研究論文

BMC の射出成形における予熱の効果

長谷川 嘉雄*, 花 崎 伸 作**, 藤 原 順 介***

(1979年8月20日受付)

Effect of Preheating in Injection Molding of BMC

Y. HASEGAWA,* S. HANASAKI** and J. FUJIWARA***

(Received August 20, 1979)

Unsaturated polyester molding compounds as BMC (bulk molding compound) are generally molded without preheating *i.e.* under the room temperature. However, the injection molding with preheating can be expected to have such advantages that the curing time is shorter and that the injection pressure is lower. Moreover, in regard to the breakage of glass fiber during flow of BMC into cavity, it is desirable that the viscosity of BMC is low. Such effects can be expected by preheating. Then in this paper, nozzle injection pressure, cavity pressure and injection plunger displacement have been measured in case of preheating BMC. Besides, the flexural strength of injection molded parts of preheating BMC has been investigated. The main results obtained are as follows: 1) The injection molding of preheating BMC made possible to mold in reasonably lower injection set pressure than that of non-preheating. In case of preheating BMC, the maximum pressure in cavity became lower, the curing time became shorter and the locational difference of pressure in cavity was reduced. 2) Preheating BMC made the flexural strength of injection molded parts higher.

1. 緒 言

熱硬化性成形材料の圧縮成形あるいはトランスファ成形においては、成形材料を金型に投入する前に予熱することは成形能率の向上と成形品の品質改善のためにぜひ必要な操作であって、今日では成形工場の一般常識である¹⁾。すなわち予熱することにより、硬化時間ならびに成形サイクルを短縮でき、きわめて柔らかい状態のもとで成形材料に成形圧力がかけられるので、所要圧力も予熱しない場合に比べてかなり低くすることができる。また成形材料の各部を均一に硬化させることができるので、内部に欠陥の少ない製品が得られる。このような予熱は射出成形の場合には、射出シリンダを加熱することにより容易に行なわれている。

一般に熱可塑性樹脂の射出成形においては、樹脂を成形前に熔融状態にするために、射出シリンダは加熱されている。しかもその温度は樹脂の成形状態や成形品の性

質などに大きく影響する^{2,3)}ので、射出シリンダの温度の制御は重大な問題である。このことは熱硬化性成形材料の場合にも同じである。すなわち射出シリンダの温度はノズルで成形材料が硬化することなく射出でき、また射出シリンダ内からキャビティ内に充填するまでは、流動性が良好な状態に保たれる範囲で、できるだけ高くすることが望ましい。しかし予熱温度が高くなるほど流動性はよくなるが、硬化速度が速くなり、流れの継続時間が短くなるので、かえって射出が困難となる。フェノール系成形材料では90~110°Cくらいが最適とされている⁴⁾。

一般的に不飽和ポリエステル樹脂を用いた成形材料は他の熱硬化性樹脂成形材料に比べて、成形圧力、成形温度が低く、しかも硬化がすみやかであるため、予熱は行なわれず、室温のまま成形される⁵⁾ことが多く、BMCの場合も同様である。しかしBMCの場合でも予熱して射出成形すれば、他の熱硬化性成形材料の場合と同様な利点があると考えられる。すなわち硬化時間が短縮され、射出圧力が低くてもよい。さらにBMCが金型内へ流入するときのガラス繊維の損傷の点からは、BMCの粘度が低いことが望ましく、予熱によりそのような効果が期待できる。ところが今までにBMCの射出成形における予熱の影響について報告されたものはほとんどな

*,**,** 大阪大学工学部機械工学科 (565 吹田市宇山田上)

Dep. of Mech. Eng., Fac. of Eng., Osaka University, Yamada-kami, Suita, Osaka 565, Japan

* 教授 Professor, ** 助教授 Associate Professor,

*** 助手 Associate

Fig. 1 Schematic view of experimental apparatus.

い。

そこで本報告では BMC の射出成形における予熱の影響を解明するために、BMC を予熱して射出成形を行ない、ノズル部の射出圧力、射出プランジャ行程、金型キャビティ内圧力を測定した。また別に予熱した場合の射出成形品の曲げ強さも測定した。

2. 実験装置および実験方法

射出成形装置および金型は前報⁶⁾に述べたのと同じものを使用した。Fig. 1 に示すように射出シリンダのノズル側にバンドヒータを取り付けて、BMC の予熱を行なった。そして射出成形の際のノズル部の射出圧力、射出プランジャ行程、金型キャビティ内圧力を測定した。このときの成形条件を Table 1 に示す。なお射出シリンダの予熱温度を決定する際に、予備実験として 40, 50, 60°C の場合について実験を行なった。その結果、予熱温度が 60°C の場合には、成形サイクル中に射出シリンダ内の BMC が硬化して射出不能になることがあったので、成形サイクル中に射出シリンダの中の BMC が硬化せずにノズルを通過できる最高温度として 50°C を採用した。

また予熱が射出成形品の機械的強度に及ぼす影響を調べるために、既報⁷⁾と同様にして、混練時間をいろいろ変えて射出成形品を作り曲げ試験を行なった。また曲げ試験片の破断面の走査型電子顕微鏡による観察も行なった。

3. 実験結果および考察

3.1 予熱が金型内圧力挙動に及ぼす影響

BMC を予熱した状態で、金型温度を 140°C と一定に保ち、射出設定圧力を変化させて成形を行なったときのキャビティ内の圧力測定の結果を Fig. 2 に示す。ノズル部の射出圧力のグラフを見ると、射出設定圧力が 160 kg/cm² 以上の場合には、明らかにノズル通過のための圧力 p_1 、BMC をキャビティ内へ流入させるための射出流入圧力 p_2 、射出設定圧力 p_3 の区別がはっきりと認め

Table 1 Molding conditions.

Mold temperature (°C)	100, 120, 140, 160
Injection set pressure (kg/cm ²)	40, 100, 160, 210, 260, 280
Preheating temperature (°C)	50
Clamp force (t)	29
Holding time (min)	3
Curing time (min)	3.5

られるが、それより低い射出設定圧力の場合には p_2 と p_3 の間にはほとんど差のないことがわかる。さらに BMC を予熱しない場合には、100 kg/cm² 以下の射出設定圧力で成形を行なうと、キャビティ内の充填不足を生じるため、完全な成形品を得ることができなかったが、BMC を予熱することにより Fig. 2(d) に示したように、射出設定圧力が 40 kg/cm² の低圧での成形も可能となった。これは予熱によって BMC の粘度が低下して、流動抵抗が減少したためである。

射出プランジャ行程のグラフを見ると、射出設定圧力が 100 kg/cm² 以上では射出プランジャが停止するまでの時間すなわち金型内の充填が完了するまでの時間は、射出設定圧力が変わってもほとんど変化しないことがわかる。これは予熱により BMC の粘度が低下して、キャビティ充填時の流動抵抗が同程度になり、ほぼ同じ射出圧力でキャビティ内が充填されるためと考えられる。また予熱した場合、射出率も射出設定圧力が 160 kg/cm² 以上でだいたい一定となっている。

キャビティ内の圧力線図を見ると、射出設定圧力が 100 kg/cm² 以上では圧力上昇中にくびれが生じているが、これは金型の分割面に沿ってばりが流出するときに起こる。しかし 40 kg/cm² のような低い射出設定圧力では、このようなばりの流出による圧力線図のくびれはない。ばりの流出が少ないことは、キャビティ内の空気の抜けが不十分であることを意味し、好ましいことではない。また Fig. 2(b) のようにくびれのあとの鋭い立上りが生じることがあるが、その原因は不明である。

次に射出設定圧力を 260 kg/cm² と一定に保ち、金型温度を変化させて成形を行なったが、ノズル部の射出圧力のグラフは金型温度が変わってもあまり大きな変化は見られず、 p_1 , p_2 , p_3 の区別がはっきりと認められた。

射出プランジャ行程から射出率を求めると Fig. 3 のようになり、射出率は予熱することによって大きくなったが、金型温度が高いほど大きくなるのは予熱しない場

Fig. 2 Pressure and plunger displacement in case of preheating.

Fig. 3 Effect of mold temperature on injection rate in case of preheating and non-preheating.

合と同様である。予熱によって射出率が大きくなるのは、ランナを通過してキャビティ内へ流入する BMC の粘度が低下して、BMC のキャビティ内への流入速度が

増大したためである。また金型温度が高い場合には、流入途中での加熱により、いっそう BMC の粘度が低下し、射出率も増加する。さらに Fig. 2 のノズル部の射出圧力のグラフよりキャビティ内への充填過程について考えると、予熱した場合にもほとんどすべての場合、ジェット・フロの形で充填されていると思われる。

次に予熱をした場合の硬化時間、すなわち射出プランジャが移動を開始してから、キャビティ内の圧力曲線が零になるまでの時間について調べると、Fig. 4 となる。予熱をすることにより硬化時間が短くなっており、成形サイクルの短縮には好ましいことである。

3.2 熱膨張による圧力上昇 Δp について

キャビティ内の最高圧力は、予熱した場合でも射出設定圧力を大きく上回っており、これは前報⁹⁾でも述べたように BMC の熱膨張によるものであるが、キャビティ内の最高圧力と射出圧力の差 Δp を求め、予熱しない場

Fig. 4 Effect of mold temperature on curing time in case of preheating and non-preheating.

Fig. 5 Effect of mold temperature on Δp in case of preheating and non-preheating.

合と比較すると Fig. 5 のようになる。No. 2 や No. 3 の測定点における圧力差 Δp_2 , Δp_3 は予熱した場合のほうが予熱しない場合よりも低くなり、均質な射出成形品を作るには好ましいことである。これは予熱によりキャビティ内へ流入する BMC の温度が高くなり、キャビティ内での熱膨張による体積増加分が減少したためである。予熱した場合、これらの測定点における圧力差は予熱しない場合と同じように金型温度の増加に伴って増加している。さらに No. 2 の圧力測定点における圧力差 Δp_2 が、No. 3 の圧力測定点における圧力差 Δp_3 より大きくなっているのは、前報でも述べたようにキャビティ内の圧力損失の影響である。また No. 1 の測定点における圧力差 Δp_1 は予熱した場合でも No. 2 の測定点における圧力差 Δp_2 よりも低い。

Fig. 6 Effect of mixing time on flexural strength in case of preheating and non-preheating.

3.3 射出成形品の強度と混練時間の関係

既報⁷⁾と同様に、混練時間を2分から400分の間でいろいろ変えた BMC を用いて、予熱した場合の射出成形品を作り、曲げ強さを調べた。その結果を Fig. 6 に示す。既報の結果によれば、混練時間の増加に伴って射出成形品の曲げ強さは増加するが、予熱した場合の射出成形品の曲げ強さもこれとほぼ同じ傾向を示し、混練時間の増加に伴って増加している。しかも予熱した場合の射出成形品の曲げ強さは予熱しない場合に比べて、どの混練時間においても少しずつ高い値を示している。

一般に短繊維強化によって複合材料の強度を上げるには、次の二つのことが知られている。一つは繊維の長さを増すことであり、もう一つは繊維とマトリックスの界面の接着性を向上させることである。混練時間の増加によって射出成形品の曲げ強さが増加するのは、すでに報告したようにガラス繊維とマトリックスの界面の接着性が向上したためであるが、予熱した場合の射出成形品の曲げ強さが予熱しない場合に比べて高い値を示すのは、予熱により粘度の低い状態で保たれる時間が長くなって、界面の接着性が向上することが考えられる。また予熱による BMC の粘度の低下により流動抵抗が減少し、成形中のガラス繊維の破損が軽減され、射出成形品の中に含まれるガラス繊維が長くなることも考えられる。

3.4 ガラス繊維長の測定

以上のことを確かめるために、鉛化合物を多量に含むガラス繊維をチョップストランドとともに10分間混練して作った BMC を用いて射出成形品を作り、そのX線透過写真をとって、成形品中のガラス繊維の投影長さを測定した。さらにこれと比較するために、成形前やノ

Table 2 Mean length of glass fiber (Mixing time : 10 min).

	Before molding	Just after nozzle	After molding
Non-preheating (mm)	1.36	1.22	0.87
Preheating (mm)		1.28	1.20

ズル通過後の BMC を射出成形品と同じ形状にして、同様の方法でガラス繊維の投影長さを測定した。その結果を Table 2 に示す。予熱しない場合には、BMC 中のガラス繊維はノズル、スプル、ランナを通過するときに破損し、その長さが著しく減少しているのがわかる。これに対して予熱した場合には、ノズルを通過したときの繊維の破損の程度は同じであるが、その後、キャビティに充填されるまでに受ける繊維の破損は、予熱しない場合に比べてわずかである。

しかし既報の結果によれば、ガラス繊維は混練時において最も大きな破損を受け、混練時間が 20 分までは繊維長は大きく減少するが、それ以後は緩やかに減少している。たとえば混練時間が 20 分では約 0.35 mm、また 300 分では約 0.25 mm となる。このように長く混練された BMC では含まれているガラス繊維が最初から短いから、予熱しない場合に BMC が金型内を流動しているときの繊維の破損はあまり大きいとは考えられない。そこで通常の配合の中から触媒だけを除いて 175 分間混練した BMC を用いて射出成形を行ない、固化していない成形品からアセトンと塩酸を用いてガラス繊維だけを抽出して、その繊維長を測定した。その結果、このような長い混練時間においては、予熱の有無によって成形品中のガラス繊維長はほとんど変化しないことがわかった。

3.5 走査型電子顕微鏡による破断面の観察

成形品中のガラス繊維の状態に及ぼす BMC の予熱の影響を調べるために、曲げ試験片の破断面を走査型電子顕微鏡で観察した。その一例を Fig. 7 に示す。これらはいずれも成形品内部の同じ場所で、表面から 0.5 mm 内側の写真である。混練時間が 6 分の場合には、ガラス繊維の分散が悪く、しかも破断面から抜け出ている長い繊維が多くて、ガラス繊維とマトリックスの界面の接着が弱いことがわかる。また予熱した場面と予熱しない場合とを比較しても繊維の配向に大きな差はない。

混練時間が 175 分の場合には、破断面から抜け出ている繊維が短いのは当然であるが、破断面上で切れている

Fig. 7 Fracture surfaces in case of preheating and non-preheating.

Mixing time; (a), (b) : 6 min, (c), (d) : 175 min, (a), (c) : non-preheating, (b), (d) : preheating.

繊維が多く、繊維とマトリックスの界面の接着性が向上していることがわかる。しかし予熱した場合と予熱しない場合とを比較すると、繊維の配向に違いがあることがわかる。予熱した場合には、繊維が破断面に対して垂直に配向しているスキン層の部分が成形品の内部にまで及んでいるが、予熱しない場合のスキン層は薄くて、Fig. 7(c) の右側の部分に現われているだけである。これは次のように考えられる。予熱することにより、BMC の粘度が低下してキャビティ内に充填される BMC の速度が増す。粘度の低下と流入速度の増大により、断面における速度分布において、大きな速度勾配を生じる層が金型壁面から成形品の内部に向かって広がることになり、流動方向に対して平行に配向する繊維が増加するためである。このように粘度の低下によってスキン層の厚さが増加することは Goettler⁸⁾ も報告している。

3.6 予熱により強度が向上する機構

以上の結果より、予熱した場合の射出成形品の曲げ強さが予熱しない場合よりも、すべての混練時間の範囲において高い値を示すのは以下の機構によると思われる。

混練時間が 10 分までの範囲では、混練のときに巻き込まれた空気や金型キャビティ内へ流入したときに、あいたに閉じ込められた空気のためにガラス繊維とマトリックスの界面の接着性は悪いが、予熱することにより射出シリンダ内の BMC は粘度の低くなった状態で保たれる時間が長くなるため、樹脂のガラス繊維に対するぬれ性が向上し、キャビティ流入時に空気を閉じ込めることが減る。そのため予熱した場合には、混練時間が 10 分付近の強度はそれより短時間混練の場合より大きくなっている。また予熱することにより成形品内部のガラス繊維長が長くなるため強度が向上する。しかし予熱した場合でも破断面から抜け出ている繊維がまだ多いことは、界面の接着性の向上がまだ不十分なことを示し、この場合の繊維長は臨界繊維長よりも短いと考えられる。したがって混練時間の短い範囲において、予熱により曲げ強さが向上するのは、ガラス繊維長の増加の影響とガラス繊維とマトリックスの界面の接着性の向上の影響とが考えられる。

さらに混練時間の増加に伴って、ガラス繊維とマトリックスの界面の接着性は向上し、20 分を過ぎると曲げ強さは急激に増加する。破断面の観察によれば、混練時間が 20 分の場合には破断面上で切れている繊維が見られ、破断面から抜け出ている繊維でも平均繊維長に比べるとかなり短いことから、この場合の平均繊維長は臨界繊維長よりも長いと考えられる。したがって予熱することによる強度の向上は、界面の接着性の向上によると考えられる。

その後、混練時間が増加し 175 分になると BMC は硬くなっていき、ガラス繊維とマトリックスの界面の接着性はさらに改善される。このことは破断面上で切れている繊維が多くなっていることでのわかる。この場合の平均繊維長は臨界繊維長より長い、金型内へ流入するときの繊維が予熱により破損を軽減されることはない。しかし予熱により BMC の粘度が低下し、キャビティ内で流動しやすくなるため、スキン層の厚さが増加する。このスキン層では、繊維は流動方向に対して平行に配向しているため強度はさらに向上する。したがってこの場合に曲げ強さが向上するのは、界面の接着性の向上のほかにはスキン層の配向も影響していると思われる。

4. 結 言

BMC を予熱して射出成形を行ない、成形中のノズル

部の射出圧力、射出プランジャ行程、金型キャビティ内の圧力を測定した。さらに予熱した場合の射出成形品の曲げ強さを測定し、予熱の影響を調べた。得られたおもな結果は次のとおりである。

- 1) BMC を予熱して射出成形を行なえば、金型流入時の BMC の粘度が低下して流動抵抗が減るため、予熱しない場合に比べてかなり低い射出圧力での成形が可能となり、硬化時間も短縮される。
- 2) BMC を予熱して射出成形すれば、予熱しない場合に比べてキャビティ内での熱膨張が減少するため、最高圧力も減少し、さらにキャビティ内の場所による圧力の差も減少する。
- 3) BMC を予熱することにより射出成形品の曲げ強さは高くなる。これは混練時間が短い範囲では、予熱により BMC の粘度が低下し、BMC が金型内を流動するときのガラス繊維の破損が減少するためであり、混練時間の長い範囲では、BMC の粘度の低下により、流動方向に対して平行に配向する繊維の層が厚くなるためである。さらに混練時間の全般にわたって、予熱によりガラス繊維とマトリックスの界面の接着性が向上する効果も関与している。

本研究を行なうにあたり、試料を提供くださった積水化学工業㈱、武田薬品工業㈱に謝意を表する。また実験に協力された村上吉史君の労に感謝する。

参 考 文 献

- 1) 大島敬治、瀬戸正二、広恵章利：熱硬化性樹脂の圧縮成形・トランスファ成形・射出成形，プラスチックエージ社，東京（1966），p.48.
- 2) 瀬戸正二：射出成形，プラスチックエージ社，東京（1961），p.251.
- 3) 里見英一：工業材料，26，4（1978），72-80.
- 4) 高分子学会編：プラスチック成形機械と成形技術，地人書館，東京（1964），p.21.
- 5) 竹鼻三雄：FRP—生産と技術—，プラスチックエージ社，東京（1971），p.109.
- 6) 長谷川嘉雄，花崎伸作，藤原順介：日本複合材料学会誌，6，1（1980），31-37.
- 7) 長谷川嘉雄，花崎伸作，藤原順介：日本複合材料学会誌，3，4（1977），133-140.
- 8) L.A.Goettler：Mod. Plast.，44，4（1970），140-146.