論文

A Study on the Flow of Molten Polymers In a Mold
- An Investigation on Mold Printability -Yoshiaki KANO^{*1}, Takafumi NISHIMURA^{*1}, Sadamoto ITOH^{*1}, Hiromoto USUI^{*2},
and Takashi SAEKI^{*3}^{*1} Corporate Research & Development Division,
Ube Industries, Ltd., 1980 Okinoyama Kogushi, Ube-city, 755, Japan^{*2} Department of Chemical Science and Engineering,
Kobe University, 1-1 Rokkodai, Nada, Kobe-city, 657, Japan^{*3} Department of Applied Chemistry and Chemical Engineering,
Yamaguchi University, 2557 Tokiwadai, Ube-city, 755, Japan

Filling up flows of several molten polymers in a rectangular cavity grooved on a mold surface were experimentally investigated by means of a flow visualization technique. The conditions for the higher mold printability were obtained as a function of polymer melt temperature, mold wall temperature, air blow pressure and air blow velocity.

Key Words: Printability/Molten polymer/Contact surface/Visual test

高分子溶融体の金型内微小流動
- 金型転写性の研究 -加納好昭^{*1}・西村隆文^{*1}・伊藤禎基^{*1}・薄井洋基^{*2}・佐伯 隆^{*3}

(原稿受理: 1997年12月10日)

1. 緒 言

高分子溶融体の金属表面の流れのひとつの現象である金型転写時の金型内微小流動については、成形品の良し悪しに重大な影響を及ぼすにもかかわらず、ほとんど研究がなされておらず、その現象については未解明なところが多い。したがって、従来より、例えばブロー成形における金型転写性向上については、経験的にブロー圧力を上げたり金型温度を高く設定するということが一般に行われているが、これは保圧と型温を上げるという射出成形での金型転写性向上の処方と基本的に同一であり「樹脂が冷やされて固化するまでの間に転写させる」という現場での法則に則っている。また、数少ない研究の中で、佐野ら¹⁾は、エンジニアリングプラスチックのブロー成形品の表面状態の品質向上に関して、過去の経験に基づいて特性要因を調べ、パリ

ソンの状態、成形条件、金型の状態の三つの大きな要素に分類し、各因子の寄与の程度を知るために、各条件を変えてサンプル成形を行い、その成形品の表面状態について評価している。その結果、成形時の金型キャビティ温度はより高いほうが、成形品の表面状態の品質向上により寄与しているとしている。また、Furuyaら²⁾は、さらに一步踏み込んで、ブロー成形において金型転写が悪い原因とその原因解明結果に基づいた方策について検討を行っている。すなわち、ブロー成形では、エアトラップしやすいというプロセス上の差異が転写性に決定的な影響を及ぼしていると考え、樹脂流動と脱気タイミングを制御する金型加熱冷却プロセス(ヒート/クールプロセス)を考案し、ブロー成形でも射出成形と同等の転写性を実現できるとしている。しかしながら、これらの研究では、理論的な把握、つまり溶融樹脂の金型内での微小流動についての正確な把握、転写メカニズムの把握ができておらず、それに基づいた条件の適正化が図れていなかった。

そこで本研究では、ブロー成形、圧空成形における金型転写のモデルとして、小さい矩形溝部を有する金型を用いて可視化実験を行い、

^{*1} 宇部興産株式会社研究開発本部 〒755 山口県宇部市大字小串字沖の山1980^{*2} 神戸大学工学部応用化学学科 〒657 兵庫県神戸市灘区六甲台町1-1^{*3} 山口大学工学部応用化学工学科 〒755 山口県宇部市常盤台2557

溶融樹脂の金型内微小流動を観察した。尚、本研究では、可視化実験により、溶融樹脂の金型内微小流動を時々刻々と観察するために、金型転写のモデルすなわち矩形溝部の仕様（断面形状、大きさ、アスペクト比等）を綿密に検討した。また、実験に用いる樹脂と固体界面（金型）の温度制御や金型転写の評価の方法については本研究において工夫した。次に、この結果から、金型温度、樹脂温度、吹き込みエア圧力、吹き込みエア速度等の因子が金型転写性に及ぼす影響を明らかにし、その原因について考察を行うとともに、金型高転写の条件を求めた。

2. 実験

2-1 可視化実験装置及び実験方法

Fig. 1, Fig. 2に可視化実験装置の概要と観察点の拡大図を示す。

金型の転写面には、矩形断面の溝を設け、溝の端面に観察用窓を設置し、溝部に溶融樹脂が入り込む状況が見られるようにした。また、金型の溝部の近くには、鏡面状の光沢部を設け、実験後に成形品表面の光沢度を測定することにより、光沢面における金型転写性が評価できるようにした。実験は、事前にTダイ付きの押出機で樹脂シートを成形し、実験時にホットプレスで加熱後、溶融した樹脂シートを当該の金型にセットして行った。金型を型締め後、エアを吹き込み、ブローアップして樹脂シートを金型転写面に接触させた。矩形断面の溝部に入り込む樹脂シートは下方（金型溝部の底面の投光用ガラス窓）からHe-Neレーザー光線を当て、その垂直方向の観察用ガラス窓側からCCDカメラで撮影した。本実験は、樹脂種類及び金型温度、樹脂温度、吹き込みエア圧力、吹き込みエア流速等の諸条件を変えて行った。

Fig. 1 Schematic drawing of visualization system

Fig. 2 Closed-up drawing of the flow visualization

2-2 実験条件

金型の材質は炭素鋼で、金型の評価面における矩形溝部の断面寸法（幅×深さ）は0.9mm×1.05mm、光沢部の表面粗さ（最大高さ）は R_{max} 0.4 μ mである。

樹脂シートについては、厚さが2.2mmで、樹脂種類は次に示す3種類である。

①高密度ポリエチレン(HDPE) チッソ製 B812

②ポリプロピレン(PP) 宇部興産製 ZS633

③ポリプロピレン(PP) 宇部興産製 B301H

また、各樹脂における設定条件を Table I～IIIに示す。

Table I Experimental Conditions for HDPE(B812) test runs

Run number	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Polymer melt temperature (°C)	200	220	180	200	200	200	200	200	200	200	200	200
Air blow pressure (kgf/cm ²)	5	5	5	7.5	2.5	5	5	5	5	5	5	5
Air blow velocity (Blow-up time) (sec)	3	3	3	3	3	1	9	3	3	3	3	3
Mold wall temperature (°C)	60	60	60	60	60	60	60	80	90	100	105	110

Table II Experimental Conditions for PP(ZS633) test runs

Run number	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Polymer melt temperature (°C)	215	235	195	215	215	215	215	215	215	215	215	215
Air blow pressure (kgf/cm ²)	5	5	5	7.5	2.5	5	5	5	5	5	5	5
Air blow velocity (Blow-up time) (sec)	3	3	3	3	3	1	9	3	3	3	3	3
Mold wall temperature (°C)	60	60	60	60	60	60	60	80	90	100	105	110

Table III Experimental Conditions for PP(B301H) test runs

Run number	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Polymer melt temperature (°C)	215	235	195	215	215	215	215	215	215	215	215	215
Air blow pressure (kgf/cm ²)	5	5	5	7.5	2.5	5	5	5	5	5	5	5
Air blow velocity (Blow-up time) (sec)	3	3	3	3	3	1	9	3	3	3	3	3
Mold wall temperature (°C)	60	60	60	60	60	60	60	80	90	100	105	110

2-3 画像処理方法

画像取り込みボードを使ってパソコンのモニターに金型の溝部内で微小流動中の樹脂シートの各時間における静止画像を再生し、樹脂シートの下面の位置を計測した。サンプリングは矩形断面溝の幅全域にわたって約20点について行い、サンプリングしたデータはパソコンに読み込まれ、二次元(x, y)座標として出力される。

3. 実験結果及び考察

3-1 画像処理結果

画像処理した例をFig. 3に示す。尚、時間tはブローアップ開始よりの時間を示す。

3-2 矩形溝部での入り込み速度、最終到達値及び最終空面積の算定

溝幅方向中央部での樹脂シート下面位置の時間的変化から入り込み速度 v 、最終到達値 h_{max} を求めた。

Fig. 3 Filling up characteristics of a molten polymer in a rectangular cavity grooved on the mold surface

最終到達値については、Fig. 3 ③のように、入り込んだ樹脂シートが変位しなくなったときの樹脂シート下面の位置とした。尚、最終到達値は必ずしも金型の矩形溝部の下面（底面）に達せず、途中で止まることもある。更に、Fig. 3 ③のように、溝部断面の全面積 S_0 に対して、最終到達時における溝部断面のシートの充填面積 S_{max} を求め、これより無次元の未充填面積 $[(S_0 - S_{max}) / S_0 = 1 - A_{max}]$ を算定し最終空面積とした。

また、画像データの上からエア吹き込み開始時期を特定することができなかったため、エア吹き込みによりブローアップが開始するタイミングが起点となるように補正を行った。即ち、画像処理より得られた時間と入り込み量の関係の曲線が原点を通るように時間軸方向にシフトした。

Fig. 4 Definition of filling up velocity (HDPE, Run 6)

次に、Fig. 4 に示すように、この曲線の傾きから入り込み速度を求めた。この曲線の原点における傾きから求める方法もあるが、精度が良くないので、今回は、入り込み速度は、ステップ応答における一次遅れモデルから求めた。即ち、一次遅れモデルの時定数はステップ応答の値が最終値の63.2%になる時間であるため、曲線で $0.632 l_{max}$ に相当する点 (t_1, l_1) を原点と直線で結んでその傾きを入り込み速度 a' と定義した。

3.3 光沢部での光沢度の測定

市販の光沢度測定装置（ミノルタ製GM-268型）を用いて成形品の金型光沢部での光沢度の測定を行った。試料面に対し、規定の入射角で光束を入射し、正反対方向に反射する光束を受光器で測定する構造のもので、鏡面光沢度の基準は黒色ガラスの平滑面とし、この場合の値を100(%)として表した。今回は、60度鏡面光沢度 $G_s(60^\circ)$ を用いた。尚、PP(B301H)については、成形品に透光性があるため光沢度は正確に測定できなかった。

3.4 実験結果と考察

金型の矩形溝部では、算定した入り込み速度と最終到達値及び最終空面積から、金型の光沢部では、成形品より測定した光沢度から金型転写性を評価した。Fig. 5 にその結果を示す。

この結果、Fig. 5 ①より、最終到達値 l_{max} はテストNo. 3のように樹脂温度が低く、またテストNo. 5、7のように吹き込み速度、吹き込み圧力が小さいと著しく小さくなることわかる。一方、その他の条件ではほとんど l_{max} が最大値の1.05に到達しているため、この図からはそれ以上の傾向は確認できなかった。また、Fig. 5 ②より、入り込み速度 a' に影響を及ぼす因子は、大きい順に吹き込み速度、吹き込み圧力、金型温度であることがわかる。次に、Fig. 5 ③より、金型温度が 90°C 以上では3樹脂とも最終空面積 $(1 - A_{max})$ がほぼ0となる他はテスト毎の傾向がよく出ており、次の光沢度の図（Fig. 5 ④）とちょうど逆の傾向を示している。Fig. 5 ④よりHDPEとPP(ZS633)とも、光沢度はテストNo. 10~12のように金型温度を上げると一番よく向上し、次にテストNo. 4のように吹き込み圧力の上昇が効くことがわかる。HDPEでは、その他吹き込み速度、樹脂温度を上昇させると光沢度が向上することが確認できる。一方、PP(ZS633)では上記の条件以外ではほとんど光沢度の変化は認められなかった。

以上のことから、一般的に、金型温度が高いとそれに接する熔融樹脂の表面層の温度低下が少ないため、樹脂が流動しやすく、樹脂の入り込みが促進され、高転写が得られると考えられる。また、吹き込み圧力が高いと樹脂シートが機械的に押されて入り込みが大きくなり、転写性が向上すると考えられる。

次に、HDPEにおいて、算定した金型の矩形溝部での樹脂シートの入り込み速度、最終到達値及び最終空面積と、金型の光沢部での成形品の光沢度を比較し、相関性を調べた。Fig. 6 にその結果を示す。

Fig. 6 ①より、 l_{max} が大きくなると光沢度も上昇し相関性は認められるが、テスト数の大半が l_{max} の最大値の1.05に到達するため、それ以上の傾向は確認できなかった。Fig. 6 ②より、入り込み速度 a' が大きくなると光沢度が上昇するという相関性は認められるが、吹き込み速度の大きいテストについては、この相関性からは大きく外れている。この原因は吹き込み速度が速いとそれに比例して入り込み速度も速

くなるが、入り込み量（最終到達値）は大きくなるまでに至らず、高転写に結びつかないためと考えられる。それに対して、Fig. 6 ③の最終空面積と光沢度の関係は、3つのテストで空面積が0になっても光沢度が上昇しているためこの領域では傾向は掴めないが、全体的に例外（特異点）もなく、相関性が認められる。

Fig. 5 Evaluation value of mold printability for each resin

Fig. 6 Correlation of gloss by several parameter for mold printability (HDPE)

以上より、光沢度が50以上では最終空面積は0に到達（収束）するという限界はあるが、それ以外の領域では相関があり、最終空面積で転写性（光沢度）が推定できる。従って、転写性の指標である光沢度は最終空面積と相関があることより、金型の微細な溝部（金型転写面の表面粗度起因する微細な凹凸）によく充填されることにより高転写し光沢度が上昇することがわかる。

これらの結果、実際面の効果としては、例えば、現在、ブロー成形により多く生産されている自動車のスポイラーは、成形後の表面状態が悪いため、人の手によりサンディング（サンドペーパーで表面を磨く作業）を行っているが、今回の方法、例えば金型温度を所定の温度まで上げることにより、金型転写が良くなることで、サンディングという後工程がほとんど削減できるため、高級感のある成形品を一工程

で比較的安価に得ることができるという効果があった。また、一方、例えば新しい樹脂の開発において転写性を評価する場合、今回使用した方法で評価すれば実機マシンで実際に成形せずとも簡単に評価できるという大きな効果もある。

また、本研究では、ブロー成形で実際によく成形されている成形品の表面に加飾されている模様状のものの中で、今まで転写不良が起って問題となっている箇所形状、寸法に合わせて、転写の実験を行っている。しかしながら、今後の課題としては、前述したように、矩形溝部の断面寸法（溝幅）を更に小さくして最終到達値が途中で収束してしまわないような条件で入り込み挙動を探る必要があるという考えから、試行した結果、溝幅を0.9mmから0.5mm程度に替えて行うことが望ましい。

尚、流動解析ソフトPOLYFLOWを用いて金型の矩形断面溝内での微小流動の解析を検討中である。

4. 結 論

金型転写のモデルとして、小さい矩形溝部を有する金型を用いて可視化実験を行い、溶融樹脂の金型内微小流動を観察した結果、以下の所見が得られた。

- (1) 転写性の指標である光沢度は入り込み速度及び空面積と相関があり、特に空面積と相関性が高いことより、金型の微細な溝部

（金型転写面の表面粗度に起因する微細な凹凸）によく充填されることにより高転写し光沢度が上昇すると考えられる。

- (2) 金型温度、樹脂温度、吹き込みエア圧力、吹き込みエア流速の因子が金型転写性に及ぼす影響を調べたところ、HDPEとPP (ZS633)では、光沢度は金型温度を上げると一番よく向上し、次に吹き込み圧力の上昇が効くことがわかった。また、HDPEでは、その他吹き込み速度、樹脂温度を上昇させると光沢度が向上することが確認された。

謝 辞

本研究を進めるに当たり、協同で研究いただいた山口大学工学部応用化学工学科のMendra Tri S. Ritonga 氏、川崎誠司氏、並びに御協力いただいた宇部興産株式会社研究開発本部の柴田貴章氏に謝意を表します。

参考文献

- 1) 佐野茂彰, プラスチックスエージ, **37**, 202(1991).
- 2) Furuya H, Takatori H, Ferguson L, SPE ANTEC Tech. Papers, **39**, 3070(1993).
- 3) 古屋博章, 加納好昭, 成形加工, **8**, 304(1996).