

## Неизотермическое формирование вязкоупругой полимерной пленки

### Non-isothermal process of viscoelastic polymer film casting

А.В. БАРАНОВ

A.V. BARANOV

Российский государственный университет нефти и газа (национальный исследовательский университет) имени И.М. Губкина, г. Москва  
Gubkin Russian State University of Oil and Gas (National Research University), Moscow

alexvbaranov@yahoo.co.uk

Рассматривается установившийся неизотермический процесс формирования вязкоупругой плоской полимерной пленки. Расплав полимера продавливается через плоскощелевую головку экструдера, подвергается одноосному растяжению и одновременно охлаждению на воздухе, затем поступает на приемно-охлаждающий валок. Предполагается, что пленка достаточно широкая и расстояние между головкой экструдера и приемным валком минимально до такой степени, что можно пренебречь изменением ширины полотна в процессе продольной вытяжки. Считается также, что силами тяжести, инерции и поверхностным натяжением можно пренебречь. С реологической точки зрения расплав полимера представляет собой вязкоупругую жидкость. Используется верхняя конвективная модель Максвелла с вязкостью, зависящей от температуры. Задача решена численно методом конечных разностей.

*Ключевые слова:* вязкоупругая жидкость, формирование пленок, теплообмен

The steady-state non-isothermal process of viscoelastic flat polymer film casting is considered. The polymer melt is extruded through a flat die, subjected to uniaxial stretching and at the same time air cooling, and then finally cooled down on a chill roll. It is assumed that the film is wide enough, the distance between the extruder die and the cooling roller is minimal to such an extent that it is possible to neglect change of width of a film in the course of longitudinal stretching. It is also believed that the forces of gravity, inertia and surface tension can be ignored. From a rheological standpoint, polymer melt is the viscoelastic fluid. The upper-convective Maxwell model with temperature-dependent viscosity is used. The problem is solved by a numerical method of finite differences.

*Keywords:* viscoelastic fluid, film casting, heat transfer

DOI: 10.35164/0554-2901-2019-5-6-27-29

Рассматривается установившийся неизотермический процесс формирования вязкоупругой плоской полимерной пленки. Расплав полимера продавливается через плоскощелевую головку экструдера, подвергается одноосному растяжению и одновременно охлаждению на воздухе, затем поступает на приемно-охлаждающий валок (рис. 1). Предполагается, что пленка достаточно широкая и расстояние между головкой экструдера и приемным валком минимально до такой степени, что можно пренебречь изменением ширины полотна в процессе продольной вытяжки. Считается также, что силами тяжести, инерции и поверхностным напряжением можно пренебречь. С реологической точки зрения расплав полимера считается вязкоупругой жидкостью с вязкостью, зависящей от температуры.

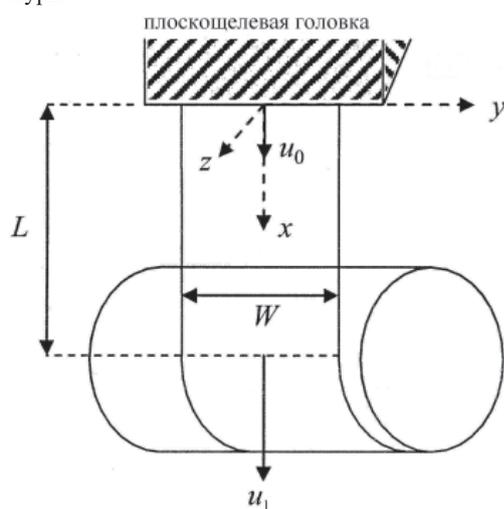


Рис. 1. Схема процесса.

Массовое мировое производство пленок, в том числе плоских, явилось причиной того, что в отечественной и мировой литературе появилось достаточно большое количество работ, посвященных математическому моделированию процессов формирования и теплообмена при производстве различных пленок. В первую очередь можно упомянуть публикации [1–4], в которых используется модель ньютоновской жидкости. И если в [2] рассматривается изотермическая задача с постоянной шириной пленки, то в [1, 3, 4] ширина пленки меняется в ходе формирования. При этом в работах [1, 3] рассматривается также и тепловая задача по охлаждению пленки с вязкостью, зависящей от температуры согласно закону Аррениуса. Плотность и теплоемкость также являлись функциями температуры. Во всех трех работах рассматривались условия стабильности процесса.

Использование ньютоновских моделей дает весьма условный результат, т.к. расплавы полимеров представляют собой неньютоновские жидкости с ярко выраженными вязкоупругими свойствами. Так, например в [5, 6] использовалась реологическая модель интегрального типа. При этом плотность и теплоемкость в обеих работах считались зависящими от температуры. Кроме того, в [5] время релаксации также являлось функцией температуры по закону Аррениуса. В обоих случаях задача решалась численно методом конечных элементов. В [7] для неизотермических условий использовалась вязкоупругая модель Ларсона. Как и в [5], зависимость времени релаксации от температуры описывалась по закону Аррениуса. В [8] при моделировании неизотермического процесса привлекалась расширенная Pom-Pom модель. Вязкость и время релаксации зависели от температуры по закону Аррениуса. Задача решалась численно с помощью метода Рунге-Кутты четвертого порядка. И наконец, в [9] моделирование изотермической экструзии пленок проводилось с помощью модифицированной модели Леонова. Полученные расчеты сравнивались с теоретическими и экспериментальными данными, приведенными в [8].

И все же за последние примерно 25–30 лет среди исследователей особенно широкое распространение получили реологические модели Гисекуса и Фан-Тьен-Таннера. Часто используемая верхнеконвективная модель Максвелла (ВКМ) может рассматриваться как частный случай первых двух. Все три относят к скоростному (релаксационному) типу реологических моделей. Часто, особенно в зарубежной литературе, их еще называют дифференциальными.

Первоначально необходимо отметить работы, которые посвящены исследованию стабильных условий формования плоских пленок в изотермических условиях на основе модели ВКМ [10–14]. В [10] используется модифицированная модель ВКМ, когда вязкость зависит от скорости деформации согласно модели Карро. В [11] ширина пленки предполагалась постоянной, а сравнение расчетов с экспериментом показало хорошее соответствие. В [12–14] ширина пленки считалась переменной, и авторы использовали численные методы. Так, в [12] система уравнений решалась методом Рунге-Кутты четвертого порядка. А в [13, 14] привлекался метод конечных элементов с использованием метода Галеркина. На основе той же реологической модели ВКМ работы [15, 16] больше посвящены моделированию теплообмена и его влияния на процесс формования. В [15] задача решалась при постоянной ширине пленки с вязкостью, зависящей от температуры. Однако больший интерес представляет [16], где рассматривались процессы теплообмена и кристаллизации. После начала кристаллизации полимер рассматривался как смесь аморфной и кристаллической фаз. При этом для аморфной части полимера вязкость зависела от температуры, а время релаксации являлось функцией температуры и степени кристалличности. Использовалась модель обобщенной жидкости Максвелла, которая в частном случае приводила к классической модели ВКМ.

В данной работе вязкоупругие реологические свойства описываются верхнеконвективной моделью Максвелла (ВКМ) с вязкостью, зависящей от температуры:

$$\tau + \lambda \left( \frac{\partial \tau}{\partial t} + \vec{V} \cdot \nabla \tau - \nabla \vec{V}^T \cdot \tau - \tau \cdot \nabla \vec{V} \right) = \mu (\nabla \vec{V} + \nabla \vec{V}^T) \quad (1)$$

где  $\tau$  – экстра тензор напряжений,  $\lambda$  – время релаксации,  $\vec{V}$  – вектор скорости,  $\mu$  – вязкость при нулевой скорости сдвига. Поставленная задача решается для неизотермического случая, когда вязкость считается зависящей от температуры:

$$\mu = \mu_0 \exp[b(T_0 - T)] \quad (2)$$

где  $T$  – температура полимера,  $T_0$  – температура расплава на выходе из плоскощелевой головки,  $b$  – экспериментально определяемая эмпирическая константа,  $\mu_0$  – вязкость при температуре  $T_0$ .

ВКМ модель дает неограниченное возрастание напряжений при очень высоких скоростях деформаций [16]. Этого недостатка лишены модели Гисекуса и Фан-Тьен-Таннера. Однако при разумно ограниченных скоростях деформации, что имеет место в переработке полимеров, модель ВКМ широко используется при моделировании различных видов течения.

Для данного вида формования плоской пленки реологическая модель (1) в упрощенной форме примет вид:

$$\tau_{xx} - 2\lambda\tau_{xx}\dot{u} = 2\mu\dot{u}, \quad \tau_{zz} + 2\lambda\tau_{zz}\dot{u} = -2\mu\dot{u} \quad (3)$$

где  $u$  – скорость в продольном направлении;

$$\dot{u} = \frac{du}{dx};$$

$\tau_{xx}, \tau_{zz}$  – компоненты экстра тензора напряжений в направлении соответствующих координатных осей.

Из (3) нетрудно получить выражение для первой разности напряжений:

$$\tau_{xx} - \tau_{zz} = \frac{4\mu\dot{u}}{1 - 4\lambda^2\dot{u}^2} \quad (4)$$

При постановке задачи, как уже отмечалось, пренебрегаются инерционные силы и поверхностное напряжение. В этом случае математическая модель данного процесса состоит из следующей системы уравнений:

$$hWu = Q = \text{const} \quad (5)$$

$$W \frac{d}{dx} [(\tau_{xx} - \tau_{zz})h] = \frac{dF}{dx} = 0 \quad (6)$$

где  $F$  – постоянное растягивающее усилие;  $W$  – ширина полотна;  $h$  – толщина пленки;  $Q$  – объемный расход полимера,  $Q = h_0Wu_0$ ;  $h_0, u_0$  – толщина пленки и скорость потока на выходе из плоскощелевой головки.

Используя уравнение неразрывности (5), уравнение движения (6) можно представить в следующем виде:

$$Q \frac{d}{dx} \left( \frac{\tau_{xx} - \tau_{zz}}{u} \right) = \frac{dF}{dx} = 0 \quad (7)$$

Последнее уравнение также можно переписать:

$$\frac{\tau_{xx} - \tau_{zz}}{u} = \frac{F}{Q} \quad (8)$$

Ввиду неизотермичности процесса математическую модель необходимо дополнить уравнением теплового баланса [17]:

$$\rho c_p h u \frac{dT}{dx} = 2\alpha(T_a - T) + 2\lambda\varepsilon(T_a^4 - T^4) \quad (9)$$

где  $\rho, c_p$  – плотность и теплоемкость полимера;  $T, T_a$  – температура расплава и окружающего воздуха соответственно;  $\alpha$  – коэффициент теплоотдачи;  $\lambda$  – постоянная Стефана-Больцмана;  $\varepsilon$  – коэффициент излучения.

Уравнение теплового баланса записано в предположении, что диссипативными тепловыделениями и теплотой кристаллизации, а также осевой теплопроводностью можно пренебречь. Теплофизические свойства считаются постоянными. Температура расплава однородна по толщине пленки и зависит только от продольной координаты.

Систему (2), (4), (8) и (9) необходимо дополнить граничными условиями:

$$x = 0 \quad u = u_0 \quad h = h_0 \quad T = T_0 \quad (10)$$

$$x = L \quad u = u_1 \quad h = h_1 \quad (11)$$

Задача решалась по итерационной схеме численно методом конечных разностей. Изначально на нулевом шаге итерации использовались распределение скорости и толщины пленки для ньютоновской жидкости в изотермических условиях. Это решение известно [18]:

$$\bar{u}(x) = u_0 \left( \frac{u_1}{u_0} \right)^{\frac{x}{L}}$$

$$\bar{h}(x) = h_0 \left( \frac{u_0}{u_1} \right)^{\frac{x}{L}}$$

Как и во многих работах, процитированных выше, растягивающее усилие  $F$  вычислялось таким образом, чтобы удовлетворялось граничное условие  $u = u_1$  при  $x = L$ .

Ниже представлены некоторые результаты расчетов, произведенные в безразмерном виде. На рис. 2 показано изменение безразмерной скорости  $U = u/u_0$  вдоль безразмерной продольной координаты  $X = x/L$  при различных значениях числа Вайсенберга

$$Wi = \frac{\lambda u_0}{L}$$

(во многих работах называемого также числом Деборы). Видно, что чем больше число Вайсенберга, т.е. чем ярче проявляются вязкоупругие свойства, тем кривая все ближе к линейной зависимости. Правда, здесь необходимо отметить, что данные расчеты проведены для случая, когда пренебрегается процесс кристаллизации и коэффициент теплоотдачи имеет незначительную величину  $\alpha = 10 \text{ Вт}/(\text{м}^2 \cdot \text{К})$ . Учет же процесса кристаллизации с его тепловыделением и влиянием на вязкость полимера может привести к значительной трансформации кривых, приведенных на рис. 2.

На рис. 3 показано изменение безразмерной температуры пленки

$$\theta = \frac{T - T_a}{T_0 - T_a}$$

от безразмерной продольной координаты  $X = x/L$  при различных условиях вытяжки и охлаждения. Здесь также следует подчеркнуть, что в случае учета процесса кристаллизации пленки с включением в уравнение энергии удельной теплоты кристаллизации распределение температуры может качественно измениться [20]. В этом случае систему уравнений, описывающих процесс получения

пленки, необходимо было бы дополнить уравнением, описывающим кинетику неизотермической кристаллизации [18, 20].

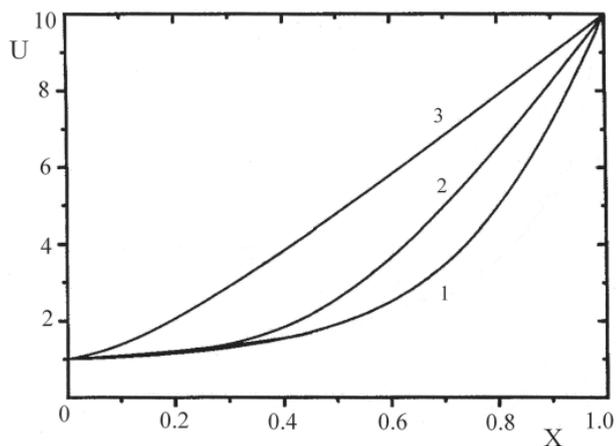


Рис. 2. Зависимость скорости от продольной координаты при различных числах  $Wi$ . 1 –  $Wi = 0,01$ ; 2 –  $Wi = 0,02$ ; 3 –  $Wi = 0,04$ .

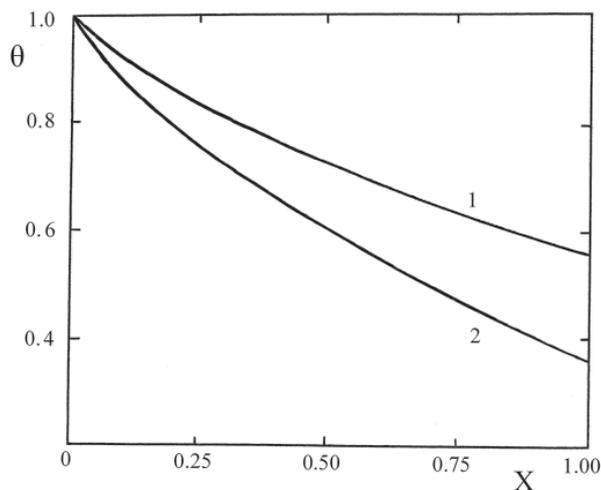


Рис. 3. Зависимость температуры пленки от продольной координаты. 1 –  $u_L / u_0 = 10$ ,  $\alpha = 20$  Вт/(м<sup>2</sup>·К); 2 –  $u_L / u_0 = 20$ ,  $\alpha = 30$  Вт/(м<sup>2</sup>·К).

#### Литература

1. Cotto D., Duffo P., Haudin J.M. Cast film extrusion of polypropylene films // *Int. Polym. Proc.*, 1989, V. 4, No. 2, P. 103–113.
2. Barq P., Haudin J.M., Agassant J.F. Instability phenomena in film casting process // *Int. Polym. Proc.*, 1990, V. 5, No 4, P. 264–271.
3. Barq P., Haudin J.M., Agassant J.F. Isothermal and anisotherma, models for cast film extrusion // *Int. Polym. Proc.*, 1992, V. 7, No 4, P. 334–349.

4. Silagy D., Demay Y., Agassant J.F. Numerical simulation of the film casting process // *Int. J. Numerical Methods in Fluids*, 1999, V. 30, P. 1–18.
5. Alaie S.M., Papanastasiou T.C. Film Casting of viscoelastic liquid // *Polym. Eng. Sci.*, 1991, V. 31, No 2, P. 67-75.
6. Beaulne M., Mitsoulis E. Numerical simulation of the film casting process // *Int. Polym. Proc.*, 1999, V. 14, No 3, P. 261–275.
7. Satoh N. Viscoelastic simulation of film casting process for polymer melt // *Polym. Eng. Sci.*, 2001, V. 41, No 9, P. 1564–1579.
8. Pol H., Banik S., Azad L.B., Thete S. Nonisothermal analysis of extrusion film casting process using molecular constitutive equations // *Rheol. Acta*, 2014, V.53, P. 85–101.
9. Zatloukal M., Barborik T. Effect of extensional viscosity, elasticity and die stress state on neck-in phenomenon during extrusion film casting: theoretical study // *SPE ANTEC*, 2016, P. 715–719.
10. Anturkar N.R., Co A. Draw resonance in film casting of viscoelastic fluids: a linear stability analysis // *J. Non-Newton. Fluid Mech.*, 1988, V. 28, P. 287–307.
11. Barq P., Haudin J.M., Agassant J.F., Bourgin P. Stationary and dynamic analysis of film casting process // *Int. Polym. Proc.*, 1994, V. 9, No 4, P. 350–358.
12. Silagy D., Demay Y., Agassant J.F. Study of the stability of the film casting process // *Polym. Eng. Sci.*, 1996, V. 36, No 21, P. 2614–2625.
13. Silagy D., Demay Y., Agassant J.F. Stationary and stability analysis of the film casting process // *J. Non-Newton. Fluid Mech.*, 1998, V. 79, P. 563–583.
14. Kim J. M., Lee J.S., Shin D.M., Jung H.W. Transient solutions of the dynamics of film casting process using a 2-D viscoelastic model // *J. Non-Newton. Fluid Mech.*, 2005, V.132, P. 53–60.
15. Boratav O.N., Zheng Z., Zhou C. Influence of heat transfer on stability of newtonian and non-newtonian extending films // *Int. J. Mech. and Mechatronics Eng.*, 2013, V. 7, No 6, P. 1163–1166.
16. Barot G., Rao I.J. Modeling the film casting process using a continuum model for crystallization in polymers // *Int. J. Non-Linear Mech.*, 2005, V. 40, P. 939–955.
17. Hagen T. C. Elongational flows in polymer processing. PhD Dissertation. Virginia Tech, 1998.
18. Баранов А.В., Тябин Н.В., Герасименко В.А. Математическое описание реодинамики и теплообмена при формировании рукавной пленки раздувом // *Инженерно-физический журнал*, 1988, т. 54, № 6, С. 956–962.
19. Demay Y., Agassant J.F. An overview of molten polymer drawing instabilities // *Int. Polym. Proc.*, 2014, V. 29, No 1, P. 128–139.
20. Баранов А.В., Дахин О.Х., Ляпков А.В., Тябин Н.В. Математическое моделирование процесса формирования плоской полимерной пленки // *Инженерно-физический журнал*, 1990, Т.53, № 5, С. 862–866.