

Entwicklung eines gekühlten Waveguides zur inline Messung des Strömungsprofils von Polymerschmelze mittels Ultraschall

Veronika Putz¹, Sylvia Apostol², Bernhard G. Zagar³, Jürgen Miethlinger²

¹ Linz Center of Mechatronics GmbH, 4040 Linz, Österreich, Email: Veronika.Putz@lcm.at

² Institute for Polymer Extrusion and Compounding, Johannes Kepler Universität, 4040 Linz, Österreich

³ Institut für Elektrische Messtechnik, Johannes Kepler Universität, 4040 Linz, Österreich

Einleitung

Bei der Extrusion von Polymeren werden die verwendeten Rohmaterialien (z.B. compoundiertes Granulat mit geeigneten Verstärkungs- und Füllstoffen) mit Hilfe einer sich drehenden Schnecke durch Reibungswärme und durch zusätzliche Beheizung der Zylinderwand plastifiziert (siehe Abb. 1). Anschließend wird die Schmelze durch ein formgebendes Werkzeug (im gezeigten Fall durch eine Kapillardüse mit rechteckigem Kanalquerschnitt, Breite 20 mm, Höhe d von 0.8 mm bis 1.2 mm variierbar) gepresst. Im gegebenen Fall wird hierfür eine Zahnradpumpe zwischengeschaltet. Sie ermöglicht einen variablen Massedurchsatz durch die Messdüse bei konstanten Extrusionsbedingungen. Um das rheologische Verhalten der Polymerschmelze bestimmen zu können, muss das Strömungsprofil, mit welchem die Schmelze durch die Kapillardüse fließt, bekannt sein, siehe z.B. [1]. Besonders interessant ist dabei, ob wandgleitendes oder wandhaftendes Verhalten vorliegt (siehe Abb. 1). Ebenso kann die Messung des erzielten Strömungsprofils (besonders am Ausgang der Kapillardüse) zur Verifikation eines neuen Düsen-Designs hilfreich sein.

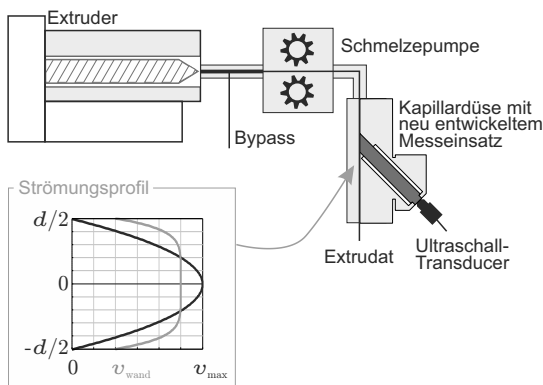


Abbildung 1: Skizze eines Extruders mit Schmelzepumpe und Kapillardüse. Das Inset zeigt mögliche Strömungsprofile in der Kapillardüse, die wandgleitend (grau) oder wandhaftend (schwarz) sein können.

Derzeit ist eine Messung des Strömungsprofils direkt während der Extrusion ausschließlich mit optischen Methoden¹ möglich. Allerdings ist dabei die bei der Messung erzielbare Eindringtiefe selbst bei nahezu transparen-

¹Zu erwähnen sind hier Laser-Doppler-Anemometrie und Optische Kohärenz-Tomografie, die jeweils die Strömungsgeschwindigkeit von mit der Schmelze mittransportierten Streuteilchen messen, siehe dazu [2, 3].

ter Polymerschmelze gering, und opake Kunststoffe (beispielsweise mit Mineralpulver als Füllstoff) können nicht gemessen werden. Zudem ist die Messung nur durch ein Sichtfenster in der Kapillardüse möglich, wodurch zwar das Gleitverhalten der Schmelze auf dem Material des Sichtfensters, nicht aber auf dem Material des Schmelze Kanals einer Anlage (idR Werkzeugstahl) gemessen werden kann. Da die Begrenzungsflächen das Wandgleitverhalten des Polymers beeinflussen², können mit optischen Methoden nur bedingt Aussagen über das Fließverhalten in der Düse getroffen werden.

Eine Möglichkeit, mit der das Strömungsprofil auch in opaker Schmelze gemessen werden kann, bietet das Ultraschall-Puls-Wave (UPW) Verfahren (siehe z.B. [5, 6]), welches in Abb. 2 skizziert wird: Der grau schattierte Strömungskanal wird von einer Flüssigkeit in x -Richtung durchströmt, gemessen werden soll das Strömungsprofil in z -Richtung. Ein Ultraschall-Wandler (Ultraschall-Transducer, UT) erzeugt einen Impuls, der sich im Strömungskanal im Winkel α_{UT} schräg zur Strömungsrichtung ausbreitet. Beim Eintritt in die Schmelze ändert sich die Ausbreitungsrichtung durch Brechung zum Winkel α_S . Ein bei Kanaltiefe z_P mitfließendes Partikel mit Geschwindigkeit v_P streut den sich ausbreitenden Impuls. Die rücklaufende Welle (das Echo) wird vom UT aufgezeichnet. Mit einer Messung kann

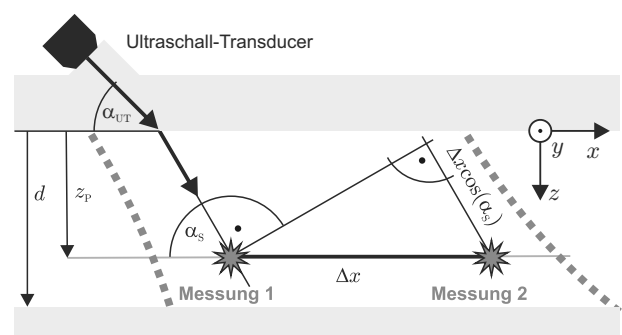


Abbildung 2: Prinzipbild UPW: Die Messungen 1 und 2 erfolgen durch Streuung aufeinanderfolgender Impulse an einem Partikel in der Flüssigkeit. Die grau strichlierten Linien skizzieren das Schallfeld des UT im Strömungskanal.

z_P aus der gemessenen Laufzeit t und aus der Schallgeschwindigkeit c_S in der Schmelze berechnet werden (Gl. 1). Wird die Messung mehrfach mit einer Puls-

²Die Abhängigkeit des Wandgleitens vom Material der begrenzenden Kanalfächen wird in [4] beispielsweise für Polyethylen in Kapillardüsen mit vergleichbarer Geometrie dokumentiert.

Wiederholfrequenz f_{PRF} durchgeführt, dann legt das Teilchen zwischen zwei aufeinanderfolgenden Messungen die Strecke Δx zurück (siehe Abb. 2). Durch den Ausbreitungswinkel α_s in der Schmelze ergibt sich zwischen den Messungen ein Laufzeitunterschied Δt , der entsprechend Gl. 2 von Δx abhängt. Daraus kann die Partikelgeschwindigkeit $v_P(z_P)$ berechnet werden (Gl. 3). Enthält die gemessene Flüssigkeit eine kontinuierliche Verteilung vieler mitströmender Partikel, dann kann die Fließgeschwindigkeit als Funktion von z bestimmt werden. Um die Auswertung trotz Überlappung der Echos von einzelnen Streuteilchen zu ermöglichen empfiehlt es sich, anstelle von Δt die Phasenverschiebung $\Delta\Phi$ bezogen auf die nominelle Mittenfrequenz f_{T0} des verwendeten Transducers für unterschiedliche Kanaltiefen z zu bestimmen (Gl. 4).

$$z_P = \frac{c_S t}{2} \sin \alpha_S \quad (1)$$

$$\Delta t = 2 \frac{\Delta x \cos \alpha_S}{c_S} \quad (2)$$

$$v_P = \Delta t \frac{c_S f_{\text{PRF}}}{2 \cos \alpha_S} \quad (3)$$

$$v(z) = \Delta\Phi(z) \frac{c_S f_{\text{PRF}}}{4\pi f_{T0} \cos \alpha_S} \quad (4)$$

Entwickelter Messaufbau

Grundsätzlich kann das beschriebene UPW-Verfahren auf Polymerschmelze angewandt werden, sobald sich in der Schmelze geeignete Streupartikel befinden. Dazu eignen sich beispielsweise Glasfasern oder Talkumpulver — Materialien, die häufig zur Verstärkung des Polymers verwendet werden. Die Anforderungen an die Messeinrichtung sind aufgrund der physikalischen Eigenschaften der Schmelze im Strömungskanal³ allerdings hoch:

- Die geringe Tiefe des Strömungskanals erfordert UT mit Mittenfrequenzen um 10 MHz und kurzer Pulsdauer bzw. großer Bandbreite, was die Anwendung von hochtemperaturbeständigen Schallwandlern (siehe z.B. [7]) ausschließt. Labor-UT in der geforderten Qualität dürfen allerdings nur bis ca. 50°C betrieben werden, höhere Temperaturen würden den Sensor zerstören.
- Die niedrige akustische Impedanz der Schmelze verursacht hohe Reflexionsverluste beim Einkoppeln des Ultraschalls; ein Einkoppeln von außen über die Wand der Kapillardüse (vgl. Abb. 2) ist aufgrund des hohen Impedanzsprungs zwischen Stahl⁴ und Schmelze nicht möglich, da es an der Grenzfläche nahezu zu einer Totalreflexion kommen würde, siehe dazu [8].

Eine Möglichkeit, dennoch Ultraschall in die Schmelze einzukoppeln, wurde in der *Clad-Buffer-Rod*-Technik [11, 12] gefunden: Ein akustischer Wellenlei-

ter liegt als Temperaturpuffer zwischen einem UT, der bei Raumtemperatur betrieben wird, und der Polymerschmelze. Um die durch die Zapfenform bedingten Quermoden im Puffer zu reduzieren, wird dieser mit einer Hülle versehen. Besitzen Puffer und Hülle eine ähnliche Impedanz für transversale Schallwellenausbreitung und ist zudem die Absorption und Streuung in der Hülle hoch, dann werden Quermoden im Puffer deutlich gedämpft.

Eine erste Version der Kapillardüse mit austauschbarem Messeinsatz, der nach der *Clad-Buffer-Technik* gefertigt wurde, wird in [8, 9, 10] detailliert beschrieben, und erste Messergebnisse aus Extrusionsexperimenten werden gezeigt. Abbildung 3 skizziert eine überarbeitete Version⁵ dieser Kapillardüse: Als Material für den Kern wurde der glasartige Kohlenstoff Sigradur[®] verwendet, der Temperaturen bis 1000°C und Drücken bis 580 MPa ausgesetzt werden kann. Besonderer Vorteil von Sigradur[®] ist die außerordentlich niedrige Dichte von 1540 kg/m³, die zu einer niedrigen longitudinalen Schallkennimpedanz von ca. 7E6 Ns/m³ führt. Dadurch können die Reflexionsverluste zwischen Puffer und Schmelze zumindest auf ca. 81% [8] reduziert werden.

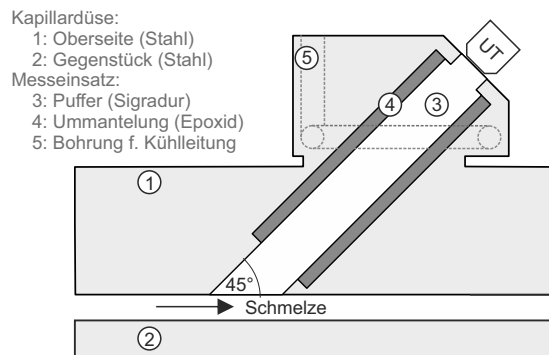


Abbildung 3: Querschnitt des entwickelten Messeinsatzes.

Der Puffer aus Sigradur[®] wird durch seine abgestufte Oberseite und durch eine Passung an der Unterseite in der Kapillardüse fixiert. Als Ummantelung wird eine Schicht aus hochtemperaturbeständigem aluminiumgefülltem Epoxid verwendet, die von Hand vergossen und im Ofen gehärtet wurde. Der obere Teil des Puffers, der dem UT als Kontaktfläche dient, ist mit einer ringförmigen Bohrung durchsetzt, die mit einem temperatureregelten Wasser-Kühlkreislauf verbunden wird. Dadurch kann die Temperatur des UT während der Messung konstant gehalten werden. Die schlechte Wärmeleitung im Sigradur[®] und der sichtbare Nacken im Messaufbau verhindern eine wesentliche Beeinflussung der Schmelztemperatur durch die Kühlung.

³Temperatur der Schmelze bis zu 250°C, Druck in der Kapillardüse bis zu 450 bar, Schallkennimpedanz $\approx 1\text{E}6 \text{ Ns/m}^3$, Schallgeschwindigkeit $\approx 1000 \text{ m/s}$.

⁴Bei einer Schallkennimpedanz für longitudinale Wellenausbreitung in Stahl von ca. $46\text{E}6 \text{ Ns/m}^3$ betragen die Reflexionsverluste bei $\alpha_{\text{UT}} = 45^\circ$ ca. 95 %.

⁵In der überarbeiteten Version wurde im Wesentlichen die Form der Ummantelung verändert, die die Polymerschmelze nun nicht mehr direkt kontaktiert. Da die selben Materialien wie im Vorgängermodell verwendet wurden, sind die in [8] angeführten Berechnungen zu Reflexion und Brechung auf den in Abb. 3 gezeigten Aufbau übertragbar.

Messbare Parameter in der Schmelze

Mit dem in den Abbildungen 2 und 3 skizzierten Messaufbau kann nicht nur das tiefenabhängige Strömungsprofil direkt während der Extrusion gemessen werden: Bei schräger Einkopplung der Impulse mit α_{UT} von 45° wird die Schallwelle an der Grenzfläche zwischen Puffer und Schmelze gebrochen. Aus dem großen Verhältnis zwischen der Schallgeschwindigkeit im Sigradur[®] von 4630 m/s [14] und in der Schmelze (material- und temperaturabhängig, Richtwert um 1000 m/s, siehe zB [13]) erhält man einen Winkel α_s in der Schmelze von über 80° . In Kombination mit der geringen Tiefe d des Schmelzekanals und der bereits erwähnten Totalreflexion an der Kanalarückwand aus Stahl durchläuft jeder Impuls den Strömungskanal mehrfach, und die entsprechenden Echos können aufgezeichnet werden. Bei bekanntem d kann aus der in den Rohdaten enthaltenen Periodizität die Schallgeschwindigkeit c_s in der Schmelze unter Messbedingungen berechnet werden, die zur Berechnung der Strömungsgeschwindigkeit erforderlich ist (Gl. 4).

Die beschriebenen Mehrfachreflexionen erhöhen unter Vernachlässigung der geringen Transmissionsverluste an der Kanalarückwand die Kanaltiefe d virtuell auf mehrere Millimeter. Durch Berechnung des Spektrogramms über die Kanaltiefe kann die tiefenabhängige Reduktion der Mittenfrequenz des verwendeten Transducers $f_T(z)$ in der Messung berechnet werden. In Gl. 4 wäre demnach die nominelle Mittenfrequenz f_{T_0} mit dem gemessenen tiefenabhängigen Wert $f_T(z)$ zu ersetzen. In der in [9] ausführlich beschriebenen Methodik wird aus Effizienzgründen vorgeschlagen, Gl. 4 mit f_{T_0} zu berechnen und das Ergebnis anschließend tiefenabhängig mit $f_T(z)/f_{T_0}$ zu entzerren.

Durchgeführte Messungen

Mit der ersten Version des beschriebenen Messaufbaus [8] konnte bereits erfolgreich das Strömungsprofil von Polypropylen mit 5 % Glasfasern [9] und mit 20 % Talkumpulver [10] während der Extrusion gemessen werden. Bei beiden Materialien war Wandgleiten zu erkennen, wobei sich vor allem die Messungen mit Glasfaser durch ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis auszeichnen. Eine weitere Messreihe wurde im Februar 2015 mit der in Abb. 3 skizzierten überarbeiteten Version der Kapillardüse durchgeführt. Extrudiert wurde Polylactid (PLA) mit 10 % Talkumpulver als Verstärkungstoff. Die verwendete Anlage kann entsprechend Abb. 1 wie folgt beschrieben werden: Der Einschneckenextruder⁶ wurde bei einer konstanten Schneckendrehzahl von 100 Umdrehungen pro Minute betrieben. Über die Drehzahl der Schmelzepumpe (Fördervolumen $2.4 \text{ cm}^3/\text{Umdrehung}$) wurde die Strömungsgeschwindigkeit in der Kapillardüse variiert, der Volumsausgleich erfolgte über den davor liegenden Bypass. In der Kapillardüse wurde eine Tiefe des Schmelzekanals von $d = 0.8 \text{ mm}$ verwendet. Gemessen wurde mit einem Labor-UT (Panametrics C312SU, Mit-

tenfrequenz 10 MHz, Durchmesser 6.35 mm), die Impulserzeugung und die Aufzeichnung der Echos erfolgte mit einem Pulser/Receiver (Panametrics 5900PR) in Kombination mit einem Digitalspeicheroszilloskop (Agilent DSO9254A). Aufgezeichnet wurden pro gemessener Drehzahl 8192 Pulse mit einer Pulswiederholfrequenz von $f_{PRF} = 500 \text{ Hz}$ bei einer Samplingfrequenz von 125 MHz. Die Messung wurde bei den selben Drehzahlen mit $f_{PRF} = 1 \text{ kHz}$ wiederholt. Um die Betriebstemperatur des UT zu überwachen wurde die Temperatur an der Oberfläche der Kapillardüse unmittelbar neben der Kontaktfläche des UT mit einem Multimeter (FLUKE 179 mit einem Typ K-Thermocouple) erfasst.

Abbildung 4 zeigt die gemessene Schallgeschwindigkeit für beide Messreihen. Man erkennt einen geringen Zusammenhang mit der verwendeten der Drehzahl. Abbildung 5 zeigt die erhaltenen Strömungsprofile für verschiedene Drehzahlen, gemessen mit $f_{PRF} = 500 \text{ Hz}$. Die Spiegelung des gemessenen Strömungsprofils durch die Reflexion an der Kanalarückwand bei $z = 0.8 \text{ mm}$ ist deutlich zu erkennen. Im Vergleich zu älteren Messungen [9, 10], bei denen Glasfasern als Streupartikel verwendet wurden, wirken die Strömungsprofile aufgeweitet und weniger deutlich abgezeichnet. Dennoch ist eine Messung in der durch das Talkumpulver völlig opaken Schmelze möglich. In Abb. 5 fällt vor allem bei den höheren Drehzahlen eine Asymmetrie der gemessenen Strömungsprofile an den Begrenzungsflächen ($z = 0 \text{ mm}$: Sigradur, $z = 0.8 \text{ mm}$: Werkzeugstahl) auf. Die eingangs getroffene Anforderung, Wandgleiten direkt auf Stahl zu messen, erscheint daher durchwegs sinnvoll.

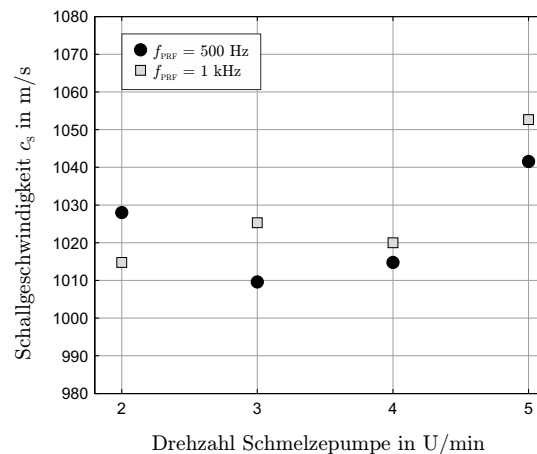


Abbildung 4: Schallgeschwindigkeit, gemessen in PLA mit 10 % Talkumpulver bei unterschiedlicher Drehzahl der Schmelzepumpe.

Zusammenfassung

Mit dem vorgestellten Messaufbau ist die Messung des Strömungsprofils inline während der Extrusion möglich. Im Gegensatz zu optischen Methoden ist die Messung je nach verwendetem Material auch bei größeren Kanaltiefen möglich. Dadurch kann auch an der Kanalarückwand

⁶HAAKE Thermo Fischer 19/33D (Schneckendurchmesser D=19 mm, Schneckenlänge = 33·D = 62,7 cm)

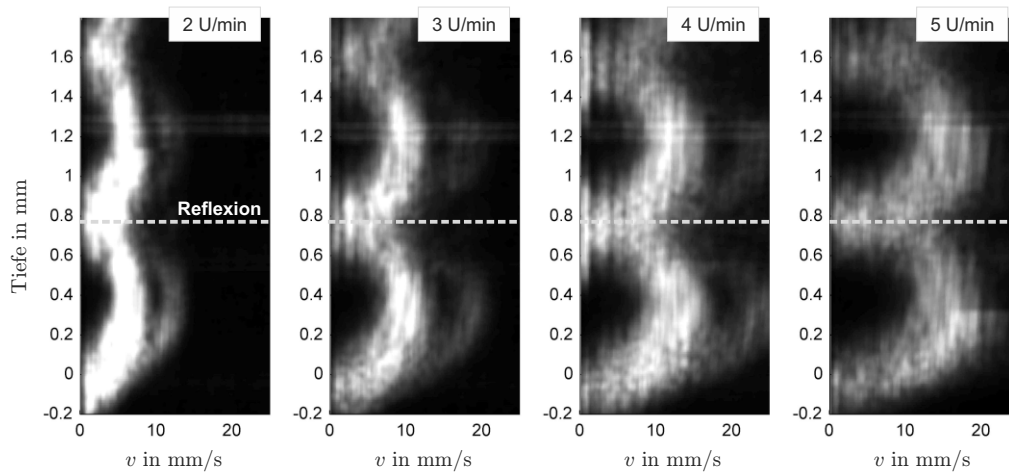


Abbildung 5: Strömungsprofile, gemessen in PLA mit 10 % Talkumpulver bei unterschiedlicher Drehzahl der Schmelzpumpe. Die Messung erfolgte mit einer Pulswiederholfrequenz von 500 Hz.

gemessen werden, was das Erkennen und Bewerten von Wandgleiten an der interessierenden Stahloberfläche ermöglicht. Wie schon bei vorangegangenen Messungen gezeigt wurde, können die Schallgeschwindigkeit in der Schmelze und die entfernungsabhängige Reduktion der Mittenfrequenz aus den aufgezeichneten Rohdaten bestimmt werden. Durch den geregelten Kühlkreislauf kann die Temperatur des Transducers während der Messung konstant gehalten werden.

Danksagung

Diese Arbeit wurde im Rahmen des Projekts *PolyTwinScrew* (841303) durchgeführt, welches durch das BRIDGE Programm der Österreichischen Forschungsförderungsgesellschaft (FFG) finanziert wird.

Literatur

- [1] E. Mitsoulis, I. B. Kazatchkov, S. G. Hatzikiriakos. The effect of slip in the flow of a branched PP melt: experiments and simulations. In *Rheologica acta*, Vol. 44, Nr. 4 (2005), 418 – 426.
- [2] S. G. Hatzikiriakos. Wall slip of molten polymers. In *Progress in Polymer Science* Vol. 37 (2012), 624 – 643.
- [3] A. Buchsbaum, M. Egger, I. Burzic, T. Köppelmayr, M. Aigner, J. Miethlinger, M. Leitner: Optical coherence tomography based particle image velocimetry (OCT-PIV) of polymerflows. In *Optics and Lasers in Engineering* Vol. 69 (2015), 40 – 48.
- [4] Y. Chen, D. M. Kalyon, E. Bayramli: Effects of Surface Roughness and the Chemical Structure of Materials of Construction on Wall Slip Behavior of Linear Low Density Polyethylene in Capillary Flow. In *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 50 (1993), 1169 – 1177.
- [5] J. A. Jensen: Estimation of Blood Velocities Using Ultrasound – A Signal Processing Approach. Cambridge University Press, Cambridge 1996.
- [6] Y. Takeda: Velocity Profile Measurement by Ultrasonic Doppler Method. In *Experimental Thermal and Fluid Science* Vol. 10 (1995), 444 – 453.
- [7] M. Kobayashi, C. K. Jen: Transducers for non-destructive evaluation at high temperatures. In *Ultrasonic Transducers – Materials and design for sensors, actuators and medical applications*. Woodhead Publishing, 2012.
- [8] V. Putz, I. Burzic, J. Miethlinger, F. Maier, B. G. Zagar: Adaptation of In-line Ultrasonic Velocimetry to Melt Flow Measurement in Polymer Extrusion. In *Measurement Science & Technology*, Vol. 24, Nr. 10 (2013).
- [9] V. Putz, I. Burzic, B. G. Zagar, J. Miethlinger: Ultraschall-Messung von Strömungsprofilen in opaker Polymerschmelze während der Extrusion. In *tm – Technisches Messen*, Vol. 81, Nr. 7–8 (2014), 371 – 380.
- [10] V. Putz, I. Burzic, B. G. Zagar, J. Miethlinger: In-line ultrasonic melt flow measurement of polypropylene with different fillers. *Procedia Engineering*, Vol. 87 (2014), 156 – 159.
- [11] C. K. Jen, J. G. Legoux, L. Parent: Experimental evaluation of clad metallic buffer rods for high temperature ultrasonic measurements. In *NDT & E International* 33 (2000), 145 – 156.
- [12] Y. Ono, C. K. Jen, C. Y. Su: Aluminum buffer rods for ultrasonic monitoring at elevated temperatures. In *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control* Vol. 52, Nr. 6 (2005), 1044 – 1049.
- [13] T. A. Osswald, G. Menges: *Materials Science of Polymers for Engineers*, 2. Auflage, Carl Hanser Verlag, München 2003.
- [14] J. Müller, S. Kummer, D. Fischer: New ultrasonic probes for in-line monitoring of polymer melts. In *Measurement Science & Technology*, Vol. 20 (2009).