

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

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand im Rahmen meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Kunststofftechnologie (IKT) der Universität Stuttgart.

Mein Dank gilt vor allem dem Leiter des Instituts, Herrn Prof. Dr.-Ing. H.-G. Fritz für seine fortwährende Unterstützung und wissenschaftliche Förderung dieser Arbeit.

Besonders danken möchte ich überdies Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. M. Piesche für die Übernahme des Mitberichts.

Allen ehemaligen Kollegen des Instituts sei hiermit gedankt, insbesondere Prof. Dr.-Ing. M. Wagner, Dr.-Ing. K. Geiger, Dr.-Ing. S. Fang und Dr.-Ing. P. Häring. Für die Hilfe bei den experimentellen Arbeiten möchte ich vor allem Frau S. Müller danken. Besonderer Dank gilt auch meinem langjährigen Zimmerkollegen Dr.-Ing. R. Mehling für die sehr angenehme Zusammenarbeit.

Die vorliegende Arbeit, die im Rahmen des Sonderforschungsbereichs 412 entstand, wurde ermöglicht durch die finanzielle Förderung durch die DFG, der ich dafür danken möchte.

Darüber hinaus danke ich Herrn Dr.-Ing. W. Schaaf für die Durchsicht meiner Arbeit. Schließlich danke ich meiner Frau Heike Münzenmaier, die mich bei der Erstellung dieser Arbeit nicht nur moralisch unterstützte, und nicht zuletzt meinen Eltern.

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

Abkürzungen und Formelzeichen

Skalare Größen

Lateinische Buchstaben:

A	m^2	Ober-/Grenzfläche
A	m^2	Querschnittsfläche des Strömungskanals
A_e	m^2	Oberfläche des rotationssymmetrischen Ellipsoids
A_K	m^2	Querschnittsfläche des Schneckenkanals
\bar{A}_{Zw}	m^2	mittlere axiale Querschnittsfläche des Zwickelbereichs des Zweischneckenextruders
A_0	$Pa \cdot s$	erster Koeffizient Carreau-Ansatz
A_1	s	zweiter Koeffizient Carreau-Ansatz
A_2	–	dritter Koeffizient Carreau-Ansatz
C	m^2	Koaleszenzkonstante
Ca	–	Kapillarzahl
Ca_{crit}	–	kritische Kapillarzahl
Ca^*	–	Kapillarzahl des Fluidfadens
Ca_r	–	reduzierte Kapillarzahl Ca/Ca_{crit}
D	–	Deformationsmaß einer Ellipse
D^f	m	Fluidfadendurchmesser
D_{crit}^f	m	kritischer Fluidfadendurchmesser
D_n	m	mittlerer Tropfendurchmesser (arithmetische Mittelung)
D_v	m	mittlerer Tropfendurchmesser (volumetrische Mittelung)
E	–	modifizierte Kapillarzahl des Fluidfadens ($Ca^*/\sqrt{2}$)

VIII

G^*	Pa	komplexer Schubmodul
G'	Pa	Speichermodul
G''	Pa	Verlustmodul
H	$1/m$	mittlere Krümmung
I_1	$1/s$	erste Invariante des Tensors $2\underline{D}$ (Spur)
I_2	$1/s^2$	zweite Invariante des Tensors $2\underline{D}$ (Betrag)
I_3	$1/s^3$	dritte Invariante des Tensors $2\underline{D}$ (Determinante)
K	J	Hamakerkonstante
K_1	–	elliptisches Integral erster Gattung
L	m	Länge des deformierten Tropfens
L_{Zyl}	m	Länge des Extruderkanalabschnitts
\dot{M}_W	kg/s	Massestrom des Kühlwassers in der kühlbaren Düse
N_{1i}	N/m^2	erste Normalspannungsdifferenz der Komponente i
Q	$1/m$	spezifische Grenzfläche
Q_{gg}	$1/m$	spezifische Grenzfläche im dynamischen Gleichgewicht
\hat{Q}	$1/m$	modifizierte Definition der spezifischen Grenzfläche
Q_0	%	Anzahlverteilung der Tropfen
R	m	Tropfenradius
R_{gg}	m	Tropfenradius im dynamischen Gleichgewicht
R_{gg}^0	m	Tropfenradius im dynamischen Gleichgewicht im Grenzfall $\Phi_{DP} \rightarrow 0$
R_{max}	m	große Halbachse des rotationssymmetrischen Ellipsoids
R_{min}	m	kleine Halbachse des rotationssymmetrischen Ellipsoids
R_n	m	mittlerer Tropfenradius (arithmetische Mittelung)
R_v	m	mittlerer Tropfenradius (volumetrische Mittelung)
R_{crit}	m	kritischer Tropfenradius (Zerfall)
R_{crit}^{coal}	m	kritischer Tropfenradius (Koaleszenz)
Re	–	Reynoldszahl
S	$1/s$	Betrag des Deformationsgeschwindigkeitstensors
T	$^{\circ}C$	Temperatur

IX

\dot{V}	m^3/s	Volumenstrom
\dot{V}_K	m^3/s	Volumenstrom durch einen Schneckenkanal des Zweisechneckenextruders
\dot{V}_{Zw}	m^3/s	Volumenstrom durch den Zwickelbereich des Zweisechneckenextruders
W	J	Grenzflächenenergie
a	m	Fluidfadenradius
a_0	m	Zylinderradius
b	m	Schlitzbreite der Kühldüse
c	—	Tangens des Winkels zwischen Fluidfaden und Stromlinie
d_f	—	Verhältnis zwischen Fluidfadenlänge und -durchmesser
d_{max}	m	erste Hauptachse der Ellipse des Fluidfadenquerschnitts
d_{min}	m	zweite Hauptachse der Ellipse des Fluidfadenquerschnitts
d_{23}	m	Sauterdurchmesser
h	m	Schlitzhöhe der Kühldüse
h_{crit}	m	kritische Filmdicke
m	—	theoretische Gangzahl des Zweisechneckenextruders
n	—	Tropfenanzahl
n_R	$1/s$	Drehzahl Schertorpedo
n_s	$1/s$	Schneckendrehzahl Extruder
p	Pa	Druck
$r(x)$	—	Formfunktion des deformierten Tropfens
s	m	Bogenlänge Stromlinie
t	m, mm	Schneckensteigung
t_b	s	Tropfenzerfallszeit
t_b^*	—	dimensionslose Tropfenzerfallszeit
t_{coll}	s	Zeit zwischen zwei Tropfenkollisionen
t_m	s	Zeitpunkt einsetzenden Störungsamplitudenwachstums

X

\bar{v}_a	m/s	mittlere Axialgeschwindigkeit
v_s	m/s	Stempelgeschwindigkeit im Kapillarrheometer
w	m	Spaltweite des Schertorpedos
w_i	–	Massenkonzentration der Komponente i
x	–	Wellenzahl zur Beschreibung der Störungsamplitude
x_m	–	Wellenzahl am Minimum der Störungsamplitude
x_{opt}	–	Wellenzahl der Störung mit der maximalen Anfachungsrate

Griechische Buchstaben:

∇	m^{-1}	Nablaoperator
Δ	m^{-2}	Laplaceoperator
Δt_v	s	Verweilzeit
Δt_{Zw}	s	Verweilzeit im Zwickelbereich des Zweischneckenextruders
Θ	<i>Grad</i>	Winkel zwischen Tropfenhauptachse und Stromlinie
Φ_i	–	Volumenkonzentration der Komponente i
$\Phi, \bar{\Phi}$	–	Funktionen der Veränderlichen Wellenzahl und Viskositätsverhältnis
Ψ	<i>Grad</i>	Überdeckungswinkel der Schnecken des Zweischneckenextruders
α	m	Amplitude einer sinusförmigen Störung auf der Fluidfadenoberfläche
α_m	m	Startwert der Amplitude
α	–	Parameter zur Klassifikation der Strömungsform
β	–	Phasenverschiebung sinusförmiger Störungen
β_{crit}	–	kritische Phasenverschiebung
$\dot{\beta}$	$1/s$	zeitliche Änderung der Phasenverschiebung
δ	<i>Grad</i>	Phasenwinkel
ϕ	<i>Grad</i>	Winkel im Polarkoordinatensystem
γ	–	Gesamtscherdeformation
$ \dot{\gamma} $	$1/s$	Betrag des Deformationsgeschwindigkeitstensors $2\underline{D}$

XI

$ \dot{\gamma} _K$	$1/s$	Betrag des Deformationsgeschwindigkeitstensors im Schneckenkanal
$\dot{\gamma}_w^*$	$1/s$	scheinbare Schergeschwindigkeit an der Wand
$ \dot{\gamma} _{Zw}$	$1/s$	Betrag des Deformationsgeschwindigkeitstensors im Zwickelbereich des Zweischneckenextruders
$\dot{\epsilon}$	$1/s$	Dehngeschwindigkeit
η	$Pa \cdot s$	Viskosität
η_0	$Pa \cdot s$	Nullviskosität
η_{CP}	$Pa \cdot s$	Viskosität der kontinuierlichen Phase
η_{DP}	$Pa \cdot s$	Viskosität der dispersen Phase
η_m	$Pa \cdot s$	Gemischviskosität
λ	m	Wellenlänge sinusförmiger Störungen
λ_1	–	Viskositätsverhältnis
λ_3	–	Volumenkonzentrationsverhältnis
λ_4	–	Elastizitätsverhältnis
μ_1	-	allgemeiner Relaxationsparameter
μ_2	-	Relaxationsparameter (Koaleszenz)
μ_3	-	Relaxationsparameter (Zerfall und Rückdeformation)
v	-	Substitutionsvariable
ω	$1/s$	Kreisfrequenz
ξ	–	Slip-Faktor zur Beschreibung nichtaffiner Tropfen-deformationen
ξ_i	-	Massenanteil Komponente i am Gemisch
ρ	kg/m^3	Dichte
σ_{12}	N/m	Grenzflächenspannung
τ_a	N/m^2	Schubspannung aufgrund der Grenzflächenspannung

Vektoren und Tensoren

Lateinische Buchstaben:

\underline{C}	–	Rechts-Cauchy-Green-Tensor ($\underline{F}^T \cdot \underline{F}$)
$\underline{2D}$	1/s	Deformationsgeschwindigkeitstensor
\underline{E}	1/m ²	Tensor zur Beschreibung eines Grenzflächenelements
\underline{F}	–	Deformationstensor
\underline{G}	–	Links-Cauchy-Green-Tensor ($\underline{F} \cdot \underline{F}^T$)
\underline{I}	–	Einheitstensor
\underline{L}	1/s	Geschwindigkeitsgradiententensor
\underline{Q}	1/s	Rotationstensor
\underline{W}	1/s	Drehgeschwindigkeitstensor
\underline{g}	1/s	Tensor zur Beschreibung der Fluidfadenscherung
\vec{e}_i	–	Basis des mitgeführten Koordinatensystems
\vec{m}	–	erste Hauptrichtung des deformierten Tropfens
\vec{n}	–	normierter Vektor normal zur Grenzfläche
\underline{q}	1/m	Tensor zur Darstellung der Grenzflächenanisotropie
$\underline{\hat{q}}$	1/m	modifizierte Definition des Tensors zur Darstellung der Grenzflächenanisotropie
\vec{v}	m/s	Geschwindigkeitsvektor
\vec{x}	m	Ortsvektor

Griechische Buchstaben:

$\vec{\nabla}$	m ⁻¹	Nablaoperator
$\underline{\delta}$	–	Kroneckersymbol
$\underline{\sigma}$	N/m ²	Gesamtspannungstensor
$\underline{\tau}$	N/m ²	Extraspannungstensor

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

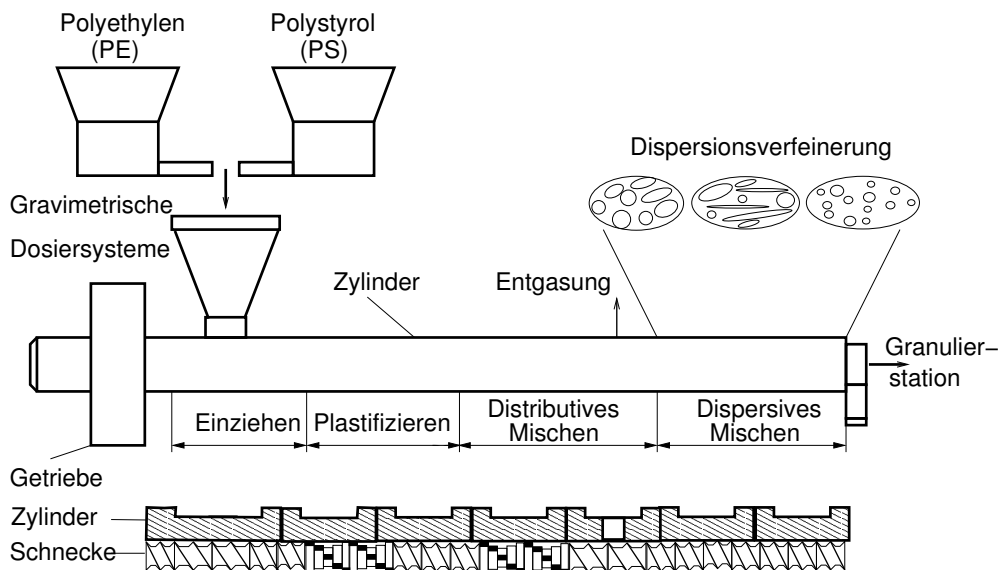


Bild 1.1: Compoundierprozeß im Zweischneckenextruder

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 2

Ausgangssituation

2.1 Vorgänge beim dispersiven Mischen hochviskoser Flüssigkeiten

Bei der Aufbereitung von Polymerblends müssen zur Verbesserung der Dispersions-Mischgüte Tropfen der dispersen Phase zerkleinert werden. Eine Analyse der *Tropfenstabilität* gibt Auskunft darüber, ob dies für einen Tropfen mit definierter Größe in einem vorliegenden Strömungsfeld überhaupt möglich ist.

Tritt *Tropfenzerfall* auf, so interessieren vor allem die Zeitspanne zwischen der Einleitung des Tropfenbruchs bis zur Aufspaltung in kleinere Tropfen im Verhältnis zur Prozeßzeit sowie die Abmessungen der neu entstehenden Fluidpartikel.

Nur in Sonderfällen ist die Morphologie am Austritt der zur Komponentenvermischung eingesetzten Apparatur ausschließlich durch Zerfallsmechanismen festgelegt. Schon bei niedrigen Volumenkonzentrationen der dispersen Phase beeinflussen *Koaleszenzphänomene* die Mischgüte.

Die angestrebten physikalischen und anwendungstechnischen Eigenschaften disperser Polymerblends werden oft nur bei entsprechend hoher Dosierung der dispersen Phase erzielt. Das impliziert aber, daß schon bei der Analyse des Strömungsfeldes die *Rheo-*

logie des Polymergemisches zugrundegelegt werden muß. Neben dem Fließverhalten der Ausgangskomponenten wird diese, vor allem in instationären Strömungen, auch durch die Phasengrenzfläche bestimmt.

In der Praxis erfolgt die *Aufbereitung von Polymerblends* häufig mittels Zweischnellenextrudern. Hierzu sind die bislang für Strömungen mit einfacher Kinematik beschreibbaren Phänomene auf komplexe Strömungsformen zu übertragen.

2.2 Stabilität hochviskoser Tropfen

Bei konstanter Grenzflächenspannung σ_{12} ist die Kugelform hinsichtlich der Grenzflächenenergie W die energetisch günstigste Tropfenform. Diese Energie berechnet sich aus der Integration der Grenzflächenspannung über der Tropfenoberfläche A :

$$W = \int_A \sigma_{12} dA \quad . \quad (2.1)$$

In Dispersionen hochviskoser Fluide werden Tropfen, die inhomogenen Strömungsfeldern ausgesetzt sind, aufgrund der auftretenden Kräfte deformiert. Je größer diese am Tropfen angreifenden Strömungskräfte sind, desto schneller wird ein anfänglich kugelförmiger Tropfen verformt. Zur damit einhergehenden Vergrößerung der Grenzfläche muß gemäß Gl. 2.1 Arbeit verrichtet werden.

Aussagen über die Deformation und die Stabilität von Tropfen werden häufig anhand der dimensionslosen Kapillarzahl Ca getroffen, die die viskosen Kräfte mit den Grenzflächenspannungskräften korreliert:

$$Ca = \frac{\eta_{CP} \cdot |\dot{\gamma}| \cdot R}{\sigma_{12}} \quad . \quad (2.2)$$

Der Einfluß der Strömung wird durch den Term $\eta_{CP} \cdot |\dot{\gamma}|$ mit der Viskosität der kontinuierlichen Phase η_{CP} und dem Betrag des Deformationsgeschwindigkeitstensors $|\dot{\gamma}|$ abgebildet. Mit dem Produkt

aus der Grenzflächenspannung σ_{12} und dem reziproken Tropfenradius $1/R$ werden die der Tropfendeformation entgegenwirkenden Kräfte quantifiziert: Der Betrag der normal zur Grenzfläche gerichteten Resultierenden aus den angreifenden Grenzflächenspannungen ist proportional zur mittleren Krümmung der Tropfenoberfläche, die sich für eine kugelförmigen Grenzfläche berechnet zu $H = 1/R$. Die Kapillarzahl tritt in der dimensionslosen Form der Kräftebilanz normal zur Tropfengrenzfläche auf [39]. Diese Kräftebilanz läßt sich wie folgt formulieren:

$$((\underline{\sigma}' - \lambda_1 \cdot \underline{\hat{\sigma}}') \cdot \vec{n}) \cdot \vec{n} = \frac{1}{Ca} \cdot \vec{\nabla}' \cdot \vec{n} \quad . \quad (2.3)$$

Die Gleichung 2.3 ist gültig für schleichende Strömungen ($Re \ll 1$) inkompressibler Medien mit Newtonschem Fließverhalten. In dieser Formulierung wird die Tropfengrenzfläche vereinfachend als unendlich dünne Grenzschicht modelliert, und die Grenzflächenspannung als konstante Größe angenommen.

In Gl. 2.3 werden die Strömungskräfte mit Hilfe der normierten Gesamtspannungstensoren ($\underline{\hat{\sigma}}'$, $\underline{\sigma}'$) an der Innen- und Außenseite der Tropfengrenzfläche dargestellt. Der Gesamtspannungstensor setzt sich aus zwei Anteilen zusammen:

$$\underline{\sigma} = -p \cdot \underline{I} + \underline{\tau} \quad . \quad (2.4)$$

Der Extraspannungstensor $\underline{\tau}$ verschwindet, wenn sich das Fluid in Ruhe befindet. In diesem Fall reduziert sich die Gl. 2.3 auf die Laplace-Gleichung, die den Zusammenhang zwischen dem Tropfenradius und dem Drucksprung über die Grenzfläche hinweg beschreibt. Die bei inhomogenen Strömungen zusätzlich auftretenden viskosen Kräfte werden im Gleichgewichtszustand durch entsprechende Grenzflächenkrümmungen $\vec{\nabla}' \cdot \vec{n}$ ausgeglichen. Das skalare Produkt des mit dem Radius des undeformierten Tropfens normierten Nablaoperators $\vec{\nabla}' = R \cdot \vec{\nabla}$ mit dem Normalenvektor der Grenzfläche stellt ein Maß der Tropfendeformation dar und ist beim kugelförmigen Tropfen gleich 2.

Aus Gl. 2.3 ist zu erkennen, daß bei kleinen Kapillarzahlen schon geringe Krümmungsänderungen die an der Grenzfläche angreifenden Strömungskräfte ausgleichen. Mit wachsenden Kapillarzahlen resultieren hingegen zunehmende Deformationen. Überschreitet die Kapillarzahl einen bestimmten kritischen Wert $Ca > Ca_{crit}$, so existiert keine stabile Tropfenform mehr, der Tropfen wird instabil und der Zerfall wird eingeleitet.

Auch der stabilisierende Effekt der Strömung im Tropfeninnern kann anhand der Kräftebilanz beschrieben werden. Gemäß den bezüglich den Fluideigenschaften getroffenen Annahmen gilt die folgende rheologische Zustandsgleichung:

$$\underline{\tau} = 2 \cdot \eta \cdot \underline{D} \quad . \quad (2.5)$$

Eingesetzt in Gl. 2.3 resultieren damit bei erhöhten Viskositätsverhältnissen $\lambda_1 = \eta_{DP}/\eta_{CP}$ kleinere Deformationsgeschwindigkeiten an der Innenseite der Grenzfläche und damit geringere Tropfendeformationen. Sehr anschaulich wird dies am Grenzfall starrer Teilchen mit $\lambda_1 \rightarrow \infty$. Allerdings kann nicht generell von der Tropfendeformation auf die Stabilität des Tropfens geschlossen werden. So lassen sich z. B. niederviskose Tropfen ($\lambda_1 < 10^{-3}$) sehr stark deformieren, bevor sie zerbrechen.

Häufig wird die Tropfenstabilität anhand der kritischen Kapillarzahl Ca_{crit} diskutiert. H. P. Grace [26] stellt diese dimensionslose Kennzahl für eine einfache Scherströmung und eine ebene Dehnströmung in Abhängigkeit von λ_1 dar. Die Grundlage hierfür bilden Meßergebnisse, die mittels einer Couette- und einer 4-Rollen-Apparatur ermittelt wurden. Entsprechende Ergebnisse sind für weitere ebene Strömungsformen dokumentiert [6] (vgl. Anhang A.1). Demnach gelingt die Tropfenreduktion im Falle großer Viskositätsverhältnisse am besten in Dehnströmungen. Hingegen findet in einer einfachen Scherströmung ab $\lambda_1 > 3.6$ keine Tropfenzerkleinerung mehr statt.

Außer im Rahmen experimenteller Untersuchungen wird das Pro-

blem der Tropfenstabilität in zahlreichen Arbeiten mit Hilfe der Kapillarzahl auch theoretisch analysiert. Werden bei solchen Analysen keine numerischen Verfahren eingesetzt, bei denen der Tropfen diskretisiert wird, so muß die gesamte Tropfenoberfläche mittels einer Funktion beschrieben werden. Experimentellen Befunden entsprechend wird die Grenzfläche hochviskoser Tropfen als deformierte Kugel approximiert [4, 14, 48] und bei kleinen Viskositätsverhältnissen mit Hilfe einer Formfunktion $r(x)$ des deformierten Tropfens der Länge L abgebildet [2, 12]:

$$r(x) = \frac{1}{4} \cdot \left(1 - \left(\frac{x}{L/2} \right)^2 \right) \quad . \quad (2.6)$$

Für die Viskositätsbereiche $\lambda_1 < 0.01$ und $\lambda_1 > 0.05$ ist für unterschiedliche ebene Strömungsformen eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentell ermittelten und den berechneten kritischen Kapillarzahlen dokumentiert [6]. Daß Tropfen in einfacher Scherströmung bei Viskositätsverhältnissen $\lambda_1 > 3.6$ nicht mehr zerfallen wird jedoch lediglich qualitativ wiedergegeben [4].

Treffen die vereinfachenden Annahmen bezüglich der Tropfengeometrie nicht mehr zu, so muß in der theoretischen Analyse auf numerische Näherungsverfahren zurückgegriffen werden [1, 49, 50].

Zusammenfassend kann bei Gemischen Newtonscher Fluide für Aussagen zur Tropfenstabilität auf Approximationskurven aus experimentellen Meßdaten zurückgegriffen werden, wie sie z.B. in [64] angegeben sind. Der Einsatz theoretischer Modelle bietet sich an, wenn für die realisierte Strömungsform keine experimentellen Studien vorliegen.

Beim Mischen von Kunststoffschmelzen ist stoffabhängig auch das nichtnewtonsche Fließverhalten der Ausgangskomponenten zu berücksichtigen. So weisen Polymerschmelzen häufig ein strukturviskoses Fließverhalten auf. Zudem besitzen sie neben viskosen auch elastische Eigenschaften.

Zumindest für qualitative Aussagen können die Ergebnisse aus Experimenten mit Newtonschen Fluiden auch für strukturviskose Fluide herangezogen werden. Anstelle der von der Deformationsgeschwindigkeit unabhängigen dynamischen Viskositäten η_{CP} und η_{DP} sind dabei die Viskositätsfunktionen von disperser bzw. kontinuierlicher Phase einzusetzen [23]. Die Kapillarzahl ist damit definiert zu:

$$Ca = \frac{\eta_{CP}(|\dot{\gamma}|) \cdot |\dot{\gamma}| \cdot R}{\sigma_{12}} \quad . \quad (2.7)$$

Im allgemeinen ergeben sich nur geringfügige Abweichungen in der kritischen Kapillarzahl Ca_{crit} , wenn anstelle Newtonscher Flüssigkeiten strukturviskose Medien dispergiert werden [25].

S. Wu [72] führte experimentelle Untersuchungen zur Analyse der Tropfenstabilität im Zweisechneckenextruder durch. Beide Gemischkomponenten weisen strukturviskoses Fließverhalten auf, wobei die disperse Phase zusätzlich viskoelastischer Natur ist. Die aus der mittleren Schergeschwindigkeit im Extruder, der Matrixviskosität und dem mittleren Tropfenradius R_n bei unterschiedlichen Viskositätsverhältnissen ermittelten kritischen Kapillarzahlen werden als Funktion von λ_1 approximiert mit dem Ansatz:

$$Ca_{crit} = 2 \cdot \lambda_1^{\pm 0.84} \quad . \quad (2.8)$$

Das Vorzeichen des Exponenten ist abhängig von der Größe des Viskositätsverhältnisses zu wählen: Für $\lambda_1 < 1$ ist der Exponent negativ zu setzen. Die Funktion $Ca_{crit}(\lambda_1)$ besitzt damit ein Minimum bei $\lambda_1 = 1$.

F. Mighry und P. J. Carreau untersuchten den Einfluß elastischer Stoffeigenschaften auf die Tropfenstabilität unter Verwendung eines Platte/Platte Rheometers. Zur Bewertung der Auswirkung elastischer Stoffeigenschaften wird die dimensionslose Kennzahl λ_4 eingeführt, die das Viskositätsverhältnis λ_1 mit dem Quotienten der

ersten Normalspannungsdifferenzen der dispersen und kontinuierlichen Phase korreliert:

$$\lambda_4 = \frac{N_{1DP}}{N_{1CP} \cdot \lambda_1} \quad (2.9)$$

Für die untersuchten Materialien beschreibt $Ca_{crit} = Ca_{crit}(\lambda_4)$ eine monoton steigende Funktion.

2.3 Tropfenzerfall

Übersteigt die Kapillarzahl den kritischen Wert Ca_{crit} , so tritt Tropfenzerfall auf. Der Zerfallsprozeß selbst hängt u. a. von der Strömungsform und dem Wert der reduzierten Kapillarzahl $Ca_r = Ca/Ca_{crit}$ ab [32, 62]. Tropfen, die sich in Strömungen mit konstanter Streckgeschichte [44] befinden, und die durch kleine reduzierte Kapillarzahlen beschrieben werden, bilden in der Tropfenmitte eine Einschnürung aus. Dies führt zum Zerfall des Tropfens in zwei nahezu gleich große Tropfen unter Abspaltung von Satellitentropfen. Bei großen reduzierten Kapillarzahlen wird der Tropfen sehr

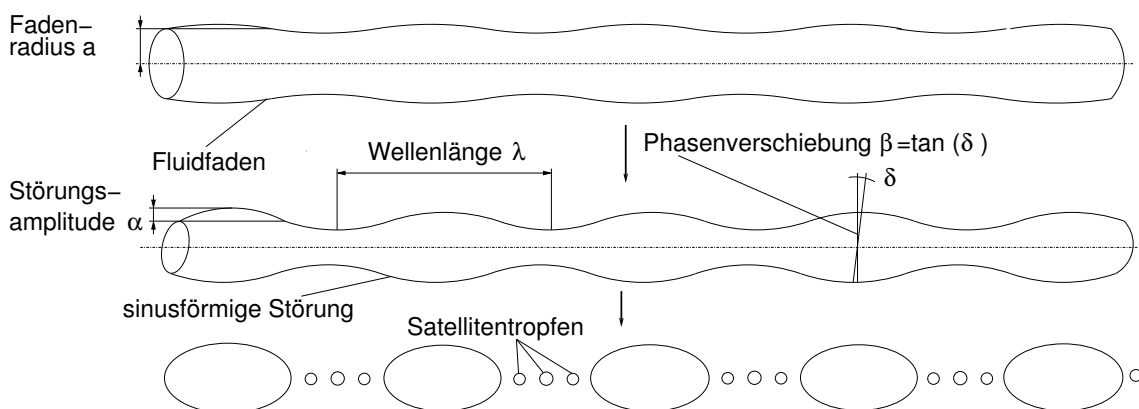


Bild 2.1: Schema des Fluidfadenzerfalls in einfacher Scherströmung

schnell deformiert und damit die mit einer Relaxation verbundene Einschnürung in der Tropfenmitte unterdrückt. Es entsteht ein dünner Fluidfaden, der erst beim Erreichen sehr kleiner Radien a

in eine große Anzahl kleiner Tropfen zerfällt [17]. Der gleiche Zerfallsmechanismus tritt auf, wenn die Kapillarzahl schnell ansteigt. Relaxiert ein zum Fluidfaden deformierter Tropfen, so spalten sich aufgrund der Grenzflächenkrümmung an den Enden tropfenförmige Partikel ab [54].

S. Tomotika entwickelte ein Modell zur Beschreibung des Fluidfadenerfalls in einem ruhenden Fluid und in einer einachsigen Dehnströmung mit konstanter Dehngeschwindigkeit [59, 60]. Basierend auf experimentellen Beobachtungen wird eine lineare Stabilitätsanalyse mittels sinusförmiger Störungen der Amplitude α und der Wellenlänge λ durchgeführt. Instabile Fluidfäden sind dadurch gekennzeichnet, daß die Störungsbewegung zeitlich anwächst. Bruchkriterium ist eine bis zum Fluidfadenradius a anfachende Störungsamplitude (vgl. Bild 2.1).

Dieses Modell wurde zu einer allgemeineren Formulierung für die Analyse von Fluidfadenerfallsvorgängen in einachsigen Dehnströmungen mit zeitabhängiger Dehngeschwindigkeit $\dot{\epsilon}(t)$ weiterentwickelt [42]. Die linearisierte Differentialgleichung zur Beschreibung von Störungsamplituden lautet hierfür:

$$\frac{D \ln(\alpha)}{D t} = \frac{\sigma_{12}}{2 \cdot \eta_{CP} \cdot a} \cdot (1 - x^2) \cdot \Phi(x) - \frac{3}{2} \cdot \dot{\epsilon} \cdot (\lambda_1 - 1) \cdot \bar{\Phi}(x) - \frac{1}{2} \cdot \dot{\epsilon} \quad . \quad (2.10)$$

Die dimensionslose Wellenzahl x beschreibt das Verhältnis zwischen dem Fluidfadenumfang $2 \cdot \pi \cdot a$ und der Störungswellenlänge λ . Bei konstanter Dehngeschwindigkeit weist die Amplitudenfunktion in Abhängigkeit der Wellenzahl sowohl ein Minimum als auch ein Maximum auf. Bei einem ruhenden Fluidfaden ist die Wellenzahl konstant. Damit führt die Störung mit der maximalen Anfachungsrate zum Zerfall. Bei sich deformierenden Fluidfäden muß die zum Bruch führende Störung aus einer Optimierungsrechnung ermittelt werden. Dazu werden die Amplituden anfachender Störungen er-

mittelt. Die Bruchzeit wird dann durch die am schnellsten bis zum Fluidfadenradius anfachende Störung festgelegt.

Einziger Variationsparameter ist die anfängliche Amplitude α_m der zu unterschiedlichen Zeitpunkten t_m anfachenden Störungsamplituden. Das Vorhandensein dieser Störungen ist nach W. Kuhn [36] auf thermische Fluktuationen zurückzuführen.

Das Modell wurde anhand von Versuchen an einer, in der 4-Rollen-Apparatur realisierten, ebenen Dehnströmung verifiziert. Im Gegensatz zur einachsigen Dehnströmung treten in dieser ebenen Strömungsform lediglich durch die ausgleichende Wirkung von Grenzflächenspannungen annähernd kreisförmige Fadenquerschnitte auf. Als Maß für die Deformation D des Querschnitts zu einer Ellipse mit den Halbachsen d_{max} und d_{min} wird die folgende Gleichung angegeben:

$$D = Ca^* = \frac{\dot{\epsilon} \cdot \eta_{CP} \cdot a}{\sigma_{12}} \quad D = \frac{d_{max} - d_{min}}{d_{max} + d_{min}} \quad (2.11)$$

Demnach entspricht D einer modifizierten Kapillarzahl Ca^* , die aus dem Fluidfadenradius a und der Dehngeschwindigkeit bestimmt wird. Mit abnehmendem Radius a nähert sich der Fluidfadenquerschnitt an die Kreisform an.

Von D. V. Khakar und J. M. Ottino wurde die Analyse des Fluidfadenzerfalls auf Strömungen mit konstanten Geschwindigkeitsgradienten ausgeweitet [34]. In Scherströmungen tritt beim instabilen Fluidfaden eine Phasenverschiebung zwischen einander gegenüberliegenden Störungen auf (vgl. Bild 2.1). Zur Abschätzung dieser Schervorgänge an Tropfen wird die Phasenverschiebung β ermittelt, wobei der Einsatz des Modells auf Anwendungen mit kleinen relativen Phasenverschiebungen beschränkt bleibt.

Die Störungsdifferentialgleichungen werden im mitgeführten Bezugssystem mit der Basis \vec{e}_i angegeben, das die Drehung des Tropfens mitmacht. Dabei wird der deformierte Tropfen vereinfachend als materielles Linienelement betrachtet, dessen Orientierung im

raumfesten Koordinatensystem durch den normierten Vektor \vec{m} beschrieben werden kann. Zur Abbildung der Tropfenrotation im raumfesten Bezugssystem wird die orthogonale Transformationsmatrix \underline{Q} eingeführt:

$$\vec{m} = \underline{Q}^T \cdot \vec{e}_1 \quad . \quad (2.12)$$

Damit kann der Tensor \underline{g} zur Berechnung der Fluidfadenscherung aus dem Geschwindigkeitsgradiententensor \underline{L} des raumfesten Bezugssystems ermittelt werden. Die zeitliche Änderung der Phasenverschiebung auf der Oberfläche des zylinderförmigen Fluidfadens $\dot{\beta}$ wird vorteilhafterweise im Polarkoordinatensystem mit dem Winkel ϕ dargestellt:

$$\dot{\beta} = -\frac{2}{1 + \lambda_1} \cdot (g_{12} \cdot \cos \phi + g_{13} \cdot \sin \phi) \quad , \quad (2.13)$$

$$\text{mit } g_{ij} = \dot{Q}_{ip} Q_{jp} + (1 - \delta_{ij}) Q_{ip} L_{pq} Q_{jq} \quad . \quad (2.14)$$

In der Berechnungsvorschrift für die Elemente des Tensors \underline{g} berücksichtigt der erste Term der Summe die Tropfenrotationsgeschwindigkeit und der zweite die Elemente des Geschwindigkeitsgradiententensors im mitgeführten Koordinatensystem.

Auf der Grundlage von Strömungsberechnungen mit dem am Institut für Kunststofftechnologie entwickelten, FEM-basierten Berechnungsprogramm SIMFLOW® [19] wird der Fluidfadenerfall in ebenen Strömungen anhand Gl. 2.10 beschrieben [52]. Die Tropfenorientierung und damit die Tropfendehnungsgeschwindigkeit wird aus den Eigenwerten des Cauchy-Greenschen Verzerrungstensors bestimmt.

Zur linearen Stabilitätsanalyse ist anzumerken, daß die dabei zugrundegelegte Annahme sinusförmiger Störungen nur bei kleinen Amplituden zutrifft. Die gegenseitige Beeinflussung der Wellen führt zu Abweichungen von der Sinusform, was vor allem auf Anzahl und Form der beim Fluidfadenerfall entstehenden Tropfen große Auswirkungen hat. So entstehen beim Zerfall eines ruhenden Fluidfadens neben größeren Tropfen, die der „Sinusstörung“ zuzuordnen

sind, eine Vielzahl kleiner Satellitentropfen [58]. Allerdings muß zur Beschreibung dieser Phänomene auf Modelle zurückgegriffen werden, mit denen der Einsatz numerischer Methoden verbunden ist. Da beim sich deformierenden Tropfen die kritische Störung aus einer Optimierungsrechnung zu ermitteln ist, sind damit entsprechend lange Berechnungszeiten verbunden.

Das gleiche gilt für theoretische Analysen des Fadenzerfalls bei viskoelastischen Fluiden mittels finiter Berechnungsmethoden [33, 61].

Neben der theoretischen Analyse kann bei der Beschreibung des Tropfenzerfalls auch auf experimentelle Ergebnisse zurückgegriffen werden, indem Meßwerte zur Abschätzung der Zerfallszeit kleiner Tropfen in einfacher Scherströmung approximiert werden [7, 16, 26, 32]. Die dimensionslose Tropfenzerfallszeit $t_b^* = t_b \cdot \dot{\gamma}$ läßt sich, daraus abgeleitet, als Funktion des Viskositätsverhältnisses durch folgende Beziehung darstellen [32]:

$$\log t_b^* = 0.579 + 0.355 \cdot (\log \lambda_1 + 4) \quad . \quad (2.15)$$

V. T. Tsakalos, P. Navard und E. Peuvrel-Disdier [63] analysierten Deformationen und den Zerfall von Einzeltropfen in einer Platte-Kegel-Strömung. Der Schwerpunkt dieser Untersuchung lag auf der Zerfallsanalyse großer Tropfen. Aufgrund der durch die Scherung initiierten Rotationsströmung werden große Tropfen stabilisiert, so daß Störungen erst bei sehr kleinen Fluidfadendurchmessern D^f merklich anfachen. Zwischen dem kritischen Durchmesser D_{crit}^f , bei dem Störungen bis zum Zerfall anfachen, und der Schergeschwindigkeit konnte eine umgekehrte Proportionalität festgestellt werden:

$$D^f \leq D_{crit}^f \propto \frac{1}{\dot{\gamma}} \quad , \quad R \approx R_{crit}/2 \quad . \quad (2.16)$$

Als ein weiteres Ergebnis wird aufgeführt, daß die beim Fluidfadenzerfall entstehenden Tropfen ungefähr halb so groß sind wie der größtmögliche stabile Tropfen.

In räumlich inhomogenen oder instationären Strömungen tritt ein weiterer Zerfallsmechanismus aufgrund von Tropfenfaltungen auf [57].

2.4 Koaleszenzphänomene

In den bisher zitierten Literaturstellen werden lediglich Einzeltropfen bzw. Dispersionen betrachtet, bei denen keine Wechselwirkungen zwischen den Einzeltropfen auftreten. Aus Experimenten ist jedoch bekannt, daß dies schon bei geringen Konzentrationen der dispersen Phase häufig nicht mehr zutrifft [27]. Vor allem bei den für die meisten technisch relevanten Polymergemische üblichen hohen Konzentrationen der dispersen Phase müssen deshalb bei der morphologischen Analyse Interaktionen zwischen den Einzeltropfen berücksichtigt werden. So treten in Dispersionen aufgrund von Koaleszenzeffekten Tropfengrößen auf, die den kritischen Tropfenradius bei weitem übersteigen.

In strömenden Polymergemischen laufen sowohl Zerfalls- als auch Koaleszenzvorgänge ab, wobei der quasistationäre Zustand durch ein dynamisches Gleichgewicht von Zerfall und Koaleszenz gekennzeichnet ist. Die Analyse des Problems wird dadurch erschwert, daß reale Gemische polydispers sind [18]. Befinden sich in der Dispersion zu Beginn der Analyse Tropfen, die durch große reduzierte Kapillarzahlen $Ca_r = Ca/Ca_{crit}$ charakterisiert sind, so liegen nicht nur Größen-, sondern auch Formunterschiede zwischen den Einzeltropfen vor. Aufgrund der hohen Komplexität des Problems müssen für die theoretische Analyse vereinfachende Annahmen getroffen werden.

Die Verschmelzung zweier Fluidtropfen kann in zwei Phasen unterteilt werden. Solange der Abstand zwischen den Tropfen groß genug ist, sind die Wechselwirkungen zwischen den Tropfen vernachlässigbar. Für diese erste Phase wird eine Korrelation für die

Zeit zwischen der Kollision zweier Tropfen t_{coll} in einfacher Scherströmung eines monodispersen Gemischs als Funktion von Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}$ und Volumenkonzentration der dispersen Phase Φ_{DP} angegeben [33]:

$$t_{coll} = \frac{\pi}{8 \cdot \dot{\gamma} \cdot \Phi_{DP}} \quad (2.17)$$

Wird in der sich nun anschließenden zweiten Phase der trennende Flüssigkeitsfilm zwischen kollidierenden Tropfen verdrängt, verschmelzen die Tropfen. Dieser Vorgang läßt sich mit verschiedenen Filmrocknungsmodellen [18] beschreiben, in denen unterschiedliche Annahmen über das Verhalten der Grenzflächen getroffen werden. Letztere werden als steife, teilweise bewegliche oder viskose Strukturen modelliert.

Gemäß den Modellaussagen verschmelzen lediglich Tropfen bis zu einem bestimmten Durchmesser, dem kritischen Koaleszenzdurchmesser R_{crit}^{coal} , da bei größeren Tropfen ein zu großes Filmvolumen verdrängt werden müßte. J. M. H. Janssen stellte diese Filmrocknungsmodelle zur Beschreibung der Koaleszenz in einfacher Scherströmung zusammen. Zur Charakterisierung der Koaleszenzphänomene in Polymergemischen wird eine Modellierung mit teilweise beweglichen Grenzflächen vorgeschlagen, aus der sich die folgende Bestimmungsgleichung für den kritischen Tropfenradius ergibt:

$$R_{crit}^{coal} = \lambda_1^{-2/5} \cdot \left(\frac{4}{\sqrt{3}} \cdot h_{crit} \right)^{2/5} \cdot \left(\frac{\eta_{CP} \cdot \dot{\gamma}}{\sigma_{12}} \right)^{-3/5} \quad (2.18)$$

Die kritische Filmdicke h_{crit} bezeichnet den Grenzflächenabstand, bei dem der die Tropfen trennende Fluidfilm aufreißt. Zu deren Bestimmung wird folgende Approximationsformel angegeben:

$$h_{crit} \approx \left(\frac{K \cdot R}{8 \cdot \pi \cdot \sigma_{12}} \right)^{1/3} \quad (2.19)$$

Üblicherweise ist für die Hamaker-Konstante K ein Wert von $10^{-20} J$ einzusetzen. Die damit bestimmten Filmdicken liegen im Bereich

$h_{crit} = 5 - 50 \text{ nm}$. Durch das Vorhandensein von Additiven treten Koaleszenzphänomene bei den in der Industrie eingesetzten Polymeren vermehrt auf. So ist eine Reduktion der mit Hilfe von Experimenten bestimmten Filmdicken von $h_{crit} = 250 \text{ nm}$ auf $h_{crit} = 35 \text{ nm}$ durch eine Reinigung der Ausgangspolymere Polystyrol und Polyethylen dokumentiert [53].

Von N. Grizzuti und O. Bifulco [27] wurde das von Janssen entwickelte Modell mit teilweise beweglicher Grenzfläche am Beispiel einer Polymermischung (PIB/PDMS) experimentell verifiziert und die kritische Filmdicke durch Anpassung des Modells an die Versuchsergebnisse zu $h_{crit} = 260 \text{ nm}$ bestimmt.

Bei hochkonzentrierten Gemischen ist die kritische Filmdicke als Korrekturfaktor zu interpretieren, der in Abhängigkeit der Gemischzusammensetzung unterschiedliche Werte annehmen kann [69]. Das ist auf den mit der Konzentration der dispersen Phase zunehmenden Einfluß von Mehrfachstößen zurückzuführen.

Gilt $R_{crit}^{coal} > R_{crit}$, so wird der Tropfenradius im dynamischen Gleichgewicht R_{gg} durch die beiden kritischen Radien R_{crit} und R_{crit}^{coal} eingegrenzt. Für detailliertere Aussagen müssen kinetische Ansätze zur Beschreibung der Tropfenzerfalls- und -koaleszenzabläufe herangezogen werden. So können z. B. der mittlere Tropfenradius und die Zeitspanne, die zum Erreichen des quasistationären Zustands benötigt wird, aus kinetischen Ansätzen ermittelt werden [20]. Den Berechnungen liegt ein Modell zugrunde, das Dispersionen kugelförmiger Tropfen unterschiedlicher Größen abbildet. Daraus wird ein Ansatz zur Beschreibung der Koaleszenzwahrscheinlichkeit bei der Kollision von Tropfen als eine Funktion unterschiedlicher Radien abgeleitet. Allerdings werden in dem Modell lediglich Zweierstöße abgebildet und entsprechend wird angenommen, daß beim Zerfall eines Tropfens immer zwei neue entstehen.

Der im Vergleich zu Experimenten mit diesem Modell berechnete zu schwache Anstieg des mittleren Tropfendurchmessers als Funktion der Konzentration wird damit erklärt, daß bei höherkonzentrierten

Gemischen auch Kollisionen mehrerer Tropfen in der Modellierung berücksichtigt werden müssten.

Die notwendigen kinetischen Ansätze können auch von experimentellen Ergebnissen ausgehend, hergeleitet werden. So ist für einfache Scherströmungen ein von der Schergeschwindigkeit unabhängiger Ansatz für den mittleren Tropfenradius im Gleichgewicht dokumentiert [32]. Mit der Koaleszenzkonstanten C , dem mittleren Radius R_{gg}^0 im Grenzfall verschwindend kleiner Volumenkonzentration der dispersen Phase Φ_{DP} und der mit Gl. 2.15 berechneten dimensionslosen Zerfallszeit t_b^* lautet die Korrelation zur Bestimmung des Tropfenradius im dynamischen Gleichgewicht:

$$R_{gg} = R_{gg}^0 + \sqrt{3 \cdot C \cdot Ca_{crit} \cdot t_b^* \cdot \Phi_{DP}^{8/3}} \quad . \quad (2.20)$$

Die Verifikation erfolgte anhand von Experimenten für ein Gemisch aus Polyethylen und Polystyrol unter Verwendung eines Zweisechneckenextruders.

2.5 Rheologie von Polymergemischen

Polymergemische weisen meist ein sehr komplexes Fließverhalten auf. Die Gemischrheologie wird i. a. vom Fließverhalten der Reinstoffkomponenten sowie durch Mischungsinhomogenitäten beeinflusst. Diese zeigen sich bei der Mischung von miteinander unverträglichen Ausgangspolymeren auch im fortgeschrittenen Mischungsstadium in Form von Phasengrenzen.

Eine Einteilung vorbekannter Beschreibungen des rheologischen Verhaltens von Polymergemischen kann hinsichtlich der zugrundegelegten Grenzflächenstruktur erfolgen. Liegt die diskontinuierliche Phase in Form mikrodispers verteilter Tropfen vor, so nähert sich das Fließverhalten mit zunehmender Tropfenfeinheit und damit erhöhter Steifigkeit der Tropfen dem einer Suspension an und kann

als solches näherungsweise beschrieben werden.

Doch selbst bei sehr steifen Tropfen bestehen Unterschiede zwischen Suspensionen und Emulsionen. So induziert die Tropfenoberfläche im Tropfeninnern eine Strömung, so daß auch bei nahezu kugelförmigen Tropfen die Viskosität der dispersen Phase die Gemischviskosität beeinflußt. Beispiele entsprechender Ansätze für die Gemischviskosität sind in [13, 33, 45] gegeben.

Häufig weicht die Tropfengeometrie der dispersen Phase aufgrund der wirkenden Strömungskräfte von der Kugelform ab. Dies führt vor allem in instationären Strömungen zu elastischen Effekten der Schmelze aufgrund sich ändernder Grenzflächenstrukturen. So weist der im Oszillationsversuch gemessene und über der Frequenz aufgetragene Speichermodul im Bereich kleiner Frequenzen in Abhängigkeit von der Grenzflächenstruktur einen charakteristischen Verlauf auf [9, 10].

Doch auch in stationären Strömungen sind die aus der Grenzflächenspannung resultierenden elastischen Eigenschaften meßbar. So treten bei höherkonzentrierten Gemischen Newtonscher Fluide in stationärer Scherströmung Normalspannungsdifferenzen auf. S. J. Choi und W. R. Schowalter [13] entwickelten ein Modell, welches ermöglicht, von in Versuchen gemessenen Normalspannungsdifferenzen auf die zugrundeliegende Morphologie zu schließen. Da hierbei sowohl Wechselwirkungen benachbarter Tropfen als auch kleine Tropfendehformationen berücksichtigt werden, wird dieses Modell u. a. zur Parameteranpassung für die weiter unten diskutierte Modellierung nach Doi und Ohta eingesetzt [30, 66].

Im rheologischen Modell von J. F. Palierne [46] wird unter Einbeziehung hydrodynamischer Wechselwirkungen und der Tropfengrößenverteilung das linear-viskoelastische Verhalten von Polymergemischen abgebildet. Eine experimentelle Verifikation des Modells erfolgt u.a. in [37]. In [10] wird ein weiterer Ansatz angegeben, der in Anlehnung an dieses Modell entwickelt wurde.

Einen anderen Weg bei der Modellbildung haben M. Doi und T. Ohta beschrieben, deren Formulierung nicht auf Dispersionen nahezu kugelförmiger Tropfen beschränkt ist [15]. Bei dieser Modellierung können beliebig geformte Grenzflächenstrukturen analysiert werden, die sich aufgrund von Strömungs- und Oberflächenkräften verändern und durch die spezifische Oberfläche Q und den Grenzflächentensor \underline{q} beschrieben werden. Der Tensor zur Abbildung der Anisotropie der Grenzfläche wird mit dem Normalenvektor \vec{n} am Grenzflächenelement dS bestimmt:

$$q_{ij} = \frac{1}{V} \int (n_i \cdot n_j - \frac{1}{3} \delta_{ij}) dS \quad , \quad (2.21)$$

$$Q = \frac{1}{V} \int dS \quad . \quad (2.22)$$

Der Modellierung wird ein Gemisch Newtonscher Fluide mit gleichen Viskositäten η_0 zugrundegelegt. Der Einfluß der Grenzfläche auf das rheologische Verhalten des Gemischs wird durch einen zusätzlichen Term bei der Definition des Extraspannungstensors berücksichtigt, der unter der Bedingung $\sigma_{12} = 0$ und für kugelförmige Tropfen mit $\|\underline{q}\| = 0$ verschwindet:

$$\underline{\tau} = 2 \cdot \eta_0 \cdot \underline{D} - \sigma_{12} \cdot \underline{q} \quad . \quad (2.23)$$

Dementsprechend setzen sich auch die Formulierungen für die zeitliche Veränderungen der Grenzflächenstruktur aus zwei Anteilen zusammen. So beschreiben die in den Gleichungen 2.24 und 2.25 unterstrichenen Terme die Grenzflächenänderung aufgrund einer affinen Deformation. Die restlichen Terme bilden den Einfluß der Grenzflächenkräfte auf die Beweglichkeit der Phasengrenzfläche

ab:

$$\frac{Dq_{ij}}{Dt} = \frac{-q_{ik} \cdot L_{kj} - q_{jk} \cdot L_{ki} + \frac{2}{3} \cdot \delta_{ij} \cdot L_{lm} \cdot q_{lm}}{-\frac{Q}{3} \cdot (L_{ij} + L_{ji}) + \left(\frac{q_{lm} \cdot L_{lm}}{Q}\right) \cdot q_{ij} - \mu_1 \cdot \frac{\sigma_{12}}{\eta_0} \cdot Q \cdot q_{ij}} \quad , \quad (2.24)$$

$$\frac{DQ}{Dt} = \underline{-L_{ij} \cdot q_{ij} - \mu_1 \cdot \mu_2 \cdot \frac{\sigma_{12}}{\eta_0} \cdot Q^2} \quad . \quad (2.25)$$

Bildet sich eine Grenzflächendeformation aufgrund von Grenzflächenkräften zurück oder koaleszieren Tropfen, so reduziert sich die Grenzfläche. Die beiden Parameter μ_1 und μ_2 stellen Korrekturfaktoren zur Klassifikation dieser Relaxationsmechanismen dar.

In zahlreichen Publikationen [30, 35, 56, 65, 66, 67, 68] werden experimentelle Überprüfungen des Modells anhand unterschiedlicher Gemische beschrieben. Darüber hinaus wird zur Analyse fadenförmiger Strukturen in einfachen Scherströmungen eine Modellmodifikation vorgeschlagen [67]. Mit dieser werden die zeitlichen Änderungen von \underline{q} unter Zugrundelegung einer affinen Fadendeformation bestimmt:

$$q_{11} = \frac{\Phi_{DP}}{a} \cdot \left(\sin^2(\Theta) - \frac{2}{3} \right) \quad , \quad (2.26)$$

$$q_{22} = \frac{\Phi_{DP}}{a} \cdot \left(\cos^2(\Theta) - \frac{2}{3} \right) \quad , \quad (2.27)$$

$$q_{12} = -\frac{\Phi_{DP}}{a} \cdot \sin(\Theta) \cdot \cos(\Theta) \quad . \quad (2.28)$$

Für die Gleichungen sind der Fluidfadenradius a und der Winkel Θ aus den Gleichungen 3.2 und 3.3 zu ermitteln.

Für ein Gemisch aus PIB und PDMS wird die Abbildung des rheologischen Verhaltens anhand von Messungen der Schub- und Normalspannungen verifiziert.

Das Modell von Doi und Ohta (DO) wurde von H. M. Lee und O O. Park [40] dahingehend erweitert, daß die beiden Gemischkom-

ponenten auch unterschiedliche Viskositäten aufweisen können, und der Tropfenzerfall als zusätzlicher Relaxationsmechanismus eingeführt wird.

So ist in Gl. 2.23 anstelle von η_0 ein Ansatz für die Gemischviskosität η_m einzusetzen und in den Gleichungen 2.24 und 2.25 taucht jeweils ein zusätzlicher Term auf, wobei in den beiden letztgenannten Gleichungen η_0 durch η_{CP} zu ersetzen ist:

$$\eta_m = \left(1 + \frac{6 \cdot (\eta_{DP} - \eta_{CP})}{10 \cdot (\eta_{DP} + \eta_{CP})} \cdot \Phi_{DP} \right) \cdot \eta_{CP} \quad , \quad (2.29)$$

$$\frac{Dq_{ij}}{Dt} = \left[\frac{Dq_{ij}}{Dt} \right]^{DO} - \mu_1 \cdot \mu_3 \cdot \frac{\sigma_{12}}{\eta_{CP}} \cdot \left(\frac{q_{lm} q_{lm}}{Q} \right) \cdot q_{ij} \quad , \quad (2.30)$$

$$\frac{DQ}{Dt} = \left[\frac{DQ}{Dt} \right]^{DO} - \mu_1 \cdot \mu_3 \cdot \frac{\sigma_{12}}{\eta_{CP}} \cdot (q_{lm} q_{lm}) \quad . \quad (2.31)$$

Hinsichtlich der Belegung der empirischen Größen μ_1, μ_2, μ_3 werden allgemeine Regeln in Abhängigkeit von der herrschenden Strömungsform angegeben. So beschreibt μ_1 einen generellen Relaxationsfaktor, wohingegen μ_2 Koaleszenzeffekten und μ_3 der Relaxation deformierter Tropfen und Tropfenzerfallsmechanismen zuzuordnen sind. Es wird vorgeschlagen, die Parameter μ_2 und μ_3 mit der Volumenkonzentration der dispersen Phase Φ_{DP} wie folgt zu korrelieren:

$$\mu_2 \approx \Phi_{DP}^2 \quad , \quad \mu_3 \approx 1 - \Phi_{DP} \quad . \quad (2.32)$$

Damit wird der Tatsache Rechnung getragen, daß die Grenzflächenstruktur bei niedrigkonzentrierten Gemischen durch Tropfenverteilungen und bei hochkonzentrierten durch Koaleszenzvorgänge maßgeblich beeinflußt wird.

Neben der experimentellen Verifikation der vorgeschlagenen konstitutiven Gleichung durch H. M. Lee und O. O. Park für ein Gemisch aus PS und LLDPE ist die Überprüfung auch für andere Gemische dokumentiert [37, 38]. Dabei wird μ_1 durch Anpassung von Berechnungsergebnissen an Meßdaten bestimmt, die aus Versuchen re-

sultieren, die mit einem Schwingungsrheometer durchgeführt wurden. Der Parameter μ_3 wird entsprechend Gl. 2.32 gesetzt. Der letzte freie Parameter μ_2 wird mittels rheologischer Messungen in einfacher Scherströmung ermittelt. Dabei wird die Annahme getroffen, daß der im linear-viskoelastischen Bereich ermittelte Wert des Parameters μ_1 auf die stationäre Scherströmung übertragen werden kann.

Eine weitere, sehr allgemeine rheologische Stoffgleichung für Gemische wurde von C. Lacroix, M. Grmela und P. J. Carreau vorgestellt [28, 29]. Auf Basis dieses Modells konnte ein Gleichungssatz zur Analyse der Grenzflächenausbildung entwickelt werden, mit dem nichtaffine Deformationen abbildbar sind [38]. Ist der in diesem, mit der Abkürzung LGC bezeichneten Modell, zusätzlich eingeführte Parameter ξ Null, so reduzieren sich die Differentialgleichungen für \underline{q} und \underline{Q} auf das Modell von Lee und Park (vgl. Anhang A.2).

2.6 Aufbereitung von Polymerblends

In der Praxis werden zur Generierung zweiphasiger Kunststoffgemische häufig gleichsinnig drehende, dichtkämmende Zweischnellenextruder eingesetzt.

Aufgrund seines modularen Aufbaus kann dieses Aggregat zur Aufbereitung von Polymerblends auf vielfältige Weise eingesetzt werden. Der eigentliche Aufbereitungsprozeß umfaßt das Aufschmelzen und das Vermischen der Ausgangskomponenten unter Zugabe geeigneter Additive. Beim reaktiven Blenden ist diesem komplexen Prozeß zusätzlich eine chemische Reaktion überlagert [22, 23].

Durch Aufschieben von Zahnmischteilen, Knetscheiben und unterschiedlichen Schneckenelementen auf den durchgehenden Schneckenauflagen kann ein für das jeweilige Gemisch geeignetes Schneckenkonzept realisiert werden. Vor allem durch den

Einsatz breiter Knetblockstrukturen wird eine hohe Dispersionseffizienz erzielt. Durch den Einsatz von Schneckenelementen wird das Gemisch gefördert und aufgrund der dort auftretenden Strömungskräfte weiter homogenisiert. Muß bis zu der Schneckenspitzen ein Druck aufgebaut werden, so stellen sich auf den letzten (5 – 10) D Schneckenlänge vollgefüllte Schneckenkanäle ein.

Die Auswahl eines geeigneten Schnecken/Zylinder-Systems für die jeweilige Compoundieraufgabe erfolgt häufig auf der Grundlage von Erfahrungen, die mit ähnlichen Materialpaarungen gewonnen wurden. Da im Zweiseckkneter eine dreidimensionale, instationäre Strömung vorliegt, ist die theoretische Analyse der Strömungsvorgänge sehr aufwendig. Die Anwendung entsprechend komplexer Modelle auf Praxisprobleme ist außerordentlich rechenzeit- und speicherplatzintensiv. Zur Abschätzung der strömungstechnischen Vorgänge werden deshalb häufig stark vereinfachte Modelle herangezogen.

In der Arbeit von P. Häring [31] werden die rheologischen und thermodynamischen Vorgänge für den Bereich vollgefüllter Schneckenkanäle umfassend numerisch beschrieben. In diesem Modell reduzierter Komplexität wird das durch die beiden Schnecken und die Zylinderwand begrenzte Gangvolumen in Schneckenkanal- und Zwickelbereiche unterteilt. Der vom Extruder geförderte Volumenstrom \dot{V} setzt sich aus dem durch die Axialbewegung des Zwickelvolumens geförderten Anteil \dot{V}_{Zw} und dem Volumenstrom durch die Schneckenkanäle \dot{V}_K zusammen. Die im Zwickel geförderte Fluidmenge wird aus der mittleren Querschnittsfläche des Zwickels \bar{A}_{Zw} , der Schneckendrehzahl n_s und der Schneckensteigung t berechnet zu:

$$\dot{V}_{Zw} = n_s \cdot t \cdot \bar{A}_{Zw} \quad . \quad (2.33)$$

Bei einer theoretischen Gangzahl m kann aus dem Gesamtvolumenstrom und \dot{V}_{Zw} der Volumenstrom durch einen Schneckenkanal

\dot{V}_K bestimmt werden. Dabei wird angenommen, daß die Flüssigkeit an den Schneckenoberflächen und der Zylinderwand haftet, womit die kinematischen Randbedingungen zur Berechnung des Strömungsfelds im Schneckenkanal definiert sind.

In die Lösung des nichtisothermen Strömungsproblems ist der Eingriffsbereich der Schnecken einzubeziehen. Wie P. Häring zeigte, lassen sich die Strömungsvorgänge im „Zwickel“ nur mit einem aufwendigen 3D-Modell hinreichend genau beschreiben. Zur Vermeidung sehr langer Rechenzeiten wird deshalb ein globales Ersatzmodell eingesetzt: Der Zwickel wird in mehrere Schichten unterteilt und für die dadurch gebildeten, sich über der Höhe nur geringfügig ändernden Teilbereiche werden Strömungsberechnungen auf zweidimensionalem Grundgebiet durchgeführt. Auf dieser Grundlage wird die Wärmedissipation im Zwickel erfasst, die in die Wärmebilanz des angrenzenden Kanals in Form eines Quellterms eingeht.

Auf der Grundlage solcher Strömungsanalysen können die Strömungsvorgänge im Zweischneckenextruder hinsichtlich der Mischungseffektivität bewertet werden, was Rückschlüsse auf die Morphologieausbildung ermöglicht. Zur Anwendung detaillierter morphologischer Modellansätze muß auf eine vereinfachte Modellierung der Strömungsvorgänge zurückgegriffen werden.

Unter diesem Aspekt kann die Strömung in den Schneckenkanälen auf der Grundlage des Zwei-Platten-Modells approximiert werden. Mit den damit bestimmbareren mittleren Schergeschwindigkeiten und Verweilzeiten kann eine morphologische Analyse durchgeführt werden [32].

M. Bastian stellt ein Modell zur Beschreibung der Morphologieausbildung im Zweischneckenknetzer vor [5]. Dabei wird der Extruder in Förderrichtung in einzelne Segmente unterteilt und die Morphologieausbildung aufgrund der dort global gemittelten Größen ermittelt. Bei dem von D. Y. Moon und O. O. Park [43] beschriebenen Verfahren erfolgt die Strömungsberechnung mit der von Tadmor [55] entwickelten FAN-Methode. Aus den damit be-

stimmten mittleren Schergeschwindigkeiten und Verweilzeiten wird die Morphologieausbildung mit Hilfe des Lee/Park-Modells ermittelt.

2.7 Folgerungen

Bei dem von Doi und Ohta bzw. den darauf aufbauenden rheologischen Modellen wird der Einfluß der Phasengrenzfläche auf das Fließverhalten von Gemischen berücksichtigt. Damit können aus rheometrischen Untersuchungen erste Rückschlüsse auf die Morphologie gezogen werden. So können anhand des im Schwingungsrheometer gemessenen Speichermoduls $G'(\omega)$ von Dispersionen, vor allem im Bereich kleiner Frequenzen ω , Änderungen in der Grenzflächenstruktur nachgewiesen werden [40]. Dies eröffnet die Möglichkeit, den Aufwand zur Charakterisierung der Morphologie erheblich zu reduzieren. Hierzu sind die Zusammenhänge zwischen der Belegung der Variationsparameter μ_i und der Grenzflächenstruktur weiter zu präzisieren. Zudem werden detailliertere Informationen benötigt, unter welchen Umständen das Modell entsprechend [67] zur Abbildung bestimmter Mikrostrukturen angepasst oder nach [38] erweitert werden muß.

Zur morphologischen Analyse des dispersiven Mischungsvorgangs entlang der vollgefüllten Schneckenkanalbereiche des gleichsinnig drehenden Zweisechneckenextruders bietet sich das numerische Modell von P. Häring an, da aufwendige dreidimensionale Simulationen vermieden, und dennoch durch Einsatz der FE-Methode in den Schneckenkanälen lokale Strömungszustände approximiert werden, welche für eine morphologischen Analyse zur Verfügung stehen. Für die Morphologieausbildung entlang der vollgefüllten Schneckenkanalbereiche spielen die Vorgänge im Eingriffsbereich (\rightarrow Zwickel) eine maßgebliche Rolle. In Verbindung mit dem Strömungsfeld in den Schneckenkanälen ermöglicht das glo-

bale Zwickelmodell eine Abschätzung der Strömungsvorgänge im Zwickel und damit deren Einbeziehung in das morphologische Modell.

Kapitel 3

Modellerweiterung zur Beschreibung des Fluidfadenzerfalls großer Tropfen in einer einfachen Scherströmung

3.1 Limitationen des bestehenden Modells zur Analyse des Fluidfadenzerfalls in Scher- strömungen

Große Tropfen werden in einfachen Scherströmungen zu langen dünnen, nahezu entlang der Stromlinien ausgerichteten Fluidfäden deformiert, wobei die experimentellen Ergebnisse eine umgekehrte Proportionalität zwischen Fluidfadendurchmesser und Schergeschwindigkeit liefern.

Dieses Phänomen kann mit dem von D. V. Khakar und J. M. Ottino [34] vorgestellten Modell zur Analyse des Fadenzerfalls in Strömungen mit konstanten Geschwindigkeitsgradienten (z. B. offenes Zweiplattenmodell) nicht abgebildet werden. Durch die Einführung eines zusätzlichen Kriteriums wird die Aussagefähig-

keit des Khakar/Ottino-Modells auf diesen Anwendungsfall erweitert. Unter den nachstehend dargestellten Bedingungen können affine Tropfendehformationen zugrundegelegt werden. In dem im Rahmen dieser Arbeit erweiterten Modell wird die Tropfendehformation aus den Eigenwerten des Cauchy-Green'schen Verzerrungstensors ermittelt.

3.2 Analyse der Tropfendehformation mit dem erweiterten Modell

Die längste Achse des deformierten Tropfens wird durch den Radius des undeformierten Tropfens und der Wurzel des größten Eigenwerts des linken Cauchy-Greenschen Verzerrungstensors festgelegt, der aus dem symmetrischen Produkt des Deformationstensors \underline{F} gebildet wird [52]:

$$\underline{G} = \underline{F} \cdot \underline{F}^T \quad . \quad (3.1)$$

Damit kann schon der erste Deformationsabschnitt des anfänglich kugelförmigen Tropfens in die Analyse mit einbezogen werden. Die Tropfenform wird durch einen volumengleichen Zylinder mit dem Radius a approximiert. Die Durchmesserreduktion eines Einzeltropfens in der einfachen Scherströmung wird mit der Gesamtscherdeformation $\gamma = \dot{\gamma} \cdot t$ bestimmt zu:

$$a/a_0 = \left(\frac{1}{2} \cdot \gamma + \frac{1}{2} \cdot \sqrt{4 + \gamma^2} \right)^{-1/2} \quad . \quad (3.2)$$

Der Radius a_0 des Flüssigkeitszylinders der Länge $2 \cdot R$ wird aus dem Tropfenvolumen ermittelt. Die Stabilitätsanalyse setzt ein, sobald hinreichend deformierte Tropfen vorliegen (vgl. Anhang A.5).

Die Fluidfadenorientierung wird durch die dem größten Eigenwert des Tensors \underline{G} zugeordnete Hauptrichtung festgelegt. Der Winkel

Θ bezeichnet den Winkel zwischen dieser Tropfenachse und der Stromlinie in der Scherebene:

$$\tan \Theta = \frac{1}{\frac{1}{2} \cdot \gamma + \frac{1}{2} \cdot \sqrt{4 + \gamma^2}} \quad . \quad (3.3)$$

Mit der Fluidfadenorientierung \vec{m} und dem Deformationsgeschwindigkeitstensor \underline{D} kann die Tropfendehnungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$ ermittelt werden zu:

$$\dot{\epsilon} = \underline{D} : \vec{m} \vec{m} \quad . \quad (3.4)$$

3.3 Abbildung des Fluidfadenzerfalls mit dem erweiterten Modell

3.3.1 Ermittlung der kritischen Störung im Khakar/Ottino-Modell

Ein Fluidfaden, der sich in einem ruhendem Medium befindet, zerfällt durch die Störung mit der Wellenzahl x_{opt} , die zur maximalen Anfachung führt. Unter diesen Bedingungen vereinfacht sich die Differentialgleichung zur Beschreibung der Störungsamplitude zu:

$$\frac{D \ln(\alpha)}{D t} = \frac{\sigma_{12}}{2 \cdot \eta_{CP} \cdot a_0} \cdot (1 - x_{opt}^2) \cdot \Phi(x_{opt}) \quad . \quad (3.5)$$

Wird der Fluidfaden deformiert, so ändert sich die Wellenzahl. Zur Ermittlung der kritischen Störung werden deshalb die Amplituden von zu unterschiedlichen Zeitpunkten anfachenden Störungen berechnet, um daraus diejenige zu identifizieren, deren Amplitude am schnellsten bis zum Fluidfadenradius anfacht. Die Wellenzahlen x_m der zu unterschiedlichen Zeitpunkten t_m anfachenden Störungen werden aus den Bedingungen für eine minimale Amplitude ermittelt:

$$\left. \frac{\partial}{\partial x} \left(\ln \frac{\alpha(x)}{\alpha_0} \right) \right|_{x=x_m} = 0, \quad \left. \frac{\partial^2}{\partial x^2} \left(\ln \frac{\alpha(x)}{\alpha_0} \right) \right|_{x=x_m} > 0 \quad . \quad (3.6)$$

Es gilt $x_m > x_{opt}$, so daß optimales Störungsanfachen mit der Bedingung $x = x_{opt}$ erst nach einer Reduktion der Wellenzahl erreicht wird.

3.3.2 Besonderheiten bei der linearen Stabilitätsanalyse großer Tropfen in einer einfachen Scherströmung

Zur Berücksichtigung des stabilisierenden Effekts der Tropfenscheurung beim Zerfall großer Tropfen in Scherströmungen wird die Berechnungsmethode zur Ermittlung der kritischen Störung modifiziert. Ausgangspunkt ist eine Gegenüberstellung des Fluidfadenzerfalls in einer ebenen Dehnströmung und in einer einfachen Scherströmung.

In der ebenen Dehnströmung wird eine Dehngeschwindigkeit von $\dot{\epsilon} = 0.015 \text{ 1/s}$ zugrundegelegt. Die Kapillarzahl des Fluidfadens wird mit dem Fluidfadenradius bestimmt zu:

$$E = \frac{a_0 \cdot S \cdot \eta_{DP}}{\sigma_{12}} \quad \text{mit} \quad S = \sqrt{\underline{D} : \underline{D}} \quad . \quad (3.7)$$

In Bild 3.1 sind der Fluidfadenradius a und die Amplituden α von zu unterschiedlichen Zeitpunkten anfachender Störungen entsprechend Gl. 2.10 über der Zeit aufgetragen. Die Startwerte der Störungsamplituden werden mit dem Zylinderradius a_0 definiert zu $a_0/\alpha_m = 5000$ (vgl. [42]). Nur bei sehr dünnen Fluidfäden fachen die Störungsamplituden bis zum Fluidfadenradius an. Vor allem aus den Berechnungsergebnissen mit $a_0 = 4.74 \mu\text{m}$ ist ersichtlich, daß zu späteren Zeitpunkten aufgebrauchte Störungen schneller anfachen.

Im Bild 3.2 sind die Ergebnisse der Stabilitätsanalyse in einfacher Scherströmung dargestellt. Mit einer Schergeschwindigkeit von $\dot{\gamma} = 0.1 \text{ 1/s}$ ergibt sich bei der Deformationszeit $t = 200 \text{ s}$ die gleiche Deformation wie bei der ebenen Dehnströmung. Es ist ersichtlich, daß die Tropfendehnungsgeschwindigkeit des anfänglich

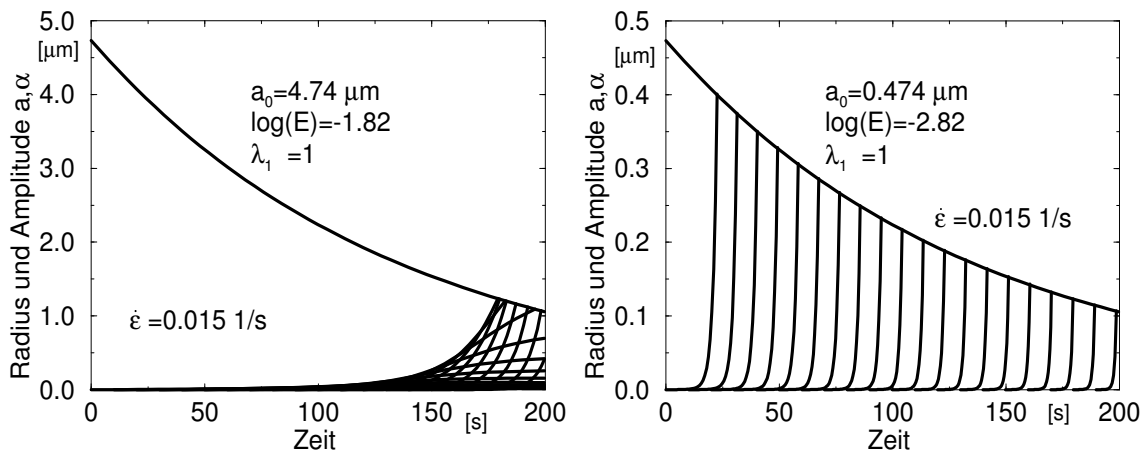


Bild 3.1: Fluidfadenradius und Amplitudenverläufe in ebener Dehnströmung

kugelförmigen Tropfens mit zunehmender Orientierung des Fluidfadens entlang der Stromlinien stark abnimmt. Dadurch werden die

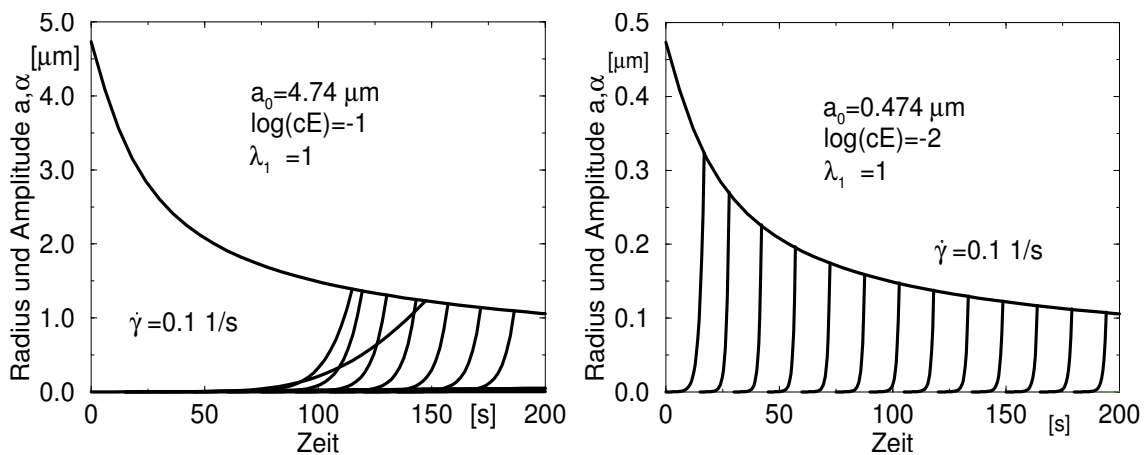


Bild 3.2: Fluidfadenradius und Amplitudenverläufe in einfacher Scherströmung

Wellenzahlen der zu späteren Zeitpunkten anfachenden Störungen nur sehr langsam reduziert, was zu einem verringerten Amplitudenwachstum führt. Im Gegensatz zur Dehnströmung verlaufen deshalb die Amplituden der zuletzt anfachenden Störungen in der Scherströmung wieder etwas flacher als die vorhergehenden.

Deutlicher treten die Unterschiede des Fluidfadenerfalls bei den beiden betrachteten Strömungsformen hervor, wenn eine andere Darstellung gewählt wird. In Bild 3.3 sind die Zerfallszeiten in zwei

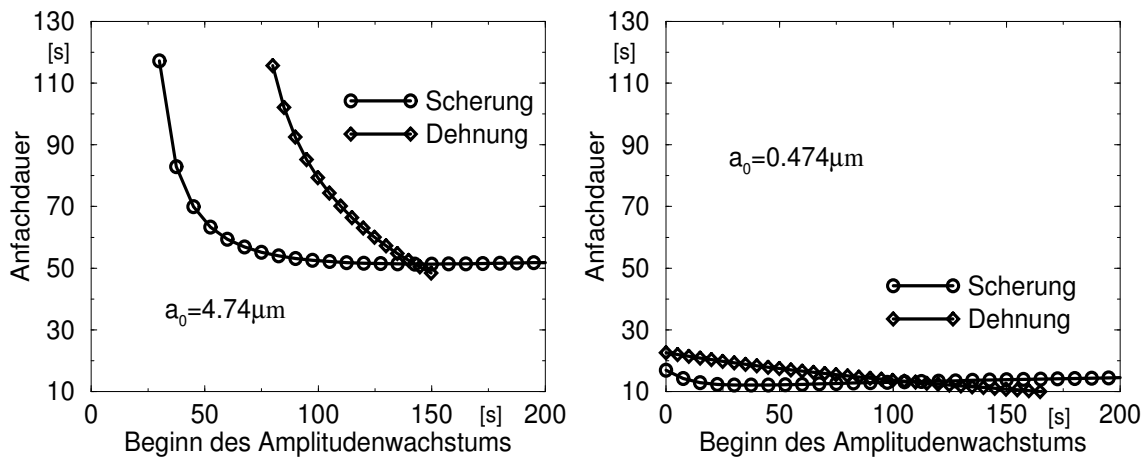


Bild 3.3: Vergleich der Bruchzeiten in Scher- und Dehnströmungen

Anteile aufgespalten. Der Zeitabschnitt von $t = 0$ s bis zum Zeitpunkt t_m ist auf der Abszisse aufgetragen. Die Ordinatenwerte kennzeichnen die reine Anfachdauer der jeweiligen Störung. Damit setzt sich die gesamte Bruchdauer aus dem Abszissen- und dem dazugehörigen Ordinatenwert zusammen.

Aus dieser Darstellungsweise ist ersichtlich, daß in einfacher Scherströmung die Anfachdauer spät aufgebrachter Störungen trotz abnehmendem Fadenradius ansteigt, was bei der ebenen Dehnströmung nicht zu beobachten ist.

In der einfachen Scherströmung wird der in Strömungsrichtung ausgerichtete Fluidfaden langsamer gedehnt. Deshalb befinden sich zu späteren Zeitpunkten anfachende Störungen lange im Bereich minimalen Amplitudenwachstums. Beim Erreichen sehr kleiner Fadedurchmesser weisen hingegen diejenigen Störungen maximale Anfachungsraten auf, die sich schon längere Zeit auf der Fluidfadenoberfläche befinden, und deren Anfachen im vorangegangenen Deformationsabschnitt durch die Tropfenscherung unterdrückt wurde.

Zur Abbildung dieser Verhältnisse wird die kritische Störung unter Einführung der Zusatzbedingung minimaler Tropfenscherung ermittelt.

3.3.3 Ermittlung der kritischen Störung beim Fluidfadenzerfall großer Tropfen in einer einfachen Scherströmung

Ausgangspunkt für die im folgenden vorgeschlagene Modellmodifikation zur Bestimmung der kritischen Störung bilden die experimentellen Befunde beim Fluidfadenzerfall in einer einfachen Scherströmung [63] und die Ergebnisse der im vorhergehenden Kapitel durchgeführten theoretischen Untersuchungen:

- Zu Fluidfäden deformierte Tropfen werden in Scherströmungen aufgrund der Tropfenscherung stabilisiert. Anfachende Störungen führen erst dann zum Zerfall, wenn der kritische Fluidfadendurchmesser D_f^{crit} unterschritten wird.
- In einer einfachen Scherströmung werden große Tropfen entlang der Stromlinien orientiert und damit die anfängliche Tropfendehnungsgeschwindigkeit erheblich reduziert. Dies aber führt zu ähnlichen Verhältnissen wie beim Zerfall eines ruhenden Fluidfadens durch die Störung mit der kritischen Wellenlänge, die zur maximalen Anfachung führt.

Die Phänomene beim Fluidfadenzerfall in einer einfachen Scherströmung werden mittels der Störungsamplitude α und der Phasenverschiebung β , bzw. den zeitlichen Änderungen dieser Größen diskutiert. Darauf aufbauend wird ein Kriterium zur Bestimmung der kritischen Störung entwickelt.

In Bild 3.4 sind die Tropfendehnungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}$ und die zeitliche Änderung der Störungsamplitude von an zwei aufeinanderfolgenden Zeitpunkten anfachenden Störungen aufgetragen. Der deformierte Tropfen wird entlang der Stromlinien ausgerichtet, was zum Abfall der Tropfendehnungsgeschwindigkeit führt. Zudem ergeben sich durch die Rotation des Tropfens in Strömungsrichtung nahezu konstante Werte für die zeitliche Änderung der Phasenverschiebung $\dot{\beta}$ für die dargestellten Störungen.

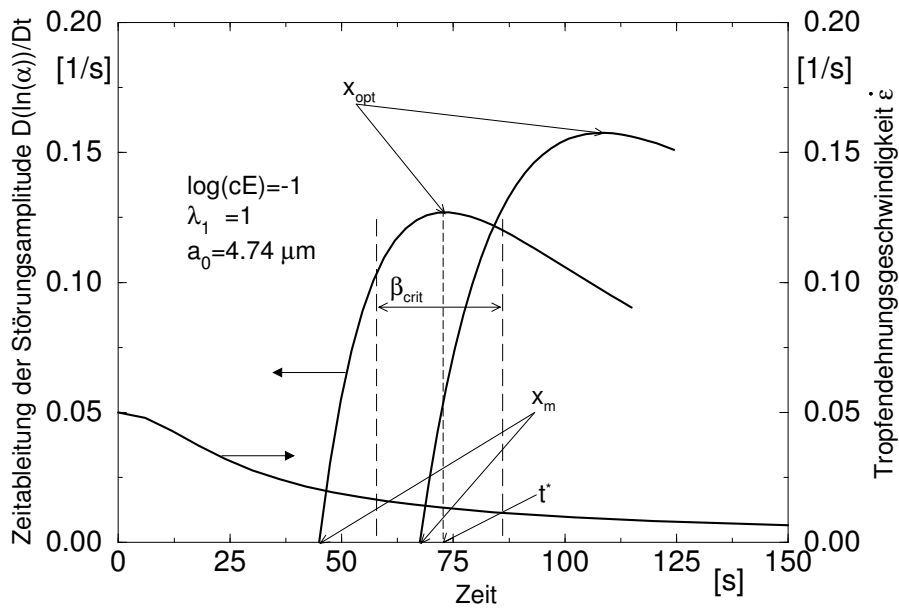


Bild 3.4: Zeitliche Änderung der Störungsamplitude und Tropfendehnungsgeschwindigkeit in einer einfachen Scherströmung

Bei der zum späteren Zeitpunkt anfachenden Störung bewirkt der kleinere Fluidfadendurchmesser einen signifikanten Anstieg der zeitlichen Änderung der Störungsamplitude im Bereich maximalen Anfachens. Aus dem Vergleich der beiden Störungsamplituden ist zudem ersichtlich, daß sich die zweite Störung länger im Bereich minimalen Anfachens befindet, was auf die abnehmende Tropfendehnungsgeschwindigkeit zurückzuführen ist.

Bei der Analyse des Fluidfadenzerfalls wird als zusätzliche Bedingung eingeführt, daß die Phasenverschiebung der kritischen Störung einen festgelegten Wert β_{crit} nicht übersteigen darf. Es wird definiert, daß die Störung inmitten des damit definierten Zeitintervalls, zum Zeitpunkt t^* , die Wellenzahl $x = x_{opt}$ aufweist (vgl. Bild 3.4). Unter Berücksichtigung der stabilisierenden Wirkung der Tropfenscherung bei sehr langsam anfachenden Störungen wird damit diejenige Störung erfasst, die im betrachteten Zeitfenster zum maximalen Anfachen führt. Dies impliziert die folgende Vorgehensweise:

- Für den betrachteten Zeitpunkt t^* wird die Wellenzahl x_{opt} aus der Extremwertaufgabe bestimmt und damit die Wellenlänge der Störung festgelegt.
- Der Beginn des Amplitudenwachstums dieser Störung wird ermittelt, indem, vom Zeitpunkt t^* beginnend, entgegen der Zeitachse integriert wird. Die Analyse der betrachteten Störung setzt entweder im Minimum der Amplitudenfunktion ein, oder aber zu einem Zeitpunkt zwischen t_m und t^* , für den $|\beta| = \beta_{crit}/2$ gilt.
- Facht die Störungsamplitude bis zum Fluidfadenradius an und gilt $|\beta| \leq \beta_{crit}$, so ist damit die kritische Störung bestimmt; andernfalls sind zu späteren Zeitpunkten anfachende Störungen zu analysieren.

Durch das modifizierte Modell wird sowohl der Fadenzerfall in Dehnströmungen, als auch der Zerfall eines ruhenden Fluidfadens abgebildet. In reinen Dehnströmungen tritt keine Phasenkonvektion auf, wodurch die Integration immer im Minimum der Amplitudenfunktion beginnt. Andererseits erfährt ein ruhender Tropfen keine Änderung der Wellenzahl, so daß in diesem Fall eine Integration der Störung mit $x = x_{opt}$ erfolgt.

Mit der Phasenverschiebung der sinusförmigen Störung wird die Grenzfläche des Fluidfadens vergrößert. Dementsprechend wirken die Grenzflächenspannungen der Fluidfadenscherung entgegen, so daß die durch das Modell aufgezeigten Werte nicht den tatsächlichen relativen Verschiebungen gleichzusetzen sind.

3.4 Diskussion des erweiterten Modells anhand von Berechnungsergebnissen

In Bild 3.5 werden Berechnungsergebnisse des erweiterten Modells mit experimentellen Daten aus [63] verglichen. Entsprechend [63]

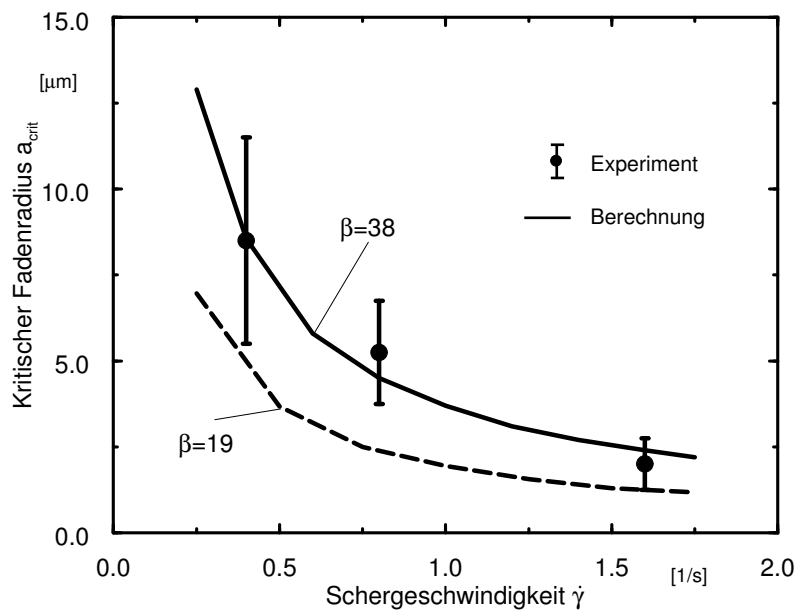


Bild 3.5: Berechnungsergebnisse der Stabilitätsanalyse

markiert der Integrationsbeginn bis zum Fadenradius anfachender Störungen den kritischen Fadenradius a_{crit} . Der Radius des undeformierten Tropfens wird groß genug gewählt, so daß eine weitere Vergrößerung nur zu unwesentlichen Abweichungen des Ergebnisses führt.

Korrekturfaktoren sind die kritische Phasenverschiebung β_{crit} und der Startwert der Störungsamplitude α_m . Die Berechnung wurde mit den folgenden Parametern durchgeführt:

- Der Wert der anfänglichen Störungsamplitude, der das Ergebnis nur geringfügig beeinflusst (vgl. [34]), wird entsprechend [42] zu $\alpha_m = 10^{-8} \text{ cm}$ angenommen.

- Die Matrixviskosität wird vereinfachend zu $\eta_{CP} = 500 \text{ Pa s}$ und das Viskositätsverhältnis zu $\lambda_1 = 0.8$ gesetzt.
- Die Grenzflächenspannung wird der Angabe entsprechend auf $\sigma_{12} = 0.013 \text{ N/m}$ festgelegt.

Der Korrekturfaktor β_{crit} beeinflusst sowohl die Ordinatenverschiebung als auch die Steigung der Kurve. Mit dem Wert für die kritische Phasenverschiebung β_{crit} nimmt der kritische Fadendurchmesser ab, und damit die Zeit, innerhalb der die kritische Störung anfacht. Aufgrund des zunehmenden Einflusses der zeitlichen Änderung der Phasenverschiebung $\dot{\beta}$, jener Größe, die bei ausgeprägter Ausrichtung des Fadens entlang der Stromlinie eine direkte Korrelation mit der Schergeschwindigkeit darstellt, verläuft die Kurve annähernd umgekehrt proportional zur Schergeschwindigkeit.

Trotz der zugrundeliegenden sehr einfachen Modellierung genügt die Modifikation eines einzigen Parameters zur Modellanpassung. Bei großen Schergeschwindigkeiten ändert sich der kritische Fadenradius nur noch geringfügig über $\dot{\gamma}$. Das liegt darin begründet, daß die Störungen bei kleinen Fadenradien schneller anfachen. Bei sehr kleinen Fluidfadendurchmessern ist deshalb ein spontaner Zerfall zu erwarten, weshalb durch eine weitere Steigerung der Schergeschwindigkeit keine nennenswerte Reduktion des kritischen Fluidfadendurchmessers mehr erzielt werden kann.

Kapitel 4

Analyse der Morphologieausbildung in einfachen Scherströmungen

4.1 Entwicklung eines Verfahrens zur morphologischen Analyse auf der Grundlage bestehender Modelle

4.1.1 Eingrenzung

Das Anwendungsgebiet wird folgendermaßen eingeschränkt:

- Die diskontinuierliche Phase liege in der Form von Fluidfäden oder als Dispersion mit gering deformierten Tropfen vor.
- Fälle, in denen die Ausbildung der Grenzflächenstruktur durch das Viskositätsverhältnis oder durch die Viskoelastizität der Gemischkomponenten bestimmt wird, sind aus der Analyse auszuschließen.

4.1.2 Zur morphologischen Analyse eingesetzte Modelle

Bei der Morphologieausbildung in Zweiphasengemischen treten neben mehr oder weniger deformierten Tropfen fadenförmige oder auch flächige Strukturen auf. Da keines der in Kapitel 2 dargestellten Modelle für den gesamten Morphologieausbildungsprozeß Gültigkeit besitzt, erfolgt die morphologische Analyse mit unterschiedlichen Modellierungsansätzen.

Zur Analyse von Fadenstrukturen wird die an diese Grenzflächenstruktur angepasste Modifikation des Modells von Doi und Ohta (vgl. Kapitel 2.5) verwendet. Dabei werden der Anisotropietensor \underline{q} und die spezifische Grenzfläche Q unter Zugrundelegung einer affinen Fadendeformation bestimmt, d. h. bei dem im weiteren Verlauf durch das Kürzel DOV bezeichnete Modell wird die geometrische Form der Grenzflächenstruktur aufgeprägt.

Das Modell von Doi und Ohta bzw. darauf aufbauende Modelle [15, 38, 40] bieten sich für die sich an den Fadenzerfall anschließende Phase der Morphologieausbildung an. Hier laufen die komplexen Einzelprozesse Deformation, Zerfall und Koaleszenz parallel und dazu in polydispersen Gemischen ab. Wiederum wird die Grenzfläche mit den beiden Größen Q und \underline{q} erfasst.

4.1.3 Festlegung der Gültigkeitsbereiche der eingesetzten Modelle

Für die morphologische Analyse sind Kriterien für den Einsatz der einzelnen Modelle zu formulieren: Es muß überprüft werden, ob Tropfen zu Fluidfäden deformiert werden. Trifft dies zu, so sind eventuell auftretende Fluidfadenzerfallsvorgänge und damit der Übergang von der Faden- zur Tropfenstruktur zu lokalisieren. In Bild 4.1 ist die für den Einsatz der unterschiedlichen Modelle durchzuführende Bereichsunterteilung schematisch dargestellt. Die Gültigkeitsbe-

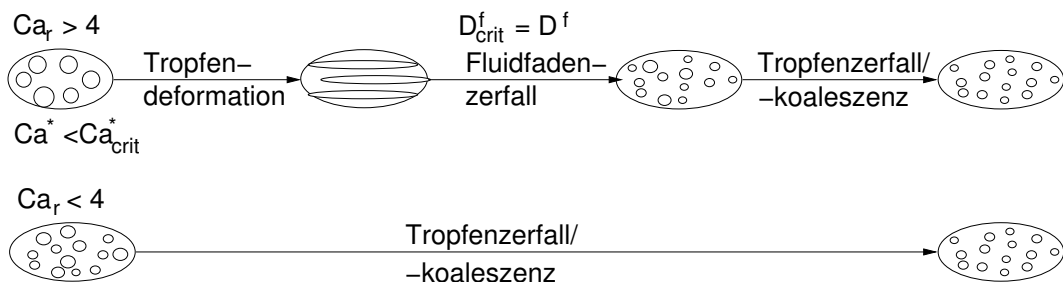


Bild 4.1: Dispersionsverfeinerung in einfacher Scherströmung

reiche werden mittels dimensionsloser Kenngrößen festgelegt.

Weil das Verhältnis der Oberflächenkräfte zu den Strömungskräften für die Ausbildung von Grenzflächenstrukturen eine wichtige Rolle spielt, wird die Kapillarzahl, genauer gesagt, die reduzierte Kapillarzahl $Ca_r = Ca/Ca_{crit}$, zur Bereichsunterteilung herangezogen. Kugelförmige Tropfen werden unter der Bedingung $Ca_r > 4$ zu langen, dünnen Fäden deformiert [32]. Sind die in das Integrationsgebiet eintretenden Tropfen hingegen durch kleinere reduzierte Kapillarzahlen charakterisiert, so liegt die disperse Phase in Form gering deformierter Tropfen vor.

Es wird ein zusätzliches Kriterium entwickelt, anhand dessen sich eingrenzen läßt, ob Tropfen zu Fluidfäden deformiert oder ob flächige Strukturen ausgebildet werden. Es liegen nur dann fadenförmige Grenzflächenstrukturen vor, wenn die deformierten Tropfen in der Schnittebene normal zur längsten Hauptachse des Tropfens annähernd kreisförmige Querschnitte aufweisen. In diesem Fall kann die Kapillarzahl des Fluidfadens Ca^* für Aussagen über die Grenzflächenstruktur herangezogen werden.

Bei einfachen Scherströmungen ist der Winkel Θ zwischen der Hauptdeformationsrichtung des Tropfens und der Strömungsrichtung zu berücksichtigen. Für diese Strömungsform wird Ca^* definiert zu:

$$Ca^* = \frac{\tan \Theta \cdot |\dot{\gamma}| \cdot \eta_{CP} \cdot a}{\sigma_{12}} \quad . \quad (4.1)$$

Die Kapillarzahl des zum Fluidfaden deformierten Tropfens mit dem

Radius R wird bei definiertem Deformationsverhältnis d_f bestimmt. Wie im Anhang A.5 dargelegt, ergibt sich für die Kapillanzahl des Fluidfadens Ca^* näherungsweise:

$$Ca^* \approx 0.014 \cdot \frac{|\dot{\gamma}| \cdot \eta_{CP} \cdot R_0}{\sigma_{12}} \quad (4.2)$$

Mittels dieser dimensionslosen Kennzahl kann die Abweichung des Fluidfadenquerschnitts vom kreisrunden Querschnitt quantifiziert und damit eine Aussage über die Grenzflächenstruktur getroffen werden.

Zur Bereichseinteilung wird schließlich noch ein Kriterium für die Auflösung fadenförmiger Strukturen in Scherströmungen benötigt. Gemäß obiger Einteilung ist hier der Fadenzerfall von Strukturen zu analysieren, die unter der Bedingung $Ca_r > 4$ aus Tropfen entstanden sind. Unter dieser Bedingung werden stabile Fluidfäden ausgebildet, die erst bei Erreichen sehr kleiner Fadendurchmesser zerfallen. Für deren Analyse kann die umgekehrte Proportionalität zwischen der Schergeschwindigkeit und dem kritischen Fadendurchmesser zugrundegelegt werden (vgl. Kapitel 2).

4.1.4 Definition der Kopplungsbedingungen an den Grenzen der Gültigkeitsbereiche der unterschiedlichen Modelle

Treten Fluidfadenzerfallsvorgänge auf, ist die Morphologieausbildung vor und nach der Auflösung des Fluidfadens in kleinere Tropfen mit unterschiedlichen Modellen zu beschreiben. Dazu sind entsprechende Kopplungsbedingungen für die spezifische Oberfläche Q und den Tensor zur Darstellung der Grenzflächenanisotropie \underline{q} zu definieren.

Die spezifischen Grenzfläche berechnet sich für die geometrischen Grundstrukturen Faden (F) und Kugel (K) aus dem Faden- bzw.

Tropfenradius zu (vgl. [71]):

$$Q_F = \frac{2 \cdot \Phi_{DP}}{a} \quad , \quad Q_K = \frac{3 \cdot \Phi_{DP}}{R} \quad . \quad (4.3)$$

Damit kann der mittlere Tropfenradius der beim Fluidfadenzerrfall entstehenden Tropfen vereinfachend durch Gleichsetzung der in Gl. 4.3 angegebenen Ausdrücke für die spezifische Grenzfläche ermittelt werden. In dieser konservativen Formulierung wird angenommen, daß die spezifische Grenzfläche beim eigentlichen Zerfall unverändert bleibt.

Die beim Zerfall langer, dünner Fluidfäden entstehenden Tropfen sind sehr klein und dadurch aufgrund der Grenzflächenspannungen annähernd kugelförmig. Damit können die Elemente des Tensors \underline{q} Null gesetzt werden.

4.1.5 Darstellung einer Vorgehensweise zur Parameterbelegung der Modelle

Für die Analyse der Fluidfadendeformation sind keine Parameter anzupassen. Die Bestimmungsgleichungen für Q und \underline{q} des mit der Abkürzung LGC bezeichneten Modells können durch Nullsetzen einzelner Korrekturfaktoren auf die von Lee und Park, bzw. Doi und Ohta angegebenen Gleichungen reduziert werden. Im allgemeinsten Fall sind damit die Parameter μ_1 , μ_2 , μ_3 und ξ entsprechend ihrer morphologischen Zuordnungen anzupassen:

- Der Slip-Faktor ξ ist nur dann ungleich Null, wenn unter Vernachlässigung der Grenzflächenspannung nichtaffine Deformationen auftreten. Dies trifft bei großen Viskositätsverhältnissen oder ausgeprägt viskoelastischem Fließverhalten der dispersen Phase zu.
- Der Parameter μ_1 stellt in den Differentialgleichungen für Q und \underline{q} einen generellen Korrekturfaktor zur Bewertung der

Grenzflächenrelaxation dar. Eine Erhöhung dieses Faktors ist einem entsprechenden Anstieg der Grenzflächenspannung äquivalent.

- Bei hohen Volumenkonzentrationen der dispersen Phase dominieren Koaleszenzeffekte. Dieser Relaxationsmechanismus wird durch den Parameter μ_2 gewichtet.
- Der Parameter μ_3 ist einer Grenzflächenrelaxation aufgrund von Rückdeformationen deformierter Tropfen und Tropfenzerfallsvorgängen zuzuordnen.

Im Gegensatz zu der in unterschiedlichen Veröffentlichungen durchgeführten Approximation auf der Grundlage rheologischer Meßwerte werden die Korrekturfaktoren auf der Basis morphologischer Daten ermittelt. Die Abweichung zwischen den mit unterschiedlichen Methoden bestimmten Parametern stellt damit ein Maß für die Leistungsfähigkeit der Modelle dar.

Bei einem in Bezug auf die Fließeigenschaften der Reinstoffkomponenten festgelegten Slip-Faktor ξ sind mit $\mu_3 = 1 - \Phi_{DP}$ noch zu bestimmen: μ_1 und μ_2 . Bei der Blendaufbereitung verkörpert die sich im dynamischen Gleichgewicht einstellende Dispersionseinheit eine wichtige Qualitätsgröße dar. Überdies ist die Morphologie, die sich nach einer hinreichend langen Scherzeit einstellt, eine experimentell leicht zugängliche Größe. Dementsprechend werden die noch unbestimmten Parameter so festgelegt, daß sich für $t \rightarrow \infty$ die entweder in Experimenten ermittelten oder aber auf analytischem Wege gewonnenen Werte für Q und \underline{q} ergeben.

Bei polydispersen Gemischen kann die spezifische Grenzfläche annähernd kugelförmiger Tropfen mit dem Sauterdurchmesser d_{23} bestimmt werden:

$$Q = \frac{6 \cdot \Phi_{DP}}{d_{23}} = 6 \cdot \Phi_{DP} \cdot \frac{\sum n_i \cdot (2 \cdot R_i)^2}{\sum n_i \cdot (2 \cdot R_i)^3} \quad . \quad (4.4)$$

Liegt die disperse Phase in Form deformierter Tropfen vor, ist die Tropfenform durch ein rotationssymmetrisches Ellipsoid mit den Halbachsen R_{max} und R_{min} mit der Substitution $\cos v = R_{min}/R_{max}$ zu approximieren:

$$Q = 1.5 \cdot \Phi_{DP} \cdot \frac{\sum n_i \cdot R_{max,i} \cdot R_{min,i} \cdot \left(\cos v_i + \frac{v_i}{\sin v_i} \right)}{\sum n_i \cdot R_{max,i} \cdot R_{min,i}^2} \quad . \quad (4.5)$$

Die Tropfenoberfläche und damit die Anisotropie wird mit dem Tensor \underline{E} erfaßt (vgl. Anhang A.2):

$$E_{ij} = Q \cdot q_{ij} + \frac{1}{3} \cdot Q^2 \delta_{ij} \quad . \quad (4.6)$$

Der zum größten Eigenwert gehörende Eigenvektor des Tensors \underline{E}^{-1} ist der Tropfenorientierung gleichzusetzen, und die Relation zwischen dem größten und kleinsten Eigenwert entspricht dem Verhältnis der Tropfenhauptachsen. Bei polydispersen Gemischen ist der Anisotropietensor mit der im Anhang A.3 angegebenen Summationsformel zu bestimmen.

Bei definierter spezifischer Grenzfläche bestimmt das Verhältnis zwischen den Koeffizienten μ_1 und μ_2 den Deformationsgrad: Bei niedrigen Volumenkonzentrationen der dispersen Phase und kleinen Schergeschwindigkeitsbeträgen spielen Koaleszenzeffekte eine untergeordnete Rolle, was mit kleinen Werten für μ_2 abgebildet wird. Bei hochkonzentrierten Gemischen hingegen ist die Koaleszenz der dominierende Relaxationsvorgang. Unter diesen Bedingungen liegen deformierte, in Strömungsrichtung ausgerichtete Tropfen vor.

Zur Parameterbelegung ergibt sich damit die folgende Vorgehensweise:

1. Nur sofern nichtaffine Deformationen auftreten, also bei ausgeprägt viskoelastischen oder im Vergleich zur Matrix sehr

hochviskosen Tropfen, ist ξ ungleich Null. Andernfalls kann zur morphologischen Analyse entweder das Modell von Doi und Ohta oder die modifizierte Form von Lee und Park verwendet werden. Vor allem bei niedrigen Volumenkonzentrationen der dispersen Phase ist letzteres vorzuziehen.

2. Nach Vorgabe von μ_1 und eventuell von ξ wird μ_2 so ermittelt, daß sich im Gleichgewichtszustand die vorgegebene spezifische Grenzfläche einstellt. Weicht die dadurch ermittelte Deformation bzw. Tropfenorientierung von der Vorgabe ab, muß diese Nullstellensuche zur Ermittlung von μ_2 bei entsprechend geänderten Parametern wiederholt werden.
3. Bei kleinen Deformationen kann die Tropfenform durch eine Kugel approximiert werden. Bei stark deformierten Tropfen ist die spezifische Grenzfläche mittels Gl. 4.5 zu bestimmen.

4.1.6 Modellierung des morphologischen Gleichgewichts

Für viele praktische Anwendungen ist es von Vorteil, Informationen über die in einem vorliegenden Strömungsfeld erreichbare Dispersionsfeinheit zu erhalten. Darüber hinaus können die aus theoretischen Analysen gewonnenen Informationen über die Morphologie im dynamischen Gleichgewicht für die Parameterbestimmung herangezogen werden.

Für generelle Aussagen über die Tropfengröße im Gleichgewichtszustand können die in Kapitel 2 dargestellten Korrelationen zur Beschreibung der kritischen Tropfenradien R_{crit} und R_{crit}^{coal} eingesetzt werden. Es sind folgende Fälle zu unterscheiden:

- $R_{crit}^{coal} > R_{crit}$: Der mittlere Tropfenradius liegt innerhalb des durch die kritischen Radien gebildeten Intervalls. Für detailliertere Aussagen ist die Dynamik der Zerfalls- und Koaleszenzprozesse zu analysieren.

- $R_{crit}^{coal} < R_{crit}$: Unter der Bedingung, daß für die beim Zerfall entstehenden Tropfen $R_{crit}^{coal} < R_{crit}$ gilt, wird der mittlere Tropfenradius maßgeblich durch Koaleszenzeffekte bestimmt.

Mit dem mittleren Tropfenradius R_{gg} und der Volumenkonzentration der dispersen Phase kann die spezifische Grenzfläche bestimmt werden zu:

$$Q = \frac{3 \cdot \Phi_{DP}}{R_{gg}} \quad . \quad (4.7)$$

4.1.7 Anmerkungen zur Strömungsberechnung

Mit den für die morphologische Analyse eingesetzten Modellen kann das Fließverhalten des Gemischs unter Berücksichtigung der Grenzflächenstruktur mit der folgenden rheologischen Zustandsgleichung abgebildet werden:

$$\underline{\tau} = 2 \cdot \eta_m \cdot \underline{D} - \sigma_{12} \cdot \underline{q} \quad . \quad (4.8)$$

Wird viskoses Stoffverhalten zugrundegelegt, ist die Gemischviskosität η_m zu ermitteln. Diese kann durch Mischungsansätze aus den Reinstoffviskositäten abgebildet werden oder aber direkt am Rheometer ermittelt werden. Bei der experimentellen Bestimmung der Fließkurve des Gemischs ist zu berücksichtigen, daß die für eine bestimmte Grenzflächenstruktur ermittelten Meßwerte nicht beliebig auf eine davon abweichende Morphologie übertragbar sind. Eine Überprüfung kann mittels Gl. 4.8 erfolgen.

In stationären Scherströmungen kann bei moderaten Volumenkonzentrationen der dispersen Phase der Einfluß der Phasengrenzfläche auf das Fließverhalten des Gemischs vernachlässigt werden. Bei höherkonzentrierten Gemischen kann der Einfluß der Grenzfläche auf das Fließverhalten wiederum mit Gl. 4.8 abgeschätzt werden.

4.2 Charakterisierung der in den Versuchen eingesetzten Materialien

Sowohl die Ausgangskomponenten als auch das untersuchte Gemisch weisen in einfacher, stationärer Scherströmung den für strukturviskose Fluide charakteristischen Abfall der Viskosität mit zunehmendem Betrag der Schergeschwindigkeit auf. In Bild 4.2 sind die mit dem Kapillarrheometer ermittelten Viskositätswerte in doppeltlogarithmischem Maßstab aufgetragen, wobei die Viskositäten der unterschiedlichen Gemischzusammensetzungen innerhalb der durch die Reinstoffkomponenten gebildeten Grenzen liegen. Wie

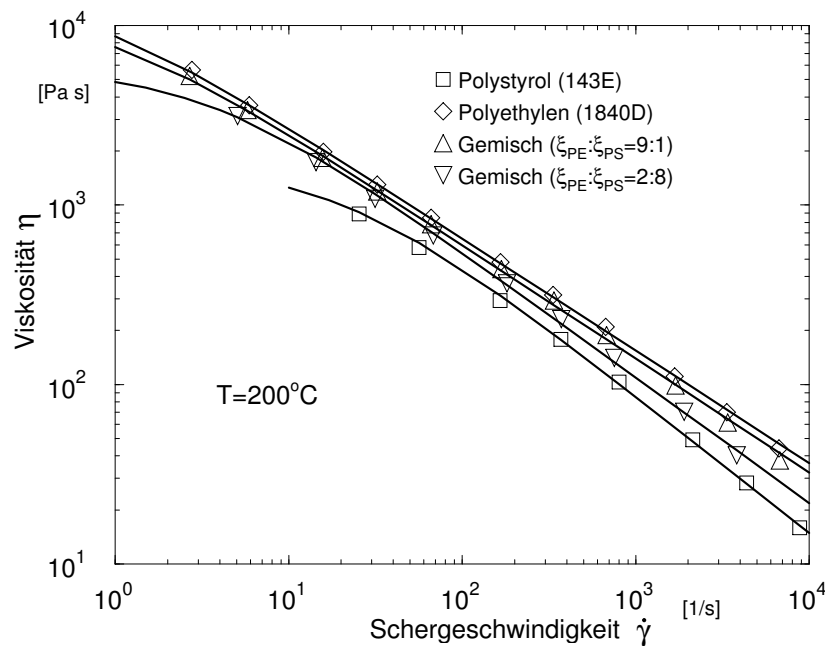


Bild 4.2: Viskositätsverläufe des Gemischs und der Gemischkomponenten über der Schergeschwindigkeit

aus den durchgezogenen Linien ersichtlich ist, können die aus Messungen ermittelten Werte gut mit dem Ansatz nach Carreau abgebildet werden, indem die Koeffizienten A_0, A_1, A_2 durch eine nichtli-

neare Approximation ermittelt werden:

$$\eta(\dot{\gamma}) = \frac{A_0}{(1 + A_1 \cdot |\dot{\gamma}|)^{A_2}} \quad (4.9)$$

Bei keiner der untersuchten Polymerschmelzen weisen die Druckverläufe $p(l)$ entlang der Kapillare eine im Rahmen der Messgenauigkeit merkbare Abweichung vom linearen Verlauf auf. Das bedeutet, daß der Einfluß der Grenzflächenstrukturen auf das Fließverhalten in der Spaltströmung vernachlässigt werden kann, was selbstverständlich nicht für das Fließverhalten desselben Gemisches in anderen Strömungsformen zutreffen muß.

Für das Gemisch aus Polyethylen und Polystyrol kann eine Grenzflächenspannung von $\sigma_{12} = 5.3 \text{ mN/m}$ angenommen werden [32].

4.3 Experimentelle Untersuchung der Morphologieausbildung im Flachsitzkanal

4.3.1 Versuchsapparatur und Versuchsdurchführung

Die Morphologieausbildung wird anhand einer am Institut für Kunststofftechnologie (IKT) entwickelten kühlbaren Düse experimentell analysiert (Bild 4.3). Im Flachsitzkanal dieser Düse wird eine Druckströmung realisiert. Der Strömungskanal besteht aus zwei Abschnitten mit unterschiedlichen Spalthöhen, die durch einen konvergenten Übergang verbunden sind. Für die morphologischen Untersuchungen wird die Düse so in das Rheometer eingebaut, daß das Fluid einen konvergierenden Flachsitzkanal durchströmt, wobei sich die morphologische Analyse auf den Flachsitz mit der Höhe $h = 0.5 \text{ mm}$ beschränkt. Das Verhältnis von Schlitzbreite b zur -höhe h beträgt in diesem Abschnitt $b/h = 14$. Damit kann der Einfluß der Seitenwandungen auf den Druckabfall vernachlässigt werden [21].

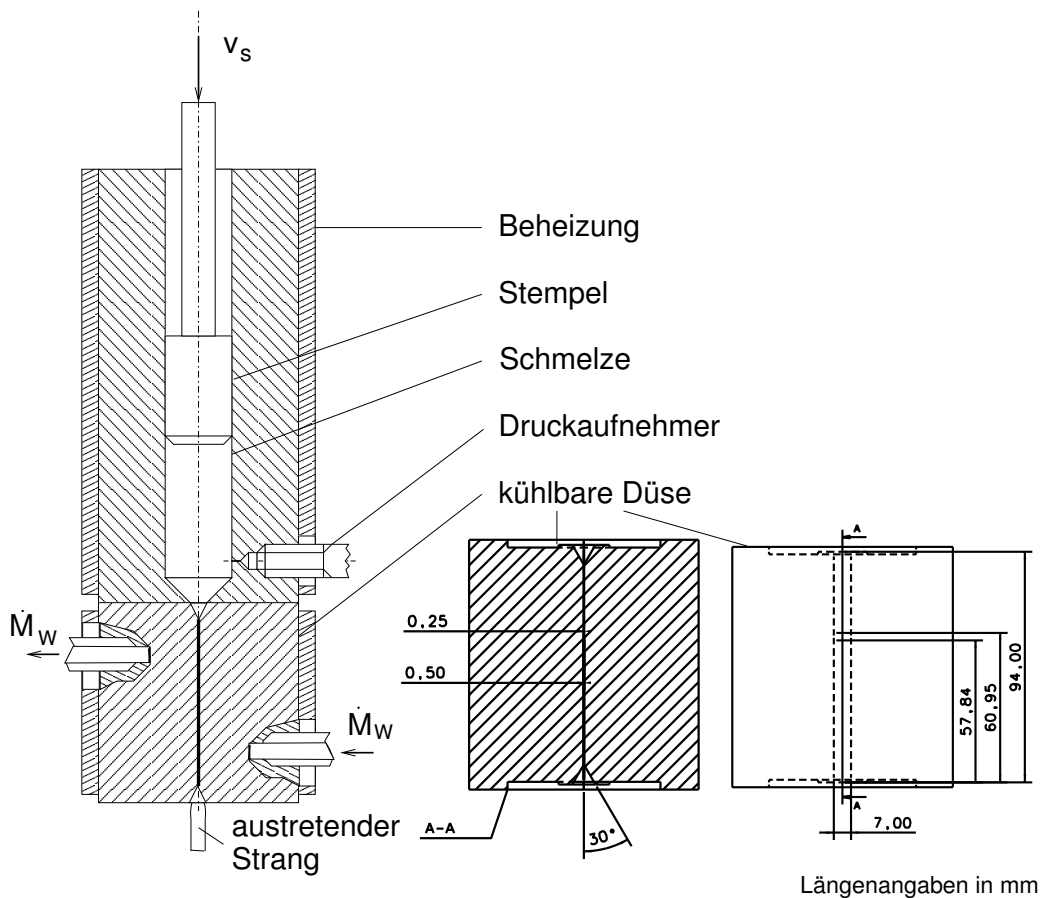


Bild 4.3: Geometrie der zu morphologischen Analysen eingesetzten kühlbaren Düse

Zur Analyse der sich über der Spalthöhe ausbildenden Morphologie werden die Proben überdies nahe der Mitte der Spaltbreite entnommen, so daß der Flankeneinfluß gering bleibt.

Durch den Flachschnitt wird das in einem Zweischnellenknetter (ZSK 25) generierte Vorgemisch aus PE und PS im Massenkonzentrationsverhältnis 9 : 1 durch einen, mit konstanter Geschwindigkeit bewegten Stempel bei einer Temperatur von $T = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ hindurchgepreßt. Nach Erreichen des stationären Zustands wird die Düse zur Vermeidung von Lunkerbildungen unter Nachdruck abgekühlt. Aufgrund der Kühlwasserführung entlang der spiralförmig um den Strömungskanal geführten Kühlbohrungen wird die Probe sehr schnell abgekühlt, und somit die Morphologie im Strömungszustand konserviert.

Die Proben werden bei Raumtemperatur für die sich anschließenden mikroskopischen Untersuchungen entformt und zur Untersuchung mittels REM nach einer Stickstofflagerung gebrochen. Dabei folgt die Bruchfläche aufgrund der Unverträglichkeit der beiden Gemischkomponenten vorwiegend den Phasengrenzen, so daß keine weitere Aufbereitung der Probe für die Elektronenmikroskopie nötig ist. Damit der Bruch der Probe kontrolliert erfolgt, muß diese entlang einer Seite angeritzt werden und ist damit über eine geringe Höhe beschädigt, was aufgrund ihrer Symmetrieeigenschaft zu keinem nennenswerten Informationsverlust führt.

4.3.2 Experimentelle Ergebnisse

Es werden Ergebnisse einer morphologischen Analyse vorgestellt, bei der die Stempelgeschwindigkeit so gewählt ist, daß im engen Spaltabschnitt der Düse mit $h = 0.25 \text{ mm}$ eine scheinbare Wand-schergeschwindigkeit von $\dot{\gamma}_w^* = 10 \text{ 1/s}$ erreicht wird.

Die Probenmorphologie wird durch REM-Aufnahmen dokumentiert,

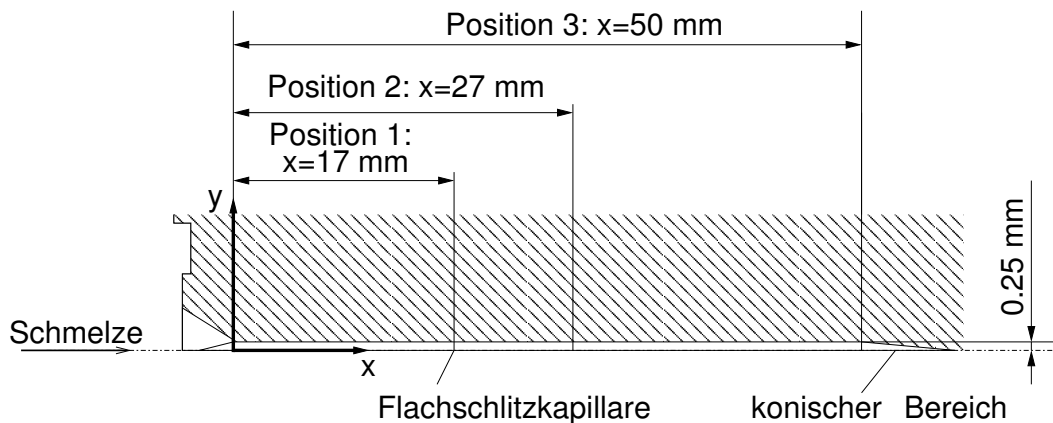


Bild 4.4: Spaltpositionen der mittels REM aufgenommenen Grenzflächenstruktur

die an den in Bild 4.4 dargestellten Positionen aufgenommen und am Ende dieses Abschnitts dargestellt sind (Bilder 4.5 - 4.7). Aufgrund der nahezu kreisförmigen Querschnitte der Fluidfäden und

Tropfen wird lediglich die Bruchebene parallel zur x,y -Ebene dargestellt.

Die Probenausschnitte zeigen die Morphologie im Bereich der Spaltmitte. In den REM-Aufnahmen sind nahezu kugelförmige Tropfen, deformierte Tropfen und in Strömungsrichtung orientierte Fluidfäden auszumachen. Vor allem nahe der Spaltmitte nimmt der Anteil stark deformierter Tropfen in Strömungsrichtung ab, was auf Tropfenzerfallsvorgänge zurückzuführen ist. Aufgrund des geringen Schergradienten werden die dabei gebildeten Tropfen kaum deformiert.

In Bild 4.5 liegt im Bereich der Spaltmitte eine inhomogene Morphologie vor. Es sind Fluidfäden mit großen Fadendurchmessern neben bereits zerfallenen kugelförmigen und gering deformierten Tropfen zu erkennen. Die großen Unterschiede der Tropfenabmessungen und -formen deuten darauf hin, daß sich die Morphologie aufgrund von Tropfenzerfallsvorgängen deutlich ändert. Mit der Entfernung von der Spaltmitte nehmen die Durchmesser der Fluidfäden ab, was auf den signifikanten Anstieg der Schergeschwindigkeitsbeiträge zurückzuführen ist.

Die ausgeprägte Inhomogenität der Morphologie nahe der Spaltmitte klingt relativ schnell ab. Beim Vergleich von Bild 4.5 mit Bild 4.6 fällt der gestiegene Anteil gering deformierter Tropfen auf. Ein volumetrisch gesehen großer Anteil der Tropfen nahe der Spaltmitte besteht nicht aus kugelförmigen sondern aus stark deformierten Tropfen. Der Bereich, innerhalb dessen sowohl Fluidfäden als auch kleinere, gering deformierte Tropfen existieren, ist von der Spaltmitte in Wandrichtung verschoben. Dieser Bereich ist im unteren Teil von Bild 4.6 gut auszumachen.

Anhand von Bild 4.7 kann die Ausbildung des morphologischen Gleichgewichts diskutiert werden. Die x -Position dieser Serie entspricht dem Beginn des konischen Bereichs. Es sind vorwiegend kugelförmige Tropfen auszumachen. Das weist darauf hin, daß

die Morphologie in diesem Bereich keine starken Änderungen mehr erfährt. Damit stellt die abgebildete Morphologie zumindest annähernd den morphologischen Gleichgewichtszustand dar. Bis zum Abstand von $y \approx 85 \mu\text{m}$ von der Spaltmitte sind keine ausgeprägten Veränderungen in der Grenzflächenstruktur auszumachen. An diesen Probenbereich schließt sich wiederum der Bereich an, in dem gering deformierte Tropfen und Fluidfäden vorliegen.

$\nabla 0 \mu\text{m}$

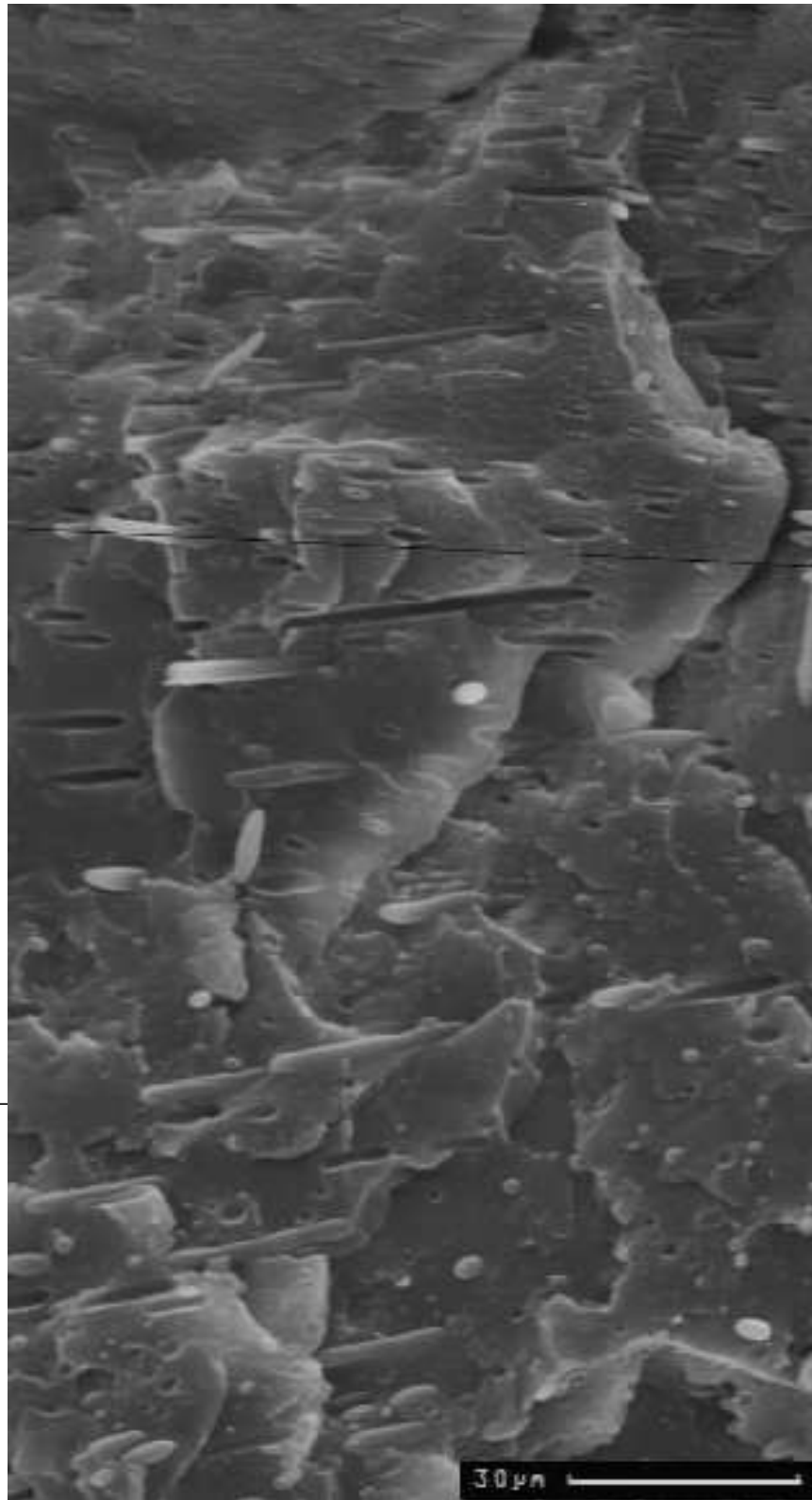


Bild 4.5: REM-Aufnahme der Serie 1

▽ 0 μm

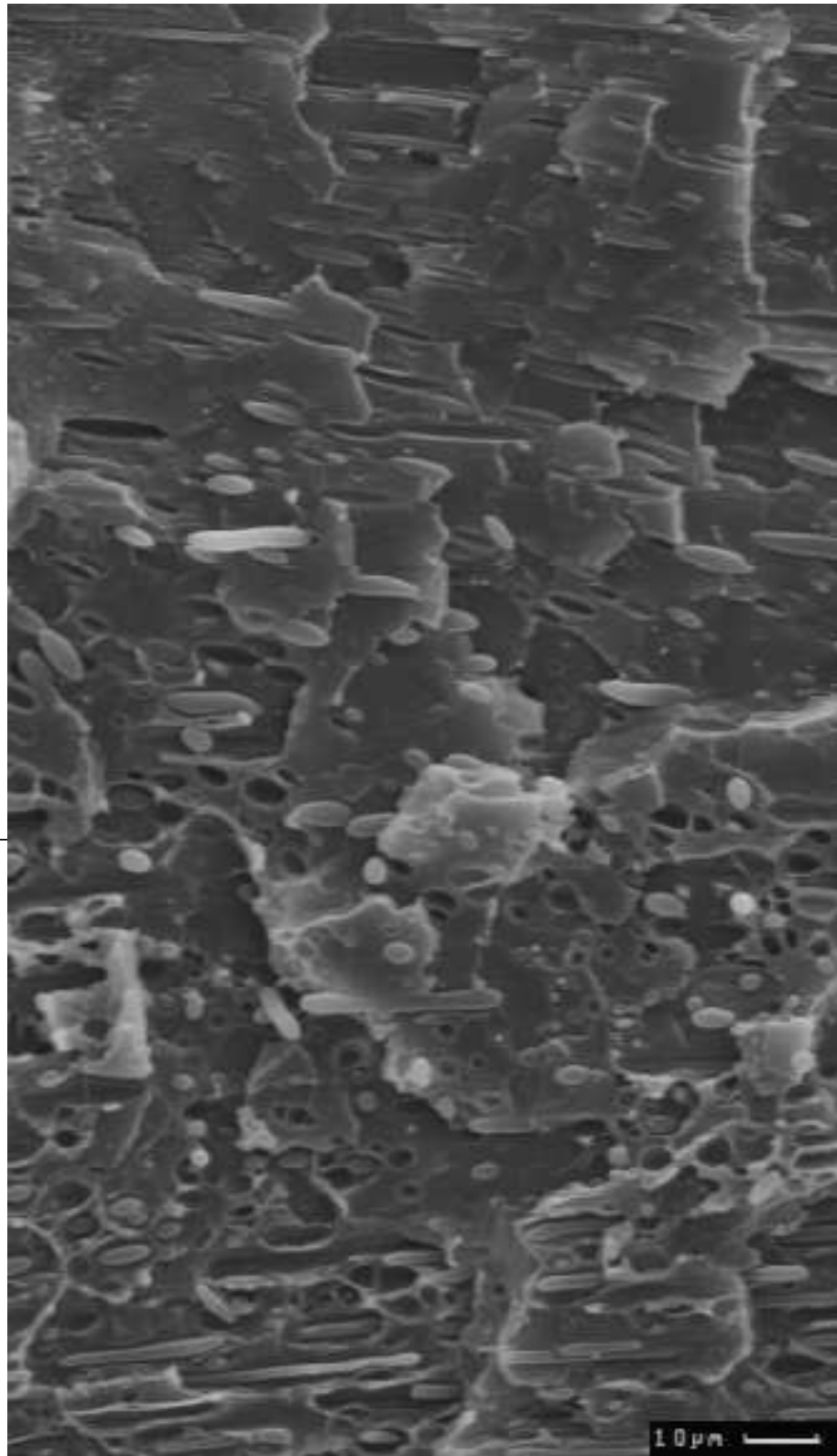


Bild 4.6: REM-Aufnahme der Serie 2

▽ 0 μm

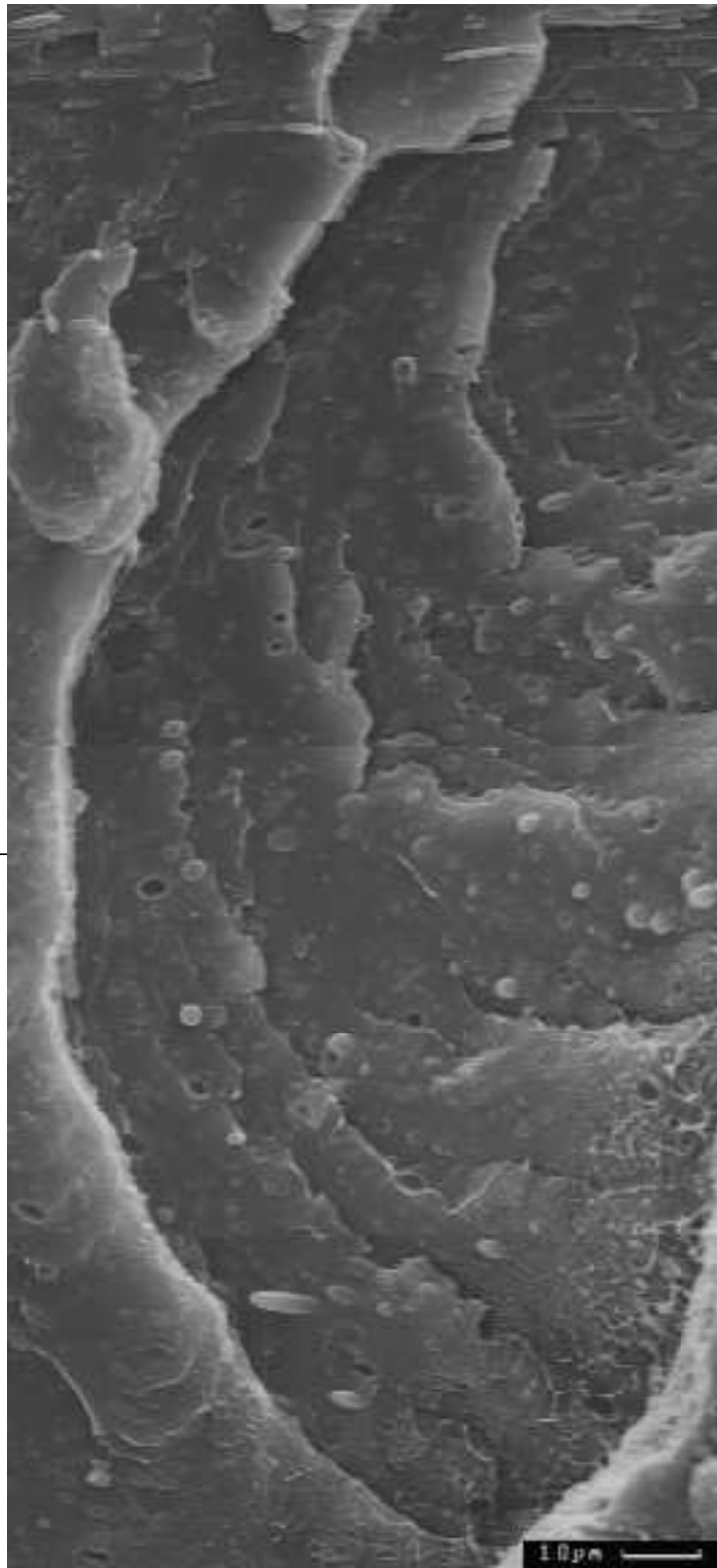


Bild 4.7: REM-Aufnahme der Serie 3

4.4 Experimentelle Untersuchung der Wendelströmung im Schertorpedo

4.4.1 Versuchsapparatur und Versuchsdurchführung

Die Wendelströmung wird zwischen koaxial-konzentrisch angeordneten Zylindern realisiert. Durch Rotation von einem der beiden Zylinder wird im Spalt eine azimuthale Schleppströmung induziert, der durch Aufprägen eines Druckgradienten längs der Zylinderachse eine axiale Druckströmung überlagert ist. Bei dieser Strömungs-

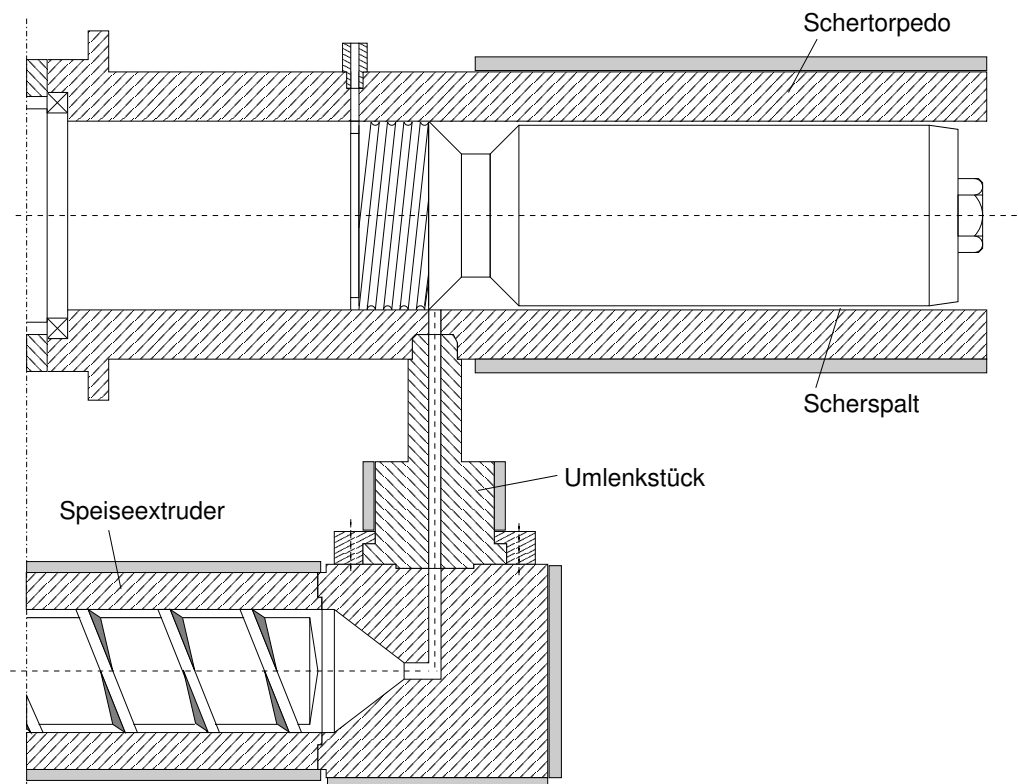


Bild 4.8: Prinzipskizze der Versuchsanordnung

form können die Verweilzeit über den angelegten Druckgradienten und die Deformationsgeschwindigkeit durch die Rotationsgeschwindigkeit des beweglichen Zylinders weitgehend unabhängig voneinander eingestellt werden. Da mit zunehmender Drehzahl der Einfluß der Druckströmung reduziert wird, herrscht zudem bei kleinen

Spaltweiten ein relativ homogenes Scherfeld über der Ringspaltweite. Damit eignet sich das Schertorpedo für die Analyse der Ausbildung des morphologischen Gleichgewichts.

Das für die Versuche eingesetzte Schertorpedo weist zwischen dem rotierenden Innen- und dem ruhenden Außenzylinder eine Spaltweite von $w = 0.5 \text{ mm}$ auf. Der Radius des Innenzylinders beträgt 22 mm und die Länge des Scherspalts zwischen Materialein- und -austritt wurde mit $L_{\text{zyl}} = 100 \text{ mm}$ bemessen. Die Apparatur ist mit einem Heizband und einem Luftgebläse versehen, um die mit einem Thermoelement nahe der Zylinderinnenoberfläche gemessene Wandtemperatur zu regeln.

Die Schertorpedo-Drehzahl ist durch Einsatz eines Friktionsgetriebes im Bereich $13 \text{ min}^{-1} \leq n_s \leq 130 \text{ min}^{-1}$ stufenlos verstellbar. Die Scherapparatur ist überdies mit einem Sperrgewinde versehen, das den rückwärtigen Schmelzeaustritt in die Lagerung des Rotors verhindert [24].

Die Scherapparatur wird durch einen Einschneckenextruder mit Material beschickt, wobei die Schmelze über ein mit Heizbändern bestücktes Umlenkstück in die Scherapparatur eintritt.

Während der Versuche wird die gesamte Scherapparatur auf eine Temperatur von $T = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ eingeregelt, wofür insgesamt 5 Thermoelemente zur Ermittlung der Temperaturen im Extruder (3), im Umlenkstück (1) und im Schertorpedo (1) verwendet werden. Darüber hinaus dient ein sechstes Thermoelement zur Erfassung der Schmelzetemperatur.

Als Ausgangsmaterial dienen im Zweisechneckenextruder aufbereitete Vorgemische aus Polyethylen und Polystyrol. Da im engen Spalt des Schertorpedos im Vergleich zum Zweisechneckenextruder relativ hohe Schergeschwindigkeiten realisiert werden, ist mit großen Änderungen der Grenzflächenstruktur zu rechnen. Deshalb wird vor jedem Einzelversuch 15 min mit frischem Material gespült, um eine zusätzliche Strukturvergrößerung aufgrund von Koaleszenzeffekten

bei der Materialzuführung zu reduzieren.

Während im Falle der Düsenströmung der Morphologieausbildungsprozeß analysiert wird, werden die Versuche am Schertorpedo zur Untersuchung der Morphologie im Gleichgewicht durchgeführt. Das bedeutet, daß die Polymerschmelze ausreichend lange geschert werden muß, bis der quasistationäre Zustand erreicht ist.

Um den Gleichgewichtszustand hinsichtlich der Morphologieausbildung am Austritt des Schertorpedos erreichen zu können, muß das Schertorpedo diskontinuierlich betrieben werden. Nachdem der Scherspalt mit frischem Material beschickt ist, wird die Materialzufuhr gestoppt und erst nach Ablauf eines bestimmten Scherzeitintervalls wird das Material ausgetragen.

Aufgrund des Materialabbaus am Spaltaustritt, wo die Polymerschmelze mit dem Luftsauerstoff in Kontakt kommt, kann die Scherdauer bei der Probenherstellung nicht beliebig erhöht werden.

Wird das Material thermisch geschädigt, so ändern sich die Fließeigenschaften des Materials und damit der Druckabfall entlang des Strömungskanal. Die Kontrolle in Bezug auf Materialabbau kann deshalb anhand von Druckmessungen erfolgen. Der dafür eingesetzte Druckaufnehmer befindet sich im Umlenkstück, das die Verbindung zwischen Speiseextruder und Schertorpedo herstellt.

Die Vorversuche zur Kontrolle eines potentiellen Materialabbaus erfolgen am diskontinuierlich betriebenen Schertorpedo. Dabei wird durch Abschalten des Vorlageextruders die Materialzufuhr unterbrochen. Anschließend wird das Testmaterial nach Ablauf des gewählten Scherzeitintervalls bei definierter Schneckendrehzahl ausgetragen. Es wird das Kriterium angewendet, daß eine thermische Schädigung vernachlässigbar ist, sofern bei unterschiedlichen Verweilzeiten keine nennenswerten Druckunterschiede auftreten. Der sich bei konstanter Schneckendrehzahl einstellende Druck dient hierbei als Referenz. Anhand mehrerer Messungen wird sicher-

gestellt, daß bei den eigentlichen Versuchen zur morphologischen Analyse kein Materialabbau auftritt.

Die Versuche werden mit zwei unterschiedlichen Gemischen gefahren, die sich in den Konzentrationsverhältnissen der Gemischkomponenten unterscheiden. In den Gemischen sind Polyethylen und Polystyrol in den Massenkonzentrationsverhältnissen $\xi_{PE} : \xi_{PS} = 9.5 : 0.5$ (Gemisch 1) und $\xi_{PE} : \xi_{PS} = 9 : 1$ (Gemisch 2) enthalten. Bei diesen niedrigen Polystyrolkonzentrationen kann davon ausgegangen werden, daß der Gleichgewichtszustand dadurch gekennzeichnet ist, daß das Polystyrol mikrodispers verteilt in der Polyethylenmatrix vorliegt.

Die Proben werden unmittelbar nach der Entnahme in Eiswasser abgekühlt. Durch das Einfrieren des morphologischen Zustands werden die ablaufenden Relaxationsprozesse gestoppt. Insbesondere wird dadurch eine Vergrößerung der Grenzflächenstruktur aufgrund von Koaleszenzeffekten verhindert.

Für die Analyse der Morphologie im Gleichgewichtszustand mittels Rasterelektronenmikroskop wurden die Proben nach Lagerung in flüssigem Stickstoff spröde gebrochen. Das Polystyrol an der Bruchfläche ist anschließend mit Chloroform herausgelöst, wodurch die dreidimensionale Form der Polystyrolpartikel besser ausgemacht werden kann. Das ist vor allem zur Unterscheidung zwischen kugel- und fadenförmigen Tropfen wichtig.

4.4.2 Experimentelle Ergebnisse

Auf der Grundlage von REM-Aufnahmen (vgl. Bilder 4.11 - 4.12) werden die Tropfendurchmesser anhand der Abdrücke des herausgelösten Polystyrols ermittelt. In den Bildern 4.9 und 4.10 sind die Anzahlverteilungen Q_0 für beide Gemischzusammensetzungen aufgetragen. Scharparameter der dargestellten Kurven ist die Drehzahl n_R des Rotors, die im Bereich von $40 \leq n_R \leq 100 \text{ min}^{-1}$ variiert wird.

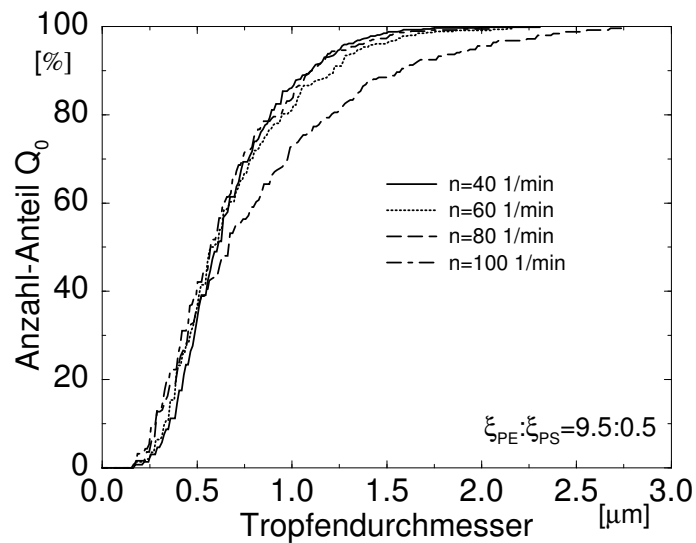


Bild 4.9: Tropfenverteilung des Gemischs 1 bei unterschiedlichen Rotordrehzahlen

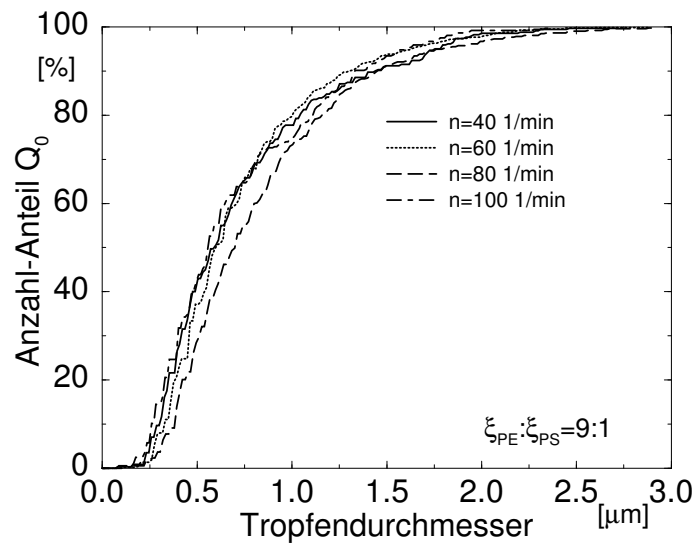


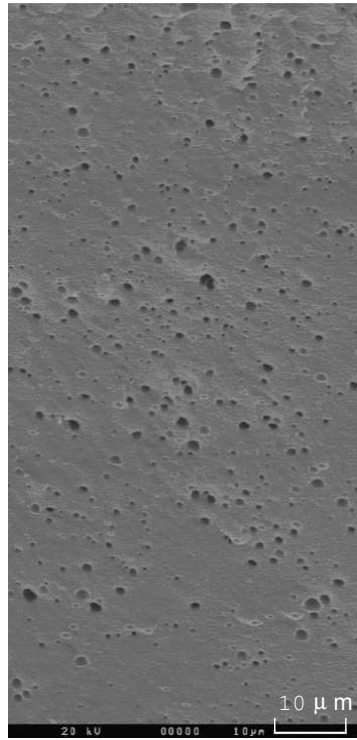
Bild 4.10: Tropfenverteilung des Gemischs 2 bei unterschiedlichen Rotordrehzahlen

Aus den Verteilungen ist ersichtlich, daß sich keine nennenswerten Änderungen der Tropfengrößen in Abhängigkeit von der Drehzahl des Rotors ergeben. Eine Ausnahme bilden die Werte bei einer Drehzahl von $n_R = 80 \text{ min}^{-1}$ des Gemischs Nr. 1. Diese Abweichung ist auf geringere Tropfenrelaxationen zurückzuführen (vgl. Bild 4.11).

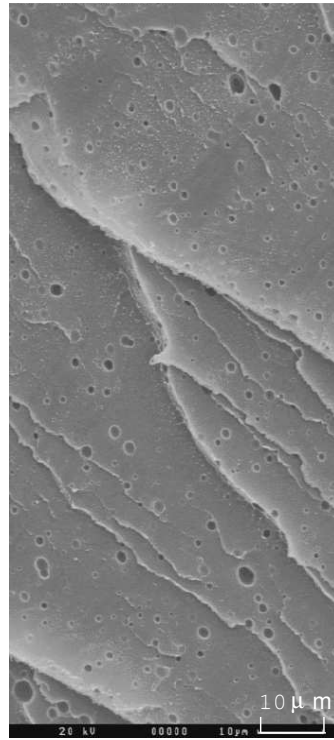
Die aus einer arithmetischen Mittelung bestimmten mittleren Tropfendurchmesser der beiden Gemische mit unterschiedlichen Massenkonzentrationen des Polystyrols w_{PS} unterscheiden sich nur geringfügig. Für das Gemisch mit $w_{PS} = 5 \%$ wird ein mittlerer Tropfendurchmesser von $D_n(w_{PS} = 5 \%) \approx 0.67 \mu m$ bestimmt. Beim höherkonzentrierten Gemisch liegt der entsprechende Wert bei $D_n(w_{PS} = 10 \%) \approx 0.75 \mu m$. Aussagekräftiger als diese Mittelwerte sind allerdings die jeweiligen Verteilungen. So ist ersichtlich, daß der Anteil großer Tropfen mit der Konzentration der dispersen Phase zunimmt. Da in der volumetrischen Mittelung große Tropfen stärker gewichtet werden, treten in den entsprechenden Mittelwerten größere Unterschiede auf. So resultiert für das niedrigkonzentrierte Gemisch ein Mittelwert von $D_v(w_{PS} = 5 \%) = 0.83 \mu m$, der deutlicher von dem des höherkonzentrierten Gemischs mit $D_v(w_{PS} = 10 \%) = 1.035 \mu m$ abweicht.

Die Form der Verteilungskurven im Bereich kleiner Tropfendurchmesser läßt außerdem darauf schließen, daß sich im Gemisch noch kleinere Tropfen befinden. Tatsächlich sind in den REM-Aufnahmen aufgrund der begrenzten Auflösung lediglich Partikel bis zu einer Größenordnung von $0.2 \mu m$ detektierbar.

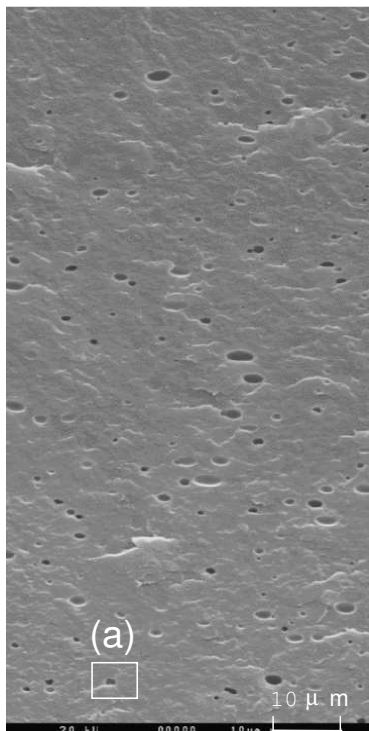
In Bild 4.11 und Bild 4.12 sind die der Analyse zugrundegelegten REM-Aufnahmen wiedergegeben. Zur Erfassung eines größeren zusammenhängenden Probenabschnitts sind jeweils drei Aufnahmen zusammengefaßt.



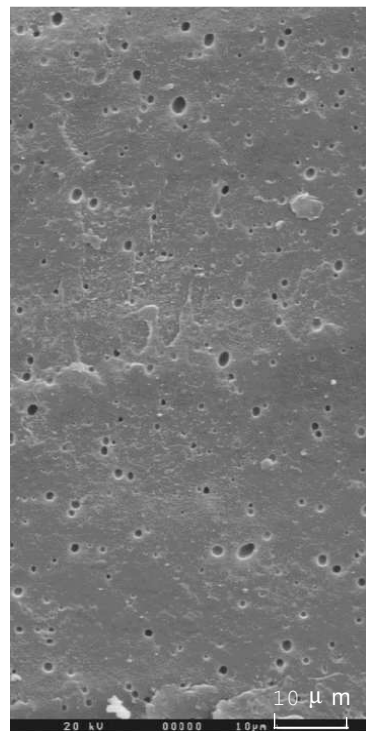
n=40 1/min



n=60 1/min

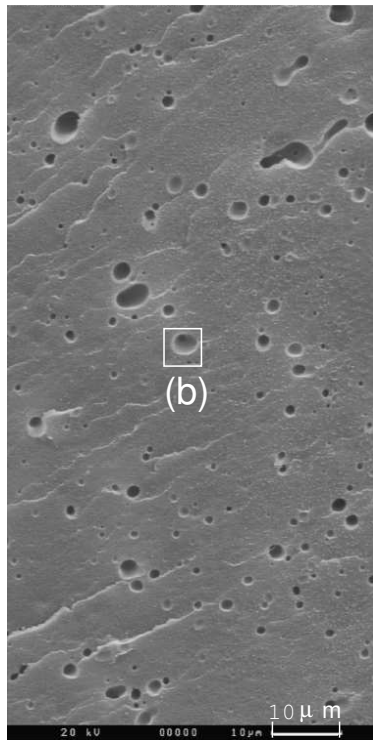


n=80 1/min

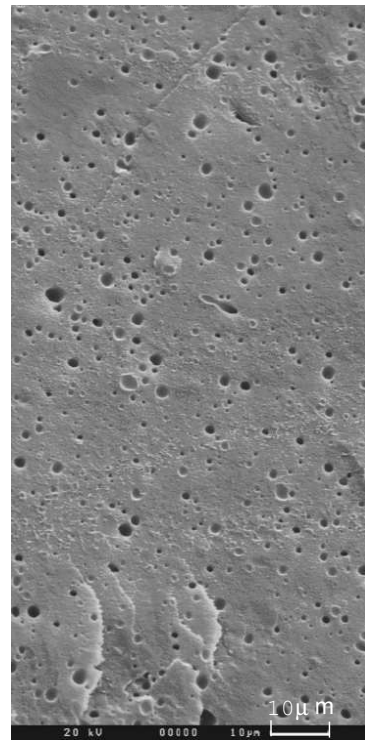


n=100 1/min

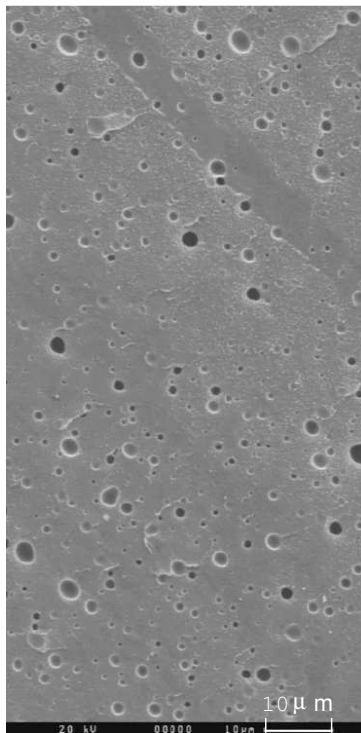
Bild 4.11: Gemisch Nr. 1 bei unterschiedlichen Drehzahlen



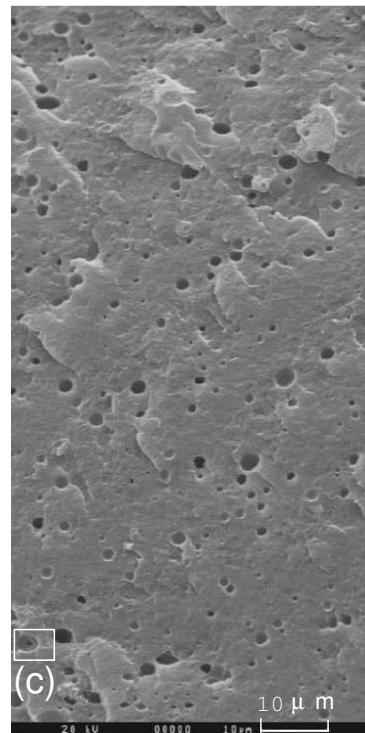
$n=40$ 1/min



$n=60$ 1/min



$n=80$ 1/min



$n=100$ 1/min

Bild 4.12: Gemisch Nr. 2 bei unterschiedlichen Drehzahlen

Bei entsprechender Vergrößerung können in den Proben zahlreiche koaleszierende Tropfen ausgemacht werden. Die Positionen der in Bild 4.13 dargestellten Bildausschnitte sind in den Gesamtansichten der einzelnen Proben eingezeichnet.

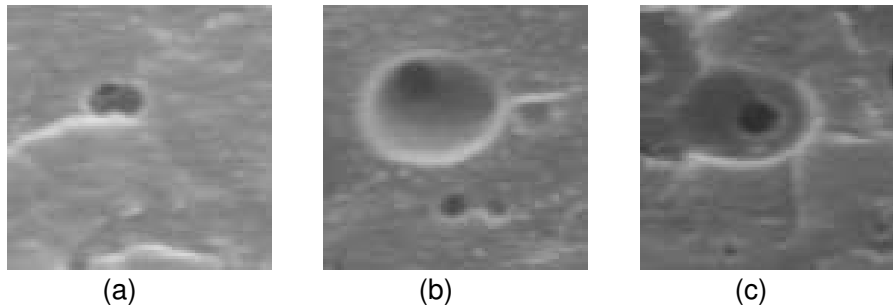


Bild 4.13: Koaleszierende Tropfen unterschiedlicher Größe

Die Tropfenverteilungen weisen bei beiden Gemischen große Anteile kleiner Tropfen auf, die beim Zerfall dünner Fluidfäden entstehen. Gemäß Gl. 2.17 stellt die Zeitspanne, innerhalb derer ein Tropfen mit einem Partner kollidiert, eine vom Tropfenradius unabhängige Größe dar. Damit steigt die Anzahl von Kollisionen pro Volumeneinheit mit der Dispersionsfeinheit aufgrund der damit verbundenen erhöhten Anzahl von Tropfen im Gemisch. Beim Zusammenstoß zweier Tropfen unterschiedlicher Größe wird das zur Annäherung der Grenzflächen zu verdrängende Fluidvolumen maßgeblich durch den Radius des kleineren Tropfens bestimmt. Dadurch wird die Koaleszenz bei kollidierenden Tropfen unterschiedlicher Größe begünstigt, was in den Experimenten bestätigt wird. Allerdings werden durch das Geschwindigkeitsfeld, das sich um einen Tropfen bildet, Stöße mit sehr viel kleineren Tropfen verhindert, da diese den größeren entlang von Stromlinien umströmen [70].

Als weiteres Ergebnis der Experimente mit dem Schertorpedo sind die beobachteten beträchtlichen Auswirkungen der Gemischzusammensetzung auf die Morphologieausbildung anzuführen. Bei einer Verdoppelung des Polystyrolanteils ist es wesentlich schwieriger, mit der gegebenen Versuchsanordnung den Gleichge-

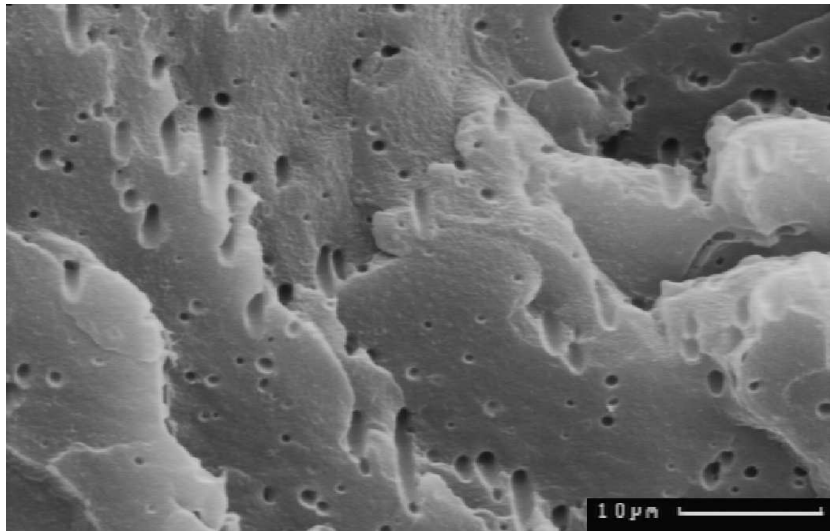


Bild 4.14: Fadenförmige Strukturen des Gemischs Nr. 2 bei der Drehzahl $n = 60 \text{ min}^{-1}$

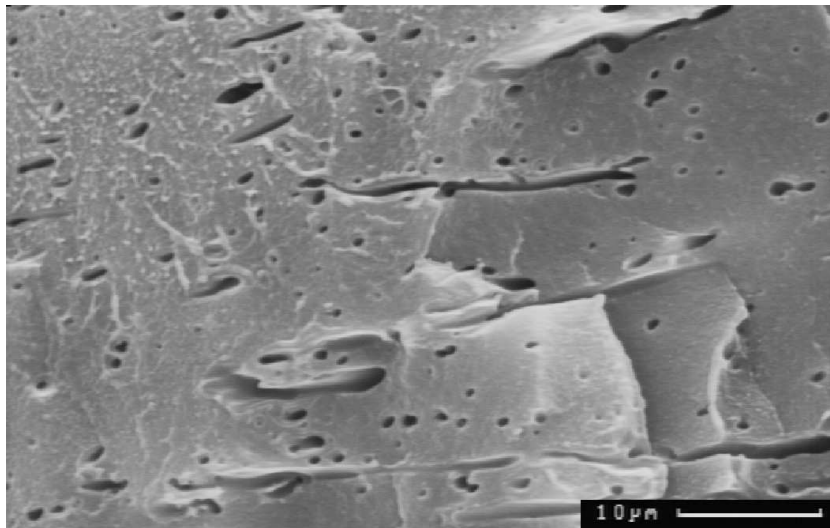


Bild 4.15: Flächige Strukturen des Gemischs Nr. 2 bei der Drehzahl $n = 80 \text{ min}^{-1}$

wichtszustand zu erreichen. Stattdessen liegen auch nach längeren Verweilzeiten des Materials im Scherspalt noch fadenförmige (Bild 4.14) oder sogar flächige Strukturen (Bild 4.15) vor.

4.5 Anwendung des entwickelten Verfahrens zur Analyse der Morphologieausbildung auf die Druckströmung im Flachsitzkanal

4.5.1 Strömungsvorgänge im Flachsitzkanal

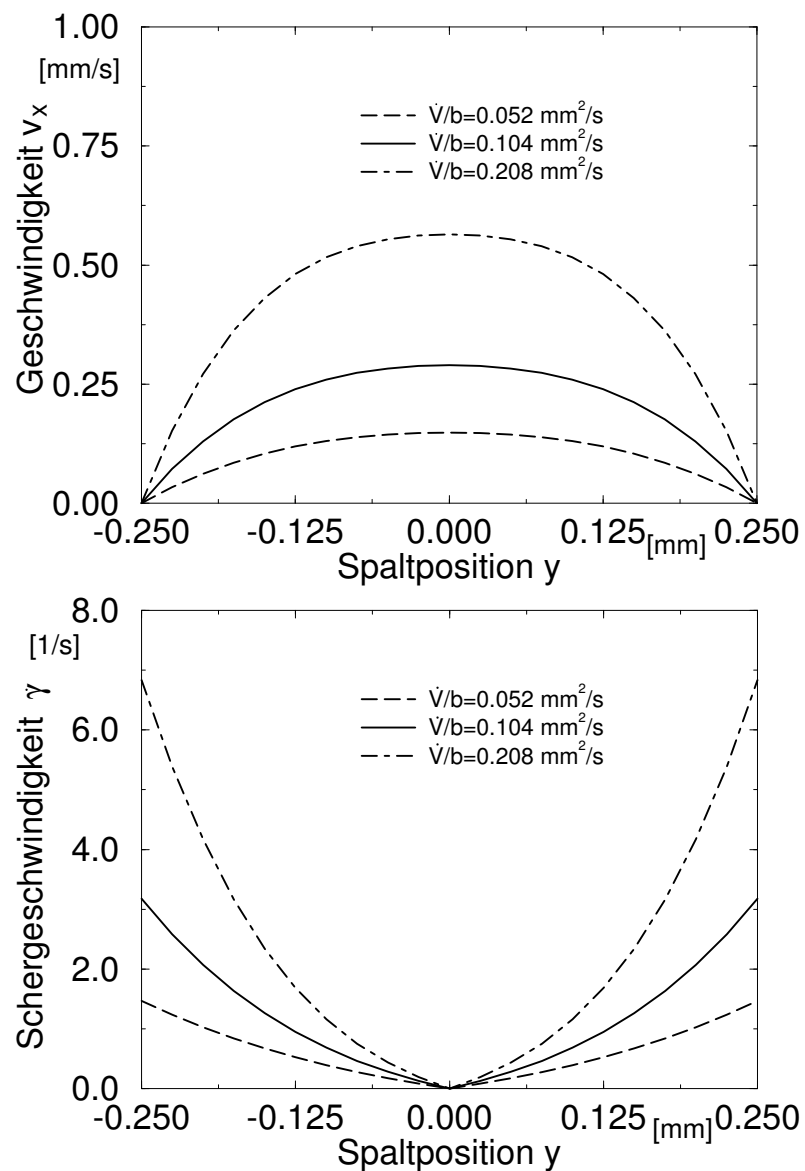


Bild 4.16: Geschwindigkeits- und Schergeschwindigkeitsverteilungen über der Spalthöhe eines Flachsitzkanals

In Bild 4.16 sind Geschwindigkeits und Schergeschwindigkeitsverteilungen in der ausgebildeten Druckströmung im Flachschieflitzkanal für unterschiedliche Volumenströme eines strukturviskosen Fluids dargestellt.

Die Berechnungen wurden für das in den Versuchen eingesetzte Gemisch mit dem Massenkonzentrationsverhältnis $\xi_{PE} : \xi_{PS} = 9 : 1$ und mit den Carreau-Parametern $A_0 = 12600 \text{ Pa s}$, $A_1 = 1.227 \text{ s}$ und $A_2 = 0.6335$ durchgeführt. Die Geschwindigkeitsprofile über dem Düsenpalt zeigen die für Fluide mit strukturviskosem Fließverhalten typische Abweichung vom parabelförmigen Geschwindigkeitsprofil Newtonscher Flüssigkeiten. Entsprechend weisen die Schergeschwindigkeitsverteilungen eine mit dem Volumenstrom zunehmende Abweichung vom linearen Verlauf auf. Den Versuchsbedingungen der morphologischen Analyse entspricht ein auf die Spaltbreite bezogener Volumenstrom von $\dot{V}/b = 0.104 \text{ mm}^2/\text{s}$.

Die Analyse erfolgt für den Flachschieflitzkanal unter Vernachlässigung der konischen Einlaufstrecke. Damit bleiben die Tropfendeformationen aufgrund von Dehngeschwindigkeiten, die vor allem im Mittenbereich des Eintrittskegels auftreten, unberücksichtigt. Aus diesem Grund wird der Bereich nahe der Spaltmitte aus der Analyse ausgeblendet.

Die Analyse erfolgt entlang ausgewählter Stromlinien, deren Spaltposition durch y , den Abstand von der Spaltmittelachse, angegeben wird.

y [μm]	50	100	150	200
$ \dot{\gamma} $ [$1/\text{s}$]	0.28	0.68	1.26	2.07
η_{DP} [Pa s]	1685	1660	1626	1581
η_{CP} [Pa s]	12733	10065	7966	6356
η_m [Pa s]	10450	8579	6970	5657
v_x [mm/s]	0.28	0.26	0.21	0.13

Tabelle 4.1: Ergebnisse der Strömungsberechnung

In Tab. 4.1 sind einige Größen aus der Strömungsberechnung an diesen Spaltpositionen aufgelistet, die der morphologischen Analyse zugrundegelegt werden. Es ist zu erwarten, daß die ausgeprägten Unterschiede der Zustandsgrößen v_x und $|\dot{\gamma}|$ zwischen der Spaltmitte und den Flachschlitzkanalwandungen in der Morphologieausbildung abgebildet werden. So steigt die Gesamtscherdeformation, ein Maß für die Deformation passiver Fluidelemente, zur Kanalwand hin stark an, da nicht nur $|\dot{\gamma}|$ anwächst, sondern wandnahe Partikel zudem längere Verweilzeiten im Strömungskanal aufweisen.

Die Analyse erfolgt für vier unterschiedlichen Spaltpositionen. Die erste Spalte der Tabelle 4.1 listet die Werte nahe der Spaltmitte bei $y = 50 \mu\text{m}$ auf während in der letzten die Berechnungsgrößen nahe der Flachschlitzkanalwandung bei $y = 200 \mu\text{m}$ aufgeführt sind.

4.5.2 Bestimmung der kritischen Tropfenradien

In Bild 4.17 sind die kritischen Radien R_{crit} und R_{crit}^{coal} über der Schergeschwindigkeit aufgetragen. Aus den zusätzlich aufgetrage-

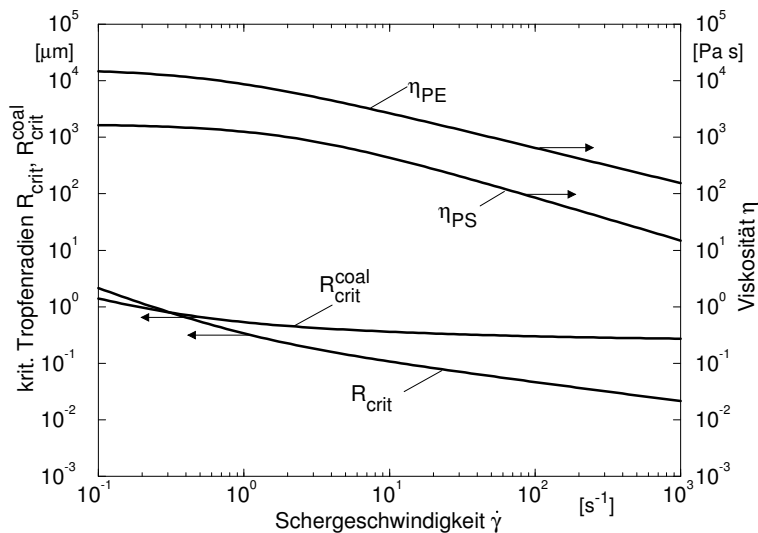


Bild 4.17: Kritische Tropfenradien bei unterschiedlichen Schergeschwindigkeiten

nen Reinstoffviskositäten ist ersichtlich, daß das Viskositätsverhältnis η_{PS}/η_{PE} mit Polystyrol als disperser Phase immer kleiner als eins ist.

Aufgrund des strukturviskosen Fließverhaltens des Matrixmaterials resultiert ein geringerer Abfall der mit Gl. A.4 bestimmten kritischen Tropfengröße R_{crit} mit zunehmenden Schergeschwindigkeitsbeträgen als unter Zugrundelegung Newtonschen Stoffverhaltens. Allerdings ist dadurch der in den Experimenten bei unterschiedlichen Schergeschwindigkeiten ermittelte, annähernd konstante mittlere Tropfenradius nicht zu erklären. Daraus folgt, daß die Koaleszenz bei keiner der untersuchten Mischungen vernachlässigbar ist. Zur Ermittlung von R_{crit}^{coal} gemäß Gl. 2.18 wird für dieses Gemisch kommerzieller Polymere eine kritische Filmdicke von $h_{crit} = 250 \text{ nm}$ angenommen. Die in Bild 4.17 dargestellte Kurve zeigt eine geringe Abhängigkeit der kritischen Tropfengröße von den Schergeschwindigkeitsbeträgen, was mit den experimentellen Ergebnissen im Einklang steht. Zudem liegen die berechneten Tropfengrößen in der Größenordnung der anhand von Messungen bestimmten mittleren Tropfendurchmesser.

Schon bei sehr kleinen Schergeschwindigkeitsbeträgen gilt $R_{crit}^{coal} > R_{crit}$. Unter dieser Bedingung ist der mittlere Tropfenradius R_{gg} durch die Kinetik der Tropfenzerfalls- und -koaleszenzprozesse festgelegt. Auch durch Gl. 2.20, einer empirischen Korrelation zur Bestimmung von R_{gg} , wird der geringe Einfluß der Schergeschwindigkeit auf die Tropfengröße im dynamischen Gleichgewicht abgebildet.

4.5.3 Analyse der Fluidfadenbildung

Mittels Gl. 3.2 kann die Fluidfadendeformation aus den in Tab. 4.1 zusammengestellten Größen abgebildet werden. In Tab. 4.2 sind die berechneten Fluidfadendurchmesser $2a$ aufgelistet, wobei der anfängliche Tropfenradius durch Anpassung an die experimentell

ermittelten Fluidfadendurchmesser zu $R_0 = 5 \mu\text{m}$ bestimmt wurde.

x [mm]	$2 a$ ($y = 50 \mu\text{m}$)	$2 a$ ($y = 100 \mu\text{m}$)	$2 a$ ($y = 150 \mu\text{m}$)
17 (exp.)	1.96	1.43	0.89
17 (ber.)	1.98	1.22	0.82
27 (exp.)	(1.4)	1.07	0.65
27 (ber.)	1.55	0.98	0.65

Tabelle 4.2: Experimentell ermittelte und berechnete Fluidfadendurchmesser (Angaben in μm)

Die experimentellen Werte sind aus einer arithmetischen Mittelung der Fluidfäden einzelner Probenabschnitte bestimmt. Die betrachteten Bildausschnitte der Höhe $\Delta y = 50 \mu\text{m}$ sind den jeweiligen Stromlinien durch den mittleren Abstand zur Spaltmitte hin zugeordnet. Beim Spaltabschnitt bei $x = 27 \text{ mm}$ treten erst ab einer Spaltposition von $y = 50 \mu\text{m}$ fadenförmige Tropfen auf. Da zur experimentellen Bestimmung der mittleren Durchmesser lediglich fadenförmige Tropfen herangezogen werden, fällt damit der für diesen Spaltabschnitt ermittelte Wert etwas zu klein aus.

In Bild 4.18 sind die für die Deformationsanalyse berechneten, dimensionslosen Fluidfadendeformationen a/a_0 an unterschiedlichen Spaltpositionen über der Spaltlänge aufgetragen. Aus den Kurven ist ersichtlich, daß innerhalb des ersten Flachschnittkanalabschnitts die größte Radius- bzw. Durchmesserreduktion erfolgt.

	($y = 50 \mu\text{m}$)	($y = 100 \mu\text{m}$)	($y = 150 \mu\text{m}$)	($y = 200 \mu\text{m}$)
Ca_r	5.875	12	18.46	25.1
Ca^*	0.0475	0.09	0.133	0.174

Tabelle 4.3: Dimensionslose Kenngrößen zur Klassifikation des Tropfenzerfalls

Zur Quantifizierung der Abweichung der Fadenquerschnitte von der Kreisform wird Gl. 4.2 herangezogen. Weil das Polyethylen kein Newtonsches Fließverhalten aufweist, wird die Viskosität $\eta_{CP}(\dot{\gamma})$ ein-

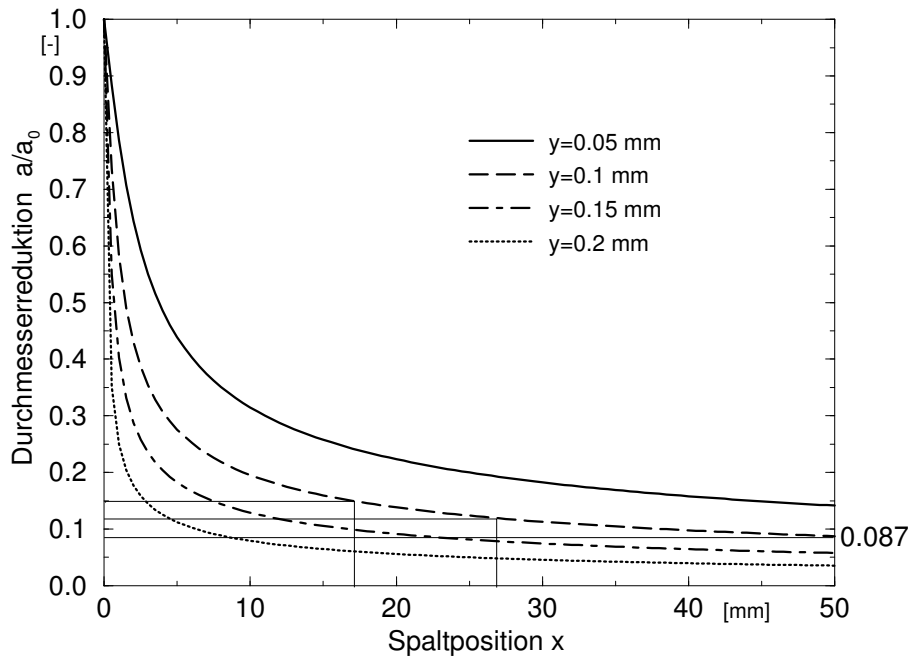


Bild 4.18: Durchmesserreduktion von Fluidfäden an unterschiedlichen Spaltpositionen im Flachsitzkanal

gesetzt. In Tab. 4.3 sind die für den Tropfenradius am Spalteintritt ermittelten Kenngrößen dargestellt.

Gemäß den Werten der reduzierten Kapillanzahl Ca_r werden die in den Flachsitzkanal eintretenden Tropfen an allen gewählten Spaltpositionen zum Fluidfaden deformiert. In Wandnähe ist mit kleineren Abweichungen vom kreisrunden Fadenquerschnitt zu rechnen.

Aus den REM-Aufnahmen (vgl. Bild 4.5) ist ersichtlich, daß die durch die Kennzahlen Ca_r und Ca^* angezeigte Fadenbildung in den Experimenten tatsächlich auftritt.

Die Schubspannung $\tau_a = \sigma_{12} \cdot q_{12}$, die der Grenzflächenspannung zuzuordnen ist, kann auf der Grundlage von Gl. 2.28 abgeschätzt werden. In Bild 4.19 ist τ_a über der Spaltlänge aufgetragen. Die berechneten Schubspannungsverläufe für die einzelnen Spaltpositionen weisen einen Peak mit einem Wert von $\hat{\tau}_a \approx 94 \text{ Pa}$ auf.

Mit der Tropfendehformation nimmt die Anisotropie zu, womit ein An-

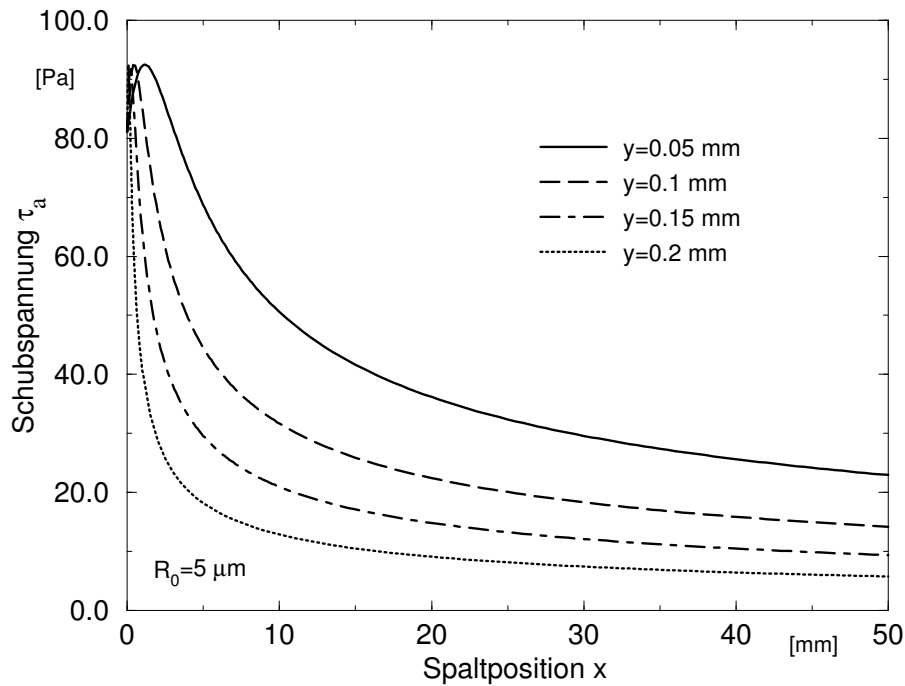


Bild 4.19: Zusätzliche Schubspannung aufgrund der Grenzflächen-
spannung

stieg der Schubspannung verknüpft ist. Mit der Rotation des deformierten Tropfens in Strömungsrichtung wird der Betrag von q_{12} reduziert, was zu dem für die Fluidfadendeformation charakteristischen Verlauf von τ_a über der Zeit führt.

Im Vergleich zu der aus der inneren Reibung resultierenden Schubspannung τ ist selbst der Maximalwert des dargestellten Schubspannungsverlaufs $\tau_a(x)$ sehr klein. So nimmt das Verhältnis der beiden Schubspannungsanteile an der Spaltposition $y = 50 \mu\text{m}$ mit den dort schon sehr kleinen Schubspannungen einen Wert von $|\hat{\tau}_a/\tau| = 0.03$ an. Erst bei höheren Volumenkonzentrationen der dispersen Phase und vor allem bei kleineren Tropfen macht sich der Einfluß der Grenzfläche auf das Fließverhalten bemerkbar.

4.5.4 Analyse der Morphologieausbildung im Bereich des dynamischen Gleichgewichts

Nur im Bereich der Spaltmitte treten Fadenzerfallsvorgänge auf. Dort werden die Fadenstrukturen durch mehr oder weniger stark deformierte Tropfen abgelöst. Am Eintritt des konischen Spaltbereichs, der den Übergang zum Spalt mit der Höhe $h = 0.25 \text{ mm}$ markiert, liegt nahe der Spaltmitte schließlich eine Morphologie nahezu kugelförmiger Tropfen vor. Aus diesen Beobachtungen ist zu schließen, daß einige der beim Zerfall entstandenen Tropfen groß genug sind, um erneut zu zerfallen. An das Gebiet mit vorwiegend fadenförmigen Tropfen schließt sich also ein Bereich an, in dem Tropfen zu kleineren Tropfen zerfallen und Koaleszenzeffekte sicher nicht vernachlässigbar sind.

Bei den für die Analyse gewählten Spaltpositionen liegen die Viskositätsverhältnisse im Bereich $0.13 \leq \lambda_1 \leq 0.25$. In Anbetracht der unterschiedlichen Viskositäten der beiden Phasen sind also nur geringe Auswirkungen auf das Deformationsverhalten der Tropfen zu erwarten. Gemäß der gewählten Zuordnung ist in diesem Fall die morphologische Analyse mit dem Modell von Lee und Park durchzuführen.

Zur Festlegung der Anfangsbedingungen wird der Übergangsbereich zwischen faden- und tropfenförmigen Grenzflächenstrukturen herangezogen. In der in Bild 4.6 wiedergegebenen REM-Aufnahme der Serie 2 ist sowohl ein Bereich gering deformierter als auch ein Gebiet fadenförmiger Tropfen auszumachen. Die Grenze zwischen den unterschiedlich ausgeprägten morphologischen Strukturen liegt bei der Spalthöhe $y \approx 50 \mu\text{m}$. In den REM-Aufnahmen der Serie 3 hingegen ist in der Probenmitte ein ungefähr $190 \mu\text{m}$ breiter Streifen ohne Fadenstrukturen auszumachen. Die Fadendurchmesser an den Grenzen der beiden unterschiedlichen Phasenstrukturen markieren jeweils den kritischen Fadendurchmesser, der den dort herrschenden Schergeschwindigkeiten zuzuordnen ist. Damit

kann überprüft werden, ob auch bei dem vorliegenden Gemisch der kritische Fadendurchmesser umgekehrt proportional zur Schergeschwindigkeit ist. Hierzu wird das Verhältnis der kritischen Fadendurchmesser unter Zugrundelegung dieser Abhängigkeit ermittelt und mit den sich aus den Fadendeformationen ergebenden Werten verglichen. Aus den Schergeschwindigkeiten bei $y = 50 \mu m$ und $y = 100 \mu m$ resultiert das Verhältnis der kritischen Fadenradien an diesen beiden Spaltpositionen:

$$\frac{\dot{\gamma}(y = 50)}{\dot{\gamma}(y = 100)} = \frac{a_{crit}(y = 100)}{a_{crit}(y = 50)} = 0.411 \quad . \quad (4.10)$$

Aus Bild 4.18 kann bei der axialen Spaltposition $x = 27 mm$, was ungefähr der Probenposition der Serie 3 entspricht, für $y = 50 \mu m$ eine Durchmesserreduktion von 0.19 abgelesen werden. Andererseits erfährt ein Tropfen, der an der Spaltposition $y = 100 \mu m$ in den Scherspalt gelangt, zwischen Spaltein- und austritt, d. h. über die Spaltlänge $L = 50 mm$, eine Deformation von 0.087. Es resultiert damit ein Fadendurchmesserverhältnis von

$$\frac{a(y = 100 \mu m, L = 50 mm)}{a(y = 50 \mu m, x = 27 mm)} = 0.458 \quad . \quad (4.11)$$

Dieses sich aus den Fadendeformationen ergebende Verhältnis ist geringfügig größer als das der kritischen Fadenradien. Dies bedeutet aber, daß an der Spaltposition $y = 100 \mu m$ der kritische Fadenradius geringfügig überschritten wird.

Gemäß der zugrundegelegten Korrelation beginnt also der Bereich mit bis zum Ende des ersten Spaltabschnitts ($L = 50 mm$) stabilen Fäden ab der Spaltposition $y \approx 100 \mu m$. Dies entspricht in vollem Umfang den experimentellen Ergebnissen.

Damit ist die Analyse der Morphologie nahe dem Gleichgewichtszustand auf die Spaltposition $y \leq 50 \mu m$ zu beschränken. Dafür sind die drei empirischen Parameter μ_1 , μ_2 und μ_3 festzulegen, wobei, wie oben dargelegt, $\mu_3 = 1 - \Phi_{DP}$ gesetzt werden kann.

Die spezifische Oberfläche im Gleichgewicht kann aus den in den

Versuchen mit dem Schertorpedo für das Gemisch Nr. 1 ermittelten Tropfengrößenverteilungen mit Gl. 4.4 zu $Q_{gg} = 461.5 \text{ mm}^{-1}$ bestimmt werden. Diesem Wert entspricht ein mittlerer Tropfendurchmesser von $1.3 \mu\text{m}$, der damit etwas größer als der aus der volumetrischen Mittelung hervorgegangene ausfällt.

In Tab. 4.4 sind die μ_2 -Werte bei Vorgabe unterschiedlicher Wer-

μ_1	0.5	1	2	3	4
μ_2	0.28	0.124	0.047	0.025	0.015
D	0.84	0.7	0.5	0.4	0.3

Tabelle 4.4: Unterschiedliche Parameter für die Gemischanalyse

te für μ_1 neben den damit ermittelten Tropfendehformationen D im Gleichgewicht für die vertikale Spaltposition $y = 50 \mu\text{m}$ angegeben. Die kleinen Tropfendehformationen aus den REM-Aufnahmen ergeben sich bei größeren μ_1 -Werten.

In den Bildern 4.20 und 4.21 sind Berechnungsergebnisse in Abhängigkeit von den in Tab. 4.4 aufgelisteten Vorgaben für μ_1 dargestellt. Die spezifische Grenzfläche Q_0 wird mit Gl. 4.3 aus den Durchmessern der Fluidfäden beim Fadenzerfall ermittelt. Je größer μ_1 wird, desto flacher verläuft der Anstieg der spezifischen Grenzfläche. Lediglich beim kleinsten μ_1 -Wert wird der anfänglich steile Anstieg der Kurve durch einen zweiten Abschnitt mit geringerer Steigung abgelöst. Das Abflachen der Kurve ist auf den mit der spezifischen Grenzfläche zunehmenden Einfluß von Koaleszenzeffekten zurückzuführen.

Bei größeren μ_1 -Werten wird die Tropfendehformation im ersten Deformationsabschnitt gehemmt, wodurch das bei der affinen Tropfendehformation beobachtete Überschwingen der Schubspannung verschwindet.

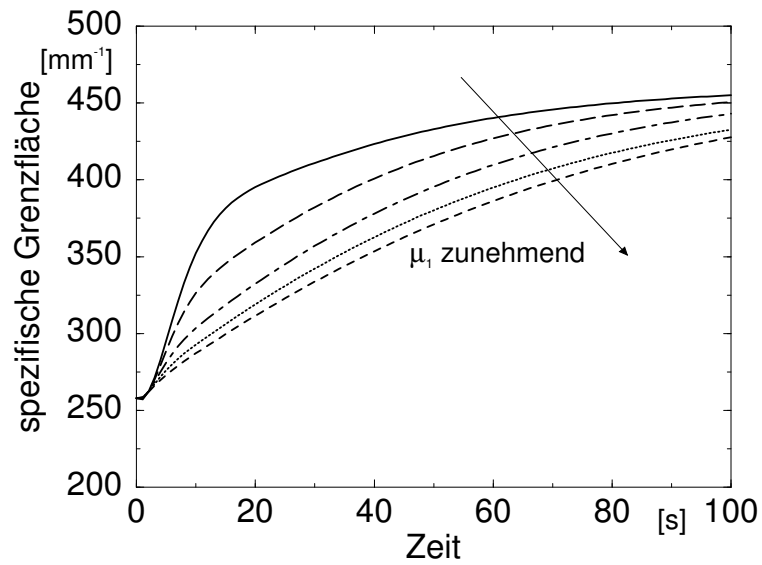


Bild 4.20: Verlauf der spezifischen Grenzfläche als Funktion der Zeit im Bereich des morphologischen Gleichgewichts

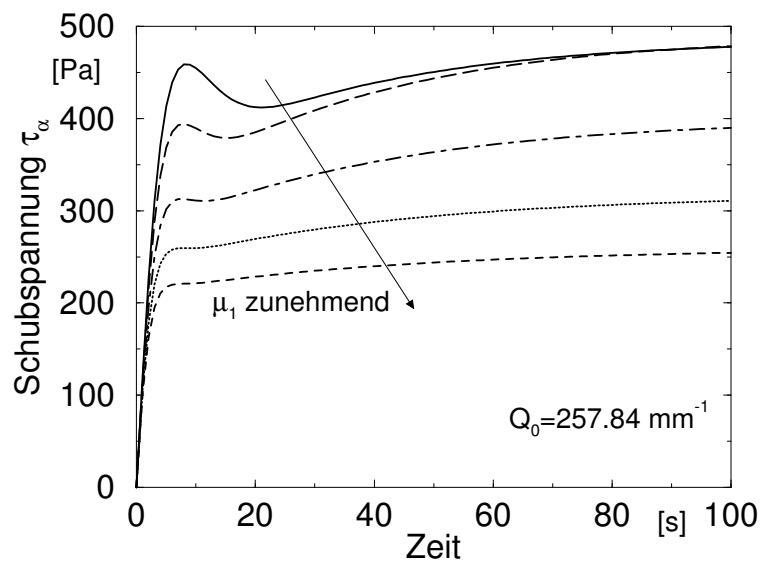


Bild 4.21: Schubspannungsverlauf als Funktion der Zeit im Bereich des morphologischen Gleichgewichts

Kapitel 5

Praktische Umsetzung: Morphologieausbildung bei Compoundierprozessen mittels Zweischneckenextruder

5.1 Entwicklung eines Ersatzmodells für den Bereich vollgefüllter Schneckenkanäle

5.1.1 Ermittlung der Einflußfaktoren und Eingrenzung

Im Bereich vollgefüllter Schnecken eines gleichsinnig drehenden, dichtkämmenden Zweischneckenextruders liegt eine dreidimensionale, instationäre Strömung vor, deren Berechnung mit erheblichem Aufwand verbunden ist. Zur Abbildung der in dieser Strömungsform bei der Morphologieausbildung ablaufenden Prozesse müssen zusätzlich entsprechend komplexe Modelle herangezogen werden. Bei lokaler Betrachtungsweise ist zusätzlich die Kopplung von Morphologie und Rheologie zu berücksichtigen.

Demgegenüber werden mit Modellen, die das Strömungsfeld in den

Schneckenelementen des Extruders mittels globaler Größen abbilden, zufriedenstellende Übereinstimmungen zwischen Berechnung und Experiment erzielt. Die stark vereinfachte Abbildung des Strömungsfelds schließt allerdings eine Berücksichtigung lokal unterschiedlicher Strömungsformen und deren Rückwirkungen auf die Morphologie vollständig aus.

In dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Ersatzmodell mit dem in Bild 5.1 schematisch dargestellten Aufbau wird der Strömungskanal in einzelne Zonen unterteilt. Innerhalb der bei einer sol-

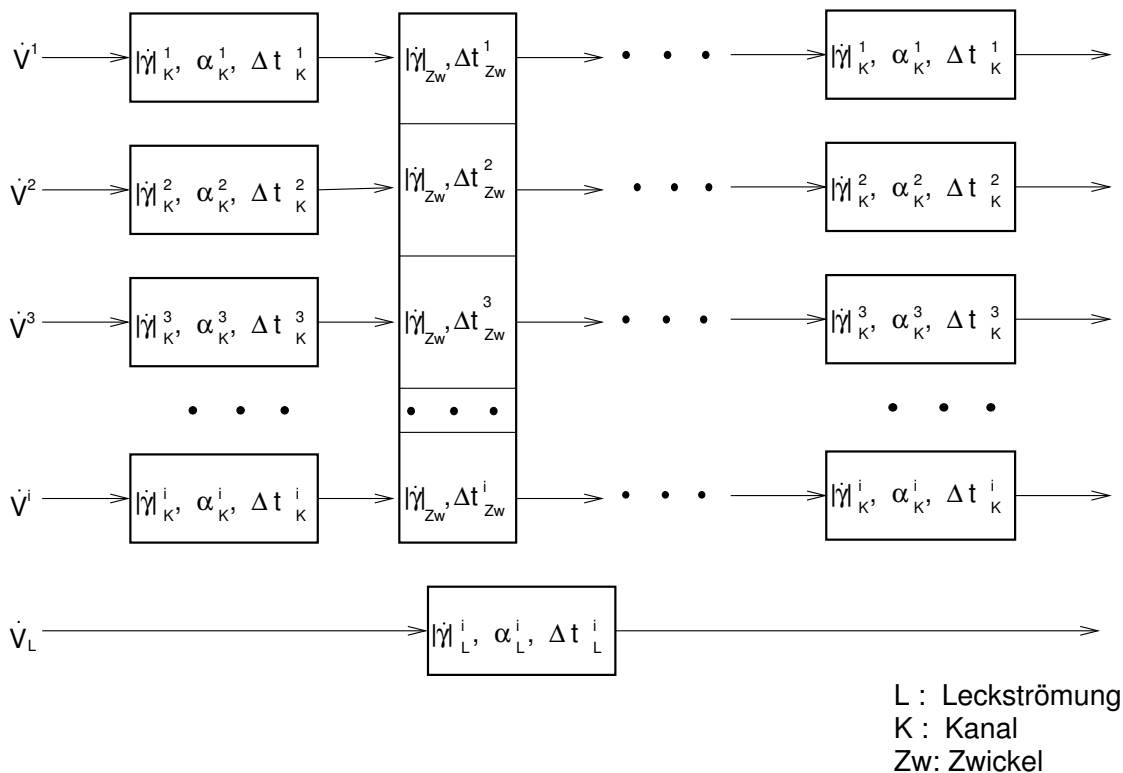


Bild 5.1: Zonenmodell für den Bereich vollgefüllter Schneckenkanäle

chen Unterteilung gebildeten Bereiche wird das Strömungsfeld mit dem Betrag des Deformationsgeschwindigkeitstensors $|\dot{\gamma}|$ und durch den Parameter α (vgl. Anhang A.1) charakterisiert. Mittels dieser beiden Größen kann das komplexe Strömungsfeld, das mit dem von P. Häring entwickelten Modell zur Lösung des isothermen

Strömungsproblems für den Bereich vollgefüllter Schneckenkanäle im Extruder berechnet wird, auf einfache Strömungsformen reduziert werden.

5.1.2 Entwicklung eines Zonenmodells

Strömungsvorgänge im Kanalbereich des Zweisechneckenextruders

Die Einteilung des in Bild 5.2 skizzierten Schneckenkanalbereichs in einzelne Zonen erfolgt auf der Grundlage der Strömungsvorgänge im Extruder. In den Schneckenkanälen des Zwei-

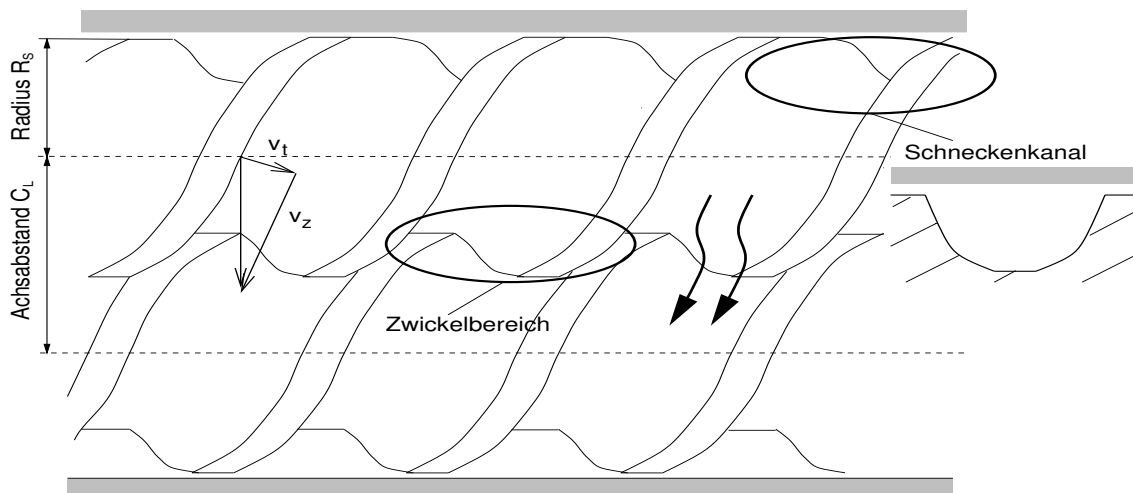


Bild 5.2: Schneckenkanalbereich im Zweisechneckenextruder

schneckenextruders wird das Material aufgrund der Relativbewegung von Schnecke und Zylinder nach Art einer Schlepplströmungspumpe gefördert. Wird am Extruderaustritt gedrosselt, so steigt der Druck zur Schneckenspitze hin an, wodurch in den Schneckenkanälen eine der Förderrichtung entgegengesetzte Druckströmung induziert wird. Durch diese Überlagerung von Schleppl- und Druckströmung bewegen sich Fluidpartikel kanalabwärts und gelangen nach Überschreiten eines, durch die Schneckengeometrie und die

Schneckenanordnung festgelegten Winkels, über den Eingriffsbereich der beiden Schnecken, den sog. Zwickelbereich, in den Kanal der benachbarten Schnecke. Aufgrund der in den Schneckenkanälen induzierten Querrotationsströmung bewegen sich die Fluidpartikel längs wendelförmiger Bahnen entlang der Schneckenkanäle.

In den Zwickelbereich eintretende Fluidpartikel werden vor allem dann tief in den Eingriffsbereich gezogen, wenn sie sich nahe dem Schneckenrund befinden. Wegen der größeren Nähe zu den rotierenden Schnecken durchlaufen diese Partikel den Eingriffsbereich jedoch auch schneller als nahe am Schneckenzyylinder positionierte. Aufgrund der Zwickelgeometrie und der laminaren Strömungsform ist zudem davon auszugehen, daß im Zwickel nur eine geringe Quervermischung erfolgt. So kann angenommen werden, daß sich nahe der Kanalmitte befindende, in den Zwickel gelangende Fluidpartikel beim Eintritt in den darauffolgenden Schneckenkanal weiterhin im inneren Kanalbereich verbleiben.

Durch das Radialspiel zwischen Schnecke und Zylinder entsteht die Schleppleckströmung entlang der Zylinderwände. Aufgrund der kleinen Spaltweiten ist der Beitrag dieser Strömung am Gesamtvolumenstrom sehr klein.

Definition der Zonengrenzen und Bestimmung von gemittelten Größen innerhalb der Zonen

Im Schneckenkanal werden die Zonengrenzen so gewählt, daß zwischen benachbarten Zonen kein konvektiver Stoffaustausch erfolgt. Dazu wird in der Ebene normal zur Kanalrichtung eine Integration des Vektorfelds der Strömungsgeschwindigkeit durchgeführt. In Bild 5.3 sind die zur Bildung der Zonengrenzen berechneten Stromlinien (t) dargestellt. Die Leckströmung wird in einer gesonderten Zone erfaßt, wobei angenommen wird, daß in dieser Zone

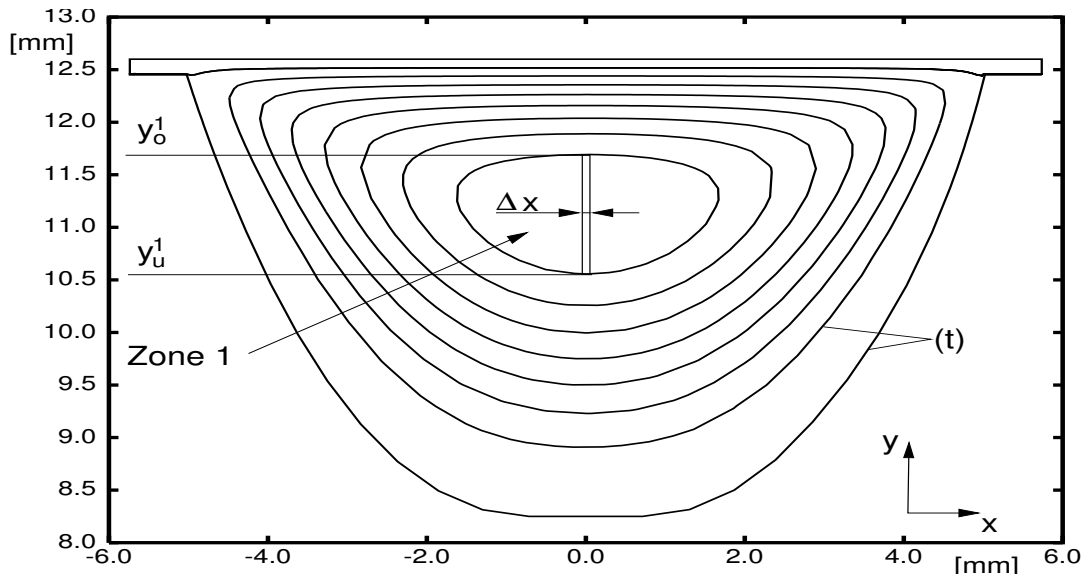


Bild 5.3: Verlauf der Zonengrenzen im Schneckenkanal

lokalisierte Fluidpartikel nicht in den Zwickel gezogen werden.

Schmelze, die im Kanal gefördert wird, gelangt über den Eingriffsbereich in den Kanal der benachbarten Schnecke. Mit der Annahme, daß die Quervermischung im Zwickel vernachlässigbar ist, ergibt sich damit die in Bild 5.1 dargestellte Anordnung parallel und aufeinanderfolgend durchströmter Zonen.

Für die sich anschließende morphologische Untersuchung ist der Betrag des Deformationsgeschwindigkeitstensors $|\dot{\gamma}|$ für die einzelnen Zonen über dem Integrationsgebiet zu mitteln. Für den Eingriffsbereich wird das von P. Häring entwickelte Ersatzmodell des Zwickels zur Bestimmung von $|\dot{\gamma}|_{Zw}$ eingesetzt. Im Schneckenkanal müssen die entlang von Stromlinien verlaufenden Zonengrenzen berücksichtigt werden. Das zur Flächenmittelung ausgewertete Linienintegral nimmt für die Zone 1 folgende Form an:

$$|\dot{\gamma}|_K^1 = \sum_{j=1}^n \left(\frac{1}{y_o^1(x_j) - y_u^1(x_j)} \int_{y_u^1(x_j)}^{y_o^1(x_j)} |\dot{\gamma}(y, x_j)| dy \right), \quad x_{j+1} = x_j + \Delta x. \quad (5.1)$$

Die mittlere Geschwindigkeit v_z^i , α_K^i und die Querschnittsflächen der einzelnen Sektoren A_K^i werden durch Auswertung entsprechender

Integrale ermittelt. Die Diskretisierung in x -Richtung wird schrittweise verfeinert, bis für den aus A_K^i und v_z^i ermittelten Volumenstrom durch den Schneckenkanal in zwei aufeinanderfolgenden Iterationsschritten gilt:

$$\frac{\dot{V}_z(k+1) - \dot{V}_z(k)}{\dot{V}_z(k)} < 0.001 \quad . \quad (5.2)$$

Ermittlung der Verweilzeiten und Volumenströme im Zonenmodell

Bei vollgefüllten Schneckenkanälen kann die mittlere Verweilzeit Δt_v aus dem freiem Volumen und dem Volumenstrom ermittelt werden. Neben dieser Größe stellt das Verweilzeitspektrum, das durch die Unterteilung des Strömungskanals in einzelne Zonen approximiert werden kann, eine wichtige Größe zur Klassifikation des Mischungsverhaltens des Extruders dar.

Bei der Bestimmung der mittleren Verweilzeit des Fluids im Eingriffsbereich Δt_{Zw} aus dem Strömungsfeld im Schneckenkanal und Δt_v werden folgende Annahmen getroffen:

- Zwischen dem Volumenstrom der an den Eingriffsbereich angrenzenden Kanalzone \dot{V}^i und der mittleren Verweilzeit Δt_{Zw}^i wird eine umgekehrte Proportionalität angenommen.
- Für das den Eingriffsbereich passierende Teilchen mit dem Eintrittspunkt $\vec{P}(x,y)$ und dem Austrittspunkt $\vec{Q}(x,y)$ gelte $\vec{Q}(x,y) = \vec{P}(x,y)$.

Zur Verweilzeitanalyse wird die Bahn materieller Fluidpartikel bestimmt, die sich durch den Schneckenkanalbereich des Extruders bewegen. In Bild 5.4 sind die Startpunkte dieser Bahnlinien in Form rautenförmiger Symbole auf dem Kanalquerschnitt am Kanalbereichseintritt zur Anfangszeit dargestellt. Diese sind entlang von

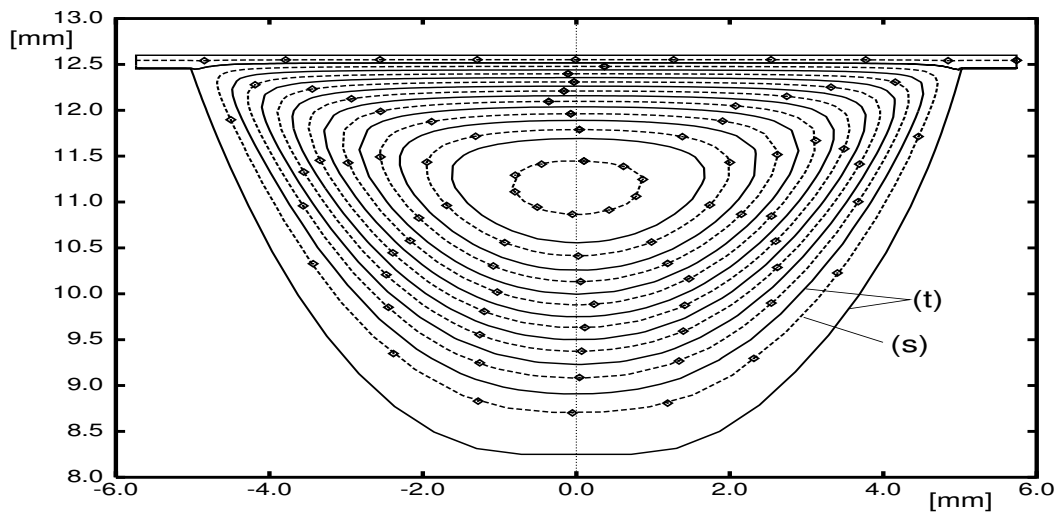


Bild 5.4: Stromlinienverläufe im Extruderquerschnitt

Stromlinien (s) positioniert, die innerhalb der Kanalzonen verlaufen. Lokal unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeiten in den einzelnen Sektoren werden mittels mehrerer Bahnlinien erfaßt. Die Anzahl der Sektoren wird dabei so gewählt, daß die aus der Flächenmittelung bestimmten mittleren Axialgeschwindigkeiten und die aus der Stromlinienintegration ermittelten nur minimal voneinander abweichen.

Die mittlere Axialgeschwindigkeit aller Fluidpartikel \bar{v}_a , die sich durch den Schneckenkanalbereich bewegen, kann aus dem Volumenstrom und der freien Querschnittsfläche senkrecht zur Extruderachse bestimmt werden:

$$\bar{v}_a = \frac{\dot{V}}{\bar{A}_{Zw} + m \cdot A_K} \quad (5.3)$$

Gemäß dem zugrundegelegten Berechnungsmodell setzt sich die Gesamtquerschnittsfläche des Extruders mit der theoretischen Gangzahl m in einem Schnitt senkrecht zur Extruderachse aus der mittleren Querschnittsfläche des Zwickelbereichs \bar{A}_{Zw} und der Kanalquerschnittsfläche A_K zusammen.

Fluidpartikel, die sich entlang des Extruderkanalabschnitts der Länge L_{Zyl} bewegen, durchströmen dabei abwechselnd Schnecken-

kanäle und den Zwickel. Im Schneckenkanal liegt das Geschwindigkeitsfeld aus der Strömungsberechnung vor. Die axiale Bewegung eines Fluidpartikels, das in den Eingriffsbereich der beiden Schnecken gelangt, wird aus der Axialbewegung des Zwickels $v_a = n_s \cdot t$ und der mittleren Verweilzeit im Zwickel Δt_{Zw} bestimmt. Zur Ermittlung von Δt_{Zw} wird die folgende Bestimmungsgleichung zugrundegelegt:

$$\bar{v}_a = \sum_i \frac{A_K^i}{A_K} \cdot \bar{v}_a^i(\Delta t_{Zw}) \quad . \quad (5.4)$$

Aus den mittleren Axialgeschwindigkeiten \bar{v}_a^i können die mittleren Verweilzeiten und die Volumenstromanteile der parallel durchströmten Zonen berechnet werden. Damit liegen alle für die morphologische Analyse auf Basis des Zonenmodells benötigten Größen vor.

5.2 Morphologische Analyse auf der Grundlage des Zonenmodells

5.2.1 Geometrische Daten und Betriebsparameter des Zweischneckenextruders

Es wird das Strömungsfeld entlang der Schneckenkanäle eines gleichsinnig drehenden, dichtkämmenden Zweischneckenextruders analysiert. Die Berechnungen erfolgen auf der Basis der geometrischen Daten eines Zweischneckenkneters ZSK 25 mit der Schneckengangsteigung $t = 24 \text{ mm}$.

Der Extruder wird mit einem Volumenstrom von $\dot{V} = 208 \text{ cm}^3/\text{min}$ beaufschlagt. Die Berechnungen erfolgen für zwei unterschiedliche Schneckendrehzahlen $n_s = 50 \text{ min}^{-1}$ und $n_s = 100 \text{ min}^{-1}$.

5.2.2 Materialien und ihre Charakterisierung

Die morphologische Analyse erfolgt auf der Basis der von G. K. Guenther und D. G. Baird [30] für ein Gemisch aus PET und PA 6,6 angegebenen Stoffdaten. Als Massenkonzentrationsverhältnis wird $\xi_{PET} : \xi_{PA} = 1 : 3$ angegeben und dem Volumenkonzentrationsverhältnis der gleiche Wert zugewiesen. Gemäß den Angaben liegt die Grenzflächenspannung zwischen den beiden Materialien bei $\sigma_{12} = 0.397 \text{ mN/m}$.

Werden die vorliegenden Polymere einem Scherfeld ausgesetzt, so bewirkt die daraus resultierende Ausrichtung der Makromoleküle eine Absenkung der Nullviskosität. Für die schermodifizierte Reinstoffkomponenten kann näherungsweise Newtonsches Fließverhalten mit $\eta_0 = 205 \text{ Pa s}$ angenommen werden, und das Viskositätsverhältnis λ_1 ist annähernd 1.

5.2.3 Morphologische Analyse im dynamischen Gleichgewicht

Morphologisches Modell

Das freie Volumen des Schneckenkanalbereichs wird primär durch die Schneckenkanäle außerhalb des Eingriffsbereichs gebildet. Damit befindet sich das Gemisch die meiste Zeit in den Schneckenkanälen und nur beim Übergang zwischen den benachbarten Schnecken wird der Zwickel durchströmt. Deshalb erscheint es gerechtfertigt, in die Analyse des quasistationären Zustands lediglich die Strömungsvorgänge in den Kanälen einzubeziehen.

Gemäß Kapitel 4.1 werden die kritischen Radien R_{crit} und R_{crit}^{coal} ermittelt. Durch Gleichsetzen der berechneten Kapillarzahlen mit der kritischen Kapillarzahl wird der Radius des größten stabilen Tropfens R_{crit} mittels Approximationskurven auf der Grundlage von Messergebnissen bestimmt (vgl. Anhang A.1). In der Berechnung

von R_{crit}^{coal} nach Gl. 2.18 wird für das Gemisch kommerzieller Polymere die kritische Filmdicke zu $h_{crit} = 260 \text{ nm}$ gesetzt. Bei einer Volumenkonzentration der dispersen Phase von 25 % ist mit Mehrfachstößen zu rechnen. Die berechneten Tropfenradien stellen damit eine untere Grenze für R_{crit}^{coal} dar (vgl. Kapitel 2).

Ergebnisse der morphologischen Analyse

Der Extruderkanal wird in einzelne Zonen unterteilt und die gemittelten Größen $|\dot{\gamma}_K^i$ und α_i für die sich anschließende morphologische Analyse bereitgestellt.

In Bild 5.5 sind die Zonengrenzen für die Schneckendrehzahl $n_s = 50 \text{ min}^{-1}$ dargestellt.

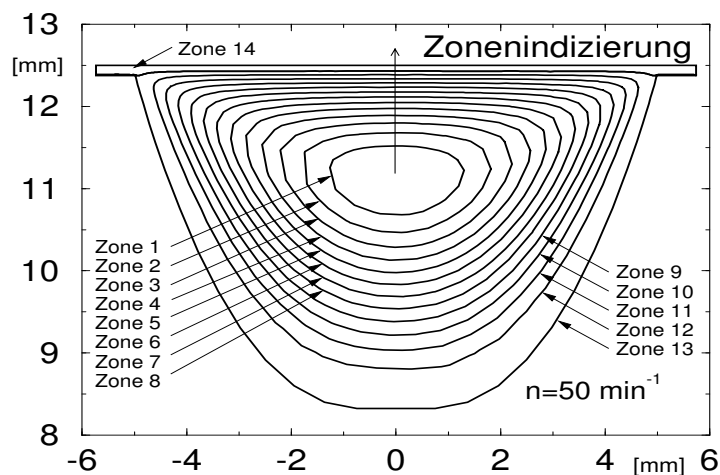


Bild 5.5: Zonengrenzen im Extruderkanal bei einer Schneckendrehzahl von $n_s = 50 \text{ min}^{-1}$

Den einzelnen Zonen (Z) sind die in den Balkendiagrammen (Bilder 5.6-5.7) dargestellten kritischen Radien zuzuordnen. Die kritischen Radien der mittleren Zone (Z1) sind anhand der Balken am linken Rand des jeweiligen Diagramms dargestellt. Bei der Bestimmung der kritischen Kapillarzahls wird die Strömungsform mittels α_K^i berücksichtigt. In den Berechnungen ergeben sich lediglich in den

äußeren Kanalzonen aufgrund von Dehndeformationen nahe der Schneckenflanken etwas kleinere Werte für Ca_{crit} .

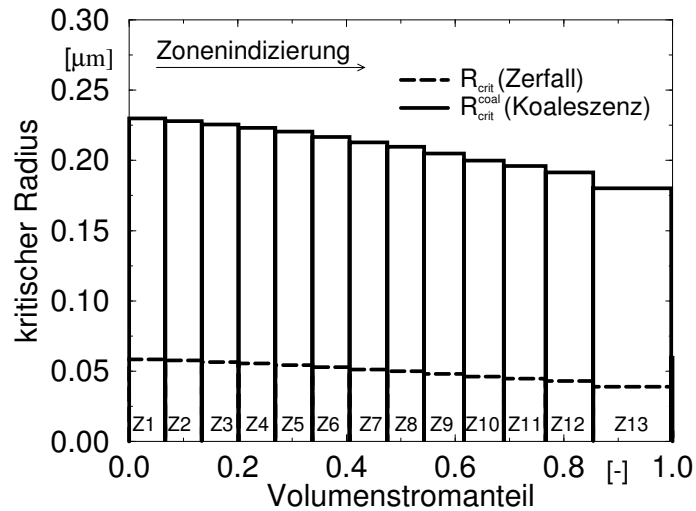


Bild 5.6: Kritische Tropfengrößen im Extruderkanal bei einer Schneckendrehzahl von $n_s = 50 \text{ min}^{-1}$

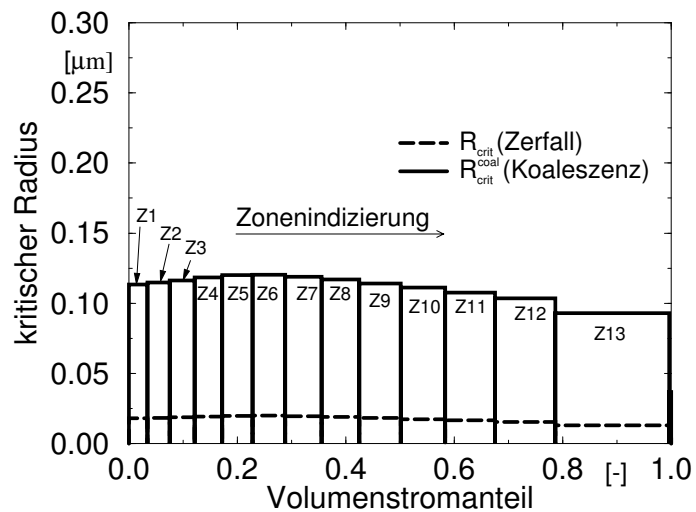


Bild 5.7: Kritische Tropfengrößen im Extruderkanal bei einer Schneckendrehzahl von $n_s = 100 \text{ min}^{-1}$

Der Anteil der Leckströmung am Gesamtvolumenstrom ist vernachlässigbar klein. Wird allerdings die Leckströmung nicht in einer

gesonderten Zone erfaßt, so führen die hohen Schergeschwindigkeitsbeträge nahe der Zylinderwand zu einer merklichen Anhebung des über den Kanal gemittelten Wertes für $|\dot{\gamma}|_K$. So ergibt sich bei $n_s = 50 \text{ min}^{-1}$ unter Einbezug der Leckströmung ein mittlerer Betrag des Deformationsgeschwindigkeitstensors im Schneckenkanal von $|\dot{\gamma}|_K = 23.4 \text{ 1/s}$ im Vergleich zu einem Mittelwert von $|\dot{\gamma}|_K = 19.6 \text{ 1/s}$ der Zonen 1 – 13.

Im vorliegenden Fall gilt $R_{crit}^{coal} > R_{crit}$. Damit wird der mittlere Tropfenradius durch die Kinetik der Tropfenzerfallsvorgänge und Koaleszenzprozesse festgelegt. Der Vergleich der mit Gl. 2.15 und Gl. 2.17 ermittelten Zeitintervalle deutet bei der Volumenkonzentration der dispersen Phase von $\Phi_{DP} = 0.25$ bei beiden Drehzahlen auf einen dominierenden Koaleszenzprozeß hin. Damit wird der mittlere Tropfenradius in beiden Betriebspunkten durch R_{crit}^{coal} festgelegt.

Neben den bei zunehmender Schneckendrehzahl abnehmenden kritischen Radien ändern sich auch die Volumenstromanteile der einzelnen Sektoren am Gesamtvolumenstrom unter Variation der Schneckenumfangsgeschwindigkeit. So führt der durch einen gesteigerten Druckgradienten verstärkt ausgebildete Druckströmungsanteil zu geringeren mittleren Axialgeschwindigkeiten der innenliegenden Sektoren. Dies wird jedoch dadurch zumindest teilweise kompensiert, daß schneller kanalabwärts strömende Fluidpartikel häufiger in den Eingriffsbereich gelangen, wo sie mit der Bewegung des Zwickelvolumens axial gefördert werden.

5.2.4 Analyse der Morphologieausbildung

Es wird die Morphologieausbildung entlang der vollgefüllten Schneckenkanäle über eine axiale Länge von $L_{\text{zyl}} = 50 \text{ mm}$ analysiert. In Bild 5.8 und Bild 5.9 ist die Gesamtscherdeformation in den einzelnen Zonen bei unterschiedlichen Drehzahlen dargestellt.

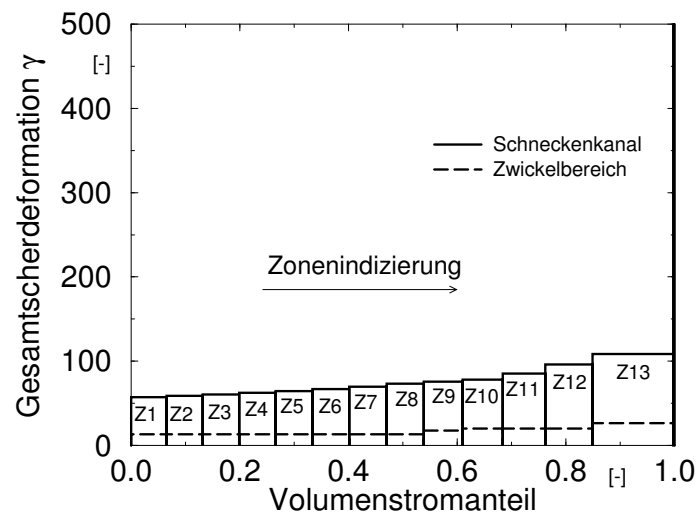


Bild 5.8: Gesamtscherdeformation im Extruderkanal bei einer Schneckendrehzahl von $n_s = 50 \text{ min}^{-1}$

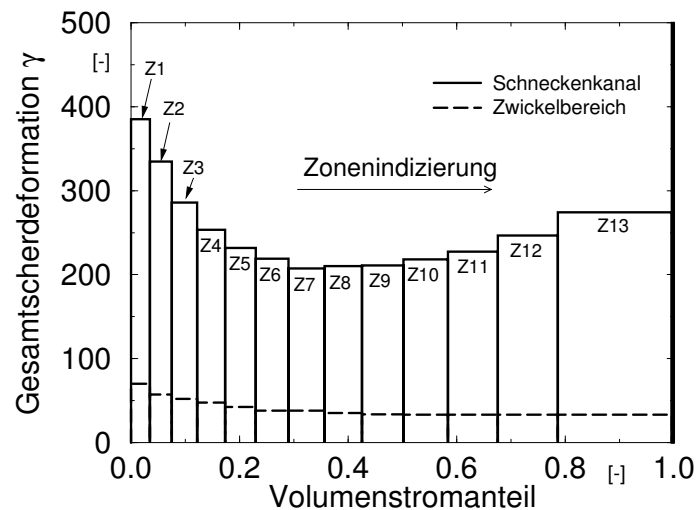


Bild 5.9: Gesamtscherdeformation im Extruderkanal bei einer Schneckendrehzahl von $n_s = 100 \text{ min}^{-1}$

Zur besseren Interpretation der Ergebnisse wird die berechnete Gesamtscherdeformation in zwei Anteile aufgespalten. Anhand der Blockdiagramme ist deutlich auszumachen, daß bei der niedrigen Drehzahl die Schlepplströmung die Deformationsvorgänge dominiert. Je näher sich der Sektor an der Schneckenwand befindet, desto höher ist die Verweilzeit. Nimmt jedoch der Einfluß der Druckströmung zu, so sind deren Auswirkungen auf die Fluidbewegungen vorwiegend im Kanalinnern zu erkennen.

In der einfachen Scherströmung ist die spezifische Grenzfläche proportional zur Scherung, sofern keine Relaxationsprozesse auftreten. Damit bildet die Gesamtscherdeformation in Verbindung mit der Ausgangstropfengröße die obere Grenze für die Morphologieverfeinerung, wohingegen die untere durch den Gleichgewichtszustand gebildet wird.

5.3 Detailuntersuchungen zur Tropfendeformation im Schneckenkanal

Es wird die Deformation eines anfänglich runden Tropfens analysiert, der sich durch den Schneckenkanal bewegt. Die Bahnlinienverfolgung setzt am Zwickelaustritt ein, beschreibt die Tropfenbewegung entlang des Schneckenkanals und endet beim Eintritt in den darauffolgenden Zwickelbereich. In Bild 5.10 und Bild 5.12 sind jeweils die Bahnlinien entlang der Sektoren eingezeichnet, die den in Bild 5.11 und Bild 5.13 dargestellten Fluidfadendeformationen zugeordnet sind. Aufgrund der Relativbewegung zwischen Zylinder und Schnecke bewegen sich die Fluidpartikel entgegen dem Uhrzeigersinn entlang wendelförmiger Bahnen.

Im Vergleich zur Druckströmung durch den Flachsitzkanal werden Tropfen nicht nur gedehnt, sondern auch gestaucht. Das ist darauf zurückzuführen, daß die deformierten Tropfen aufgrund

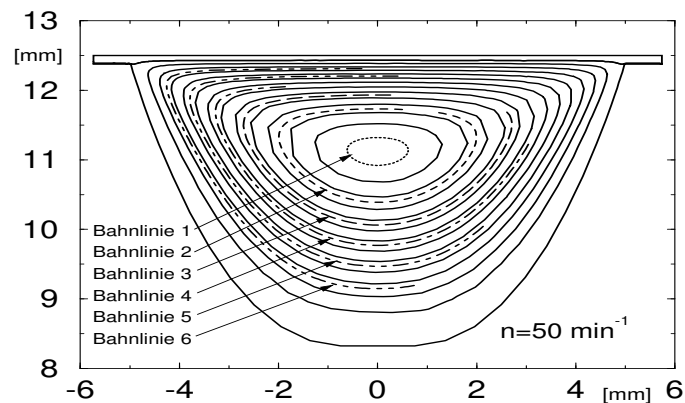


Bild 5.10: Bahnlinien bei der Schneckendrehzahl $n_s = 50 \text{ min}^{-1}$

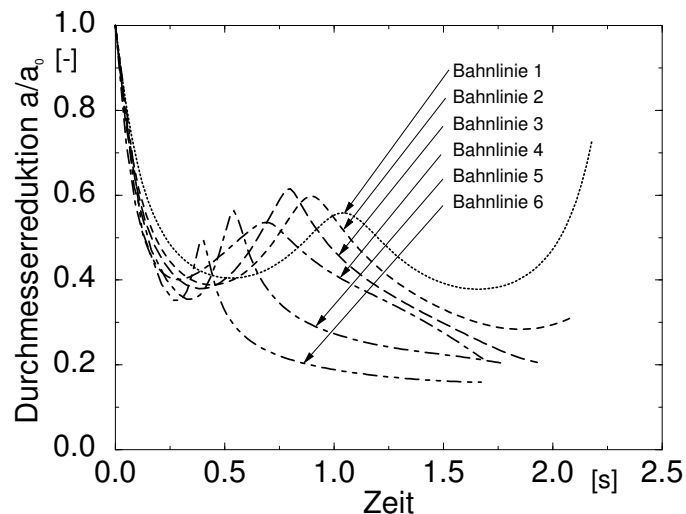


Bild 5.11: Fadendeformation im Extruderkanal bei der Schneckendrehzahl $n_s = 50 \text{ min}^{-1}$

der Rotationsströmung im Schneckenkanal aus der Hauptdeformationsebene gedreht werden. Eine Neuausrichtung stark deformierter Tropfen benötigt mehr Zeit, wodurch größere Rückdeformationen erst nach einiger Zeit auftreten. Diese Rückdeformationen sind bei der niedrigen Schneckendrehzahl stärker ausgeprägt, was auf längere Verweilzeiten der Tropfen im Schneckenkanal zurückzuführen ist. Aufgrund der Strömungskanalgeometrie ist auch im Eingriffsbereich mit solchen aus Umorientierungen resultierenden Tropfenstauungen zu rechnen.

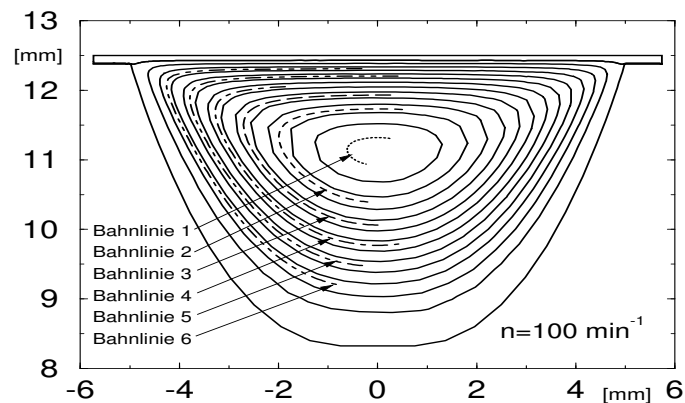


Bild 5.12: Bahnlinien bei der Schneckendrehzahl $n_s = 100 \text{ min}^{-1}$

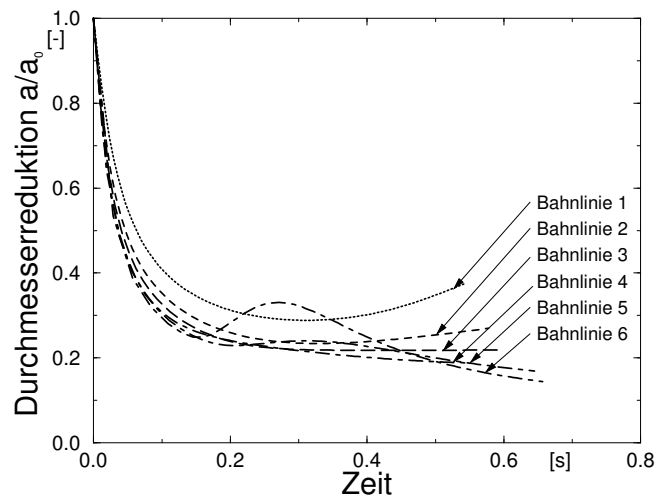


Bild 5.13: Fadendeformation im Extruderkanal bei der Schneckendrehzahl $n_s = 100 \text{ min}^{-1}$

Insbesondere bei niedrigen Drehzahlen unterliegen durch den Schneckenkanalbereich geförderte große Fluidtropfen einem ausgeprägt inhomogenen Deformationsgeschwindigkeitsfeld. Dadurch kann ein zusätzlicher Zerfallsmechanismus auftreten. So sind, gemäß der durchgeführten Analyse, auch Fluidfadenzerfallsvorgänge aufgrund von Tropfenstauchungen zu erwarten. Dieser Mechanismus wirkt der Bildung sehr langer Fluidfäden entgegen.

Da primär stark deformierte Tropfen Stauchungen erfahren, kann das Deformationsverhalten kleiner Tropfen im Extruderkanal ent-

sprechend der einfachen Scherströmung beschrieben werden. Aus diesem Grund kann die Analyse des morphologischen Gleichgewichts auf der Grundlage von gemittelten Größen aus der Strömungsberechnung erfolgen.

Durch den Zwickel tritt eine weitere Inhomogenität des Geschwindigkeitsfelds auf, die die Morphologieausbildung im Zweischneckenextruder beeinflusst. Beim Übergang zur benachbarten Schnecke durchströmt das Gemisch den Eingriffsbereich, wo es erhöhten Scher- und Dehnbeanspruchungen ausgesetzt ist. Dadurch werden die durch die Grenzflächenspannung bewirkten Relaxationsmechanismen weitgehend unterdrückt, wodurch Tropfenzerfallsvorgänge und Koaleszenzeffekte vorwiegend in den Schneckenkanälen zu lokalisieren sind. Diese, für das dispersive Mischen sehr effektive, dynamische Beanspruchung der Phasengrenzfläche kann mit den charakteristischen Größen des Zonenmodells abgebildet werden.

In Tab. 5.1 sind die gemittelten Beträge des Deformationsgeschwindigkeitstensors im Eingriffsbereich und in den Schneckenkanälen aus den beiden Berechnungsbeispielen zusammengefaßt. Mit n_{Zw} ist angegeben, wie häufig ein Fluidteilchen, das über eine Länge von $L_{Zyl} = 50 \text{ mm}$ axial gefördert wird, durchschnittlich in den Zwickel gelangt. Der signifikante Anstieg dieses Wertes mit der Schnecken-

$n_s [\text{min}^{-1}]$	$ \dot{\gamma} _K \quad [s^{-1}]$	$ \dot{\gamma} _{Zw} \quad [s^{-1}]$	$n_{Zw} \quad [-]$
50	19.6	46.1	2
100	55.9	99.5	9

Tabelle 5.1: Daten des Zonenmodells bei unterschiedlichen Schneckendrehzahlen

drehzahl verdeutlicht den Belastungswechsel, den das Zweiphasengemisch vor allem bei höheren Schneckendrehzahlen erfährt. S

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.

Literaturverzeichnis

- [1] ACRIVOS, A.: *The breakup of small drops and bubbles in shear flows*. NYAS, 404:1–11, 1983.
- [2] ACRIVOS, A. und T. S. LO: *Deformation and breakup of a single slender drop in an extensional flow*. J. Fluid Mech., 86:641–672, 1978.
- [3] ALMUSALLAM, A. S., R. G. LARSON und M. J. SOLOMON: *A constitutive model for the prediction of ellipsoidal droplet shapes and stresses in immiscible blends*. J. Rheol., 44(5):1055–1083, 2000.
- [4] BARTHÈS-BIESEL, D. und A. ACRIVOS: *Deformation and burst of a liquid droplet freely suspended in a linear shear field*. J. Fluid Mech., 61(1):1–21, 1973.
- [5] BASTIAN: *Plastifizierung und Morphologie von inkompatiblen Polymerblends bei der Verarbeitung in Gleichdrall-Doppelschneckenextrudern*. Doktorarbeit, Universität-GH Paderborn (Kunststofftechnik), 2000.
- [6] BENTLEY, B.: *Drop deformation and burst in two-dimensional flows*. Doktorarbeit, California Institute of Technology, 1985.
- [7] BIGIO, D. I., C. R. MARKS und R. V. CALABRESE: *Predicting drop breakup in complex flows from model flow experiments*. Intern. Polymer Processing, 13, 1998.

- [8] BÖHME, G.: *Strömungsmechanik nichtnewtonscher Fluide*. B. G. Teubner, Stuttgart, 2000.
- [9] BOUSMINA, M.: *Effect of interfacial tension on linear viscoelastic behaviour of immiscible polymer blends*. *Rheol. Acta*, 38:251–254, 1999.
- [10] BOUSMINA, M.: *Rheology of polymer blends: linear model for viscoelastic emulsions*. *Rheol. Acta*, 38:73–83, 1999.
- [11] BRUIJIN, R. A. D.: *Deformation and breakup of drops in simple shear flows*. Doktorarbeit, TU Eindhoven, 1989.
- [12] BUCKMASTER, J. D.: *The bursting of pointed drops in slow viscous flow*. *J. Appl. Mech.*, 40:18–24, 1973.
- [13] CHOI, S. J. und W. R. SCHOWALTER: *Rheological properties of nondilute suspensions of deformable particles*. *The Physics of Fluids*, 18(4):420–427, 1974.
- [14] COX, R. G.: *The deformation of a drop in a general time-dependent fluid flow*. *J. Fluid Mech.*, 37:601–623, 1969.
- [15] DOI, M. und T. OHTA: *Dynamics and rheology of complex interfaces. I*. *J. Chem. Phys.*, 95(2):1242–1248, 1991.
- [16] ELEMANS, P. H. M.: *Modelling of the processing of incompatible polymer blends*. Doktorarbeit, Eindhoven University of Technology, 1989.
- [17] ELEMANS, P. H. M., H. L. BOS, J. M. H. JANSSEN und H. E. H. MEIJER: *Transient phenomena in dispersive mixing*. *Chem. Eng. Sci.*, 48(2):267–276, 1993.
- [18] ELMENDORP, J. J. und A. K. VAN DER VEGT: *A study on polymer blending microrheology: Part IV. The influence of coalescence and blend morphology origination*. *Polym. Eng. Sci.*, 26(11):1332–1338, 1986.

- [19] FANG, S.: *Konzipierung und Dimensionierung komplexer Extrusionswerkzeugsysteme mittels der Methode der finiten Elemente*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, 1999.
- [20] FORTELNY, I. und A. ZIVNY: *Theory of competition between breakup and coalescence of droplets in flowing polymer blends*. Polym. Eng. Sci., 35(23):1872–1877, 1995.
- [21] FRITZ, H. G.: *Kunststoffe - Einführung und Grundlagen*. Vorlesung, Universität Stuttgart.
- [22] FRITZ, H. G.: *Neuartige polyolefinbasierte Polymerblends aus reaktiven Compoundierprozessen*. 16. Stuttgarter Kunststoffkolloquium, 1999.
- [23] FRITZ, H. G., Q. CAI und U. BÖLZ: *Struktur / Eigenschaftsbeziehungen von PP/PA 6.6-Legierungen*. KGK Kautschuk Gummi Kunststoffe, 49(2):88–98, 1996.
- [24] FRITZ, H. G. und K. GEIGER: *Rheologie und Rheometrie von Kunststoffschmelzen*. Vorlesung, Universität Stuttgart.
- [25] GAUTHIER, F., H. L. GOLDSMITH und S. G. MASON: *Particle motions in non-Newtonian media II. Poiseuille flow*. Trans. Soc. Rheol., 15:297–330, 1971.
- [26] GRACE, H. P.: *Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems*. Chem. Eng. Commun., 14:225–277, 1982.
- [27] GRIZZUTI, N. und O. BIFULCO: *Effect of coalescence and breakup on the steady-state morphology of an immiscible polymer blend in shear flow*. Rheol. Acta, 36:406–415, 1997.

- [28] GRMELA, M. und A. AIT-KADI: *Comments on the Doi-Ohta theory of blends*. J. Non-Newtonian Fluid Mech., 55:191–195, 1994.
- [29] GRMELA, M. und A. AIT-KADI: *Rheology of inhomogeneous immiscible blends*. J. Non-Newtonian Fluid Mech., 77:191–199, 1998.
- [30] GUENTHER, G. K. und D. G. BAIRD: *An evaluation of the Doi-Ohta theory for an immiscible polymer blend*. J. Rheol., 40(1):1–20, 1995.
- [31] HÄRING, P. A.: *Modellierung isothermer und nichtisothermer Strömungsvorgänge in gleichsinnig drehenden, dichtkämmernden Zweischneckenextrudern*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart, 1997.
- [32] HUNEAULT, M. A., Z. H. SHI und L. A. UTRACKI: *Development of polymer blend morphology during compounding in a twin-screw extruder. Part IV: A new computational model with coalescence*. Polym. Eng. Sci., 35(1):115–127, 1995.
- [33] JANSSEN, J. M. H.: *Dynamics of liquid-liquid mixing*. Doktorarbeit, Eindhoven University of Technology, 1993.
- [34] KHAKAR, D. V. und J. M. OTTINO: *Breakup of liquid threads in linear flows*. Int. J. Multiphase Flow, 13(1):71–86, 1987.
- [35] KITADE, S., A. ICHIKAWA, N. IMURA, Y. TAKAHASHI und I. INODA: *Rheological properties and domain structures of immiscible polymer blends under steady and oscillatory shear flows*. J. Rheol., 41(5):1039–1060, 1997.
- [36] KUHN, W.: *Spontane Aufteilung von Flüssigkeitszylindern in kleine Kugeln*. Kolloid Z., 132:84–99, 1953.

- [37] LACROIX, C., M. ARESSY und P. J. CARREAU: *Linear viscoelastic behaviour of molten polymer blends: A comparative study of the Palierne and Lee Park models*. Rheol. Acta, 36:416–428, 1997.
- [38] LACROIX, C., M. GRMELA und P. J. CARREAU: *Morphological evolution of immiscible polymer blends in simple shear and elongational flows*. J. Non-Newtonian Fluid Mech., 86:37–59, 1999.
- [39] LEAL, L. G.: *Laminar Flow and Convective Transport Processes*. Butterworth-Heinemann, 1992.
- [40] LEE, H. M. und O. O. PARK: *Rheology and dynamics of immiscible polymer blends*. J. Rheol., 38(5):1405–1425, 1994.
- [41] LINDT, J. T. und A. K. GHOSH: *Fluid mechanics of the formation of polymer blends. Part I: Formation of lamellar structures*. Polym. Eng. Sci., 32(24):1802–1813, 1992.
- [42] MIKAMI, T., R. G. COX und S. G. MASON: *Breakup of extending liquid threads*. Int. J. Multiphase Flow, 2:113–138, 1975.
- [43] MOON, D. Y. und O. O. PARK: *Development of a computational model to predict blend morphology in a twin-screw extruder*. Advances in Polym. Technology, 17(3):203–215, 1998.
- [44] OTTINO, J. M.: *The kinematics of mixing: stretching, chaos and transport*. Cambridge University Press, 1989.
- [45] PAL, R.: *Novel viscosity equations for emulsions of two immiscible liquids*. J. Rheol., 45(2):509–520, 2001.
- [46] PALIERNE, J. F.: *Linear rheology of viscoelastic emulsions with interfacial tension*. Rheol. Acta, 29:204–214, 1990.

- [47] POTENTE, H., M. BASTIAN, K. BERGEMANN, M. SENGE, G. SCHEEL und T. WINKELMANN: *Morphology of polymer blends in the melting section of co-rotating twin screw extruders*. Polym. Eng. Sci., 41(2):222–231, 2001.
- [48] RALLISON, J. M.: *A note on the time-dependent deformation of a viscous drop which is almost spherical*. J. Fluid Mech., 98:625–633, 1980.
- [49] RALLISON, J. M.: *A numerical study of the deformation and burst of a viscous drop in general shear flows*. J. Fluid Mech., 109:465–482, 1981.
- [50] RALLISON, J. M. und A. ACRIVOS: *A numerical study of the deformation and burst of a viscous drop in an extensional flow*. J. Fluid Mech., 89(1):191–200, 1978.
- [51] RAUWOLF, M.: *Morphologieausbildung in der Wendelströmung*. 15. Stuttgarter Kunststoffkolloquium (Posterschau), 1997.
- [52] RAUWOLF, M.: *Morphologieausbildung in strömenden Kunststoffgemischen*. 15. Stuttgarter Kunststoffkolloquium, 1997.
- [53] SCHOOLENBERG, T. E., F. DURING und G. INGENBLEEK: *Coalescence and interfacial tension measurements for polymer blends: experiments on a PS-PE model system*. Polymer, 39:765–772, 1998.
- [54] STONE, H. A. und L. G. LEAL: *Relaxation and breakup of an initially extended drop in an otherwise quiescent fluid*. J. Fluid Mech., 198:399–427, 1989.
- [55] TADMOR, Z., E. BROYER und C. GUTFINGER: *Flow analysis network (FAN) - a method for solving problems in polymer-processing*. Polym. Eng. Sc., 14:660–665, 1974.

- [56] TAKAHASHI, Y., N. KURASHIMA und I. NODA: *Experimental tests of the scaling relation for textured materials in mixtures of two immiscible fluids*. J. Rheol., 38(3):699–712, 1994.
- [57] TJAHHADI, M. und J. M. OTTINO: *Stretching and breakup of droplets in chaotic flows*. J. Fluid Mech., 232:191–219, 1991.
- [58] TJAHHADI, M., H. A. STONE und J. M. OTTINO: *Satellite and subsatellite formation in capillary breakup*. J. Fluid Mech., 243:297–317, 1992.
- [59] TOMOTIKA, S.: *On the stability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous fluid*. Proc.Roy.Soc., 105:332–337, 1935.
- [60] TOMOTIKA, S.: *Breaking up of a drop of a viscous liquid immersed in another viscous fluid which is extending at a uniform rate*. Proc.Roy.Soc., 153:302–318, 1936.
- [61] TOOSE, E. M., B. J. GEURTS und J. G. M. KUERTEN: *A boundary integral method for two-dimensional (non)-Newtonian drops in slow viscous flow*. J. Non-Newtonian Fluid Mech., 60:129–154, 1995.
- [62] TORZA, S., R. G. COX und S. G. MASON: *Particle motions in sheared suspensions XXVII. Transient and steady deformation and burst of liquid drops*. J. Colloid Interface Sci., 38(2):395–411, 1972.
- [63] TSAKALOS, V. T., P. NAVARD und E. PEUVREL-DISDIER: *Deformation and breakup mechanisms of single drops during shear*. J. Rheol., 42(6):1403–1417, 1998.
- [64] UTRACKI, L. A. und Z. H. SHI: *Development of polymer blend morphology during compounding in a twin-screw extruder. Part I: Droplet dispersion and coalescence - a review*. Polym. Eng. Sci., 32:1824–1833, 1992.

- [65] VINCKIER, I., J. MEWIS und P. MOLDENAERS: *Elastic recovery of immiscible blends, 2. Transient flow histories*. Rheol. Acta, 38:198–205, 1999.
- [66] VINCKIER, I., P. MOLDENAERS und J. MEWIS: *Relationship between rheology and morphology of model blends in steady shear flow*. J. Rheol., 40(4):613–631, 1996.
- [67] VINCKIER, I., P. MOLDENAERS und J. MEWIS: *Transient rheological response and morphology evolution of immiscible polymer blends*. J. Rheol., 41(3):705–718, 1997.
- [68] VINCKIER, I., P. MOLDENAERS und J. MEWIS: *Elastic recovery of immiscible blends, 1. Analysis after steady state shear flow*. Rheol. Acta, 38:65–72, 1999.
- [69] VINCKIER, I., P. MOLDENAERS, A. M. TERRACCIANO und N. GRIZZUTI: *Droplet size evolution during coalescence in semi-concentrated blends*. AIChE. J., 44:951–958, 1998.
- [70] WANG, H., A. Z. ZINCHENKO und R. H. DAVIS: *The collision rate of small drops in linear flow fields*. J. Fluid Mech., 265:161–188, 1994.
- [71] WETZEL, E. D. und C. L. TUCKER: *Area tensors for modeling microstructure during laminar liquid-liquid mixing*. Int. J. Mult. Flow, S. 1–28, 1998.
- [72] WU, S.: *Formation of dispersed phase in incompatible polymer blends: Interfacial and rheological effects*. Polym. Eng. Sci., 27(5):335–343, 1987.

Anhang A

Anhang

A.1 Übertragung der in ebenen Strömungen bestimmten kritischen Kapillarzahlen auf die Strömung in den Schneckenkanälen des Zweisneckenextruders

Ebene, inkompressible homogene Strömungen können als Dehnströmungen aufgefaßt werden, denen eine Starrkörperdrehung überlagert ist. In diesen Strömungsformen wird der Geschwindigkeitsgradiententensor \underline{L} durch eine 2×2 -Matrix mit konstanten Elementen dargestellt.

Dieser Tensor wird additiv in einen symmetrischen Anteil, den Deformationsgeschwindigkeitstensor \underline{D} und in den schiefsymmetrischen Drehgeschwindigkeitstensor \underline{W} zerlegt:

$$\underline{L} = \frac{1}{2} \cdot (\underline{L} + \underline{L}^T) + \frac{1}{2} \cdot (\underline{L} - \underline{L}^T) = \underline{D} + \underline{W} \quad . \quad (\text{A.1})$$

Sind nur die Elemente von \underline{W} ungleich Null, werden Fluidelemente lediglich einer Drehung unterworfen. In der ebenen Dehnströmung verschwinden die Elemente des Drehgeschwindigkeitstensors und in der reinen Scherströmung sind die Beträge von \underline{D} und \underline{W} gleich.

Bentley [6] untersuchte die Tropfendeformation und -stabilität in unterschiedlichen Strömungsformen, die in einer 4-Rollen-Apparatur bei unterschiedlichen Drehzahlen der einzelnen Walzen generiert wurden. Zur Darstellung der unterschiedlichen Strömungen wurde eine allgemeine Formulierung des Geschwindigkeitsgradiententensors für ebene Strömungen [8] gewählt:

$$\begin{aligned}\underline{L} &= \frac{\dot{\gamma}}{2 \cdot (1 + \alpha)} \begin{bmatrix} 1 + \alpha & 1 - \alpha \\ -1 + \alpha & -1 - \alpha \end{bmatrix} \\ &= \frac{\dot{\gamma}}{2 \cdot (1 + \alpha)} \left((1 + \alpha) \cdot \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} + (1 - \alpha) \cdot \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{bmatrix} \right). \quad (\text{A.2})\end{aligned}$$

Das Verhältnis von Drehung zu Dehnung ist damit $(1 - \alpha)/(1 + \alpha)$, wobei $\alpha = 0$ der einfache Scherströmung und $\alpha = 1$ der ebenen Dehnströmung zuzuordnen sind. Dokumentiert sind experimentellen Untersuchungen am Tropfen für diejenigen Strömungen, die charakterisiert sind durch $\alpha \in [0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0]$.

Zur Übertragung auf dreidimensionale Strömungen wird in der vorliegenden Arbeit eine analoge Definition für α eingeführt:

$$\alpha = \frac{1 - \frac{\|W\|}{\|D\|}}{1 + \frac{\|W\|}{\|D\|}}. \quad (\text{A.3})$$

Aus diesem α wird in Verbindung mit dem Viskositätsverhältnis λ_1 und der Kapillarzahl Ca der kritische Tropfenradius R_{crit} im Extruderkanal ermittelt. Die kritische Kapillarzahl wird mit Hilfe einer Interpolation bestimmt, die auf der Grundlage von Approximationskurven für die in [6] angegebenen Meßwerte durchgeführt wird.

Für die einfache Scherströmung wird die von R. A. de Bruijn [11] auf der Grundlage der von H. P. Grace [26] ermittelten Meßwerte entwickelte Approximationskurve eingesetzt:

$$\begin{aligned}R_{crit} &= \frac{\sigma_{12}}{\eta_{CP}(|\dot{\gamma}|) \cdot |\dot{\gamma}|} \cdot Ca_{crit}, \quad (\text{A.4}) \\ \lg Ca_{crit} &= c_1 + c_2 \cdot \lg \lambda_1 + c_3 \cdot \lg^2 \lambda_1 + \frac{c_4}{\lg \lambda_1 + c_5}.\end{aligned}$$

Für die Koeffizienten c_i sind zu setzen:

$$c_1 = -0.506, \quad c_2 = -0.0994, \quad c_3 = 0.124$$

$$c_4 = -0.115, \quad c_5 = -0.611$$

A.2 Rheologisches Stoffmodell für Dispersionen mit nichtaffinen Tropfendehformationen

Durch Einführung zusätzlicher Terme kann das Modell von Lee und Park auch bei nichtaffinen Tropfendehformationen eingesetzt werden [38]. Zur Charakterisierung der Tropfenoberfläche wird der Tensor \underline{E} wie folgt definiert:

$$E_{ij} = Q \cdot q_{ij} + Q^2 \cdot \delta_{ij} \quad . \quad (\text{A.5})$$

Für Aussagen über den Tropfen ist die Inverse dieses Tensors \underline{E}^{-1} heranzuziehen. In der Zeitableitung des Tensors \underline{E} wird der dimensionslose Korrekturfaktor ξ eingeführt:

$$\begin{aligned} \frac{DE_{ij}}{Dt} + E_{kj} L_{ki} + E_{ki} L_{kj} \\ - \frac{\xi}{2} (E_{kj} (\cdot L_{ki} + L_{ik}) + E_{ik} (\cdot L_{kj} + L_{jk})) = 0 \quad . \quad (\text{A.6}) \end{aligned}$$

Für $\xi = 0$ reduziert sich obige Gleichung auf die kovariante Oldroyd-sche Zeitableitung des Tensors \underline{E} und damit auf ein Bezugssystem, das die Drehung und Deformation von Flächenelementen mitmacht. Die Gleichungen für Q und \underline{q} lauten damit:

$$\begin{aligned} \frac{Dq_{ij}}{Dt} = & -q_{ki} \cdot L_{kj} \cdot \left(1 - \frac{\xi}{2}\right) + \frac{\xi}{2} \cdot q_{ki} \cdot L_{jk} \\ & -q_{kj} \cdot L_{ki} \cdot \left(1 - \frac{\xi}{2}\right) + \frac{\xi}{2} \cdot q_{kj} \cdot L_{ik} + \frac{2}{3} \cdot \left(1 - \frac{\xi}{2}\right) \cdot \delta_{ij} \cdot L_{lm} \cdot q_{lm} \\ & -\frac{Q}{3} \cdot \left(1 - \frac{\xi}{2}\right) \cdot (L_{ij} + L_{ji}) + (1 - \xi) \cdot \left(\frac{q_{lm} \cdot L_{lm}}{Q}\right) \cdot q_{ij} \\ & -\mu_1 \cdot \frac{\sigma_{12}}{\eta_{CP}} \cdot Q \cdot q_{ij} - \mu_1 \cdot \mu_3 \cdot \frac{\sigma_{12}}{\eta_{CP}} \cdot \left(\frac{q_{lm} \cdot q_{lm}}{Q}\right) \cdot q_{ij} \quad , \quad (\text{A.7}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{DQ}{Dt} = & -L_{ij} \cdot q_{ij} \cdot (1 - \xi) - \mu_1 \cdot \mu_2 \cdot \frac{\sigma_{12}}{\eta_{CP}} \cdot Q^2 \\ & -\mu_1 \cdot \mu_3 \cdot \frac{\sigma_{12}}{\eta_{CP}} \cdot (q_{lm} \cdot q_{lm}) \quad . \quad (\text{A.8}) \end{aligned}$$

Durch Nullsetzen von ξ reduzieren sich die Gleichungen zur Beschreibung der Phasengrenzfläche auf das von Lee und Park vorgeschlagene Modell. In der Formulierung der rheologischen Stoffgleichung treten zusätzliche nichtlineare Terme auf, die durch einen weiteren Korrekturfaktor gewichtet werden [29].

A.3 Definition des Anisotropietensors bei polydispersen Gemischen

Der Anisotropietensor \underline{q} wird aus den Normalenvektoren an der Grenzfläche bestimmt zu:

$$\begin{aligned} q_{ij} &= \frac{1}{V} \cdot \int \left(\vec{n}_i \cdot \vec{n}_j - \frac{\delta_{ij}}{3} \right) dS = \frac{1}{V_{DP}} \cdot \int \vec{n}_i \cdot \vec{n}_j dS - \frac{\delta_{ij}}{3} \cdot Q \\ &= \frac{1}{\Phi_{DP}} \left(\hat{q}_{ij} - \frac{\delta_{ij}}{3} \cdot \hat{Q} \right) . \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Darin sind die Größen \hat{Q} und \hat{q} definiert zu [3]:

$$\hat{Q} = \frac{1}{V_{DP}} \cdot \int dS \quad \hat{q}_{ij} = \frac{1}{V_{DP}} \cdot \int n_i \cdot n_j dS \quad . \quad (\text{A.10})$$

Für einen einzelnen Tropfen, dessen Form durch ein Ellipsoid approximiert werden kann, wird die Tropfenoberfläche in der Hauptachsenform dargestellt durch:

$$F(x,y,z) = \frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} + \frac{z^2}{c^2} - 1 = 0 \quad . \quad (\text{A.11})$$

Die Normalenvektoren der Tropfenoberfläche bestimmen sich damit zu:

$$\vec{n}_x = \frac{x \cdot b^2 \cdot c}{\sqrt{x^2 \cdot b^4 \cdot (c^2 - a^2) + y^2 \cdot a^4 \cdot (c^2 - b^2) + a^4 \cdot b^4}} \quad , \quad (\text{A.12})$$

$$\vec{n}_y = \frac{y \cdot a^2 \cdot c}{\sqrt{x^2 \cdot b^4 \cdot (c^2 - a^2) + y^2 \cdot a^4 \cdot (c^2 - b^2) + a^4 \cdot b^4}} \quad , \quad (\text{A.13})$$

$$\vec{n}_z = \frac{z \cdot a^2 \cdot b}{\sqrt{x^2 \cdot c^4 \cdot (b^2 - a^2) + z^2 \cdot a^4 \cdot (b^2 - c^2) + a^4 \cdot c^4}} \quad . \quad (\text{A.14})$$

Von Almusallam, Larson und Solomon [3] werden die Elemente des Tensors \hat{q} mit dem elliptischen Integral erster Gattung K_1 angegeben

ZU:

$$\hat{q}_{11} = \frac{3 \cdot c}{\pi \cdot a^3} \int_{-a}^a \frac{x^2}{\sqrt{a^4 + x^2 \cdot (c^2 - a^2)}} \cdot K_1 \left(\frac{a^2 \cdot (b^2 - c^2) \cdot (a^2 - x^2)}{b^2 \cdot (a^4 + x^2 \cdot (c^2 - a^2))} \right) dx \quad , \quad (\text{A.15})$$

$$\hat{q}_{22} = \frac{3 \cdot c}{\pi \cdot b^3} \int_{-b}^b \frac{y^2}{\sqrt{b^4 + y^2 \cdot (c^2 - b^2)}} \cdot K \left(\frac{b^2 \cdot (a^2 - c^2) \cdot (b^2 - y^2)}{a^2 \cdot (b^4 + y^2 \cdot (c^2 - b^2))} \right) dy \quad , \quad (\text{A.16})$$

$$\hat{q}_{33} = \frac{3 \cdot a}{\pi \cdot c^3} \int_{-c}^c \frac{z^2}{\sqrt{c^4 + z^2 \cdot (a^2 - c^2)}} \cdot K \left(\frac{c^2 \cdot (b^2 - a^2) \cdot (c^2 - z^2)}{b^2 \cdot (c^4 + z^2 \cdot (a^2 - c^2))} \right) dz \quad . \quad (\text{A.17})$$

Daraus kann die spezifische Grenzfläche berechnet werden mit:

$$\hat{Q} = Sp(\hat{q}) \quad . \quad (\text{A.18})$$

Auf der Grundlage dieser Berechnungsgleichungen kann die Anisotropie der Grenzfläche bei polydispersen Gemischen bestimmt werden:

$$\begin{aligned} \underline{q} &= \frac{1}{\Phi_{DP}} \cdot \frac{\sum_i (a_i \cdot b_i \cdot c_i \cdot \underline{q}_i)}{\sum_i (a_i \cdot b_i \cdot c_i)} \\ &= \frac{1}{\Phi_{DP}} \cdot \frac{\sum_i (a_i \cdot b_i \cdot c_i \cdot \underline{Q}_i^T \cdot [\hat{q}_i - \hat{Q}_i/3] \cdot \underline{Q}_i)}{\sum_i (a_i \cdot b_i \cdot c_i)} \quad . \quad (\text{A.19}) \end{aligned}$$

Hierbei wird die Tropfenorientierung mit dem Rotationstensor \underline{Q}_i erfaßt:

$$\begin{bmatrix} \cos \Theta & \sin \Theta & 0 \\ -\sin \Theta & \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad . \quad (\text{A.20})$$

Können die deformierten Tropfen mit rotationssymmetrischen Ellipsoiden approximiert werden, so gilt $b_i = c_i$, wodurch sich die Bestimmungsgleichungen vereinfachen.

A.4 Berechnung der Fluidfadendeformation in der Wendelströmung

Ausgangspunkt ist das mit der FEM berechnete Strömungsfeld in der Wendelströmung [51]. Das Fließverhalten des in den Versu-

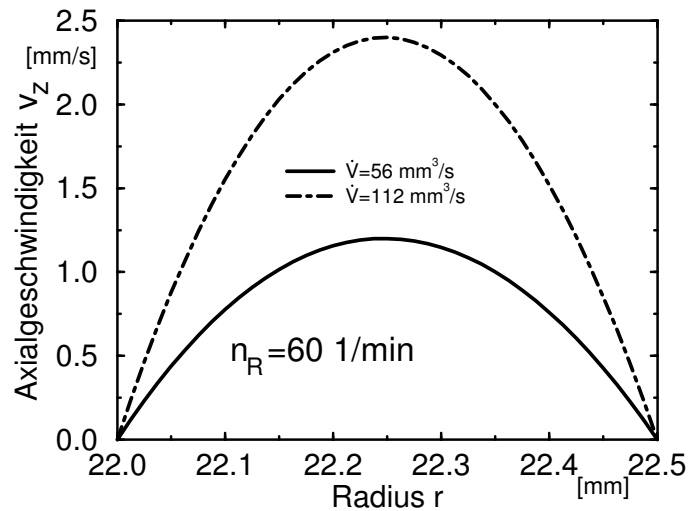


Bild A.1: Geschwindigkeitsverteilung über der Spalthöhe

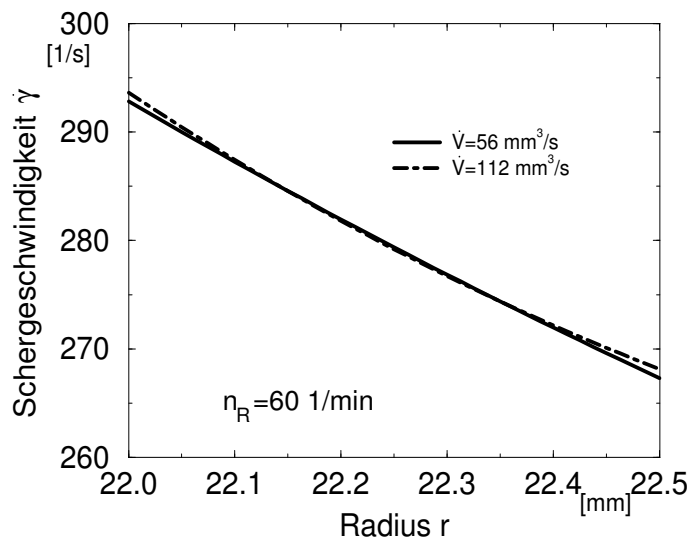


Bild A.2: Schergeschwindigkeitsverteilung über der Spalthöhe

chen eingesetzten Gemisches aus Polyethylen und Polystyrol mit dem Massenkonzentrationsverhältnis $\xi_{PE} : \xi_{PS} = 9 : 1$ wird mit dem Carreau-Ansatz abgebildet. Die hierfür benötigten Parameter wur-

den mittels rheologischer Messungen bestimmt.

In Bild A.1 und in Bild A.2 sind die Axialgeschwindigkeiten und die Schergeschwindigkeitsverteilung über dem Ringspalt für unterschiedliche Volumendurchsätze dargestellt.

Es wird die Deformation eines Fluidteilchens ermittelt, das zur Zeit $t = t_0 = 0$ s in den Scherspalt eintritt und sich entlang einer Bahnlinie bewegt. Der Geschwindigkeitsgradiententensor $\underline{L} = (\nabla \vec{v})^T$ nimmt im zylindrischen Koordinatensystem r, θ, z eine sehr einfache Form an:

$$\underline{L} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ r \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right) & 0 & 0 \\ \frac{\partial v_z}{\partial r} & 0 & 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \dot{\gamma}_1 & 0 & 0 \\ \dot{\gamma}_2 & 0 & 0 \end{bmatrix} . \quad (\text{A.21})$$

Durch Integration des Geschwindigkeitsgradiententensors ergibt sich der Deformationsgradiententensor \underline{F} :

$$\frac{D\underline{F}}{D t} = \underline{L} \cdot \underline{F}, \quad \underline{F}(t_0) = \underline{I} , \quad (\text{A.22})$$

$$\underline{F}(t) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \dot{\gamma}_1 \cdot t & 0 & 0 \\ \dot{\gamma}_2 \cdot t & 0 & 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \gamma_1 & 0 & 0 \\ \gamma_2 & 0 & 0 \end{bmatrix} . \quad (\text{A.23})$$

Die Deformationsanalyse erfolgt anhand der Eigenwerte des Links-Cauchy-Green-Tensors $\underline{G} = \underline{F} \cdot \underline{F}^T$ und damit aus den beiden Lösungen $\lambda_{1/2}$ der charakteristischen Gleichung:

$$0 = 1 - \lambda \cdot (2 + \gamma_1^2 + \gamma_2^2) + \lambda^2 ,$$

$$\lambda_{1/2} = \frac{2 + (\gamma_1^2 + \gamma_2^2) \pm \sqrt{(\gamma_1^2 + \gamma_2^2) \cdot (4 + (\gamma_1^2 + \gamma_2^2))}}{2} . \quad (\text{A.24})$$

Die Substitution $\gamma^* = \sqrt{\gamma_1^2 + \gamma_2^2}$ zeigt die Ähnlichkeit zur einfachen Scherströmung:

$$\sqrt{\lambda_1} = \frac{1}{2} \cdot \gamma^* + \frac{1}{2} \cdot \sqrt{4 + (\gamma^*)^2} ,$$

$$\sqrt{\lambda_2} = \frac{1}{2} \cdot \gamma^* - \frac{1}{2} \cdot \sqrt{4 + (\gamma^*)^2} . \quad (\text{A.25})$$

Somit kann die Formulierung für die einfache Scherströmung auch für die Wendelströmung angewandt werden, wobei jedoch statt der Schergeschwindigkeit der folgende Ausdruck einzusetzen ist:

$$\dot{\gamma}^* = \sqrt{\left(r \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r}\right)\right)^2 + \left(\frac{\partial v_z}{\partial r}\right)^2} = \sqrt{\dot{\gamma}_1^2 + \dot{\gamma}_2^2} \quad . \quad (\text{A.26})$$

In Bild A.3 sind die sich im stationären Zustand an unterschiedlichen axialen Zylinderpositionen einstellenden Deformationsverteilungen über dem Scherspalt dargestellt. Aus Bild A.3 ist die geringe lami-

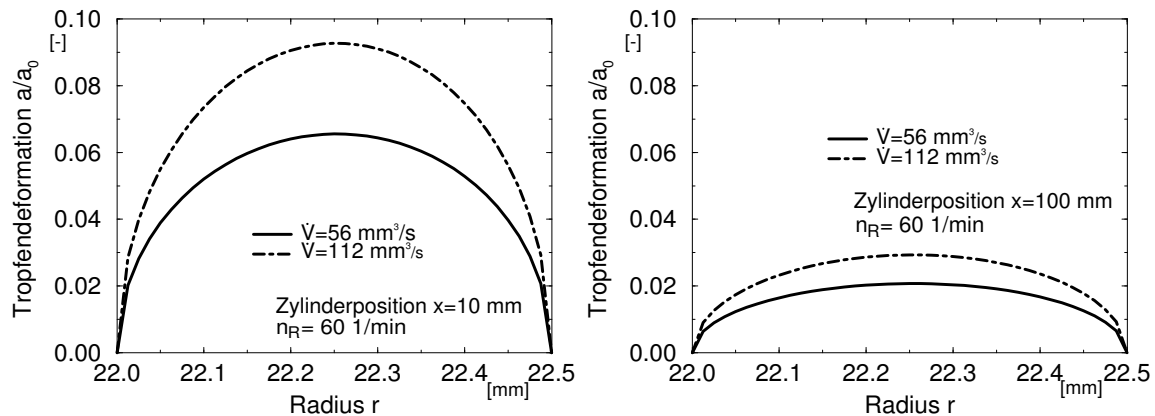


Bild A.3: Scherdeformationen entlang der Wendelströmung an unterschiedlichen Zylinderpositionen

nare Mischungseffektivität der Wendelströmung ersichtlich. So erfahren Fluidpartikel eine angenähert lineare Längenänderung, was bei Zugrundelegung der Zylinderdeformation zur dargestellten Radiusreduktion a/a_0 führt. Ein anfänglich kugelförmiger Tropfen, der sich nahe der Spaltmitte durch den Scherspalt bewegt, wird entlang des ersten Zentimeters stärker deformiert als in den darauffolgenden neun Zentimetern.

A.5 Abschätzung der Abweichung vom kreisrunden Fluidfadenquerschnitt in einer einfachen Scherströmung

Liegen deformierte Tropfen in Form von Fluidfäden vor, so können diese anhand der Länge L und dem Radius a charakterisiert werden. Befindet sich ein Tropfen in einer einfachen Scherströmung, so ergibt sich mit Gl. 3.2 für das Verhältnis d_f zwischen Fluidfadlänge L und Fluidfadendurchmesser $2a$:

$$d_f = \frac{L}{2 \cdot a} = \left(\frac{1}{2} \cdot \gamma + \frac{1}{2} \cdot \sqrt{4 + \gamma^2} \right)^{3/2} . \quad (\text{A.27})$$

Bei vorgegebenem d_f sind unter diesen Bedingungen sowohl der Fadenradius a als auch der Winkel zwischen Fluidfaden und Stromlinie θ festgelegt:

$$\tan \theta = \frac{1}{d_f^{2/3}} , \quad (\text{A.28})$$

$$\frac{a}{a_0} = \frac{a}{\sqrt{2/3} \cdot R_0} = \frac{1}{d_f^3} , \quad (\text{A.29})$$

$$\tan \theta \cdot a = \frac{\sqrt{2/3} \cdot R_0}{d_f} . \quad (\text{A.30})$$

Wie experimentelle Untersuchungen [17] zeigen, führen anfängende Störungen auf der Tropfenoberfläche lediglich bei hinreichend deformierten Tropfen zum Zerfall, für die $d_f > 15$ gilt. Gestützt auf dieser Beobachtung wird eine modifizierte Kapillarzahl des Fluidfadens Ca^* wie folgt definiert:

$$\begin{aligned} Ca^* &= (\tan \theta \cdot a) \cdot \frac{\eta_{CP} \cdot \dot{\gamma}}{\sigma_{12}} = \frac{\sqrt{2/3}}{d_f} \cdot \frac{\eta_{CP} \cdot \dot{\gamma} \cdot R_0}{\sigma_{12}} \\ &\approx 0.014 \cdot \frac{\eta_{CP} \cdot \dot{\gamma} \cdot R_0}{\sigma_{12}} . \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

Diese dimensionslose Kennzahl entspricht dem Deformationsverhältnis des Fluidfadenquerschnitts [42] und kann damit zur Abschätzung des Hauptachsenverhältnisses d_{max}/d_{min} herangezogen werden:

$$\frac{d_{max}}{d_{min}} = \frac{1+D}{1-D} = \frac{1+Ca^*}{1-Ca^*} \quad . \quad (\text{A.32})$$

Lebenslauf

Matthias Rauwolf

Geboren am 07.09.1969 in Stuttgart-Bad Cannstatt
 Eltern: Wolfgang Rauwolf und Renate Rauwolf, geb. Sträßle
 Familienstand: verheiratet mit Heike Münzenmaier, zwei Kinder

Schulbildung:

1976 – 1980 Grundschule in Welzheim
 1980 – 1989 Gymnasium Welzheim
 Mai 1989 Allgemeine Hochschulreife

1989 – 1990 Grundwehrdienst

Hochschulstudium:

1990 – 1995 Verfahrenstechnik an der Universität
 Stuttgart
 November 1995 Diplom

Berufstätigkeit:

1996 – 1999 Wissenschaftlicher Angestellter am Institut für
 Kunststofftechnologie der Universität Stuttgart
 seit Januar 2000 Technischer Programmentwickler bei der Fir-
 ma ALSTOM Power Boiler in Stuttgart