研究論文

BMC 射出成形品の繊維配向

長谷川 嘉雄*, 花崎 伸作**, 藤原 順介***

(1981年11月26日受付)

Fiber Orientation in Injection Molded Parts of BMC

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

(Received November 26, 1981)

The fibrous filler in the molded parts lies generally in same direction to a certain extent. This phenomenon easily occurs in the injection molding of the recently developed Bulk Molding Compound (BMC), which is a serious problem in applying this high-productive molding method. So, in order to clarify the fiber orientation phenomenon in injection molding of BMC, the effects of molding conditions and mold geometry on the fiber orientation were investigated, kneading the optical fiber composed of lead compound and taking the X-ray photograph of molded parts. Different fiber orientations occur in three regions in the molded parts; fiber lies coaxially in the vicinity of gate, perpendicular to the direction of injection and parallel to the cavity wall opposite to gate. The coaxial fiber orientation in the vicinity of gate becomes ellipse whose major axis coincides with the direction of injection at low mold temperature.

1. 緒 言

一般に繊維状充填材を含む成形材料から作られる成形品においては、多かれ少なかれ充填材がある方向に配向し、成形収縮率や機械的強度などに方向性をもった成形品となる。とくに最近開発された BMC の射出成形ではガラス繊維が配向しやすく、生産性の高いこの成形法の応用上の問題ともなっている¹⁾。そこで良品生産の前提として、配向現象の実態を明らかにすることは価値があると考えられる。しかしガラス繊維は非晶質であるため、これを充填材として用いた場合、X線回折によりその平均配向度を評価することは困難であり、電子顕微鏡その他の、より直接的方法によらざるをえない。このため複合材料の物性を繊維配向度との関係から論じた研究は少ない。

Woebcken²⁾ は色違いの成形材料混合物を用いてトランスファ成形を行ない、繊維状充填材の配向現象を研究し、配向の仕方に二つの型があることを示した。第一の型は加圧下において材料にほとんど流動が起こらないと

きに生じ、繊維状充填材は加圧方向に対して垂直に配向する。第二の型は加圧によって材料に流動が起こる場合に生じ、繊維状充填材は流れ方向に平行に配向する。

さらに Kacir ら^{3,4)}、Goettler⁵⁾、吉田ら⁶⁾も配向に関して報告しているが、BMC の射出成形品中のガラス繊維の配向を調べたものはほとんどなく、最近になって、わずかに Burns ら⁷⁾が BMC の射出成形における金型充填過程のレオロジ的研究を行なっているだけにすぎない。BMC の射出成形品の配向現象が、上記の研究報告とまったく異なるとは考えられないが、射出成形品の機械的特性に及ぼす影響を知るためには、その配向現象の正確な把握が必要である。

そこで本実験では BMC の射出成形品中のガラス繊維の配向現象を解明するために、鉛化合物を多量に含む光学繊維をチョップトストランドとともに BMC 中に混練し、成形品の X線透過写真を撮って、成形条件や金型形状が繊維の配向に及ぼす影響について調べた。また配向現象の発生の状態を知るために、キャビティ内へ BMC が充填されていく過程も観察した。

2. 実験装置および方法

実験に用いた原材料は以下のとおりである。すなわち不飽和ポリエステル樹脂として 2 液性低収縮タイプのもの、補強材として繊維長 13 mm のチョップトストランド、充填材として炭酸カルシウム、触媒として BPO、

, 大阪大学工学部機械工学科 (565 吹田市山田丘 2-1)

Dept. of Mech. Eng., Fac. of Eng., Osaka University, 2-1, Yamada-oka, Suita 565, Japan

* 教授 Professor, ** 助教授 Associate Professor,

*** 助手 Assistant

Table 1 Formulations of BMC.

Component	% by weight
Unsaturated polyester resin	25
(Polymal 9802	20)
9252	5)
Glass fiber (Chopped strand, $d=10\ \mu\text{m}$, $l=13\ \text{mm}$)	14.9
Optical glass fiber ($d=50\ \mu\text{m}$, $l=13\ \text{mm}$)	0.1
Filler (CaCO_3)	58.5
Catalyst (BPO)	0.5
Mold release agent (Zinc stearate)	1.0

Table 2 Mixing procedure of BMC.

Mixing order	Mixing time after adding (min)
Adding catalyst to resin	5
Adding mold release agent	5
Adding filler	10
Adding reinforcement for 7 min gradually	15

内部離型剤としてステアリン酸亜鉛を用いた。そのほかに繊維の配向を調べるために、光学繊維を用いた。この光学繊維は鉛化合物を約 40% 程度含んでおり、X線吸収量が大きいので、X線透過によって繊維の配向の観察が可能となる。なおこの光学繊維は直径が約 $50\ \mu\text{m}$ で、繊維長はチョップストランドと同様に $13\ \text{mm}$ である。繊維の配向の観察に用いた配合を Table 1 に示す。

混練には森山式双腕型ミキサーを用い、Table 2 に示す方法で行なった。なおガラス繊維の混入は、その混練時間内において、ガラス繊維を均一に分散させながら徐々に添加した。また補強材として用いたガラス繊維と光学繊維の混練後の細長比は同程度になっている。

射出成形装置はプランジャタイプのもので、そのおもな仕様は型締能力 $50\ \text{t}$ 、最大射出圧力 $529\ \text{kg/cm}^2$ ($51.8\ \text{MPa}$)、プランジャ直径 $60\ \text{mm}$ 、ノズル直径 $6\ \text{mm}$ で、既報⁹⁾ で用いたのと同じものである。

射出成形装置に取り付けて使用した金型キャビティの形状を以下に示す。

Fig. 1 Mold cavity to investigate the effect of gate geometry on fiber orientation.

Fig. 2 Mold cavity to investigate orientation angle.

Table 3 Molding conditions.

Mold temperature ($^{\circ}\text{C}$)	100, 120, 140, 160
Injection pressure (kg/cm^2)	302
Clamp force (t)	43
Holding time (min)	3
Curing time (min)	3.5

Fig. 1 はゲートの形状の影響を調べるための金型であって、ダイレクトゲート、サイドゲート、ファンゲートの3種類のゲートが正方形と扇形の形状をしたキャビティに設けられている。

成形品の形状の影響を調べるために、Fig. 1 に示したほか、ひし形、円形、三角形、半円形の4種類の形状のキャビティに、ダイレクトゲートをつけた金型を使用した。

成形温度の影響を調べるためには、Fig. 1 に示したダイレクトゲートの金型を使用した。

繊維の配向角を調べるためには、Fig. 2 に示した平行とダンベル形の金型を用いた。

以上の実験における成形条件を Table 3 に示す。

Fig.3 Effect of gate geometry on fiber orientation.

3. 実験結果および考察

3.1 ゲート形状が繊維配向に及ぼす影響

ここでは正方形と扇形の形状をした2種類のキャビティにそれぞれ3種類のゲートをつけて、そのゲートの形状が成形品の繊維配向にいかに関与を及ぼすかを観察した。そのX線透過写真をFig.3に示す^{*1}。ダイレクトゲートの正形成品ではゲート付近の狭い領域で繊維は放射状に配向し、そのまわりの領域ではゲート側を中心とするような同心円状に繊維が配向しているのが観察される。そして成形品の中央付近に近づくにしたがって、同心円の曲率半径がしだいに大きくなっていき、中央よりゲート対辺側に少し寄ったところでは、繊維は射出方向に対して垂直な直線状に配向するようになる。さらに

ゲート対辺に近い領域では、逆にゲート対辺側に中心をもった同心円状の配向となり、ゲート対辺にごく近い領域では再び射出方向に対して垂直な方向すなわちゲート対辺に沿って配向する。

ダイレクトゲートの扇形成品でも正形成品とほぼ同様な配向を示しているが、ゲート対辺が円弧状であるためにゲート対辺側に中心のある同心円状の配向は見られず、ほとんどゲート側に中心のある同心円状の配向を示す。

サイドゲートの正形成品では、繊維が射出方向に対して垂直な方向に直線状に配向する領域（中央部に見られる）までは、ダイレクトゲートの場合とほぼ同じ配向を示しているが、これよりゲート対辺に近い領域ではゲート対辺側に中心があるような逆の同心円状の配向層がダイレクトゲートの場合に比べて多くなっている。

サイドゲートの扇形成品では、ゲート付近の放射状に配向している領域がダイレクトゲートの場合に比べて狭く、ほとんどゲート側に中心のある同心円状の配向を示している。

^{*1} ここで得られたX線透過写真と、スキン層を機械加工で取り除いた成形品のX線透過写真との比較により、これらの一連の写真は主に成形品内部のコア層の繊維配向を示すものであることがわかった。

Fig.4 Effect of cavity geometry on fiber orientation.

ファンゲートの正形成品では、ゲート付近での放射状に配向している領域がほとんどなく、また同心円状の配向を示す領域も射出方向を短軸とする楕円状になっている。そしてゲート対辺に近い領域ではゲート対辺に沿って配向している。

ファンゲートの扇形成品では、ゲート対辺側に中心のある逆の同心円状の配向を示す領域が中央部に少し観察される。また円弧状の外周に沿ったごく狭い領域では、きわめて規則正しく壁と平行に繊維が配向している。

3.2 成形品の形状が繊維配向に及ぼす影響

次にキャビティの形を変えて、成形品の形状が繊維の配向に及ぼす影響を観察した。それらの成形品のX線透過写真をFig.4に示す。Fig.4(a)のひし形の成形品は、Fig.3の正方形の成形品とキャビティ形状が同じで、ゲートの位置のみが変わったものである。この成形品の配向状態は、射出方向に垂直な対角線上までは扇形成品と同様である。すなわちゲート付近では繊維は放射状に配向し、中央の対角線上までの領域では、ゲート側に中

心があるような同心円状の配向を示している。そこからゲート奥のコーナ部までは配向は乱れている。

Fig.4(c)の三角形の成形品の場合には、ゲートの近傍ではFig.3に示した正方形の成形品の場合のゲート近傍の配向に類似し、ゲートに対向するコーナ部ではひし形の成形品におけるゲート奥の部分の配向に類似している。

またFig.4(b),(d)を比べてみると、ゲート対辺が長い直線あるいはなめらかな曲線であるため、Fig.3の正方形や扇形の成形品と同じく、この部分ではゲート対辺に沿う配向を示し、ゲート近傍では正方形の成形品の場合のゲート近傍の配向と類似している。

3.3 金型キャビティ流入過程の観察

上述したような成形品の繊維配向は、BMCがキャビティ内へ充填される過程と関係があると思われる。そこでこのことを調べるために、矩形のキャビティ前面に強化ガラスを取り付け、BMCがキャビティ内へ流入する過程をモータドライブカメラで撮影した。その一例を

Fig. 5 Filling process of BMC into a rectangular cavity.

Fig. 6 Scheme of fiber orientation.

Fig. 5 に示す。BMC がキャビティ内へ充填される様子はジェット・フローによりなされるが、その過程を詳しく観察すると次のようになる。まず最初にキャビティ内へ流入したジェットはキャビティの奥にまで突き進み、ゲート対辺に突き当たって折れ曲がる。最初の流入ジェットが折れ曲がると新たに流入してくる BMC は次々と折れ曲がって、射出方向に垂直に折りたたまれて、キャビティの奥へ進んでいく。ある程度キャビティ内が充填されると、新たに流入してくる BMC は折れ曲がってキャビティ内へ流入できなくなり、ゲートから出ると押しつぶされ、広がるようにしてキャビティ内に充填される。そして充填の最終時に、最初に流入した BMC のジェットがゲート対辺に押しつけられて充填が完了する。

以上の観察の結果および前に述べた成形品の X 線透過写真の観察の結果より、一般に矩形の成形品の繊維配向は Fig. 6 に示すように、充填段階の違いにより大まかに三つの領域に分けられることがわかった。すなわち領

域 I はキャビティ内に最初に流入したジェットがキャビティの奥のゲート対辺に突き当たって折れ曲がり、充填の最終時にゲート対辺に押しつけられて形成される配向層で、キャビティの奥のゲート対辺に沿って平行な配向を示す。

領域 II は最初の流入ジェットが折れ曲がってから新たに流入する BMC が次々と折れ曲がって、射出方向に垂直に折りたたまれてキャビティの奥へ進んでいくときに形成される配向層で、側壁近くを除いて射出方向に対してほぼ垂直な配向を示す。しかし充填の途中での折れ曲がった部分にはすき間が生じており、これはキャビティ充填の最終段階にその近傍から満たされる結果、領域 I、II の境界ではゲート対辺側に中心のある円弧状の配向となり、領域 III に近い部分ではゲート側に中心のある円弧状の配向となり、領域 III に接続する形となる。

領域 III はある程度キャビティ内が充填されると、新たに流入してくる BMC が折れ曲がって流入できなくなり、ゲートから出ると押しつぶされ広がるようにしてキャビティ内に充填されるときに形成される配向層で、同心円状の配向を示す。

3.4 金型温度が繊維配向に及ぼす影響

本節では金型温度が繊維の配向に及ぼす影響を観察するために、金型温度を 100, 120, 140, 160°C の 4 種類に変化させて成形を行なった。金型は Fig. 1 に示した正方形と扇形のキャビティにダイレクトゲートのついたものを用いた。それらの成形品の X 線透過写真によれば、成形温度が変化しても繊維の配向は前節で述べたものとあまり変わっていない。ただし正方形成形品の同心円状の配向に多少の差が見られる。金型温度が低い場合には、同心円状というよりもむしろ射出方向を長軸とした楕円状に配向しており、金型温度が高くなるにつれて同心円状の配向に近づいてくる。これは金型温度が低い場合には、BMC は粘度が高いままでキャビティ内に充填されるので、充填された棒状の BMC がつぶれにくく、ゲートを出てもあまり広がらずに充填され、成形圧力がゲート延長線上で強く作用するため、射出方向を長軸とするような楕円状に繊維が配向する。ところが金型温度が高くなると、BMC はランナを流れているときに軟化して、粘度が低下した状態でキャビティ内に充填されるので、充填された棒状の BMC は容易につぶれ、剛体的な挙動から流体的な挙動に近くなる。そのため繊維は同心円状に配向するようになる。このことは金型温度が低い場合には BMC の充填が不足気味になり、金型温度が高い場合には良好になることからわかる。

Fig.7 Relation between percent of fiber and orientation angle.

3.5 繊維の配向角の測定

本節では繊維の配向方向を射出方向（ランナ部では流動方向）を基準にして、繊維の傾き角によって数量化した。角度の測定は射出方向に 0° をとり、反時計回りを正として、-90° から 90° の範囲で行なった。なお測定本数は 400 本とした。

Fig.2 のダンベル形のキャビティを使って成形した成形品の X 線透過写真より、ランナ部、流入部、中央部の 3 カ所の繊維の配向角を測定した。その結果を Fig. 7 に示す。ランナ部ではほとんどの繊維が流動方向に平行に配向しているが、この理由は次のとおりである。ランナ部では BMC の軟化があまり進んでいないので、流動している BMC の粘度が高く、そのため金型表面と BMC との間に大きな摩擦力が働き、金型表面ではほとんど流れないが、中央部に近づくに従って流速が速くなり、金型と接触する BMC との間に大きな速度勾配ができる。その結果、流動速度の違いによって流速の遅い部分が速い部分に引張られて、繊維が流動方向に配向する。

流入部ではランナ部を通して入ってきた BMC が、押しつぶされ広がるように充填されるため、同心円状の配向を示し、射出方向に配向する繊維が少なくなる。

中央部ではキャビティの幅が流入部に比べて少し狭くなるので、BMC の流れが絞られる状態となり、流入部に比べて流速が増すため速度勾配を生じる。そのため射出方向に配向する繊維が再び増え、繊維の配向角がだいたい平均化されると思われる。

次に平形とダンベル形の成形品の X 線透過写真より、それぞれの成形品の中央部とダンベル形成形品の流入部における繊維の配向角を求め、横軸に角度の絶対値、縦軸に累積相対度数をとって表わすと Fig. 8 のようになる。平形の成形品の中央部の配向はダンベル形の成形品

Fig.8 Relation between accumulative percent of fiber and orientation angle in different molded parts.

の流入部と似ているが、これはキャビティの幅が同じであるため、同一の充填形態をとるためと考えられる。ダンベル形の成形品の中央部では射出方向に配向している繊維が多いが、これはすでに述べたように、中央部のキャビティの幅が狭くなっているため、流速が速くなってランナ部における配向に似てくるためと思われる。

3.6 金型温度が繊維の配向角に及ぼす影響

本節では金型温度が繊維の配向角に及ぼす影響を調べるために、平形の金型を用いて金型温度を 100, 120, 140, 160°C の 4 種類に変化させて成形を行なった。得られた成形品の X 線透過写真をもとにして、成形品の中央部の繊維の配向角を測定した結果を Fig. 9 に示す。金型温度が 100°C のように低い場合には、BMC の粘度が高いため、棒状の BMC が曲がりにくく、キャビティ内での折りたたみが行なわれず、射出方向に配向した繊維が多く見られる。金型温度が上がるにつれて BMC の粘度が低下するため、BMC がキャビティ内で

Fig. 9 Relation between accumulative percent of fiber and orientation angle for various mold temperature.

折りたたまれやすくなる。そのため金型温度が140°Cの場合には射出方向に垂直な繊維が多くなる。金型温度が160°Cのように高い場合には、キャビティ内に流入したBMCはキャビティ内で折りたたまれて成形圧力がかかる前に硬化する。そのため射出方向に配向した繊維が多くなる。

4. 結 言

BMC 射出成形品中の繊維の配向現象を解明するために、鉛化合物を含む光学繊維をチョップトストランドとともに BMC 中に混練し、成形品の X線透過写真を撮って、成形条件や金型形状などが繊維の配向に及ぼす影響について調べた。また配向現象の発生の状態を知るために、キャビティ内へ BMC が充填されていく過程も観察した。それにより得られたおもな結果は次のとおりである。

1) 一般に射出成形品の繊維配向は大きく分けると、ゲートの近くでの同心円状の配向、中央部での射出方向に垂直な直線状の配向、キャビティ奥でのゲート対辺に

平行な配向の三つに分けられ、これらは BMC のキャビティ内への充填過程により支配される。

2) ファンゲートの成形品には、ダイレクトゲートやサイドゲートの場合に見られる同心円状の配向が、射出方向を短軸とする楕円状に変化している。

3) 金型温度が低いときには、ゲートの近くでは繊維は射出方向を長軸とした楕円状に配向するが、金型温度が高くなると、ゲート側を中心とするような同心円状の配向となる。

4) ダンベル形の成形品のランナ部では、流速が速いため流動方向に配向する繊維が非常に多いが、流入部では BMC が押しつぶされ広がりながら充填されるため、射出方向に配向する繊維が少なくなり、中央部では再び射出方向に配向する繊維が増えている。

5) 平形の成形品の中央部では、金型温度が140°Cのときに BMC の粘度の減少と硬化速度の促進により、射出方向に配向する繊維が最も少なくなっている。

参 考 文 献

- 1) S.H. Bauer : *Proc. 29th Ann. Tech. Conf. RP/Compos. Inst.*, SPI, 15-B (1974).
- 2) W. Woebcken : *Mod. Plast.*, **39**, 12 (1962), 146-161.
- 3) L. Kacir : *Polym. Eng. Sci.*, **15**, 7 (1975), 525-531.
- 4) L. Kacir : *Polym. Eng. Sci.*, **15**, 7 (1975), 532-537.
- 5) L.A. Goettler : *Proc. 25th Ann. Tech. Conf. RP/Compos. Inst.*, SPI, 14-B (1970).
- 6) 吉田邦夫, グナルソ・ブディマン, 岡山芳道, 北尾敏男 : 繊維学会誌, **31**, 8 (1975), 91-97.
- 7) R. Burns & K.S. Gandhi : *Proc. 32nd Ann. Tech. Conf. RP/Compos. Inst.*, SPI, 7-C (1977).
- 8) 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.