フィルムインサート成形における界面構造 および界面特性に及ぼす成形条件の影響

山口 進^{*1}・濱田 泰以^{*2}・Umaru Semo Ishiaku^{*2}・Leong Yew Wei^{*2}・
 辻井 哲也^{*3}・溝口 真知子^{*4}

Effects of Molding Conditions on Interfacial Structure and Properties of Film Insert Molding

Yamaguchi, Susumu^{*1}/Hamada, Hiroyuki^{*2}/Umaru Semo Ishiaku^{*2}/Leong Yew Wei^{*2}/
 Tujii, Tetsuya^{*3}/Mizoguchi, Machiko^{*4}

The effects of molding conditions on interfacial adhesion and the structure of film insert injection moldings which consist of laminated PP film and PP resin were investigated. The film peel test was carried out to evaluate the interfacial adhesion properties. Three types of fracture modes were observed in the peel test. One was the interfacial delamination between film and injected PP which occurred when the film surface was heated below the melting temperature of the film (= 130°C) during injection molding. The other fracture modes were delamination between film layers of the film and film breakage. When the film surface was heated above 150°C, the molecular orientation in the film relaxed due to annealing effects by the heat from the injected PP resin, which caused a decrease in the strength of the film. On the contrary, when the film surface was heated between 140 and 150°C, no annealing occurred and because the molecular orientation of the film was not relaxed, the original strength of the film was maintained. Consequently, delamination between film layers occurred.

Key words : Film insert molding/Polypropylene/Peel test

1. 緒 言

自動車内装部品の商品力向上として、水圧転写による木

目調意匠や塗装によるメタリック外観によって、センタークラスター等の内装部品の表面加飾が行われている。これらの加飾工法は、部品の成形後に別工程で行われるため、一般にコストが高く、塗料に含まれる有機溶剤による作業環境の悪化が懸念される。これらの理由から、フィルムインサート成形を用いた成形同時加飾工法の採用が進んできている。本工法は塗装などの従来からの加飾工法より低コストであり、また有機溶剤による人体や環境への悪影響もない。

一方、これらの部品には、高い耐衝撃性が要求されるため、塗装向けにはPC/ABSが多く採用されている。また、塗装を行わない部品には、コストの面からPPが使用されることが多い。今後、環境面やさらなる低コスト化を考慮すると、材料の統一化やリサイクル性の向上が必要である。したがって、より低コストで内装部品の加飾を行うためには、フィルム、射出樹脂ともPPを使用することが必要であると考えられる。

フィルムインサート成形はフィルムを金型にインサートした状態で金型を閉じ、そこに樹脂を射出成形する成形方

^{*1} ダイハツ工業株式会社 材料技術部
 滋賀県蒲生郡竜王町山之上 3000 (〒520-2593)
 Materials R&D Dept. Daihatsu Motor Co., Ltd.,
 3000, Yamanoue, Ryuo, Gamo, Shiga 520-2593, Japan
^{*2} 京都工芸繊維大学大学院 先端ファイブ科学専攻
 京都市左京区松ヶ崎御所海道町 (〒606-8585)
 Kyoto Institute of Technology
 Matsugasaki, Sakyo-ku, Kyoto 606-8585, Japan
^{*3} パーキンエルマージャパン(株)
 吹田市豊津町 5-3 (〒564-0051)
 Perkin Elmer Japan Co., Ltd.,
 5-3, Toyotsu-cho, Suita, Osaka 564-0051, Japan
^{*4} 山形大学工学部 機能高分子工学科
 米沢市城南 4-3-16 (〒992-8510)
 Dept. of Polymer Science and Engineering, College of
 Engineering, Yamagata University
 Jonan, Yonezawa, Yamagata 992-8510, Japan
 2003. 12. 24 受理

法である。したがって、フィルムと樹脂の接着が必要であり、その接着界面は製品の性能へ影響を及ぼすものと考えられる。

PP 樹脂の熱融着に関する研究としては、DRI 法における溶着強度に及ぼす材料の組み合わせおよび成形条件の影響についての検討¹⁾、複合射出成形におけるウェルド強度に関する研究^{2)~6)}、また成形後に 2 次加工として、レーザー溶着法や振動溶着法が開発されており、これらの工法における溶着メカニズムや溶着強度に関する研究^{7),8)}も行われている。また、フィルムの接合に関しては、辻井らによってヒートシーラーによる包装フィルムの接合強度に及ぼす成形条件の影響について研究が行われている^{9)~12)}。しかし、フィルムインサート成形におけるフィルムと射出樹脂の界面に関する研究はこれまで行われていないのが現状である。

そこで本研究では、射出樹脂に PP、フィルムにも PP を用いた、フィルムインサート成形における樹脂とフィルムの界面接着性に及ぼす成形条件の影響を検討した。界面接着性はフィルムのはく離試験により評価を行ない、はく離強度および破壊挙動を明らかにした。また、成形条件によって異なる破壊挙動を示すのは、フィルムに与えられる熱履歴によるものであると考えられるため、フィルムおよび射出樹脂の熱的特性を示差走査熱量計で測定し、はく離挙動に及ぼす成形条件の影響を検討した。

2. 実験方法

2.1 材料

本研究では、射出樹脂にブロック PP (三井化学製 J 104 WA) を用いた。フィルムには 2 種の PP からなるラミネートフィルムを使用した。ラミネートフィルムは、3 層構造であり、2 軸延伸したフィルム (以下 OPP フィルム; 東洋紡製パイレンフィルム OT P-2161) および無延伸フィルム (以下 CPP フィルム; 東洋紡製パイレンフィルム OT P-1128) をウレタン接着剤で接着した構造となっている。それぞれの厚みは、OPP が 20 μm 、CPP が 25 μm 、接着層は 5 μm である。

OPP フィルム、CPP フィルム、OPP と CPP のラミネートフィルムおよび射出樹脂の熱的特性を示差熱量計 (以下、DSC; パーキンエルマー製 DSC 7) にて測定した。DSC 測定は、30℃ から 200℃ まで 10℃/min で昇温中に測定し、200℃ で 5 分間保持した後、30℃ まで 10℃/min で降温中に測定した。測定は窒素雰囲気下で行った。

図 1 に OPP フィルムおよび CPP フィルムの DSC 測定結果を示す。OPP フィルムは昇温中に約 167℃ 付近に融解に伴う吸熱ピークが現われた。CPP フィルムは昇温中に約 147℃ でブロードな吸熱ピークが現われた。ラミネートフィルムおよび射出樹脂の DSC 測定結果を図 2 に示す。ラミネートフィルムは、昇温中に 120℃ 付近から吸熱が開始していることが分かり、約 147℃ でブロードな吸熱ピークが現われ、さらに約 167℃ 付近にも吸熱ピークが現われた。147℃ のピークは CPP の結晶融解ピークであり、167℃ のピークは OPP の結晶融解に伴うピークであると考えられる。降温時には 125℃ 付近から発熱が開始し、約 117℃ でピークが現われた。さらに、110℃ 付近からも発熱が開始しており、約 103℃ で発熱ピークが現われた。117℃ 付

Fig.1 DSC chart of OPP and CPP films

Laminated film

Injected PP

Fig.2 DSC charts of laminated film and injected PP

近のピークは OPP の結晶化ピークであり、103℃ のピークは CPP の結晶化ピークであると考えられる。また、射出樹脂の場合は、昇温時に 143℃ 付近から結晶融解に伴う吸熱が開始し、約 169℃ で吸熱のピークが現われた。降温中には約 125℃ から結晶化に伴う発熱が開始し、結晶化ピークは 117℃ であった。

2.2 成形方法

成形品の形状は、図 3 に示す $\phi 100$ mm の円形平板とした。金型の可動型に $\phi 100$ mm の円形状に切り出したラミネートフィルムを粘着テープで固定し、金型を閉じた後に射出成形することで、フィルムインサート成形品を得た。射出成形機は日本製鋼所製 J 110 ELⅢ型を用い、表 1 に示すとおり、シリンダー温度 200, 210 および 220℃、射出

Fig. 3 Specimen geometry

Table 1 Molding conditions

Cylinder temp.	200, 210, 220°C
Injection speed	10, 40, 70 mm/s
Holding pressure	25 MPa
Holding time	15 s
Mold temp.	40°C

速度 10, 40 および 70 mm/s, 保圧圧力 25 MPa, 保圧時間 15 s の条件で成形を行った。なお, 図 3 に示す位置にサーモラベル (日油技研工業製スーパーミニ 3 R, 精度 $\pm 2^{\circ}\text{C}$) を貼付し, 成形時の CPP フィルム表面の温度を測定した。

2.3 界面特性の測定

ラミネートフィルムと射出樹脂の界面における接着性の評価として, フィルムのはく離試験 (180° 方向) を行った。試験片は, 図 4 に示すとおり, フィルムのはく離方向が材料流れ方向と平行になるように試験片の中央部から, 幅 10 mm, 長さ 55 mm の寸法で切り出した。試験は, インストロン万能試験機 (4466 型) を用い, 試験速度 50 mm/min, チャック間距離 35 mm とし室温下にて行った。

2.4 内部構造の観察

界面付近の結晶構造の観察には, 透過型電子顕微鏡 (以下, TEM; 日立製作所製 H-8100 型) を用いた。サンプルは冷却装置付きのミクロトーム (LEICA 社製 REICHERT ULTRACUT-S 型および Sorvall 社製 Sorvall MT 2-B 型) を用い, 液体窒素にて成形品を -30°C に冷却し, 厚み約 100 nm になるように薄片を切り出した。サンプルの採取位置は, 図 5 に示すとおりである。スライスした薄片は観察前に RuO_4 にて室温で 10 時間染色を行った。観察条件は, 加速電圧 100 kV, 観察倍率 150000 倍とした。

3. 実験結果

3.1 はく離試験

図 6 にシリンダー温度 200, 210 および 220°C で, 射出速度 10 mm/s で成形したフィルムインサート成形品の荷重-変位線図を示す。シリンダー温度が 200°C では, 試験

Fig. 4 Location of the specimen for peel test

Fig. 5 TEM observed section

Fig. 6 Load-displacement curves of peel test (Injection speed 10 mm/s)

開始から荷重は増加し, 変位 2 mm で最大値約 7 N を示した。その後, ラミネートフィルムは射出樹脂からはく離し (以下, 界面はく離), 変位約 40 mm でラミネートフィルムと射出樹脂は完全に分離した。シリンダー温度 210°C の場合には試験開始から荷重が増加し変位 6 mm で最大値を示した。その後荷重はほぼ一定の値を示した。このときラミネートフィルムは延伸されていた。その後, 変位約 40 mm で荷重は急激に低下し, ラミネートフィルムの接着層ではく離が生じた (以下, フィルム接着層はく離)。シリンダー温度 220°C の場合には試験開始から荷重が増加し, 変位 10 mm で約 12 N に至り, ラミネートフィルムは降伏した。その後, 荷重は 7~10 N でほぼ一定値を示し, 変位が約 150 mm でラミネートフィルムが破断した (以下, フィルム破壊)。以上の結果から, 破壊形態は表 2 に示すとおり界面はく離, フィルム接着層はく離, フィルム破壊の 3 つに分けることができる。このような破壊形態はラミネートフィルムと射出樹脂間の界面強度, ラミネートフィルムの接着層強度, ラミネートフィルム強度の大小関係に

Table 2 Fracture modes in peel test

	①Interfacial delamination	②Adhesive delamination	③Film breakage
Fracture mode	 	 	
Typical load-displacement curve			
Strength	Film > Adhesive > Interface	Film > Interface > Adhesive	Interface > Adhesive > Film

よって生じると考えられる。すなわち、界面はく離が生じる場合には界面強度が最も低いこと、ラミネートフィルムの接着層ではく離が生じる場合にはラミネートフィルム接着層の強度が最も低いこと、ラミネートフィルム破壊を生じる場合にはラミネートフィルム強度が最も低いことが推察される。

図7にシリンダー温度 200, 210 および 220℃, 射出速度 10, 40 および 70 mm/s のそれぞれの条件で成形したフィルムインサート成形品のはく離試験における荷重-変位曲線を示す。シリンダー温度が 200℃ の場合, 射出速度 40 mm/s では, 10 mm/s の場合と同様の荷重-変位曲線を示し, 界面ではく離が生じた。シリンダー温度 200℃, 射出速度 70 mm/s およびシリンダー温度 210℃, 40 mm/s では, 先述のシリンダー温度 210℃, 10 mm/s の場合と同様の荷重-変位曲線を示し, 試験中にフィルム接着層はく離が生じた。シリンダー温度 210℃, 射出速度 70 mm/s およびシリンダー温度 220℃, 射出速度 40 mm/s の場合には, 先述のシリンダー温度 220℃, 射出速度 10 mm/s の場合と同様の荷重-変位曲線を示し, 変位が約 150 mm の時にラミネートフィルムが破断した。

以上のとおり, 本研究で行ったすべての成形条件において, はく離試験における破壊挙動は前述の通り, ①ラミネートフィルムと射出樹脂の界面はく離, ②ラミネートフィルムの接着層はく離, ③ラミネートフィルム破断の3つのパターンに分類できることが明らかとなった。成形条件と破壊形態を表3にまとめて示す。シリンダー温度が低く, 射出速度が遅い場合には界面はく離が生じ, シリンダー温度が高くなり, 射出速度が速くなるとフィルム接着層はく離が生じ, さらにシリンダー温度が高くなるとフィルム破壊が生じることがわかった。表4に各成形条件におけるはく離強度を示す。界面はく離が生じた場合は約 0.8 kN/m で

Fig. 7 Load-displacement curves of peel test

Table 3 Fracture modes in peeling test

Injection speed Cylinder temp.	10 mm/s	40 mm/s	70 mm/s
200℃	×	×	△
210℃	△	△	○
220℃	○	○	—

× : Interfacial delamination
 △ : Adhesive delamination
 ○ : Film breakage
 — : No data

Table 4 Peel strength of each specimen

Unit : kN/m			
Injection speed Cylinder temp.	10 mm/s	40 mm/s	70 mm/s
200℃	0.8	0.8	>1.26
210℃	>1.26	>1.31	>1.18
220℃	>1.15	>1.14	—

Table 5 Maximum temperature on film surface in each molding condition

Injection speed Cylinder temp.	10 mm/s	40 mm/s	70 mm/s
200℃	110℃	120℃	130℃
210℃	130℃	130℃	150℃
220℃	140℃	140℃	—

□ : Interfacial delamination
 ■ : Adhesive delamination
 □ : Film breakage
 — : No data

あり、フィルムの接着層はく離およびフィルム破断が生じた場合は、それぞれはく離強度はフィルムの接着層強度および破壊強度より高いことが示され、それぞれ 1.1 kN/m 以上であると考えられる。なお、1.1 kN/m はフィルムの推定強度である。

3.2 フィルム表面温度測定

サーモラベルを用いて成形時における CPP フィルム表面温度を測定した。各成形条件において、樹脂を射出した際の CPP フィルム表面の最高到達温度を測定した結果を表 5 に示す。はく離試験において界面はく離が生じたシリンダー温度 200℃、射出速度 10 および 40 mm/s の条件では、CPP フィルム表面温度は 120℃ 以下であった。それ以外の界面はく離が生じない成形条件では、CPP フィルム温度は 130℃ 以上であった。界面はく離が生じない条件で、フィルムの破壊状態でさらに分類すると、ラミネートフィルムの接着層はく離が生じる場合は CPP フィルム表面温度 130℃、フィルム破断が生じる場合は 140℃ 以上に達していることがわかった。

3.3 内部構造の観察

図 8 にはく離試験で界面はく離が生じた CPP フィルム表面温度 120℃、はく離試験で界面はく離が発生しなかった CPP フィルム表面温度 130 および 140℃ となった試験片の TEM 観察結果を示す。CPP フィルム表面温度が

Film surface temp. = 120℃

Interface

Film surface temp. = 130℃

Interface

Film surface temp. = 140℃

Interface

Fig. 8 TEM observation of the interface

120℃ の場合、射出樹脂と CPP フィルムの間に空隙が存在し、明確な界面が観察される。一方、CPP フィルム表面温度が 130℃ 以上の場合、この空隙は観察されず、相互拡散していることが観察される。すなわち、CPP フィルムと射出樹脂の間の界面が消失していると言える。

4. 考 察

表 2 に示したとおり、はく離試験では 3 種類の破壊形態が観察された。CPP フィルム表面温度が 120℃ 以下の場合には界面はく離が生じ、130℃ の場合はフィルム接着層はく離が生じ、140℃ 以上の場合にはフィルム破断が生じていた。このような破壊形態はフィルムと射出樹脂間の界面強度、ラミネートフィルムの接着層強度、ラミネートフィルム強度の大小関係によって生じると考えられる。この強度の大小関係は、フィルムと射出樹脂界面近傍の熱履歴によるものであり、熱によってラミネートフィルム強度および界面強度が変化し、結果として破壊形態が変化するものと考えられる。CPP フィルム表面温度が 120、130 および 140℃ の場合のフィルムと射出樹脂の界面形成メカニズムの模式図を図 9 に示す。成形時の CPP フィルム表面が 120℃ の場合、図 2 に示すとおり CPP の融解開始が 120℃ であるため、ほとんど融解していない状態である。さらに、120℃ では射出樹脂は固化しはじめている状態である

Fig.9 Interface formation mechanism

と考えられる。このため、図8に示すとおり、フィルムと射出樹脂が相互拡散せず、接着されないため、明確な界面が観察される。したがって、はく離試験において界面はく離が生じたものと考えられる。

CPP フィルム表面が 130°C の場合、CPP フィルム表面は射出樹脂の熱によって溶解され、射出樹脂と十分に混ざり合うため、良好な接着性を有する界面が形成される。しかし、射出樹脂から与えられた熱は、CPP フィルム表面のみを融解させるが、OPP フィルムとの接着層にまでは影響を与えないと考えられる。したがって、接着層の強度は変化せず、最も強度が低い接着層が破壊するため、接着層はく離が生じたものと考えられる。

CPP フィルム表面温度が 140°C の場合、CPP フィルム表面温度 130°C の場合と同様に、CPP フィルム表面は射出樹脂の熱によって溶解され、射出樹脂と相互拡散するため、良好な接着性を有する界面が形成される。しかし、射出樹脂の熱によって、OPP フィルムとの接着層側まで融解させ、融解した OPP フィルムは接着層の表面形状に沿った形状に変化する。このため、接着層の強度が向上する。接着層強度の向上により、界面強度が最も低くなり、界面はく離が生じると考えられる。しかし、実際の成形品では、強度が最も高いと考えられるラミネートフィルムの破壊が発生した。この原因として、射出樹脂の熱によって、ラミネートフィルムの強度が低下していることが考えられる。

そこで、ラミネートフィルムに成形時とはほぼ同じ熱履歴を与えた後、ラミネートフィルムの引張試験および熱的特性の測定を行った。ラミネートフィルムへ熱履歴を与える方法として、ヒートシーラー（富士インパルス製 OPL-300-10 型）を用いた。図 10 に熱履歴を与える方法の概略図を示す。射出樹脂に接触する CPP 面がヒーター側になるようにラミネートフィルムをセットした。実際の成形では、金型内にフィルムを粘着テープで固定し、フィルムの収縮が発生しないようにしているため、ヒートシーラーによる熱履歴付与時にも、ラミネートフィルムが収縮しないように、フィルム両端を両面テープで治具に固定した。この状態で、プレスすることによりヒーターが加熱状態となり、CPP の表面に熱を加えることができる。加熱条件は室温

Fig.10 Method of annealing

Fig.11 Tensile load-displacement curves of annealed films

から最高温度 110~160°C まで 2 秒間で加熱し、最高温度で 5 秒間保持した後に自然冷却した。

このようにして、熱履歴を与えたラミネートフィルムを用いて、引張試験を行い、熱によるラミネートフィルム物性の変化を検討した。引張試験はインストロン万能試験機（4466 型）を用い、試験速度 50 mm/min、チャック間距離 35 mm として室温で行った。

図 11 に熱履歴を与えたラミネートフィルムの引張試験結果を示す。熱履歴を与えないラミネートフィルムおよび 100~120°C の熱履歴を与えたラミネートフィルムは、試験開始後、変位が約 5 mm まで荷重は線形的に約 14 N まで増加した。その後、荷重増加は緩やかになり変位 20~30 mm で最大荷重 15~16 N を示した後、急激な荷重低下とともにラミネートフィルムは破断した。130°C の熱履歴を与えた場合は、試験開始後、変位約 5 mm まで荷重は線形的に約 13 N まで増加した。ここで、降伏しネッキングが発生した。この後は荷重の増減はほとんどなく、変位 40 mm で急激な荷重低下とともにラミネートフィルムは破断した。140 および 150°C の熱履歴を与えた場合は、130°C の場合と同様に変位約 5 mm、荷重約 13 N までは線形的な荷重増加を示した時点で降伏し、ネッキングが生じた。ここで、荷重は約 10 N まで低下した後、ほぼ一定値を示し

Fig. 12 Relationship between load at break and annealing temperature

Fig. 13 Relationship between displacement at break and annealing temperature

ながらラミネートフィルムは延伸された。変位が約 150～170 mm で急激な荷重低下を示し、ラミネートフィルムは破断に至った。160℃ の熱履歴を与えた場合は、140、150℃ の場合と降伏までは同様の傾向を示したが、その後延伸はほとんどなく変位 40 mm で急激な荷重低下とともに破断した。

図 12 に熱履歴を与えたラミネートフィルムの引張試験における、破断時の荷重と熱履歴温度の関係を示す。また、同時にはく離試験におけるフィルム破断荷重と CPP フィルム表面温度の関係を示す。フィルム破断時の荷重は、熱履歴温度 110℃ 以下では、熱履歴を与えない場合とほぼ同等の破断荷重である。120℃ 以上では、熱履歴温度の上昇にともない、低下する傾向であることが分かる。また、120℃ の場合は熱履歴を与えたラミネートフィルムとはく離試験の結果は一致していないが、130 および 140℃ においては、両者はほぼ一致した結果である。

図 13 に熱履歴を与えたラミネートフィルムの引張試験における、破断時の変位と熱履歴温度の関係を示す。また、同時にはく離試験におけるフィルム破断変位と CPP フィルム表面温度の関係を示す。熱履歴温度が 130℃ 以下および 160℃ の場合は、熱履歴を与えない場合とほぼ同等の破断伸びを示すが、140 および 150℃ においては、熱履歴を与えない場合のほぼ 5 倍程度の高い値を示す。また、熱履歴を与えたラミネートフィルムとはく離試験での破断変位は、ほぼ一致した結果である。

これらの結果より、熱履歴を与えたラミネートフィルムの引張試験および先述のはく離試験における、荷重-変位

Fig. 14 DSC chart of annealed and the original films

線図の傾向は、ほぼ一致した結果であることがわかる。なお、CPP フィルム表面温度が 120℃ 以下であり、はく離試験で界面はく離した場合は、熱履歴を与えたラミネートフィルムの引張挙動とは一致していない。

図 14 に熱履歴を与えたラミネートフィルムの DSC 測定結果を示す。熱履歴温度 130℃ 以下では、CPP の融解に起因する 147℃ 付近のピークと、OPP の融解に起因する 160℃ および 167℃ 付近のピークが存在する。熱履歴温度が 140℃ 以上の場合、CPP の融解に起因するピークには変化は認められないが、OPP の融解に起因するピークは 160℃ 付近にのみ現われた。つまり、熱履歴によって、CPP の熱的特性はほとんど変化していないが、OPP では 167℃ 付近の融解ピークは低温側へシフトし、160℃ 付近での融解ピークのみとなる。このことは、本研究と同じ PP ラミネートフィルムを用いたヒートシーリングに関する研究¹³⁾で、示差熱分析および熱機械測定により OPP の分子配向緩和であることが示されている。本研究においても、ラミネートフィルムが加熱されることにより、OPP の分子配向の緩和が発生し、融解ピークの低温下が生じたものと考えられる。このため、ラミネートフィルムの強度が低下したと考えられる。したがって、CPP フィルム表面温度が 140℃ の場合、ラミネートフィルムの強度低下により、ラミネートフィルムが成形品の中で最も強度が低くなり、フィルム破壊が生じたものと考えられる。

以上のことから、フィルムインサート成形において、フィルムと樹脂界面の高い接着強度を得るためには、フィルムと樹脂が接触する時の温度が重要であるといえる。図 15 にラミネートフィルムの DSC チャートを示す。この図の右縦軸はパーセントエリアを示している。パーセントエリアとは、全融解エンタルピーに対する、ある温度までに必要とされたエンタルピーの比を示している。ここで、フィルムと射出樹脂の界面接着が可能であった 130℃ に注目すると、フィルムの昇温時における全吸熱エンタルピーに対して、約 20% の吸熱エンタルピーが発生している。すなわち、フィルムは約 20% 融解しているといえる。また、射出樹脂の降温時のチャート（図 2 参照）より射出樹脂は固化せず、融解した状態であることがわかる。このようにフィルムのうち約 20% が溶解し、かつ射出樹脂が融解状態であるとき、界面の接着は可能であるといえる。また、フィルムの種類や成形条件によっては、フィルム表面温度

Fig.15 DSC chart and percent area of melting enthalpy of laminated film

が高くなり分子配向が緩和することで、フィルム強度が低下することが考えられる。したがって、本研究で用いたフィルムと異なる場合においても熱分析を行い、融解開始温度を測定することで、界面接着が可能な成形条件を決定することができると考えられる。

5. 結 言

本研究では、PP フィルムと PP 樹脂を用いたフィルムインサート成形品における界面特性と界面構造に及ぼす成形条件の影響について検討を行った。

その結果、フィルム表面が射出樹脂によって、フィルム表面が 130℃ 以上に加熱された場合、フィルムは融解し、この時、射出樹脂が融解した状態であるため、フィルムと射出樹脂が相互拡散し、界面の接着性が良くなることが明らかとなった。この場合、界面強度がフィルム強度、フィルム内部の接着層強度より高くなるため、界面はく離は生じないことがわかった。

また、フィルム表面温度によって、フィルムの破壊形態は変化することがわかった。フィルムの表面温度が 140℃ 以上の場合、フィルムの配向が緩和され、フィルム強度がフィルム内部の接着層強度より低下する。この場合、はく離試験ではフィルム破断が発生する。フィルム表面温度が 130℃ の場合は射出樹脂の熱による影響が小さく、フィ

ルムの分子配向の緩和はほとんどなく、フィルムの強度は保持されるため、フィルム内部の接着層強度が最も低く、この部分ではく離が生じる。

フィルムインサート成形において、高い界面接着強度を得るための成形条件は、材料の熱分析による融解開始温度の測定によって決定できると考えられる。

参 考 文 献

- 1) 山口 進：成形加工, **11**(5), 440(1999)
- 2) 北山威夫, 石倉健太郎, 濱田泰以, 鞠谷雄士, 伊藤浩志：成形加工, **14**(10), 663(2002)
- 3) 森 由紀, 佐藤 勲, 斉藤卓志：成形加工年次大会 '03 予稿集, 169(2003)
- 4) 木之下正史, 丹羽俊夫, 柴田 欧：成形加工, **8**(5), 325(1996)
- 5) Mielewski, D. F., Bauer, D. R., Schmitz, P. J. and Van Oene, H.: *Polymer Engineering and Science*, **38**(12), 2020(1998)
- 6) Yoon, K. and Cho, K. H.: プラスチックプロセス分科会研究会報告書, 2000, **49**(2001)
- 7) Zako, M., Fujihara, M. and Ichikawa, K.: 材料, **49**(5), 541(2000)
- 8) 吉田博次, 山内健司, 松井俊満：高分子論文集, **56**(12), 869(1999)
- 9) 橋本静生, 辻井哲也, 藤田康弘, 北川和男, 溝口真知子, 大久保直人, 濱田泰以：成形加工シンポジア '02 予稿集, 229(2002)
- 10) 辻井哲也, 高橋一好, 榛葉明日香, 森本光彦, 恩田宣彦, 橋本静生, 藤田康弘, 北川和男, 溝口真知子, 大久保直人, 濱田泰以：成形加工シンポジア '02 予稿集, 231(2002)
- 11) 辻井哲也, 恩田宣彦, 藤田康弘, 北川和男, 溝口真知子, 渡辺大祐, 濱田泰以：成形加工, **15**(2), 155(2003)
- 12) 辻井哲也, 橋本静生, 藤田康弘, 北川和男, 溝口真知子, 渡辺大祐, 濱田泰以：成形加工, **15**(3), 237(2003)
- 13) 辻井哲也, 京都工芸繊維大学工芸科学研究科 博士論文, 43(2003)