

Hochdruckkapillarrheometrie ·  
rheologische Korrekturfunktionen ·  
dimensionslose Darstellung · An-  
wendung für den Verarbeitungs-  
prozeß

Die entwickelte Methode der di-  
mensionslosen Darstellung der Kor-  
rekturfunktionen der Kapillarrheo-  
metrie wurde softwaremäßig ausge-  
arbeitet und stellt ein wichtiges  
Hilfsmittel für den Verarbeiter dar,  
um seine Technologie zu optimie-  
ren. Gleichfalls kann mit der Option  
der Gegendruckkammer für das  
Hochdruckkapillarrheometer der  
gravierende und oft vernachlässigte  
Druckeinfluß auf die Viskositäts-  
funktion und das Wandverhalten der  
Materialien untersucht werden.

## Capillary Rheometer for the Plastics Production Simulation of Rheological Processes

High Pressure Capillary Rheometry ·  
Rheological Correction Functions ·  
Dimensionless Presentation · Appli-  
cation for Production Process

The developed method of dimen-  
sionless presentation of the correc-  
tion functions in capillary rheometry  
is software-based and is therefore  
an important auxiliary for the poly-  
mer processor to optimize his tech-  
nology. At the same time the op-  
tional counterpressure chamber for  
high pressure capillary rheometers  
enables to study the serious influ-  
ence of pressure, which remains of-  
ten completely unconsidered, on the  
viscosity function and the wall be-  
haviour of materials.

# Kapillarrheometer für die Kunststoffverarbeitung

## Simulation rheologischer Prozesse

A. Göttfert, E.-O. Reher, Buchen, Deutschland  
I. M. Balagula, St. Petersburg, Rußland

Unter Verwendung kleiner Materialmen-  
gen können mit dem Hochdruckkapillar-  
rheometer auch unter Verwendung zu-  
sätzlicher Optionen, wie in diesem Falle  
die Anwendung einer Gegendruckkam-  
mer, wesentliche rheologische Phäno-  
mene studiert und quantifiziert werden,  
die in Verarbeitungsmaschinen am häu-  
figsten auftreten und zu unerwarteten Er-  
gebnissen wie z. B. Schmelzebruch,  
Wandgleiten, Druckabfall, Verbrennun-  
gen usw. im Prozeßverhalten führen kön-  
nen. Die Ursachen sind im nichtlinearen  
Viskositätsverhalten, in der nichtlinearen  
Viskoelastizität, in der Strukturierung  
und Destrukturierung der Schmelzen  
am häufigsten zu suchen. Bei Dispersio-  
nen (gefüllte Schmelzen, Emulsionen)  
entstehen zusätzliche Probleme bedingt  
durch die Wechselwirkungen der Phasen  
im Kontinuum und an den Wänden der  
Verarbeitungsmaschinen.

Durch eine dimensionslose Darstellung  
der Korrekturverfahren der Kapillarrheo-  
metrie, die ansonsten zur Gewinnung  
der wahren (korrigierten) Viskositätsfun-  
ktion erforderlich sind (Rabinowitsch-Wei-  
ßenberg-, Mooney-, Bagley-, Dissipati-  
ons- und Druckkorrektur) können  
Bewertungen anhand rheologischer  
Messungen mit dem Kapillarrheometer  
(und einer Gegendruckkammer) für den  
relevanten Verarbeitungsprozeß vorge-  
nommen werden. Die Messungen er-  
folgen im schergeschwindigkeits – und  
spannungsbetreffenden Bereich der Ver-  
arbeitungsprozesse. Der spezifische Ein-  
fluß jeder dieser physikalisch begründe-  
ten Korrekturen (elastischer Kanaleinlauf-  
druck, Geschwindigkeitsgradient an der

Wand, Wandeffekte (Gleiten, Gleitfilm),  
Wärmequelle durch Reibung, Viskositäts-  
erhöhung durch Gegendruck) kann für  
die Modellbildung des Verarbeitungspro-  
zesses bzw. für den störungsfreien Be-  
trieb der Verarbeitungstechnologie abge-  
schätzt und begründet berücksichtigt  
oder vernachlässigt werden.

Durch Bildung dimensionsloser Kor-  
rekturfunktionen ist es erstmals möglich  
geworden, viskoelastische Polymer-  
schmelzen auf ihre komplexe rheologi-  
sche Ähnlichkeit zu prüfen. Bei Konstanz  
aller in dieser Arbeit abgeleiteten dimen-  
sionslosen Kennzahlen für unterschiedli-  
che Materialien kann von einer totalen  
Ähnlichkeit ausgegangen werden und  
somit wird keine Verarbeitungsmaschi-  
nennachstellung erforderlich sein. Der  
häufigste Fall wird eine partielle Ähnli-  
keit unterschiedlicher Polymerchargen  
sein. In dem Falle kann selektiv auf den  
Verarbeitungsprozeß eingewirkt werden,  
je nach dem, welche dieser Kennzahlen  
nicht konstant geblieben ist. Da diese  
Methode softwaremässig aufbereitet ist,  
können die Kunststoffverarbeiter im Quasi-  
echtzeitbetrieb direkte Verbindung zum  
Verarbeitungsprozeß herstellen und so-  
mit eine automatische Maschinensteue-  
rung über die Materialeigenschaften der  
verschiedenen Polymerchargen anstre-  
ben.

### Die Methode

Für die korrigierten Schubspannungen  
 $\tau_{\text{Korr}}|_{\dot{\gamma}=\text{const}}$  und für die korrigierten  
Schergeschwindigkeiten  $\dot{\gamma}_{\text{Korr}}|_{\tau=\text{const}}$  bei  
jeweils konstanter Schergeschwindigkeit

bzw. konstanter Schubspannung lassen sich folgende Gleichungen aufschreiben:

$$\tau_{ap} + \Delta\tau_{Diss} - \Delta\tau_{Bagley} = \tau_{Korr} \Big|_{\dot{\gamma}=\text{const}} \quad (1)$$

$$\dot{\gamma}_{ap} + \Delta\dot{\gamma}_{W/R} - \Delta\dot{\gamma}_{Mooney} = \dot{\gamma}_{Korr} \Big|_{\tau=\text{const}} \quad (2)$$

wobei:

$$\Delta\tau_i = \left| \tau_{ap} - \tau_i \text{ berechnet} \right|_{\dot{\gamma}=\text{const}} \quad (4)$$

$$\Delta\dot{\gamma}_i = \left| \dot{\gamma}_{ap} - \dot{\gamma}_i \text{ berechnet} \right|_{\tau=\text{const}} \quad (5)$$

sind.

Die Gleichungen (1) und (2) werden durch den Bezug auf die „gemessenen“ Schubspannungen  $\tau_{ap}$  und Schergeschwindigkeiten  $\dot{\gamma}_{ap}$  dimensionslos und man erhält dann:

$$1 + \frac{\Delta\tau_{Diss}}{\tau_{ap}} - \frac{\Delta\tau_{Bagley}}{\tau_{ap}} = \frac{\tau_{Korr}}{\tau_{ap}} \Big|_{\dot{\gamma}=\text{const}} \quad (6)$$

$$1 + \frac{\Delta\dot{\gamma}_{W/R}}{\dot{\gamma}_{ap}} - \frac{\Delta\dot{\gamma}_{Mooney}}{\dot{\gamma}_{ap}} = \frac{\dot{\gamma}_{Korr}}{\dot{\gamma}_{ap}} \Big|_{\tau=\text{const}} \quad (7)$$

$$\frac{\tau_{Korr}}{\tau_{ap}} = 1 \pm F_{\tau} \Big|_{\dot{\gamma}=\text{const}} \quad (8)$$

$$\frac{\dot{\gamma}_{Korr}}{\dot{\gamma}_{ap}} = 1 \pm F_{\dot{\gamma}} \Big|_{\tau=\text{const}} \quad (9)$$

$$\eta_{Korr} = \frac{\tau_{Korr}}{\dot{\gamma}_{Korr}} = \frac{(1 \pm F_{\tau} |_{\dot{\gamma}}) \cdot \tau_{ap}}{(1 \pm F_{\dot{\gamma}} |_{\tau}) \cdot \dot{\gamma}_{ap}} \quad (10)$$

Alle  $F_i$ -Werte dieser Funktionen können somit in Prozent angegeben werden. Die Funktionen  $F_i(\dot{\gamma})$  und  $F_i(\tau)$  lassen sich für die einzelnen Korrekturverfahren wie folgt angeben:

a) Für die Weißberg-Rabinowitsch Korrektur folgt:

$$F_{\dot{\gamma}W/R} = \left| \frac{n-1}{4n} \right| = \left| \frac{1}{4} \cdot \left( 1 - \frac{\tau_{ap}}{\dot{\gamma}_{ap}} \cdot \frac{d\dot{\gamma}_{ap}}{d\tau_{ap}} \right) \right| = f(\tau) \quad (11)$$

Diese Funktion ist in der Regel eine monoton steigende.

Die Weißberg-Rabinowitsch Korrektur bestimmt den tatsächlichen Geschwindigkeitsgradient an der Kapillarenwand für eine nicht-Newtonsche Flüssigkeit.

b) Für die Bagley-Korrektur folgt:

$$F_{\tau B} = \frac{P_C}{P_E} = f(\dot{\gamma}) \quad (12)$$

Wobei der Wert für  $P_C$  sowohl durch den linearen Bagley-Plot bestimmt werden kann, als auch durch ein nichtlineares Verfahren [1] ist es oft ratsam den elastischen Einlaufdruck zu bestimmen.

Die Bagley-Korrektur wird aus Messungen mit unterschiedlich langen Kapillaren, aber konstanten Durchmesser ermittelt. Dabei wird der Kapillareinlaufdruck über das Längen - Durchmesser Verhältnis der Kapillaren aufgetragen. Durch Extrapolation dieser Auftragung zu  $L/D = 0$  wird  $P_C$  bestimmt.

c) Für die Mooney-Korrektur folgt:

$$F_{\dot{\gamma}M} = \left| \frac{8 \cdot U_s}{D \cdot \dot{\gamma}_{ap}} \right| = f(\tau) \quad (13)$$

Die Mooney-Korrektur bestimmt das Verhalten der Polymeren an der Kapillarenwand. Aus Messung mit unterschiedlichen Kapillarendurchmessern, aber konstanter Länge, kann die Wandgleitgeschwindigkeit bestimmt werden.

Mit der Gegendruckkammer, wie weiter unten beschrieben, ist es möglich, den Kurvenverlauf dieser Funktion zu beeinflussen.

d) Für die Dissipationskorrektur [1] folgt:

$$F_{\tau D} = \left| 1 - \frac{\eta_{Diss}}{\eta_{ap}} \right| = f(\dot{\gamma}) \quad (14)$$

Der Einfluß des Druckes auf die Viskositätsfunktion wird weiter unten behandelt.

## Ergebnisse

In den folgenden Abbildungen sind exemplarisch ausgewählte Ergebnisse für LDPEs dargestellt. Rheologische und molekulare Daten dieser Materialien wurden in [2] veröffentlicht.

In *Abb. 1* ist die dimensionslose Weißberg-Rabinowitsch Korrekturfunktion (11) dargestellt und zwar für drei verschiedene Materialien. Man erkennt, daß dieser Einfluß im untersuchten Versuchsbereich bis zu 50–60 % betragen kann.

In *Abb. 2* ist die dimensionslose Bagley Korrekturfunktion (12) dargestellt. Man erkennt, daß dieser Einfluß im untersuchten Versuchsbereich je nach Kapillarenverhältnis  $L/D$  variieren kann. Zum Beispiel bei

$\frac{L}{D} = 2,5$  entspricht bis zu 40 – 50 %,

$\frac{L}{D} \geq 10$  entspricht bis zu 10 – 20 %,

$\frac{L}{D} \rightarrow 0$  (Cogswell-Düse) den Wert gegen 100 % entspricht.

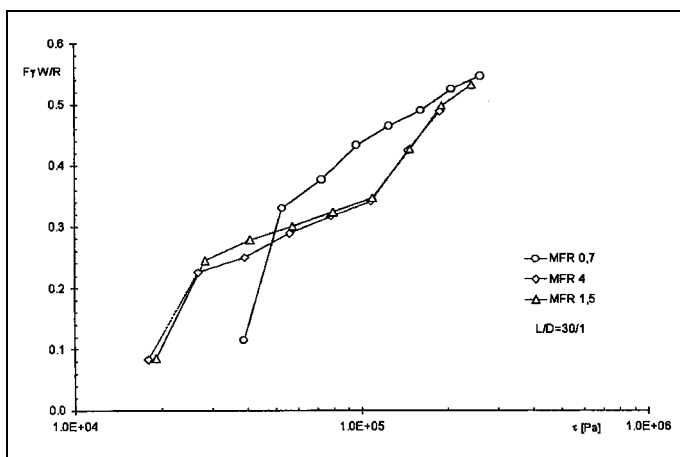


Abb. 1. Weißberg-Rabinowitsch-Korrekturfunktion

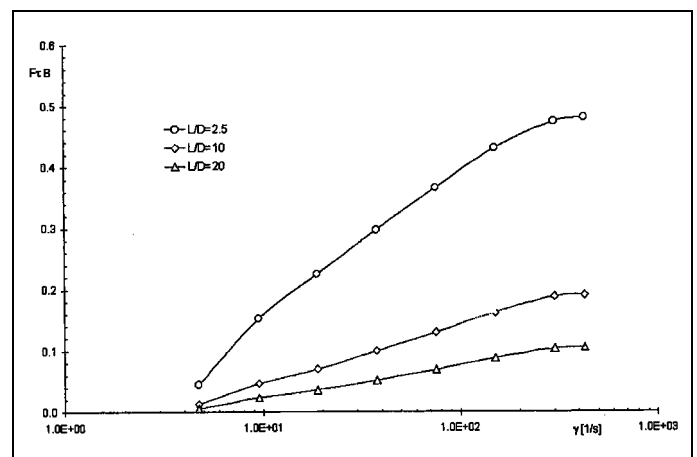


Abb. 2. Bagley-Korrekturfunktion

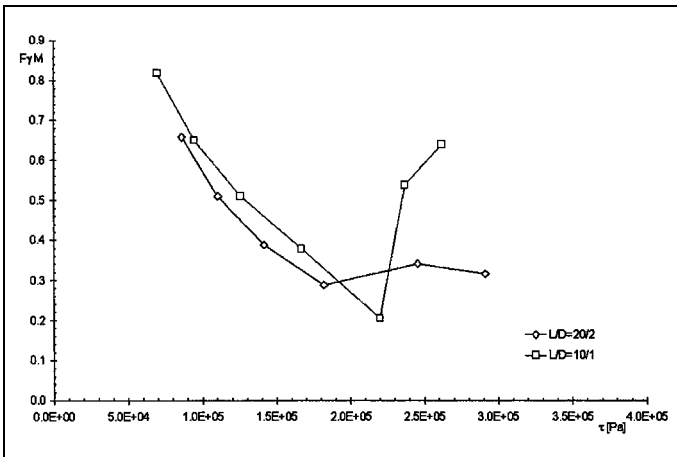


Abb. 3. Mooney-Korrekturfunktion

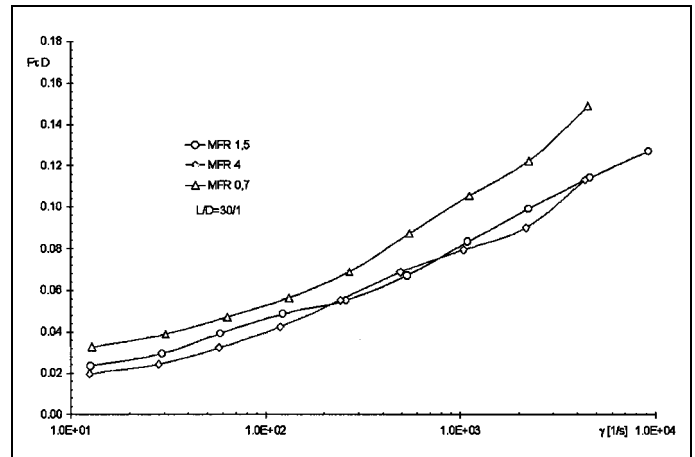


Abb. 4. Dissipations-Korrekturfunktion

In Abb. 3 ist die dimensionslose Mooney-Korrekturfunktion (13) dargestellt. Der Verlauf dieser Funktion ist äußerst mate-

rialspezifisch und ein prinzipieller Verlauf kann nicht vorausgesagt werden. Für stark gleitende Materialien überwiegt und bestimmt diese Funktion das Materialverhalten im Prozeß (äußere Reibung).

In Abb. 4 ist die dimensionslose Dissipations-Korrekturfunktion (14), ebenfalls für drei verschiedene LDPEs dargestellt. Im untersuchten Meßbereich beträgt dieser Anteil maximal nur ca. 15 %.

An diesen Beispielen wird deutlich, wie die einzelnen rheologischen Phänomene für die zu untersuchenden Materialien quantitative spezifische Wirkungen haben. In analoger Weise werden sie sich auch im Verarbeitungsprozeß auswirken.

### Der Druckeinfluß auf die Viskositätsfunktion

Unzureichend ist die Berücksichtigung des Druckeinflusses auf die Viskositätsfunktion. Da die Kapillarrheometrie der

Kunststoffschmelzen für die Bereitstellung praxisrelevanter Daten bevorzugt geeignet ist, wurde eine Gegendruckkammeroption zum Kapillarrheometer der Fa. Göttfert Rheograph 6000 [1], entwickelt (Abb. 5).

Mittels dieser Gegendruckkammer wird ein variabler mittlerer Druck in der Kapillare

$$P_m = \frac{P_{\text{Einlauf}} + P_{\text{Kammer}}}{2} \text{ erzeugt.}$$

In Abb. 6 ist die Viskosität  $\eta$  als Funktion des Druckes  $P_m$  und der Schergeschwindigkeit  $\dot{\gamma}$  dargestellt. Durch Approximation dieser Daten ist es möglich die Viskositätsfunktion bzw. Fließkurve mit dem Druckparameter  $P_m$  darzustellen (Abb. 7). Diese Kurven können zu einer Masterkurve mit dem Verschiebungsfaktor  $a_P$  zusammengefaßt werden (Abb. 8).

Die Ermittlung des Druckkoeffizienten  $\alpha = \frac{1}{\eta} \left( \frac{\partial \eta}{\partial P} \right)_{T, \dot{\gamma}}$  ergab Zahlenwerte, die

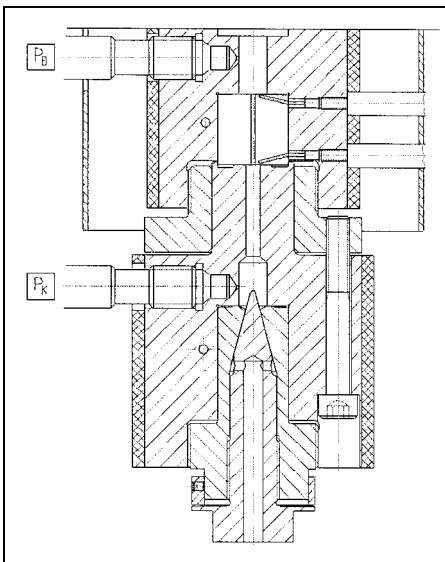


Abb. 5. Gegendruckkammer

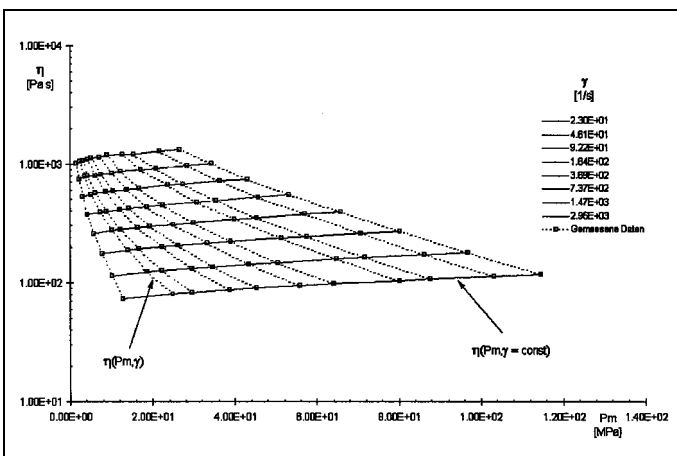


Abb. 6. Darstellung der Funktion  $\eta = f(\dot{\gamma}, P_m)$

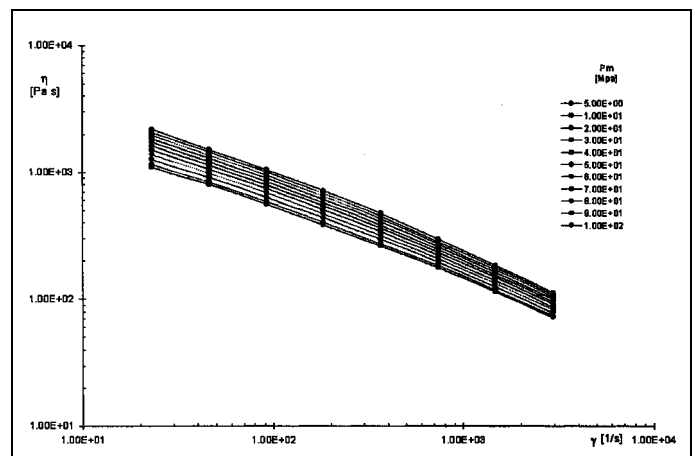


Abb. 7. Darstellung der Funktion  $\eta = f(\dot{\gamma})$  und  $P_m$  als Parameter



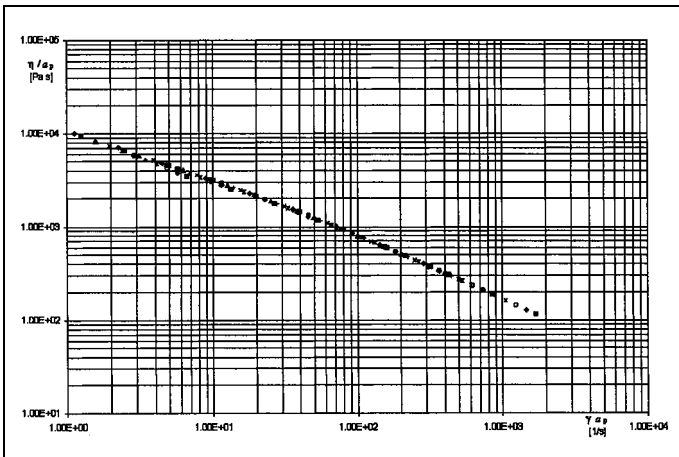


Abb. 8. Druckmasterkurve

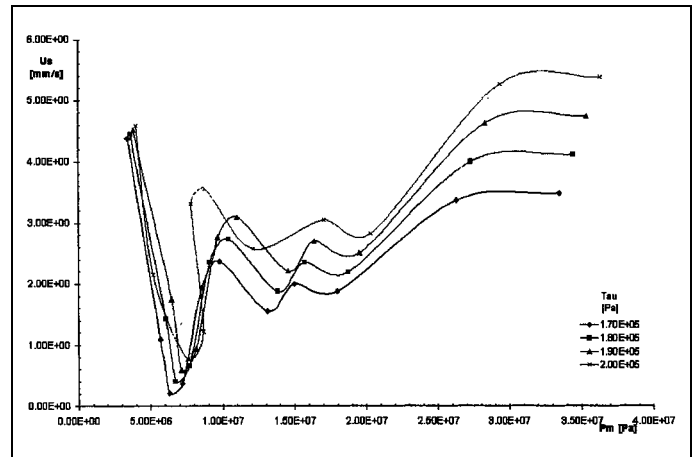


Abb. 9. Abhängigkeit der Wandgleitgeschwindigkeit vom Gegen- druck bei konstanter Scherspannung

sich um  $\alpha \approx (0,4 \div 1) \cdot 10^{-8} [\text{Pa}^{-1}]$  be- wegten und für diese Materialien mit Literaturdaten in guter Übereinstimmung waren.

Mit der nun möglichen experimentellen Bestimmung der kompletten Funktion  $\eta(\dot{\gamma}, T, P)$  kann das Yasuda-Modell [2] mit der WLF-Gleichung für die Tem- peratur ( $a_T$ ) und für den Druck ( $a_P$ ) for- muliert werden, um mit hoher Präzision für die Simulation des Spritzgußprozes- ses verwendet zu werden [3, 4].

Für wandgleitende Materialien wird durch den Gegendruck:

- Das Wandgleitverhalten beeinflusst (Abb. 9)
- Die kritische Schubspannung des Be- ginnns des Wandgleitens zu größeren Werten verschoben (Abb. 10).

Das Bild 9 veranlaßt zu folgender Interpretation:

Es existieren 3 Bereiche der Wandeffekte.

Bereich A: Der Gegendruck führt zur Erhöhung der Normalkraft auf die Wand der Kapillare durch die Flüssigkeit – die Coloumbsche Reibung (äußere Reibung) dominiert,  $U_S$  fällt bis auf Null ab,  $U_S \sim \frac{1}{P_m} |_{\tau=\text{const}}$ .

Bereich B: Das Material bewegt sich oszillatorisch – slip-stick dominiert,  $U_S$  folgt einer Schwingung mit  $P_m |_{\tau=\text{const}}$ .

Bereich C: Ein Gleitfilm bildet sich aus, auf dem das Material sich bewegt,  $U_S \approx \text{const} |_{\tau=\text{const}}$ .

Die Charakteristiken in den Abb. 9 und 10 bilden eine erweiterte Grundlage

für die Simulation der Verarbeitungs- prozesse mit der Randbedingung des Wandgleitens in der Schnecke und im Werkzeug [5].

Abbildung 9 weist daraufhin, daß es zweckmäßig erscheint im Bereich C die Maschine zu betreiben. In diesem Be- reich der Gleitfilmströmung werden die Oszillationen der Materialbewegung ver- mieden.

Abbildung 10 zeigt die kritische Schubspannung bei der Wandgleiten beginnt in Abhängigkeit vom Gegen- druck.

### Anwendung der rheologischen Ergebnisse auf den Verarbei- tungsprozeß

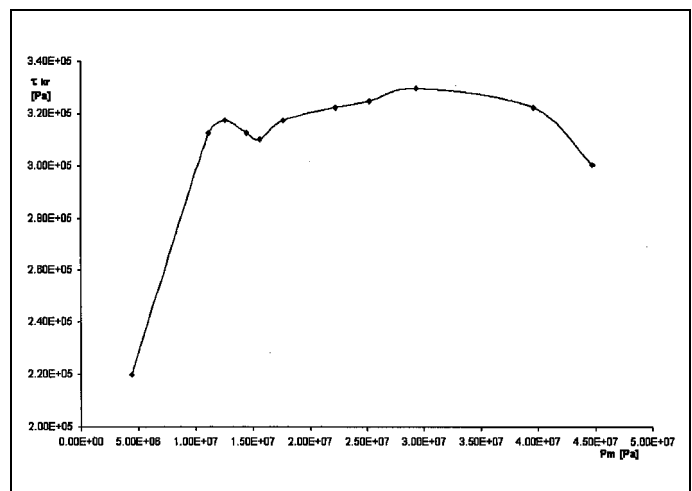
Aus den rheologischen Messungen und der Auswertung der Meßergebnisse nach der dargestellten Methode lassen

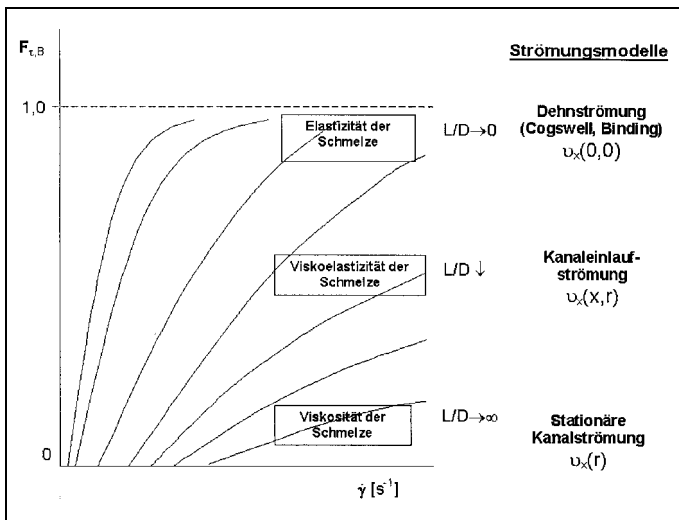
sich Wertigkeiten der einzelnen rheologi- schen Phänomene feststellen und somit materialspezifische Prozeßmodelle präzi- sieren. Hervorgehoben werden muß der starke Druckeinfluß auf die Viskositäts- funktion und das Wandverhalten der Schmelzen im Strömungskanal.

In der Tab. 1 ist eine Übersicht über technologische Wirkungen der makro- skopischen rheologischen Daten gege- ben. Direkte mathematische Zusammen- hänge dieser Daten können der Literatur entnommen werden [5, 6].

Deutlich wird, daß nicht nur die Visko- sitätsfunktion  $\eta(\dot{\gamma})$  eine wichtige Voraus- setzung für die Prozeßsimulation in der Kunststoffverarbeitung ist, sondern wei- tere Funktionen, die durch das Experim- ent mit dem Hochdruckkapillarrheome- ter und einer Gegendruckkammer als Option bestimmt werden können, not- wendig sind.

Abb. 10. Abhän- gigkeit der kriti- schen Scherspan- nung vom Druck





**Abb. 11. Schematische Darstellung der Bagley-Korrekturfunktion in Abhängigkeit vom L/D-Verhältnis der Kapillaren und von der Schergeschwindigkeit**

**Symbolverzeichnis**

- $\tau$  – Schubspannung [Pa]
- $\dot{\gamma}$  – Schergeschwindigkeit [ $s^{-1}$ ]
- $F_i$  – Korrekturfunktionen [–]
- $\eta$  – dynamische Viskosität [Pa s]
- $n$  – Fließexponent im Ostwald-de Waele-Ansatz [–]
- $P_C$  – Bagley-Einlaufdruck [Pa]
- $P_m$  – Mittlerer Druck in der Kapillare [MPa]
- $P_E$  – Einlaufdruck [Pa]
- $U_S$  – Gleitgeschwindigkeit [mm/s]
- $D$  – Durchmesser der Kapillare [mm]
- $L$  – Länge der Kapillare [mm]
- $\alpha$  – Druckkoeffizient [ $Pa^{-1}$ ]
- $M_W$  – Mittlere Molmasse [g/Mol]
- $\frac{M_W}{M_n}$  – Polydispersität [–]
- $v_x$  – Strömungsgeschwindigkeit in x-Richtung [mm/s]
- $x,r$  – Koordinaten [mm]

Am Beispiel der Bagley-Korrekturfunktion soll dieser Umstand verdeutlicht werden.

In Abb. 11 ist schematisch die Bagley-Korrekturfunktion im Abhängigkeit von L/D-Verhältnis der Kapillaren und von der Schergeschwindigkeit dargestellt. Je nach dem wie die Geometrie des Kanals ist, sind unterschiedliche Modellströmungsansätze auszuwählen (Dehnströmung, Kanaleinlaufströmung, stationäre Kanalströmung), da die visko-

elastischen Schmelzeigenschaften mit unterschiedlichen Wirkungen im Prozeß zum Tragen kommen.

Auch für die anderen Korrekturfunktionen und für den Druckeinfluß lassen sich ähnliche Modellentscheidungen treffen.

Indizes:

- ap – Apparent, geräteabhängig
- Korr – Korrigiert

**Literatur**

- [1] E. O. Reher, A. Göttfert, im Band der Fachbeiträge zur „Technomer '97“, Vortrag B04 Chemnitz 1997.
- [2] A. Göttfert, E. O. Reher, I. M. Balagula, Intern. Polym. Processing XIV (1999) **1**, 57–59.
- [3] S. E. Kadijk, B. H. A. A. Van den Brule, Polym. Eng. and Science, (1994) **34**, 1535.
- [4] K. M. B. Jansen, D. J. van Dijk, E. V. Burgers, Intern. Polym. Processing XIII (1998) **1**, 99 ff.
- [5] W. Knappe, in Hensen, Knappe, Potente (Hrsg.) „Kunststoff – Extrusionstechnik“ Bd. I Grundlagen Carl Hanser Verlag München, Wien (1989).
- [6] Z. Tadmor, C. G. Gogos, Principles of Polymer Processing John Wiley u. Sons, New York, Brisbane, Chichester, Toronto.

**Autoren**

Dr. Ing. A. Göttfert ist Geschäftsführer der Göttfert Werkstoff-Prüfmaschinen GmbH; Prof. Dr. sc. techn. Dr. h.c. E. O. Reher und Dipl.-Ing. I. M. Balagula sind Mitarbeiter der Göttfert Werkstoff-Prüfmaschinen GmbH im Bereich Forschung, Entwicklung und Anwendungstechnik.

Korrespondenz  
 Prof. Dr. E. O. Reher, Am Bruchsee 7,  
 D-06122 Halle/Saale.

Tab. 1. Technologische Wirkungen der makroskopischen rheologischen Größen		
Makroskopische rheologische Größen	Technologische Wirkungen	Molekularer Einfluß
Bagley – Einlaufdruck $P_C$	Zusätzlicher Druck in Kanälen (im Vergleich zur stationären Strömungsberechnung).	$M_w/M_n$
Fließindex $n$	Geschwindigkeitsgradient an der Wand hat Einfluß auf den Wärmeübergang.	$M_w/M_n$
Wandgleitgeschwindigkeit $U_S$	Durchsatzbestimmend, bzw. von großem Einfluß auf den Durchsatz (Antriebsleistung) und auf den Wärmetransport (an der Wand und im Strömungskern).	$M_w$
Dissipationserwärmung $\eta_{Diss}, \eta(\dot{\gamma})$	Materialüberhitzungen in kritischen Bereichen des Verarbeitungsprozesses.	$M_w, M_w/M_n$
Druckeinfluß $\alpha$	Erhöhter Druckverlust in der Maschine, Einfluß auf das Wandverhalten der Schmelze.	–