

Das Nicht-Newtonsche Fließverhalten einer Bleisilicatglasschmelze

Prof. Dr.-Ing. Erwin Roeder zu seinem 67. Geburtstag gewidmet

The Non-Newtonian Flow Behavior of a Lead Silicate Glass Melt

Dedicated to Prof. Dr.-Ing. Erwin Roeder on the occasion of his 67th birthday

Die beim Strangpressen anorganischer Glasschmelzen bei Überschreiten einer kritischen Scherspannung auftretenden Oberflächenfehler, die sog. Schmelzbrüche, sind auf Wechselwirkungen des Glases mit dem Matrizenmaterial und dadurch entstehende stick-slip-Effekte zurückzuführen. Dabei können hohe Verformungsgeschwindigkeiten auftreten. Aus diesem Grund ist es sinnvoll, die Glasschmelze unter dem Strangpressen ähnlichen Bedingungen auf Nicht-Newtonsches Verhalten hin zu untersuchen, welches für die Entstehung der Schmelzbrüche mitverantwortlich sein kann. Die Ergebnisse zeigen, daß bei Viskositäten in der Nähe des Erweichungspunktes oberhalb Schergeschwindigkeiten von $1,4 \text{ s}^{-1}$ mit Nicht-Newtonischem Fließen des verwendeten Bleisilicatglases zu rechnen ist.

1 Einleitung

Beim Strangpressen anorganischer Glasschmelzen können beim Überschreiten einer kritischen Strangaustrittsgeschwindigkeit infolge zu hoher Scherverformungen Fehler auf der Oberfläche der extrudierten Stränge entstehen, die als Schmelzbruch bezeichnet werden (s. Abb. 1) [1], [2].

Diese auch beim Strangpressen von Metallen und beim Extrudieren von Polymerschmelzen wohlbekannten Schädigungen sind auf stick-slip-Effekte im Matrizenkanal zurückzuführen [3]. Dabei treten kurzzeitig sehr hohe örtliche Verformungsgeschwindigkeiten auf. Aus diesem Grund sollte untersucht werden, ob bei den für Strangpreßvorgänge typischen Versuchsbedingungen Nicht-Newtonisches Fließverhalten des verwendeten Bleisilicatglases F2¹⁾ vorliegen kann.

Hierzu wurde eine Versuchsvorrichtung entwickelt und mit beim Strangpressen üblichen Temperaturen betrieben. Jedoch konnte das untersuchte Glas in dieser Vorrichtung keinem Überdruck ausgesetzt werden.

2 Rheologie des Glases

Zur Beschreibung des rheologischen Stoffverhaltens anorganischer Gläser wird i. a. das Maxwellsche Modell [4] herangezogen. Dieses vereint auf sich sowohl das rein viskose Fließverhalten von Fluiden geringer Viskosität (Newtonsche Fluide) als auch das elastische Verhalten (Hookesche Fluide) bei großer Laständerungsgeschwindigkeit. Aufgrund der starken Temperaturabhängigkeit der Viskosität liegt das Verhalten des Werkstoffes Glas zwischen den Grenzfällen des rein viskosen und des rein elastischen Mediums.

During extrusion of inorganic glass melts, defects occur above a critical shear stress and result in a roughened surface on the extrudate (melt fracture). Melt fracture can be attributed to stick-slip effects arising from the interaction of the flowing glass melt with the matrix and it usually occurs at a high deformation rate. It is therefore useful to study the non-Newtonian behavior of the glass melt under "extrusion-like" conditions, because the non-Newtonian behavior can be a contributing factor to melt fracture. The results show that the lead-silicate glass melt examined here exhibited non-Newtonian behavior at its softening point, which occurs at shear rates above 1.4 s^{-1} .

1 Introduction

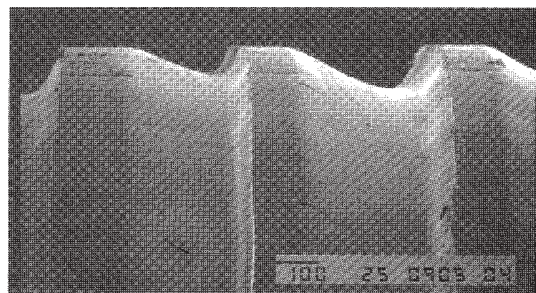
During extrusion of inorganic glass filled melts, above a critical shear stress a phenomenon called melt fracture can occur, resulting in a roughened surface on the extrudate (see Fig. 1) [1], [2].

This well-known damage to the extrudate surface, which also occurs during extrusion of metals and polymer melts, is attributed to stick-slip effects within the die channel [3]. Stick-slip flow results when very high local deformation rates exist for short periods. We therefore examined a lead-silicate glass (F2, made by Schott Glaswerke, Mainz) to determine if non-Newtonian behavior was exhibited under conditions that occur during extrusion.

An experimental apparatus was developed and temperatures typically used in extrusion processing were adjusted. However, the design of the apparatus did not allow for a pressure rise in the glass material.

2 Rheology of the Glass

A Maxwell model [4] can be used to describe the rheological properties of inorganic glasses. This model includes both viscous effects of fluids with a

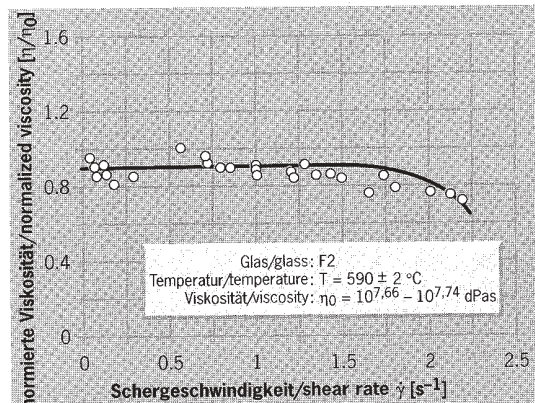


Andreas Dengel,
Neunkirchen,
Germany

Abb. 1:
Der Schmelzbruch beim
Strangpressen anorganischer
Glasschmelzen

Fig. 1:
Melt fracture during extrusion
of inorganic glass melts

Abb. 4:
Normierte Viskosität η/η_0
dargestellt über der
Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}$
Fig. 4:
Normalized viscosity η/η_0
as a function of shear rate $\dot{\gamma}$



Gleichung (7) in Gleichung (9) eingesetzt ergibt Gleichung (10).

In Abb. 5 ist der Zusammenhang zwischen Vergleichsspannung σ_v und Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}$ wiedergegeben.

Die Beziehung zwischen Schergeschwindigkeit und Vergleichszugspannung läßt sich sehr gut mit der empirisch ermittelten Funktion – s. Gleichung (11) – beschreiben.

Mittels dieser Gleichung läßt sich aufgrund ihrer hervorragenden Übereinstimmung mit den Meßwerten eine Abschätzung der von der Glasschmelze maximal ertragbaren Bruchspannung σ_{lim} über den eigentlichen Meßbereich hinaus durchführen. Als Bruchspannung σ_{lim} von Bleisilicatglas F2 wurde somit bei einer Viskosität im Bereich von $10^{7.66}$ dPas bis $10^{7.74}$ dPas ein Wert von 47 N/mm^2 ermittelt.

Der Schubmodul G bei Versuchstemperatur wurde nach Coenen [12] über den Elastizitätsmodul E mit Hilfe der Beziehung (12) bestimmt.

Somit lassen sich die in dieser Untersuchung ermittelten Meßwerte analog zu [8], [10] in Abb. 6 darstellen. Die durchgezogene Linie stellt die Funktion nach Gleichung (13) [8] dar, wobei $\alpha = \sigma_{lim}/G$ sich hier zu $1/121$ ergibt.

Abb. 6 zeigt, daß das Nicht-Newtonsche Fließverhalten der hier untersuchten Glasschmelze durchaus dem nach Gleichung (13) von Simmons [8], [10] zu erwartenden Verlauf entspricht.

5 Zusammenfassung

Es konnte gezeigt werden, daß das Bleisilicatglas F2 im für Strangpressen üblichen Temperaturbereich oberhalb Schergeschwindigkeiten von $1,4 \text{ s}^{-1}$ nicht mehr dem Fließgesetz nach Newton gehorcht.

Übertragen auf das Strangpressen anorganischer Glasschmelzen ist hiermit anzunehmen, daß bei hohen Verformungsgeschwindigkeiten sehr wohl mit Nicht-Newtonschem Verhalten des Fluids zu rechnen ist.

Abb. 5:
Vergleichsspannung σ_v in Abhängigkeit von der Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}$.
Die durchgezogene Linie entspricht dem Verlauf der Funktion (11)

Fig. 5:
Calculated extensional stress σ_v as a function of shear rate $\dot{\gamma}$.
The line through the data corresponds to Equation (11)

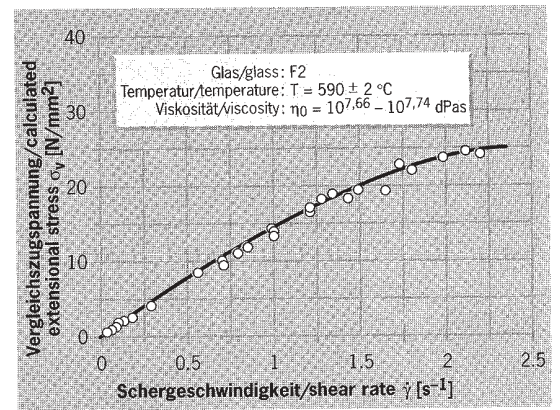


Figure 3 shows the shear stress τ as a function of shear rate $\dot{\gamma}$ for the glass melt. The deviation from Newtonian behavior (denoted with the dashed line) is evident at higher shear rates.

Up to shear rates of 1.4 s^{-1} (corresponding to viscosities from $10^{7.66}$ to $10^{7.74}$) the glass melt can be described using the Newtonian model. At higher shear rates the apparent viscosity decreases with increasing shear rate, as shown in Fig. 4.

Above the maximum shear rate shown in these Figures, slip occurs between the glass melt and the metal wall of the piston. Shear rates up to 2.2 s^{-1} were attained; the shear stress in the glass melt at the highest shear rate was 6.7 N/mm^2 . However, the shear stress calculated using the Newtonian relation is 11 N/mm^2 at this shear rate. This value agrees with that calculated in reference [1], which was also calculated based on a Newtonian Equation. At this shear stress, the glass melt transitions from wall sticking to wall slipping.

From Equation (7), where ν = the Poisson ratio, the measured shear rate $\dot{\gamma}$ can be used to calculate the extension rate ϵ_v in a corresponding uniaxial experiment.

By setting Equation (3) equal to Equation (8), one obtains Equation (9), which allows one to predict the stress occurring in a uniaxial experiment corresponding to the measured values of the shear stress and shear rate of the actual experiment.

Putting Equation (7) into Equation (9) yields Equation (10).

Figure 5 shows the calculated values of the uniaxial stress σ_v as a function of the shear rate $\dot{\gamma}$.

The relationship between the shear rate and the uniaxial stress is well represented by the empirical function (see Equation (11)).

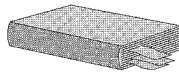
Because of its excellent predictions of the measured values, this empirical equation can be used to estimate the maximum (fracture) stress σ_{lim} of the glass melt. One must extrapolate beyond the measured values to make this estimation. Such an extrapolation yields a fracture stress σ_{lim} for the lead-silicate glass F2 of 47 N/mm^2 (in the viscosity range of $10^{7.66}$ dPas to $10^{7.74}$ dPas).

Following Coenen [12], the shear modulus G was determined at the test temperature from the elastic modulus E using Equation (12).

Jedoch ist in Untersuchungen zu diesem Sachverhalt [7]–[11] bisher der Einfluß des die Glasschmelze umgebenden Formenwerkstoffes nicht berücksichtigt worden. Dies bedeutet für die Erklärung des Schmelzbruchphänomens, daß nicht allein das Verhalten der Glasschmelze bei großen Schergeschwindigkeiten betrachtet werden darf. Vielmehr ist auch das Material der Formenwandung und die sich zwischen Matrizenwerkstoff und Glasschmelze ausgebildete Oxidschicht zu beachten.

Darüber hinaus wird in der Modellvorstellung der Schmelzbruchausbildung [3] deutlich, daß in der zeitlich sehr schnellen Änderung der Haftbedingungen und somit der Fließzustände Verformungsgeschwindigkeiten erreicht werden, die den hier untersuchten Bereich bei weitem übersteigen. Diese können nämlich Werte bis zu $\dot{\gamma} = 45 \text{ s}^{-1}$ annehmen.

Rh



- [1] Dengel, A.; Roeder, E., *Glastech. Ber.* 64 (1991), No. 10, p. 268–271
- [2] Roeder, E.; Dengel, A., *Glastech. Ber.* 61 (1988), No. 3, p. N14
- [3] Dengel, A., Experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Entstehung von Schmelzbrüchen beim Strangpressen anorganischer Glasschmelzen. Diss. Universität Kaiserslautern 1991
- [4] Meerlender, G., *Rheol. Acta* 2 (1962), p. 283–292
- [5] Meerlender, G., *GiT-Fachz. Lab.* 9 (1965), p. 553–561
- [6] Coenen, M., *Glastechn. Ber.* 51 (1978), No. 1, p. 17–20
- [7] Li, J.H.; Uhlmann, D.R., *J. Non-Cryst. Solids* 3 (1970), p. 127–147; p. 205–224
- [8] Simmons, J.H.; Mohr, R.K.; Montrose, C.J., *J. Appl. Phys.* 53 (1982), No. 6, p. 4075–4080
- [9] Manns, P.; Brückner, R., *Glastech. Ber.* 61 (1988), No. 2, p. 46–56
- [10] Simmons, J.H.; Ochoa, R.; Simmons, K.D., *J. Non-Cryst. Solids* 105 (1988), p. 313–322
- [11] Manns, P., Heißbruchfestigkeit und Fließverhalten unter extremer Deformationsbeanspruchung. Diss. Techn. Univ. Berlin 1984
- [12] Coenen, M., *Glastechn. Ber.* 50 (1977), No. 7, p. 164–168

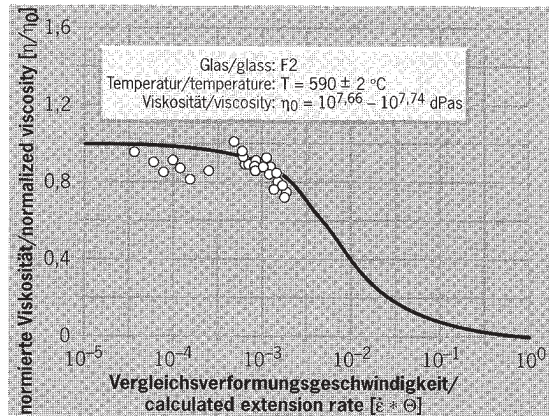


Abb. 6: Verlauf der normierten Viskosität über der normierten Verformungsgeschwindigkeit

Fig. 6: Normalized viscosity as a function of the calculated extension rate

Using this procedure, the values determined in this investigation could be depicted as shown in Fig. 6, analogously to the data presented in references [8] and [10]. The line through the data is represented by Equation (13) [8], where $\alpha = \sigma_{lim}/G$ is equal to 1/121.

Fig. 6 shows that the non-Newtonian behavior of the glass melt examined completely corresponds to the predictions of Equation (13) proposed by Simmons [8], [10].

5 Conclusion

In this work we have shown that, at typical extrusion temperatures, the lead-silicate glass F2 no longer exhibits Newtonian behavior at shear rates above 1.4 s^{-1} . One can therefore assume that non-Newtonian behavior will be exhibited by inorganic glass melts at high shear rates such as those encountered in extrusion.

In previous investigations of this phenomenon [7]–[11], the influence of the type of material used as a mold for the glass melt has not been considered. This means that in explaining melt fracture, the behavior of the glass melt at large shear rates is not the only factor to consider. The material used as a mold and the oxide layer that forms between the die channel wall and glass melt can be of considerable influence.

Moreover, it is clear from the model of melt fracture [3] that shear rates are realized which far exceed those examined in this work. Values as high as $\dot{\gamma} = 45 \text{ s}^{-1}$ are often obtained, resulting in very rapid changes in the slip conditions and the corresponding flow behavior.

Rh