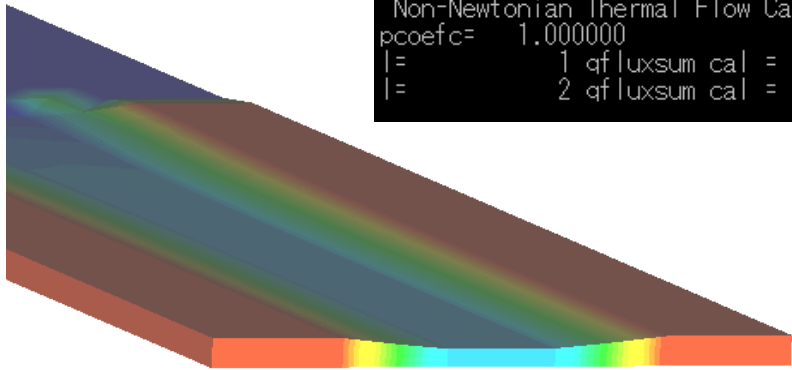
流動面内界面形成状態の予測結果
(ALE(Arbitrary Lagrangian Eulerian)法)

相対的に粘性の高い領域
は、流動幅を広くとり、低
速で運動する。

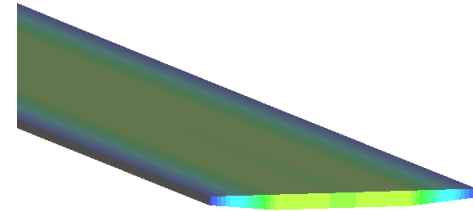
```

Non-Newtonian Thermal Flow Calculation iter.= 1000
pcoefc= 1.000000
l= 1 qfluxsum cal = -3.575012 Relative error : 2.4008560E-04
l= 2 qfluxsum cal = -0.8937473 Relative error : 4.0014266E-04

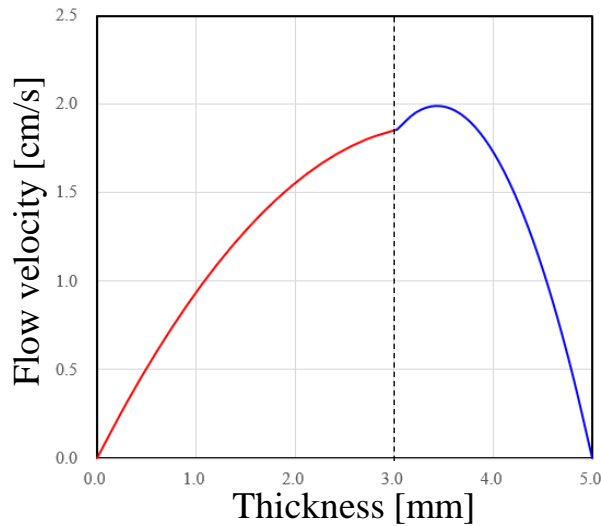
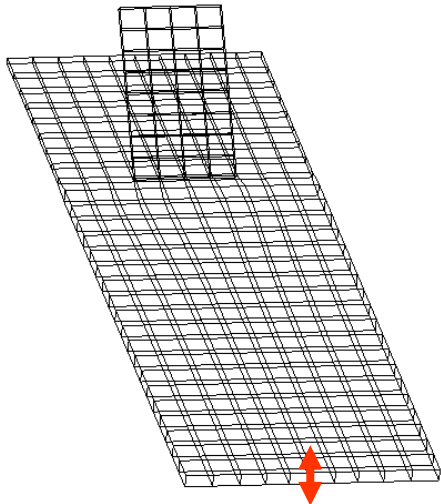
```



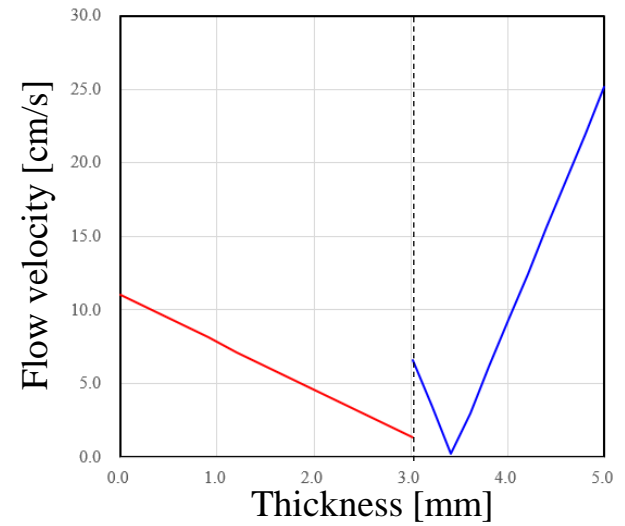
高粘性/高弾性層肉厚分布



低粘性/低弾性層肉厚分布



流速分布予測結果

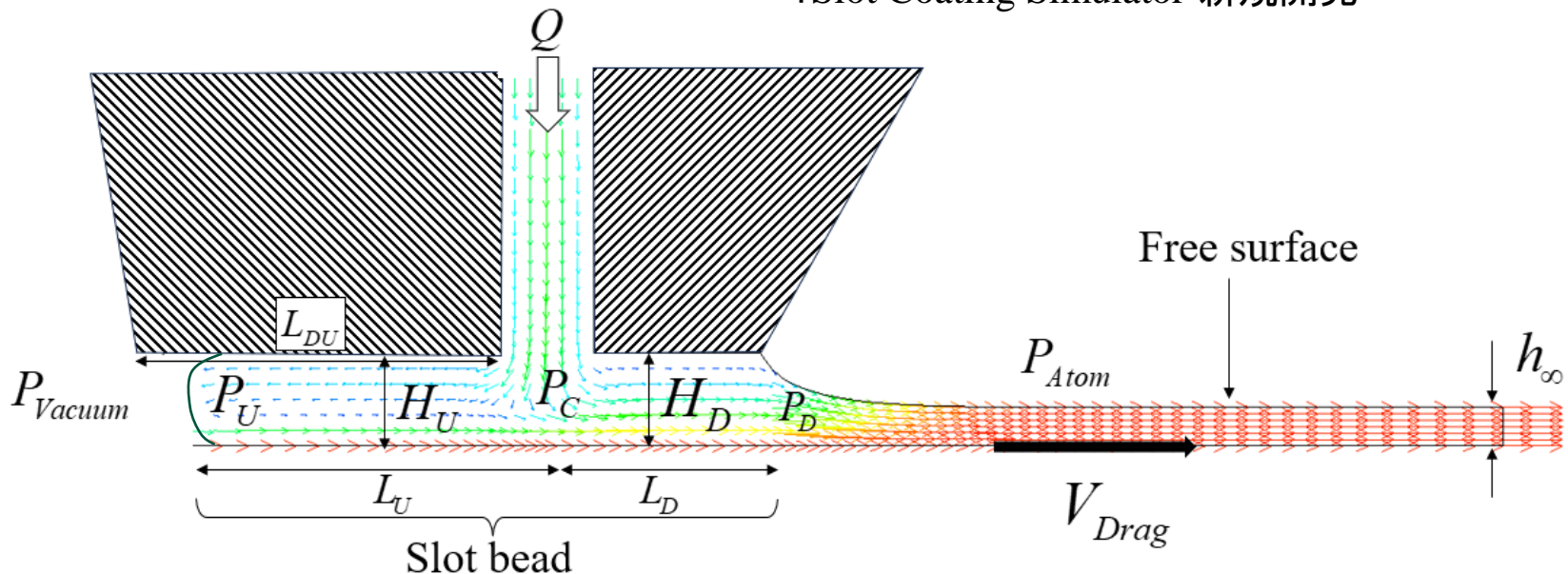


せん断ひずみ速度分布予測結果

② スロットコーティング

技術開発の狙い

- Flat Simulator の用途拡大: mPa・sオーダーの低粘性流体への対応
- Slot bead 形状, 流動状況, コーティング層厚の予測, プロセスの安定性評価
: Slot Coating Simulator 新規開発



FS3D(Multi Profile Simulator)を利用したスロットコーティング試解析結果

低粘性流体への対応(慣性効果の考慮)¹⁾

既往

粘性応力 = 圧力勾配

新規

粘性応力 = 圧力勾配 + 慣性力

熱流動計算パラメータ

非ニュートン反復計算回数	10	構造連成解析	<input type="radio"/> 実行
温度反復計算回数	10		<input checked="" type="radio"/> 非実行
層分割数	10	最適化計算	<input type="radio"/> 実行
			<input checked="" type="radio"/> 非実行
<input checked="" type="checkbox"/> 慣性効果考慮			

新規実装された当チェックボックスをチェックすることで慣性効果を考慮

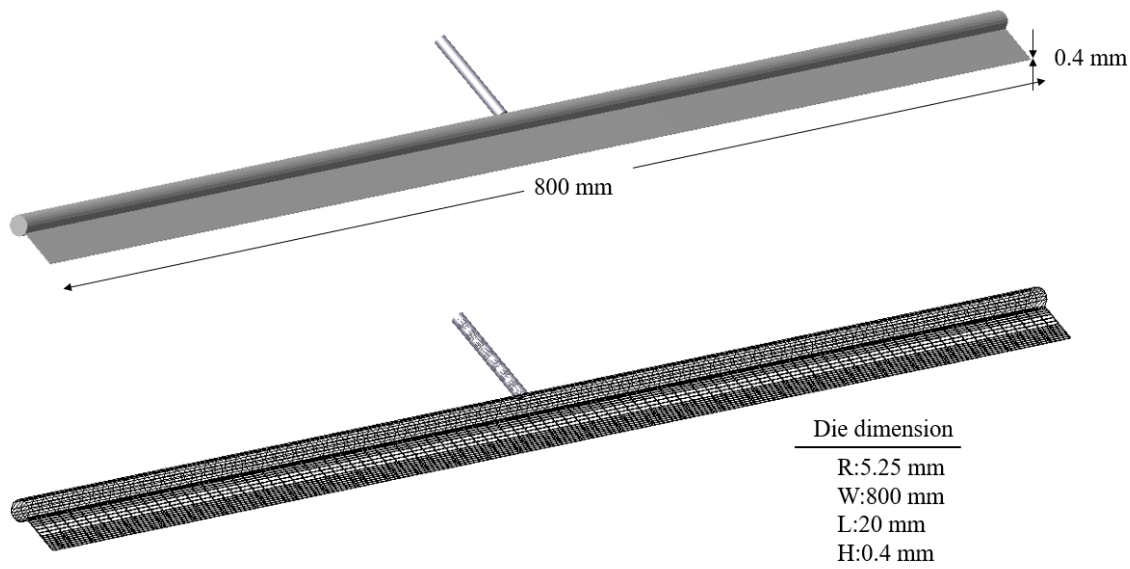
参考文献 1) 非ニュートン流体における押し出し金型内部流れの高効率・高精度解析手法の開発と実用化
津田武明, 長島正幸, 穴澤朝彦, 長谷川富市
Nihon Reoroji Gakkai, 39,5,189(2011)

テスト解析モデル

Case study conditions

Case	Viscosity [Pa·s]	Inertia effect
1	1	Neglected
2	0.001	Neglected
3	0.001	Considered

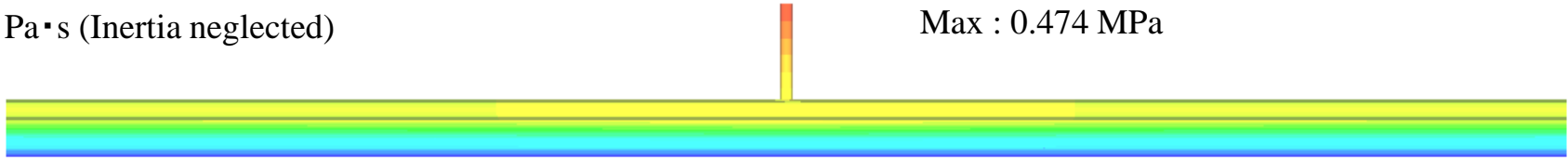
Extrusion flow rate : 200 kg/h



Case 1

$\eta: 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ (Inertia neglected)

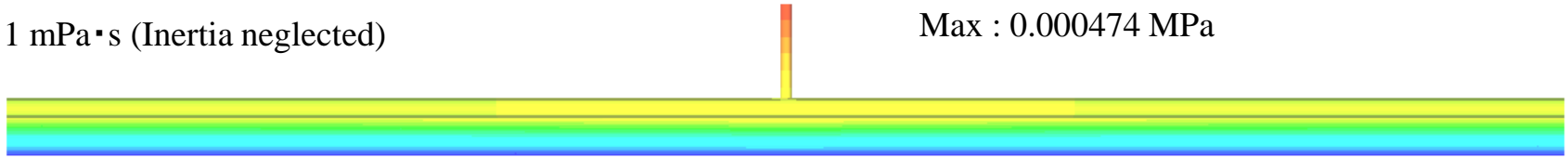
Max : 0.474 MPa



Case 2

$\eta: 1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ (Inertia neglected)

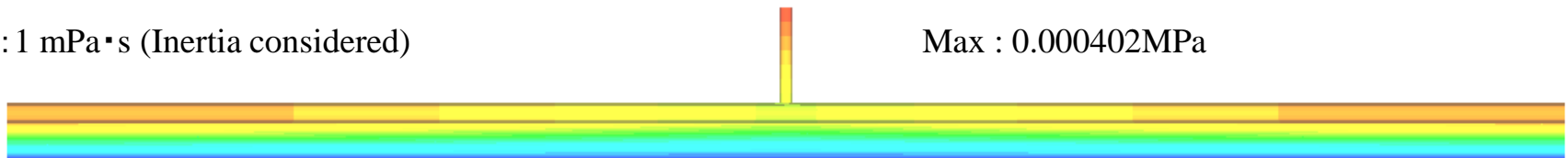
Max : 0.000474 MPa



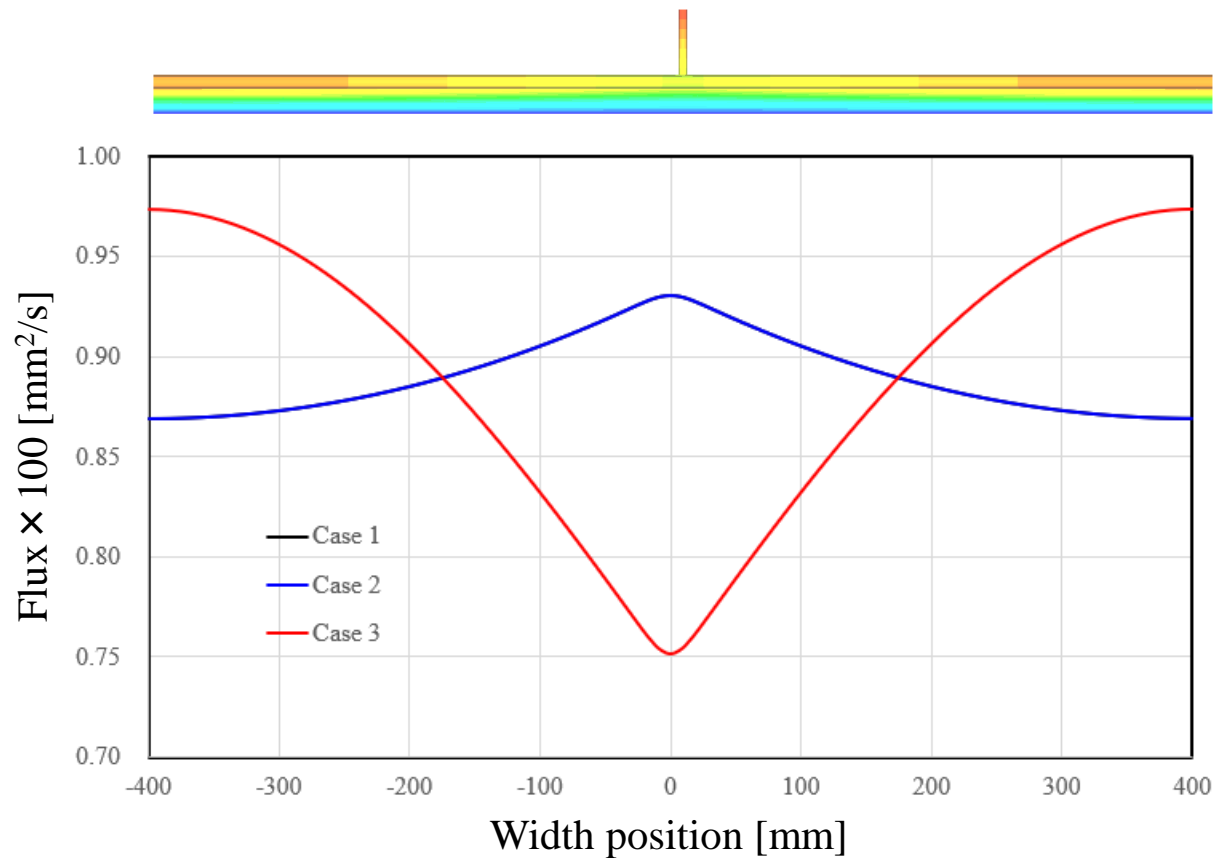
Case 3

$\eta: 1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ (Inertia considered)

Max : 0.000402MPa



- ・ニュートン流体の場合, 押出流量を共通とする条件下において慣性効果を見捨ると, 圧力勾配は粘度に正比例 (Case 1,2).
- ・慣性力を考慮するとマニフォールド端部の圧力が上昇 (Case2,3).

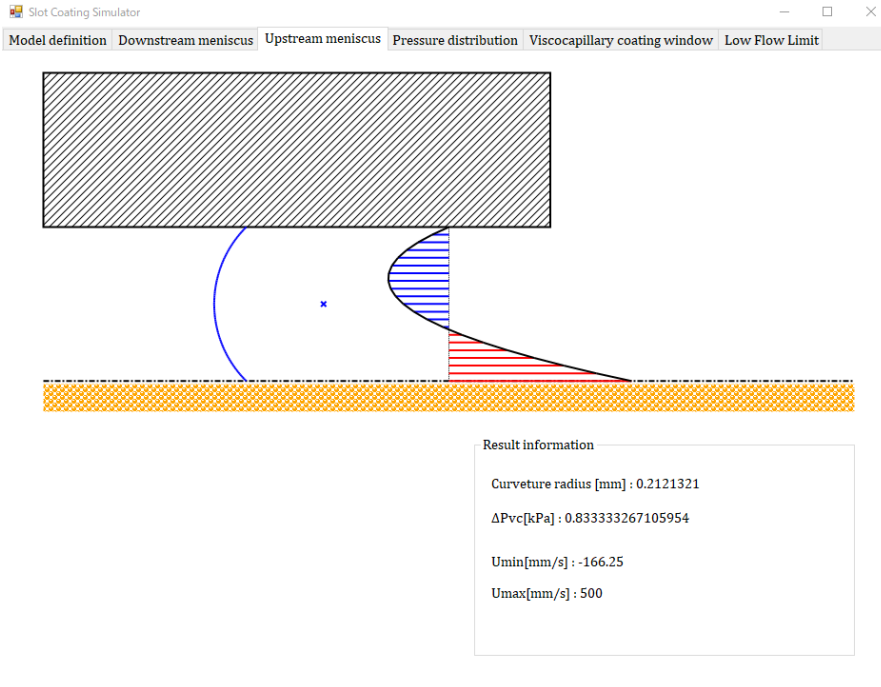


- ・ニュートン流体の場合，押出流量を共通とする条件下において慣性効果を見無視すると，粘度を変化させても流量配分分布は変化しない (Case1,2).
- ・慣性力を考慮すると，マニフォールド端部への流量配分が増加する(Case1,3).

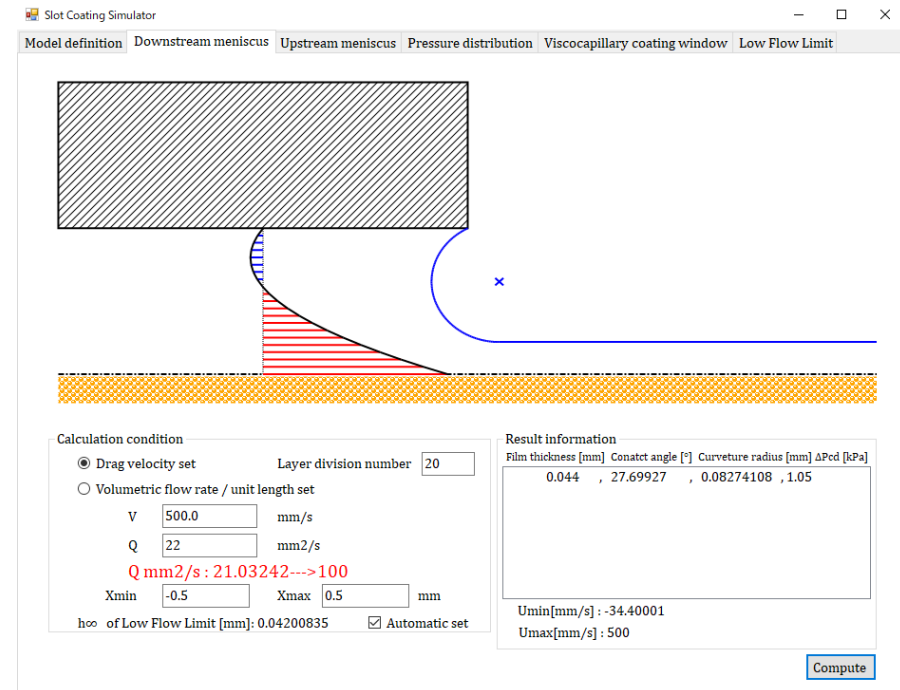
Slot Coating Simulator^{2),3)}

機能

1) Meniscus形状とSlot bead 内流速分布の予測



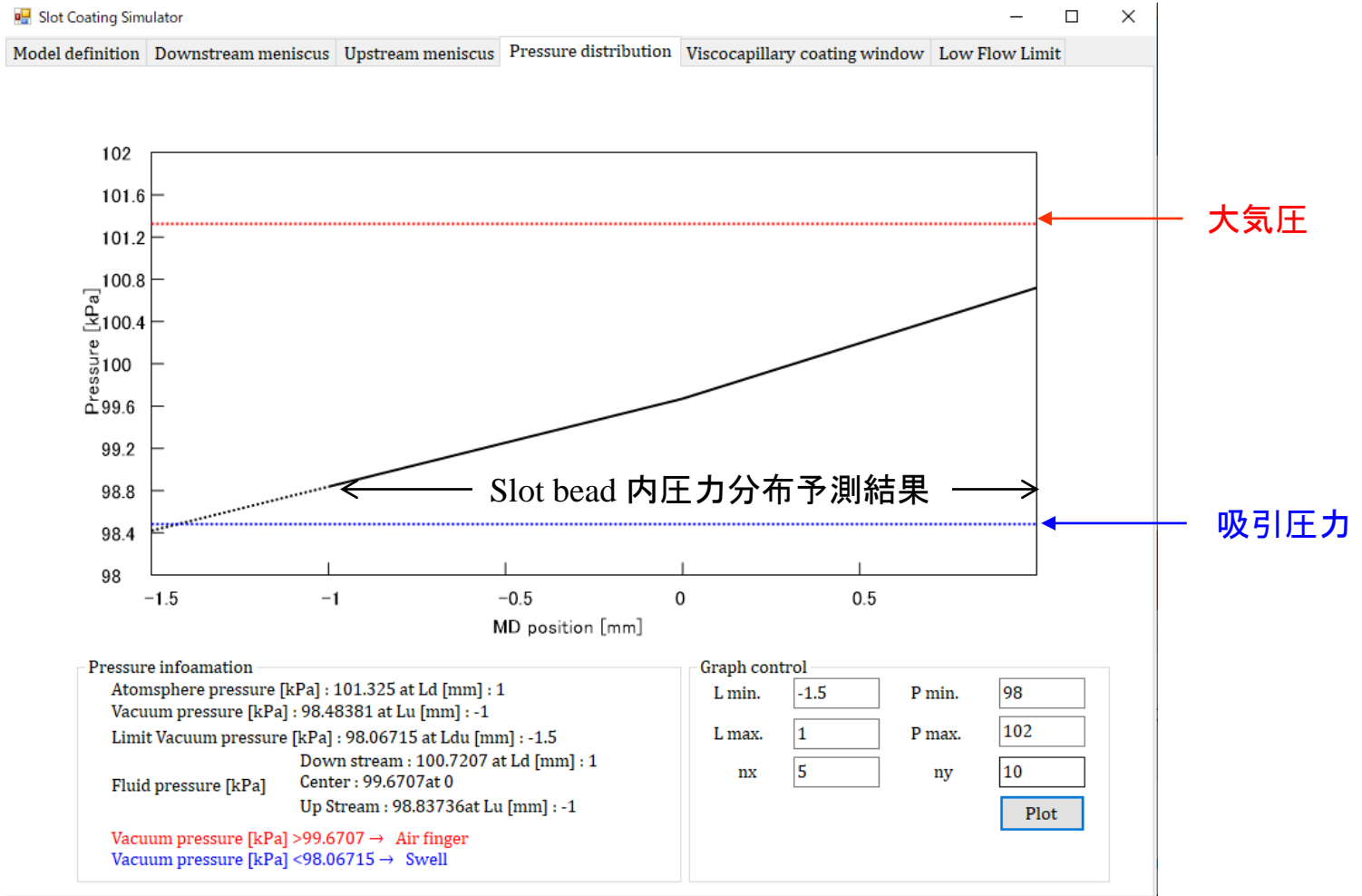
上流側 Meniscus & 流速分布の予測結果



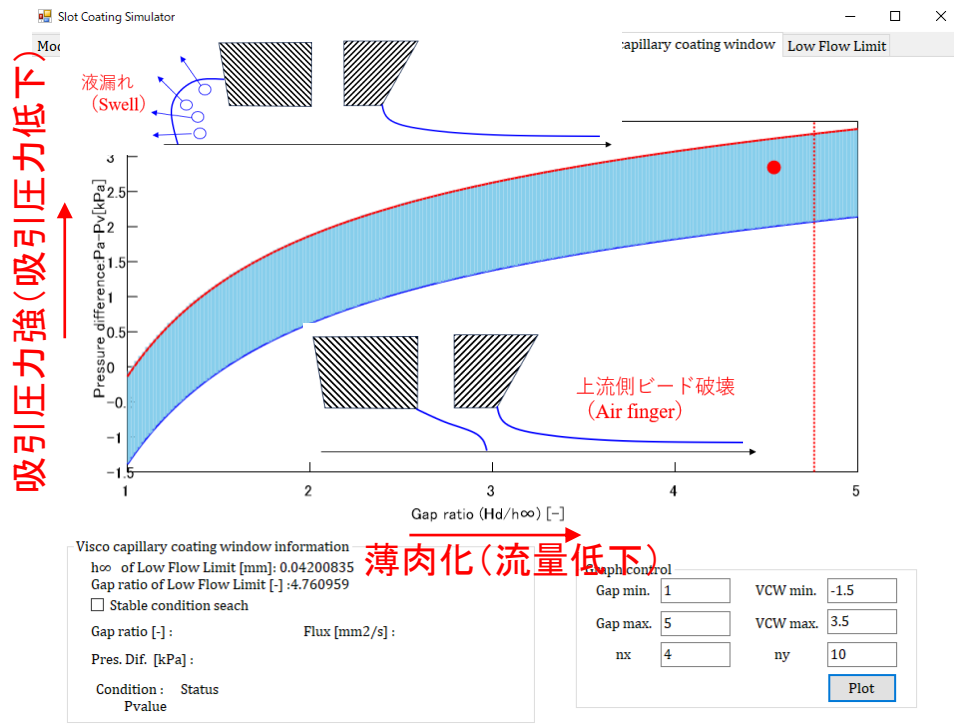
下流側 Meniscus & 流速分布の予測結果

- 参考文献 2) 'A Review of Operating Limits in Slot Die Coating Process' X. Ding, J. Liu and T. A. L. Haris, , AICHE J., 2508-2524(2017)
3) 精密ウェットコーティングの基礎, 山村方人, 表面技術, Vol. 60, No.7, 2-7(2009)

2) Slot bead 内圧力分布の予測

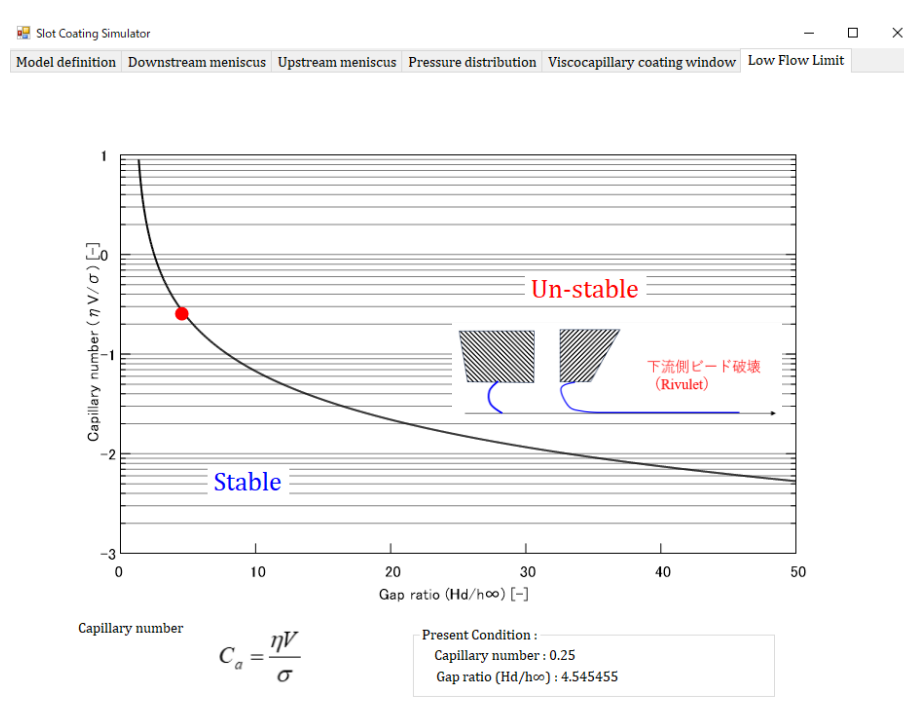


3) プロセスの安定性評価 (Visco Capillary Coating Window, LFL : Low Flow Limit)



Visco Capillary Coating Window

吸引圧力には適正值がある。
 吸引圧力が弱い(圧力が高い)と上流側ビードが破壊。
 吸引圧力が強い(圧力が低い)と液漏れ。



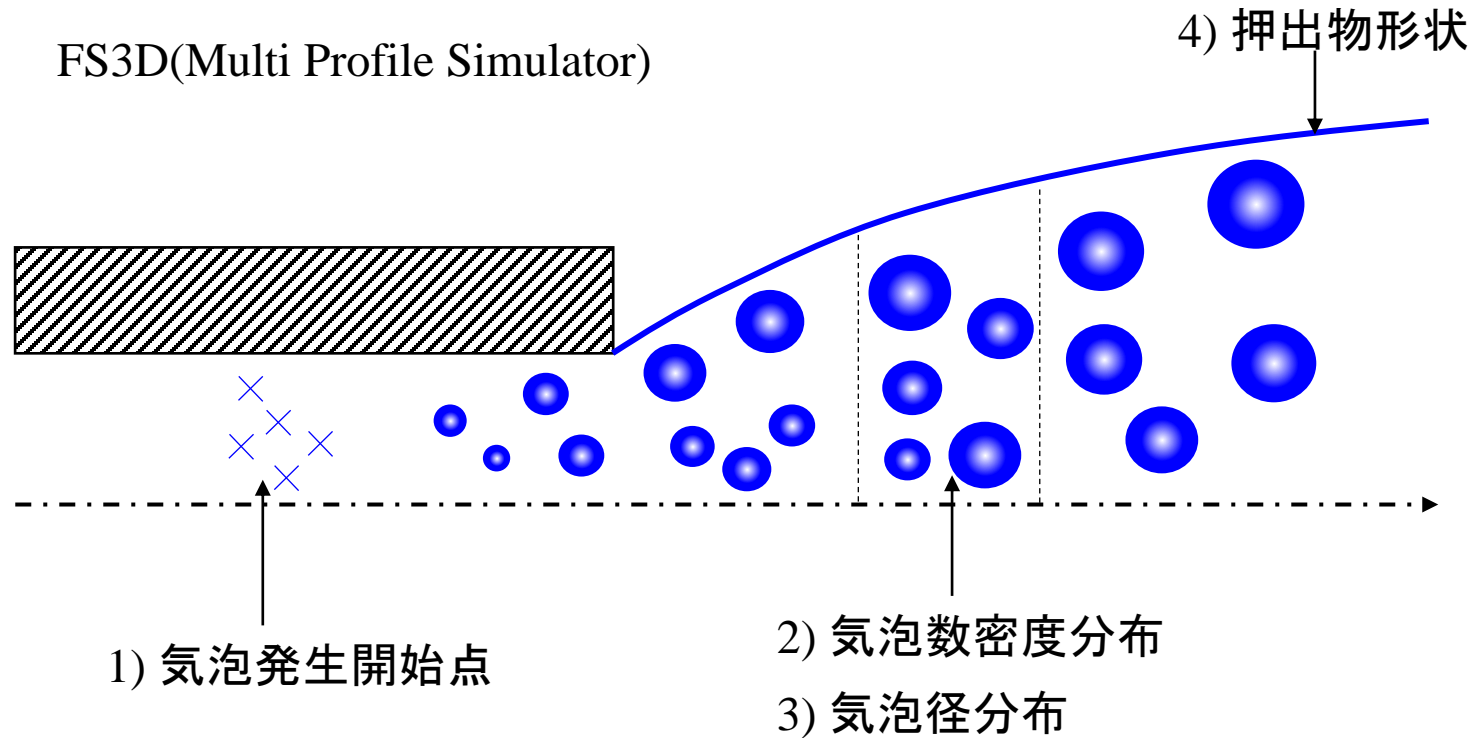
Low Flow Limit

Ca数に応じて薄肉化の限界値が変化する。
 Ca数が低いほど薄肉化し易い。

③ 発泡押出⁴⁾

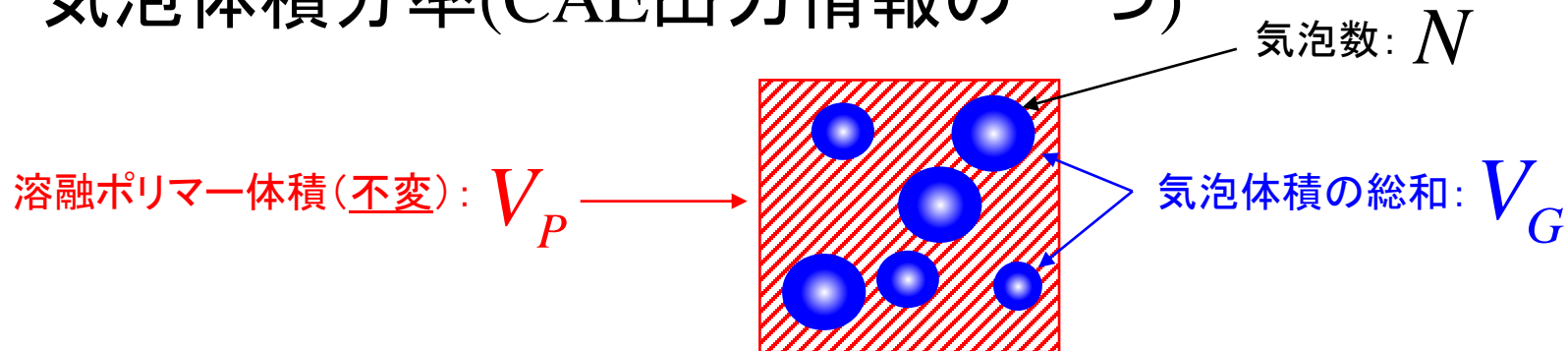
発泡押出解析機能の定量化対象情報

FS3D(Multi Profile Simulator)



参考文献 4) 瀧 健太郎:博士論文(京都大学(2005))

気泡体積分率(CAE出力情報の一つ)



気泡体積分率:
$$\phi_G \equiv \frac{V_G}{V_P + V_G}$$

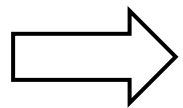
溶融ポリマー体積分率:
$$\phi_P \equiv \frac{V_P}{V_P + V_G}$$

$$\phi_P + \phi_G = 1$$

気泡数密度:
$$n = \frac{N}{V_P}$$

$$n' = \frac{N}{V_P + V_G}$$

$$n' = \left(\frac{V_P}{V_P + V_G} \right) n = \phi_P n = (1 - \phi_G) n$$



発泡倍率: $F_r \equiv \frac{V_P + V_G}{V_P}$

一般的な緩衝材は, 15~70倍程度

$$= \frac{1}{\phi_P} = \frac{1}{1 - \phi_G}$$

発泡倍率は溶融ポリマー体積分率の逆数.
CAEで定量化される情報(気泡体積分率): ϕ_G
& 気泡数密度 : n

※

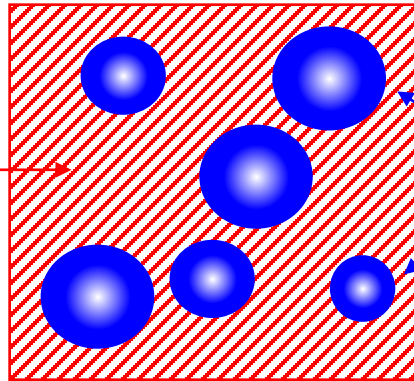
気泡体積分率[-] $\phi_G = \frac{V_G}{V_P + V_G} = \frac{\frac{4}{3} \pi N \bar{R}^3}{V_P + \frac{4}{3} \pi N \bar{R}^3} = \frac{\frac{4}{3} \pi n V_P \bar{R}^3}{V_P + \frac{4}{3} \pi n V_P \bar{R}^3} = \frac{\frac{4}{3} \pi n \bar{R}^3}{1 + \frac{4}{3} \pi n \bar{R}^3}$

N : ポリマー体積 V_P が生成する気泡数[-] = $n V_P$
 n : ポリマー体積 V_P に対する 気泡数密度 [mm^{-3}]

溶融ポリマー/気体混合流体の物性の取り扱い

溶融ポリマー密度: ρ_P

溶融ポリマー粘度: η_P



気体粘度: ρ_G

気体粘度: η_G

気液2相流のオーソドックスな考え方を踏襲すれば,

ポリマー/混合流体密度:

$$\rho_{PG} = \phi_P \rho_P + \phi_G \rho_G \cong \phi_P \rho_P = (1 - \phi_G) \rho_P \quad \rightarrow \text{OK}$$

$\because \rho_P \square \rho_G$

ポリマー/混合流体粘度:

$$\eta_{PG} = \phi_P \eta_P + \phi_G \eta_G \cong \phi_P \eta_P = (1 - \phi_G) \eta_P \quad \rightarrow \text{NG ???}$$

$\because \eta_P \square \eta_G$ 溶融ポリマー/混合流体粘度の取り扱いは良く分からない。

溶融ポリマー/気体混合流体の質量保存方程式

溶融ポリマー(非圧縮性流体)の質量保存則:

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_P = 0$$

\mathbf{v}_P : 溶融ポリマーの流速ベクトル

溶融ポリマー/気体混合流体(圧縮性流体)の質量保存則:

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_{PG} = \frac{1}{1 - \phi_G} \mathbf{v}_{PG} \cdot \nabla \phi_G$$

発泡倍率

\mathbf{v}_{PG} : 溶融ポリマー/気体混合流体の流速ベクトル

Proof:

$$\frac{\partial \rho_{PG}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_{PG} \rho_{PG}) = \frac{\partial \rho_{PG}}{\partial t} + \underbrace{\mathbf{v}_{PG} \cdot \nabla \rho_{PG} + \rho_{PG} \nabla \cdot \mathbf{v}_{PG}}_{\frac{D\rho_{PG}}{Dt} = -\rho_P \frac{D\phi_G}{Dt}} = 0 \quad \Longrightarrow \quad \nabla \cdot \mathbf{v}_{PG} = \frac{\rho_P}{\rho_{PG}} \frac{D\phi_G}{Dt} = \frac{1}{1 - \phi_G} \mathbf{v}_{PG} \cdot \nabla \phi_G$$

定常状態

発泡流動現象の支配方程式

流体支配方程式

運動方程式 (定常ストークス方程式)

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\tau}_{PG} = \nabla P_{PG}$$

構成方程式 (ニュートン粘性法則)

$$\boldsymbol{\tau}_{PG} = 2\eta_{PG}\mathbf{D}_{PG}$$

連続方程式 (圧縮性)

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_{PG} = \frac{1}{1 - \phi_G} \mathbf{v}_{PG} \cdot \nabla \phi_G$$

エネルギー方程式

$$\rho_{PG} C_{PG} \mathbf{v}_{PG} \cdot \nabla T_{PG} = \nabla \cdot (\kappa_{PG} \nabla T_{PG}) + \eta_{PG} \dot{\gamma}_{PG}^2$$

発泡現象支配方程式

気泡径成長方程式

$$\frac{DR}{Dt} = v_{PG} \nabla R = \frac{R}{4\eta_p} \left(P_D - P_{PG} - \frac{2\gamma}{R} \right)$$

物質収支式 (Han & Yoo モデル)

$$\frac{D(P_D R^3)}{Dt} = v_{PG} \nabla (P_D R^3) = \kappa (P_{D0} - P_D) R + \frac{P_D R^3}{T} v_{PG} \nabla T,$$

$$\kappa = \frac{6(R_g T) D k_H}{(-1 + \sqrt{1 + 2B})},$$

$$B = \frac{P_D R^3 - P_{D0} R_0^3}{R^3 R_g T k_H (P_{D0} - P_{PG})}.$$

加熱に伴う気泡の膨張,
冷却に伴う気泡の縮小を
表現

気泡剤濃度方程式

$$\bar{c}(t) = c(0) - \int_0^t \frac{4\pi}{3} R^3(t, t') \frac{P_D(t, t')}{R_g T} J(t') dt'$$

気泡数密度方程式

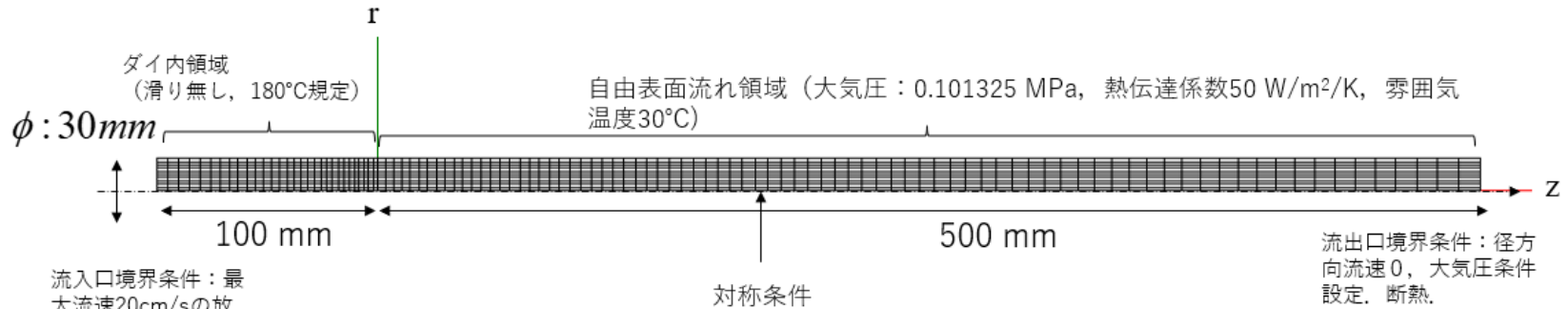
$$\frac{Dn}{Dt} = v_{PG} \nabla n = J$$

気泡核生成頻度モデル

$$J = f_0 \left(\frac{2\gamma}{\pi m} \right)^{1/2} \exp \left(- \frac{16\pi F \gamma^3}{3k_B T (c/k_H - P_C)^2} \right) c N_A$$

テスト解析モデル

CO2発泡溶融ポリマーの円管押出解析モデル(軸対称解析モデル)



流入口境界条件：最大流速20cm/sの放物型分布の流速分布を設定。温度200°C。

対称条件

流出口境界条件：径方向流速0, 大気圧条件設定。断熱。

$$\eta = 15000 Pa \cdot s$$

発泡解析条件

発泡解析

発泡パラメータ

CO2分子量 44 g/mol

ヘンリー定数 0.000115 mol/m³/Pa $\rightarrow K_H$

拡散係数 8.07E-09 m²/s

表面張力 12.3 mJ/m²

気体定数 8.314 J/mol/K

アボガドロ数 6.022E+23 -

ボルツマン定数 1.381E-23 m²kg/s²/K

核生成頻度フィッティングパラメータF 0.014085

核生成頻度モデルパラメータf0 1.8E-24

核生成頻度閾値jsh 0.0098

気体初期圧力 6 MPa

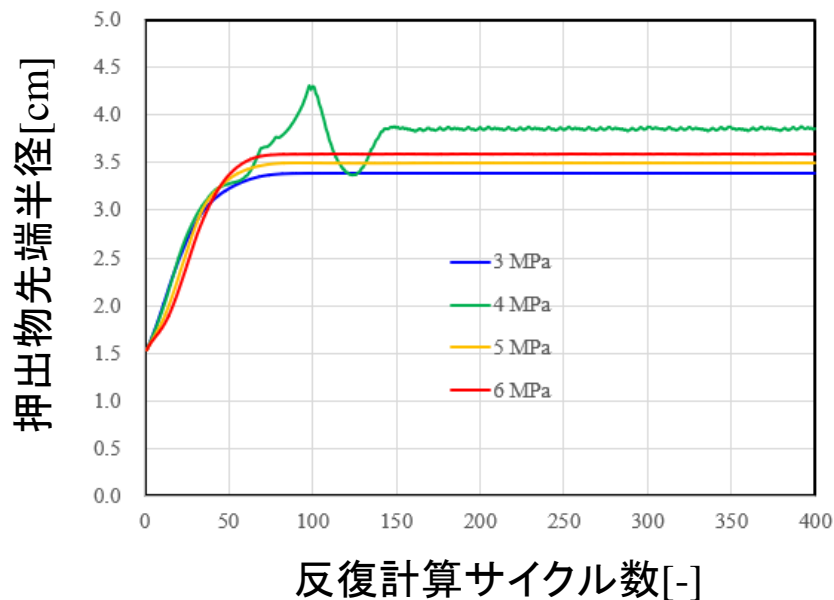
発泡モデル反復計算回数 20

表 ケーススタディー一覧

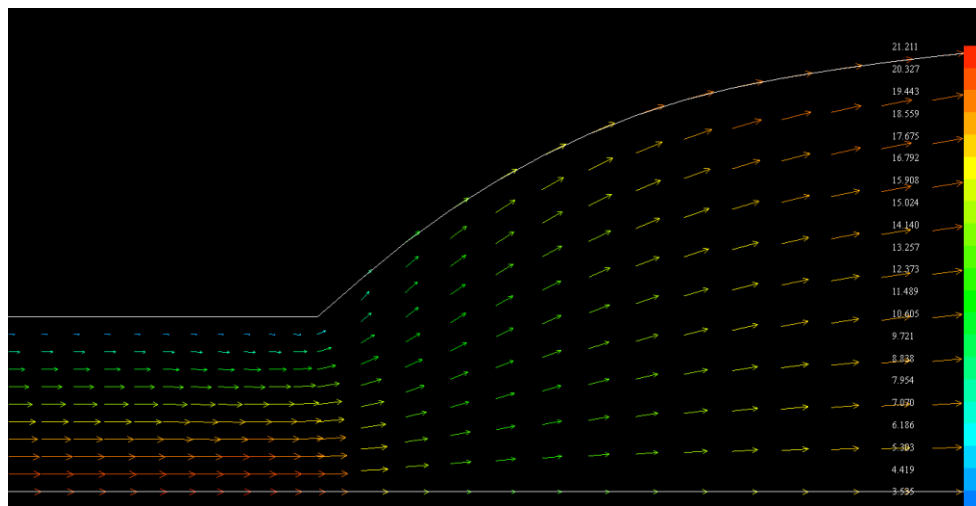
CO2初期(境界)圧力[MPa]	CO2初期(境界)濃度[mol/m³]
6	690
5	575
4	460
3	345

$$c(0) = \kappa_H P_{CO_2}(0)$$

計算収束性, 自由表面表現精度



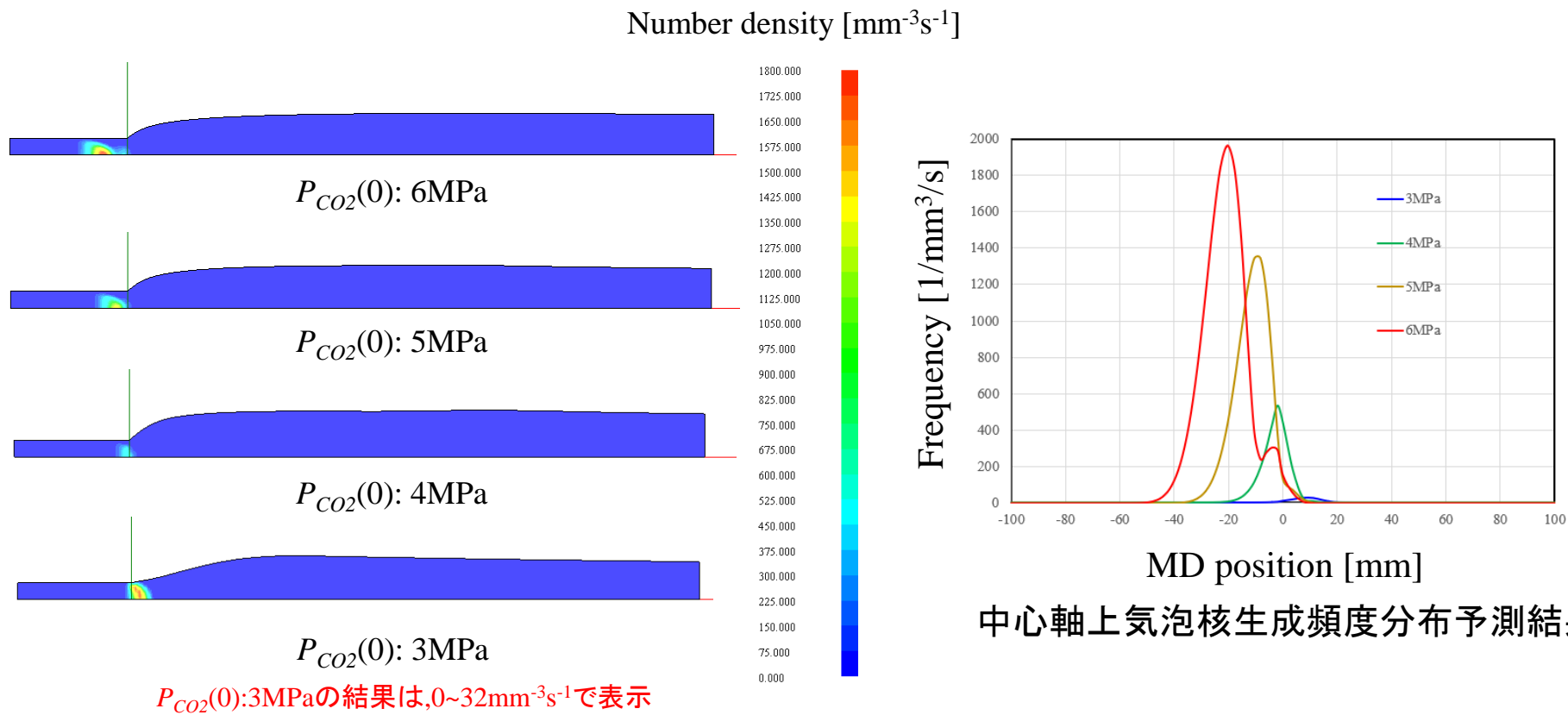
4MPa条件を除き計算収束性良好
(4MPa条件では若干の振動傾向)



自由表面表現精度良好

1) 気泡発生開始点(気泡核生成頻度)

- ・発泡剤(CO₂)濃度の低下に伴って気泡発生開始点は下流側にシフト.
- ・発泡剤(CO₂)濃度の低下に伴って気泡核生成頻度も低下.

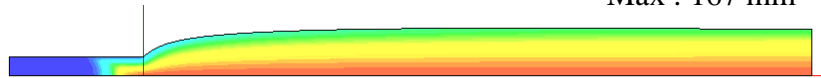


2) 気泡数密度分布

・CO2高濃度条件下では表面(外径)側の気泡数密度が中心部より低い。

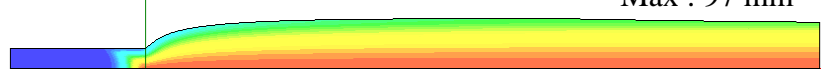
・発泡剤(CO2)濃度の低下に伴って気泡数密度も(指数関数的に)低下(つまり微細発泡では高濃度条件が必須→超臨界流体の利用)。

Max : 167 mm⁻³



$P_{CO_2}(0)$: 6MPa

Max : 97 mm⁻³



$P_{CO_2}(0)$: 5MPa

Max : 31 mm⁻³

外径側ポリマー体積分率:0.3,要素内気泡数7.5 mm⁻³

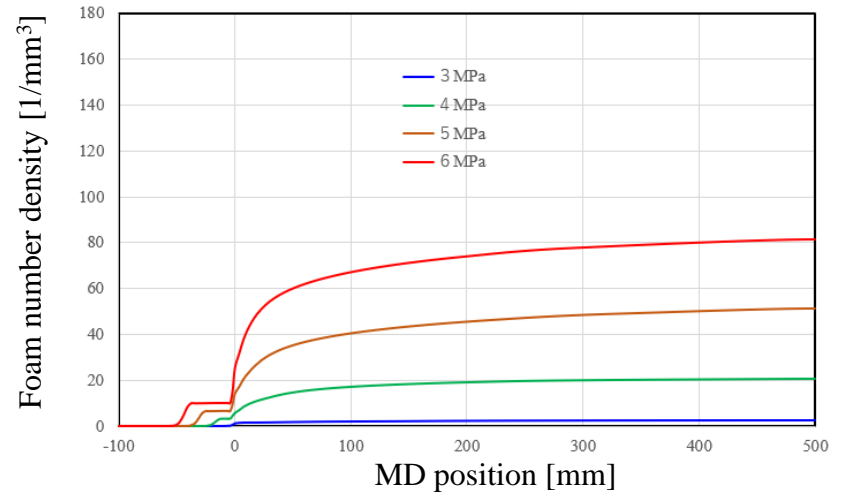
中心側ポリマー体積分率:0.05,要素内気泡数1.5 mm⁻³

$P_{CO_2}(0)$: 4MPa

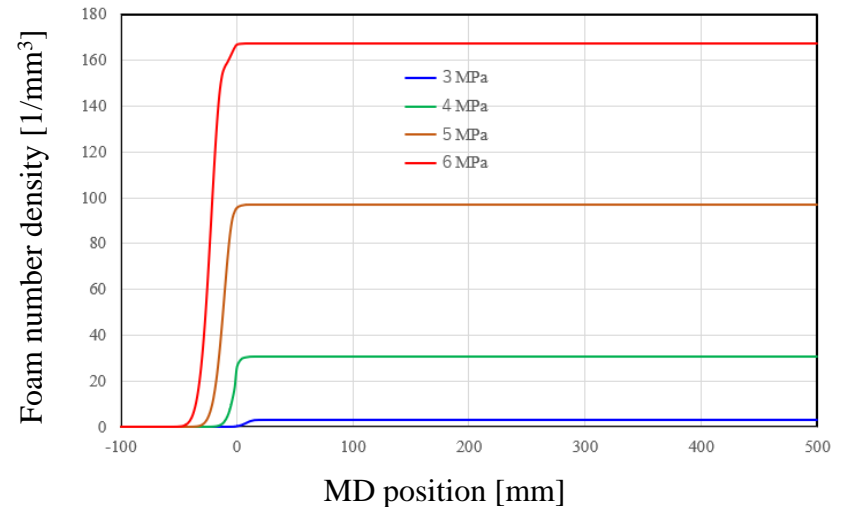
Max : 3 mm⁻³



$P_{CO_2}(0)$: 3MPa



外径側気泡数密度分布予測結果



中心軸上気泡数密度分布予測結果

表面(外径側)の気泡数密度が中心部より低い理由

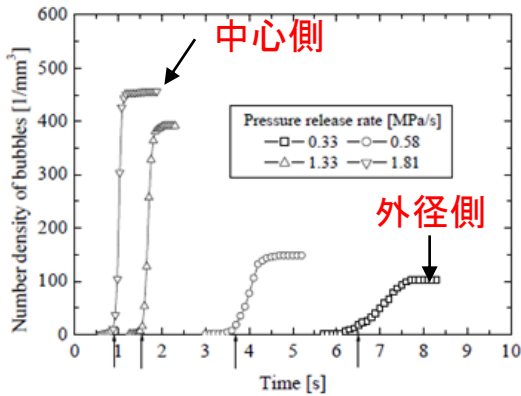
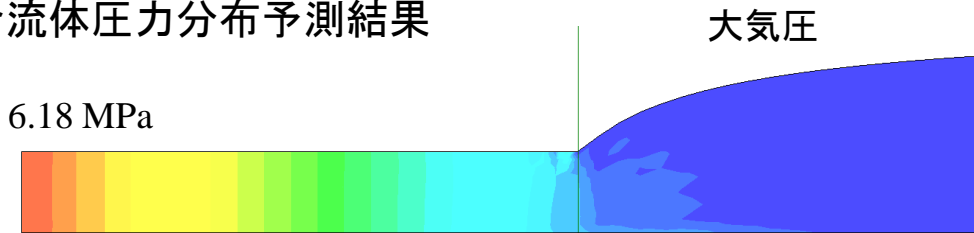


Fig. 2-10 Effect of pressure release rate on bubble nucleation (PP/CO₂, 11MPa, 200°C).

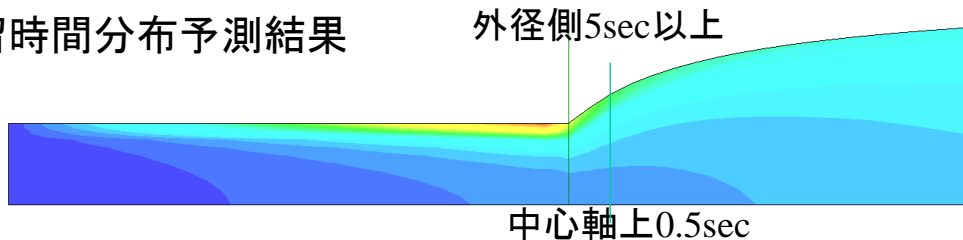
Arrows indicate the rise time of bubble nucleation, t_N , defined by Eq. (2.3).

‘ Experimental and numerical studies on the effects of pressure release rate on number density of bubbles and bubble growth in a polymeric foaming process ’, Taki, K., *Chem. Eng. Sci.* **63** 3643–53(2008)より引用

混合流体圧力分布予測結果



滞留時間分布予測結果



外径側と中心軸上での流体の圧力降下は約6MPaで共通.

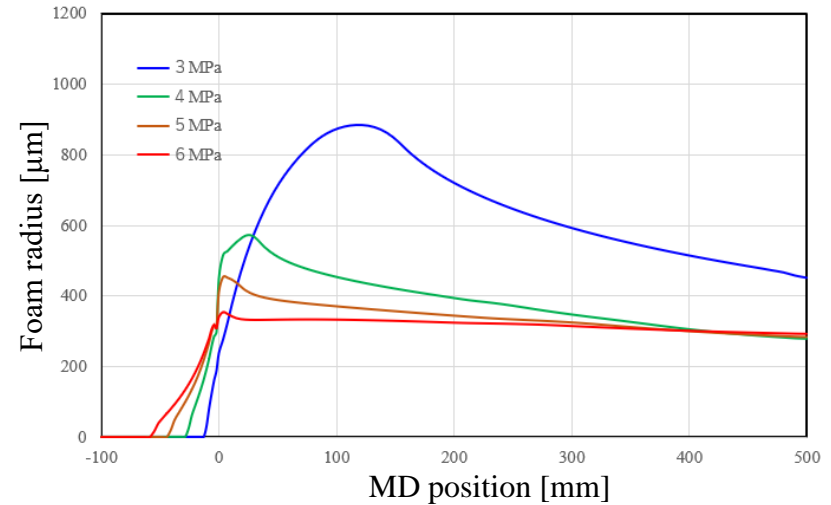
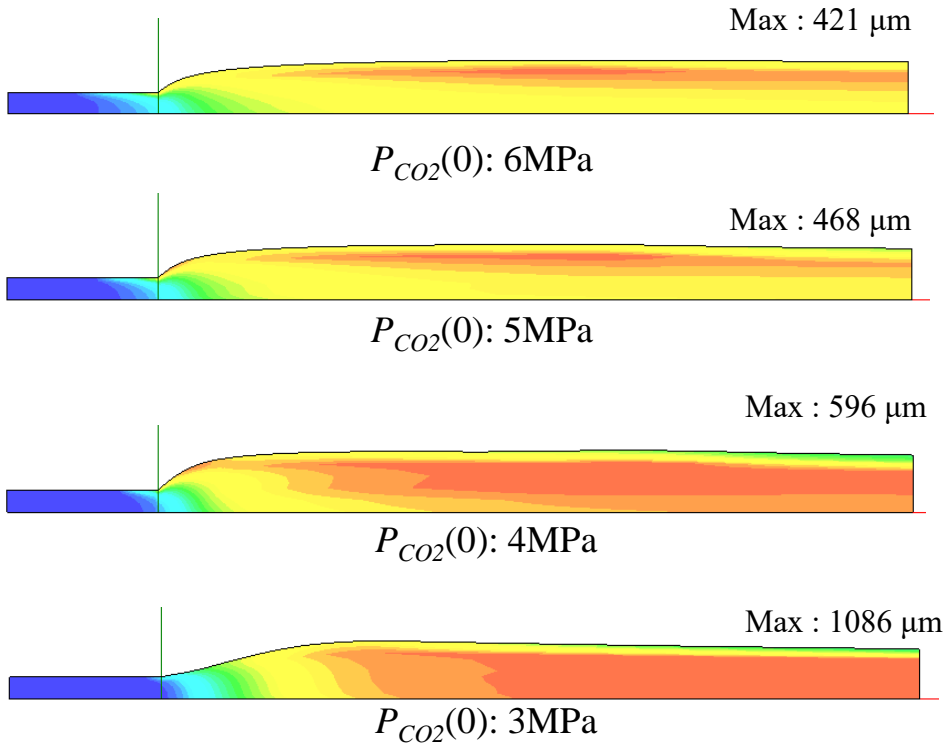
外径側は低速の為, 中心軸上と比較してダイ流出口まで10倍以上の滞留時間を要する.



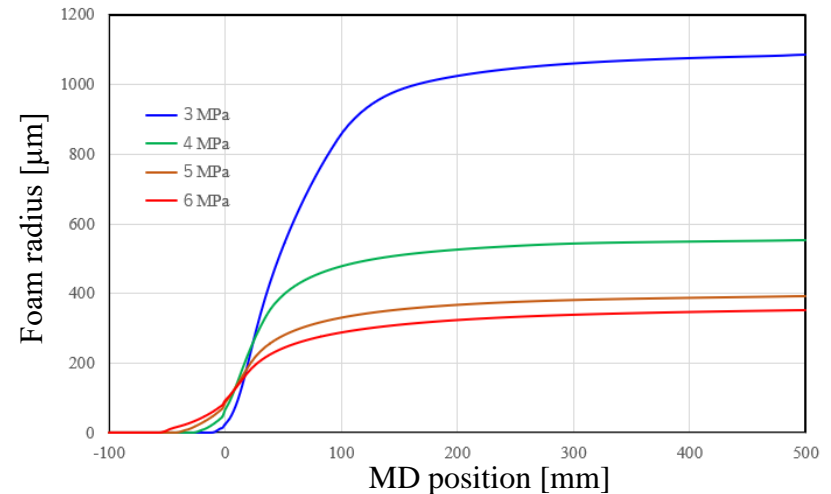
中心軸上減圧速度 > 外径側減圧速度
(押出成形プロセスでは様々な減圧速度条件が混在する)

3) 気泡径分布

- ・発泡剤(CO₂)濃度の低下に伴って気泡径増加.
- ・表面側の気泡径は冷却効果を反映して収縮.
冷却効果が顕著な3MPa条件では, Skin 層がCore 層よりも気泡径が小さい(射出成形品と同様の傾向)



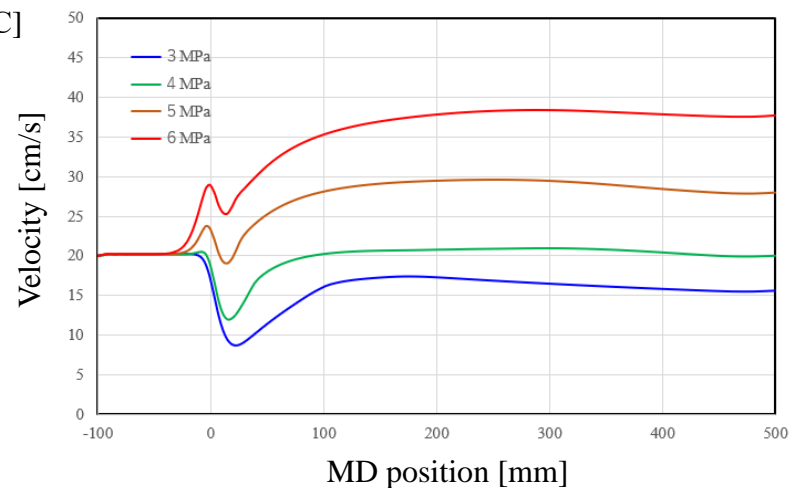
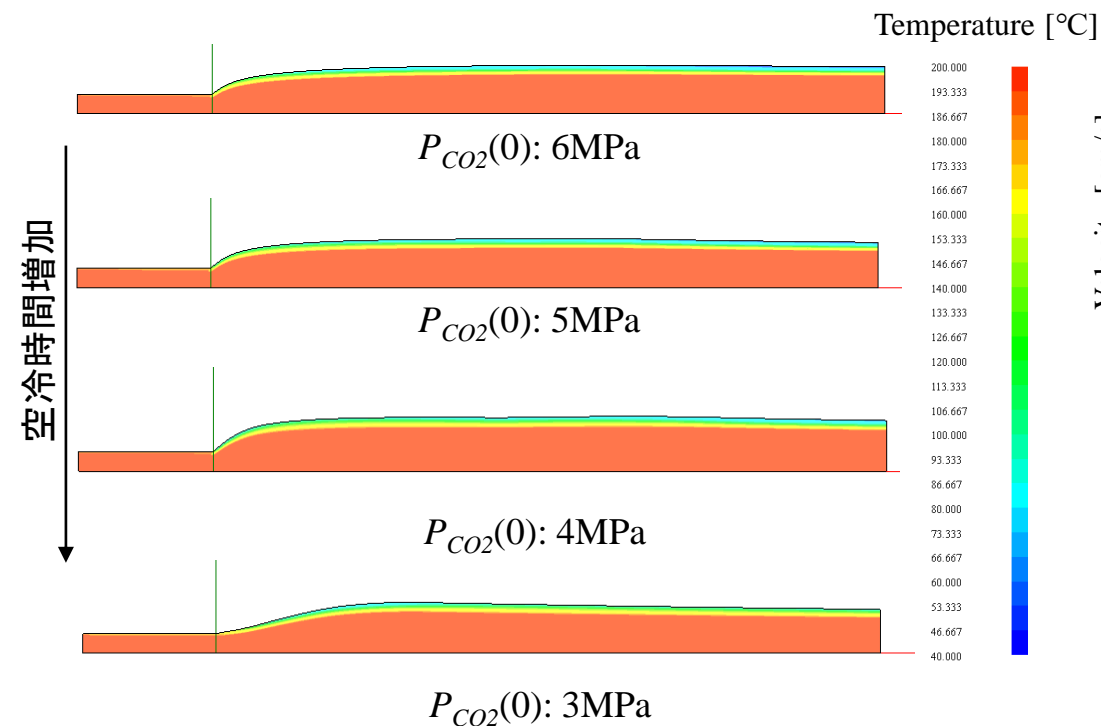
外径側気泡径分布予測結果



中心軸上気泡径分布予測結果

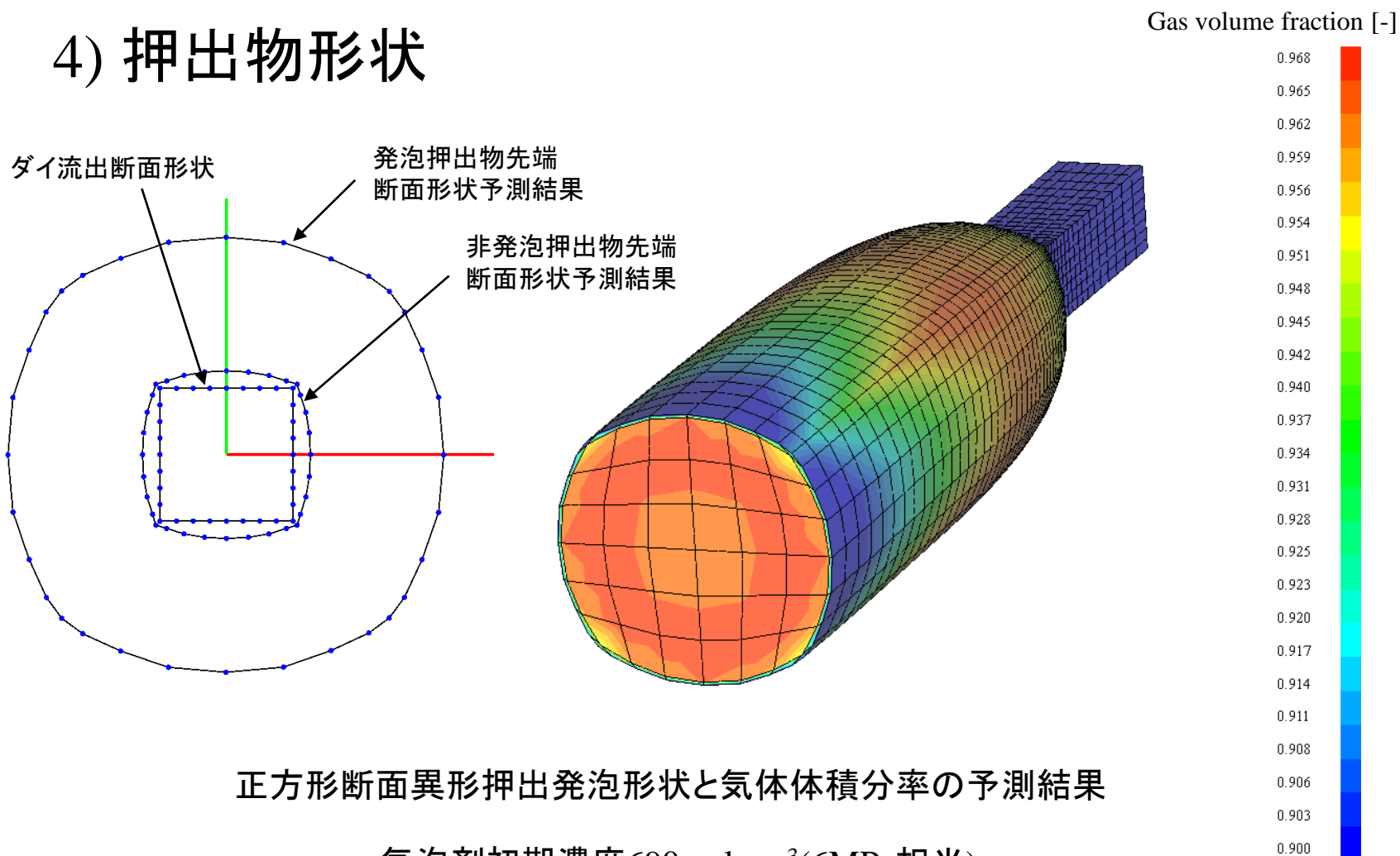
低濃度条件下で冷却(空冷)効果が顕著になる理由

低濃度条件では、気泡体積生成量が少なく、流体が加速され難い。結果として高濃度条件と比較すると流速が遅く、冷却時間が相対的に長くなるため、その効果が相対的に表層側に顕れ易くなると考えられる(中心側は熱対流効果によりほぼ等温状態)。



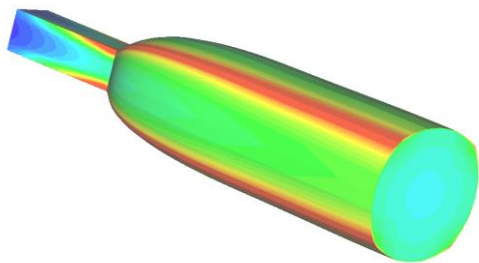
中心軸上流速分布予測結果

4) 押出物形状

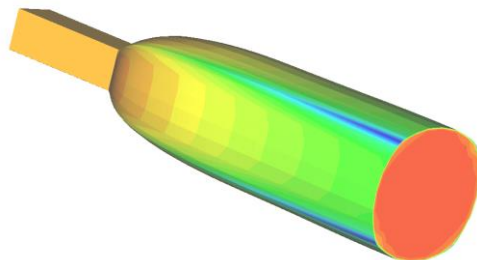


正方形断面異形押出発泡形状と気体体積分率の予測結果

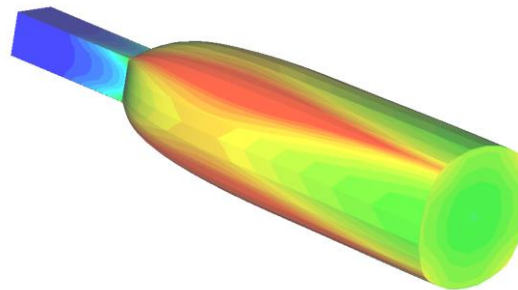
気泡剤初期濃度 $690 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$ (6MPa相当)
FS3D(Multi Profile Simulator, ALE法)解析結果



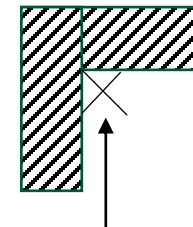
滞留時間分布



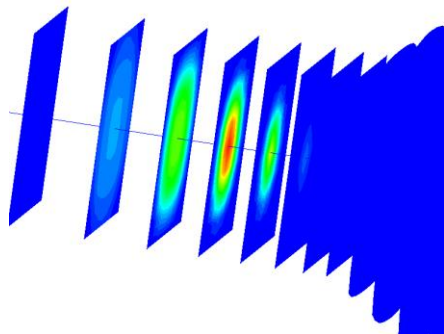
温度分布
全体図



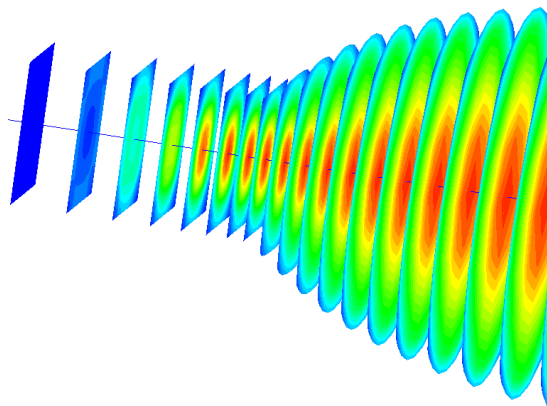
気泡径分布



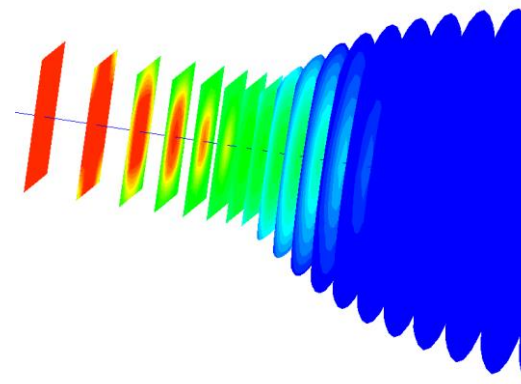
コーナー部は壁面効果を受け易い



核生成密度分布



気泡数密度分布



気泡剤濃度分布

ダイ流出口近傍断面図

精度検証(およその発泡倍率の計算は容易)

ヘンリー則

$$\text{発泡剤濃度} : 6 \text{ MPa} \times 1.15 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{Pa}^{-1} = \underline{690} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3} = C_0$$

理想気体状態方程式

$$PV_G = n\tilde{R}_g T$$

$$PV_G = C_0 V_P \tilde{R}_g T$$

$$\therefore n = C_0 V_P$$

\tilde{R}_g : 気体定数(8.314 JK⁻¹mol⁻¹)

P : 大気圧(1013 × 10² Pa)

T : 200+273.15 K

発泡倍率 (Foaming ratio)

$$F_r \equiv \frac{V_P + V_G}{V_P} = \frac{V_P + \frac{C_0 V_P \tilde{R}_g T}{P}}{V_P} = 1 + \frac{C_0 \tilde{R}_g T}{P}$$

概算値:

$$F_r = 1 + \frac{690 \times 8.314 \times (200 + 273.15)}{1013 \times 10^2} = \underline{27.8}$$

シミュレーション予測結果: $\phi_G = 0.965$

$$F_r = \frac{1}{\phi_P} = \frac{1}{1 - \phi_G} = \frac{1}{1 - 0.965} = \underline{28.6}$$

$$\text{相対誤差} : (28.6 - 27.8) / 27.8 \times 100 = \underline{2.89\%}$$

工学的許容誤差範囲内

まとめ

成果

多層押出関連

- 1) 逐次合流多層流動解析の安定性向上(FSM,SSM)
- 2) 層構成の汎用化(FSM)

スロットコーティング関連

- 3) 低粘性流体への用途拡大(FS)
- 4) Slot Coating Simulator(SCS)の新規開発

発泡押出関連

- 5) 発泡押出解析機能の新規実装(FS3D(Multi Profile Simulator))

今後の課題

- 1) PSM(Pseudo Encapsulation Model)の適応性向上
- 2) Slot Coating Simulator の機能改良とFlat Simulator との連携機能の整備
- 3) 発泡押出解析機能改良
- 4) 実験検証(多層押出, スロットコーティング, 発泡押出,
皆様, 是非, ご協力をお願いします.)