

JÓZEF STABIK

Politechnika Śląska

Katedra Przetwórstwa Materiałów Metalowych i Polimerowych

ul. Konarskiego 18 A, 44-100 Gliwice

stabik@kbm.mt.polsl.gliwice.pl

Badania ruchu ziaren napełniaczy podczas przepływu polimerów

STUDIES ON MOTION OF FILLER PARTICLES DURING POLYMER FLOW

Summary — Two factors influencing the behavior of fillers' grains in polymer matrix during the flow namely the orientation towards flow direction and migration perpendicular to this direction (Fig. 1 and 2) have been discussed. Adequate phenomena and dependences have been studied taking as examples PE-LD compositions containing 2.5, 5 or 10 vol. % of mineral fillers of spherical, lamellar, needle-shaped, fibrous or irregular grains (Table 1). Migration intensity depends on geometrical features of the grains submitted (diameter, specific surface and aspect ratio). Empirical models relating migration intensity and the grains' geometrical features have been developed [equation (8), Table 2]. Grain diameter shows the biggest effect on the migration process. **Key words:** filled polymers, flow, fillers, geometrical features, migration, orientation.

ZACHOWANIE SIĘ ZIAREN NAPEŁNIACZY W TRAKCIE PRZEPEŁYWU

Istotne znaczenie w reologii układów dyspersyjnych, w tym polimerów napełnionych, ma zachowanie się cząstek napełniaczy podczas przepływu. Można tu mówić o swego rodzaju sprzężeniu zwrotnym, wzajemnym oddziaływaniu. Z jednej strony zachowanie się cząstek napełniacza jest uwarunkowane właściwościami tych cząstek i matrycy polimerowej, a z drugiej — układ cząstek oraz ich usytuowanie określają mikroprzepływy zachodzące między ziarnami, a także rodzaj i siła wzajemnego oddziaływania cząstek, zatem właściwości reologiczne całego układu. W zachowaniu cząstek napełniaczy szczególnie istotne są dwa zjawiska, mianowicie orientacja cząstek niesymetrycznych i migracja cząstek w kierunku prostopadłym do kierunku przepływu.

Orientacja cząstek asymetrycznych

Orientacja niesymetrycznych ziaren napełniaczy jest zauważana od początku stosowania polimerów napełnionych. Szczególnie widoczna jest ona w wyrobach wtryskiwanych z polimerów napełnionych włóknami ciętymi. W przypadku przepływów powolniejszych, na przykład w trakcie wytłaczania, oraz w odniesieniu do cząstek o mniej wyraźnej asymetrii, orientacja cząstek również może wystąpić, aczkolwiek jej ocena wymaga wówczas wizualizacji przepływu lub obserwacji mikroscopowej gotowego produktu.

Przyczyn orientacji cząstek asymetrycznych należy poszukiwać w kształcie pola prędkości przepływu ścinającego oraz we wzajemnym oddziaływaniu cząstek na siebie. Profil prędkości w przepływie przez kanał o dowolnym kształcie jest taki, że czym większa jest odległość od ściany, tym większa staje się prędkość przepływu. Cząstka napełniacza unoszona w takim polu prędkości szybciej będzie się poruszać w swojej części znajdującej się bliżej środka kanału. W uproszczeniu można też przyjąć, że prędkość różnych miejsc cząstki jest równa prędkości cieczy znajdującej się w odpowiednich położeniach promieniowych. Pojawia się wtedy składowa wirowa ruchu cząstki, wynikająca z różnic prędkości ruchu postępowego. Ruch cząstki unoszonej w cieczy newtonowskiej w kanale o przekroju kołowym schematycznie przedstawia rys. 1. Prędkość kątowna, ω , tego ruchu jest określona zależnością:

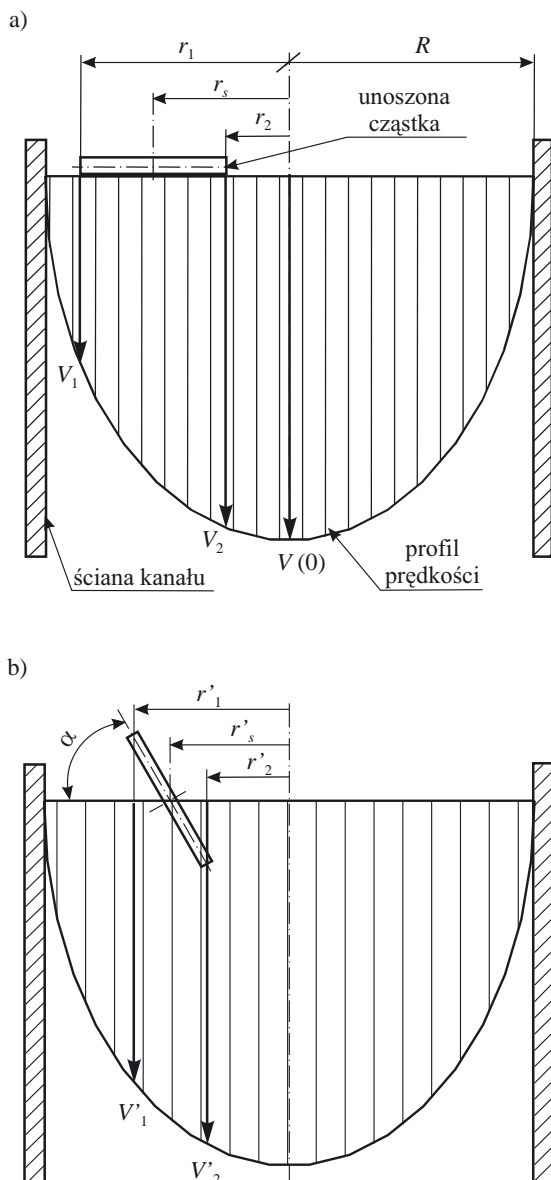
$$\omega = \frac{\Delta V}{L} = \frac{V_2 - V_1}{r_1 - r_2} \quad (1)$$

gdzie: ΔV — różnica prędkości końców cząstki poruszających się z szybkością V_2 i V_1 , L — długość cząstki, r_1 i r_2 — współrzędne promieniowe końców cząstki.

W przypadku cieczy newtonowskiej profil prędkości $V(r)$ jest paraboliczny:

$$v(r) = v(0) \left[1 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right] \quad (2)$$

gdzie: $v(0)$ — prędkość maksymalna w osi kanału, R — promień kanału.



Rys. 1. Asymetryczna cząstka napełniacza unoszona w cieczy newtonowskiej przepływającej przez kanał okrągły (a) z uwzględnieniem składowej wirowej ruchu cząstki (b); wyjaśnienie symboli — patrz tekst

Fig. 1. Asymmetric filler particle carried by Newtonian fluid flowing in circular channel (a) taking rotational component of particle motion into account (b). Symbols explanations — see text

Zatem prędkość kątowna cząstki zawieszona w takiej cieczy określona jest zależnością:

$$\omega = \frac{V(0)[1 - (r_2/R)^2] - V(0)[1 - (r_1/R)^2]}{r_1 - r_2} = V(0) \frac{(r_1 + r_2)}{R^2} = V(0) \frac{2r_s}{R^2} \quad (3)$$

gdzie r_s to współrzędna promieniowa środka cząstki.

Po obrocie cząstki o kąt α , jej końce zajmą nowe pozycje: r'_1 i r'_2 . Gdy przyjmie się jednak, że środek cząstki w tym czasie nie przemieści się promieniowo, to prędkość kątowna nie ulegnie zmianie:

$$\omega' = V(0) \frac{(r'_1 + r'_2)}{R^2} = V(0) \frac{2r'_s}{R^2} = V(0) \frac{2r_s}{R^2} = \omega \quad (4)$$

W układach rzeczywistych profil prędkości nie jest paraboliczny, cząstka podlega migracji promieniowej a cząstki sąsiednie i ściany kanału stabilizują cząstkę w pozycji zorientowanej w kierunku przepływu [1—4]. Czas przebywania w pozycji zorientowanej jest najdłuższy. Orientacja cząstek podczas przepływu w istotny sposób zmienia reologiczne właściwości układu. Ułożenie cząstek w kierunku przepływu powoduje, że rzadziej następuje wzajemny kontakt cząstek i mniejsze jest prawdopodobieństwo utworzenia struktur przestrzennych; sprzyja to zmniejszeniu oporów przepływu w kierunku orientacji.

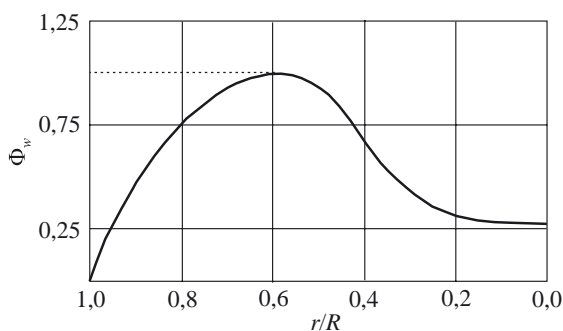
Proces porządkowania struktury w wyniku orientacji nie jest tu jedyny, albowiem jednocześnie przebiega proces przeciwny, dążący do przywrócenia stanu nieuporządkowania, a wynikający z ciągle zachodzących ruchów Browna cząstek. Czym większa szybkość ścinania, tym intensywniejszy proces orientacji i porządkowania, a mniej istotne stają się ruchy Browna i odwrotnie.

Migracja promieniowa ziaren napełniaczy

Badania zachowania się ziaren napełniaczy podczas przepływu wskazują, że cząstki ciała stałego nie tylko są unoszone w kierunku przepływu cieczy, ale dodatkowo poruszają się prostopadle do tego kierunku. Zjawisko to powoduje, iż w miarę upływu czasu dochodzi do nierównomiernego rozkładu zawartości napełniacza na przekroju strumienia. W odniesieniu do przepływu Poiseuille'a cieczy newtonowskiej pierwszy opis ilościowy i teoretyczny przedstawili Segré i Silberberg [5—7]. Od tego czasu zjawisko migracji ziaren w toku przepływu przyjęto nazywać efektem Segré — Silberberga. Badacze ci wykazali, że sfery pławne (czyli o gęstości cieczy) unoszone w cieczy newtonowskiej płynącej w kanale o przekroju kołowym dążą w swym ruchu migracyjnym do położenia równowagi znajdującego się w odległości ok. 0,5—0,6 promienia kanału od środka kanału. Rozkład zawartości kul pławnych w cieczy newtonowskiej przepływającej przez kanał okrągły schematycznie ukazuje rys. 2.

Znacznie mniej rozpoznany jest problem migracji cząstek innych niż kuliste [8—13].

Trudności analitycznego opisu migracji promieniowej ziaren napełniaczy kierują uwagę badaczy na procedury numeryczne, umożliwiające symulację ruchu cząstek podczas przepływu. Wyniki symulacji wskazują, że kiedy ośrodkiem dyspersyjnym jest ciecz lepkosprężysta, kierunek i intensywność migracji zależy od wielu czynników, takich jak stosunek sił bezwładności do sił sprężystych, stosunek średnicy ziaren do średnicy kanału, położenie początkowe i wielu innych [14—16]. Należy mieć nadzieję, że w najbliższym czasie metody nume-



Rys. 2. Profil zawartości ziaren sfer pławnych w cieczy newtonowskiej; r/R — współrzędna promieniowa, Φ_w — względna (odniesiona do maksymalnej na danym przekroju) zawartość ziaren

Fig. 2. Profile of the concentration of buoyant spheres in Newtonian fluid. r/R — radial co-ordinate, Φ_w — relative concentration of the particles, referred to the maximum concentration in given cross-section

ryczne pozwolą na rozwiązywanie problemów migracji układów rzeczywistych, zbliżonych do stosowanych w technice przetwórstwa materiałów polimerowych.

Z przedstawionych analiz wynika, że zarówno zjawisko orientacji, jak i migracji promieniowej w istotny sposób zależy od cech geometrycznych ziaren unoszonych w przepływającej cieczy. Brak doniesień dotyczących układów napełnionych cząstkami o szerokim rozkładzie średnicy oraz o różnym stopniu wydłużenia i rozwinięcia powierzchni skłonił autora do podjęcia próby doświadczalnego zbadania zachowania takich cząstek podczas przepływu napełnionego polietylenu. Umożliwi to lepsze poznanie charakteru zależności pomiędzy cechami geometrycznymi ziaren napełniaczy a właściwościami reologicznymi polimerów napełnionych.

CZĘŚĆ DOŚWIADCZALNA

Materiały

W doborze polimeru i napełniaczy kierowano się podobnymi kryteriami jak w przypadku poprzedniej pracy dotyczącej wpływu cech geometrycznych ziaren napełniaczy na lepkość napełnionych uplastycznionych polimerów [17]. Mianowicie, wybrano polietylen małej gęstości (PE-LD) jako matrycę, gdyż jest to polimer niepolarny i wykazuje słabe oddziaływania z powierzchnią napełniaczy. Napełniacze dobrano tak, aby różniły się cechami geometrycznymi a zarazem miały podobny charakter powierzchni [18, 19]. Można więc było założyć, że oddziaływania pomiędzy matrycą polimerową a powierzchnią napełniaczy nie będą wywierały istotnego wpływu na różnice w zachowaniu się poszczególnych ziaren.

Zastosowanym polimerem był uplastyczniony PE-LD „Politen II 020 F000” wyprodukowany przez Zakłady Chemiczne Blachownia.

Do polimeru wprowadzono następujące napełniacze:

— kuliste: mikrokule szklane I (MG 2530 firmy Potters Ballotini), mikrokule szklane II (MG 3000 — Potters Ballotini), mikrosfery I („Sil-Cell 150” — Norwegian Talc), mikrosfery II („Norfil 150” — Norwegian Talc);

— płytkowe: talk (SM-M30 — Scheruhn Talkum), kaolin I (KK/A — Scheruhn Talkum), kaolin II („Burgess KE” — Dormineral), mika (MSG-G — Scheruhn Talkum);

— igłopodobne: kreda strącana (CECL — Schäfer Kalk), wollastonit (W-800 — Scheruhn Talkum);

— włókniste: cięte włókno szklane (WS 3mm — Krośnieńskie Huty Szkła);

— nieregularne: krzemionka mielona („Silbond FW12” — Quarzwerke).

Jako cechy geometryczne charakteryzujące napełniacze wybrano, tak jak w publikacji [17], średnią średnicę ziaren D , powierzchnię właściwą V (stosunek sumy powierzchni ziaren zawartych w jednostce masy do tej masy) i średni współczynnik kształtu Sk (stosunek dwóch skrajnych wymiarów ziaren). Wyznaczono je na podstawie danych producentów i własnych badań statystycznych wartości rozkładu średnicy i współczynnika kształtu. Do scharakteryzowania napełniaczy zastosowano następujące urządzenia: rozkład średnicy ziaren — aparat sedymentacyjny „SediGraph 5100” — Micrometrics, rozkład współczynnika kształtu — mikroskop optyczny Nu-Zeiss i mikroskop elektronowy BS 540 — Tesla, powierzchnia właściwa — aparat do badań metodą BET „Gemini 2360” — Micrometrics. Tabela 1 zawiera zestawienie cech geometrycznych badanych napełniaczy.

Tabela 1. Cechy geometryczne napełniaczy*)
Table 1. Geometrical features of the fillers

Właściwości	$V, m^2/g$	$D, \mu m$	Sk
Napełniacz			
Mikrokule II	0,64	50	1,03
Mikrokule III	3,71	12	1,04
Mikrosfery I	1,93	18	1,18
Mikrosfery II	0,36	90	1,01
Kaolin I	8,33	5	18,5
Kaolin II	9,38	1,0	18,0
Talk I	8,5	12	24,5
Mika	4,5	7	28,0
Kreda strącana	9,0	0,6	4,4
Wollastonit	1,33	23	8,1
Krzemionka II	3,5	3,5	1,9
Cięte włókno szklane	0,15	16,0	175

*) Wartości zaznaczone pogrubioną czcionką wyznaczono w badaniach własnych, pozostałe dane pochodzą od producentów.

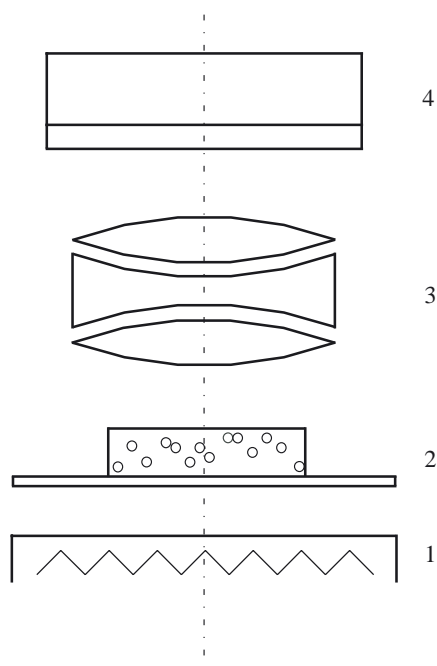
Przygotowanie kompozycji

Kompozycje przygotowywano metodą wytłaczania w wytłaczarce jednoślakowej ze ślimakiem z końców-

ką mieszającą. Wszystkie kompozycje wytłaczano trzykrotnie, aby uzyskać dobre ujednorodnienie składników. Przygotowano kompozycje o udziale objętościowym napełniaczy ϕ 2,5; 5 i 10 % obj.

Metodyka badań

Kompozycje do badań wytłaczano w temp. 190 °C za pomocą reometru kapilarnego własnej konstrukcji. Zastosowano kapilarę średnicy 1,83 mm i długości 124 mm. Tak długa kapilara zapewniała dobrą stabilizację przepływu oraz czas przepływu niezbędny do tego, aby mogła zajść migracja promieniowa. Próbki uzyskiwano w wyniku cięcia na plasterki strumienia wypływającego z reometru, po jego zestaleniu. Wykorzystano w tym celu urządzenie do cięcia preparatów biologicznych („CRYO-CUT Microtome”). Wycinano plasterki grubości 10÷30 μm , które następnie przyklejano na szkiełka mikroskopowe podstawowe i przykrywano szkiełkami nakrywkowymi. Przygotowane próbki poddawano analizie optycznej z zastosowaniem zestawu, którego schemat przedstawia rys. 3. Analiza polegała na zliczaniu powierzchni ziaren w kwadratowym polu obserwacyjnym. Położenie pola obserwacyjnego zmieniano w kierunku promieniowym. Za miarę zawartości ziaren na-



Rys. 3. Schemat układu pomiarowego do określania rozkładu zawartości ziaren w przekroju strumienia metodą mikroskopii optycznej w świetle przechodzącym: 1 — źródło światła, 2 — próbka, 3 — układ optyczny (mikroskop), 4 — rejestrator i analizator obrazu

Fig. 3. Scheme of measuring system for determination of the distribution of particles' content in the flux cross-section by transmission microscopy: 1 — light source, 2 — sample, 3 — optical system (microscope), 4 — image recorder and analyzer

napełniacza w punkcie o współrzędnej promieniowej r/R_{pr} (gdzie r to odległość od środka próbki do środka pola pomiarowego, a R_{pr} to średnica próbki) przyjęto udział powierzchni zajętej przez ziarna (Φ_Z) do powierzchni pola pomiarowego:

$$\Phi_Z = \frac{A_Z}{A_P} \quad (5)$$

gdzie: A_Z — powierzchnia zajęta przez ziarna napełniacza, A_P — powierzchnia pola pomiarowego.

W celu ułatwienia porównania wyników dotyczących różnych zawartości napełniacza odniesiono uzyskane wartości Φ_Z do maksymalnej zawartości w badanym przekroju:

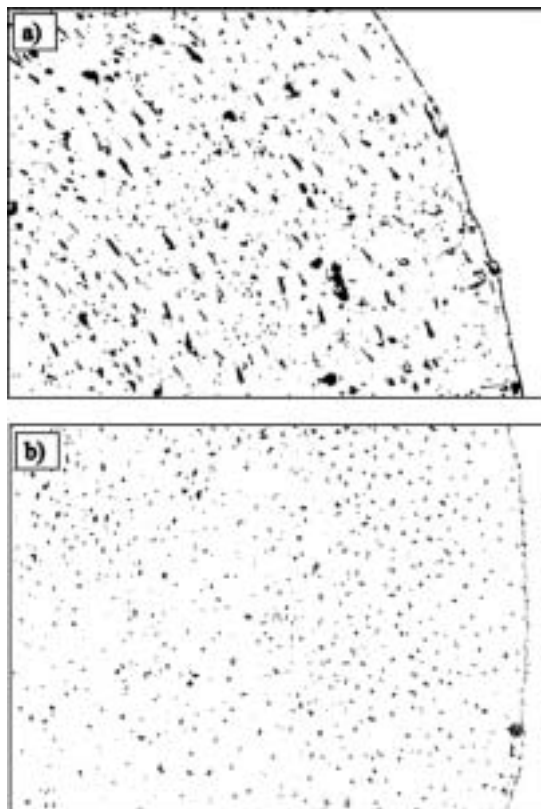
$$\Phi_W = \frac{\Phi_Z}{\Phi_{Zmaks.}} \quad (6)$$

gdzie: Φ_W — względna zawartość napełniacza w przekroju strumienia, $\Phi_{Zmaks.}$ — zawartość maksymalna w danym przekroju.

Następnie wyznaczano funkcje zmiany zawartości względnej napełniacza w przekroju strumienia w zależności od położenia promieniowego $\Phi_W = f(r/R)$. Oprócz tych pomiarów, wzrokowo określano również ułożenie ziaren w stosunku do płaszczyzny wycinka strumienia w celu sprawdzenia, czy nastąpiła orientacja ziaren. Obserwacji takiej udało się dokonać jedynie w odniesieniu do ziaren niesymetrycznych. Ponieważ przekrawano strumień prostopadle do kierunku jego przepływu, ustalenie występowania orientacji ziaren mogło nastąpić na podstawie kształtu obrazu ziaren w przekroju i uwzględnienia kształtu określonego w badaniach mikroskopowych samych napełniaczy. Na przykład, w przypadku ziaren płytkowych orientacja w kierunku przepływu powodowała, że w przekroju widoczne były przede wszystkim ziarna ustawione dwoma mniejszymi wymiarami do płaszczyzny obrazu, czyli jako wydłużone plamki. W napełniaczach igłopodobnych i włóknach zorientowane ziarna były widziane jako plamy kształtem zbliżone do koła.

WYNIKI BADAŃ I ICH OMÓWIENIE

Najłatwiejsze do obserwacji okazały się ziarna w kompozycjach zawierających 2,5 % i 5 % obj. napełniacza, natomiast obraz wielu układów z 10-proc. zawartością napełniaczy stawał się mało czytelny ze względu na nakładające się zarysy ziaren. Ziarna niesymetryczne ulegały znacznej orientacji. Rysunek 4 przedstawia jako przykład wycinki obrazów przekroju strumienia z ziarnami talku i wollastonitu. Pokazano skrajne pola obserwacyjne, aby widoczny był fragment zarysu brzegu próbki. Prawie wszystkie ziarna płytkowego talku były obserwowane w postaci wydłużonych plamek (rys. 4a), a obraz większości ziaren igłopodobnego wollastonitu to nieregularne plamki o obrysie zbliżonym do kołowego (rys. 4b). Skutki orientacji uwidaczniały się



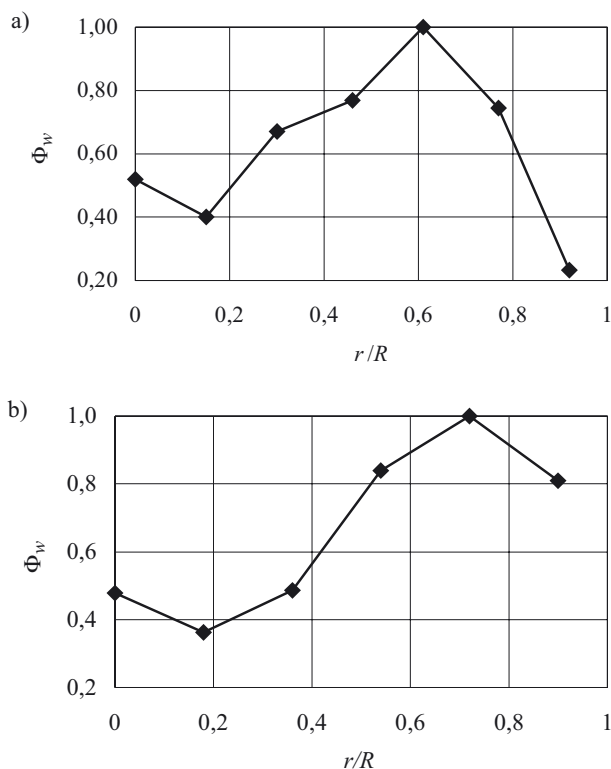
Rys. 4. Ziarna talku (a) i wollastonitu (b) w zestalonej strudze polietylenu ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 2,5 \text{ \% obj.}$)

Fig. 4. Particles of talc (a) and wollastonite (b) in solidified polyethylene flux ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 2.5 \text{ vol. \%}$)

w całym badanym zakresie szybkości ścinania, aczkolwiek silniejsza orientacja występowała w obszarze większej prędkości przepływu. Można zatem stwierdzić, iż badania potwierdziły zachodzenie zjawiska orientacji w trakcie przepływu ścinającego nie tylko ziaren włóknistych, ale wszystkich ziaren niesymetrycznych.

Wyniki badania migracji promieniowej charakteryzowały się dosyć dużym rozrzutem, chociaż zdecydowana większość krzywych $\Phi_w(r/R)$ była podobna do rezultatu, jaki uzyskali Segré i Silberberg [5–7] i jaki pokazuje schematycznie rys. 2. Przykłady krzywych uzyskanych w ramach opisywanej tu pracy przedstawiono na rys. 5. W odniesieniu do niektórych kompozycji (w szczególności zawierających 10 % obj. napełniaczy) skutki migracji były niezauważalne. W większości przypadków maksimum zawartości ziaren występowało w przedziale stosunku r/R od 0,6 do 0,8. Dla procesu przepływu równie istotny jak kierunek migracji jest jej rezultat w postaci zróżnicowania zawartości ziaren w przekroju strumienia. Czym większa intensywność migracji, tym różnice zawartości stają się większe. Za miarę intensywności procesu migracji promieniowej uznano różnicę względnej zawartości ziaren w przekroju strumienia:

$$\Delta\Phi = (\Phi_w)_{max} - (\Phi_w)_{min} \quad (7)$$



Rys. 5. Zawartość względna, Φ_w , ziaren napełniaczy w przekroju strumienia (a) kredy ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 5 \text{ \%}$) oraz (b) kaolinu ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 2,5 \text{ \%}$)

Fig. 5. Relative particles concentration, Φ_w , in the flux cross-section for chalk (a) ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 5 \text{ \%}$) and kaolin (b) ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 2.5 \text{ \%}$)

Podjęto próbę skorelowania tak określonej miary intensywności migracji ziaren napełniaczy z cechami geometrycznymi tych ziaren, przyjmując w tym celu model empiryczny w postaci wielomianu drugiego stopnia z interakcjami pierwszego stopnia:

$$\Delta\Phi = c_0 + c_D D + c_V V + c_S S k + c_{DD} D^2 + c_{VV} V^2 + c_{SS} S k^2 + c_{DV} DV + c_{DS} D S k + c_{VS} V S k \quad (8)$$

gdzie: c_{ij} — współczynniki funkcji aproksymacyjnej.

Do określenia wartości współczynników modelu i dokonania selekcji czynników istotnych posłużyla metoda regresji krokowej. Wyznaczono też współczynniki korelacji i przeprowadzono analizę wariancji [20]. Obliczenia przeprowadzono w odniesieniu do kilku szybkości ścinania. Ze względu na podobny charakter uzyskanych zależności, poniżej zostaną przedstawione wyniki dotyczące tylko jednej z nich ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$). Przyjęto poziom istotności równy 0,05. O wprowadzeniu czynnika do modelu decydowała wartość statystyki F-Fishera — Snedecora, która wskazuje też na siłę jego wpływu. Przeprowadzono analizę wariancji uzyskanych funkcji aproksymacyjnych. W tabeli 2 zaprezentowano wyniki obliczeń odnoszące się do dwóch zawartości. Przyjęto następujące oznaczenia: R^2 — kwadrat współczynnika korelacji, F — wartość statystyki Fishera — Snedecora, P_m — prawdopodobieństwo odrzucenia całego modelu

na założonym poziomie istotności, P_C — prawdopodobieństwo, że przyjęty do modelu czynnik nie wpływa istotnie na wartość funkcji.

T a b e l a 2. Wyniki analizy regresji i wariacji zależności $\Delta\Phi$ (D , V , Sk) [por. równanie (8)*]

T a b l e 2. Results of regression and variance analysis of the dependence $\Delta\Phi$ (D , V , Sk) [compare equation (8)]

	2,5 % napelniaczy		5 % napelniaczy			
	Wyniki dotyczące całego modelu					
R^2	0,516		0,436			
F	5,676		4,147			
P_m	0,0076		0,0235			
Wyniki dotyczące poszczególnych czynników						
Współczynnik	wartość	F	P_C	wartość	F	P_C
c_0	0,568239			0,594452		
c_D	0,008948	8,28	0,0109	0,00392	5,80	0,0214
c_V	0,00			-0,002736	4,08	0,0602
c_S	-0,006345	6,20	0,0242	-0,004183	2,57	0,1202
c_{DD}	-0,000080	2,55	0,1301	0,00		

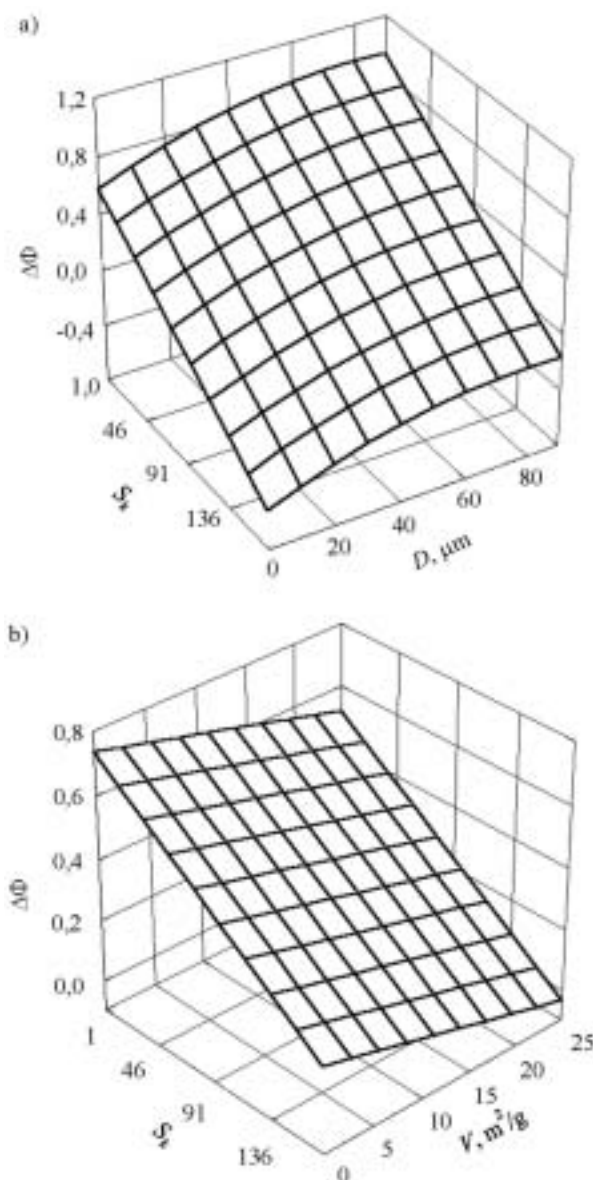
*) Znaczenia symboli — patrz tekst.

Przykłady wykresów przekrojów funkcji aproksymacyjnych obrazujące uzyskane zależności pokazano na rys. 6. Wyniki wskazują na istnienie istotnych związków pomiędzy cechami geometrycznymi ziaren napelniaczy a intensywnością migracji ($\Delta\Phi$), mimo że współczynniki korelacji są nieduże, a prawdopodobieństwo odrzucenia niektórych czynników znaczne. Przyczyną może być mała liczba punktów pomiarowych i rozrzut wyników. W obu modelach czynnikiem najistotniejszym okazała się średnica ziaren, mniej istotny wpływ na zmienną zależną wykazał współczynnik kształtu, a powierzchnia właściwa została przyjęta do modelu tylko w przypadku 5-proc. zawartości napelniacza.

Badania pokazały, że im większe ziarna, tym migracja staje się wyraźniejsza. Skutki migracji są bardziej widoczne w przypadku mniejszej z badanych zawartości. Analizy teoretyczne wskazują [5—7], że siły promieniowe działające na ziarna podczas przepływu to między innymi siły bezwładności. Może to być wytłumaczeniem obserwowanej prawidłowości wzrostu intensywności migracji ze wzrostem średnicy ziaren.

Uzyskane modele wskazują, że ze wzrostem współczynnika kształtu zmniejsza się różnica zawartości napelniacza w przekroju strumienia. Wytłumaczenia zaobserwowanego związku znowu można poszukiwać w zachowaniu się ziaren napelniaczy. Orientacja ziaren powoduje, że opory ruchu w kierunku przepływu są mniejsze, ale opory migracji promieniowej są znacznie większe.

Podobną zależność zaobserwowano, wiążąc różnicę zawartości $\Delta\Phi$ z powierzchnią właściwą ziaren napelniaczy. Czym większa wartość V , tym mniejsza inten-



Rys. 6. Zależność intensywności migracji (a) od średnicy ziaren, D , i współczynnika kształtu, Sk ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 2,5 \%$) oraz (b) od powierzchni właściwej, V , i współczynnika kształtu, Sk ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 5 \%$, $D = 50 \text{ mm}$)

Fig. 6. Dependence of migration intensity (a) on particle diameter, D , and aspect ratio, Sk ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 2.5 \text{ vol. } \%$) and (b) on specific surface, V , and aspect ratio, Sk ($\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$, $\phi = 5 \%$, $D = 50 \text{ mm}$)

sywność migracji promieniowej. Charakterystyki statystyczne wskazują, że w przypadku tego związku można mówić jedynie o pewnej tendencji spadku intensywności migracji ze wzrostem powierzchni właściwej, nie można natomiast wskazywać na silne powiązanie obu wielkości. Zaobserwowaną tendencję można tłumaczyć w dwojaki sposób. Po pierwsze, większemu rozdrobieniu ziaren towarzyszy wzrost powierzchni właściwej, co można wywnioskować z rozważań geometrycznych; zatem spadek intensywności migracji jest w tym względzie analogiczny do jej wzrostu ze zwiększaniem wy-

miarów ziaren. Po drugie, większa powierzchnia właściwa to bardziej skomplikowany kształt ziaren, a to powoduje wzrost oporów ruchu, w tym ruchu migracyjnego.

PODSUMOWANIE

Wykazano doświadczalnie, że znane przede wszystkim w odniesieniu do kompozycji z włóknami zjawisko orientowania ziaren napełniacza w kierunku przepływu zachodzi także w przypadku układów z niesymetrycznymi ziarnami mineralnymi. Uzyskane wyniki wskazują, że ruch wirowy cząstek jest ograniczony przez cząstki sąsiednie i dlatego czas przebywania w położeniu równoległym do kierunku przepływu lub bliskim temu kierunkowi jest zdecydowanie dłuższy niż w kierunku prostopadłym. Przebieg migracji promieniowej w istotny sposób zależy od cech geometrycznych ziaren jej podlegających. Uzyskane wyniki cechuje jednak rozrzut, a współczynniki korelacji poszczególnych funkcji aproksymacyjnych są niewielkie. Warto zatem rozszerzyć zakres badań migracji na większą liczbę napełniaczy, aby lepiej uchwycić omawiane zależności.

LITERATURA

1. Becraft M. L., Metzner A. B.: *J. Rheol.* 1992, **36**, 143.
2. Ramazani A., Ait-Kadi A., Grmela M.: *J. Non-Newt. Fluid Mech.* 1997, **73**, 241.
3. Shenoy A. V.: „Rheology of Filled Polymer Systems”, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht 1999.
4. Moses K. B., Advani S. G., Reinhardt A.: *Rheol. Acta* 2001, **40**, 296.
5. Segré G., Silberberg A.: *J. Fluid Mech.* 1962, **14**, 115.
6. Segré G., Silberberg A.: *J. Fluid Mech.* 1962, **14**, 136.
7. Segré G., Silberberg A.: *J. Colloid Sci.* 1963, **18**, 312.
8. Dhahir S. A., Walters K.: *J. Rheol.* 1989, **33**, 781.
9. Stabik J.: „Badania rozkładu napełniaczy w strudze polietylenu”, Materiały X Konferencji „Modyfikacja polimerów”, Trzebieszowice — Wrocław 1991.
10. Ait-Kadi A., Grmela M.: *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* 1994, **53**, 65.
11. Stabik J.: „Migracja promieniowa napełniaczy w strudze polietylenu”, Pr. Nauk. Instytutu Technol. Organ. i Tworzyw Szt. Politechniki Wrocławskiej, Materiały XIII Konferencji „Modyfikacja polimerów”, Wrocław 1997.
12. Jogun S. M., Zukoski C. F.: *J. Rheol.* 1999, **43**, 847.
13. Inamuro T., Maeba K., Fumimaru O.: *Int. J. Multiphase Flow* 2000, **26**, 1981.
14. Feng J., Hu H. H., Joseph D. D.: *J. Fluid Mech.* 1994, **277**, 271.
15. Feng J., Huang P. Y., Joseph D. D.: *J. Non-Newt. Fluid Mech.* 1996, **63**, 88.
16. Huang P. Y., Feng J., Hu H. H., Joseph D. D.: *J. Fluid Mech.* 1997, **343**, 73.
17. Stabik J.: *Polimery* 2004, **49**, nr 9.
18. Douillard J. M., Zougrana T., Partyka S.: *J. Petroleum Sci. Eng.* 1995, **14**, 51.
19. Médout-Marère V., Malandrini H., Zougrana T., Douillard J. M., Partyka S.: *J. Petroleum Sci. Eng.* 1998, **20**, 223.
20. Bethea R., Duran B., Boullion T.: „Statistical Methods for Engineers and Scientists” Marcel Dekker Inc., Nowy Jork — Bazylea 1984.

Otrzymano 1 XII 2003 r.