論 文

Prediction of Mechanical Properties for Injection Molded
Parts of Glass-Fiber-Reinforced Nylon

Yoshinori INOUE, Takaaki MATSUOKA, and Hideroh TAKAHASHI

*Toyota Central Research & Development Laboratories, Inc.**41-1, Aza Yokomichi, Oaza Nagakute, Nagakute-cho, Aichi-gun, Aichi, 480-11 Japan*

In injection molded parts made of fiber reinforced thermoplastics, large warpages are frequently observed. The warpage is caused by anisotropic mechanical properties yielded by fiber orientations in molded parts. Therefore, it is necessary to predict fiber orientations and anisotropic mechanical properties for estimating the occurrence of warpages.

A computer program for evaluating fiber orientation in molded parts was developed by using Folgar and Tucker's planar orientation model that was considered as fiber-fiber interactions. The classical laminated plate theory was applied to predict mechanical properties (elastic modulus and thermal expansion coefficient) of molded parts in this study. The mechanical properties were predicted in the analysis from calculated fiber orientations and mechanical properties of the fiber and the polymer.

Predicted elastic modulus and thermal expansion coefficient were compared with measured ones for a molded plate of glass-fiber-reinforced nylon-6, 6 (fiber content 30 wt%) to verify computational method. Predicted results agreed with measured ones very well for both the elastic modulus and the thermal expansion coefficient.

Key words: Injection molding / Fiber orientation / Elastic modulus / Thermal expansion coefficient / Computer simulation

ガラス繊維強化ナイロン射出成形品の機械的性質の予測

井 上 良 徳・松 岡 孝 明・高 橋 秀 郎

(1991年9月4日受理)

1. 緒 言

我々は、射出成形品および金型の設計・製作を支援する目的で、射出成形CAE(Computer Aided Engineering)システムの開発を行っている。現在までに、充填過程の樹脂流動および樹脂温度を予測する樹脂充填解析プログラム、保圧過程の樹脂流動、樹脂温度および樹脂の収縮率を予測する樹脂保圧解析プログラム、冷却過程の樹脂温度を予測する樹脂冷却解析プログラム、樹脂内に含まれる繊維(ガラス繊維等)の樹脂流動に伴う配向を予測する繊維配向解析プログラム、成形過程の金型の温度分布を予測する金型冷却解析プログラム、および成形品の熱変形により生じるそりを予測する応力そり解析プログラムを開発した^{1),2)}。

さて、射出成形品の中でも強度および耐久性を必要とする機能部品においては、近年ガラス短繊維等を補強材として充填させた樹脂(ガラス繊維強化樹脂)が広く使用されている。しかし、ガラス繊維強化樹脂の射出成形品は、成形時に変形が生じ易く寸法精度上の問題となることが多い。その原因としては、充填過程に樹脂流動に伴って繊維が配向し、それが成形品の弾性率および線膨張率等の機械的特性の異方性を起こし、最終的に冷却に伴う収縮量に異方性を与え、取り出し時の成形品に変形が生じるものと考えられる。

そこで、我々は樹脂流動に起因した繊維配向をもとに、成形品の弾性率および線膨張率を予測する材料特性解析プログラムを開発した。材料特性解析では、樹脂と繊維の機械的特性、成形品形状および繊維配向解析により計算した繊維の配向状態(分布関数)を入力し、成形品の弾性率および線膨張率を計算する。そして、

* (株)豊田中央研究所 研究10部高分子加工研究室A21グループ
〒480-11 愛知県愛知郡長久手町大字長湊字横道41-1

計算した弾性率および線膨張率を用いることにより、繊維配向による機械的特性の異方性を考慮した解析が可能になった。

以下、材料特性解析の理論およびガラス繊維強化ナイロンについて行った検証実験の方法、結果について述べる。

2. 理 論

2.1 繊維配向解析の理論

材料特性解析で用いる繊維の配向分布関数の説明も含めて、繊維配向解析の理論を簡単に説明する。

射出成形で一般に使用されているガラス繊維強化樹脂は、繊維の含有率が約 20 wt%以上であり、高濃度系サスペンションと見なすことができる³⁾。このような系では充填過程の樹脂流動中に、流れによって繊維が配向する（流体力学的効果）だけではなく、繊維同士のかみ合いによっても配向が変化する（繊維間の相互作用による効果）。そこで、一般的なガラス繊維強化樹脂の繊維配向を予測するためには、流体力学的効果と繊維間の相互作用による効果の両者を考慮する必要がある。

本報では、両効果を取り入れた Folgar-Tucker の平面配向モデル⁴⁾を採用した。このモデルは次の仮定によって、式(1)のように繊維配向を記述する。すなわち、

- ① 繊維は剛直な円柱状であり、直径と長さが均一である。
- ② 繊維はブラウン運動が無視できるぐらい、十分に大きい。
- ③ サスペンションは非圧縮性である。
- ④ 樹脂の粘度は、繊維の慣性や浮力が無視できるぐらい十分に大きい。
- ⑤ 繊維はランダムに分布している。
- ⑥ サスペンションには外力やトルクが作用していない。

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} + V_x \frac{\partial \psi}{\partial x} + V_y \frac{\partial \psi}{\partial y} = C_1 \dot{\gamma} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \phi^2} - \frac{\partial}{\partial \phi} \left[\psi \left(-\sin \phi \cos \phi \frac{\partial V_x}{\partial x} - \sin^2 \phi \frac{\partial V_x}{\partial y} + \cos^2 \phi \frac{\partial V_y}{\partial x} + \sin \phi \cos \phi \frac{\partial V_y}{\partial y} \right) \right] \quad (1)$$

ここで、 $x-y$ は平面座標系、 t は時間、 ϕ は繊維の配向角、 V は樹脂の速度、 $\dot{\gamma}$ は $x-y$ 平面内でのせん断速度である。 ψ は繊維の配向分布関数であり、材料特性解析の入力データになる。分布関数の一種であるため、配向角 ϕ から $\phi + 4\phi$ までの積分がその領域に存在する繊維の確率を表し、全方向に渡る積分は 1 である。また、 C_1 は繊維間の相互作用を表す係数であり、実験的に決められる。今回は、 $C_1 = 0.1^{(5)}$ を用いた。

2.2 材料特性解析の理論

任意の繊維配向分布を持った成形品の弾性率および線膨張率を計算するため、古典的な積層理論⁶⁾を用いた。積層理論は一方向に配向した補強繊維をもつマト（単層板）を複数板重ね合わせた際の機械的な特性を予測するために発展した理論である。

射出成形品の場合、単層板に相当するものがないため、積層理論を適用するに当たり、次のように考えた (Fig. 1, 2 参照)。

- ① 成形品を 10 層に分割し、樹脂充填解析により各層の樹脂速

Fig. 1 Application of the classical laminated plate theory to molded parts.

Fig. 2 Flow chart for mechanical properties calculation.

度を計算する。

- ② 各層の樹脂速度を繊維配向解析に入力し、各層の繊維の配向分布関数を計算する。
- ③ 各層を一軸配向板（板厚がゼロで、全ての繊維が一方に配向した板）が複数枚積層した仮想積層板と考える。
- ④ その際、仮想積層板全体に対する任意角の一軸配向板の枚数は、配向分布関数から得られる確率に従うものとする。
- ⑤ さらに、成形品は上記の仮想積層板が10枚積層した積層板と考える。
- ⑥ 積層理論は、一軸配向板の特性にもとづく仮想積層板の特性計算と、仮想積層板の特性にもとづく積層板（成形品）の特性を計算する際に適用する。
- ⑦ 一軸配向板の特性は、繊維と樹脂の機械的な特性値より修正 Halpin-Tsai 式^{7),8)}、Schapery 式⁹⁾および複合則⁷⁾を用いて計算する。

以下、積層理論、修正 Halpin-Tsai 式、Schapery 式および複合則について説明する。

積層理論によれば、積層板の機械的な特性は次式により関係付けられる。

$$\begin{bmatrix} N_i \\ M_i \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{ij} & B_{ij} \\ B_{ij} & D_{ij} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \epsilon_j \\ \kappa_j \end{bmatrix} - \Delta T \begin{bmatrix} \tilde{A}_i \\ \tilde{B}_i \end{bmatrix} \quad (2)$$

$$(A_{ij}, B_{ij}, D_{ij}, \tilde{A}_i, \tilde{B}_i) = \int_{-h/2}^{h/2} Q_{ij}(1, Z, Z^2, \alpha_j, Z\alpha_j) dZ \quad (3)$$

ここで、 N_i , M_i は積層板に生じる力の面内成分と曲げ成分であり、 ϵ_j , κ_j は積層板の面内ひずみと厚さ方向中央面の曲率、 ΔT は温度差である。また、 h は積層板の板厚であり、 Q_{ij} , α_j は単層板の剛性マトリックスと線膨張率のベクトルである。

さて、積層板上の任意の座標系を全体座標系とし、単層板上の繊維の配向方向に座標軸をとった座標系を繊維座標系とした場合、全体座標系の Q_{ij} , α_j は繊維座標系の剛性マトリックス Q'_{ij} , 線膨張率のベクトル α'_j より座標変換し求めることができる (式(4), (5))。

$$Q_{ij} = T_\sigma \cdot Q'_{ij} \cdot T_\sigma^{-1} \quad (4)$$

$$\alpha_j = T_\epsilon \cdot \alpha'_j \quad (5)$$

ここで、 T_σ , T_ϵ , T_ϵ^{-1} は座標変換マトリックスである。また、 Q'_{ij} , α'_j は単層板の機械的な特性値と次の関係にある。

$$Q'_{ij} = \begin{bmatrix} aE_L & a\nu_{LT}E_T & 0 \\ aE_T & 0 & 0 \\ \text{Sym.} & G_{LT} & 0 \end{bmatrix} \quad (6)$$

$$a = 1 / (1 - \nu_{LT}^2 E_T / E_L) \quad (7)$$

$$\alpha'_j = \begin{bmatrix} \alpha_L \\ \alpha_T \\ 0 \end{bmatrix} \quad (8)$$

ここで、 E は弾性率、 G は剛性率、 α は線膨張率、および ν はポアソン比である。添え字 L は繊維の配向方向、 T はその直交方向を表す。以上より積層理論を適用すれば、単層板の機械的な特性から積層板の機械的な特性を計算することができる。

さて、単層板の機械的な特性は繊維と樹脂の機械的な特性から修正 Halpin-Tsai 式、Schapery 式および複合則を用いて計算し

た。弾性率 E_L , E_T および剛性率 G_{LT} の計算には、修正 Halpin-Tsai 式 (式(9), (10), (11)) を用いた。

$$M/M_m = \frac{1 + ABF_f}{1 - BUF_f} \quad (9)$$

$$B = \frac{M_f/M_m - 1}{M_f/M_m - A} \quad (10)$$

$$U = 1 + F_f(1 - F_c)/F_c^2 \quad (11)$$

ただし、 $M = E_L$ の場合、 $M_m = E_m$, $M_f = E_f$, $A = 2L/D$

$M = E_T$ の場合、 $M_m = E_m$, $M_f = E_f$, $A = 0.5$

$M = G_{LT}$ の場合、 $M_m = G_m$, $M_f = G_f$, $A = 1.0$

ここで、添え字 m は樹脂、 f は繊維を表す、また、 F は繊維の体積分率、 L, D は繊維の長さおよび直径である。 F_c は繊維の最大充填分率であり、今回は 0.85 とした。線膨張率 α の計算には Schapery 式 (式(12), (13)) を、ポアソン比の計算には複合則 (式(14)) を使用した。

$$\alpha_L = \frac{\alpha_m E_m F_m + \alpha_f E_f F_f}{E_m F_m + E_f F_f} \quad (12)$$

$$\alpha_T = (1 + \nu_m) \alpha_m F_m + (1 + \nu_f) \alpha_f F_f - \alpha_L \nu_{LT} \quad (13)$$

$$\nu_{LT} = \nu_m F_m + \nu_f F_f \quad (14)$$

3. 方 法

3.1 対象成形品

解析および検証実験の対象とした成形品を Fig. 3 に示す。100 × 100 × 3 mm の平板であり、一点サイドゲートにより射出成形した。成形条件は、射出圧力 400 kg/cm²、樹脂温度（ページ温度）289°C、金型温度 82°C、充填時間 3.2s である。樹脂は、ガラス繊維強化ナイロン 66 [東レ CM3001-G30 BLACK (ガラス繊維含有率 30 wt%)] である。また、樹脂を加熱焼去した後に樹脂に含まれていたガラス繊維の長さおよび直径を顕微鏡観察した結果、それぞれ平均で 0.172 mm, 0.012 mm であった。

Fig. 3 Schematic representation of the molded part used for the calculation and experiment.

3.2 計算方法

成形品を三角形のシェル要素でモデル化した (Fig. 4)。要素数は 200、節点数は 121 である。樹脂速度は、非ニュートン粘性流体の非等温 Hele-Shaw 流れを仮定した樹脂充填解析プログラム¹⁰⁾により計算した。繊維の配向分布関数は、式(1)を差分法により離散化した繊維配向解析プログラムに樹脂速度を入力し計算した。初期条件はゲート部で流れ方向への完全配向を仮定した。積層理論に基づいた材料特性解析プログラムに、繊維の配向分布関数と樹脂および繊維の機械的な特性値を入力し、成形品の弾性率と線膨張率を計算した。ここで、計算に用いた樹脂および繊維の

Fig. 4 Mesh model of the molded part with triangular elements.

Table I. Mechanical properties of polymer and glass fiber.

	NYLON 66 (100°C)	GLASS FIBER (50~100°C)
$E^1)$ (kg/cm ²)	0.99×10^4	7.0×10^5
$G^2)$ (kg/cm ²)	0.36×10^4	2.9×10^5
$\nu^3)$	0.4	0.22
$\alpha^4)$ (1/°C)	0.83×10^{-4}	5.0×10^{-6}

- 1) Elastic modulus
- 2) Shear modulus
- 3) Poisson ratio
- 4) Thermal expansion coefficient

機械的な特性値を Table I に示す。ナイロン66の弾性率と線膨張率は実測値であり、その他は文献値^{(11),(12)}を用いた。

3・3 実験方法

成形品の弾性率と線膨張率を測定するため、成形品内の15箇所よりゲート方向と、その直交方向の2方向に、計30本の試験片を切り出した (Fig. 5)。試験片の形状は 3×3×17mm の四角柱である。切り出しにはダイヤモンドカッターを用い、切り出した後

Fig. 5 Specimens used in measuring the thermal expansion coefficient and elastic modulus.

に試験片の切り出し面をサンドペーパーにより研磨仕上げした。

線膨張率の測定は、熱応力測定装置 (島津製作所製, TSA-30) を使用した。試験片の熱ひずみ (変位) を測定し、熱ひずみ-温度曲線の傾きとして定義した線膨張率を求めた。測定温度は室温から150°C, 昇温速度は 1°C/min である。また、成形の際の残留ひずみを除去するため、同一試験片について2回の測定を行い、2回目の測定値を採用した。

弾性率の測定は、粘弾性スペクトロメータ (岩本製作所製, VES-F) を使用した。測定温度は室温から150°C, 昇温速度は 2°C/min である。また、測定周波数は 10Hz, 印加ひずみは 0.05% である。なお、試験片は線膨張率の測定が終了したものをを用いた。

4. 結果および考察

計算を実施した順序に従い、結果を示すこととする。まず、樹脂充填解析から計算した充填完了時の樹脂の速度分布を Fig. 6 に示す。板厚方向を10層に分割し、各層の速度分布を計算した。計算結果は板厚中央面に対して対称であったため、半分の5層の結果を示した。表面に近い層が第1層であり、中心層が第5層である。速度分布の表示は、各要素に対してベクトル (長さが速度の大きさを、向きが流れの方向を示す) により行った。これより、充填完了時の樹脂は中心に近い第3, 4, 5層を主に流れ、表面に近い第1, 2層の速度はほぼゼロであることがわかる。これは、表面に近い層の樹脂は既に固化しているためと考えられる。

Fig. 6 Velocity vectors computed on 5 layers divided for thickness of the molded part.

次に、樹脂の速度分布をもとに繊維配向解析により繊維の配向分布関数を計算した。その結果を Fig. 7 に示す。速度分布と同様に各層の各要素に対して計算結果を表示した。一要素の配向分布関数は、計算上の配向角が36の離散的な角度（0～180°を5°おきに分割している）であるため、36本の線分により各角度の値として表示している。関数値の大きさは線分の長さにより表した。したがって、この表示方法では、繊維配向の確率は線分の長い方向に高いこととなる。さて、計算された繊維の配向状態は、表面に近い第1層においてランダムな配向を示した。それに対し、第2～5層では配向に異方性が見られた。すなわち第2、3層では樹脂流れに沿った方向へ繊維は配向し、第4、5層では樹脂流れに対して垂直な方向へ配向する傾向が見られた。しかし、成形品の端部付近はいずれの層でも、樹脂の流れ方向に配向した。

続いて、繊維の配向分布関数および樹脂と繊維の機械的な特性値を材料特性解析に入力し、成形品の機械的な特性を表す剛性マトリックスと線膨張率のベクトルを計算した。そして、実験値との比較を行うため、それらの値より弾性率と線膨張率を求めた。なお、計算は試験片の重心に対応する節点上のゲート方向と、それに垂直な方向の2方向について行った。弾性率の結果を Fig. 8 に、線膨張率の結果を Fig. 9 に示す。いずれも、線分の長さによって計算値の大きさを示している。その結果、弾性率と線膨張率の両者ともに異方性が見られた。特に成形品の端部付近では顕

Fig. 7 Orientation distribution functions computed from velocities on 5 layers divided for thickness of the molded part.

Fig. 8 Distribution of calculated elastic moduli at 100°C.

Fig. 9 Distribution of calculated thermal expansion coefficients at 100°C.

著であり、弾性率は端に沿った方向に大きく、線膨張率はそれに垂直な方向に大きくなる傾向が見られた。これらの結果を繊維の配向状態 (Fig. 7) と比較してみると、概略的に繊維の配向方向に対して弾性率は大きくなり、線膨張率は小さくなると言える。

計算結果の検証を行うため、測定した成形品の弾性率と線膨張率を Fig. 10, 11 に示す。Fig. 10 が弾性率、Fig. 11 が線膨張率の結果である。いずれの場合も、計算結果 (Fig. 8, 9) と同様の表示方法で示した。実験結果も計算結果と同様に、弾性率は端に沿った方向が大きくなり、線膨張率はそれに垂直な方向が大きくなった。ただし、実験結果の異方性は、計算結果のものより大きくなった。

そこで、それぞれの値を定量的に比較するため、計算値と実験値の相関を調べた。弾性率に関する相関を Fig. 12 に、線膨張率に関する相関を Fig. 13 に示す。いずれも、縦軸が計算値、横軸が実験値を示す。Fig. 13 より線膨張率については、計算値と実験値とは良い一致が見られ、計算値が実験値を良く予測していることがわかる。弾性率については、高弾性率側で計算値と実験値とはあまり一致せず、計算値が実験値よりも小さくなっている (Fig. 12)。しかし、低弾性率側では両者はほぼ近い値となり、

Fig. 10 Distribution of elastic moduli measured at 100°C.

Fig. 11 Distribution of thermal expansion coefficients measured at 100°C.

Fig. 12 Comparison of calculated results with experimental results for the elastic modulus.

Fig. 13 Comparison of calculated results with experimental results for the thermal expansion coefficient.

計算結果の妥当性が見られる。

5. ま と め

ガラス繊維強化樹脂の射出成形品における機械的な特性を予測するため、繊維配向解析より計算した繊維の配向状態（配向分布関数）に古典的な積層理論を適用した。これにより、繊維の配向状態および樹脂と繊維の機械的特性から成形品の機械的特性を計算することが可能になった。本手法を用いて、ガラス繊維強化ナイロン66の平板状成形品の機械的特性を計算した。弾性率と線膨張率について計算値と実験値とを比較した結果、両者はほぼ一致した。

文 献

- 1) Matsuoka T, Takabatake J, Koiwai A, Inoue Y, Yamamoto S, Takahashi H, *Proc. of the 48th ANTEC, SPE*, 369 (1990).
- 2) 松岡孝明, 高島淳一, 井上良徳, 山本 智, 高橋秀郎, 第1回高分子加工技術討論会予稿集, 13 (1990).
- 3) Dinh S M, "On the Rheology of Concentrated Fiber Suspensions", Sc. D. Thesis, Department of Chemical Engineering, MIT (1981).
- 4) Folgar F, Tucker III C L, *J Rein. Plast. Compos.*, 3, 98 (1984).
- 5) Matsuoka T, Takabatake J, Inoue Y, Takahashi H, *Polym. Eng. Sci.*, 30, 957 (1990).
- 6) 福田 博, 石川隆司, "複合材料の CAE とプログラム & 応用例", (1986), 応用技術出版, p 48.
- 7) Nielsen L E, "Mechanical Properties of Polymers and Composites", (1975), Marcel Dekker Inc, NY, Chap 8; 小野木重治訳, "高分子と複合材料の力学的性質", (1976), 化学同人, p 278.

-
- 8) Lewis T B, Nielson L E, *J Appl. Polym. Sci.*, **14**, 1449 (1970).
 - 9) Schapery R A, *J Comp. Mat.*, **2**, 380 (1968).
 - 10) 松岡孝明, 高島淳一, 井上良徳, 高橋秀郎, 高分子学会予稿集, **38**, 4076 (1989).
 - 11) 飯田修一, 大野和郎, 神前 熙, 熊谷寛夫, 沢田正三, „物理定数表” (1969), 朝倉書店, p 77.
 - 12) 久保輝一郎, 祖父江寛, “新しい工業材料の科学・複合材料 I” (1970), 金原出版, p 124.