ハイブリッド射出成形における成形条件がインサート材と射出材の界面接着性に及ぼす影響に関する研究

富岡 正雄^{*1}・石川 健^{*1}・井上 玲^{*2}・田中 達也^{*3}

Influence of Molding Conditions in Hybrid Injection Molding on Interfacial Adhesion between Inserted and Injection-molded Materials

Tomioka, Masao^{*1}/Ishikawa, Takeshi^{*1}/Inoue, Akira^{*2}/Tanaka, Tatsuya^{*3}

Hybridizations of materials or molding methods are effective tools as high-speed and low-cost molding technologies of CFRTTP, and a hybrid injection molding system is one of them. This study investigated the influence of molding conditions in the hybrid injection molding on the interfacial adhesion between inserted material and injection-molded material by using temperature and pressure sensors in the mold. It was found that “temperature rise of the injection-resin”, “increase in the injection rate” and “pre-heating of the insert-material” are effective for improving the interfacial adhesion. Regarding the improvement of the interfacial adhesion due to “temperature rise of the injection-resin” and “increase in the injection rate”, the rise in the interface temperature during adhesion had a dominant influence on the adhesion. On the other hand, the pressure did not contribute to the interfacial adhesion. Moreover, it was assumed that “pre-heating of the insert-material” improves the adhesion with anchor effect due to roughening of the insert-material surface by heating.

Key words : Hybrid injection molding, CFRTTP, interfacial adhesion

1. 緒 言

炭素繊維強化熱硬化性複合材料（CFRP）は比強度・比剛性に優れる材料であり，その使用量は産業用途分野を中心に拡大傾向にある．従来からCFRPのマトリックス樹脂としては不飽和ポリエステルやエポキシ樹脂などが用いられてきたが，マトリックス樹脂を熱可塑性樹脂とした熱可塑性炭素繊維複合材料（CFRTTP）はハイサイクル成形性，耐衝撃性，リサイクル性，補修性などの観点から，次世代の材料として近年盛んに研究がなされている^{1)~3)}．このCFRTTPにおいて，繊維長や繊維含有率は成形時の賦型

性および成形品の機械物性に大きく影響を与えるが，これらはトレードオフの関係にあるとされる⁴⁾．すなわち，射出成形などで用いられる繊維強化ペレットなどは，繊維長が短いため，成形品の形状自由度は高いが，その反面，機械特性の向上には限界があるとされている．一方でスタンパブルシートと呼ばれる比較的繊維長の長い不連続繊維を用いたプレス成形用材料は，高い機械物性を有するが，細かいリブやボス，深絞りなどといった複雑な形状への賦型は限界があるとされている．

しかし近年，上記課題を解決するCFRTTPの成形技術の1つとして，プレス成形と射出成形を組み合わせた“ハイブリッド射出成形”と呼ばれる成形技術が注目されている^{5)~7)}．この成形技術は，図1に示すように，あらかじめ加熱熔融させたプレス成形用基材を射出成形機の金型内に配置し，金型の型締めにより基材をプリフォームした後，これをインサート材として，リブやボスといった複雑形状部分を射出により成形するものである．つまりハイブリッド射出成形は，従来のインサート射出成形におけるインサート材のプリフォームと，射出成形を1つの成形機で，

Fig.1 Process drawing of hybrid injection molding

^{*1} 三菱ケミカル(株) 豊橋研究所
Mitsubishi Chemical Corporation. Toyohashi R&D Center
豊橋市牛川通 4-1-2 (〒440-8601)
1-2, Ushikawa-dohri 4-Chome, Toyohashi, Aichi, 440-8601, Japan

^{*2} 東洋機械金属(株) 開発部
Toyo Machinery & Metal Co., Ltd. Development Department
明石市二見町福里 523-1 (〒674-0091)
523-1, Fukusato, Futamicho, Akashi, Hyogo, 674-0091, Japan

^{*3} 同志社大学 理工学部
Doshisha University, Faculty of Engineering and Science
京田辺市多々良郡谷 1-3 (〒610-0321)
1-3, Tatara Miyakodani, Kyotanabe, Kyoto, 610-0321, Japan
tomioka.masao.mp@m-chemical.co.jp
2017.5.23 受理

かつ1サイクルで行うものもある。

単一材料からなるCFRTPの機械特性については、材料研究の観点からも多くの報告例がある^{4),8)}。しかしインサート部分と射出部分からなるハイブリッド射出成形品の機械特性は、これらの界面接着性の影響も大きく受けると考えられるが、この界面接着性に関する研究報告例は少ない。ハイブリッド射出成形品におけるインサート部分と射出部分の界面接着性は、射出による溶融樹脂の溶着のみにより接着している場合がほとんどであり、その接着性は材料特性と界面の物理的・化学的状態の両方の影響によって決まると考えられる。特に後者の物理的・化学的状態に関しては、プロセス条件が大きく影響を与えと考えられる。従来のインサート射出成形によるインサート材と射出樹脂の界面接着性に関する研究報告例はいくつか存在し、これらは射出成形における条件パラメーターを変更することで、各パラメーターが界面接着性にどのような影響を及ぼしているかを調べたものである。Carellaらはポリオレフィン系エラストマー樹脂(TPO樹脂)を用いてあらかじめ射出成形により作製されたものをインサート材として、インサート材と同じ種類の樹脂、すなわちTPO樹脂を射出成形した試験片の接着強度を、射出温度、金型温度、保圧といった射出成形条件の影響の観点から調査している⁹⁾。Aurrekoetxeaらは自己強化材と呼ばれるポリプロピレン(PP)繊維強化PP樹脂複合材をインサート材として、これにPP樹脂をオーバーモールドした際の試験片の接着強度を、同じく射出温度、金型温度、保圧といった射出成形条件の影響の観点から調査している¹⁰⁾。またCandalらは使用する樹脂にPPと加硫エラストマーを用いて、Aurrekoetxeaらと同様の手法で評価用試験片を準備し、その接着性を射出速度の影響も加えた射出成形条件の影響の観点から調査している¹¹⁾。加えて大石らは連続繊維のガラス繊維強化ポリアミド6樹脂をインサート材とし、短繊維のガラス繊維強化ポリアミド6樹脂を射出材とした時のハイブリッド射出成形におけるインサート材の加熱条件と射出樹脂の温度が界面接着性に及ぼす影響について調査している¹²⁾。しかしこれらの報告ではインサート材の強化繊維にはPP繊維やガラス繊維を用いているが、炭素繊維(CF)はこれらの強化繊維と比較して高い熱伝導性を有するため、CFRTPのハイブリッド射出成形では、界面接着性向上には、より成形条件が重要になると考える。

そこで本研究では、インサート材にCF強化PP樹脂を用いて、ハイブリッド射出成形における射出成形条件、およびインサート材の加熱条件が界面接着性に及ぼす影響について検討した。また加えて、成形条件を変更した際の界面温度や金型内の圧力を実測して、界面接着性への影響を直接的に考察した。

2. 実 験

2.1 ハイブリッド射出成形方法

ハイブリッド射出成形機として、図2に示す昇降式IRヒーターを付属した最大型締め力78kNの東洋機械金属(株)製の全電動型成形機ET-80 HR2を使用した。IRヒーターとしては、ヘレウス(株)製の短波長赤外線加熱ヒーターIR MA 550/220(最大エネルギー波長 $1.5\mu\text{m}$)を用いた。

Fig.2 Hybrid injection molding machine (Toyo machinery & metal, ET-80 HR 2)
(a) : IR heater and lower mold,
(b) : Injection molding unit

上下一対の金型の下金型キャビティー内にインサート材を配置した後、IRヒーターにて下金型キャビティー内のインサート材を加熱して樹脂を溶融させ、IRヒーターを取り除いて、型締めの後、金型内に溶融樹脂を供給してハイブリッド射出成形品を得た。なおIRヒーターによるインサート材の加熱終了から型締めまでの時間を20秒である。25mm幅×200mm長×2.0mm厚の金型キャビティーに対し、半分の厚み、すなわち25mm幅×200mm長×1.0mm厚の三菱ケミカル(株)製CF/PPスタンパブルシートTRR10P35(不連続繊維、マット状ランダム繊維配向、繊維長25mm、繊維体積含有率35%)をインサート材として金型内に配置させ、残りの1.0mm厚分のキャビティーに日本ポリプロ(株)製ノバテックPP MA04Aを射出して、25mm幅×200mm長×2.0mm厚のハイブリッド射出成形品を得た。産業的に行われているハイブリッド射出成形では、型締めによりインサート材を賦型するが、本研究のハイブリッド射出成形では、インサート部と射出部の界面の位置を明確する目的で、インサート材はキャビティー内部に配置され、型締めによるプレス圧が作用しない条件で行った。この時の成形条件を表1に示す。標準の射出条件(成形条件“STD”)を、シリンダー温度:240℃、金型温度:70℃、保圧:30MPa、射出速度:100mm/secとして、ここではIRヒーターによるインサート材の加熱は行わず、シリンダー温度:220~280℃、金型温度:40~90℃、保圧:10~50MPa、射出速度:50~200mm/secの範囲で各パラメーターを変更させて、その各条件パラメーターの影響を調査した。なお保圧保持時間はいずれも5秒とした。またインサート材の加熱条件として、加

Table 1 Processing conditions and codes used in the hybrid injection molding

Conditions Code	Pre-heating temperature, T_h (℃)	Cylinder temperature, T_c (℃)	Mold temperature, T_m (℃)	Holding pressure, P_h (MPa)	Injection rate, R_i (mm/sec)
L-Ri	no heat	240	70	30	50
L-Ph	no heat	240	70	10	100
L-Tm	no heat	240	40	30	100
L-Tc	no heat	220	70	30	100
STD	no heat	240	70	30	100
H-Ri	no heat	240	70	30	200
H-Ph	no heat	240	70	50	100
H-Tm	no heat	240	90	30	100
H-Tc	no heat	260	70	30	100
H 2-Tc	no heat	280	70	30	100
150 IR	150	240	70	30	100
230 IR	230	240	70	30	100
270 IR	270	240	70	30	100

熱なし、150℃加熱、230℃加熱、270℃加熱の4条件でも評価用ハイブリッド射出成形品を作製した。図3にインサート材のIRヒーター加熱時の温度プロファイルを示す。ここではインサート材を下金型のキャビティ内に配置した状態で、インサート材の加熱面に熱電対を取り付け、IRヒーターにて30秒、60秒、90秒間加熱した。この時のインサート材表面の最大温度はそれぞれで150℃、230℃、270℃あった。IRヒーターでの加熱終了後におけるインサート材の放冷時の温度履歴も記録しているが、熱電対の噛み込みを防ぐため、型締めは行わずに温度計測を行った。

2.2 温度・圧力計測方法

本研究ではインサート材と射出樹脂の界面温度および金型内圧力を測定するために、図4に示す構造の金型を使用した。温度・圧力センサーとして、双葉電子工業(株)製 MOLD MARSHALLING SYSTEM EPD-S 001 を使用し、型締め完了を測定開始トリガーとして、50 msec 間隔で金型内の温度および圧力を測定した。なおこの温度測定センサーは測定温度範囲 100~300℃ の赤外線放射温度計を使用している。本研究では射出材料にポリオレフィン系樹脂である PP を使用しており、熔融した PP は赤外線を透過するため¹³⁾、赤外線放射温度計で温度を計測している位置は黒色であるインサート材表面温度、すなわちインサート材と射出樹脂の界面温度を測定している(図5)。接触式温度計による測定温度との対比から、赤外線放射温度計によるインサート材表面温度測定時の放射率は 0.91 とした。

2.3 界面接着性評価

作製したハイブリッド射出成形品より、図6に示す位置から湿式のダイヤモンドカッターを用いて 6.3 mm 幅×25

Fig. 3 Temperature profiles during IR pre-heating of inserted material

Fig. 4 Schematic view of the mold with sensing devices

Fig. 5 Schematic of the infrared temperature measurement

Fig. 6 Dimensions of hybrid injection molded sample and specimen

mm 長×2 mm 厚の試験片を切り出した。この試験片切り出し位置は、金型内に配置したセンサーにてハイブリッド射出成形品の界面温度および金型内圧力を計測している位置に相当している。同条件にて成形した2つのハイブリッド射出成形品から試験片は2つずつ切り出し、各条件における試験片数は4とした。切り出した試験片は ASTM D 2344 に従い、インストロン製の万能試験機 5565 を用いてショートビームの3点曲げ試験を行った。500 N のロードセルを用い、試験速度 1.27 mm/min、支点間距離 8 mm とした。この時、試験片のインサート材側が圧子側に、射出材側が支点側になるようにして試験を行った。試験時の荷重-変位曲線において、荷重が低下した点を破断荷重 P_m として、下記式(1)よりせん断強度 τ を算出し、これを界面せん断強度(接着強度)とした。

$$\tau = \frac{3P_m \left(1 - \frac{t}{h}\right) t}{bh^2} \quad (1)$$

τ : せん断強度 (MPa)

P_m : 破断荷重 (N)

b : 試験片の幅 (mm)

h : 試験片の厚み (mm)

t : インサート材の厚み (mm)

2.4 熱重量分析 (TGA) の測定

射出成形時のシリンダー温度上昇による樹脂の熱分解の影響調べるため、射出前のペレット状態の PP 樹脂の熱重量減少率を島津製作所(株)製、示差熱・熱重量同時測定装置 DTG-50 H を用いて測定した。測定条件として、空気雰囲気下、昇温速度 10℃/分で測定した。

2.5 断面顕微鏡観察

インサート材加熱時におけるインサート材と射出材の界面状態を考察するため、断面観察を行った。作製したハイ

ブリッド射出成形品をメタクリレート樹脂（株マルトー製、テクノビット 4004）に包埋し、鏡面研磨後、キーエンス製のデジタルマイクロスコブ VHX-5000 を用いて倍率 150 倍でインサート材と射出樹脂の界面を観察した。

3. 結果と考察

3.1 ショートビーム 3 点曲げ試験による界面せん断強度の評価

図 7 に成形条件“STD”にて作製したハイブリッド射出成形品より切り出した試験片のショートビーム 3 点曲げ試験で得られた荷重 - 変位曲線図を示す。変位 0.35 mm で曲線の傾きの変曲点がみられた。これはハイブリッド射出成形品におけるインサート材と射出樹脂の線膨張係数の違いから生じた試験片の反りに起因するものである。CF を含有するインサート材は低線膨張特性を有するが、PP 単体からなる射出樹脂はインサート材と比較して成形後の収縮も大きい。ハイブリッド射出成形品は図 8 に示すように、インサート材側が凸になる向きに反りが生じたと考える。本研究のショートビーム 3 点曲げ試験ではインサート材側を圧子側として試験を行っているため、試験初期ではこの反りを矯正する方向に荷重を加えており、比較的低荷重で変形が生じる。試験片の反りが矯正された後は試験片本来の剛性が効いてくるため、この荷重 - 変位曲線図における傾きの変化を生じさせている。

この試験では 247 N で荷重が低下したため、その後試験を終了した。この荷重の低下はインサート材と射出樹脂の界面剥離によるものであった。図 9 に試験前後の試験片の写真を示す。この写真は射出樹脂側を上にして撮影したものであるが、目視でも界面で剥離が生じていることが分かる。いずれの成形条件にて作製した試験片においても、荷重の低下点では界面剥離が生じた。以上より、ショートビ-

Fig.7 Load-displacement curve

Fig.8 Warped hybrid injection moldings

ム 3 点曲げ試験によるせん断強度の測定で、界面接着性の評価が可能であることを確認した。

3.2 界面温度および金型内圧力測定結果

図 10 に成形条件“STD”にてハイブリッド射出成形品を作製した際の温度・圧力測定結果を示す。ここでは金型の型締めが計測開始のトリガーとなっており、型締めのおよそ 4.2 秒後に射出樹脂が金型内に注入されたことがわかる。また射出成形機のシリンダー温度は 240℃ に設定しているが、シリンダーから放流された樹脂の温度を熱電対にて測定したところ、247℃ であった。これは射出時にシリンダー内のせん断力により生じた摩擦によって樹脂が発熱（せん断発熱）したため、シリンダー温度よりも樹脂温度が高温になったものである。実際はシリンダーノズルから射出された樹脂は金型のゲート・スプール・ランナーを通過する際もせん断発熱が生じるため、キャビティーに注入される際の樹脂温度は更に高温になっていると考えられる。そして赤外線放射温度計にて計測されたインサート材表面温度の最大値は 227℃ であった。これは金型内に注入された熔融樹脂からの伝熱によりインサート材表面が加熱されたことによって温度が上昇したものである。本研究ではこの温度をインサート材と射出樹脂の界面温度とした。また金型内圧力に関して、金型内への樹脂の充填直後に射出圧により圧力が上昇し、その最大値は 27.7 MPa であった。その後樹脂の冷却収縮により金型内圧力が低下していくが、設定 30 MPa の保圧によって、およそ 25 MPa の圧力が金型内で保持されていることがわかる。保圧保持時間は 5 秒に設定していたが、実際は 3 秒程度しか圧力が保持されておらず、この原因はスプールおよびランナー部分の樹脂が冷却により固化したため、シリンダー内の樹脂からの圧力が伝わらなくなったためであり、これにより徐々に金型内圧力が低下していることがわかる。

3.3 シリンダー温度の影響

図 11 にはシリンダー温度を 220℃、240℃、260℃、280℃

Fig.9 Specimens (a) : Before the test, (b) : After the test

Fig.10 Temperature profile and pressure profile under “STD”

とした際（成形条件：L-Tc, STD, H-Tc, H2-Tc）の、金型内センサーにより計測したインサート材と射出樹脂の界面温度および金型内圧力を示す。この時のシリンダーノズルから射出される樹脂の熱電対による実測温度は、それぞれ 228℃, 247℃, 267℃, 285℃ であった。図 11 より、シリンダー温度の上昇に伴い界面の最大温度の上昇も確認され、最大温度はそれぞれ 216℃, 227℃, 240℃, 255℃ であった。金型内への樹脂充填直後の射出圧による金型内圧力の最大値には違いはみられなかったが、シリンダー温度が 260℃ および 280℃ の場合は、樹脂温度が高い分、スプールおよびランナー樹脂が固化するまでの冷却時間が長くなったため、保圧保持終了までの 5 秒間金型内の圧力も保持されていることがわかった。

これらの成形条件にて得られた試験片の界面せん断強度の評価結果を図 12 に示す。なおシリンダー温度 220℃ の場合、成形直後はインサート材と射出樹脂は接着していたが、ダイヤモンドカッターにて評価用試験片を切り出す際に界面が剥離したため、界面せん断強度の評価は行わなかった。ここではシリンダー温度の上昇に伴い、界面せん断強度の向上が確認された。この結果は Carella ら⁹⁾, Aurekoetxea ら¹⁰⁾, Candal ら¹¹⁾, 大石ら¹²⁾の研究報告結果とも一致する。

シリンダー温度の上昇により界面せん断強度の向上は確認されが、加熱による樹脂の熱分解の挙動を確認するため、PP 樹脂ペレットの熱重量減少率（TGA）を測定した。その熱重量減少率曲線を図 13 に示す。PP 樹脂は 250℃ 以上の高温では徐々に熱分解による重量減少が観測され、260℃ は 2.1%, 280℃ では 8.0% の重量減少が確認された。実際の射出成形での樹脂の加熱では、酸素の影響や加熱時間

も異なるものの、シリンダー温度 260℃ 以上では PP 樹脂の熱分解の懸念があるため、接着性の観点からは射出樹脂の温度上昇が効果的ではあるが、成形品の用途・用法に応じて温度を選択する必要があると考える。

3.4 保圧の影響

シリンダー温度の上昇により界面せん断強度の向上は確認されたが、シリンダー温度の上昇は界面温度および金型内圧力の双方に影響を及ぼしていた。そこで界面温度と金型内圧力が界面せん断強度に及ぼす影響を分離して考察する目的で、保圧の影響を確認した。図 14 に保圧を 10 MPa, 30 MPa, 50 MPa とした際（成形条件：L-Ph, STD, H-Ph）の温度・圧力測定プロファイルを示す。図 15 には保圧の影響による界面せん断強度測定結果を示す。保圧を変更することによる界面の最大温度への影響はなかったが、保圧 50 MPa の場合のみ、僅かながら冷却速度の低下が確認された。これは保圧によるシリンダー樹脂からの熱供給があったためと推察される。金型内圧力に関しては、保圧 10 MPa と 30 MPa の場合では、金型内の最大圧力に有意差は確認されなかった。これは保圧ではなく射出圧が金型内の最大圧力値への支配的要因となっているためである。しかし、保圧 10 MPa の場合は射出樹脂の充填後 1 秒程度で金型内圧力 5 MPa 程度まで急激な低下が確認され、保圧による圧力保持は 5 MPa 程度であることが分かった。一方保圧 50 MPa の場合は、射出から保圧切り替え後も金型内圧力の上昇が確認され、最終的に 42 MPa 程度まで金型内圧力は上昇した。この様に保圧の変更により、界面温度への影響は最小限にとどめながら大きく金型内圧力は変動させたが、界面せん断強度への明確な影響は確認されな

Fig. 11 Temperature and pressure profiles
—influence of cylinder temperature—

Fig. 12 Interfacial shear strength
—influence of cylinder temperature—

Fig. 13 Weight loss curve of PP pellet

Fig. 14 Temperature and pressure profiles
—influence of holding pressure—

Fig. 15 Interfacial shear strength
—influence of holding pressure—

Fig. 17 Interfacial shear strength
—influence of mold temperature—

かった。Carella らの調査結果⁹⁾では、保圧の上昇により接着強度の向上も確認されているが、本研究の実験では低保圧の条件でも、射出圧によって接着には十分な圧力がかかっていたためと考えられる。

3.5 金型温度の影響

金型温度を 40℃、70℃、90℃ とした際（成形条件：L-Tm, STD, H-Tm）の温度・圧力測定プロファイルを図 16 に、これら金型温度の影響による界面せん断強度測定結果を図 17 に示す。金型温度の上昇により界面温度の最大値はそれぞれ 226℃、227℃、227℃ とほとんど変化は見られなかったが、冷却速度はわずかながら低下することがわかる。また冷却速度の低下により、樹脂の冷却収縮速度も低下したために、金型内圧力においても保圧による圧力保持時間も長くなることがわかった。しかし界面せん断強度の差はほとんど確認されず、金型温度が界面せん断強度に及ぼす影響は小さいことが示唆された。

なお金型温度の上昇により界面せん断強度のバラつきが低下する傾向がみられた。成形時の射出樹脂の冷却収縮によりハイブリッド射出成形品の界面に応力が生じるが、この応力を緩和するために図 8 に示すように成形品には反りが生じる。射出直後から脱型までの冷却時には金型により成形品が拘束されているため、反ることによる応力緩和ができず、界面に残留応力が生じる。界面接着性は少なからず界面の残留応力による影響も受けると考えられるが、ここでは金型温度が高い状態で脱型することにより、ハイブリッド射出成形品の界面に生じる残留応力が低減したことで、接着性のバラつきが低下したためと考える。しかしながら金型温度が高いと、成形の反りも大きくなる傾向があるため注意が必要である。

Fig. 16 Temperature and pressure profiles
—influence of mold temperature—

3.6 射出速度の影響

射出速度を 50 mm/sec、100 mm/sec、200 mm/sec とした際（成形条件：L-Ri, STD, H-Ri）の温度・圧力プロファイルを図 18 に示す。ここでは型締めを 0 秒として計測を開始としており、射出速度が速いほど金型内に樹脂が注入される時間も早いため、温度・圧力のプロファイルの立ち上がりも早い。また射出速度が速いほど界面の最高温度および射出圧による金型内の最高圧力は高いことがわかった。圧力に関しては高速で金型内に樹脂が注入されることは、すなわち高圧で樹脂が注入されることと同じであり、射出速度の増加に伴い射出圧も増加したため、金型内圧力の最大値も増加したと考える。また射出速度が高速であるほど、射出樹脂にかかるせん断力も増加するため、せん断発熱により金型内に流入する樹脂の温度が上がり、その結果、界面温度も上昇したと推察される。また図 19 には射出速度による界面せん断強度への影響を示す。射出速度の上昇に伴い、界面せん断強度も向上することが分かった。上述の通り、金型内圧力よりもインサート材と射出材の界面温度の方が界面せん断強度に影響を及ぼすことから、ここでは高速で射出することによりせん断発熱で樹脂温度が上昇し、それに伴い界面温度も上昇したことが界面せん断強度の向上に繋がったと考える。

3.7 インサート材加熱の影響

続いてインサート材の加熱条件を変更した際（成形条件：STD, 150 IR, 230 IR, 270 IR）の温度・圧力プロファイルを図 20 に、インサート材加熱による界面せん断強度の影響を図 21 に示す。また IR ヒーターによる加熱前後のインサート材の写真を図 22 に示すが、強化繊維の CF が不連続でマット状であるインサート材を加熱すると、樹

Fig. 18 Temperature and pressure profiles
—influence of injection rate—

Fig. 19 Interfacial shear strength
—influence of injection rate—

脂が溶融し、CFの残留応力によってスプリングバックと呼ばれる基材の膨張が生じた。そのためインサート材と射出樹脂の界面位置も加熱前のインサート材厚みからは特定できないと考え、ショートビーム3点曲げ試験後の試験片より剥離したインサート材部分を取り出し、その厚みを測定することで、界面位置を特定し、界面せん断強度を2.3項に記載の式(1)より算出した。なお成形前およびショートビーム3点曲げ試験後のインサート材の厚みを表2に記載する。インサート材の加熱時間が長いほどスプリングバック量も大きくなる傾向であったが、この膨張を押し返す向きに射出樹脂は金型内に注入されるために、結果的にインサート材の膨張量も少なく、また図20における射出圧による樹脂充填直後の金型内圧力も低下したと考える。

一方で界面温度に関しては、インサート材加熱の影響はほとんど確認されなかった。本研究で用いた金型内の赤外線放射温度計の測定範囲は100～300℃であるが、インサート材を加熱しても、図20から読み取れる通り、型締め時(温度計測開始時)にはインサート材の表面温度は100℃未満になっている。またIRヒーターによる加熱終了から型締めまでは20秒要しており、図3の温度プロファイルからも加熱終了の20秒後の型締め時には、いずれも100℃以下までインサート材が冷却されていることが示唆される。すなわち射出樹脂を金型内に注入する時点では、インサート材は100℃未満まで冷却されており、界面温度には影響を及ぼさなかったためと考える。また産業的な観点からはハイブリッド射出成形においては型締めによりインサート材は賦型されるが、この時、CFの高い熱伝導のために、より冷却が加速すると考えられる。インサート材の熱伝導率が高い場合、インサート加熱により界面温度を上昇させ

Fig. 20 Temperature and pressure profiles
—influence of insert-material heating—

Fig. 21 Interfacial shear strength
—influence of insert-material heating—

Fig. 22 Inserted materials
(a) : After the IR pre-heating (230℃),
(b) : Before the IR pre-heating

Table 2 Thickness of inserted material

	Thickness of inserted material (mm)	
	Before the molding	After the test
150 IR	0.92	0.93
230 IR	0.93	0.96
270 IR	0.92	0.98

るためには、加熱終了から型締め・射出までの時間を短縮するなどの対策が必要であることがわかった。

しかしながらインサート材を加熱することにより界面せん断強度の向上が確認された。いずれの場合も破壊の形態は界面剥離であったが、加熱温度が高いほど、剥離の面積が小さい傾向にあった。図23にIRヒーターでインサート材を加熱しない場合(成形条件:STD)および加熱した場合(成形条件:150IR, 230IR, 270IR)のハイブリッド射出成形品の断面観察写真を示す。加熱しない場合に比べ、加熱した場合は界面の位置が乱れており、また加熱温度が高いほど、その程度も大きいことが分かる。このことからIRヒーターでインサート材表面が加熱されることにより、インサート材表面に凹凸が形成されたことによるアンカー効果によって界面せん断強度が向上したと考えられ、また剥離の進展も抑制されて剥離の面積も小さくなったことが示唆された。なお界面せん断強度は230℃で加熱した場合が最大値を取り、270℃で加熱すると若干低下した。スプリングバック量は270℃で加熱した際の方が大きく、アンカー効果による接着性向上も期待されたが、これはスプリングバックによる膨張分だけインサート材表面のVfは低下し、アンカー効果に寄与するCFの量も低減したためと考える。また加えて、図13から明らかな通り、270℃ではPP樹脂が熱劣化したことにより、界面のPP樹脂自

Fig. 23 Cross-section observation of interface
(a) : No pre-heating (Condition Code : STD),
(b) : 150°C IR pre-heating (Condition Code : 150 IR), (c) : 230°C IR pre-heating (Condition Code : 230 IR), (d) : 270°C IR pre-heating (Condition Code : 270 IR)

体の強度が低下したためと考えることもできる。なお 3.3 項におけるシリンダー温度の上昇でも同様に PP 樹脂自体の熱劣化は起きているが、シリンダー温度の上昇に伴い界面せん断強度が上昇したことに関しては、PP 樹脂自体の強度低下の影響よりも、界面温度の上昇による接着性向上の影響の方が大きかったためと考える。

3.8 界面温度と界面せん断強度の関係

図 24 には界面温度の最大値と界面せん断強度の関係を示す。インサート材を加熱した場合を除くと、界面温度の最大値の上昇に伴い、界面せん断強度も向上していることが分かる。また界面温度の上昇により、界面せん断強度を向上させるためには、ハイブリッド射出成形の成形条件としては、特にシリンダー温度を上昇させることが効果的であることが明らかになった。Carella ら⁹⁾、Aurrekoetxea ら¹⁰⁾、Candal ら¹¹⁾の研究報告でも射出樹脂の温度上昇により接着強度の向上は報告されているが、射出樹脂温度の上昇が他の条件パラメーターの影響に比べて特別効果的という考察はなされていない。この違いは、本研究ではインサート材が高い熱伝導性を有する CF を含有するため、射出樹脂の熱がより効果的にインサート材の表面に伝わることに起因していると考えられる。

Fig. 24 Relation between maximum temperature of interface and interfacial shear strength

一方でインサート材を加熱した場合、界面温度の上昇の効果を上回るほど高い界面せん断強度を発現した。過度なシリンダー温度の上昇は、図 13 から示唆されるように樹脂の熱分解の懸念があるため、ハイブリッド射出成形における界面接着性の向上には、インサート材の加熱がもっとも有効な手段の 1 つであると示唆される。

4. 結 言

ハイブリッド射出成形における成形条件がインサート材と射出材の界面接着性に及ぼす影響について調査した。結果、界面接着性の向上には、“①射出樹脂の温度上昇”、“②射出速度の上昇”、“③インサート材の加熱”が効果的であることが明らかになった。本研究では金型内にセンサーを取り付け、インサート材と射出樹脂の接着時の界面の温度・圧力を計測した。計測結果より、①射出樹脂の温度上昇”、“②射出速度の上昇”による界面接着性の向上は、接着時の界面温度の上昇が支配的に影響を及ぼしており、一方で接着時の圧力は界面接着性への寄与は小さいことが明らかになった。また“③インサート材加熱”による界面接着性の向上に関しては、射出時には既に加熱されたインサート材の温度は下がっており、加熱の有無による界面温度の変化は見られなかった。“③インサート材加熱”による界面接着性の向上は、加熱によりインサート材表面が荒れることによるアンカー効果で接着性が向上していることが示唆された。

参 考 文 献

- 1) 独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構：「サステナブルハイパーコンポジット技術の開発」成果報告書，(2013)
- 2) 高橋淳，鶴澤潔，松尾剛，山根正睦：未来材料，**13**(1)，36 (2013)
- 3) 山根正睦編著：熱可塑性 CFRP 技術集 - 材料・成形・加工・リサイクル -，サイエンス&テクノロジー (2015)
- 4) Thomason, J. L. : *Composites Part A*, **38**, 210 (2007)
- 5) 仲井朝美：成形加工，**27**(3)，77 (2015)
- 6) 浅沼信行：成形加工，**27**(3)，89 (2015)
- 7) 伊澤横一：プラスチックエージ，**62**(1)，40 (2016)
- 8) Karsil, N. and Aytac, A. : *Materials and Design*, **32**(7)，4069 (2011)
- 9) Carella, A. R, Alonso, C., Merino, J. C. and Pastor, J. M : *Polymer Engineering and Science*, **42**(11)，2172 (2002)
- 10) Aurrekoetxea, J., Castillo, G., Sarrionandia, M. A. and Urrutibeascoa, I. : *Journal of Applied Polymer Science*, 102, 261 (2006)
- 11) Candal, M. V., Gordillo, A., Santana, O. O. and Sanchez, J. J. : *Journal of Materials Science*, 43, 5052 (2008)
- 12) 大石正樹，大谷章夫，仲井 朝美：成形加工，**29**(4)，135 (2017)
- 13) Kissin, Yu V., V. I. Tsvetkova, and N. M. Chirkov. : *Polymer Science USSR*, **10**(5)，1265 (1968)