

교합형 동방향 이축압출기의 스크류 조합에 대한 고찰

이시춘* · 김형수†

중원대학교 항공재료공학과
28024 충북 괴산군 괴산읍 문무로 85
*단국대학교 공과대학 화학공학과
16890 경기도 용인시 수지구 죽전로 152

(2021년 1월 12일 접수, 2021년 2월 25일 수정본 접수, 2021년 3월 6일 채택)

A Review on the Screw Configuration of Intermeshing Co-rotating Twin Screw Extruder

Shichoon Lee* and Hyungsu Kim†

Department of Aero-Materials Engineering, Jungwon University, 85 Munmu-ro Goesan-eup, 28024, Korea
*Department of Chemical Engineering, Dankook University, 152 Jukjeon-ro, Yongin-si, Gyeonggi, 16890, Korea
(Received 12 January 2021; Received in revised from 25 February 2021; Accepted 6 March 2021)

요 약

교합형 동방향이축압출기는 고분자재료의 컴파운딩에 주로 사용되는 기계이다. 이축압출기는 가공하는 재료와 생산 제품에 적합한 스크류 조합을 설계하여 품질과 생산성이 양호한 컴파운딩공정을 구축할 수 있다. 스크류조합을 구성하는 스크류와 니딩 엘리먼트의 종류, 형상 및 사양에 대하여 정리하였고, 각각의 엘리먼트가 조합될 때 고분자 수지의 가공성에 미치는 영향에 대하여 알아보았다. 범용수지의 대량생산에 보편적으로 적용되는 스크류 조합의 원리를 설명하였고, 피딩, 용융혼련 및 미터링영역에 적합한 스크류조합의 방향과 사례를 나열하였다. 액상첨가제나 무기필러의 사이드피딩, 반응압출, 탈기공정, 밝은 색상과 투명도가 요구되는 제품의 생산 및 겔비중이 낮은 재료의 가공 등 각각의 경우에 맞는 스크류조합의 방향과 원리를 제시하였다.

Abstract – An intermeshing corotating twin screw extruder is mainly used for compounding polymeric materials. Twin screw extruder can adopt modular-type screw configurations, which directly controls the quality and productivity of the products. The types, shapes, and specifications of the screw and kneading elements are summarized, and the effects of screw configuration on the processability of the materials are discussed. The principles of screw configuration universally applied to mass production of general-purpose resins are explained, and the guidelines of screw combination according to the roles of feeding, melt mixing, and metering zones are listed. The strategies of screw combination suitable for various cases, such as side feeding of liquid additives or inorganic fillers, reactive extrusion, devolatilization process, production of products requiring bright color and transparency, and processing of materials with low apparent specific gravity, are presented.

Key words: Twin screw extruder, Screw configuration, Compounding, Polymer processing

1. 서 론

동방향이축압출기(corotating twin screw extruder)는 1930년대 말에 상업화된 이후에 지속적인 성능 개선을 바탕으로 고분자재료의 제조나 가공에 널리 사용되고 있다[1]. 고분자의 제조에서 이축압출기를 사용하는 공정은 고분자의 중합 후 잔존하는 단량체를 휘발

하며 펠렛화(pelletizing)하는 공정, 각종 고분자들과 첨가제들의 혼련공정, 그리고 고분자 공중합체를 제조하거나 고분자의 분자량과 극성을 개질하는 반응압출공정이 포함된다. 특히 다수의 첨가제와 고분자 수지를 혼합하는 컴파운딩(compounding)공정에서는 착색제, 난연제, 열안정제, 광안정제, 유리섬유 및 탈크 등의 무기필러류, 그리고 탄소나노튜브(carbon nanotube) 또는 그래핀(graphene) 등의 나노탄소가 투입되어 중합된 고분자수지의 성능향상이 달성된다[2-5]. 이러한 다성분계 수지의 제조는 혼련능력이 우수한 이축압출기에서 효과적으로 수행될 수 있으며 플라스틱 원료의 공급측면에서 매우 중요한 역할을 담당한다.

단축압출기와 비교했을 때 이축압출기만이 가지는 장점은 스크

†To whom correspondence should be addressed.

E-mail: hkim@dku.edu

This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

류와 배럴의 모듈화(modular screw and barrel)가 가능하기 때문에 이들의 조합으로 다양한 구성을 갖는 가공 공정을 구축 수 있다는 것이다. 스크류 채널(channel)에 충전되지 않는 상태에서의 투입과 이송(starved feeding and conveying) 및 니딩엘리먼트(kneading element)에 의한 재료의 용융 및 혼합 능력은 단축압출기와 비교되는 또 다른 특징이다. 이외에 교합형(intermeshing) 이축압출기에서는 스크류 간의 교합작용으로 인하여 혼합의 효율이 증대될 뿐만 아니라 자가청소(self-cleaning)의 기능이 부여된다[1,6,7].

이축압출공정과 관련된 여러 가공인자들은 스크류의 조합, 스크류 회전수, 스크류 길이 및 직경, 배럴온도, 투입되는 수지의 유동 특성, 재료의 형상 및 토출량 등이다. 여러 가공인자들 중에서 스크류 조합은 이축압출기를 통하여 제조되는 수지의 품질과 성능에 가장 큰 영향을 미치는 인자이다. 스크류는 배럴에 비하여 더 다양한 요소들을 포함하는 모듈로 구성될 수 있으므로 가공되는 재료와 생산되는 제품에 요구되는 물성과 생산성에 적합한 최적의 스크류 조합이 적용되어야 한다. 이를 위하여 이축압출기의 기계적인 특성과 이송엘리먼트(conveying elements), 니딩엘리먼트(kneading elements) 및 혼합엘리먼트(mixing elements)의 종류, 사양 및 이들의 특성이 체계적으로 파악되어야 한다. 스크류 조합은 제품의 기계적 물성과 열안정성 뿐만 아니라 황변문제(high yellow index), 투과도의 저하(low transmission), 젤화(gelation), 흑점(black spot), 피쉬아이(fish eye) 등과 같은 품질문제와 밀접하게 연관되어 있으며 압출기 부품들의 망실에도 크게 영향을 미친다[8]. 그러므로 스크류조합은 해당 산업체의 품질불량의 문제해결이나 생산성 향상을 위한 핵심기술로 인식되어야 한다. 스크류 조합의 기술은 각각의 산업체에서 사용하는 재료와 운전 조건 등에 맞추어 개발되는 기술적인 노하우가 되기 때문에 외부에 공개될 수 없고, 품질과 생산성의 최적화를 위하여 체계화되거나 일반화되기 어렵다. 문헌에서는 스크류직경이 비교적 작은 20~30 mm 정도의 소형압출기에서 수행된 실험 결과

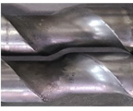

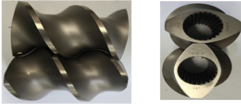
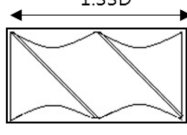
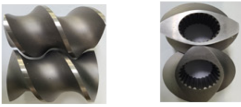
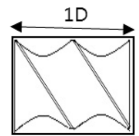


를 바탕으로 스크류조합의 영향이 평가되었으나[9-12] 보다 큰 스크류를 이용하는 양산 공정에 응용되기에는 제한적인 측면이 있다. 본 논문에서는 고분자 산업체에서 고분자 수지의 컴파운딩에 주로 사용되는 교합형 동방향 이축압출기에서의 스크류조합에 필요한 기본적인 지식을 요약하여 설명하고자 하였다. 아울러 가공이 어려운 재료를 사용하거나 압출기내에서 고분자에 특별한 성능을 부여하는 특수한 컴파운딩의 수행에는 일반적인 조합과는 차별화된 스크류조합이 필요하므로 이와 같은 사례들을 분류하여 보고자 한다. 이전의 문헌에서 인용된 이축압출기보다 직경이 크며 산업체에서 사용되는 60 mm의 이축압출기를 기준으로 적용된 스크류조합의 원리와 방향에 대하여 정리하였다.

2. 스크류 조합의 기본 원리와 사례별 적용

2-1. 스크류 엘리먼트의 종류와 특성

체류시간분포(residence time distribution, RTD), 수지온도(melt temperature) 및 비에너지값(specific mechanical energy, SME) 등은 이축 압출 공정의 가공인자들이 조합되어 나타나는 중요한 가공특성치(processing characteristics)들이다[8-13]. 이러한 가공특성치들은 모듈화된 이송엘리먼트, 니딩엘리먼트 및 혼합엘리먼트들의 다양한 조합으로 구성된 스크류조합에 의하여 제어될 수 있다. Table 1에 동방향이축압출기의 스크류조합에 많이 사용되는 이송엘리먼트들의 사양과 특성을 요약하였다. 단축압출기에서는 채널을 흐르는 수지와 배럴이 완전히 충전(fully-filled)된 부분이 존재하므로 수지와 배럴 간의 마찰에 의해 전단력이 작용하고 지속적인 스크류 회전에 의한 끌림흐름(drag flow)이 생겨 수지가 이송된다. 그러나, 인터메싱 이축압출기에서는 채널과 배럴이 부분적으로 충전된 상태(partially-filled)로 가공되므로 단축압출기와는 달리 두 스크류와의 상호작용에 의해 이송된다.

Table 1. Characteristics of conveying elements in twin screw extruder

Conveying elements			
Image	Schematic representation	Screw geometry	Characteristics
		Forward conveying screw Length = 1.33D Single flight Helical angle = 23° Pitch = 1.33D	Conveying powder and granules with low bulk density
		Forward conveying screw Length = 1.33D Double flight screw Helical angle = 23° Pitch = 1.33D	Conveying at feed zone and vent zone
		Forward conveying screw Length = 1D Double flight Helical angle = 17.7° Pitch = 1D	Standard forward conveying
		Reverse conveying screw Length = 0.67D Double flight Helical angle = -23° pitch = 1.33D	Back conveying

이송엘리먼트는 순방향 이송스크류(right-handed conveying screw 또는 forward conveying screw)와 역방향 이송스크류(left-handed conveying screw 또는 reverse conveying screw)로 나눌 수 있다. 고상이송(solid conveying)과 용융상의 이송(melt conveying) 모두 이송용 스크류가 사용된다. 일반적인 순방향 이송을 위해서는 스크류 길이가 스크류의 직경과 동일한 스퀘어피치 스크류(square pitch screw)로 두개의 로브(lobe)를 가지는 스크류(double flighted screw)가 사용된다. 스크류와 배럴의 길이는 스크류 외경(D)에 대한 비(screw length to diameter ratio)로 표시하는 것이 일반적이다. 스크류의 위치도 스크류가 시작되는 지점을 기점으로부터의 거리를 스크류 직경에 대한 비로 나타낸다. 일반적으로 신속한 이송을 필요로 하는 구간에서는 피치(pitch)가 1.2~2D인 정도로 긴 스크류를 사용한다. 스퀘어피치 스크류인 경우 나선각(helix angle)이 17.7°이다. 피치가 이보다 긴 경우에는 나선각이 이 값보다 커지며 이송 속도도 빨라진다. 피치가 1.33D, 1.5D인 스크류가 자주 사용되는데 이 경우 나선각은 23°와 25°이다. 재료의 형상이 미세한 파우더나 겔보기비중이 아주 낮은 플레이크(flake)나 그레놀(granule)인 경우에는 물질의 투입 자체가 상당히 어렵다. 이 경우 하나의 로브를 가지며 피치가 긴 스크류(single flighted screw)가 사용된다. 이 스크류는 이송할 수 있는 부피가 두개의 로브를 가지는 스크류에 비하여 적지만 재료의 단위부피당 부여할 수 있는 전단력이 커지므로 비중이 낮은 미세한 형상의 재료의 투입에 적절하다 [1,6].

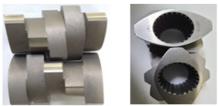
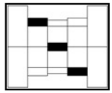
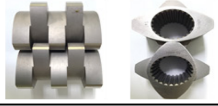
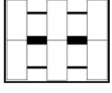
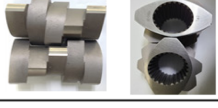
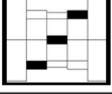
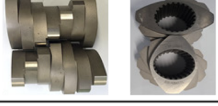



역방향 이송 스크류는 순방향흐름을 막아 고분자의 완전한 용융을 달성하기 위해 사용된다. 발생된 배압(back pressure)에 의한 배압흐름을 일으키므로 축방향혼합(axial mixing)을 향상시킨다. 순방향흐름의 차단과 체류시간의 증가정도는 역방향니딩블록 보다도 강력하므로 보통 0.5~0.7D 정도의 짧은 길이가 사용된다[1].

Table 2에서는 이축압출기에서 주로 사용되는 니딩엘리먼트들을

나열하였다. 니딩엘리먼트는 니딩디스크가 5장 또는 7장씩 묶음으로 구성된 블록형태로 사용되며(니딩블록), 길이는 보통 1D 정도로 제작되어 공급된다. 디스크들 간의 순방향 교합각(staggered angle)이 45°인 니딩블록(KB5R)은 5장의 디스크로 구성되어 있으며 첫번째 디스크를 제외하고 4장의 디스크가 45°씩 순방향으로 돌아가 180°로 회전하게 된다. 이 경우 니딩능력이 크며 이송능력도 있으나 배압형성능력은 크지 않다. 교합각이 90°인 경우는 4장의 디스크가 90°씩 꺾여 360°로 회전하게 되는데, 역방향뿐만 아니라 순방향의 이송능력이 없으므로 중립형 니딩블록(neutral kneading block, KB5N)으로 불린다. 중립형 니딩블록은 니딩능력 및 배압형성능력이 아주 우수하다. 역방향 교합각(staggered angle)이 45°인 니딩블록(KB5L)은 역시 5장의 디스크로 구성되어있으며, 첫번째 디스크를 제외하고 4장의 디스크가 45°씩 역방향으로 돌아가 180°로 회전하게 된다. 이 니딩블록은 니딩능력과 배압형성능력은 크나 이송능력은 없다. 교합각이 역방향으로 30°인 니딩블록(KB7L)은 7장의 디스크로 이루어져 있어 첫번째를 제외한 6개의 디스크가 역방향으로 30°씩으로 180° 회전하게 된다. 이 니딩블록은 역방향으로 이송능력이 있어 배압형성능력이 우수한 반면에 니딩능력은 떨어진다.

이축압출기에서 니딩블록은 수지를 용융시키며 각 성분들의 크기를 잘게 하는 분산혼합(dispersive mixing)을 역할을 주로 하게 된다. 수지내부의 균형 잡힌 혼련이 달성되기 위하여 분산된 성분들은 균일하게 분배혼합(distributive mixing)하는 과정이 필요하게 되는데 이를 위하여 얇은 니딩디스크를 7장 이상으로 구성한 순방향니딩블록이 사용되나 특별히 분배혼합을 향상시키는 TME(tooth mixing element) 혼합엘리먼트가 사용되기도 한다. TME는 인터메싱 특성을 가지고 있고 순방향 이송력도 있으며 특히 여러 방향으로의 흐름을 만들어 분배혼합을 향상시킨다[1,6].

Table 2. Characteristics of kneading and mixing elements in twin screw extruder

Kneading and mixing elements			
Image	Schematic representation, Denotation	Screw geometry	Characteristics
	 KB5R	Forward kneading block Length = 1D Number of discs = 5 Staggered angle = 45°	Kneading and forward conveying
	 KB5N	Neutral kneading block Length = 1D Number of discs = 5 Staggered angle = 90°	Kneading and no forward conveying
	 KB5L	Reverse kneading block Length = 1D Number of discs = 5 Staggered angle = -45°	Kneading and reverse conveying
	 KB7L	Reverse kneading block Length = 1D Number of discs = 7 Staggered angle = -30°	Kneading, distributive mixing and reverse conveying
	 TME	Tooth mixing element Length = 1D	Distributive mixing

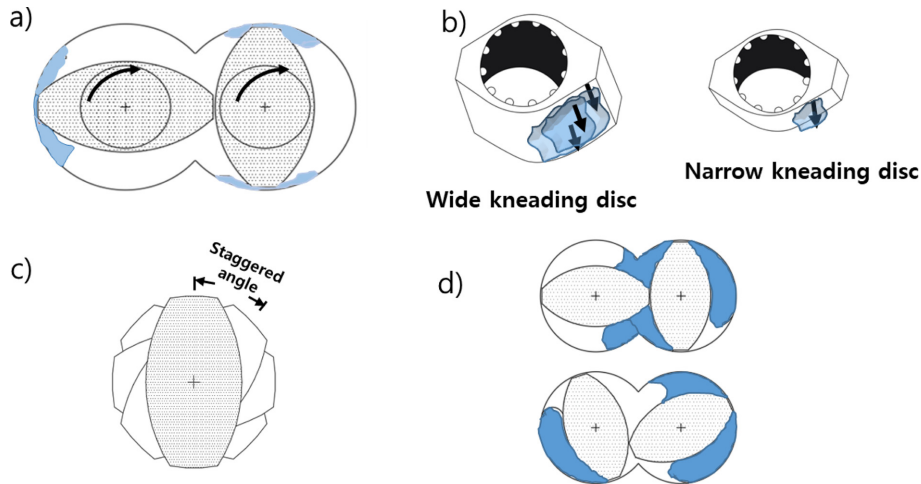


Fig. 1. Various modes of interactions between materials and kneading elements: (a) Melting by shearing at the tip of disc; (b) Kneading on the surface of disc; (c) Scissoring effect by discs with staggered angle; (d) Mixing by volume compression and expansion.

Fig. 1에 이축압출기의 니딩블록의 상호작용과 이로 인한 수지의 변형을 도식화 하였다. 니딩블록에서 수지의 용융과 혼합은 전단변형, 압축(compression)과 팽창(expansion)의 반복 및 니딩디스크에 의한 시저링(scissoring)등의 메커니즘에 의해 이루어진다[1,6,14,15]. 전단변형은 니딩디스크의 팁(tip) 부분에서 수지가 끌리면서 발생하는 것으로(Fig. 1(a)) 배럴과의 깊이에 따라 전단응력과 전단속도가 달라진다. 니딩디스크 면에 의한 니딩응력의 정도는 디스크의 폭에 의존하며 단위 디스크당의 니딩응력은 디스크의 폭이 커짐에 따라 증가한다(Fig. 1(b)). 그러므로 재료의 초기 용융단계에서는 디스크폭이 넓은 니딩블록을 사용하여 높은 니딩응력을 가하여 수지를 녹이게 된다. 폭이 좁은 디스크는 낮은 강도의 니딩응력을 가하며 다음 단계로 이송되므로 분배혼합성능을 높일 수 있다. 그러므로 수지의 용융과 분산이 이루어진 이후에 분배혼합성능이 필요할 경우에는 폭이 좁은 니딩블록을 사용하는 것이 효과적이다. 서로 엇갈린 니딩디스크들의 회전에 의한 시저링은 분배혼합과 분산 혼합을 증대할 수 있는 또다른 메커니즘이 되며(Fig. 1(c)), 니딩영역에서 수지가 경험하는 반복적인 압축과 팽창은 수지의 유동패턴

을 복잡화함으로써 혼련의 효율을 향상시킬 수 있는 중요한 작용이다(Fig. 1(d)).

2-2. 컴파운딩에 사용되는 인터메싱동방향이축압출기의 스크류 조합

이축압출기를 통하여 생산된 수지가 양호한 품질을 갖기 위해서는 적절한 체류시간분포, 가능한 낮은 수지온도에서 조업이 수행될 수 있는 스크류조합이 구성되어야 한다. 또한 이런 조건아래에서 높은 생산성을 위해서는 낮은 비에너지값을 가질 수 있도록 하는 스크류조합이 필요하다.

Fig. 2에 스크류 외경 60 mm, 36D 길이의 동방향 이축압출기의 컴파운딩 공정에 주로 사용되는 스크류조합의 예시를 제시하였다. 일반적으로 압출기의 내부는 피드영역(feeding zone), 용융영역(melting zone), 미터링영역(metering zone)으로 나누어진다. 피드영역은 재료들을 투입하여 용융영역까지 이송하는 부분으로 고상 이송영역으로 불리기도 한다. 용융영역은 고상이송영역을 통과하면서 따뜻하게 가열된 재료를 녹이고 혼합하는 영역으로 압축영역

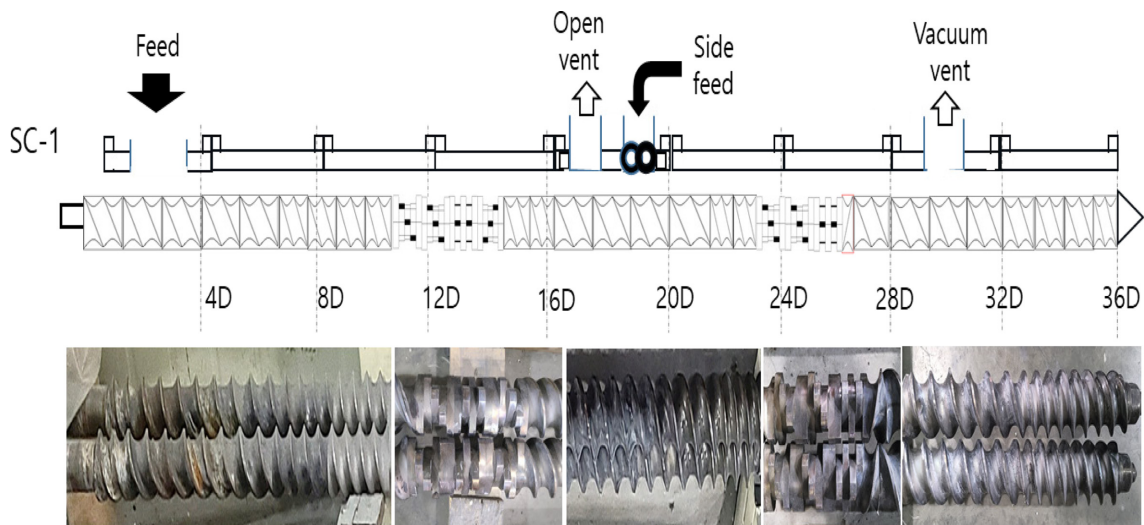


Fig. 2. A general screw configuration of an intermeshing co-rotating twin screw extruder for compounding polymeric materials.

(compression zone)이라고도 한다. 용융영역에서 혼합된 재료는 벤트부(vent or degassing section)를 지나게 되면서 용융체에 잔존하는 단량체의 휘발성분, 열 또는 산화성 분해부산물, 그리고 수분 등이 제거된다. 미터링영역은 용융된 수지를 순방향스크류를 이용하여 이송시켜 스트랜드를 형성하는 영역으로 용융수지 이송영역(melt conveying section)이나 토출부(discharge section)라고 한다. 위와 같이 세가지 영역으로 구별하는 것은 단축압출기와 유사하다.

Fig. 2에서 피드영역의 스크류를 자세히 살펴보면 호퍼에서 투입되는 부위(피드부)는 스크류피치가 스케어피치 보다 크며 1.3~1.5D 정도로 긴(long pitch screw, LPS) 순방향 이송스크류를 사용하는 것이 일반적이다. 피치가 크므로 스크류 채널이 넓게 되고 한번의 회전에 의해 이송되는 거리가 길다. 그러므로 많은 양의 고체 원료가 빠른 속도로 이송될 수 있다. 이런 스크류를 적용하는 길이는 보통 8D 이하로 구성한다. 일반적으로 배럴에서 하나의 블록이 4D 크기로 제작되므로 2개의 배럴블록에 해당되는 길이이다. 특히 비중이 낮거나 수분이 많은 재료의 경우는 피드부에서 투입이 어려운 공정트러블이 자주 발생한다. 재료에 수반되는 많은 공기와 수분은 배럴의 가열에 의한 온도상승과 스크류에 의한 압착에 의해 휘발되어 호퍼부로 역류되는데 이 현상은 피드부에서 더 큰 이송물체를 불러일으킨다. 피드부에서의 이송불량은 다이에서 토출되는 스트랜드의 두께가 일정하지 못한 서징(surging)문제를 일으킨다. 서징현상으로 인하여 수지는 불균일한 혼합과 전단응력에 놓이게 되며 부분적으로 과도한 응력을 받을 경우 기계적물성의 저하와 변색문제가 발생할 수 있다.

LPS 스크류 다음으로는 스케어피치 스크류를 4D 길이 정도로 배치한다. 또는 이중에서 2D 정도의 길이는 스케어피치 스크류 보다 피치가 작은 스크류를 배치하기도 한다. 이축압출기의 압축비(compression ratio)는 압축부의 스크류의 피치 길이에 대한 피드부의 피치길이의 비로 정의된다. LPS를 통하여 빠르게 이송된 수지는 스케어피치의 좁은 채널에 의해 밀착되고 고상 재료들 간의 마찰력(internal friction)으로 압착(compaction)된다. 이러한 환경에서는 재료들이 상대적으로 좁은 스크류채널을 통과하는 시간이 길어지게 되고 배럴에서의 열전달로 인하여 재료의 온도가 상승되므로 고형분들의 응집체가 잘 형성될 수 있게 되며 이는 후속되는 용융기작에 매우 중요한 영향을 미치게 된다. 이축압출기 용융능력은 단축압출기에 비하여 매우 크며 니딩블록의 작용에 의하여 고형분과 용융혼합체가 형성될 때 고형분에서 극심한 변형이 일어나게 된다. 이로 인하여 기계적 에너지의 열소산에 의한 용융(dissipative mix melting)이 촉진되어 단축압출기의 가소화 기작과는 달리 이축압출기 내의 고형분 용융현상은 매우 급격하게 일어난다[13-16]. Gogos 등은 여러 가지 스크류조합에 대하여 체계적인 실험을 수행하여 용융현상을 명확하게 밝혔고 소성발열 또는 마찰발열 효과를 반영한 에너지 수지식을 제안한 바 있다[17].

피드영역에 이어서 설치된 니딩블록은 이송된 수지를 완전히 녹이고 혼합시키는 용융영역의 주된 엘리먼트가 된다[18-22]. 수지와 생산되는 제품에 따라 다르지만 니딩영역은 보통 두 단계로 구성된다. 첫번째 단계의 니딩영역(1차 니딩스테이지)은 고형 수지의 용융과 커다란 덩어리를 작은 크기로 변환시키는 분산혼합(dispersing mixing)의 역할을 담당하며, 두번째 단계의 니딩영역(2차 니딩스테이지)은 분산된 물질들을 주어진 채널에 균일하게 배분하는 분배혼합(distributive mixing)을 담당하게 된다. 그러나 1차 니딩스테이지

이후에 설치된 측면피더(side feeder) 설비로부터 필러류가 투입되는 경우에 2차 니딩스테이지는 이를 분산시키고 혼합하기 위한 역할을 담당하기도 한다. 1차 니딩스테이지에서 분산혼합이 효과적으로 진행될 수 있도록 각각의 니딩디스크의 폭이 넓고 디스크들 간의 교합각이 큰 니딩블록으로 구성한다. Fig. 2에서 보는 바와 같이 1차 스테이지에서 첫 번째와 두 번째 니딩블록은 순방향 교합각이 45°인 폭(12 mm)의 디스크 5개로 이루어져 있다(KB5R). 이어지는 니딩블록은 동일한 폭의 순방향 교합각이 90°인 5개의 디스크(KB5N)와 역방향 교합각이 45°인 디스크 5개(KB5L)로 각각 구성되었다. 교합각이 90°인 니딩블록의 경우는 이송능력은 없으나 수지의 흐름을 막아 배압을 증가시키며 니딩능력이 우수하다. 역방향 니딩블록도 수지의 흐름을 막는 역할을 하게 되어 배압을 더욱 증가시키고 이로 인하여 수지의 체류시간은 길어지고 용융 혼련의 효과가 증대될 수 있다. 경우에 따라서 역방향 니딩블록 대신에 역방향스크류가 사용될 수 있는데 역방향스크류는 수지의 흐름을 완전히 차단하여 체류시간을 대폭 늘리기 때문에 수지의 황변이나 젤화를 초래할 수 있어 밝은 색상을 요하는 생선품에는 적합하지 않다. 또한 과도한 체류시간은 수지의 분해와 기계적 물성저하의 원인이 되므로 주의가 필요하다. 1차 니딩스테이지는 위와 같은 순서대로 4개의 니딩블록(KB5R/KB5R/KB5N/KB5L)을 설치하여 4D 정도로 배럴 하나에 해당하는 길이로 구성하는 것이 일반적이며 필요에 따라 한 두개 정도의 니딩블록을 추가하여 배치할 수 있다. Fig. 2의 스크류 도식도 아래에 실제로 사용된 스크류 조합의 사진을 제시하였다.

1차 니딩스테이지의 마지막 부분의 역방향 니딩블록(또는 역방향 스크류) 다음에는 순방향 스크류를 설치하여 수지가 신속하게 흐르게 한다. 역방향 니딩블록에서는 순방향의 수지의 흐름이 매우 제한되지만 순방향스크류를 통과하면서 수지의 흐름이 가속된다. 그러므로 1차 니딩스테이지가 끝난 직후에는 스케어피치 보다 피치가 긴 스크류를 사용하여 신속하게 이송하는 것이 바람직하다.

일반적으로 1차 니딩스테이지를 지난 후에는 수지는 완전히 용융된 상태로 이송되면서 사이드피더가 연결된 부분을 지나가게 된다. 사이드피더에서는 주로 무기필러류가 투입되는데 무기필러의 투입과 수지의 원활한 이송을 위해서는 피치가 긴 스크류를 설치하는 것이 좋다. 필러가 투입된 이후에는 무기필러의 압착과 공기의 배출을 위하여 스케어피치 스크류나 피치가 더 작은 스크류를 배치한다. 이들 스크류를 통과하여 용융수지와 함께 압착된 필러는 2차 니딩스테이지로 들어가게 된다.

앞서 언급된 바와 같이 2차 니딩스테이지의 스크류조합은 분배혼합에 초점을 맞추어 이루어지며 2차 니딩스테이지의 초반이나 중반에 이빨모양의 혼합엘리먼트인 TME를 배치하는 경우도 많다. TME는 무기필러나 액상첨가제의 혼합에 우수한 성능을 발휘하는 것으로 알려져 있다. Fig. 2에 나타난 2차 니딩스테이지에서는 순방향 교합각 45°인 니딩블록을 2개 배치한 후 교합각 90° 니딩블록 1개, 그리고 역방향스크류 1개가 배치되었고 전체 길이는 4D 정도로 할당되었다. 1차 니딩스테이지와 마찬가지로 2차 니딩스테이지가 끝나는 부분에 역방향 니딩블록 대신에 역방향스크류를 배치하는 경우도 많다. 용융수지의 흐름을 막는 정도는 역방향스크류가 역방향니딩블록보다 크므로 체류시간 분포를 넓게하고 비에너지의 증가를 초래한다. 과도하게 긴 체류시간과 높은 비에너지는 수지의 황변과 변색 또는 흑점의 원인이 되며 기계적 물성과 투명성이 저

하될 수도 있다. 따라서 2차 니딩스테이지에서도 열에 의해 쉽게 분해되는 수지의 가공시에는 역방향스크류의 사용에 주의할 것을 고려해야 한다.

2차 니딩스테이지가 종결된 후에는 수지에 포함된 휘발성분을 제거하는 탈기(devolatilization)영역이 이어진다. 탈기과정은 용융수지에 존재하는 수분, 단량체 및 유기 휘발성분을 배출하는 과정으로서 제품생산의 품질관리를 위하여 필수적이다. 이 과정에서 휘발성분이 일정수준 이상 남아 있다면 사출성형 등의 후공정에서 가스화에 의한 제품의 불량 및 기계적 물성의 저하의 원인이 된다. 역방향니딩이나 역방향스크류 이후에 배치되는 탈기영역에서는 직전에 형성된 높은 압력이 급격하게 감소될 수 있도록 순방향 스크류를 배치하여야 한다. 이때 피치가 긴 스크류를 사용하면 용융수지가 채널내에서 얇고 넓게 퍼져 표면적이 증가되므로 휘발성분을 제거하는 데 유리하게 작용한다. 탈기과정에서 발생할 수 있는 벤트업(vent up, 벤트에서의 수지가 올라오는 현상)문제를 막기 위해서도 이 부분에서의 피치가 긴 스크류의 배열은 중요하다. 벤트업은 미용융 수지나 수분이 다량 존재하는 경우에 자주 나타나지만, 벤트부위의 잘못된 설계와 스크류조합에 의하여 발생할 수 있다. 예를 들어, 2차니딩스테이지의 마무리 직후에 충분한 압력저하가 이루어 지지 못하는 스크류조합은 벤트부위 하부에 압력상승을 초래하여 벤트업 문제를 일으키는 원인이 된다.

용융수지가 탈기영역을 지나고 나면 다이에서의 토출과 이어지는 스트랜딩(stranding)을 위하여 충분한 압력을 생성할 수 있는 스크류조합이 필요하다. 이를 위하여 용융수지를 압착하며 흐름을 촉진하는 스퀘어피치 스크류를 하나의 배럴블록에 해당되는 4D 정도의 길이로 배치하는 것이 일반적이며, 이는 주어진 다이에서 양호한 토출을 유도할 수 있을 정도의 충분한 압력이 형성되는 길이이다.

탈기영역의 구성에서 추가로 주의해야 할 사항은 2차 니딩스테이지가 끝나는 영역과 다이 사이에서는 용융수지가 채널에 완전히 채워져서 벤트 부위의 주변에 밀폐된 공간(melt sealing)이 형성되어야 한다는 점이다. 이 조건이 만족되지 못할 경우에 탈기부위에

서의 진공도가 부족하여 탈기공정의 효율이 감소된다.

2.3. 적절한 피드영역의 길이 설정

이축압출기에서 고상이송이 이루어지는 적절한 피드영역의 길이를 설정하는 것은 스크류조합의 설계에 있어서 매우 중요한 사항임에도 불구하고 이와 관련된 문헌이나 정보를 찾아보기 어렵다. 가공하는 고분자의 종류나 형상에 따라 달라질 수 있지만 일반적으로 사용되는 피드영역의 길이가 존재한다. Fig. 3에서 보여주듯이(SC-2) 피치가 긴 스크류에 이어서 짧은 스크류를 배열하여 피드영역이 구성되는데, 이 피드영역의 길이는 11D 전후로 구성되는 것이 추천된다. 여기서 배럴과 스크류의 위치는 피드영역에서 스크류가 시작되는 위치를 기준으로 하여 스크류직경에 대한 비로 나타내었다.

Fig. 3의 SC-3 스크류조합과 같이 피드영역의 길이가 짧아지면 수지의 온도가 충분히 올라가지 않은 상태에서 용융영역의 니딩블록으로 들어가게 된다. 이런 경우에는 니딩블록이 시작하는 위치에서 수지의 점도가 과도하여 니딩블록이 깨어지거나 니딩블록 바로 앞의 스크류가 망실되는 경우가 있다. 때로는 높은 토크로 인해 스크류 사프트가 뒤틀리거나 기어박스가 손상되기도 한다.

이와 반대로 피딩영역을 13D 이상으로 길게 구성하면(SC-4) 재료가 충분히 온도가 올라간 상태로 유입되므로 앞서 언급된 스크류나 기어의 망실은 나타나지 않는다. 오히려 용융영역으로 들어가는 재료의 온도가 높아 용융에 필요한 에너지가 적게 투입되므로 압출기에 부과되는 토크는 감소되고 생산량을 늘릴 수 있게 된다. 그러나 용융영역으로 이송되기 전에 과도하게 긴 구간을 통과하게 되면서 다음과 같은 문제가 발생한다. 이축압출기의 피드영역에서는 파우더나 펠렛들이 부분적인 충전 상태에서 이송되므로 압력 상승이 없고 전단 발열의 효과보다는 배럴로 부터의 열전달이 우세하게 된다[23-29]. 이 상황에서 물질의 표면에는 열전달에 의한 온도상승으로 인하여 부분적인 용융필름(melt film)이 형성되고 고상의 재료들이 서로 용착된 상태로 이동하게 된다[27]. 이러한 고상이송의 상태가 장시간 지속되면 일부 수지는 스크류에 달라붙게 되어 덩어리

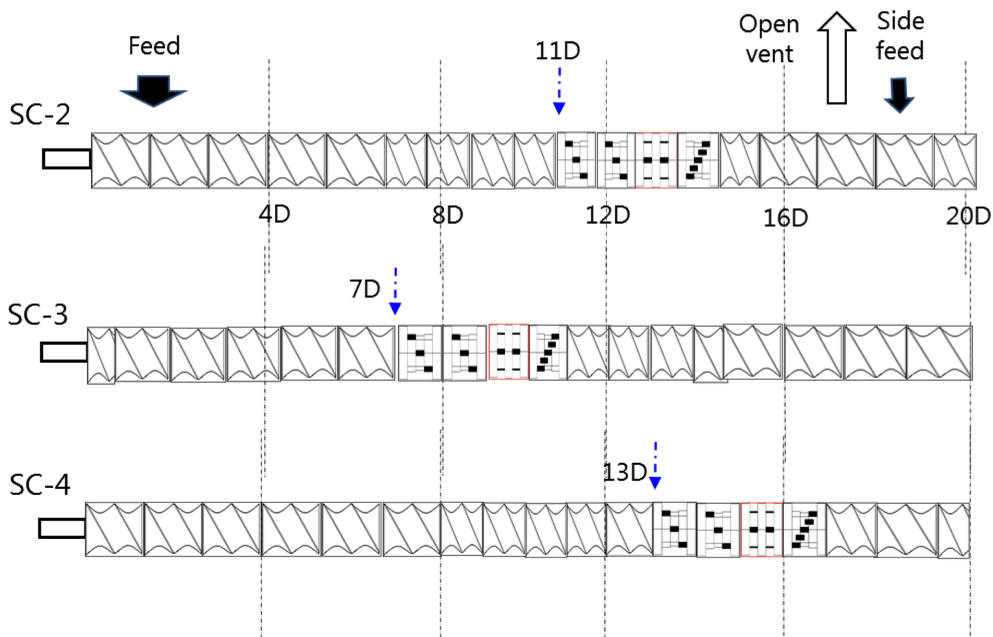


Fig. 3. Screw configuration at the feed section of an intermeshing co-rotating twin screw extruder.

(chunk)가 형성되고 재료의 이송이 불규칙해질 수 있다. 스크류 표면에 밀착되었던 덩어리들은 어느 순간 떨어져 나가 다시 이송되게 되는데 이런 것들이 생산품의 색상을 변화시키며, 흑점, 이물 등의 문제들을 일으킨다. 따라서 피딩영역의 길이가 과도하게 길어지면 이러한 품질문제들이 발생할 수 있으며, 특히 대량으로 장시간 생산하는 압출공정에서 심각해질 수 있다. 그러므로 피딩영역의 적절한 길이 설정은 스크류를 보호하고 이물, 흑점, 그리고 황변 등의 품질 문제를 최소화하는 중요한 조건이다.

2.4. 액상첨가제와 무기필러를 사이드피딩할 경우의 스크류 조합

컴파운딩 공정에 적용되는 수지 조성에 액상첨가제 또는 무기필러가 포함되는 경우에는 피드영역에서의 고분자 물질의 이송문제를 고려하여 사이드피딩 설비로 분리 투입하는 것이 일반적이다. 사이드피더는 전술한 바와 같이 첫 번째 니딩스테이지 이후에 설치되며 별도로 투입된 액상첨가제나 필러가 용융된 수지와 충분히 혼합되어야 목표한 물성을 달성할 수 있다. 재료를 녹이거나 분산혼합을 강조하는 니딩블록보다 분배혼합을 수행할 수 있는 엘리먼트의 배치가 중요하며 이를 위하여 TME를 사용하는 경우가 많다. TME는 수지의 흐름을 여러 갈래로 분리하여 혼합성능을 향상시키는 효과가 있는 것으로 알려져 있다. Fig. 4에 보는 바와 같이 사이드 피딩후의 2차 니딩스테이지의 첫 번째와 두 번째 영역은 순방향 교합각 45° 니딩블록으로 구성된다. 이후에 TME를 설치하면 니딩블록에서 혼련된 용융수지가 TME로 유입되어 양호한 분배혼합이 이루어지게 된다. 필러의 함량이 30%(중량비) 이상인 고품량 복합체를 생산하는 경우에는 하나의 사이드 피더에 집중되는 부담을 경감하기 위하여 2개 이상의 피더를 통한 분리 투입이 필요하다. 다수의 사이드 피더가 사용될 경우에는 새롭게 투입된 필러들의 혼련을 위하여 니딩스테이지도 피더수에 따라서 추가하는 것이 필요하

다. 고품량의 필러를 투입할때도 TME의 사용은 좋은 선택이며 각각의 사이드피딩후의 스크류조합은 위에 설명한 바와 같은 순서를 따르는 것이 중요하다.

2.5. 반응압출(Reactive extrusion)

반응압출은 화학반응이 수반되는 압출공정으로서 이축 압출기는 배지형 화학반응기 비하여 생산성이 우수하고 혼합 성능이 탁월한 반응기의 역할을 수행하게 된다. 이축 압출기를 이용한 반응 압출 공정은 단량체의 주입을 통한 고분자의 중합, 가지 또는 가교 형성 반응을 이용한 공중합체의 제조 및 구조제어, 그리고 이미 중합된 고분자의 분자량 조절(분해 반응 또는 사슬 연장 반응)을 포함하는 고분자 수지의 생산과 개질에 유용하게 이용된다[30,31]. 반응압출 공정의 설계에서는 원료의 투입방법, 반응열의 제어, 미반응물이나 부산물들의 제거 등이 복합적으로 고려되어야 하며, 근본적으로 중요한 조건은 주어진 화학반응에 필요한 시간에 적합한 체류시간이 확보되어야 한다는 점이다. 왜냐하면 중합반응의 경우에는 실용적으로 적용이 가능한 단량체의 전환율이 달성되어야 하고, 고분자의 개질 반응이 일어나는 시간보다는 긴 체류시간이 부여되어야 하기 때문이다. 일반적인 스크류조합에서 압출기의 평균체류시간은 5분 이하이기 때문에[32-36], 압출기에서의 체류시간을 증가시키기 위해서 기본적으로 길이가 긴 압출기를 사용해야 하는 경우가 있지만 주어진 압출기의 제한된 길이 범위내에서 스크류조합을 통하여 체류시간을 조절할 수 있다. Fig. 5에 보는 바와 같이 체류시간의 증가를 위해서는 역방향스크류를 설치하는 방법이 가장 효과적이다. 역방향스크류는 수지의 전진을 멈추고 역방향흐름을 유도하게 되는데 지속적인 스크류의 회전으로 말미암아 역방향스크류에 의해 정체되어 있던 수지는 느린 속도로 이송된다. 역방향스크류의 위치는 1차 니딩스테이지가 끝나는 지점 이후가 적절하며 2개 정도의

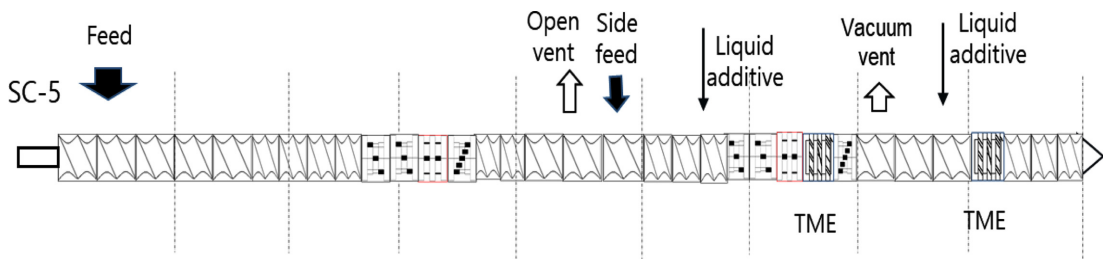


Fig. 4. Screw configuration of an intermeshing co-rotating twin screw extruder for side feeding of inorganic fillers and liquid additives.

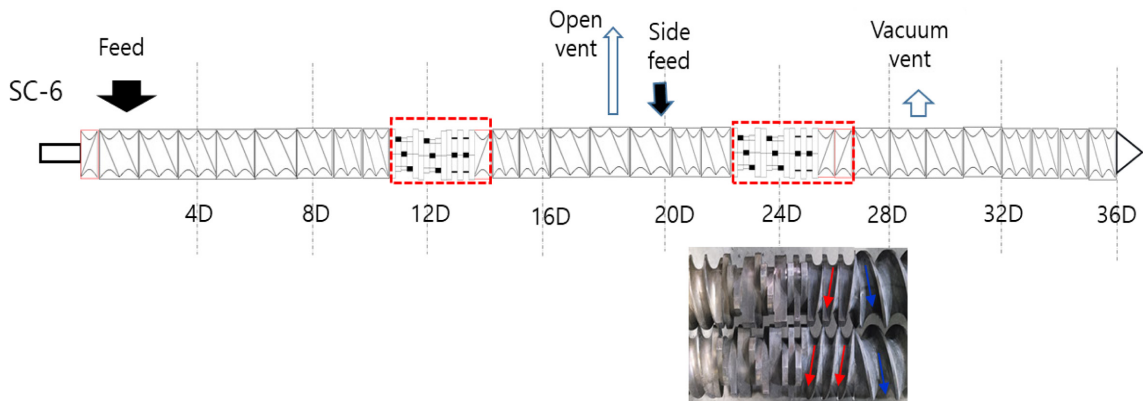


Fig. 5. Screw configuration of an intermeshing co-rotating twin screw extruder for reactive extrusion process.

역방향 스크류를 도입하여 체류시간을 크게 증가시킬 수 있다. 필요에 따라서 2차 니딩스테이지 이후에도 역방향 스크류를 설치하여 추가적인 체류시간의 조절이 가능하다. 이러한 유형의 배치는 이어서 다루어 지는 탈기공정의 구성에서도 매우 중요한 역할을 하게 된다.

2-6. 탈기공정이 중요한 제품의 생산

앞서 기술한 바와 같이 탈기공정의 목적은 고분자 수지 내부에 잔존하는 미반응 단량체, 수분 및 기타 휘발성분을 제거하는 것이며 잔존물의 농도가 최소화되어야 하는 제품의 생산에는 적합한 스크류조합이 필요하다. 탈기효율에 영향을 미치는 주요 인자는 수지의 온도, 체류시간, 진공도 등이다[37-46]. 수지의 분해가 안되는 범위에서 수지온도가 증가될수록 탈기효율이 좋아지므로 탈기영역 이전에 설치되는 2차 니딩스테이지의 역할이 중요해진다. 적절한 배럴의 온도 설정과 더불어 수지 온도의 상승을 위하여 가능한 긴 체류시간이 필요하므로 2차 니딩스테이지의 끝부분에 역방향스�크류를 설치하는 것이 필요하다. 탈기과정에 부여될 수 있는 진공도를 높게 유지하는 조건이 충족되어야 하며 이를 위해서 2차 니딩스테이지가 끝나는 영역과 다이 사이에서는, 즉 벤트 부위의 양옆으로, 용융수지가 채널에 완전히 채워져서 밀폐된 공간이 형성되어야 한다. 이 조건이 만족되지 못할 경우에 탈기부위에서 충분한 진공상태가 유지되지 못하여 탈기공정의 효율이 현저하게 감소된다. 이러한 관점에서 Fig. 5에 나타낸 바와 같이 진공벤트 직전에 설치된 역방향스�크류의 역할이 중요하다. 탈기영역을 1차 니딩스테이지 다음에 설치하는 경우도 있으며 기대하는 탈기효율의 달성을 위하여 1차 니딩스테이지 직후에 수지온도가 충분히 높아야 한다.

2-7. 높은 투명도와 밝은 색상을 요구하는 제품의 생산

공원의 조명이거나 다양한 색상을 발현하는 LED (light emitting

diode), 액정디스플레이 패널의 확산판 등의 제조를 위하여 높은 투명도와 백색도를 가지는 광학용 재료가 필요하다. 이와 같은 특성을 가지는 고분자재료는 빛의 확산을 위한 광확산제를 첨가하여 컴파운딩하게 되는데 양호한 광확산성의 확보를 위하여 가능한 낮은 온도에서 가공되어야 한다. 사용되는 기능성 첨가제들의 열에 의한 변색을 방지하기 위하여 두 단계의 니딩스테이지보다 한 단계의 니딩스테이지로 용융과 혼합을 끝내는 것이 필요하다(Fig. 6). 또한 처음 용융이 시작되는 부분에서 재료의 온도가 가능한 낮은게 유지되어야 하므로 피딩영역의 길이를 짧게 하여 혼합하는 스크류 조합이 필요하다. Fig. 6의 스크류조합에서는 8D에서 니딩이 시작되고 있는데, 이 상황은 피딩영역의 길이 설정부분에서 기술한 바와 같이 온도가 낮은 상태에서 수지가 용융역역으로 들어가므로 기계에 무리를 줄 수 있다. 따라서 기계적인 부담이 최소화되도록, 통상적인 니딩블록의 구성과 다르게 한 단계만의 니딩을 부여하고 L/D가 작은 압출기로 가공하는 것이 좋다. 아울러 가공중에 발생할 수 있는 변색을 최소화하기 위하여 평균체류시간을 줄이고 체류시간분포를 좁히는 조업조건(투입속도와 스크류 회전수의 증가)이 적용되어야 한다.

2-8. 겔보기비중이 낮은 재료의 컴파운딩

최근 들어 카본나노튜브, 그래핀과 같은 탄소나노재료들을 고분자와 혼합하여 기계적 강도와 전기적 성능이 향상된 나노복합체의 개발이 활발하게 진행되고 있다[47-49]. 고분자 나노복합체의 제조를 위한 다양한 기법들이 존재하지만 이축압출기를 이용한 컴파운딩공정이 복합체의 생산성과 나노입자들의 분산성 측면에서 효과적인 통로를 제공한다[50-58]. 미세 파우더, 플레이크 또는 그래놀 형태의 비중이 낮은 물질들이 사용되는 컴파운딩공정에서는 피딩영역의 적절한 설계가 특히 중요하다. 겔보기 비중이 낮은 고형입자들이 호퍼로부터 피딩영역으로 유입되면 채널에 존재하는 공기

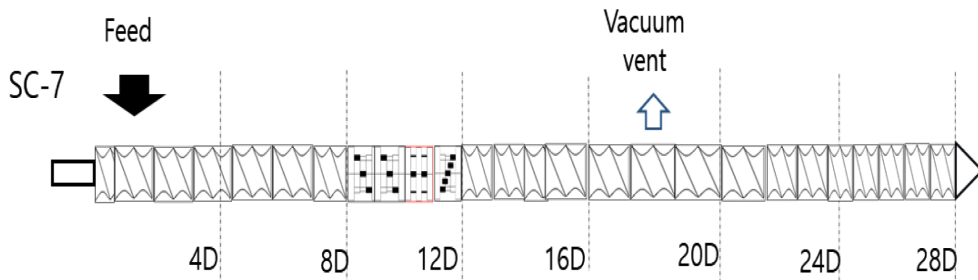


Fig. 6. Screw configuration of an intermeshing co-rotating twin screw extruder for compounding materials for optical applications.

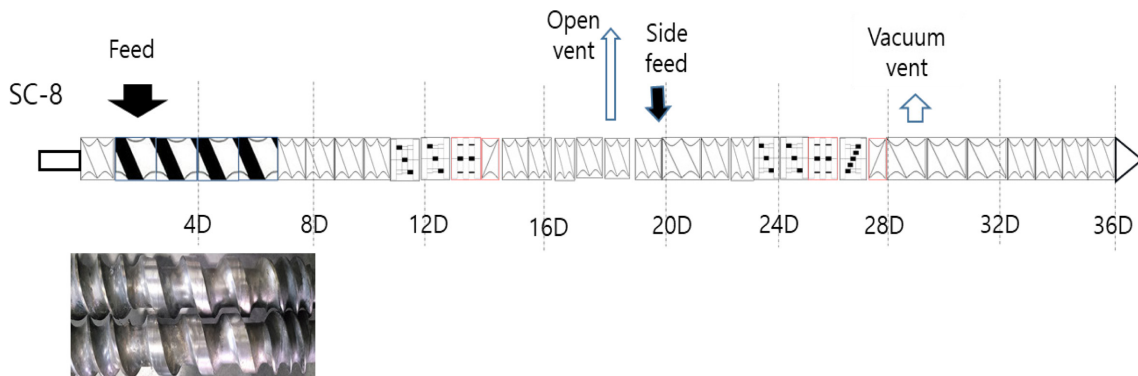


Fig. 7. Screw configuration of an intermeshing co-rotating twin screw extruder for conveying fine powder materials with low bulk density.

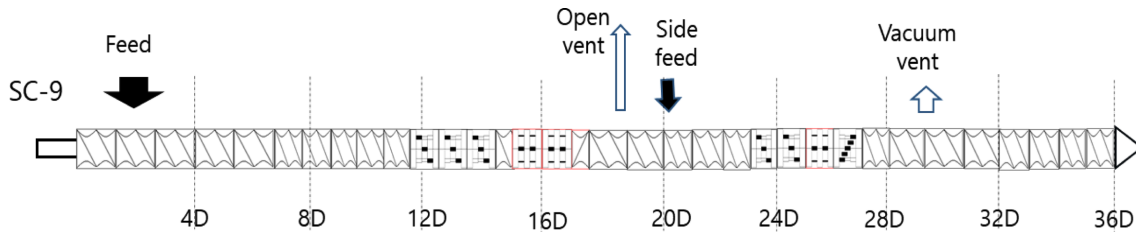


Fig. 8. Screw configuration of an intermeshing co-rotating twin screw extruder with a large screw diameter.

와 수증기의 역방향 흐름에 따른 역류가 발생하여 원활한 원료의 공급이 제한된다. 또한 비중이 낮은 입자들은 재료간의 내부마찰력 (internal friction) 뿐만 아니라 배럴과의 마찰력이 낮기 때문에 재료의 이송이 더욱 어려워진다.

이러한 이송문제를 해결하려면 재료의 부피 대비 높은 표면적을 갖는 스크류가 필요하며, 저비중의 입자의 이송에는 단일 플라이트 스크류의 배치가 효과적이다. 단일 플라이트 스크류는 이축압출기에서 일반적으로 사용되는 이중 플라이트 스크류(double flighted screw) 대비 적은 채널의 부피는 적지만 넓은 표면적을 가진다. Fig. 7에 단일 플라이트 스크류와 이중 플라이트 스크류가 연결되어 배치된 예시를 제시하였다. 여기서 사용된 단일 플라이트 스크류의 나선각은 통상적인 값보다 큰 25°로서 재료의 신속한 이송을 가능하게 한다.

2.9. 대형압출기에서의 컴파운딩에서의 스크류 조합

직경 80 mm 이상의 대형압출기에서 컴파운딩을 할 때는 직경이 작은 압출기 대비 니딩블록을 더 많이 설치하는 경향이 있으며, 이는 대형기에서 기대되는 생산량 증가에 따른 추가적인 혼련강도를 부여하기 위함이다. Fig. 8에 나타낸 바와 같이 1차 니딩스테이지에서 니딩블록을 추가로 설치하는 경우가 있으며, 연속적인 니딩에 의한 과도한 발열을 해소할 목적으로 니딩블록 사이에 스크류를 배치하기도 한다.

3. 결 론

이축압출공정에서는 투입하는 재료와 생산하는 제품에 최적화된 스크류조합의 설계가 생산품의 품질과 생산성을 좌우하는 핵심기술이다. 고분자재료의 컴파운딩에 사용되는 스크류 엘리먼트들의 기본적인 특징과 역할을 요약하였고 고상이송, 용융혼련, 탈기공정에 적합한 스크류조합 기술의 원리와 방향을 정리하였다. 피딩영역의 적합한 길이 설정에 대한 개념을 설명하였고, 니딩블록의 배열에 관한 기준들을 제시하였다. 다성분계 수지의 제조를 위하여 다양한 형상과 상태를 가지는 첨가물들이 사용되는 경우에는 각 상황에 특화된 투입공정과 조화를 이루는 이송과 니딩엘리먼트들의 조합이 필요하다. 본 논문에서 다루어진 스크류 조합의 예시들은 산업계에서 진행되고 있는 수많은 컴파운딩공정에 비하면 매우 제한된 경우에 해당된다고 할 수 있다. 그럼에도 불구하고 본 논문에서 제시된 이축압출기의 모듈화된 설계에 필요한 기본 지식과 개념은 다양한 종류의 수지생산에 응용될 수 있을 것으로 기대되며, 아울러 스크류조합 분야가 생소한 연구자 또는 생산자들에게 유용하게 활용될 수 있기를 바란다.

감 사

이 논문은 2019년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(NRF-2019R111A2A01051610). 압출공정 실험에 도움을 주신 비전플라닉스의 조이근 대표, 이피존의 장준수 대표께 감사드립니다.

References

- White, J. L., Twin Screw Extrusion. Hanser Publishers, 1993.
- Mascia, L. The Role of Additives in Plastics, Edward Arnold, 1972.
- Mascia, L. and Xanthos, M., "An Overview of Additives and Modifiers for Polymer Blends: Fact, Deductions, and Uncertainties," *Adv. Polym. Technol.*, **11**, 237-248(1992).
- Xanthos, M., Functional Fillers for Plastics, Wiley-VCH, 2005.
- Kumar, A., Sharma, K. and Dixit, A. R., "Carbon Nanotube- and Graphene-reinforced Multiphase Polymeric Composites: Review on Their Properties and Applications," *J. Mater. Sci.*, **55**, 2682-2724(2020).
- Rauwendaal, C., Polymer Extrusion. Hanser Publishers, 1990.
- Jongbloed, H. A., Kiewiet, J. A., Van Dijk, J. H., Janssen, L. P., B. M. "The Self-wiping co-rotating Twin-screw Extruder as a Polymerization Reactor for Methacrylates," *Polym. Eng. Sci.*, **35**, 1569-1579(1995).
- Noriega, E. and Rauwendaal, C., Troubleshooting the Extrusion Process, Hanser Publishers, 2010.
- Villmow, T., Kretzschmar, B. and Pötschke, P., "Influence of Screw Configuration, Residence Time, and Specific Mechanical Energy in Twin Screw Extrusion of Polycaprolactone/multi-walled Carbon Nanotube Composites," *Compos. Sci. Technol.*, **70**, 2045-2055(2010).
- Kang, M. S., Kang, B. S., Sim, H. S., Son, J. M., Lee, K. H. and Park, M., "Effect of Screw Configuration on Filler Dispersion in Intermeshing Corotating Twin Screw Extruder," *Polym.-Korea*, **35**, 99-105(2011).
- Lekube, B. M., Purgleitner, B., Renner, K. and Burgstaller, C., "Influence of Screw Configuration and Processing Temperature on the Properties of Short Glass Fiber Reinforced Propylene Composite," *Polym. Eng. Sci.*, **59**, 1552-1559(2019).
- Villmow, T., Pötschke, P., Pegel, S., Häussler, L. and Kretzschmar, B., "Influence of Twin-screw Extrusion Conditions on the Dispersion of Multi-walled Carbon Nanotubes in a Poly(lactic acid) Matrix," *Polymer*, **49**, 3500-3509(2008).
- Todd, D. B., "Melting of Plastics on Kneading Blocks," *Intern. Polym. Proc.*, **8**, 113-118(1993).

14. Rauwendaal, C., "Dispersed Solid Melting Theory," *SPE-ANTEC Tech. Papers*, **51**, 2232-2237(1993).
15. Busby, M. L., McCullough, T. W., Hughes, K. R., Kirk, R. O., "Melting of Homopolymers in co-rotating Intermeshing Twin-screw Extruders," *SPE-ANTEC Tech. Papers*, **54**, 3571-3576(1996).
16. Shih, C. K., Tynan, D. G. and Denelsbek, D. A., "Rheological Properties of Multicomponent Polymer Systems Undergoing Melting or Softening During Compounding," *Polym. Eng. Sci.*, **31**, 1670-1673(1991).
17. Gogos, C. G., Tadmor, Z. and Kim, M. H., "Melting Phenomena and Mechanisms in Polymer Processing Equipment," *Adv. Polym. Technol.*, **17**, 285-305(1998).
18. Todd, D. B. and Irving, H. F., "Axial Mixing and Self-wiping Reactor," *Chem. Eng. Prog.*, **65**, 84-89(1969).
19. Todd, D. B., "Drag and Pressure Flow in a Twin-screw-extruder," *Int. Polym. Proc.*, **5**, 143-147(1991).
20. Goffart, D., Van Der Wal, D. J., Klomp, E. M., Hoogstraten, H. W., Janssen, L. P. B. M., Breyse, L. and Trolez, Y., "Three-dimensional Flow Modeling of a Self-wiping Corotating Twin-screw Extruder. Part I: The Transporting Section," *Polym. Eng. Sci.*, **36**, 901-911(1996).
21. Goffart, D., Klomp, E. M., Hoogstraten, H. W. and Janssen, L. P. B. M., "Three-dimensional Flow Modeling of a Self-wiping Corotating Twin-screw Extruder. Part II: The Kneading Section," *Polym. Eng. Sci.*, **36**, 912-924(1996).
22. Bawiskar, S. and White, J. L., "Melting Model for Modular Self Wiping Co-rotating Twin Screw Extruders," *Polym. Eng. Sci.*, **38**, 727-740(1998).
23. Rauwendaal, C., "Analysis and Experimental Evaluation of Twin Screw Extruders," *Polym. Eng. Sci.*, **21**, 1092-1100(1981).
24. Bawiskar, S. and White, J. L., "A Composite Model for Solid Conveying, Melting, Pressure and Fill Factor Profiles in Modular co-rotating Twin Screw Extruders," *Int. Polym. Proc.*, **12**, 331-340(1997).
25. Bawiskar, S. and White, J. L., "Solids Conveying and Melting in a Starve Fed Self-wiping co-rotating Twin Screw Extruder," *Int. Polym. Proc.*, **10**, 105-110(1995).
26. Yacu, W. A., "Modeling a Twin Screw co-rotating Extruder," *J. Food Process Eng.*, **8**, 1-21(1985).
27. Potente, H. and Melisch, U., "Theoretical and Experimental Investigations of the Melting of Pellets in co-rotating Twin-screw Extruders," *Int. Polym. Proc.*, **11**, 101-108(1996).
28. Lewandowski, A., Wilczyński, K. J., Nastaj, A. and Wilczyński, K., "A Composite Model for An Intermeshing Counter-rotating Twin-screw Extruder and Its Experimental Verification," *Polym. Eng. Sci.*, **55**, 2838-2848(2015).
29. Potente, H., Melisch, U. and Palluch, K. P., "A Physico-mathematical Model for Solids Conveying in co-rotating Twin Screw Extruders," *Int. Polym. Proc.*, **11**, 29-41(1996).
30. Xanthos, M., *Reactive Extrusion: Principles and Practice*. Hanser Publishers, 1992.
31. Beyer, G. and Hopmann, C., *Reactive Extrusion: Principles and Applications*. Wiley-VCH, 2018.
32. Lee, S. M., Park, J. C., Lee, S. M., Ahn, Y. J. and Lee, J. W., "In-line Measurement of Residence Time Distribution in Twin-screw Extruder Using Non-destructive Ultrasound," *Korea-Australia Rheol. J.*, **17**, 87-95(2005).
33. Al-Itry, R., Lamnawar, K. and Maazouz, A., "Reactive Extrusion of PLA, PBAT with a Multi-functional Epoxide: Physico-chemical and Rheological Properties," *Eur. Polym. J.*, **58**, 90-102(2014).
34. Todd, D. B., "Residence Time Distribution in Twin-screw Extruders," *Polym. Eng. Sci.*, **15**, 437-443(1975).
35. Poulesquen, A., Vergnes, B., Cassagnau, P., Michiel, A., Carneiro, O. S. and Covas, J. A., "A Study of Residence Time Distribution in co-rotating Twin Screw Extruders. Part II: Experimental Validation," *Polym. Eng. Sci.*, **43**, 1849-1862(2003).
36. Poulesquen, A. and Vergnes, B., "A Study of Residence Time Distribution in co-rotating Twin-screw Extruders. Part I: Theoretical Modeling," *Polym. Eng. Sci.*, **43**, 1841-1848(2003).
37. Collins, G. P., Denson, C. D. and Astarita, G., "The Length of a Transfer Unit (LTU) for Polymer Devolatilization Processes in Screw Extruders," *Polym. Eng. Sci.*, **23**, 323-327(1983).
38. Collins, G. P., Denson, C. D. and Astarita, G., "Determination of Mass Transfer Coefficients for Bubble-free Devolatilization of Polymeric Solutions in Twin-screw Extruders," *AIChE J.*, **31**, 1288-1296(1985).
39. Biesenberger, J. A., Dey, S. K. and Brizzolara, J., "Devolatilization of Polymer Melts: Machine Geometry and Scale Factors," *Polym. Eng. Sci.*, **30**, 1493-1499(1990).
40. Foster, R. W. and Lindt, J. T., "Bubble-free Devolatilization in Counterrotating Nonintermeshing Twin-screw Extruder," *Polym. Eng. Sci.*, **30**, 424-430(1990).
41. Wang, N. H., Sakai, T. and Hashimoto, N., "Modeling of Polymer Devolatilization in a Multi-vent Screw Extruder," *Int. Polym. Proc.*, **10**, 296-304(1995).
42. Wang, N. H., Sakai, T. and Hashimoto, N., "Pumping Characteristics of an Intermeshing co-rotating Twin Screw Extruder," *Int. Polym. Proc.*, **13**, 27-32(1998).
43. White, J. L., Keum, J., Jung, H., Ban, K. and Bumm, S., "Corotating Twin-screw Extrusion Reactive Extrusion Devolatilization Model and Software," *Polym. Plast. Technol. Eng.*, **45**, 539-548(2006).
44. Foster, R. W. and Lindt, J. T., "Bubble Growth Controlled Devolatilization in Twin-screw Extruders," *Polym. Eng. Sci.*, **29**, 178-185(1989).
45. Foster, R. W. and Lindt, J. T., "Twin Screw Extrusion Devolatilization: From Foam to Bubble Free Mass Transfer," *Polym. Eng. Sci.*, **30**, 621-626(1990).
46. Ohara, M., Sasai, Y., Umamoto, S., Obata, Y., Sugiyama, T., Tanifuji, S., Kihara, S. and Taki, K., "Experimental and Numerical Simulation Study of Devolatilization in a Self-Wiping Corotating Parallel Twin-Screw Extruder," *Polymers*, **12**, 2728(2020).
47. Breuer, O. and Sundararaj, U., "Big Returns from Small Fibers: A Review of Polymer/carbon Nanotube Composites," *Polym. Compos.*, **25**, 630-645(2004).
48. McNally, T. and Pötschke, P., "Polymer-carbon Nanotube Composites: Preparation, Properties and Applications," Woodhead Publishing in Materials, 2011.
49. Mohan, V. B., Lau, K., Hui, D. and Bhattacharyya, D., "Graphene-based Materials and Their Composites: A Review on Production, Applications and Product Limitations," *Compos. Part B-Eng.*, **142**, 200-220(2018).
50. Kasaliwal, G. R., Pegel, S., Göldel, A., Pötschke, P. and Hein-

- rich, G., "Analysis of Agglomerate Dispersion Mechanisms of Multiwalled Carbon Nanotubes During Melt Mixing in Polycarbonate;" *Polymer*, **51**, 2708-2720(2010).
51. Novais, R. M., Simon, F., Paiva, M. C. and Covas, J. A., "The Influence of Carbon Nanotube Functionalization Route on the Efficiency of Dispersion in Polypropylene by Twin-screw Extrusion;" *Compos. Part A-Appl. S.*, **43**, 2189-2198(2012).
52. Müller, M. T., Krause, B., Kretzschmar, B. and Pötschke, P., "Influence of Feeding Conditions in Twin-screw Extrusion of PP/MWCNT Composites on Electrical and Mechanical Properties;" *Compos. Sci. Technol.*, **71**, 1535-1542(2011).
53. Bangarusampath, D. S., Ruckdäschel, H., Alstädt, V., Sandler, J. K. W., Garay, D. and Shaffer, M. S. P., "Rheology and Properties of Melt-processed poly(ether ether ketone)/multi-wall Carbon Nanotube Composites;" *Polymer*, **50**, 5803-5811(2009).
54. Verma, P., Saini, P., Malik, R. S. and Choudhary, V., "Excellent Electromagnetic Interference Shielding and Mechanical Properties of High Loading Carbon-nanotubes/polymer Composites Designed Using Melt Recirculation Equipped Twin-screw Extruder;" *Carbon*, **89**, 308-317(2015).
55. Jiang, Z., Hornsby, P., McCool, R. and Murphy, A., "Mechanical and Thermal Properties of Polyphenylene Sulfide/multiwalled Carbon Nanotube Composites;" *J. Appl. Polym. Sci.*, **123**, 2676-2683(2012).
56. Chowreddy, R. R., Nord-Varhaug, K. and Rapp, F., "Recycled Polyethylene Terephthalate/carbon Nanotube Composites with Improved Processability and Performance;" *J. Mater. Sci.*, **53**, 7017-7029(2018).
57. Zhang, Q., Rastogi, S., Chen, D., Lippits, D. and Lemstra, P. J., "Low Percolation Threshold in Single-walled Carbon Nanotube/high Density Polyethylene Composites Prepared by Melt Processing Technique;" *Carbon*, **44**, 778-785(2006).
58. Arrigo, R. and Malucelli, G., "Rheological Behavior of Polymer/carbon Nanotube Composites: an Overview;" *Materials*, **13**, 2771 (2020).