

氏 名	ふく 岡 孝 政
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 乙 第 87 号
学位授与の日付	平成 12 年 11 月 28 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学位論文題目	反応押出プロセスの数値解析に関する研究
審 査 委 員	(主査) 教 授 高 橋 雅 興 教 授 木 村 良 晴 教 授 前 川 善 一 郎

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は高分子工業において近年著しい進歩を遂げている、反応押出のプロセッシング技術に関するものである。本研究は、あらゆる反応押出プロセスの合理的設計を可能とする数値解析技術を構築すべく、流体力学および反応工学に基づく解析モデルの確立、それに従う総合的シミュレーターの開発と有効性確認を目標として行われた。本論文は7章から構成されており、以下に各章の概要を示す。

まずⅠ章の緒論では、研究の背景、目的、方法について述べている。

Ⅱ章では反応押出の基礎に関する従来の研究をまとめた。反応別・目的別の分類により反応押出を新たに体系化するとともに、技術の可能性と課題、プロセス設計のポイント等を論じている。さらに、本論文の主題であるプロセス解析の基本モデルに対する考え方を述べている。

Ⅲ章では、本研究の数値解析の基盤となる、Flow Analysis Network法について検討している。二軸スクリュ押出機における非等温・非Newton流動解析を行い、二次元流動場で各ベクトル分布やスカラー分布を再現している。加えてエネルギー方程式の安定解法、混練性能の定量評価法についても新たな手法を考案している。スクリュポンピング特性や昇温特性を試算する一方で、モデル押出機を用いた実験で試算結果との一致を確認している。

Ⅳ章～Ⅵ章では、具体的な反応押出に対する取り組みについて述べている。

Ⅳ章では、非噛み合い型異方向回転二軸スクリュ押出機で行う、パーオキサイド制御によるポリプロピレンの分解反応を検討した。押出機内部で反応過程にあるポリマーの流動状態をモデル化し、同反応がスクリュポンピング性能に与える影響を定量的に明らかにした。

Ⅴ章では、噛み合い型同方向回転二軸スクリュ押出機で行う、ポリエチレンのビニルシランとのグラフト反応を取り上げている。動力学モデルに基づく反応速度や分子量変化、せん断粘度の基礎式、並びに押出機全域を解析するための計算スキームを確立している。シミュレーションにより、各操作条件が圧力、温度、滞留時間および反応転化率に及ぼす影響を明らかにし、実験結果との比較でその妥当性も確認している。

Ⅵ章では、同じく同方向回転二軸スクリュ押出機で行う、ブチルアクリレートの塊状重合を検討した。ここでは実験的研究を先行させ、従来のラジカル重合押出における問題点の克服に努めた。そして新たに重合システムを構築し、操作設計に必要な基礎データを収集している。さらに反応動力学のパラメータを定量し、それを用いる数値計算で実験データの解釈を試みている。

最後のⅦ章では、以上の取り組みの結論と今後に残された課題について述べている。

論文審査の結果の要旨

従来、反応押出の研究は材料の視点に立つものが多く、プロセシングの研究は充分になされていなかった。そのため、プロセスの設計がエンジニアのスキルに依存する傾向にあった。本研究はこれらの背景をふまえ、より工学的な観点から課題が設定され、解決手段が講じられている。

具体的には、Flow Analysis Network法による二軸スクリュ押出機のモデル化において、スクリュ部との噛み合い部を同時に直交座標上に展開させることで、非噛み合い異方向回転型と噛み合い同方向回転型という、全く性格が異なる押出機を同一手法で評価することを可能としている。また非等温問題と反応動力学的数値解法のために考案した逆行流線のシミュレーションは、流体の履歴等を探る上で極めて有力な手段となり得る。

ポリプロピレンやポリエチレンのラジカル反応においては、ポリマーの分子量分布をFree Radical Kineticモデルで、またせん断粘度を平均分子量の関数とする修正Crossモデルで記述することにより、反応のスクリュポンピング特性に及ぼす影響を予測できるようになった。その結果、原料供給口からダイ出口に至る押出機全域での、樹脂圧力、充填率、滞留時間、温度のプロファイル、ならびに反応転化率、平均分子量、せん断粘度のプロファイルの推定が可能となった。これほど総合的なシミュレーションは前例が無く、しかも実験による検証もなされており、一連の研究成果は工業的価値が高い。

ブチルアクリートのラジカル重合に関する研究では、低温重合が可能な独自システムを構築し、各操作因子が反応転化率や分子量分布に及ぼす影響を実験的に明らかにしている。従来の技術で得られる生成物は、反応転化率と重合度が低く、分布巾が極めて広いものであったが、本研究では、重量平均分子量Mwが100万以上、数平均分子量との比Mw/Mnが3未満のポリマーを、バルク状態で回収することに成功している。重合押出ではこれまで理論的研究が先行し、実験事実が伴わない状況にあったが、本研究により始めて数値解析の有効性が実証された。

本論文の基礎となっている学術論文は、申請者がすべて筆頭著者となっており、レフェリー制度の確立した雑誌に5篇が掲載され、2篇が印刷中である。

1. T. Fukuoka and K. Min "Numerical Non-isothermal Flow Analysis of Non-Newtonian Fluid in a Nonintermeshing Counter-Rotating Twin Screw Extruder", Polym. Eng. & Sci, 34, No.13, 1033-1046 (1994)
2. 福岡孝政, K. Min "FAN法による非かみ合い型異方向回転二軸押出機の非等温・非Newton流動解析", 成形加工, 6, No.11, 773-780 (1994)
3. 福岡孝政, K. Min "二軸スクリュ押出機におけるリアクティブプロセシングの流動解析", 成形加工, No.8, 521-528 (1995)
4. 福岡孝政, 岡部優志 "同方向回転二軸スクリュ押出機におけるブチルアクリートの塊状重合: その1、実験的研究による操作条件の把握", 成形加工, 9, No.12, 981-987 (1997)
5. 福岡孝政 "同方向回転二軸スクリュ押出機におけるブチルアクリートの塊状重合: その2、反応操作の数値解析", 成形加工, 9, No.12, 988-994 (1997)
6. T. Fukuoka "Numerical Analysis of a Reactive Extrusion Process, Part I: Kinetics Study on Grafting of Vinylsilane to Polyethylene", Polym. Eng. & Sci, 40, No.12 (2000) in press.
7. T. Fukuoka "Numerical Analysis of a Reactive Extrusion Process, Part II: Simulations and Verifications for the Twin Screw Extrusion", Polym. Eng. & Sci., 40, No.12 (2000) in press.