

## 압출 공정에서의 Stochastic 분석

김진국  
경상대학교 고분자공학과  
(1992년 10월 5일 접수)

### Stochastic Analysis for Extrusion Process

Jin Kuk Kim

Gyeongsang National University, Dept. of Polymer Sci. & Eng., Chinju City, Korea 660-701  
(Received October 5, 1992)

**요약** : 압출공정속의 흐름거동을 분석하기 위하여 stochastic 모델을 적용시켰다. 본 연구는 단축 압출기와 이축압출기에서의 고분자 보류 시간을 측정하여 이론치와 비교하였다. 이축 압출기에서의 흐름 거동을 이론적모델 4가지 세위 검토한 결과 혼합, backward 흐름, 스크류간의 이동흐름(transfer flow)을 고려한 모델이 가장 실험치에 근접 하였음을 알 수 있었다.

**Abstract** : Stochastic model was applied to analyze the flow behavior in the extruders. In this study, the residence time in single and twin screw extruders was used to compare the experimental and the theoretical results. Four theoretical models were developed for analysis of the flow behavior in the twin screw extruder. Among these theoretical models, the one which considered the mixing backward flow and transfer flow between screws gave the closest result to the experimental one.

### 서론

공학에서 흐름계의 흐름을 분석하기 위하여는 보통 미분 방정식을 풀어 분석하였으나 복잡한 상태의 흐름 예를 들면 고체 입자가 유체에 석여 있을 때의 흐름은 수학적인 방정식을 가지고는 설명하기가 어렵다. 이러한 경우 종래의 수학적인 방법대신 stochastic 모델을 가지고 고체 입자의 움직임을 random 변수로 생각하여 유체속에서 예측하거나 또한 고체/고체계에서의 서로의 혼합 상태를 예측하는 일에 자주 적용되어 왔다.

Inoue와 Yamaguchi<sup>1</sup>가 혼합기에서 고체 혼합을

stochastic 모델을 적용하여 연구 보고하였고, Chen과 그 동료들<sup>2</sup>에 의하여 motionless mixer에서 입자의 크기와 밀도가 다른 고체 물질의 혼합 현상을 분석하였다. 또한 drum mixer에서의 확산 현상을 stochastic 모델로서 Fan과 Shin<sup>3</sup>이 보고하였으며 Fan<sup>4</sup>은 이러한 모델을 가지고 다성분계 고체 혼합 현상을 연구 보고하였다. 이러한 stochastic 개념은 흐름계(flow system)에도 적용되어 화학 흐름 반응기에서의 반응과 보류 시간분포<sup>5,6,7</sup>를 보고하였다. 최근 Mann과 Rabinovitch<sup>8</sup>가 재순환되는 흐름계에서 보류 시간을 적용하여 보고하였다.

본 연구는 압출기속에서의 고분자 흐름 거동을 알

아보기 위하여 단축압출기와 이축압출기를 비교하여 stochastic 모델을 적용시킨 결과와 실험을 통하여 보류시간을 측정, 비교하여 블렌딩이나 컴파운딩 공정에서 stochastic 모델 적용성을 검토 연구하였다.

**이론적 배경**

n개의 연속적인 탱크가 연속적으로 연결되어 있는 흐름계를 생각하자. 흐름속의 어떤입자가 이산적인 시간(discrete time)의 추이에 따라 n개의 탱크중 어느 이산적인 공간(discrete space)에서의 한 곳에서 다른 곳으로 움직인다고 가정하여 stochastic 모델을 적용하여 보자. Markov chain에서는 시간 t+1에서의 상태는 바로 전 시간인 시간 t에서의 상태에만 의존한다는 것이므로 수학적으로 나타내면 다음과 같다.

$$F\{X_{t+1}|X_0, X_1, \dots, X_t\} = F\{X_{t+1}|X_t\} \quad (1)$$

Markov 모델에서 i state에서 빠져 나와서 j state로 들어가는 입자(particle)의 transition probability를 규정하여 보면 다음과 같이 표현된다.

$$P_{ij} = P\{X_{t+1}=j|X_t=i\} \quad (2)$$

위와같은 Markov chain의 transition probabilities의 행렬식을 다음과 같이 만들 수 있다.

$$P = \begin{bmatrix} P_{11} & P_{12} & \dots & P_{1n} \\ P_{21} & P_{22} & \dots & \\ ? & & & \\ P_{n1} & P_{n2} & \dots & P_{nn} \end{bmatrix} \quad (3)$$

여기서 P<sub>11</sub>은 구역으로 들어가 있는 입자가 그 다음 시간에도 1구역에 그대로 남아있는 확률을 의미하고 P<sub>1i</sub>(i=2, 3, ...n)은 시간 t에서 1구역에 있는 입자가 시간 t+1에서 i구역으로 흘러들어가는 확률을 의미한다. 여기서 n구역을 absorbing state로 생각하여 P는 Markov 모델에서 다음과 같이 쓸 수 있다.<sup>8</sup>

$$P = \begin{bmatrix} Q & B \\ O & I \end{bmatrix} \quad (4)$$

여기서 Q는 transient state에서의 transient probability를 의미하고 B는 transient state에서 absorbing state로 들어가는 확률, 0는 zero matrix로서 absorbing state에서 transient state로 들어가는 확률, I는 absorbing state에서 absorbing state로 들어가는 확률로 identity matrix이다.

State i에 있는 어떤 입자가 k번의 흐름 이후에 state j에 있을 확률을 k step transition probability, P<sub>ij</sub><sup>k</sup>이라 하자. 즉,

$$P_{ij}^k = P\{X_{t+k}=j|X_t=i\} \quad (5)$$

흐름계의 흐름을 정상상태 흐름이라고 가정하면 P<sub>ij</sub><sup>k</sup>는 P<sub>ij</sub>와 같다.

이러한 흐름계에서의 흐름의 보류시간을 알아보기 위하여 우선 i지역으로 들어간 흐름이 j지역에 방문하는 회수를 규정하여 보자.

입자가 각 state에 방문할 확률은 Markov chain의 초기상태에 의존한다. 조건부 확률(conditional probability) P{X<sub>t</sub>=j|X<sub>0</sub>=i}를 P<sub>i</sub>[N<sub>j</sub>]와 같이 표현하고 이와 마찬가지로 E<sub>i</sub>[N<sub>j</sub>]=E{X<sub>t</sub>=j|X<sub>0</sub>=i}라 규정하면 i, j=1, 2, ...n에 대하여 R<sub>ij</sub>=E<sub>i</sub>[N<sub>j</sub>]와 같이 표현되며 R은 다음과 같이 정의된다.<sup>8</sup>

$$R = (I-Q)^{-1} \quad (6)$$

입자가 state j 머무는 총시간은 state j에 방문회수에 이 지역에 머무는 시간을 곱하여 주면 된다.

$$E[T_j] = E_i[N_j] \mu_j \quad (7)$$

여기서 j지역에 머무는 시간, μ<sub>j</sub>은 다음과 같이 표현된다.

$$\mu_j = V_j/q_j \quad (8)$$

V<sub>j</sub>는 j지역의 부피를 나타내고 q<sub>j</sub>는 j지역에 흐르는 유량을 나타낸다.

그러므로 입자가 흐름계 속에서 머무는 총보류시간은 각 지역에서의 보류시간을 합하여 다음과 같이 표현된다.

$$E[T] = \sum_{j=1}^n E[T_j] \quad (9)$$

압출기 모델 적용

**단축압출기.** 단축압출기를 모델에 대입하기 위하여 Fig. 1과 같이 5개의 구역으로 생각한다. (1)은 feeding 구역 즉 hopper를 의미하고 (2)는 solid conveyer, (3)은 용융(melting) 구역, (4)는 metering 구역, (5)는 다이로 구분하여 Fig. 2와 같이 모델을 적용시켰다. 단축압출기에는 backward 흐름이 존재하지 않다고 가정을 하면 transient probability, P는 다음과 같다.

$$P = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & | & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & | & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & | & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & | & 1 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & | & 1 \end{bmatrix} \quad (10)$$

여기서 5 state는 absorbing state이므로 Q와 R은 4×4 행렬식으로 다음과 같이 표현할 수 있다.

$$Q = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (11)$$

$$R = [I - Q]^{-1} = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (12)$$

여기서는 1지역(호퍼)에서만 물질이 들어갔으므로  $E_1[N_j]$ 만 고려하면 된다.



Fig. 1. Flow system in twin screw extruder.

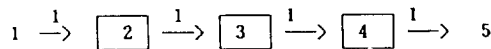


Fig. 2. Model for single screw extruder.

$$\begin{aligned} E_1[N_1] &= 1, E_1[N_2] = 1 \\ E_1[N_3] &= 1, E_1[N_4] = 1 \end{aligned} \quad (13)$$

여기서 각 지역에서의 보류시간은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$E[T_j] = E_1[N_j] \mu_j \quad (14)$$

정상상태라 가정하면  $q_j$ 는 일정하므로 ( $q_j = q$ ) 각 지역에 머무는 보류시간은 다음과 같다. 1지역은 호퍼 지역이므로 압출기속의 흐름에는 제외되므로 총 보류 시간개념에는 제외가 된다.

$$\begin{aligned} E[T_2] &= V_2/q \\ E[T_3] &= V_3/q \\ E[T_4] &= V_4/q \end{aligned} \quad (15)$$

그러므로 압출기속에서 머무는 총 보류 시간은 다음과 같다.

$$E[T] = (V_2 + V_3 + V_4)/q = V_T/q \quad (16)$$

**이축압출기.** 단축압출기에는 스크류가 1개이기 때문에 비교적 간단한 것에 비하여 이축압출기속에서의 흐름은 단축압출기에서보다 복잡하다. 이축압출기 속에서의 흐름을  $\alpha$ 만큼 back mixing이 일어난다고 생각하여 Fig. 3과 같이 생각하였다. Fig. 3과 같은 흐름계에 stochastic 모델을 적용시키기 위하여 이축압출기에서의 흐름계를 Fig. 4와 같이 모델화하였다.

우선 Fig. 4에서의 stationary transition matrix를 정하면 다음과 같다.

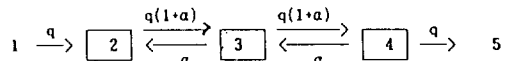


Fig. 3. Flow system in twin screw extruder for Model 1.

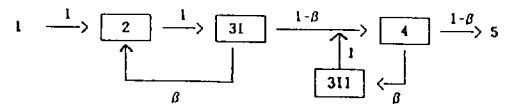


Fig. 4. Model for twin screw extruder (Model 1).

$$P = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \beta & 0 & 0 & 1-\beta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \beta & 0 & 1-\beta \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (17)$$

여기서 6 column과 6 row는 absorbing state이므로 matrix Q는 다음과 같다.

$$Q = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & \beta & 0 & 0 & 1-\beta \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & \beta & 0 \end{bmatrix} \quad (18)$$

여기서 back mixing되는 양이 forward 양의 20% ( $\beta=0.2$ )라 가정하면 R은 다음과 같다.

$$R = \begin{bmatrix} 1 & 1.25 & 1.25 & 0.25 & 1.25 \\ 0 & 1.25 & 1.25 & 0.25 & 1.25 \\ 0 & 0.25 & 1.25 & 0.25 & 1.25 \\ 0 & 0 & 0 & 1.25 & 1.25 \\ 0 & 0 & 0 & 0.25 & 1.25 \end{bmatrix} \quad (19)$$

그러므로 1 state로 들어간 입자가 각 state를 방문하는 평균 회수  $E_1[N_j]$ 는 다음과 같다.

$$\begin{aligned} E_1[N_1] &= 1, & E_1[N_2] &= 1.25, & E_1[N_3] &= 0.25 \\ E_1[N_4] &= 1.25, & E_1[N_5] &= 1.25 \end{aligned} \quad (20)$$

여기서  $E_1[N_2]$ 와  $E_1[N_3]$ 는 똑같은 지역에서 일어나는 사건이므로 이 지역에서의 방문 회수는 다음과 같이 표현된다.

$$E_1[N_2] + E_1[N_3] = 1.5 \quad (21)$$

여기서 각 지역에서의 보류 시간을 정하면 다음과 같다.

$$\begin{aligned} E[T_2] &= 1.25 V_2/q \\ E[T_3] &= 1.5 V_3/q \\ E[T_4] &= 1.25 V_4/q \end{aligned} \quad (22)$$

각 state의 부피가 똑같은 것으로 가정하면  $V_T/3 = V_j (j=2,3,4)$ 이라 할 수 있다. 그러므로 압출기에서의 총 보류 시간은  $E[T]$ 는 다음과 같다.

$$E[T] = 1.33 V_T/q \quad (23)$$

이 결과는 단축압출기에서보다 입자가 1.33배 더 압출기속에서 머문다는 것을 의미한다.

앞의 모델은 흐름이 반응기에서 backward되는 흐름이 그 반응기속의 전체 흐름에 영향을 미치지 않는다고 가정하였으나 실제 흐름계에 조금더 접근하기 위하여 backward되는 흐름이 전체의 흐름에 영향을 미치는 것을 고려하여 Fig. 5에 나타난 바와 같이 압출기 모델을 세웠다. 여기서는 각각의 반응 지역에서 물질수지는 다음과 같다.

$$P = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \beta & 0 & 0 & 1-\beta & 0 \\ 0 & 1-\beta & 0 & 0 & \beta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \beta & 0 & 1-\beta \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (24)$$

앞에서와 같은 방법으로  $E_1[N_j]$ 를 구하여 총 보류 시간을 구하면 다음과 같이 할 수 있다.

$$E[T] = 1.5 V_T/q \quad (25)$$

이축압출기가 단축압출기와 다른점은 혼합공정이 수반된다는 점이다. 그러므로 이축압출기에서의 혼합지역을 생각하고 2개의 스크류 간의 흐름의 교류가 있다고 생각하면 Fig. 7과 같은 모델을 만들 수 있



Fig. 5. Flow system in twin screw extruder for Model 2.

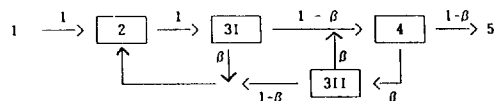


Fig. 6. Model for twin screw extruder (Model 2).

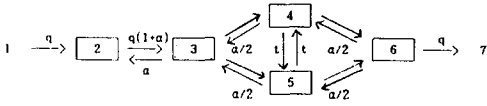


Fig. 7. Flow system in twin screw extruder for Model 3(t=0) and Model 4.

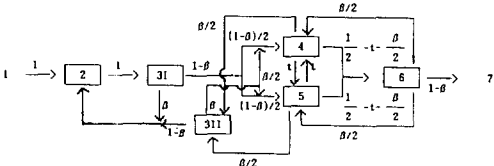


Fig. 8. Model for twin screw extruder [Model 3(no transfer flow) and Model 4].

다. Fig. 7을 stochastic 모델에 적용하기 위하여 Fig. 8과 같은 모델을 나타내었다. 여기서 transition matrix는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$P = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \beta & 0 & 0 & (1-\beta)/2 & (1-\beta)/2 & 0 & 0 \\ 0 & (1-\beta) & 0 & 0 & \beta/2 & \beta/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \beta/2 & 0 & t & (1-\beta)/2-t & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \beta/2 & t & 0 & (1-\beta)/2-t & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \beta/2 & \beta/2 & 0 & (1-\beta) \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (26)$$

여기서  $\beta=0.2$ , 스크류 간의 이동흐름이 없다고 ( $t=0$ )라고 가정하면 총 보류 시간은  $E[T]=1.4 V_T/q$ 이고 만약  $\beta=0.2$ , 스크류간의 이동흐름이 있다고 가정하여  $t=0.3$ 으로 가정한 총 보류 시간은  $E[T]=1.62 V_T/q$ 가 된다.

### 실 험

**실험재료.** 실험재료로는 SBS(Styrene-Butadiene-Styrene)과 SAN(Styrene-Acrylonitrile)을 무게비로 30 : 70으로 블렌딩하여 사용하였다. SBS는 ASAI Chemical사의 모델명 ASAFLEX로서 Styrene

과 Rubber의 비는 75 : 25의 비이었으며 SAN은 C-SAN으로서 체일모직에서 제조한 모델명 HR5350을 사용하였다. SAN과 SBS 혼합물의 밀도는 1.04이었다.

**실험장치.** 단축압출기와 이축압출기를 사용하였으며 단축압출기는 동성기공의 압출기를, 이축압출기로는 Bartenfeld사의 압출기를 사용하였다. 압출기는 40φ를 사용하였으며 L/D는 단축압출기에서는 30, 이축압출기에서는 39.5이었다. 각 압출기의 부피를 계산한 결과 단축압출기 부피는 약 300 cm<sup>3</sup>이었으며 이축압출기 부피는 약 327 cm<sup>3</sup>이었다.

**실험방법.** 실험은 단축압출기와 이축압출기에서의 보류시간을 이론치와 비교하기 위하여 SAN/SBS 블렌드로 압출기 온도를 다이쪽으로 180°, 200°, 210°, 220℃로 조절하여 정상상태가 될때까지 purge를 한 다음 안료를 중량비 0.1 이하로 섞어 안료가 혼합된 시료가 압출기에 투입된 시간으로부터 다이 밖으로 나온 시간 까지를 여러번 측정하여 평균값을 취하였다. 이같은 실험은 유량을 변화해 가며 반복 수행하였다.

유량은 3분간 나온 시료의 무게를 측정하여 평균값을 취하였다.

### 결과 및 토론

압출기속에서 흐름거동을 해석하기 위하여 stochastic 모델을 적용하여 실험 결과와 비교 검토하였다. 이를 위하여 SAN/SBS 블렌드계에서 유량의 변화에 대해 보류시간을 이론치와 실험치를 비교하였다. 본문에서는 단축압출기와 이축압출기속에서의 흐름특성을 파악하기 위하여 각 압출기속에서의 고분자흐름거동을 비교 검토하였다. Fig. 9에 단축 압출기에서의 토출량에 대한 보류 시간을 나타내었다.

보류시간은 유량이 커질수록 점점 짧아짐을 알 수 있었고 단축압출기에서는 흐름계가 간단하기 때문에 비교적 모델과 실험결과가 잘 맞았다. 이축압출기에서의 이론과 실험치를 비교하여 Fig. 10에 나타내었다. Model 1은 backward 흐름의 영향을 부분적으

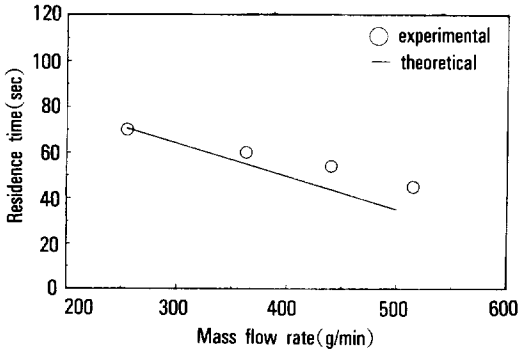


Fig. 9. Mass flow rate VS. residence time in single screw extruder.

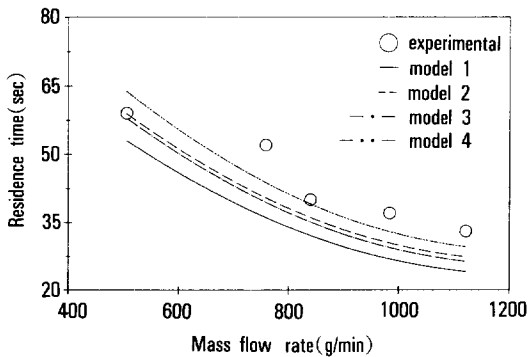


Fig. 10. Mass flow rate VS. residence time in twin screw extruder.

로만을 고려한 모델로서 실험치와는 경향은 비슷하였으나 잘 안맞았다. backward 흐름의 영향을 Model 2가 model 1보다는 훨씬 실험치에 근접하였음을 보아 이축압출기에서 back mixing의 중요성을 알 수 있었다.

이축압출기의 기능중에 중요한 것은 혼합 기능이 기 때문에 혼합 기능을 고려한 Model 3과 같이 생각한 것이 Model 1보다는 실험치에 근접하였고 back mixing 효과를 고려한 Model 2와는 비슷한 결과를 나타내었다. Model 4는 Model 3을 보완한 두 스크류 간의 교환 흐름(transfer flow)를 고려하였기 때문에 Model 3보다 실험치에 근접하였음을 알 수 있었다.

이와 같은 결과에서 back flow와 transfer flow가 이축압출기에서의 흐름에 영향을 많이 미친다는 것을 알 수 있었다.

## 결 론

압출기속에서의 흐름분석은 대부분 미분방정식을 풀어서 해석하였다. 그러나 컴파운딩이나 블렌딩에서의 흐름거동은 종래의 수학적 방법으로 해석하기는 곤란하여 본 연구에서는 stochastic 모델을 적용시켜서 보유시간을 계산하여 실험치와 비교하였다. 비교 결과 단축압출기에서는 실험치와 이론치가 비교적 일치하였으며 이축압출기에서는 혼합공정과 두 개의 스크류간의 이동흐름을 고려한 모델이 가장 실험치에 근접하였다.

감사의 글 : 본 연구수행에 도움을 주신 (주)제일모직에 감사드립니다.

## 참 고 문 헌

1. Y. Inoue and K. Yamaguchi, *Kagaku Kogaku*, **33**, 286 (1969).
2. S. J. Chen, L. T. Fan and C. A. Watson, *AIChE J.*, **18(5)**, 984 (1972).
3. L. T. Fan and S. H. Shin, *Chem. Eng. Sci.*, **34**, 811 (1979).
4. J. R. Too and L. T. Fan, *Powder Technology*, **26**, 131 (1980).
5. F. J. Krambeck, R. Shinnar and S. Katz, *Ind. Eng. Chem. Fundamentals*, **6**, 277 (1967).
6. R. Nassar, L. T. Fan, J. R. Too and L. S. Fan, *Chem. Eng. Sci.*, **36**, 1307 (1981).
7. R. Nassar, J. R. Too and L. T. Fan, *J. Appl. Sci.*, **26**, 3745 (1981).
8. U. Mann, M. Rubinovich and E. J. Crosby, *AIChE J.*, **25(5)**, 873 (1979).